

名古屋市における PM_{2.5} の測定結果と その傾向について*

久恒 邦裕**・山神真紀子**・池盛 文数**
高木 恭子**・大場 和生**

キーワード ① PM_{2.5} ② イオン成分 ③ 炭素成分 ④ 季節変動

要 旨

2009年度および2010年度に、名古屋市においてそれぞれ3地点でPM_{2.5}の採取を行い、成分分析を行った。PM_{2.5}の重量濃度の日変動は3地点でおおむね一致したが、重量濃度そのものは名古屋市南部では、北部と比較して高い傾向にあった。成分としては、OC、EC、SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺、がその大部分を占めているが、2割前後の重量が不明であった。成分の、地点ごとの日変動も相関の高い成分が多かった。また、炭素成分は道路沿道における影響を顕著に反映したと思われる結果が示された。季節的には、秋季の重量濃度が高濃度となるが多かったが、低くなる季節は地点や年度で異なっていた。

1. はじめに

微小粒子状物質(PM_{2.5})の環境基準が2009年9月に告示され、“1年平均値が15 μ g/m³以下であり、かつ1日平均値が35 μ g/m³以下”と定められた。これは環境省の行ったPM_{2.5}に関する疫学調査等の結果¹⁾に基づいているが、それは主に重量濃度との関係に着目した調査結果であり、成分ごとの健康影響については十分に明らかになっていない。また、PM_{2.5}の削減のためには、発生源の特定などが不可欠である。PM_{2.5}の成分分析は疫学調査の実施や削減対策に欠くことのできない調査項目であるが、継続的な検証はごく一部にとどまっている。

名古屋市においては、2003年度から大気中微小粒子状物質(PM_{2.5})測定方法暫定マニュアル²⁾に基づき、米国の標準測定法(FRM)によるフィルター採取によって重量濃度測定および成分濃度測

定・解析を市内1地点において通年で行ってきた³⁾。

それに加え、2009および2010年度は季節変動や地点の影響について調査するために、市内3地点において4季節ごとに各1カ月間、重量濃度および成分濃度測定を行い、解析を行った。本稿では、その結果を示す。

2. 方 法

2.1 採取期間

2009年度の採取は以下の期間で実施した。

- ・夏季(2009年8月3日～9月4日)
- ・秋季(2009年10月5日～11月2日)
- ・冬季(2010年1月4日～2月1日)
- ・春季(2010年3月1日～3月29日)

2010年度の採取は以下の期間で実施した。

- ・夏季(2010年6月28日～7月28日)

*The Spatial and Seasonal Trend of PM_{2.5} in Nagoya

**Kunihiro HISATSUNE, Makiko YAMAGAMI, Fumikazu IKEMORI, Kyoko TAKAGI, Kazuo OHBA (名古屋市環境科学研究所) Nagoya City Institute for Environmental Sciences

- ・ 秋季(2010年9月27日～10月26日)
- ・ 冬季(2010年11月29日～12月27日)
- ・ 春季(2011年2月28日～3月29日)

2.2 PM_{2.5}の採取と重量測定

PM_{2.5}の採取地点を、**図1**に示す。2009年度は大気汚染常時監視測定局である元塩公園(自動車排出ガス測定局：以下、元塩)、港陽(自動車排出ガス測定局)、南陽支所(一般環境大気測定局：以下、南陽)の3カ所を選定し、2010年度は元塩を継続として、北区役所楠支所(道路沿道：以下、楠)、守山保健所(一般環境大気測定局：以下、守山)の3カ所を選定して測定を行った。なお、楠のみ常時監視測定局ではない。

測定地点近傍の道路状況について以下に示す⁴⁾。元塩は名古屋市南部に位置し、その西側20～30mの場所を国道23号が走っている。この国道の元塩に近い地点では、12時間交通量が平日で約5.6万台、休日で約5.0万台あり、大型車混入率はそれぞれ35.5および8.6%と、名古屋市内における交通量・大型車混入率ともに高い道路に隣接した測定地点である。港陽も名古屋市南部に位置するが、国道23号の北側約400mに位置しており、近辺のデータでは12時間交通量が平日で約5.7万台、休日で約5.2万台であり、大型車混入率はそれぞれ41.4%と11.2%である。また港陽は、国道

