

へと30%増加した地点もあり、海岸に近い地点では海塩粒子がPM_{2.5}濃度のかなりの部分を占めていることが窺えた。IMPROVEのPM_{2.5}濃度の再構築計算式にNa、Cl、NO₂⁻及び微量金属元素は含まれていないことが過小評価の一因とされる。夏季と冬季のRM比を比較すると、59地点中51地点で冬季の方が夏季よりも大きな値となった。これはOCの測定に伴うアーティファクト(石英繊維フィルタによるVOC吸着の補正)及びOC濃度から有機物濃度への変換係数1.4が小さすぎること(TurpinとLim(2001))が要因であり、主要成分である硫酸塩や硝酸塩の水分吸収は関係しないとされた。

1995年にGreat Smoky Mountains国立公園で実施されたSEAVS(Southeastern Aerosol and Visibility Study)では、大気粒子の化学成分、秤量質量及び光学測定との関係を確認することも研究目的の一つであった。Andrewsら(2000)は、種々の測定結果を解析して、測定された化学成分濃度によっては説明できない不明分はPM_{2.5}質量濃度の28~42%に達し、この濃度差は無機成分に含まれる水分の推定や測定誤差では説明できないとした。また、このSEAVSでの測定結果及び16報の文献から抽出した同様な研究結果を併せた68地点の観測結果を解析し、OC濃度と不明分との間に関連があることを示した。PM_{2.5}質量濃度と化学成分による再構築濃度との差異は、(1)OCの捕集と分析による誤差、(2)OCから有機物濃度を推定する係数の過小評価、(3)有機物の水分吸収の寄与によって説明できると結論した。

PAQS(Pittsburgh Air Quality Study)の一部として、米国ピッツバーグで2001年夏から2002年冬までの7ヶ月間、毎日の大気粒子試料捕集がFRMで、またその化学成分分析は種々のフィルタ捕集による測定とともに連続測定機で行われ、FRMによるPM_{2.5}質量濃度と化学成分濃度とのマスバランスが検討された(Reesら(2004))。この結果、FRMによるPM_{2.5}質量濃度の全期間平均は、化学成分濃度の合計よりも11%過大であり、この差は季節によって変動し、夏季には17%大きく、試料によっては30%にも達したが、冬季ではFRM濃度は若干低くなる場合もあったがほとんど一致した。季節によってマスバランスの不一致の程度が変化することは、測定の誤差では説明できず、フィルタの水分保持と成分の揮散損失が検討された。水分の寄与は、夏季にはFRM濃度の16%、冬季には8%となり、水分の保持は酸性度が高い時に最も大きくなった。また、揮散損失は夏季に5%、冬季に9%と推定され、有機粒子が支配的な時期、あるいは冬季で硝酸塩が相対的に高濃度の場合に起こることが明らかになった。これは秤量条件の調整されたFRMフィルタに保持される粒子の水分と揮散損失とによると結論された。

PM_{2.5}及びPM_{10-2.5}の発生源、化学成分、これらの長期傾向を明らかにするために、米国の南東部地域でSEARCH(Southeastern Aerosol Research and Characterization Study)が1998年から1999年に実施され、FRMによるPM_{2.5}質量濃度が解析された(Edgertonら(2005))。FRMは硝酸塩、アンモニウム及びOCの揮散損失によって、PM_{2.5}質量濃度を3~7%過小評価しており、大気粒子の性状解明を行うためには、これら成分の揮散損失を明らかにする必要があるとされた。

米国だけでなく、欧州でもPM_{2.5}質量濃度と化学成分とのマスバランスが検討されてい

る (Sillanpää ら (2006))。2002 年秋季から 2003 年夏季までに、欧州 6 都市のバックグラウンド (デュースブルグ(Duisburg)/ドイツ、プラハ/チェコ共和国、アムステルダム/オランダ、ヘルシンキ/フィンランド、バルセロナ/スペイン、アテネ/ギリシャ) で順次、PM_{2.5} 質量濃度と化学成分との関係を調査研究するために、PM_{2.5} 及び PM_{10-2.5} 質量濃度とともに、これらの化学成分として無機イオン、全元素及び水可溶性元素、EC 及び OC の濃度が測定された。PM_{2.5} 質量濃度は 8.3 ~ 30 µg/m³ で、主要成分は炭素成分と無機イオン及び海塩粒子であった。積算された質量濃度は、PM_{2.5} 質量濃度の主要及び微量成分で秤量された PM_{2.5} 質量濃度の 79~106% を占めることが明らかにされた。

