

<報文>

PM_{2.5}発生源寄与解析の高度化を目指した 誘導体化-GC/MS法による有機マーカー多成分測定法の確立*

熊谷貴美代**・田子博**・齊藤由倫**・工藤慎治***・飯島明宏***

キーワード ①有機炭素 ②二次生成 ③植物起源 ④レボグルコサン ⑤PMFモデル

要 旨

PM_{2.5}の主要成分でありながら解明の遅れている有機粒子について、動態や発生源に関する新たな知見を得るために、発生源の指標となる有機マーカー成分の多成分測定法を検討した。手法検討にあたっては、地方自治体において実施されている大気汚染常時監視PM_{2.5}成分測定に適用できることを前提とした。対象成分は、バイオマス燃焼マーカーのレボグルコサンのほか、ジカルボン酸、ピノン酸、2-メチルテトラロールなど28成分とした。誘導体化-GC/MS法を用いてレボグルコサンとの同時分析メソッドを確立した。本手法を用いて有機マーカーを含むPM_{2.5}観測データセットを取得して発生源寄与解析を行ったところ、従来よりも多くの発生源因子を抽出できることが確認された。

1. はじめに

大気中微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の対策を推進していくためには、PM_{2.5}の二次生成機構を含む挙動の解明や発生源寄与評価が必要である。PM_{2.5}の発生源は多岐にわたり、それぞれの発生源からは特徴的な指標物質、指標元素が排出されることがある。発生源の指標となる物質を定量することで、その地域における発生源寄与割合を推計することができ、PM_{2.5}の効果的な発生源対策を考えることが可能となる。地方自治体で実施されている大気汚染常時監視PM_{2.5}成分測定において、主要成分 (イオン成分、炭素成分) と併せて元素成分などが測定項目に含まれているのはこうした理由によるものである。

PM_{2.5}の主要成分の一つである有機成分には、燃焼系発生源等から排出される一次有機粒子 (POA) と人為起源/植物起源VOCから二次生成する二次有機粒子 (SOA) が存在するが、POA/SOAの存在比や各発生源の寄与は把握されておらず、有機粒子の挙動や発生源寄与の解明が大きな課題となっている。有機粒子に関しては、既往研究において様々な発生源に対応した指標成分 (マーカー) が特定されている。最も代表的な有機マーカーとしては、バイオマス燃焼の指標であるレボグルコサンが挙げられる¹⁾。そのほか植物起源SOA (BSOA) のマーカーでは、 α -ピネン由来のピノン酸やイソプレン由来の2-メチルテトラロール類が挙げられる。また、光化学反応が盛んな時に

はジカルボン酸類が増加することが知られている。さらには生物起源一次粒子 (BPOA)、調理、自動車などの発生源についてもそれぞれに対応したマーカーが提案されている。炭素成分の測定と併せてこれらの有機マーカーを測定することで、有機粒子の発生源に関する新たな知見が得られると期待される。

レボグルコサンについては、一般的に誘導体化-GC/MS法によって測定され¹⁻³⁾、平成26年に環境省PM_{2.5}成分測定マニュアル⁴⁾に追加された。この方法は、レボグルコサンだけでなくヒドロキシ基やカルボキシ基をもつ有機物も検出可能である。そこで、本研究では、誘導体化-GC/MS法を用いてレボグルコサンと同時に多成分の有機マーカーを測定する手法を検討した。本稿では、その分析手法を述べるとともに、この手法で測定した有機マーカーを利用した発生源寄与解析結果についても報告する。

2. 対象成分

PM_{2.5}中の有機化合物は微量であるため、サンプリングにはハイボリュームエアサンプラが使用されることが多い。しかし、本研究では大気汚染常時監視におけるPM_{2.5}成分調査に適用することを想定し、標準採取法 (ローボリュームエアサンプラ) で採取されたPM_{2.5}試料を対象とした。

対象成分を表1に示す。対象成分は、ピノン酸 (α -ピ

*Multicomponent Analysis for Organic Markers in PM_{2.5} by Silylated GC/MS Method