154号(12時間交通量平日2.0万台・休日1.7万台、大型車混入率平日11.6%・休日3.4%)に隣接している。楠は名古屋市の北部にあり、名古屋環状2号線(国道302号と名古屋第二環状自動車道の総称)の南方約100mに位置し、国道および高速自動車道を合わせた交通量データは12時間交通量平日7.9万台・休日5.5万台、大型車混入率平日16.2%・休日5.0%である。なお、上記の道路からの距離は交通量情報のある主要な近傍の道路からの距離であり、実際にはさらに細い道路に隣接している。また、一般的な環境としては、名古屋市内南部には工場地帯があり、南北で局所的な排出の影響は大きく異なっている。

2.3 採取方法

PM_{2.5}の採取装置は、元塩ではLV-250(柴田科学(株)製)、他の地点ではFRM-2000(東京ダイレック(株)製)を用いた。いずれの地点も装置を3台設置して、2台は重量およびイオン成分分析用にサポートリング付きPTFE製フィルター(PALL社製；TK15-G3M)を用い、1台は炭素成分の分析用として石英フィルター(PALL社製；2500QAT-UP)を用いた。測定は、大気中微小粒子状物質(PM_{2.5})測定方法暫定マニュアル²⁾に準拠して実施した。流速は16.7L/minで、採取時間を23.5時間としてフィルター交換を24時間サイクルで行い、採取したフィルターは2009年度の夏季および秋季は温度21.5±1.5℃、相対湿度50±5%の室内で、それ以降は温度同条件で相対湿度35±5%の室内で24時間以上静置し、2009年度は10μg感度の天秤で、2010年度は1μg感量の天秤で秤量した。秤量後のサンプルは、イオン分析用は-25℃、炭素成分分析用は-78℃にて保存し、前処理の直前に室温に戻して分析を行った。

2.4 成分分析

炭素成分は、石英繊維フィルターに採取した試料を熱分離光学補正法のSunset社製Carbon Analyzerを用いてIMPROVEプロトコル⁵⁾により分析した。IMPROVEプロトコルでは、温度条件によってOCは4成分(OC1, OC2, OC3, OC4)、ECは3成分(EC1, EC2, EC3)にそれぞれ分離されて検出される。また、熱分解補正OC(pyOC)値が、光学補正によって得られる。炭素成分は以下の式によって求めた。

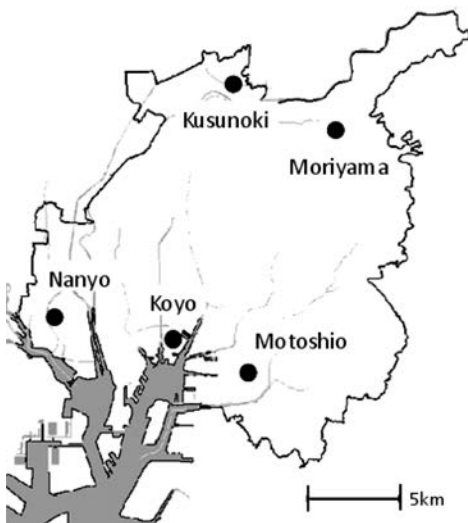


図1 Measurement sites of PM_{2.5} in 2009 and 2010 in Nagoya

OC=OC1+OC2+OC3+OC4+pyOC

EC=EC1+EC2+EC3-pyOC

なお、暫定マニュアル(改訂版)⁶⁾では、採取前に石英繊維フィルターの加熱を行うことが記されているが、加熱処理による活性化によって恒量が難しく有機物の吸着が著しいことが分かっている⁷⁾。一方、加熱前処理をしなくてもブランクス紙の有機炭素のばらつきが非常に小さいことが報告されている⁹⁾。そのため、いずれの採取においても加熱前処理は行わなかった。また、採取中に石英繊維フィルターに吸着するガス状の有機炭素が、OC濃度の30~60%を占めること等が報告されている¹⁰⁾が、本報告での値はそれらのガス状吸着は差し引いていない。

イオン成分(SO₄²⁻, NO₃⁻, Cl⁻, NO₂⁻, C₂O₄²⁻, NH₄⁺, Na⁺, K⁺, Mg²⁺, Ca²⁺)の分析のため、採取したPTFE製フィルターのうち2009年度のサンプルは全量、2010年度のサンプルはその半分を抽出容器に入れて超純水10mlに浸した。その後、超音波を5分以上かけたのちに全体が均一になるように抽出容器を振り、再度、超音波照射を5分以上行った。なお、同じ抽出液を水溶性有機炭素(Water Soluble Organic Carbon: WSOC)測定へ用いることを考え、暫定マニュアル(改訂版)⁶⁾に示してあるエタノール添加は実施しなかった。超音波照射後は、孔径0.2μmのディスクフィルター(東洋濾紙(株)製; DISMIC-25HC)でろ過して、そのうち2mlをイオン成分の分析に用いた。

