

3.3. ヒトへの曝露様態

3.3.1. 基本概念

この節では、ヒトへの曝露がどのようにして起こるのか、環境大気曝露、環境大気以外の曝露と個人曝露量との関係について、基本的な概念を説明する。

大気汚染物質がヒトに健康影響を発現するまでには、発生源からの排出(emission)→濃度(concentrations)→曝露(exposure)→吸収(dose)→健康影響(health effects)、という段階を経る。「曝露」とは、口や鼻で空気を吸い込む時の現象のようにとらえられるが、厳密に言えば鼻腔、上気道、気管支、肺胞等、呼吸器官各部位における接点で曝露は生じている。また、皮膚や消化管における曝露もあるが、これらはタバコ煙を除けば粒子状物質の健康影響としてはほとんど考慮する必要がない。

一般に曝露濃度とは、鼻や口で吸い込んでいる空気の濃度を指す。ここでもその意味で使うこととする。実際に曝露濃度を測定する場合、理想的には鼻や口の近く(呼吸域)で、かつ呼気の影響がないところでサンプリングすることになる。

日本や欧米の一般住民が曝露する大気は、実際には生活時間のほとんどを屋内で過ごしているため屋内曝露が曝露全体の大半を占めることになるが、屋内の粒子状物質には、屋内で発生した粒子状物質の曝露等とともに屋外から侵入している粒子状物質も多く含まれる。すなわちヒトの粒子状物質への曝露は、屋外はもとより、屋内でも環境濃度と密接に関連している。

個人曝露量の総体は、環境大気中の粒子状物質と環境大気以外の粒子状物質の曝露と分けることができる(T (個人曝露量) = A (環境大気曝露) + N (環境大気以外の曝露))。

ここで A は、 Ea (外気曝露)と Eai (屋内に入った外気の曝露)に分解でき、 N は、 Eig (屋内発生粒子の曝露)、 Eir (屋内で反応して発生した粒子の曝露)、 Epc (ヒトの活動で発生した粒子の曝露: personal cloud)に分解できる。

また、個人の1日の生活を考えると、 A は、 yC (屋外平均濃度)と $(1-y)Cai$ (屋内に入った外気濃度)(y は屋外にいた時間割合)の和と考えることができる。このように、曝露の中身を分解することは、以下の個人曝露の考察に役立つ。

個人曝露を時間経過で考えると、ある時間における曝露総量は曝露濃度と時間の積分と考えることができる。実際には個人が滞在する場所ごとにある単位時間の平均濃度を測定して、時間を掛けて求めることになる。ただし、場所ごとの平均濃度は、対象の個人がそこにいた時だけの平均濃度を測定することは通常困難なことから12時間あるいは24時間の平均濃度を測定して用いる(図3.3.1)。しかし、実際にはそれぞれ場所の濃度は時間によって変化し、さらに

対象者の活動による発生（*Epc*）により曝露濃度が上昇することもあるため、固定式測定器により、その場所におけるヒトの活動のない時間帯を含む長時間の平均濃度を用いて個人曝露を推定する場合には、過小評価になりやすいことに注意を払う必要がある。

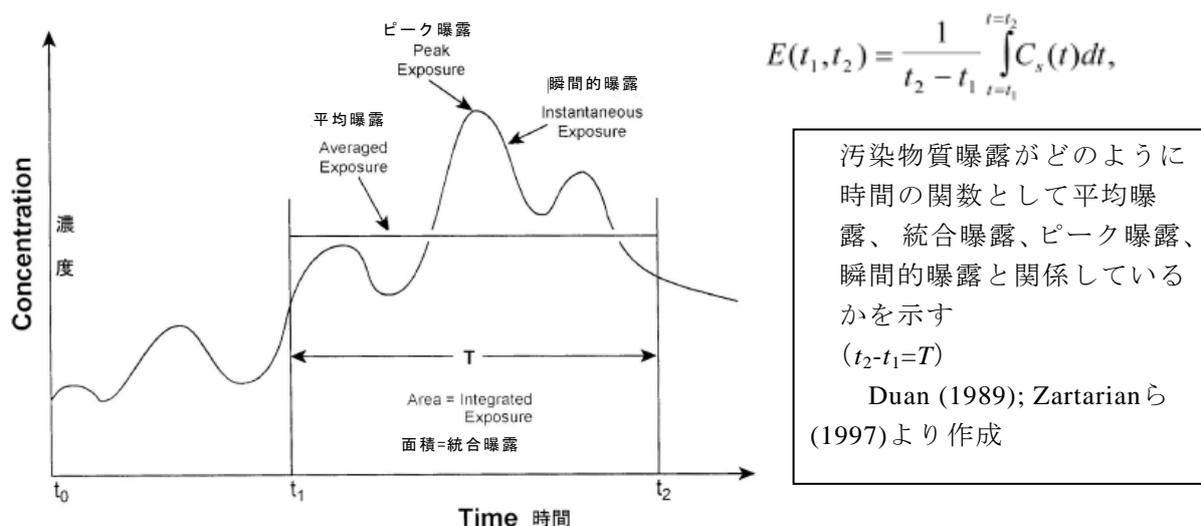


図 3.3.1 仮定的な曝露時間プロファイル

3.3.2. 環境濃度

ある地域の環境濃度（大気中濃度）は一般環境大気測定局（以下、測定局という。）における測定濃度で代表されることが多い。地域集団（住民）を対象とした多くの疫学調査研究においても、対象地域内の一測定局の濃度あるいは複数の測定局の平均濃度を地域全体の環境濃度として、それをそのまま曝露濃度（あるいはその代替指標）にして解析をしている。

環境濃度も当然地域内で異なっているが、測定局における測定濃度を地域の環境濃度として疫学研究に採用するには、地域内に分布する住宅周辺の屋外濃度と測定局における濃度とが大きな差が無く、日間変動についても十分な相関を持っていることが確認できることが必要である。

Oglesby ら (2000)は、スイスのバーゼルにおける研究で、それぞれの被験者の家の屋外で測定した $PM_{2.5}$ 濃度にはほとんど空間的にも変動がなく、固定モニタ地点における PM_4 濃度と強い相関があったことから、逆にそれぞれの

屋外で測定した PM_{2.5} 濃度をバーゼルの PM_{2.5} 濃度と考えてよいと結論づけた。

国内の測定事例では、環境省「微小粒子状物質曝露影響調査報告書」（環境省（2007））に7地域の結果が掲載されている。地域内の測定局において家屋外の測定に用いたサンプラで同時に測定した結果、PM_{2.5}の屋外の平均濃度は測定局における濃度とほとんど一致していることが確認された。家屋ごとの濃度のばらつきについては、一例として取手市の結果を図 3.3.2、3.3.3 に示す。この例では、PM_{2.5}の屋外濃度測定値は、秋季、夏季で平均から大きく外れた値がまれに観測されたが、ほとんど屋外濃度の平均値と一致し、変動係数は春季、冬季、秋季がいずれも 8%、夏季が 20%であった。これら国内外の測定結果から、小地域内ではその地域内の一般局等の固定モニタ地点における測定濃度（環境濃度）をもって対象家屋の屋外濃度の代替とすることは可能であると考えられる。