**Kimio KUMAGAI, Hiroshi TAGO, Yoshinori SAITOH (群馬県衛生環境研究所)

***Shinji KUDO, Akihiro IJIMA (高崎経済大学)

ネン由来BSOAマーカー), 2-メチルテトロール類 (イソプレネン由来BSOAマーカー), ジカルボン酸類 (C₃~C₉) (光化学反応マーカー), レボグルコサンおよびマンノサン (バイオマス燃焼マーカー), アラビトール (生物起源一次有機粒子 (BPOA) マーカー), 17 α (H), 21 β (H)-30-norhopaneおよび17 α (H), 21 β (H)-hopaneのホパン類 (自動車マーカー) など28成分である。なお, 有機マーカーには表1に掲載していない成分 (例えばマンノース, マンニトール, キシリトール, ステラン類など) もあり, これらの成分も検討した。しかし, 誘導体化の反応効率にばらつきが見られたり夾雑物ピークとの分離ができないなど分析上の問題が確認された成分や後述する大気観測において実サンプルからの検出率が顕著に低かった成分は対象外とした。

表1 有機マーカー対象成分

発生源	化合物	種類	ref
バイオマス燃焼	Levoglucosan	Anhydrosugar	1, 5, 6
	Mannosan	Anhydrosugar	
	Vanillic acid	Aromatic carboxylic acid	
	β-Sitosterol ^{a)}	Sterol	
光化学反応, SOA	Malonic acid	Dicarboxylic acid	7, 8
	Maleic acid	Dicarboxylic acid	
	Succinic acid	Dicarboxylic acid	
	Glutaric acid	Dicarboxylic acid	
	Adipic acid	Dicarboxylic acid	
	Pimelic acid	Dicarboxylic acid	
	Suberic acid	Dicarboxylic acid	
	Azelaic acid	Dicarboxylic acid	
	Malic acid	Dicarboxylic acid	
	Phtalic acid	Dicarboxylic acid	
BSOA (isoprene)	2-methylthreitol	Polyalcohol	9-11
	2-methylerythritol	Polyalcohol	
BSOA (α-pinene)	Pinonic acid	Organic acid	12
BPOA	Glucose	Sugar	11, 13, 14
	Arabitol	Sugar alcohol	
調理	Cholesterol	Sterol	15-18
	Linoleic acid	Fatty acid	
	Oleic acid	Fatty acid	
燃焼ほか ^{b)}	Dodecanoic acid	Fatty acid	19
	Tridecanoic acid	Fatty acid	
	Tetradecanoic acid	Fatty acid	
	Hexadecanoic acid	Fatty acid	
自動車, 化石燃料燃焼	17 α (H), 21 β (H)-30-norhopane	Hopane	19
	17 α (H), 21 β (H)-hopane	Hopane	

a) 農業残渣由来, 植物コレステロールの一種で調理からも排出される可能性がある。
b) 自然起源と人為起源があり, 発生源は複数存在する。

3. 分析方法

3.1 試薬

抽出溶媒および試験液調整用にジクロロメタン, メタノール, ヘキサン (いずれも5000倍濃縮) を用いた。誘導体化試薬は, N, O-ビス(トリメチルシリル)トリフルオロアセトアミド (BSTFA) に10% クロロトリメチルシラン (TMCS) が混合された試薬 (BSTFA + 10%-TMCS) を用い

た。標準物質は, 純度98%以上の市販品を用いた。ただし2-メチルテトロール類 (2-メチルスレイトール, 2-メチルエリスリトール) に関しては市販されている標準品がないため, 類似構造をもつmeso-エリスリトールで代用した。ホパン類はホパン・ステラン混合標準 (NIST SRM2266) を用いた。

標準原液は, 各標準物質をそれぞれアセトニトリル (HPLC用) 等 (ただし, meso-エリスリトールはメタノール溶媒を, 糖, 糖アルコール, C₁₂~₁₆カルボン酸, リンゴ酸, フタル酸はアセトニトリル/メタノール混合溶媒を, ステロール類はトルエン溶媒をそれぞれ使用) に溶解し, 1 mg/mLの濃度に調整した。さらに溶媒の種類毎に各標準原液を一定量混合し, 混合標準溶液 (0.1 mg/mL) を調整した。