WSOCの分析は、2010年度の試料のみにつき実施した。イオン成分分析用の抽出液の残り8mlを用いて、装置はTOC-V CPH(株)島津製作所製)を使用し、塩酸を添加せずに全炭素測定モードにて分析を行った。

金属成分(Al, Fe等)の分析は、48~72時間採取したフィルターを圧力容器法⁷⁾に準拠した方法で分解して、Thermo社製ICP-AESを用いて行った。

3. 結果と考察

3.1 基準値の達成状況について

それぞれの期間および地点における重量濃度の平均値および98パーセントイル値を表1に示す。2009年度の元塩の年平均値は21.6μg/m³で、基準値を超えていた。港陽および南陽もそれぞれ19.9μg/m³と18.6μg/m³で基準値を超えていた。2010年度も、元塩、楠および守山でそれぞれ、21.0μg/m³、15.6μg/m³および15.2μg/m³で、いずれも基準を超えていた。2009年度の南部を中心とした調査では、3地点とも高い値を示し、とくに自動車の影響を強く受けると考えられる元塩がもっとも高い値を示した。一方、2010年度の調査では、南部に位置する元塩と、北部に位置する楠、守山の間には大きな差が見られた。楠や守山の値は基準値にかなり近く、日平均値の98パーセントイル値はそれぞれ33.1μg/m³と33.8μg/m³となっており基準値である35μg/m³を下回っていることから、今後、名古屋市北部においては環境基準の達成が期待される。

採取場所は異なるが、元塩に近い名古屋市環境科学研究所(元塩より北へ約2km)において山神らによって観測された2003年度から2007年度までのPM_{2.5}の1年平均値の値³⁾は25.9μg/m³(2003年度)から21.9μg/m³(2007年度)まで緩やかに減少している。ただし、減少の要因としては自動車排出ガス規制の影響とともに大型車交通量の低下が指摘されているが、これは経済情勢なども密

表1 The means of PM_{2.5} in each sampling site

(μg/m³)

	2009 ¹⁾			2010 ¹⁾			
	Motoshio	Koyo	Nanyo	Motoshio	Kusunoki	Moriyama	
Mean value of the year	21.6	19.9	18.6	21.0	15.6	15.2	
98 th percentile of daily mean ²⁾	48.0	46.2	43.4	41.4	33.1	33.8	
Seasonal mean value	Summer	19.4	16.4	17.2	20.7	14.4	13.9
	Autumn	27.2	24.4	23.2	20.4	18.6	18.5
	Winter	19.5	19.3	17.0	18.3	17.3	14.8
	Spring	20.9	20.2	17.5	25.0	11.9	13.1

¹⁾ Fiscal year from April to March of next year.

²⁾ The value that including during the period of specific phenomena such as the yellow sand.

接に絡むことから、今後も継続した観測が必要だと考えられる。

3.2 重量に占める成分について

各成分が重量濃度に占める割合は地点や季節などにより序列は変動するものの、OC, EC, SO₄²⁻, NO₃⁻, NH₄⁺, がいずれもその上位を占めており、地点・季節で平均をとってみると上記5種で質量濃度の6～8割を占めた(図2)。有機物の質量をOCの1.4倍¹¹⁾と見積もり、またICP-AESでの分析による金属成分も重量濃度中のうち数%程度確認されていることから、残りの1～3割程度が今回分析対象とした炭素成分や無機水溶性成分以外の成分(以下、未知成分)である。その割合が無視できないものであることから、PM_{2.5}削減や発生源の特定などのためには、未知成分の測定が必要だと考える。

3.3 地点および季節ごとの傾向

一例として、2009年度と2010年度の夏季の日変動の測定結果をグラフに示す(図3)。また、それぞれの年度、期間、測定地点ごとの平均値は表1に示す。グラフからは、それぞれの年度における3地点の濃度変動がおおむね一致していることが確認できる。一部、変動が一致しない日もあったが、これは局所的な排出等の影響があったと推定する。