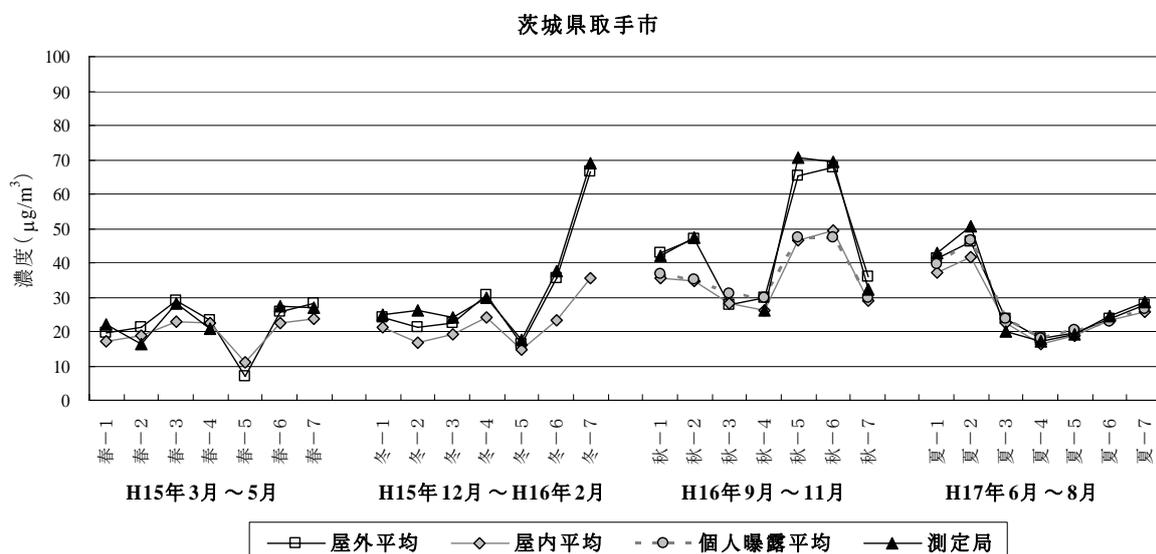


図 3.3.2 茨城県取手市における地域内測定局での PM_{2.5} 濃度と対象家屋の屋外、屋内、個人曝露の各平均濃度

「微小粒子状物質等曝露影響調査報告書」（環境省（2007））より作成

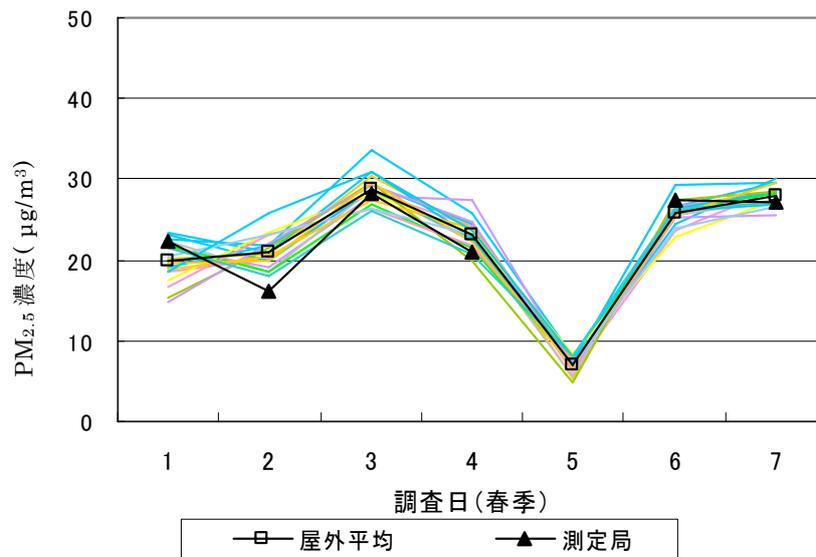


図 3.3.3 茨城県取手市の春季における対象家屋の屋外 PM_{2.5} 濃度と屋外平均濃度及び地域内測定局での濃度
「微小粒子状物質等曝露影響調査報告書」(環境省 (2007))より作成

3.3.3. 個人曝露濃度との関係

個人曝露研究では、被験者の選定の仕方で、確率的方法と意図的すなわち非確率的方法に分けられる。確率的方法では、母集団から一定の基準で被験者をランダムに選定するため、その結果は対象集団に関する統計的推定を行うことができる。これに対し、意図的方法は対象者の特性を限定することで、特定の集団における曝露状況は把握できるが、被験者が含まれる母集団との関係は分からないため、母集団全体の平均的な曝露濃度の推定を行うことはできない。

対象選択の方法とは別に、研究の方法により、小数の被験者を何日も継続して測定する縦断型、多数の被験者ではあるがそれぞれの被験者を1日か2日異なる日に測定するプール型、多数の被験者を同じ日に測定する日平均型の3つに区分できる。

確率的方法による研究は、ほとんどがプール型であり、意図的方法の研究はプール型もあるが多くは縦断型である。日平均型の研究に該当するものはこれまで14名を14日間測定した1研究だけであった。「微小粒子状物質曝露影響調査報告書」(環境省 (2007))にある国内7地域で実施した個人曝露調査では、地域ごとには10名前後の規模で2季節(計14日間)測定しており、7地域では100名以上の測定規模となり、これまでで最大規模の調査といえる。

プール型研究においては、環境濃度あるいは屋外濃度と、屋内濃度や個人曝露との相関関係がほとんど見られないという結果が多く出されてきた。しかし、Mageら(1999)は個人ごとでは縦断的(経時的)測定により屋外濃度と屋内濃度に強い相関関係があっても、それぞれの家屋で屋内/屋外濃度比が異なる場

合や特異的な非環境曝露が入る場合、横断的なプール型研究では屋外濃度と屋内濃度の相関関係が非常に低くなることを立証した。実際、Tamuraら（1996）及びJanssenら（1997）、Janssenら（1998）、Janssenら（1999）の縦断型研究では、個人曝露と環境濃度の相関は、プールされたデータから得られた相関よりも強いことを明らかにした。また、国内7地域の調査結果も、環境濃度と個人曝露濃度の相関が強いことを示した。

もっとも、縦断的な研究の結果においては、必ずしもすべての家屋において屋外濃度と屋内濃度に強い相関があるわけではない。幹線道路に面している鉄筋集合住宅等では騒音防止のために機密性の高い窓枠を採用し、常時窓を閉め切りエアコンで屋内環境を管理しているところがある。このような場合は、屋内での発生がない場合であっても、当然屋内と屋外濃度間に相関はない。

米国における調査結果では、屋内や個人曝露濃度が屋外（環境）濃度を上回っていた。これは屋内における粒子状物質の発生が個人曝露に重要な要素であることを示している。また、個人曝露濃度や屋内濃度と屋外濃度や環境濃度との相関が乏しい結果となっていた。

日本における継続的な調査結果では、図 3.3.4 のように全体としても屋内濃度と個人曝露量との間に強い相関があり、また多くの場合屋内濃度の方が屋外濃度より低いか同じレベルであることがわかった（「微小粒子状物質曝露影響調査報告書」環境省（2007））。

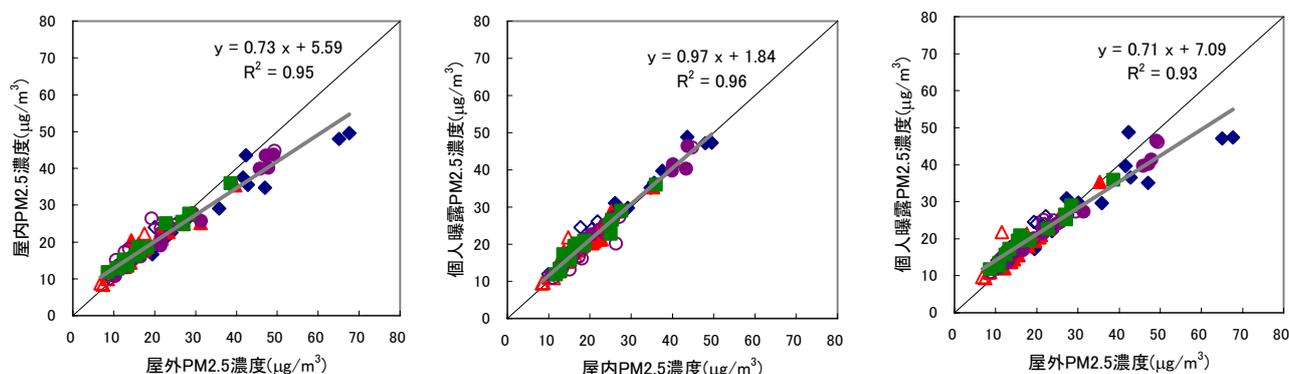


図 3.3.4 国内7地域の夏季・秋季における測定日ごとの屋外・屋内・個人曝露平均濃度

図中の印は地域の違いを示す。

「微小粒子状物質等曝露影響調査」（環境省（2007））データより作成

また、沿道等、屋外濃度が高い場合には屋内の方が屋外より低い傾向があった。屋内のヒトの行動による屋内大気中への粒子状物質の発生という点では、屋内で靴を脱ぐ等、欧米と異なる日本の生活習慣が屋内濃度を欧米より減少さ