基本的には、秤量による PM_{2.5} 質量濃度は、主要無機塩 ((NH₄)₂SO₄、NH₄NO₃、NH₄Cl)、炭素成分 (EC 及び有機物)、主要金属元素による土壌性粒子及び海塩粒子で説明できる。しかし、秤量と成分分析に用いるフィルタが異なること、捕集される粒子の物理的・化学的特性 (吸湿性、潮解性、揮発性等) の差異、あるいは測定時の気象条件に起因して、秤量による質量濃度と成分濃度から再構築された質量濃度との差が顕著になることがある。評価に際して、フィルタ秤量及び化学成分分析に関する次のことに注意が肝要であると言える。

- (1) 秤量の基準となるテフロンフィルタを使用前後に適正に秤量すること
- (2) 石英繊維フィルタによる OC 測定用試料採取による有機物の吸着・揮散と分析に伴う誤差
- (3) OC 濃度から有機物濃度を推定する係数の適用
- (4) 秤量用テフロンフィルタからの硝酸塩、アンモニウム及び OC の揮散損失

2.5.5. 同位体利用法

人為発生源からの一次粒子の主たるものは化石燃料やバイオマス燃料の燃焼に伴う粒子である。燃料燃焼は主として炭素と酸素との酸化反応であり、その主役は炭素である。この炭素には安定同位体の ¹²C (存在度 98.90%) と ¹³C (同 1.10%) と放射性同位体の ¹⁴C があり、物質の生成由来によってこれら炭素同位体の含まれる割合が異なる。これら同位体の化学的な挙動に差はないが、一般に質量差によって気-液固相間の相変化で同位体分離が起こるとされる。植物では炭酸同化作用で同位体分離が起こり、大気中の存在比よりも多い ¹⁴C が植物体に取り込まれる。¹⁴C は大気中 ¹⁴N と宇宙線中性子との核反応によって生成され、その半減期は 5,730 年である。植物の生命活動が停止すると ¹⁴C の取り込みも停止され、植物体中の ¹⁴C は半減期に伴って壊変し減少する。生成から長時間経過した化石燃料中の炭素には ¹⁴C が含まれないので、燃焼に伴って排出される粒子や排気には ¹⁴C は含まれない。他方、木材や最近まで生きていた物質の燃焼によって放出される炭素には ¹⁴C が含まれ、¹⁴C と全炭素の比は大気中炭酸ガスの値とほぼ平衡している。従って、試料に含まれる炭素中の ¹⁴C 濃度を比較して、化石燃料由来の燃焼粒子とバイオマスなどの発

生源粒子とを区別することができる (Currie ら (1984b)、Currie ら (1989)、Alessio ら (2002)、Takahashi ら (2007))。

次のように定義される炭素同位体比 ($^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$) の変化 $\delta^{13}\text{C}$ (‰) も発生源同定に利用される。

$$\delta^{13}\text{C} (\text{‰}) = (\text{Rsa}/\text{Rst} - 1) \times 1000 \quad (\text{‰}) \quad (10)$$

ここで、Rsa 及び Rst は、それぞれ試料及び標準物質 V-PDB (Vienna-PeeDEE Belemnite) での比の値 ($^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$) である。