元塩に対する他2地点との相関係数をとってみると、2009年度夏季の港陽が0.90(n=32)で南陽は0.81(n=31)であり、秋季はそれぞれ0.93(n=27)と0.88(n=27)、冬季が0.97(n=27)と0.95(n=27)

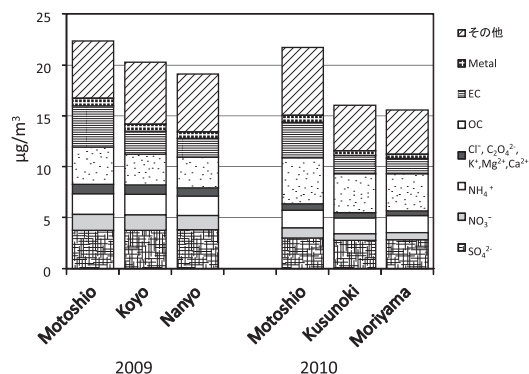


図2 PM_{2.5} mass closure in the three sites in each year

=28), 春季が0.93(n=27)と0.93(n=28)となっている。同様に2010年度は、夏季が楠と守山でそれぞれ0.57(n=29)と0.61(n=28), 秋季が0.93(n=28)と0.91(n=27), 冬季が0.92(n=26)と0.90(n=27), 春季が0.60(n=22)と0.56(n=25)となった。

他の組み合わせについても整理するため、地点間の距離とその相関をプロットしたものを図4に示した。地点間の距離は2009年度の〈元塩—港陽〉が3.9km, 〈元塩—南陽〉10.6km, 〈港陽—南陽〉が6.9kmであり, 2010年度の〈元塩—楠〉が16.1km, 〈元塩—守山〉が14.1km, 〈楠—守山〉が5.7kmであった。図4の重量濃度のグラフを見ると2010年度の夏季と春季を除くと, 距離が離れることで相関係数はやや小さくなるものの, 本稿で調査した地点間距離の範囲では距離が離れても, 相関が大きく変動することはなかった。2010年度の夏季(図4●)については図3の下に示すとおり測定初日(2010年6月28日)に元塩で高い濃度が観測されており, これが相関係数の低下を招いた。そこで当該日を除いた残りの日で元塩に対する相関係数をとると, 楠が0.95(n=28)で守山が0.94(n=27)といずれも高い値であった。ま