せている可能性がある。

さらに、Janssen ら (1995)や Tamura ら (1996)は、米国や日本における研究で、喫煙や線香等、屋内の発生源が存在しない条件で継続的に測定した場合には、個人曝露と環境濃度との間に強い相関があることを示した。これらの結果から、個人曝露における環境粒子曝露と非環境粒子曝露を分けて考察する必要性が確認された。

3.3.4. 環境濃度から個人曝露濃度の推定

現代の日本人は、学生や勤め人も含めた平均値で1日のうち平均 15.8 時間在宅している (2005 年「生活時間調査」、(2006))。外出先でも屋内にいる時間が多いため、平日の生活時間の約 90%を屋内で過ごしているという統計がある (塩津ら(1998))。世界的にも先進国では約 85%、途上国では約 70%が屋内で過ごしている(World Health Organization (2006)より推計)。また、米国 EPA では、12 歳以上の屋内滞在時間として約 21 時間 (屋外 1.5 時間、車中 1.5 時間) を曝露評価の推奨値としている (U.S.EPA National Center for Environmental Assessment of Office of Research and Development (1997))。このように、個人曝露はほとんど屋内濃度によって決定されるのが現状である。一方、多くの研究で、一定の地域内であればその地域の一般環境モニタリング局で測定されている環境濃度と地域内の各家屋の屋外濃度は大きな差が無いことも示されている。従って、個人曝露濃度と環境濃度に関する相関関係の強さは、屋外濃度と屋内濃度に関する相関関係の強さを見ることで概ね推定できる。

Wilson ら (2000)は、米国の PTEAM(Particle Total Exposure Assessment Methodology)研究の結果を再評価し、PM₁₀における環境大気由来の粒子 (以下、この節において環境粒子という。) の日中の屋内での侵入率と、総個人曝露量に占める環境粒子曝露の率 (A/C) の度数分布を求めた。図 3.3.5 エラー! 参照元が見つかりません。に示すとおり、屋内における環境粒子の割合はさほど高くなく、また屋内における総個人曝露量に占める環境粒子の割合についても同様に高くない。従って、図 3.3.6 エラー! 参照元が見つかりません。(a) 及び (c) に示すとおり、環境濃度と総個人曝露濃度との相関は弱く、また、環境濃度と非環境粒子の個人曝露濃度との相関はなかった。しかし、(b) のように環境粒子に限れば個人曝露濃度と環境濃度とは強い相関があることが認められた。このことから、疫学研究において、環境粒子の個人曝露濃度の代替として環境濃度を用いることの妥当性が示された。

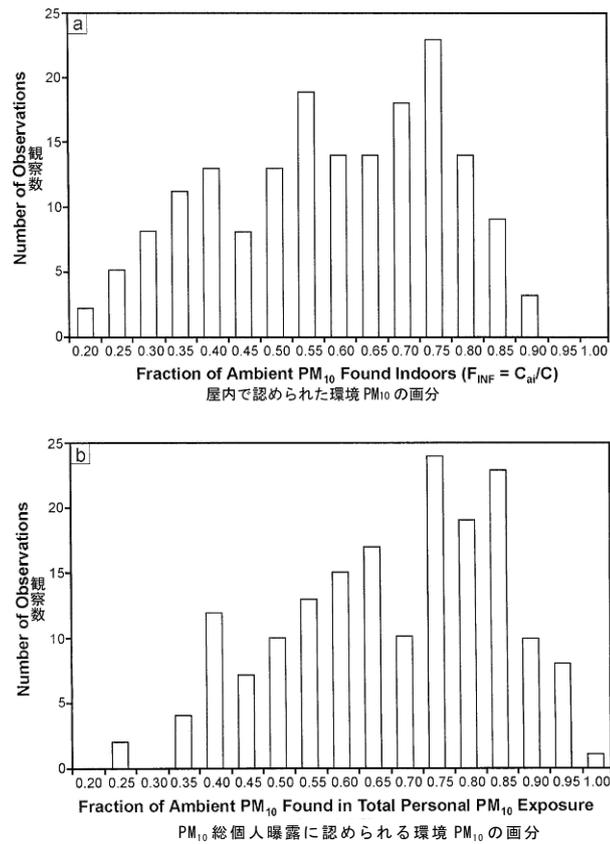


図 3.3.5 PTEAM 研究データから推定した日中の F_{INF} (a) 及び α (b) 分布
出典： Wilson ら (2000)

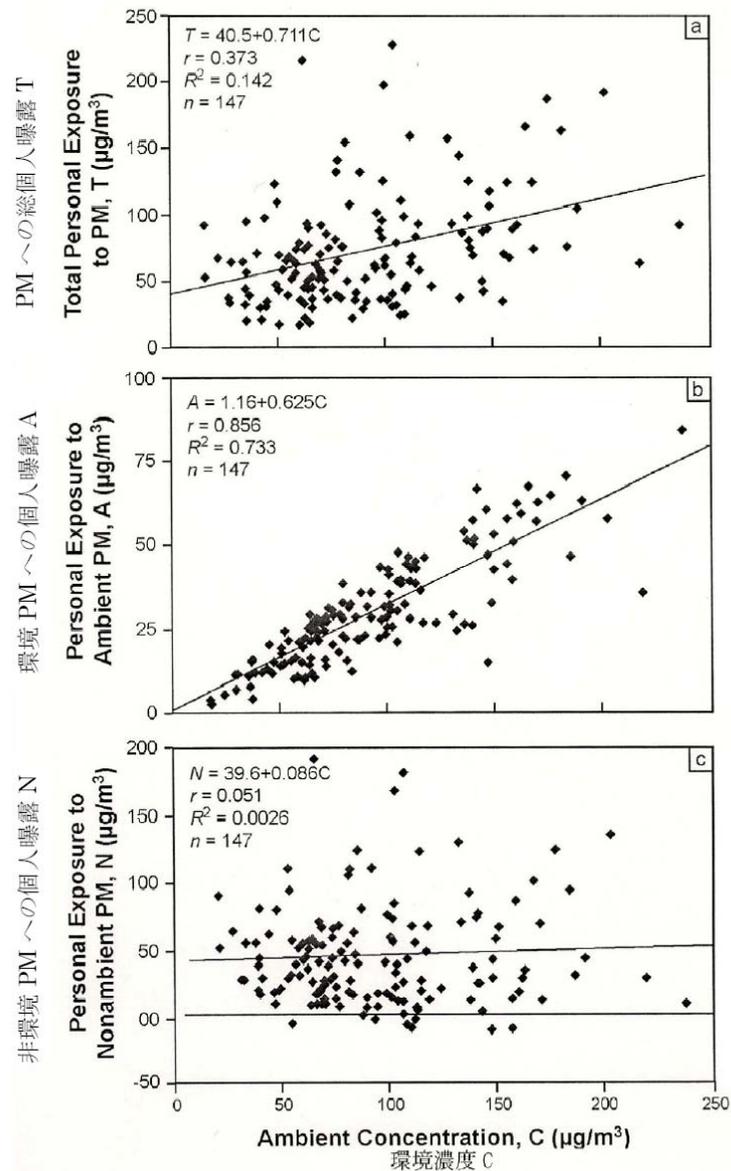


図 3.3.6 PTEAM 研究のデータを用いて推定された PM_{10} へ日中の個人曝露の回帰分析：環境濃度に対する (a) 粒子状物質への総個人曝露，(b) 環境中粒子状物質への個人曝露及び (c) 非環境粒子状物質に対する個人曝露