燃焼前の炭素同位体比に差が顕著に生じなくても、燃焼過程によって差が顕著に生じ、粒子中の $\delta^{13}\text{C}$ 値を正確に測定することによって、ディーゼル排気や燃料油燃焼とガソリン車、石炭或いは天然ガスといった別の燃焼発生源とを区別できる (Widory ら (2004))。北部中国の乾燥地域や半乾燥地域での土壌では、炭酸塩濃度は西から東にかけて減少する傾向にあるが、この炭酸塩炭素の $\delta^{13}\text{C}$ 値も同様に東にかけて減少するという。乾燥地域の土壌は地域によって明瞭な差異があり、炭酸塩炭素の $\delta^{13}\text{C}$ 値がダスト発生源地域を識別する指標として利用価値が高いとされた (Wang ら (2005))。また、 $\delta^{13}\text{C}$ 値の比較測定から粒子中にサトウキビのような C4 植物からの影響を同定した例もある (Martinelli ら (2002))。

炭素以外に、元素の安定同位体比による発生源寄与推定などに Pb (Mukai ら (2001)) や S (Jenkins と Bao (2006))、Sr など (Kanayama ら (2002)) が利用される。

2.5.6. まとめ

IMPROVE ネットワークの運用で蓄積された粒子状物質の測定技術と十分に精度管理された観測データの蓄積が、PM_{2.5} 導入後に発生源寄与同定をはじめとした性状特性の把握に活用されている。IMPROVE ネットワークの本来の目的である視程評価のために、粒子の化学成分濃度が必要であり、当然、十分な精度管理が必要である。この精度管理法として、主要成分の分析値から再構築した質量濃度がフィルタ秤量法で測定された微小粒子濃度と決められた範囲で一致することが求められた。このマスバランスクロージャーによる精度管理が精度の良い環境データを提供し、CMB 法や PMF 解析による発生源寄与濃度の推定に大いに貢献している。

PM_{2.5} の規制開始に前後して、CMB 法による発生源寄与濃度の推定が普及していった。この背景には発生源寄与濃度推定のために、EPA によって CMB 関連ソフトが解析ツールとして提供されたことが挙げられる。CMB 法の普及とともに必要とされる主要発生源プロフィールの充実、さらに指標成分を有機物まで広げることによって、PM_{2.5} の主成分である炭素成分発生源の同定が著しく改善された。

さらに PM_{2.5} の規制後に運用が始まった STN や Supersite での調査研究によって、大量の精度管理された環境データが提供されるようになった。これらの環境情報を解析するツ

ルとして、EPA は PMF と Unmix を採用し、CMB の場合と同様に解析ソフトウェアを提供した結果、環境データのみから発生源寄与濃度と発生源プロファイルを推定できるようになった。これら多変量モデルによる解析では先験的な発生源情報は必要としないが、予想もつかない発生源因子が抽出されることがある。Hopke らは PMF 解析によって得られた粒子の発生源情報を PSCF 解析によって観測地点近傍のみでなく遠方地域による発生源と関係づけることに成功した。

以上のように、大気粒子の発生源寄与推定に限っても著しい進展があるが、この背景には性能向上の著しいコンピュータや計測・分析機器の存在が窺える。大気粒子を個別に成分分析する AMS の実用化、それから得られるデータの解析によって有機粒子の発生源解析も可能になっている。今後、この分野の著しい発展が予測される。