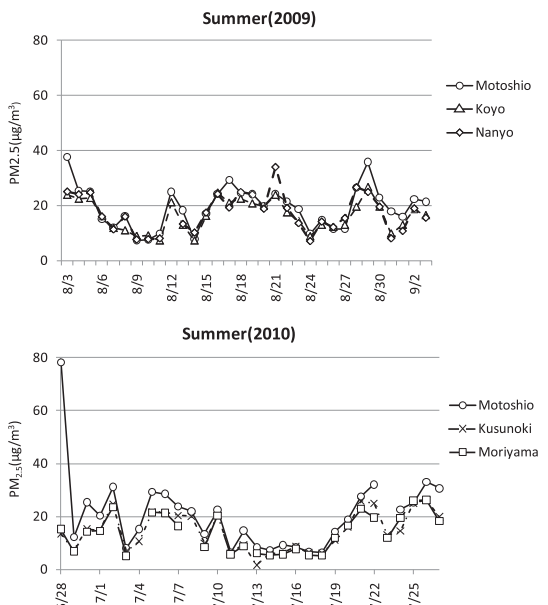


図3 Daily concentration of PM_{2.5} in summer 2009 and 2010

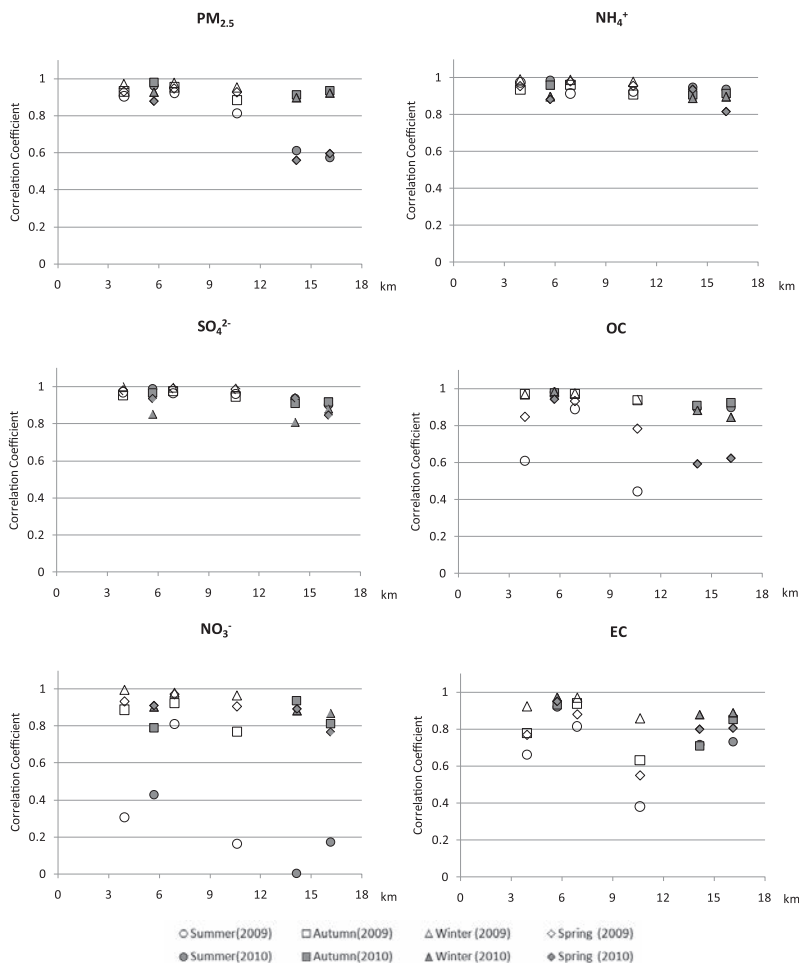


図4 Plots of correlation coefficient of PM_{2.5}, SO₄²⁻, NO₃⁻, NH₄⁺, OC and EC and distance of each site. 〈Motoshio-Koyo〉 are 3.9km distant, 〈Kusunoki-Moriyama〉 are 5.7km, 〈Koyo-Nanyo〉 are 6.9km, 〈Motoshio-Nanyo〉 are 10.6km, 〈Motoshio-Moriyama〉 are 14.1km, 〈Motoshio-Kusunoki〉 are 16.1km.

た、2010年度春季(図4◆)についても、他と比較すると低い相関係数が示された。この期間には表1からわかるとおり、元塩の重量濃度の値が楠や守山と比較してかなり高い。他の季節や年度では、3点の重量濃度はおおむね近い値を示しているが、2010年度春季のみ他とは異なる結果が確認できており、この期間の元塩のみ近傍で局所的な排出などがあったと推察される。

この期間(2010年度春季)に元塩で重量濃度と相関のある成分はNH₄⁺(0.77:n=26), C₂O₄²⁻(0.76:n=26), WSOC(0.77:n=26)であった(括弧内は相関係数)。それぞれの相関図を図5に示す。未知成分の重量割合は、2010年の元塩で

夏季、秋季および冬季がそれぞれ28%、16%および19%なのに対して、春季は49%と圧倒的に増えている。2009年度の元塩の春季の未知成分の割合が25%であることから、2010年度の未知成分が大幅に増加していることが分かる。元塩の特異的な質量濃度増加には未知成分が大きくかかわっていると推察でき、相関のある成分がC₂O₄²⁻やWSOCなどの含酸素有機物であることから、燃焼や有機物の二次生成に関連が深いと考えられる。

年度ごとに、地点間の成分相関を比較するため、重量濃度と同様に地点間距離-相関係数(図4)をみると、SO₄²⁻, NH₄⁺は年度や地点の組み合わせにかかわらず高い相関係数(0.8以