内標準物質は, レボグルコサン-d7およびケトピン酸を使用した。これらも上記と同様にアセトニトリルに溶解し, 内部標準液 (0.5 mg/mL) を調整した。

3.2 試験液の調整

試料フィルタ (石英繊維フィルタ, 47 mmφ) の1/2枚を切り取り, 共栓付褐色遠沈管 (10 mL) に入れ, 内部標準液2 μL (各1 μg相当) をそれぞれ添加した。これにジクロロメタン/メタノール (2:1(v/v)) を5 mL加え, 15分間超音波をかけて対象物質を抽出した。親水性PTFEシリンジフィルタを装着したガラス製シリンジを用いて, 抽出液の全量をろ過した。このろ液にN₂ガスを穏やかに吹き付けてほぼ乾固するまで溶媒を揮散した。これに誘導体化試薬のBSTFA + 10%-TMCSを50 μL添加し, ドライバスを用いて70°Cで2時間加熱し, 測定対象物質や内標準物質の誘導体化 (トリメチルシリル化) を行った。その後, ジクロロメタン/ヘキサン (1:1(v/v)) を350 μL加え, GC/MS用の試験液とした。

3.3 GC/MS分析

GC/MSに使用したカラムおよび分析条件を表2に示す。基本的には表2のMethod Aで測定が出来るが, ホパン類, コレステロール, β-シトステロール, オレイン酸, リノール酸に関しては, PM_{2.5}ローボリュームエアサンプルで採取したフィルタ試料では試料量が十分でない可能性があったため, その場合は, より高感度で検出できるMethod B (sim/scan法) で同じ試験液を用いて別途測定した。表3に各成分の保持時間と定量用質量数を示す。なお, 表3のデータは, 個々の標準物質をシリル化処理後にGC/MSで分析し, 保持時間およびMSスペクトルを得て決定したものである。

表2 GC/MS分析条件

	Method A	Method B
Column:	Agilent DB-5MS, 60 m×0.25 mmID×0.25 μm	
Oven temp.:	60°C(1min)-10°C/min-200°C-5°C/min-300°C(15min)	60°C(1min)-15°C/min-300°C(20min)
Carrier gas:	He 1 mL/min	He 1 mL/min
Injection:	Spritless, 1 μL	Spritless, 2 μL
Inlet temp.:	270°C	270°C
Interface temp.:	280°C	280°C
Ionization:	EI, 70eV	EI, 70eV
Ion source temp.:	230°C	230°C
Detection mode:	scan	sim/scan

表3 有機マーカー（トリメチルシリル化）のリテンションタイムと定量イオン

Compounds	RT	Base ion fragments	Compounds	RT	Base ion fragments
Malonic acid	12.77	233	Tetradecanoic acid	22.15	285
Maleic acid	14.26	245	Glucose	22.67, 23.86	204
Succinic acid	14.39	247	Hexadecanoic acid	25.29	313
Glutaric acid	15.65	261	Linoleic acid	28.03	337
Malic acid	16.69	233		(18.34) ^a	
(meso Erythritol)	16.93	217	Oleic acid	28.11	339
Adipic acid	17.04	275		(18.3) ^a	
2-methylthreitol	17.36	219	Cholesterol	44.64	329
Pinonic acid	17.51	171		(30.89) ^a	
2-methylerythritol	17.62	219	β-Sitosterol	50.68	396
Pimelic acid	18.41	289		(36.76) ^a	
Dodecanoic acid	19.18	257	17α(H), 21β(H)-30-norhopane ^b	43.21	191
Mannosan	19.58	333		(29.56) ^a	
Phtalic acid	19.78	295	17α(H), 21β(H)-hopane ^b	45.37	191
Suberic acid	19.79	303		(31.57) ^a	
Levoglucosan	19.86	333	IS		
Arabitol	19.96	307	Levoglucosan-d7	19.80	339
Tridecanoic acid	20.65	271		(14.78) ^a	
Vanillic acid	20.84	297	Ketopinonic acid	17.36	239
Azelaic acid	21.26	317		(13.48) ^a	