参考文献

- Alessio, M., Anselmi, S., Conforto, L., Improta, S., Manes, F. & Manfra, L. (2002). Radiocarbon as a biomarker of urban pollution in leaves of evergreen species sampled in Rome and in rural areas (Lazio-Central Italy). *Atmospheric Environment*, 36, 5405-5416.
- Alpert, D.J. & Hopke, P.K. (1980). A quantitative determination of sources in the Boston urban aerosol. *Atmospheric Environment*, 14, 1137-1146.
- Anderson, R.R., Martello, D.V., Lucas, L.J., Davidson, C.I., Modey, W.K. & Eatough, D.J. (2006). Apportionment of Ambient Primary and Secondary Pollutants during a 2001 Summer Study in Pittsburgh Using U.S. Environmental Protection Agency UNMIX. *Journal of Air & Waste Management Association*, 56, 1301-1319.
- Andrews, E., Saxena, P., Musarra, S., Hildemann, L.M., Koutrakis, P., McMurry, P.H., Olmez, I. & White, W.H. (2000). Concentration and Composition of Atmospheric Aerosols from the 1995 SEAVS Experiment and a Review of the Closure between Chemical and Gravimetric Measurements. *Journal of Air & Waste Management Association*, 50, 648-664.
- Brook, J.R., Woodhouse, S.A., Blanchard, P., Dann, T., Dabek-Zlotorzynska, E., Goldthorp, S., Wiebe, A., Li, S.M., Guise-Bagley, L., Hoff, R., Mamedov, A., Hanson-Smith, L., Nejedly, Z., Campbell, J.L. & Chow, J.C. (2000). Chemical mass balance analyses of Toronto area PM_{2.5}. In Report No AES/AQRB-PERD-04. Environment Canada: Toronto, ON, Canada.
- Brown, S.G., Frankel, A., Raffuse, S.M., Roberts, P.T., Hafner, H.R. & Anderson, D.J. (2007). Source Apportionment of Fine Particulate Matter in Phoenix, AZ, Using Positive Matrix Factorization. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 57, 741-752.
- Byun, D.W. & Ching, J.K.S. (1999). Science algorithms of the EPA Models-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) Modeling System. In EPA/600/R-99/030. EPA Office of Research and Development: Research Triangle Park, NC, U.S. .
- Chan, Y.C., Simpson, R.W., Mctainsh, G.H., Vowles, P.D., Cohen, D.D. & Bailey, G.M. (1999). Source apportionment of PM_{2.5} and PM₁₀ aerosols in Brisbane (Australia) by receptor modelling. *Atmospheric Environment*, 33, 3251-3268.
- Chang, S.N., Hopke, P.K., Gordon, G.E. & Rheingrover, S.W. (1988). Target-transformation factor analysis of airborne particulate samples selected by wind-trajectory analysis. *Aerosol Science and Technology*, 8, 63-80.
- Chen, K.S., Lin, C.F. & Chou, Y.M. (2001). Determination of Source Contributions to Ambient PM_{2.5} in Kaohsiung, Taiwan, Using a Receptor Model. *Journal of Air &*

- Waste Management Association*, 51, 489-498.
- Chen, W.C., Wang, C.S. & Wei, C.C. (1997). An Assessment of Source Contributions to Ambient Aerosols in Central Taiwan. *Journal of Air & Waste Management Association*, 47, 501-509.
- Cheng, M.D. & Hopke, P.K. (1989). Identification of markers for chemical mass balance receptor model. *Atmospheric Environment*, 23, 1373-1384.
- Chow, J.C. & Watson, J.G. (2002). Review of PM_{2.5} and PM₁₀ apportionment for fossil fuel combustion and other sources by the chemical mass balance receptor model. *Energy & Fuels*, 16, 222-260.
- Chow, J.C., Watson, J.G., Crow, D., Lowenthal, D.H. & Merrifield, T. (2001). Comparison of IMPROVE and NIOSH Carbon Measurements. *Aerosol Science and Technology*, 34, 23-34.
- Chow, J.C., Watson, J.G., Pritchett, L.C., Pierson, W.R., Frazier, C.A. & Purcell, R.G. (1993). The DRI Thermal/Optical Reflectance Carbon Analysis System: Description, Evaluation and Applications in U.S. Air Quality Studies. *Atmospheric Environment Part A General Topics*, 27, 1185-1201.
- Chueinta, W., Hopke, P.K. & Paatero, P. (2000). Investigation of sources of atmospheric aerosol at urban and suburban residential areas in Thailand by positive matrix factorization. *Atmospheric Environment*, 34, 3319-3329.
- Cooper, J.A. & Watson, J.G. (1980). Receptor oriented methods of air particulate source apportionment. In *J Air Pollution Control Assoc*, Vol. 30. pp. 1116-1125.
- Currie, L.A., Flecher, R.A. & Klouda, G.A. (1989). Source apportionment of individual carbonaceous particles using 14C and laser microprobe mass spectrometry. *Aerosol Science and Technology*, 10, 370-378.
- Currie, L.A., Gerlach, R.W., Lewis, C.W., Balfour, W.D., Cooper, J.A., Dattner, S.L., De Cesar, R.T., Gordon, G.E., Heisler, S.L., Hopke, P.K., Shah, J.J., Thurston, G.D. & Williamson, H.J. (1984a). Interlaboratory comparison of source apportionment procedures: Results for simulated data sets. *Atmospheric Environment*, 18, 1517-1537.
- Currie, L.A., Klouda, G.A. & Voorhees, K.J. (1984b). Atmospheric carbon: The importance of accelerator mass spectrometry. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 5, 371-379.
- Daisey, J.M. & Kneip, T.J. (1981). Atmospheric particulate organic matter: Multivariate models for identifying sources and estimating their contributions to the ambient aerosol. In *Atmospheric Aerosol: Source/Air Quality Relationships*, Macias, E.S. & Hopke, P.K. (eds) pp. 197-221. ACS Symp. Series 167. American Chemical Society:

Washington, D.C.

- Daisey, J.M., Mahanama, K.R.R. & Hodgson, A.T. (1994). Toxic volatile organic compounds in environmental tobacco smoke: emissions factors for modeling exposures of California populations. pp. 1-109. Lawrence Berkeley Laboratory, University of California.
- Dzubay, T.G., Stevens, R.K., Balfour, W.D., Williamson, H.J., Cooper, J.A., Core, J.E., De Cesar, R.T., Crutcher, E.R., Dattner, S.L., Davis, B.L., Heisler, S.L., Shah, J.J., Hopke, P.K. & Johnson, D.L. (1984). Interlaboratory comparison of receptor model results for Houston aerosol. *Atmospheric Environment*, 18, 1555-1566.
- Dzubay, T.G., Stevens, R.K., Gordon, G.E., Olmez, I., Sheffield, A.E. & Courtney, W.J. (1988). A composite receptor method applied to Philadelphia aerosol. *Environ Sci Technol*, 22, 46-52.
- Edgerton, E.S., Hartsell, B.E., Saylor, R.D., Jansen, J.J., Hansen, D.A. & Hidy, G.M. (2005). The Southeastern Aerosol Research and Characterization Study: Part II. Filter-Based Measurements of Fine and Coarse Particulate Matter Mass and Composition. *Journal of Air & Waste Management Association*, 55, 1527-1542.
- Engelbrecht, J.P., Swanepoel, L., Chow, J.C., Watson, J.G. & Egami, R.T. (2002). The comparison of source contributions from residential coal and low-smoke fuels, using CMB modeling, in South Africa. *Environ Sci Policy*, 5, 157-167.
- Friedlander, S.K. (1973). Chemical element balances and identification of air pollution sources. *Environmental Science & Technology*, 7, 234-240.
- Gao, N., Gildemeister, A.E., Krumhansl, K., Lafferty, K., Hopke, P.K., Kim, E. & Poirot, R.L. (2006). Sources of Fine Particulate Species in Ambient Air over Lake Champlain Basin, VT. *Journal of Air & Waste Management Association*, 56, 1607-1620.
- Gordon, G.E., Pierson, W.R., Daisey, J.M., Liou, P.J., Cooper, J.A., Watson, J.G.J. & Cass, G.R. (1984). Considerations for design of source apportionment studies. *Atmospheric Environment*, 18, 1567-1582.
- Harley, R.A., Hunts, S.E. & Cass, G.R. (1989). Strategies for the control of particulate air quality: Least-cost solutions based on receptor-oriented models. *Environmental Science & Technology*, 23, 1007-1014.
- Henry, R.C. (1977a). The application of factor analysis to urban aerosol source identification. In Proc Fifth Conference on Probability and Statistics in Atmospheric Sciences pp. 134-138. American Meteorological Society: Las Vegas, Nevada.
- Henry, R.C. (1977b). A factor model of urban aerosol pollution, Vol. Ph.D. dissertation. pp.