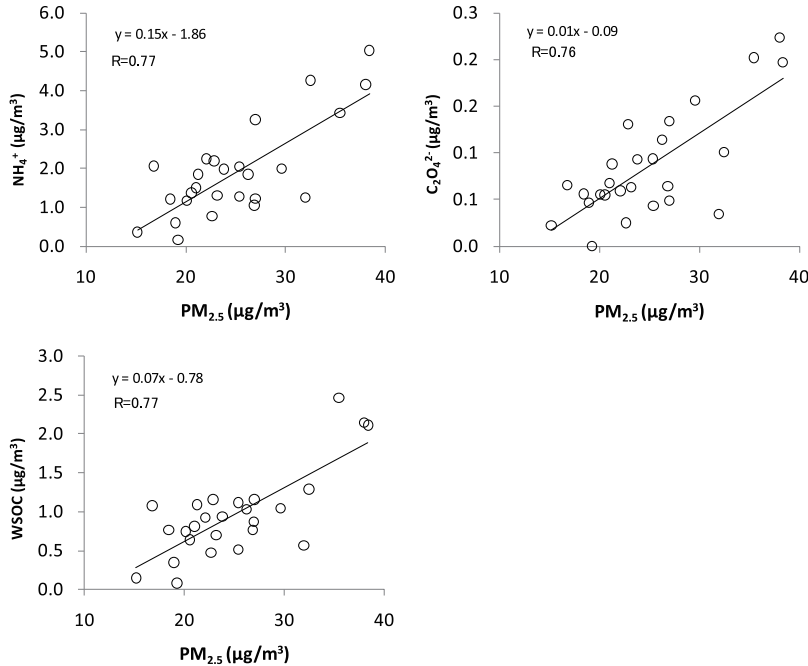


図5 Relationship between PM_{2.5} and NH₄⁺, C₂O₄²⁻, or WSOC in 2010 spring (Motoshio).

上)を示し、1年を通して名古屋市内の広い範囲において同様の変動を示すことが明らかとなった。また、地点間距離が長くなるにつれて、わずかながら相関係数が低くなる傾向が確認できた。

NO₃⁻は、秋季・冬季および春季の相関係数が0.8程度となる一方、夏季には相関がかなり低くなる傾向が2年連続で確認された。これは、夏季にNO₃⁻の濃度が低いため、小さな局所の変動や測定誤差が、相関係数に大きく反映されてしまうことに起因すると考えられる。それぞれのNO₃⁻濃度は、2009年度の元塩の、秋季、冬季および春季がそれぞれ1.7, 2.3, 2.0 μg/m³なのに対して、夏季は0.4 μg/m³である。また2010年度は秋季、冬季および春季で1.1, 1.3, 1.3 μg/m³なのに対して夏季は0.4 μg/m³である。このような、夏季のNO₃⁻の減少は他にも報告されている¹²⁾。このようなNO₃⁻濃度の夏季の低下は、粒子の揮発性によるものと考えられる。NO₃⁻は、PM_{2.5}中ではNH₄⁺をカウンターとした塩の形が主要な形態の一つだと考えられるが、気温や湿度の影響で揮発性のガス状物質へと変化することが指摘されている¹³⁾。そのため気温が高い条件では粒子化していないか、粒子として採取された後に揮発した

りするため、夏季にとくにNO₃⁻濃度が低く測定されたと考えられる。

図4のOCのグラフを見ると、2009年度は夏季が、2010年度は春季の相関が低く、またそれは2地点間距離が3.9km, 10.6km, 14.1kmおよび16.1kmのプロットである。これは元塩と他の地点との距離に該当し、OCの排出に関して元塩の付近で特異的な排出源の存在をうかがわせる。

またECについて図4を見ると、地点間距離と相関係数に明確な傾向は無く、元塩と他の地点との組み合わせの距離(3.9km, 10.6km, 14.1km, 16.1km)のプロットでは相関係数が、低い傾向にあった。これは、元塩が近接する道路からの大型車排ガスの影響を受けていることが原因と考えられる。EC濃度については、拡散モデルを用いて大型車から排出されるECを計算した値でPM_{2.5}に含まれるEC濃度が説明できることが示されており¹⁴⁾、大型車排ガスの影響を受けやすい元塩において、局所的な変動が観測結果に反映したと考える。

2009年度の3地点および2010年度の2地点(楠, 守山)の重量濃度の季節ごとの平均値は、秋季に高くなったが、2010年度の元塩のみ、春季ももっ

とも高い値であった。各成分で、重量濃度と同様に秋に高くなるものは、 $C_2O_4^{2-}$ 、WSOC、OC、 NH_4^+ 、ECなどが挙げられる。なお2009年度の NH_4^+ は、秋季も高かったがもっとも平均値が高かった季節は冬季であった。また、ECも2010年度の守山では冬季がもっとも高くなっていた。無機イオン成分のうち、もっとも多い割合を占める SO_4^{2-} は、夏季がもっとも高くなり、それに秋季、春季、冬季と続いたが、2009年度の守山でのみ秋季がもっとも高濃度となった。秋季に重量濃度が上昇する要因の一つとしては、同様に変動する成分の傾向から、燃焼や有機物の二次生成が関与していると考えられる。