a: GC/MS条件Method Bで測定した場合のリテンションタイム

b: 誘導体化物ではない

3.4 検量線の作成

各種標準溶液を用いて、測定対象物質の添加量が0.1～5 μg及び内標準物質が各1 μgになるようにリアクティブアルに添加し、標準濃度系列を作成した。バイアル内の標準溶液に穏やかに窒素ガスを吹き付け、ほぼ乾固するまで溶媒を除き、3.2節に示した操作と同様に対象物質と内標準物質の誘導体化を行い、各濃度の試験液を調製した。

これらをGC/MSで測定し、測定対象物の誘導体化物及び内標準物質の誘導体化物の定量質量数のピーク強度比を求め、検量線を作成した。なお、内部標準として有機酸はケトピン酸、糖類はレボグルコサン-d7を用いた。図1に検量線の例を示す。アゼライン酸、脂肪酸、ステロール類は低濃度域で傾きが小さくなる傾向があり、二次曲線または濃度範囲を低濃度域・高濃度域に限定した検量線を作成したほうがよいと考えられた。

3.5 大気中濃度の算出

対象物質の大気中濃度は次式により算出した。

$$C = \frac{(Q_s - Q_t)}{V} \times \frac{S}{s} \times 1000$$

C : 大気中のPM_{2.5}に含まれる分析対象物質の濃度 (ng/m³)

Q_s : 試料中の分析対象物質の量 (μg)

Q_t : ブランク試料中の分析対象物質の量 (μg)

V : 大気試料捕集量 (m³)

S : PM_{2.5}試料を捕集したフィルタ面積 (cm²)

s : 分析に用いたフィルタ面積 (cm²)

3.6 添加回収試験

PM_{2.5}実試料（石英フィルタ，2014年8月1日，前橋において採取）を用いて、添加回収試験を行った。添加量は、各成分2 μgとし、上記の方法により有機マーカー成分測

定を行った。その結果、レボグルコサンは回収率101%，その他の成分は70%~127%の範囲であった。

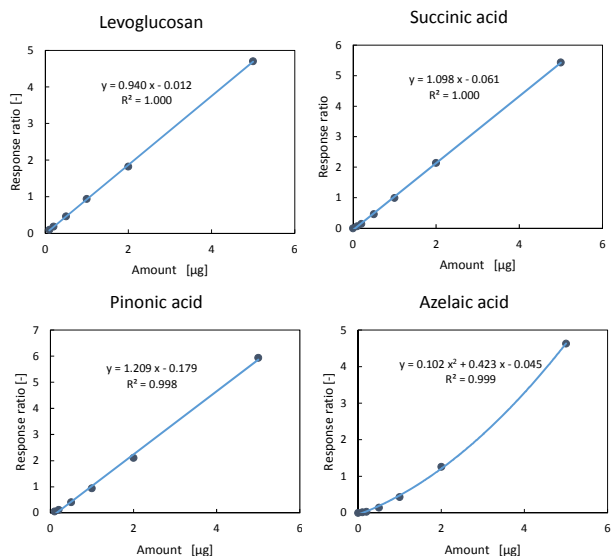


図1 検量線の例 (レボグルコサン, コハク酸, ピノン酸, アゼライン酸)

4. 発生源寄与解析事例

有機マーカーを含む成分データセットを用いて、正値行列因子分解モデル (PMFモデル) による発生源寄与解析を行えば、有機粒子に関連する発生源寄与の推定が可能になると考えられる。そこで、本研究では、常時監視PM_{2.5}成分調査と同じ手法で採取したPM_{2.5}試料について、上記分析法を用いて有機マーカーの測定を行った。観測結果から、各種有機マーカーの挙動についていくつかの知見²⁰⁾が得られたが、ここでは、有機マーカーを含むPM_{2.5}成分データセットを用いたPMF解析結果の概要を解析事例として以下に示す。