出典：Clayton ら (1993)、Mage ら (1999) 及び Wilson ら (2000) のデータを EPA が改変したもの

調理やヒトの活動による屋内発生源が無視できる夜間には、屋内・屋外濃度比あるいは侵入率を用いて屋内における環境大気成分を決定することができる。Long ら (2001) は、ボストンにおける 9 家屋の測定で得た夜間の測定データから、粒子径別の屋内・屋外濃度比を求めた。

屋外環境の粒子は、 $0.5\mu\text{m}$ 以上では粒径が大きくなるほど侵入係数が低下し、

0.1 μm 以下では小さくなるほど侵入係数が低下し、夜間では 0.1~0.5 μm ではほぼ 90%から 100%が屋外からの粒子であるという結果であった。また、屋内に浸透する環境中の粒子状物質は換気率が低い秋よりも換気率が高い夏に高くなっていた(図 3.3.7)。

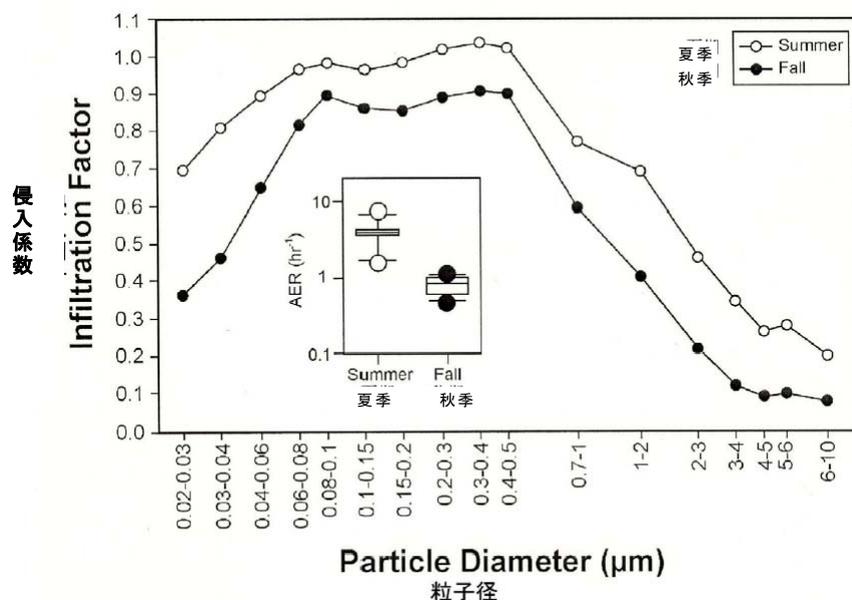


図 3.3.7 季節の夜間 1 時間ごとの非発生源データによる幾何平均侵入係数 (屋内/屋外比)

換気率のボックスプロットを各プロットに挿入して示した (ボストン, 1998)

出典 : Longら (2001)

このように、PM_{2.5}に該当する微小粒子は、粗大粒子に比べ屋内に侵入しやすく、屋外濃度との差が小さいことから、PM₁₀以上に個人曝露濃度との相関が強いPM_{2.5}の環境濃度は、個人曝露濃度の代替指標として適していると言える。

粒子状物質によるヒトへ健康影響は、汚染物質の特性(粒径)や、ヒトの感受性、活動性(呼吸量)等に影響される。粒径については、粒径が小さくなることで、ヒトの呼吸器部位における粒子の沈着のしやすさに変化が生じることと併せて、図 3.3.4 に示すとおり屋内における曝露が屋外における曝露と差が少なくなることについても考慮する必要がある。また、活動と呼吸量については、バイクで走る場合と自転車をこいで走る場合では、呼吸量が 2 倍違うことによって自転車をこいだ方の曝露量がバイクの 2 倍になる知見もある。このように正確な個人曝露量の把握が必要になる場合は、単に曝露濃度だけではなく呼吸量も合わせて把握することが重要である。

3.3.5. 個人曝露量の推定

個人曝露の測定は、理想的には対象者に個人サンプラを装着し、呼吸域の大気を対象時間中、連続的にサンプリングすることが望ましい。しかし、このような測定法は多数の対象者に実施することが現実的ではないため、多くの疫学研究では地域集団（住民）の曝露の代替物として、一般大気環境測定局の測定濃度を用いることが多い。

3.3.5.1. 直接的方法：個人サンプラあるいは個人曝露モニタによる測定

PM_{2.5}の個人曝露濃度測定のため、対象者個人に装着して測定する個人サンプラ（吸引ポンプとフィルタホルダ）に要求される条件をまず確認しておく。

吸引ポンプとしては、捕集試料の秤量、分析のためには吸引流量が大きく、流量低下が無く、小型・軽量で低騒音かつバッテリーが長時間持つことが望ましい。しかし、これらの条件をすべて満たすものは現時点では存在していないため、実験の条件に応じて適当な機材が選ばれるのが現状である。

吸引ポンプから発生する騒音については、かなり小さな音でも就寝時等の障害になることから、夜間は防音箱に収納する等、特別な防音対策が必要である。調査時の利便性から、タイマーは捕集データを記憶する仕組みがあることが望ましい。また、通常内蔵バッテリーは12時間程度しか駆動できないものが多く、現状では小型軽量の2L/min程度の吸引量に対応するポンプが一般的であるが、24時間の平均濃度の測定を必要とする場合は外部電池を追加する必要がある。

個人サンプラ本体（フィルタホルダ）の要件としては、所定の吸引流量で正確にPM_{2.5}を分級捕集できることが必要である。また、既存のSPMあるいはPM₁₀濃度測定データと比較するために同時に胸部粗粒子（すなわちPM_{10-2.5}）あるいはPM₁₀、SPMが捕集できることが望ましい。また、インパクトあるいはサイクロンの捕集面にはグリース塗布等により確実に土壌粒子や屋内のほこり等の粗大粒子を捕集して除外する仕組みが必要である。また安価であり、フィルタ交換等の操作性が良いことも望ましい。

これまでに多くの調査研究で用いられてきたPM_{2.5}を分級捕集する個人サンプラ（フィルタホルダ）としては、慣性衝突原理を利用したハーバード・インパクト（吸引流量4L/分、2.5μm又は10μmの50%カットポイント、MSP）とMSP-PEM（2L/分、2.5μm、SKC）、遠心力を利用したスパイラルサンプラ（2L/分、2.5μm、SKC）が知られている。大多数の研究では、PM_{2.5}あるいはPM₁₀どちらかだけが測定されており、胸部粗粒子の個人曝露に関するデータは非常に少ない。

日本では捕集特性をPM_{2.5}に合わせた個人サンプラは作られていなかったが、数年前に多段インパクトによりPM_{10-2.5}とPM_{2.5}を同時に捕集するATPS-20H、NWPS-35H（2.5L/分、Sibata）が作られた。特にATPS-20Hに