3.4 イオン性成分のバランス

NH_4^+ は、発生源からイオンの形で放出されているというよりは、大気中にある H_2SO_4 や HNO_3 といった酸に中和された NH_3 が、対カチオンになって粒子として捕獲されたと考えられる¹³⁾。 NH_4^+ と NO_3^- や SO_4^{2-} のモル比を比較するため、 $[NH_4^+]$ に対する、 $[[NO_3^-]+2[SO_4^{2-}]]$ のプロットを行った。例として2009年度の元塩の4季節のグラフを図6に示した。全季節、全地点では相関係数は0.85を超えて、高い相関関係が明らかとなった。季節別で比較すると、夏季の傾きは0.94~1.01とほぼバランスが取れており、 NO_3^-

や SO_4^{2-} が NH_4^+ を対とした粒子で存在し、採取されたことが示唆された。一方、冬季は4季節中でもっとも低くなり、0.7程度となった。Chuら¹⁵⁾はアンモニア可用性インデックス(ammonium availability index)： J (Form. 1)を用いて、環境中のアンモニアについて分類をした。

$$J = \frac{[NH_4^+]}{[NO_3^-] + 2[SO_4^{2-}]} \times 100(\%) \quad \text{Form. 1}$$

J は図6に示したグラフの傾きの逆数の百分率に相当する。Han¹⁶⁾らは、韓国国内の3地点で J を調べて(年平均値)いずれも100%以上となり、アンモニア過剰な環境であるとした。本調査においては、夏季は J がほぼ100%となっているが、それ以外では100%を超えており韓国と同様にアンモニア過剰な環境であるといえる。この過剰な NH_4^+ は、何らかの対アニオンを伴って粒子となっているはずであるが、 NO_3^- や SO_4^{2-} 以外のアニオンである Cl^- や NO_2^- は微量であり NH_4^+ の量を説明できない。そのため、本調査において測定していない相当量のアニオン成分の存在が示唆され、たとえば CO_3^{2-} などが挙げられる。 $(NH_4)_2CO_3$ や、より安定な NH_4HCO_3 は常温においてわずかに分解することが知られており、温度が高いほどその速度は高くなる。これは、夏場に

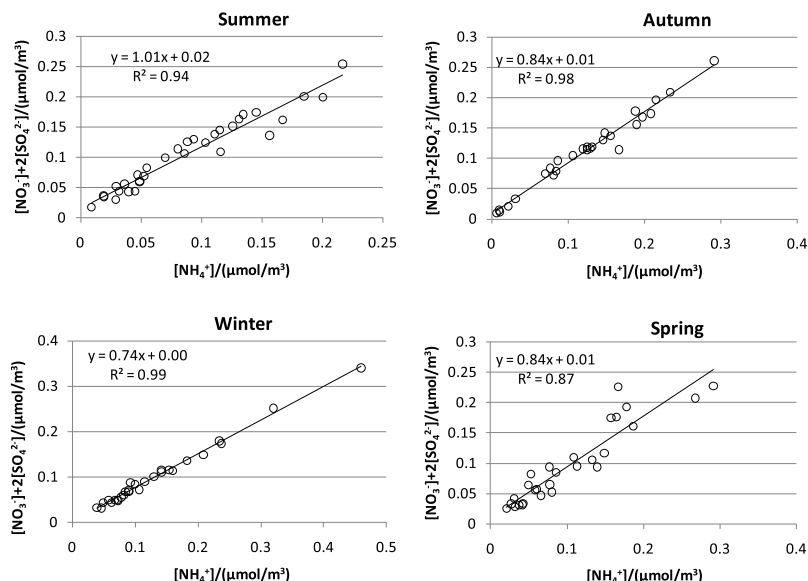


図6 Correlations of molar concentration between $[NO_3^-] + 2[SO_4^{2-}]$ and $[NH_4^+]$ in Motoshio 2009