4.1 観測概要

都市地点 (埼玉県さいたま市, 埼玉大学), 郊外地点 (群馬県前橋市, 前橋一般局), 森林地点 (群馬県前橋市, 赤城山山頂付近, 国設赤城酸性雨測定局) において、2014年12月~2015年10月の四季の各季節2週間, PM_{2.5}成分測定を実施した。PM_{2.5}採取方法 (ローボリュームサンブラによる24時間採取) およびイオン成分, 炭素成分, 元素成分の測定は、環境省マニュアル²¹⁾に従い実施した。

4.2 発生源寄与解析概要

PMF解析 (PMF 5.0) に用いたデータセットは表4に示すとおりである。データスクリーニングの際、検出下限未

満の試料数が多い成分, 再現性が悪い成分などは対象外とし、実際に使用した有機マーカー成分は17成分であった。

解析の結果、有機マーカーを含まないデータセットで解析を行った場合 (既往研究²²⁻²⁴⁾ では、広域汚染, 自動車, 硝酸塩, 重油燃焼, 硫酸塩, 土壌+道路粉じん等の6~7因子が分解されるケースが多い) に比べ、より多くの因子が抽出され (表4), 発生源の寄与を詳細に把握できた。本研究で抽出された因子は、バイオマス燃焼, イソプレン由来BSOA, モノテルペン由来BSOA, BPOA, 調理, 都市ローカルOAなどを含む12因子であった。有機粒子に関する発生源因子が抽出されたことが本研究で新たに得られた知見である。なお、観測データおよび解析結果の詳細については、環境研究総合推進費研究課題【5-1403】終了報告書²⁵⁾を参照されたい。

表4 有機マーカーに着目した発生源寄与解析事例

観測地点数:	3地点 (都市, 郊外, 森林)
調査期間:	2014年12月, 2015年5-6月, 8月, 10月 (各14日間)
試料数:	n=167
データ項目:	38項目
(内訳)・PM _{2.5} 質量濃度	
・イオン成分 (8)	Na ⁺ , NH ₄ ⁺ , K ⁺ , Ca ²⁺ , Cl ⁻ , SO ₄ ²⁻ , NO ₃ ⁻ , (COO) ₂ ²⁻
・炭素成分 (2)	OC, EC
・元素成分 (10)	Al, V, Mn, Fe, Cu, Zn, As, Cd, Ba, Pb
・有機マーカー成分 (17)	Levoglucosan, Malonic acid, Succinic acid, Glutaric acid, Adipic acid, Azelaic acid, Malic acid, Phtalic acid, Pinonic acid, 2-methyltetrols, β-sitosterol, Arabitol, Glucose, C16 acid, Linoleic acid, Oleic acid, 17 α (H), 21 β (H)-30-norhopane
解析結果:	抽出因子12因子 バイオプライマリー, モノテルペン由来BSOA, イソプレン由来BSOA, 調理, 都市ローカルOA, バイオマス燃焼, 自動車+道路粉じん, 硝酸塩, 硫酸塩 (重油燃焼), 硫酸塩 (広域汚染・石炭燃焼), 広域汚染, 土壌

5. まとめ

本研究では、PM_{2.5}中の有機粒子について、動態や発生源に関する新たな知見を得るために、常時監視PM_{2.5}成分調査の中で実施可能な有機マーカー多成分測定方法を検討した。誘導体化-GC/MS法により有機マーカー28成分の分析条件を確立した。本手法は、PM_{2.5}成分測定項目になっているレボグルコサンとの同時分析が可能であるため、既にレボグルコサン測定を実施している地方自治体では、新たに機器整備をすることなく測定対象物質を追加することで比較的容易に導入できると考えられる。ただし、前処理操作においては多少熟練を要するので、導入の際には回収率など事前確認されることが望ましい。

都市, 郊外, 森林地点でPM_{2.5}の四季観測を行い、有機マーカーを含むPM_{2.5}成分データセットでPMF解析を行ったところ、従来よりも詳細な発生源寄与評価が可能にな