については、スパイラルサンプラ及び MSP-PEM との並行測定を行って捕集性能等において両機種に比べ遜色ないことを確認している（「微小粒子状物質曝露影響調査報告書」環境省（2007）参照）。また、吸引ポンプについては静音タイプのものが開発され、「局地的大気汚染の健康影響に関する疫学調査（そらプロジェクト）」（<http://www.env.go.jp/chemi/sora/index.html>）で用いられている。

個人曝露モニタでは、原理はいずれも光散乱法を用いており、ダストトラック・エアロゾルモニタ（TSI）、pDR（MIE）、PDS-2（Sibata）等がある。通常は吸引する粒子径を $2.5\mu\text{m}$ 以下にする等の制限をしていないが、pDR と PDS-2 等では吸引部に $\text{PM}_{2.5}$ のインパクタを設置し排気部にミニポンプを接続して規定の流量で吸引することにより、 $\text{PM}_{2.5}$ 粒子のみを測定することができる。ただし、光散乱モニタは測定粒子径や粒子表面の反射率により散乱光量が違うため、モニタに表示された濃度に、並行測定（フィルター捕集による測定）で求めた質量濃度から補正して濃度を算出する必要がある。

これらのモニタを用いることにより、短時間の高濃度曝露が生じているか知ることができるようになり、屋内における調理時の粒子状物質への曝露が高濃度になること等が明らかになった。ただし、高湿度の条件では、光散乱モニタは高濃度を表示するため注意を要する。モニタを吸引ポンプにつなぎ、吸引口に $\text{PM}_{2.5}$ 用のインパクタとさらに乾燥用の装置を取り付ければより正確な測定が可能となる。こうなると個人に装着して使用するには適さないが、屋内等、限られた微環境（Microenvironment）のモニタリングには利用可能である。

このように、直接対象者にサンプラやモニタを装着するのではなく、サンプラを定置して微環境を測定する場合は、粒子の質量濃度だけでなく、粒子中の成分分析にとって有利な吸引量の多いポンプを用いることができるため、10L/分から 40L/分で 12 時間あるいは 24 時間捕集することが多い。

また、 $\text{PM}_{2.5}$ ではないが、ナノ粒子を含む、より小さな粒子数を測定する CPC（凝縮粒子カウンター）も最近では小型化して携帯できるようになったため、沿道や屋内等の微環境の計測等で有意義な情報を提供することが期待される。

個人曝露測定では、できるだけ呼吸域でサンプリングすることが望ましいが、24 時間等、長時間サンプラを装着しておくことは困難であることから、局所的な発生が無視できる場合は、サンプラを携行して身近に置いてサンプリングすることが現実的な次善の策と考えられる。

環境濃度と屋内濃度、個人曝露との関係を検討する時には、対象家屋の粒子の特異な室内発生（線香等）や居住者の喫煙の有無が重要な要素となる。特に喫煙の影響は、屋内でのわずかな喫煙によっても 24 時間の $\text{PM}_{2.5}$ 平均濃度を数倍にまで増加させることがある。このため、対象者が限られる実際の個人曝露調査では、喫煙者や粒子の特異な屋内発生がある対象を除くように設計される。

3.3.5.2. モデルによる推定方法

個人曝露モデルは、モニタリングデータに基づく統計的モデル、物理的関係を用いるシミュレーションモデル、変動や不確実性を考慮した物理的確率モデルが作られている。

曝露モデルには、微環境の曝露を経時的に測定して評価する時系列アプローチと、微環境の 24 時間等の平均濃度と各微環境の滞在時間から推定する時間平均アプローチがある。個人の曝露濃度の正確な推定は前者の方法のみ可能であるが、集団に対する個人曝露を評価するためには、後者を用いることができる。これまでの多くの曝露研究では、日内の濃度変動を考慮して屋内及び屋外の 24 時間平均濃度と滞在時間から曝露濃度を推定している。

沿道に居住する住民の健康影響に関する疫学研究において、沿道に居住する住民の個人曝露の指標として、最初は幹線道路からの距離を用いていた。その後、詳細な曝露濃度の推定手法として、道路からの発生量を交通量、排出係数、再飛散率等を用いて推計する交通モデルが作られ、これをもとに拡散モデルやシミュレーション実験を組み合わせることで沿道周辺地域の濃度分布を推定する方法が用いられた。

環境省で実施している「そらプロジェクト」においても、沿道における自動車排出ガスの排出量、気象条件、道路・周辺建物構造を考慮して作成した拡散モデルによって、対象地域の年間平均濃度マップを作成している。対象者の居住地や小学校等の行動空間ごとに年間平均屋外濃度を推計し、対象の属性（児童、成人）別にそれぞれの平均的な生活時間データを結合させることにより、調査対象者の個人曝露を把握することとしている。さらに、PM_{2.5}粒子中の EC、OC 濃度を測定し、両濃度と濃度比をもとに、自動車排ガス由来の個人曝露の評価をおこなう。

対象者個人の行動については、通常本人が記録する時間活動日誌で把握する。集団的な曝露評価では行動時間のデータベースが用いられる。米国では、EPA の国立曝露研究所が 11 の異なるヒトの活動パターン研究から 22,000 人日以上の活動時間データを統合した「統合ヒト活動データベース (Consolidated Human Activity Database : CHAD)」があり、曝露分析のために多様な特性を有する集団コホートのモデルを構築することができる。

日本では総務省統計局が 1976 年から 5 年ごとに「社会生活基本調査」を実施しており、この生活時間調査が最も充実したデータを提供している。最新の 2006 年の調査では国勢調査の調査区から 6,696 調査区を選定し、その中でランダムに選定した約 8 万世帯に居住する 10 歳以上の世帯員約 18 万人を対象としており、生活時間に関しては 2 日間(48 時間)の自記式である。生活時間調査としては世界で最も対象者が多い調査であり、都道府県別等の詳細な統計結果はインターネット上で公表されている(総務省統計局 (2007))。

このほかに、日本放送協会放送文化研究所が1960年から5年に1度実施している「国民生活時間調査」がある。最新の2005年の調査では全国150地点で12,600人を対象に実施され、社会生活基本調査と同様2日間(48時間)の行動を記入する。回収率は61%で、データは公表され、様々な研究にも用いられている(NHK放送文化研究所(2006))。

3.3.5.3. 間接的方法

3.3.5.3.1. 場所と時間から推定する方法

対象者の滞在場所と滞在時間を把握し、それぞれの場所の平均濃度から個人曝露量を推定する方法で、対象期間中の「生活活動日誌」(time-activity diaries)によって推定に必要な滞在場所と滞在時間を把握する。

家屋が幹線自動車道の沿道にある場合や工場等が近接する等、粒子状物質の発生源がある場合を除いて、通常の家屋の屋外の環境濃度はほぼ均一であることから、家屋周辺の測定場所による濃度の不均一性はないとみなすことができる。一方、屋内濃度は喫煙や線香等の発生源を除外したとしても、調理を行う台所、多くの時間を過ごす居間、寝室等の場所では、日平均濃度が異なると考えられる。家屋内の場所による濃度の違いが把握できていないことや、一つの対象家屋の中に多数の測定器を設置することができないことから、通常は最も長時間を過ごす居間にサンプラを設置して、割り切って屋内濃度を代表させることが多い。