はCO₃²⁻と思われる不明部分がほとんどない一方、冬場に多いことと矛盾しない。

4. ま と め

2009年度から2010年度にかけて、名古屋市内3地点において測定されたPM_{2.5}の分析結果を、地点や季節の傾向からまとめた。名古屋市内のPM_{2.5}重量濃度は、いずれの地点でも年平均値の基準である15μg/m³を超えていた。その中でも、名古屋市南部に位置する元塩は、同じ南部に位置する港陽および南陽とは近い値であったが、北部に位置する楠および守山よりは高い値となり、市内の南北における濃度差が示された。重量濃度の日変動も、南部もしくは北部に位置する地点同士の相関は季節を通じて高い一方、南北の地点の組み合わせでは季節によって相関が高くなかった。成分で相関を見ると、SO₄²⁻、NH₄⁺やなどが重量濃度と同様に地点間での変動に相関がある一方、道路近傍に位置する元塩はECの変動が他の地点とは異なっており、局所的な排出の影響を強く受けていることが示唆された。季節ごとの変動をみると、秋季に重量濃度が高くなる地点が多く、成分としてはWSOCやOCなど炭素成分が同様に秋季に高濃度となっていた。

今後さらに調査を重ねて地点や季節の傾向を解析することで、精度の高い発生源情報などにつなげていき、効果的なPM_{2.5}の削減に役立てていく。

—参考文献—

- 1) 環境省：微小粒子状物質曝露影響調査報告書，2007
- 2) 環境庁：大気中微小粒子状物質(PM_{2.5})測定方法暫定マニュアル，2000
- 3) 山神真紀子，大原利真，中島寛則，池盛文数，久恒邦裕，大場和生：名古屋市におけるPM_{2.5}の化学組成と高濃度

- 発生パターンの経年変化，大気環境学会誌，46，139-147，2011
- 4) 平成17年度名古屋市一般交通量概況(全国道路・街路交通情勢調査報告書，名古屋市，2007
- 5) Chow, J.C., Watson, J.G., Pritchett, L.C., Pierson, W.R., Frazier, C.A., Purcell, R.G., DRI thermal/optical reflectance carbon analysis system: description, evaluation and applications in U.S. air quality studies, *Atmospheric Environment*, 27A, 1185-1201, 1993
- 6) 環境省：大気中微小粒子状物質(PM_{2.5})測定方法暫定マニュアル(改訂版)，第5章(1)，2007
- 7) 環境省：有害大気汚染物質測定方法マニュアル(平成23年3月改訂)
- 8) 浮遊粒子状物質対策検討会：浮遊粒子状物質汚染予測マニュアル，初版，東洋館出版社，p.357，1997
- 9) 長谷川就一，若松伸司，田邊潔：同一大気試料を用いた熱分離法および熱分離・光学補正法による粒子状炭素成分分析の比較，大気環境学会誌，40，181-192，2005
- 10) Dabek-Zlotorzynska, E., Dann, T.F., Martinelango, P.K., Celso, V., Brook, J.R., Mathieu, D., Ding, L., Austin, C.C.: Canadian National Air Pollution Surveillance(NAPS)PM_{2.5} speciation program: Methodology and PM_{2.5} chemical composition for the year 2003-2008, *Atmospheric Environment*, 45, 673-686, 2011
- 11) Jimenez, J. L., Jayne, J. T., Shi, Q., Kolb, C. E., Worsnop, D. R., Yourshaw, I., Seinfeld, J. H., Flagan, R.C., Zhang, X., Smith, K. A., Moris, J. W., and Davidovits, P.; Ambient aerosol sampling using the Aerodyne Aerosol Mass Spectrometer, *J. Geophys. Res.*, 108, 8425, doi:10.1029/2001JD001213(2003)
- 12) Lee, H. S., Kang, C. -M., Kang, B. -W., Kim, H. -K.,: Seasonal variations of acidic air pollutants in Seoul, South Korea. *Atmospheric Environment*, 33, 3143-3152, 1999
- 13) Seinfeld, J.H., Pandis, S.N., *Atmospheric Chemistry and physics from Air Pollution to Climate Change*, Wiley, New York, 1998
- 14) 山神真紀子，鈴木秀男，長谷川就一，中島寛則，平尾進吾，若松伸司：PM_{2.5}中元素状炭素の自動車排出係数の推計と一般環境における大気中濃度の変動，大気環境学会誌，43，273-283，2008
- 15) Chu, S. -H.,: PM_{2.5} episodes as observed in the speciation trends network, *Atmosphere Environment*, 38, 5237-5246, 2004
- 16) Han, Y. -J., Kim, T. -S., Kim, H.,: Ionic constituents and source analysis of PM_{2.5} in three Korean cities, *Atmosphere Environment*, 42, 4735-4746, 2008