ることが確認された。すなわち、本手法を用いれば、従来の発生源寄与解析では一つの因子に複数の発生源からの影響が混在した状態で発生源因子が抽出されてしまうという問題点が改善されると考えられる。

本手法については、「誘導体化-GC/MS法によるPM_{2.5}中の有機マーカー多成分測定法」としてマニュアルを作成し、当研究所のホームページにて公開予定である。本マニュアルを活用して頂き、今後、様々な地点において有機マーカーの観測データが蓄積されれば、国内における有機粒子の発生源や二次生成に関する知見が集積されるとともに、PM_{2.5}の効果的な発生源対策に資する科学的知見が得られると期待される。

6. 謝辞

本研究は、環境省の環境研究総合推進費（5-1403）により実施しました。また大気観測において埼玉大学・関口和彦准教授にご協力頂いたほか、赤城地点では国設測定局の利用に関して環境省大気環境課にご協力頂きました。ここに感謝申し上げます。

7. 引用文献

- 1) Simoneit B.R.T., Schauer J.J., Nolte C.G., Oros D.R., Elias V.O., Fraser M.P., Rogge W.F., Cass G.R.: Levoglucosan, a tracer for cellulose in biomass burning and atmospheric particles. *Atmos. Environ.*, **33**, 173-182, 1999
- 2) 萩野浩之, 小瀧美里, 坂本和彦: さいたま市における初冬季の微小粒子中のレボグルコサンと炭素成分. エアロゾル研究, **21**, 38-44, 2006
- 3) Kumagai K., Iijima A., Shimoda M., Saitoh Y., Kozawa K., Hagino H., Sakamoto K.: Determination of dicarboxylic acids and levoglucosan in fine particles in the Kanto plain, Japan, for source apportionment of organic aerosols. *Aerosol and Air Quality Research*, **10**, 282-291, 2010
- 4) 環境省: 大気中微小粒子状物質 (PM_{2.5}) 成分測定マニュアル-レボグルコサン測定法. 2014
- 5) Kourtchev I., Hellebust S., Bell J.M., O'Connor I.P., Healy R.M., Allanic A., Healy D., Wenger J.C., Sodeau J.R.: The use of polar organic compounds to estimate the contribution of domestic solid fuel combustion and biogenic sources to ambient levels of organic carbon and PM_{2.5} in Cork Harbour, Ireland. *Sci. Total Environ.*, **409**, 2143-2155, 2011
- 6) Hays M.D., Fine P.M., Gerona C.D., Kleeman M.K., Gullett B.K.: Open burning of agricultural biomass: Physical and chemical properties of particle-phase

- emissions. *Atmos. Environ.*, **39**, 6747-6764, 2005
- 7) Kawamura K., Ikushima K.: Seasonal changes in the distribution of dicarboxylic acids in the urban atmosphere. *Environ. Sci. Technol.*, **27**, 2227-2235, 1993
- 8) Kawamura K., Kasukabe H., Barrie L.A.: Source and reaction pathways of dicarboxylic acids, ketoacids and dicarbonyls in arctic aerosols: one year of observations. *Atmos. Environ.*, **30**, 1709-1722, 1996
- 9) Claeys M., Graham B., Vas G., Wang W., Vermeylen R., Pashynska V., Cafmeyer J., Guyon P., Andreae M.O., Araxo P., Maenhaut W.: Formation of secondary organic aerosols through photooxidation of isoprene. *Science*, **303**, 1173-1176, 2004
- 10) Claeys M., Wang, W., Ion A.C., Kourtchev I., Gelencser A., Maenhaut W.: Formation of secondary organic aerosols from isoprene and its gas-phase oxidation products through reaction with hydrogen peroxide. *Atmos. Environ.*, **38**, 4093-4098, 2004
- 11) Kourtchev I., Ruuskanen T., Maenhaut W., Kulmala M., Claeys M.: Observation of 2-methyltetrols and related photo-oxidation products of isoprene in boreal forest aerosols from Hyytiälä, Finland. *Atmos. Chem. Phys.*, **5**, 2761-2770, 2005
- 12) Claeys M., Szmigielski R., Kourtchev I., Van der Veken P., Vermeylen R., Maenhaut W., Jaoui M., Kleindienst T., Lewandowski M., Offenberg J.H., Edney E.O.: Hydroxydicarboxylic acids: Markers for secondary organic aerosol from the photooxidation of α -pinene. *Environ. Sci. Technol.*, **41**, 1628-1634, 2007
- 13) Graham B., Guyon P., Taylor P.E., Artaxo P., Maenhaut W., Glovsky M.M., Flagan R.C., Andreae M.O.: Organic compounds present in the natural Amazonian aerosol: Characterization by gas chromatography-mass spectrometry. *J. Geophys. Res.*, **108**, 4766, doi:10.1029/2003JD00399, 2003
- 14) Kourtchev I., Claeys M., Warnke J., Hoffmann T., Maenhaut W.: Polar organic marker compounds in PM_{2.5} aerosol from a mixed forest site in western Germany. *Chemosphere*, **73**, 1308-1314, 2008
- 15) Schauer J.J., Kleemann, M.J., Cass, G.R., Simoneit B.R.T.: Measurement of emissions from air pollution sources. 1. C1 through C29 organic compounds from meat charbroiling. *Environ. Sci. Technol.*, **33**, 1566-1577, 1999
- 16) Schauer J.J., Kleeman M.J., Cass G.R., Simoneit