3.3.5.3.2. PM_{2.5}以外の汚染物質濃度から推定する方法

粒子状物質中の多様な成分の分析結果から、放出源ごとの粒子濃度を推定し、その和として個人曝露総量(T)を求める手法もある。

$$T = (Ea + Eai) + (Eig + Eir + Epc) = A + N$$

これは3.1で記述したものであるが、各項ごとに曝露を推定し、その総和として曝露を求めるという考え方である。

屋内の環境粒子状物質や屋内発生粒子状物質の濃度を評価するために、マスバランスモデルが用いられる。

屋内への環境粒子の侵入率(F_{INF})は、

$$F_{INF} = C_{ai} / C = Pa / (a + k)$$

と表すことができる。ここで P は浸透率、 a は時間当たり換気回数、 k は除去率である。

微小粒子に含まれる物質が体内に取り込まれ、その代謝物が尿中に排出され

る濃度から曝露量を推定する方法も試みられている。個人曝露測定 of 最終的な目的は、体内に取り込まれる量を知ることであるから、大気汚染物質の代謝物を正確に測定することは、DEP 等のより正確な個人曝露の指標となる可能性がある。しかし、DEP に特異的で分析可能な量が存在する物質はまだ見つからない。現状では粒子状物質以外からの取り込み（食事等）の影響を排除できないが、PAH（Polycyclic Aromatic Hydrocarbon, 多環芳香族炭化水素）やニトロ PAH（Nitro Polycyclic Aromatic Hydrocarbon,）の尿中代謝物の分析が行われ、曝露指標化の試みが進められている。

3.4. まとめ

3.4.1. 大気中濃度

3.4.1.1. 米国の測定例

米国の事例として、1999～2001年の3年間にわたる AIRS (Aerometric Information Retrieval System) のデータベース、IMPROVE(Interagency Monitoring of Protected Visual Environments)、米国クライテリアドキュメント (1996 PM AQCD) の資料を主に用いて、PM₁₀、PM_{2.5} 及び PM_{10-2.5} の実態がまとめられている。

1999～2001年の3年間における全米の PM₁₀ 濃度は、年基準値 (50µg/m³) 以下で、測定局全体の中央値は 23µg/m³ であり、1992年以降の年平均値の推移は、都市部とその周辺部では減少傾向、農村部では1996年以降は横ばい傾向にあった。

全米全体の都市部及びその周辺部で PM₁₀ 濃度が長期にわたり年々減少傾向を示しているのは、環境政策等の規制効果等により粗大粒子と比較して大気中での寿命が長い微小粒子の減少によると考えられている。

PM_{2.5} の1999年から2001年までの3年間の全米測定局の中央値は 13µg/m³ であり、カリフォルニアや南東部域の年平均濃度が高く、17µg/m³ を超えている。AIRS データによる全米大都市域の年平均濃度は 6～30µg/m³ の範囲にあり、東部や西部の大都市部では夏季に最も濃度が高くなる傾向があり、硫酸塩をはじめとする二次生成粒子によるものと考えられている。

多くの都市域における PM_{2.5} 及び PM₁₀ の濃度は、概して過去十数年減少傾向にあったが、ここ数年は横ばい状態であるといえる。南カリフォルニアでは、1994～1998年の5年間において地域によって差があるものの、硝酸塩、硫酸塩、アンモニウム塩等の PM_{2.5} 主要成分の減少に伴い、2～37%の PM_{2.5} 濃度が減少したと推定されている。

米国東部の PM₁₀ バックグラウンド濃度は 4～8µg/m³ と推定され、PM_{2.5} バックグラウンド濃度は 2～5 µg/m³ と推定された。一方、西部の PM_{2.5} バックグラウンド濃度は 1～4 µg/m³ と推定されている。

2001年10月から2002年9月の1年間、カテゴリーごとに選択された13代表地点における PM_{2.5} の主要成分は、有機炭素(OC)、硫酸イオン(SO₄²⁻)、硝酸イオン(NO₃⁻)、アンモニウムイオン(NH₄⁺)、元素状炭素(EC)である。注目すべきことは、ECはOCよりもはるかに濃度が低く、OC/EC比が約4～6となる地点が多いことである。SO₄²⁻とNO₃⁻のイオン当量和とNH₄⁺のイオン当量が概ね釣り合っている地点が多く、(NH₄)₂SO₄ 及び NH₄NO₃ で存在していることが示唆されている。なお、いずれの金属元素も上記の主要成分濃度よりも1桁以上低かった。金属類において特徴的なことは、Ca、Fe、Al、Si、Na等、土壌起源や海塩起源と思われる元素が、PM_{2.5} においても主要金属類であることである。

フィラデルフィアとフェニックスにおける $PM_{2.5}$ 及び $PM_{10-2.5}$ の化学組成において、Al、Si、Fe 等の地殻起源元素は、 $PM_{2.5}$ 濃度よりも $PM_{10-2.5}$ 濃度と相関関係が高い。 $PM_{2.5}$ 中の重金属類 (Cr、Ni、Cu、Zn) の濃度は類似しており、Cr と Ni が約 1 ng/m^3 前後、Cu が $5\sim 10 \text{ ng/m}^3$ 、Zn が 10 ng/m^3 のオーダーにあった。

3.4.1.2. 日本の測定例

日本では、環境省が平成 13～18 年にかけて、 $PM_{2.5}$ 及び大気環境基準の対象となっている浮遊粒子状物質 (SPM) を対象とし、それぞれ 35、31 地点で測定を実施した。SPM は 8 線式粉塵濃度計で、 $PM_{2.5}$ は 50°C 加熱方式 TEOM による連続測定 (平成 13～18 年) を行った。いずれも自動車排ガス測定局で顕著な濃度低下がみられ、都市部一般局では初期に減少したが最近では横ばい傾向、非都市部一般局では全体にわたって横ばいであった。 $PM_{2.5}/\text{SPM}$ 比が冬季に最も低くなる傾向にあったが、地域差は認められなかった。高温多湿の夏季におけるそれぞれの測定機器 (方法) の違いによるものと思われ、SPM と $PM_{2.5}$ の本質的な粒子特性とは考えられない。

SPM(8 線)と $PM_{2.5}$ (TEOM)質量濃度の月変動は、全国的には春季から夏季にかけて (4～7 月)、または晩秋から初冬季 (11 月頃) に濃度が高くなる傾向にあり、12 月～2 月頃に低くなる傾向にあった。その傾向には地域的な特徴が認められ、また、関東地方の一般局及び自排局、東海地方の自排局では 11 月頃の初冬季も夏季と同程度の濃度で高くなり、近畿・中国地方及び九州地方では、春季から夏季 (4～7 月) が高くなった。一般に、SPM と $PM_{2.5}$ が高濃度になる要因としては、春季から夏季にかけては光化学反応が活発に行われることによる二次粒子の生成、また、他の季節に比べ黄砂が春季に多く観測されるため、その影響を受けて濃度が高くなることがある。一方、11 月は、大気境界層が安定形成され大気汚染物質の拡散抑制作用が顕著になった結果と考えられる。

時間値変動から、自動車排ガス測定局と都市部一般局で朝夕に極大値を示す傾向があったが、その傾向は自動車排ガス測定局で特に顕著であり、非都市部一般局でその傾向は弱かった。

SASS 法により得られた $PM_{2.5}$ の主要な成分は EC、OC、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 NH_4^+ である。一般局では SO_4^{2-} の占める割合が最も多く、自排局では EC の占める割合が最も多い。一般局のうち都市部と非都市部を比較すると、都市部では非都市部より NO_3^- の占める割合が多くなっており、非都市部では都市部より SO_4^{2-} の占める割合が多くなっている。炭素・イオン成分の積み上げ値と $PM_{2.5}$

(SASS) の質量濃度の差をその他の影響「Other」として表示すると、非都市部 (一般局) →都市部 (一般局) →自排局の順に Other の割合が小さくなる。

このように都市部や道路沿道など人為発生源の寄与率が高い地域の $PM_{2.5}$ の組成については、主に上述成分からなると言える。

季節別の成分の割合をみると、一般局、自排局ともに夏季には SO_4^{2-} の割合が増加し、 NO_3^- 及び Cl^- の割合が減少した。これは、気温の高い夏季には揮発性の高い硝酸塩や NH_4Cl 等がガス化し、夏季気温程度で安定な硫酸塩が相対的に増えたためである。