124. Oregon Graduate Center: Beaverton, Oregon.
- Henry, R.C. (1997). History and Fundamentals of Multivariate Air Quality Receptor Models. *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, 37, 37-42.
- Henry, R.C. (2002). Multivariate receptor models- current practices and future trends. *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, 60, 43- 48.
- Henry, R.C. (2003). Multivariate receptor modeling by N-dimensional edge detection. *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, 65, 179-189.
- Henry, R.C. (2005). Duality in multivariate receptor models. *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, 77, 59-63.
- Henry, R.C., Lewis, C.W. & Collins, J.F. (1994). Vehicle-Related Hydrocarbon Source Composition from Ambient Data: The GRACE/SAFER Method. *Environmental Science & Technology*, 28, 823-832.
- Henry, R.C., Lewis, C.W., Hopke, P.K. & Williamson, H.J. (1984). Review of receptor model fundamentals. *Atmospheric Environment*, 18, 1507-1515.
- Henry, R.C., Park, E.S. & Spiegelman, C.H. (1999). Comparing a New Algorithm with the Classic Methods for Estimating the Number of Factors. *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, 48, 91-97.
- Hooper, R.P. & Peters, N.E. (1989). Use of multivariate analysis for determining sources of solutes found in wet atmospheric deposition in the United States. *Environmental Science & Technology*, 23, 1263-1268.
- Hopke, P.K. (1981). The application of factor analysis to Urban aerosol source resolution. In *Atmospheric Aerosol: Source/Air Quality Relationships*, Macias, E.S. & Hopke, P.K. (eds) pp. 21-49. American Chemical Society: Washington, D.C.
- Hopke, P.K. (1985). *Receptor Modeling in Environmental Chemistry*. Wiley-Interscience: New York.
- Hopke, P.K., Lamb, R.E. & Natusch, D.F.S. (1980). Multielemental characterization of urban roadway dust. *Environ Sci Technol*, 14, 164-172.
- Hwang, C.-S., Severin, K.G. & Hopke, P.K. (1984). A comparison of R- and Q-modes in target transformation factor analysis for resolving environmental data. In *Atmospheric Environment*, Vol. 18. pp. 345-352.
- Hwang, I.J. & Hopke, P.K. (2006). Comparison of Source Apportionments of Fine Particulate Matter at Two San Jose Speciation Trends Network Sites. *Journal of Air & Waste Management Association*, 56, 1287-1300.
- Jenkins, K.A. & Bao, H. (2006). Multiple oxygen and sulfur isotope compositions of atmospheric sulfate in Baton Rouge, LA, USA. *Atmospheric Environment*, 40, 4528-4537.

- Jeon, S.J., Meuzelaar, H.L.C., Sheya, S.A.N., Lighty, J.S., Jarman, W.M., Kasteler, C., Sarofim, A.F. & Simoneit, B.R.T. (2001). Exploratory studies of PM10 receptor and source profiling by GC/MS and principal component analysis of temporally and spatially resolved ambient samples. *Journal of the Air and Waste Management Association*, 51, 766-784.
- Johnson, D.L., Davis, B.L., Dzubay, T.G., Hasan, H., Crutcher, E.R., Coutney, W.J., Jaklevic, J.M., Thompson, A.C. & Hopke, P.K. (1984). Chemical and physical analyses of Houston aerosol for interlaboratory comparison of source apportionment procedures. *Atmospheric Environment*, 18, 1539-1553.
- Kanayama, S., Yabuki, S., Yanagisawa, F. & Motoyama, R. (2002). The chemical and strontium isotope composition of atmospheric aerosols over Japan: the contribution of long-range-transported Asian dust (Kosa). *Atmospheric Environment*, 36, 5159-5175.
- Kim, B.M. & Henry, R.C. (1999). Extension of Self-Modeling Curve Resolution to Mixtures of More Than Three Components Part 2. Finding the Complete Solution. *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, 49, 67-77.
- Kim, B.M. & Henry, R.C. (2000). Application of SAFER Model to the Los Angeles PM10 Data. *Atmospheric Environment*, 34, 1747-1759.
- Kim, E. & Hopke, P.K. (2004). Source Apportionment of Fine Particles in Washington, DC, Utilizing Temperature-Resolved Carbon Fractions. *Journal of Air & Waste Management Association*, 54, 773-785.
- Kim, E., Hopke, P.K. & Edgerton, E.S. (2003a). Source Identification of Atlanta Aerosol by Positive Matrix Factorization. *Journal of Air & Waste Management Association*, 53, 731-739.
- Kim, E., Hopke, P.K., Paatero, P. & Edgerton, E.S. (2003b). Incorporation of parametric factors into multilinear receptor model studies of Atlanta aerosol. *Atmospheric Environment*, 37, 5009-5021.
- Kim, E., Larson, T.V., Hopke, P.K., Slaughter, C., Sheppard, L.E. & Claiborn, C. (2003c). Source Identification of PM2.5 in an Arid Northwest U.S. City by Positive Matrix Factorization. *Atmos Res*, 66, 291-305.
- Kleinman, M.T., Pasternack, B.S., Eisenbud, M. & Kneip, T.J. (1980). Identifying and estimating the relative importance of sources of airborne particulates. *Environmental Science & Technology*, 14, 62-65.
- Kneip, T.J., Kleinman, M.T. & Eisenbud, M. (1974). Relative contribution of emission sources to the total airborne particulates in New York City. In Proc Third Int Clean Air Congress: Dusseldorf, West Germany.