- B. R. T. : Measurement of emissions from air pollution sources. 4. C1-C27 organic compounds from cooking with seed oils. *Environ. Sci. Technol.* **36**, 567-75, 2002
- 17) Kleeman M. J., Robert M. A., Riddle S. G., Fine P. M., Hays M. D., Schauer J. J., Hannigan M. P. : Size distribution of trace organic species emitted from biomass combustion and meat charbroiling. *Atmos. Environ.*, **42**, 3059-3075, 2008
- 18) He L. Y., Hu M., Huang X. F., Zhang Y. H., Tang X. Y. : Seasonal pollution characteristics of organic compounds in atmospheric fine particles in Beijing. *Sci. Total Environ.*, **259**, 167-176, 2006
- 19) Rogge W. F., Hildemann L. M., Mazurek M. A., Cass G. R., Simoneit B. R. T. : Sources of fine organic aerosol, 2. Noncatalyst and catalyst-equipped automobiles and heavyduty diesel trucks. *Environ. Sci. Technol.*, **27**, 636-651, 1993
- 20) 熊谷貴美代, 田子博, 齊藤由倫, 木村真也, 工藤慎治, 飯島明宏 : 都市, 郊外, 森林地点におけるPM_{2.5}同時観測—有機マーカー成分の挙動. 第57回大気環境学会年会講演要旨集, p. 413, 2016
- 21) 環境省 : 大気中微小粒子状物質 (PM_{2.5}) 成分測定マニュアル
- 22) 鈴木亮太, 吉野彩子, 兼保直樹, 高見昭憲, 林政彦, 原 圭一郎, 渡邊泉, 畠山史郎 : 長崎県福江島・福岡県福岡市におけるエアロゾル金属成分の特徴と発生源推定, 大気環境学会誌, **49**, 15-25, 2014
- 23) 齊藤勝美, 伏見暁洋, 田邊潔, 佐藤圭, 藤谷雄二, 高見昭憲 : 2013 年夏季関東における微小粒子の広域観測—PMF による発生源寄与推定のアプローチ—. エアロゾル研究, **30**, 42-52, 2015
- 24) 船坂邦弘, 酒井護, 加田平賢史, 浅川大地, 古市裕子, 奥勇一郎 : PMF法による大阪市内におけるPM_{2.5}発生源因子の解析. 大阪市立環境科学研究所報告, **77**, 65-70, 2015
- 25) 群馬県衛生環境研究所, 高崎経済大学 : 有機マーカーに着目したPM_{2.5}の動態把握と正値行列因子分解モデルによる発生源寄与評価 (5-1403), 環境省環境研究総合推進費終了研究等成果報告書, 2017 (in press)