平成 13～18 年度に観測した粒子状物質質量濃度の全平均粒径分布をみると、微小粒子側の $0.5\mu\text{m}$ と粗大粒子側の $5\mu\text{m}$ の粒径をピークとし、 $1\sim 2\mu\text{m}$ が谷となる双峰型の分布となり、自排局では微小粒子側の粒径の濃度が一般局に比べやや高くなった。一般局の都市部と非都市部での比較では微小粒子、粗大粒子ともに都市部の方で濃度が高くなっており、特に微小粒子側でその差が大きくなっている。

$\text{PM}_{2.5}$ の主要成分である炭素成分について、 EC は $0.5\mu\text{m}$ 以下の微小粒子側の粒径に偏在し、 OC は $0.6\mu\text{m}$ 付近にピークをもつ濃度分布形を示す。都市部の一般局及び自排局では $4\mu\text{m}$ 付近の粒径でも EC と OC 濃度がやや高くなる傾向がある。

イオン成分については、 SO_4^{2-} と NH_4^+ は微小粒子側の単峰型、 NO_3^- は微小粒子と粗大粒子の双峰型、 Cl^- は微小粒子と粗大粒子の双峰型（粗大側に多く分布）を示す。全体的に、自排局と都市部の一般局は同じような傾向を示している。

金属成分については、 Fe 、 K 、 V 、 Mn が自排局及び都市部域が非都市部に比べ濃度が高く、人為発生源の寄与が高いことを裏付け、 Al 、 Na が測定局属性別の差が見られなかった。なお、金属成分には粗大粒子側に主に存在する単峰分布型元素（ Al 、 Na 、 Fe 、（ Mn は非都市部域のみ））と微小粒子側と粗大粒子側の双峰分布型元素（ K 、 V 、（ Mn は自排局と都市部域で））がある。

3.4.1.3. 米国と日本の特徴

米国とわが国の質量濃度や成分濃度のデータを整理して、それぞれの国のデータの特徴を記述する。なお、以下の理由から、両国のデータを一概に比較することは困難であることに留意が必要である。

- ① 米国のデータは日本のように、測定地域について都市部、非都市部、自排局のような区分を行っておらず、金属成分に関するデータも一地域のものでしかない。
- ② 米国のデータはフィルタ法により測定されたものであるが、日本のデータは自動測定法である TEOM で測定されたものであり、加熱により水分の影響を除去するため、半揮発性物質が消失するなどの影響を受けている。
- ③ 米国のデータは中央値、日本のデータは平均値と代表値の指標が異なる。

米国の PM_{10} 、 $\text{PM}_{2.5}$ とわが国の SPM 、 $\text{PM}_{2.5}$ について特徴を整理してみると、これまでの測定結果からは、全体的に日本の $\text{PM}_{2.5}$ 濃度は、米国に比べて高い

傾向にあるといえる。OC/EC、SO₄²⁻及びNO₃⁻については、OC/EC比については大きな違いが見られるが、SO₄²⁻及びNO₃⁻については、比較的同等な値を示している。主要な金属成分については、Al 相対濃度比が日米で大きく違っていないことから、PM_{2.5}の微量元素の組成的な差はあまりないと言える。

3.4.2. 発生源影響

3.4.2.1. 排出量の推計

大気中微小粒子の評価を行うためには、各種発生源から排出される粒子状物質（一次粒子）の排出量を把握することに加えて、大気中粒子の約半分を占める二次生成粒子の原因となる前駆物質に関する排出量を把握する必要がある。

粒子状物質に関する排出量の推計に当たって、排出量を把握することが望ましい物質としては粒子状物質、NO_x、CO、SO_x、NMVOC、NH₃、HClが挙げられる。

各種発生源からの大気汚染物質排出量を算出する方法としては、排出量の実態調査をもとに排出量を算出する方法と原単位法と呼ばれる排出係数に活動量に乗じて間接的に推計する方法とがある。

実態調査に基づく排出量の算出では、環境省が実施している大気汚染物質排出量総合調査（以下、マップ調査）が良く知られている。この調査では、全国の都道府県、指定都市、中核市及び大気汚染防止法に定める政令市を対象に、大気汚染防止法に基づき届出されたばい煙発生施設、一般粉じん発生施設、特定粉じん発生施設等を対象として、ばいじん、NO_x、SO_x 排出量の個別調査を行っている。この調査は、ある規模以上の事業所からの排出量の実態を反映したものであるが、大気汚染に係わる全ての発生源を網羅している訳ではないことに加えて、二次粒子の前駆物質である NMVOC、NH₃、HCl 等については調査対象外である。そのため、大気環境評価予測モデルの入力データとしての排出インベントリの作成には、実態調査に基づく方法と原単位法が併用されている。

原単位法では、単位活動量当たりの排出係数を設定し、各種統計資料等より求めた活動量に乗じて排出量を算出するが、特に我が国では、排出係数の情報は少なく、数少ない測定値や諸外国における値を使用しているのが実状であり、その代表性や活動量との対応については、注意が必要である。

推計方法を、大規模固定発生源、中小事業所等、移動発生源、自然起源等に分類して、これまでにわが国で実施されてきた推計方法を示すと共に、わが国における粒子状物質に関する排出インベントリの現状を、発生源別排出量、発生源別プロファイル(NMVOCの組成、粒子状物質の組成・粒径分布)に関して整理している。また、米国や欧州における粒子状物質に関する排出インベントリの現状も整理している。

粒子状物質に関する我が国の排出インベントリについては、これまで、推計

例が幾つか存在するが、その推計には課題(排出量総合調査の対象施設以外の発生源データの整備、排ガス性能が大きく変化している新しい車両の排気組成に関する情報収集、植物起源のエミッションインベントリの整備)が残されている。

3.4.2.2. レセプターモデル

大気汚染物質制御の最適政策を展開するために汚染質の発生源寄与濃度の把握が必須であり、様々なモデルを用いて推定される。その代表的なアプローチは発生源あるいは拡散モデルと呼ばれるシミュレーションモデルとレセプターモデルである。シミュレーションモデルでは発生源インベントリから出発し、汚染質の輸送と変質をシミュレートして最終地点での大気質への影響を推定する。米国 EPA によるシミュレーションモデルによる計算コードに **CMAQ (community multiscale air-quality)** があり、大気の反応性、輸送、汚染質の沈着等のシミュレーションに広く利用されている。他方、レセプターモデルの出発点は環境大気の測定であり、そこから逆に辿って発生源寄与濃度が推定される。

レセプターモデルは **CMB(Chemical Mass Balance)**モデルと多変量モデルに大別される。**CMB**モデルでは、発生源プロファイルと呼ばれる発生源粒子の化学成分データが必要である。この発生源プロファイルを利用することによって1組の環境測定データによっても簡便に発生源寄与を推定できる。しかし、対象地域での主要な発生源とその代表的な発生源プロファイルを必要とすることは、**CMB**モデルの大きな短所である。これに対して、多変量モデルでは、多数個の環境測定データを統計的に解析処理して、主要発生源数とそれら発生源プロファイル及び寄与濃度を同時に導出しようとするものである。近年開発されたモデル **PMF/PMF2 (Positive Matrix Factorization)**、**ME (Multilinear Engine)** 及び **PMF3 (3-dimensional PMF)** が、**Unmix** とともに、EPA の支援を得て発生源寄与解析ツールとして急速に普及している。**PM_{2.5}** の新環境基準達成に向けて開発されたソフトウェア **CMB7**、それに続く **CMB8** とその使用手引が提供され、広く発生源寄与の定量評価に利用されている。