- Larsen, R.K.J. & Baker, J.E. (2003). Source Apportionment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in the Urban Atmosphere: A Comparison of Three Methods. *Environmental Science & Technology*, 37, 1873-1881.
- Lee, E., Chan, C.K. & Paatero, P. (1999). Application of positive matrix factorization in source apportionment of particulate pollutants in Hong Kong. *Atmospheric Environment*, 33, 3201-3212.
- Lee, P.K.H., Brook, J.R., Dabek-Zlotorzynska, E. & Mabury, S.A. (2003). Identification of the Major Sources Contributing to PM_{2.5} Observed in Toronto. *Environmental Science and Technology*, 37, 4831-4840.
- Lewis, C.W., Norris, G.A., Conner, T.L. & Henry, R.C. (2003). Source Apportionment of Phoenix PM_{2.5} Aerosol with the Unmix Receptor Model. *Journal of Air & Waste Management Association*, 53, 325-338.
- Liang, J. & Fairley, D. (2006). Validation of an efficient non-negative matrix factorization method and its preliminary application in Central California. *Atmospheric Environment*, 40, 1991-2001.
- Liang, J., Kaduwela, A., Jackson, B., Gurrer, K. & Allen, P. (2006). Off-line diagnostic analyses of a three-dimensional PM model using two matrix factorization methods. *Atmospheric Environment*, 40, 5759-5767.
- Liu, W., Hopke, P.K., Han, Y.-j., Yi, S.-M., Holsen, T.M., Cybart, S., Kozlowski, K. & Milligan, M. (2003). Application of receptor modeling to atmospheric constituents at Potsdam and Stockton, NY. *Atmospheric Environment*, 37, 4997-5007.
- Lowenthal, D.H. & Kumar, N. (2003). PM_{2.5} Mass and Light Extinction Reconstruction in IMPROVE. *Journal of Air & Waste Management Association*, 53, 1109-1120.
- Lowenthal, D.H., Wittorff, D., Gertler, A.W. & Sakiyama, S. (1997). CMB Source Apportionment during REVEAL. *Journal of Environmental Engineering*, 123, 80-87.
- Lowenthal, D.H., Zielinska, B., Chow, J.C., Watson, J.G., Gautam, M., Ferguson, D.H., Neuroth, G.R. & Stevens, K.D. (1994). Characterization of Heavy-Duty Diesel Vehicle Emissions. *Atmospheric Environment*, 28 731-743.
- Magliano, K.L., Hughes, V.M., Chinkin, L.R., Coe, D.L., Haste, T.L., Kumar, N. & Lurmann, F.W. (1999). Spatial and temporal variations in PM₁₀ and PM_{2.5} source contributions and comparison to emissions during the 1995 integrated monitoring study. *Atmospheric Environment*, 33, 4757-4773.
- Martinelli, L.A., Camargo, P.B., Lara, L.B.L.S., Victoria, R.L. & Artaxo, P. (2002). Stable carbon and nitrogen isotopic composition of bulk aerosol particles in a C4 plant landscape of southeast Brazil. *Atmospheric Environment*, 36, 2427-2432.