ここでは、レセプターモデルの原理、マスクロージャーモデル、**CMB**モデル、多変量モデル、同位体利用法等のレセプターモデルによる質量濃度の推定法、発生源寄与率の解析、化石燃料やバイオマスからの寄与の推定に関する知見を整理している。

主要成分の分析値から再構築した質量濃度とフィルタ秤量法で測定された微小粒子濃度との一致性を調べるマスクロージャーモデルにより精度管理された精度の良い環境データの提供は、**CMB**モデルや **PMF**モデルを用いた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。米国では **PM_{2.5}** の規制開始に前後して、**CMB**モデルによる発生源寄与濃度の推定が普及していったが、この背景に解析ツールとしての **CMB** 関連ソフトウェアの提供、主要発生源プロフ

ファイルの充実が大きく貢献している。さらに CMB モデルによる解析における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ている。

さらに PM_{2.5} の規制後、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り、これらの環境情報を解析するツールとして、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ている。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り、解析結果の解釈に留意する必要がある。

以上のように、大気エアロゾル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とソフトウェア、計測・分析機器、AMS(Aerosol Mass Spectrometer)の存在が窺える。

3.4.2.3. シミュレーションモデル

粒子状物質の発生源別寄与濃度を推計する場合には、一般的に、レセプターモデルが使用される。一方、シミュレーションモデルで発生源別寄与濃度を算出するためには、発生源から排出される一次粒子ならびに二次粒子の前駆ガスが大気中で輸送・変質・沈着する複雑な物理化学過程をシミュレートする必要があり、不確実性は大きい。しかし、シミュレーションモデルは、発生源別寄与濃度の時空間分布を計算できること、発源地域や個々の発生源からの寄与濃度を推計できること、対策効果の評価や将来予測に使用できること、といったレセプターモデルにはないメリットがある。

国内で粒子状物質を対象としたシミュレーションモデルは、行政調査用には解析モデルが、研究用には数値モデルが使用されることが多い。一般的に、解析モデルは SPM 年平均濃度の再現性が高く、少ない情報で環境濃度を推計でき計算も容易である。しかし、エアロゾルの変質や粒径分布を考慮していない、前駆物質と粒子生成量の間には比例関係を仮定した簡略な二次粒子生成モデルを使用している、領域外からの流入はバックグラウンドとして成分別の一定値を与える、単純な拡散場・輸送場を仮定している、等の課題がある。また、国内で使用されている解析モデルは、国際的に充分、認知されていないと考えられる。

一方、数値モデルは解析モデルでは扱わない（もしくは、非常に簡略化して扱う）粒子状物質の変質や粒径分布、二次粒子生成、領域外からの流入、複雑な拡散場・輸送場での物質輸送等を詳細にモデル化でき、排出データや気象データが正確であれば、より確かな結果が得られる。特に、発生源対策により一次粒子が低減し、相対的に二次粒子の割合が増加している現状を考慮すると、

数値モデルの必要性・重要性が増加している。しかし、数値モデルは、解析モデルに比べて計算負荷が大きく、例えば、年平均値のような長期評価や多数ケースの感度解析を行う場合に問題となることがある。また、粒子濃度の現況再現性が不十分な場合があり、その一つとして、二次生成有機粒子(SOA ; Secondary Organic Aerosol)を過少評価することが挙げられる。この原因としては、SOA モデルとともに SOA 前駆物質の排出インベントリの問題も考えられる。一方、炭素同位体を使った解析結果によると、東京都心で初冬季に観測された PM_{2.1} 中の炭素粒子に対する大きな生物起源の影響も指摘されている。

なお、国内において一次粒子の発生源別寄与率をシミュレーションモデルで評価した場合、レセプターモデルによる結果と大きな乖離が生じる可能性がある。国内では、このような比較資料が皆無であるため、早急に両者の比較研究を実施することが重要であり、その結果も踏まえて、排出インベントリの改良を進める必要がある。

3.4.3. ヒトへの曝露様態

大気中の粒子状物質濃度と個人への粒子状物質の曝露の関係を明らかにするためには、1)モニタリングサイトで測定した広範囲の環境を代表する環境大気濃度と家屋近傍の屋外等のより居住空間に近い大気濃度との関係、2)居住空間に近い大気濃度と家屋内の濃度との関係、3)家屋内の濃度と個人曝露との関係を観察する必要がある。

環境省「微小粒子状物質曝露影響調査報告書」(平成 19 年 7 月)に 7 地域の調査結果が掲載されている。地域内の測定局において家屋内外の測定に用いたサンプラで同時に測定した結果、PM_{2.5}の屋外の平均濃度は測定局における濃度とほとんど一致していることが確認された。多くの場合屋内濃度の方が屋外濃度より低いか同じレベルであることがわかった。また、この調査に限らず欧米等の多くの調査でも屋内濃度と個人曝露量には強い相関があり、ほぼ同じ濃度であることも確認されている。特に、沿道等、屋外濃度が高い場合には屋内の方が屋外より低い傾向があった。

よって、個人曝露濃度と環境濃度に関する相関関係の強さは、屋外濃度と屋内濃度に関する相関関係の強さを見ることで概ね推定できることになる。

個人の曝露には、屋外の一般環境から曝露される粒子状物質のほか、屋内で生成された粒子状物質による非環境大気成分、または個人の活動による屋外大気粒子状物質の濃度とうまく相関しないように思われる成分も含まれる。また、日本人は平日の生活時間の約 90%を屋内で過ごしている等の統計も踏まえれば、個人曝露はほとんど屋内濃度によって決定されるのが現状である。屋内のヒトの行動は屋内大気中へ粒子状物質を発生させる原因でもあるが、屋内で靴を脱ぐ等、欧米と異なる日本の生活習慣が欧米に比べ屋内濃度を増加させない原因かもしれない。

米国における調査では、屋内への粒子状物質の侵入は換気率に依存するが、

屋外環境の粒子は、 $0.5\mu\text{m}$ 以上では粒径が大きくなるほど侵入率が低下し、 $0.1\mu\text{m}$ 以下では小さくなるほど侵入率が低下し、夜間では $0.1\sim 0.5\mu\text{m}$ ではほぼ 90% から 100% が屋外からの粒子であるという結果であった。また、屋内に浸透する環境粒子状物質は換気率が低い秋よりも換気率が高い夏に高くなっていた。

また、 $\text{PM}_{2.5}$ に該当する微小粒子は粗大粒子や超微小粒子に比べて地域内での濃度の差が小さいことも知られている。さらに、 $\text{PM}_{2.5}$ は、粗大粒子に比べ屋内に侵入しやすく、屋外濃度との差が小さいことから、 PM_{10} 以上に個人曝露濃度との相関が強く、 $\text{PM}_{2.5}$ の環境濃度は、個人曝露濃度の代替指標として適していることを示している。

3. 5. 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}.
- 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. EPA-600/R-99/030.
- 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. *J Air Pollution Control Assoc*, 30, 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. California Air Resources Board Report No. A133-186.

- Duan, N. (1989) Estimation of microenvironment concentration distribution using integrated exposure measurements. In Proceedings of the Research Planning Conference on Human Activity Patterns Starks, T.H. (ed), Vol. report no. EPA/600/4-89-004. pp. 15-11 - 15-12. U.S. Environmental Protection Agency, Environmental Monitoring Systems Laboratory: Las Vegas, NV.
- 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.
- European Environment Agency. EEA aggregated and gap filled air emission data.
<http://dataservice.eea.europa.eu/dataservice/metadetails.asp?id=983>
- European Environment Agency. Computer Programme to Calculate Emissions from Road Transport, COPERT4.
<http://lat.eng.auth.gr/copert/>
- European Environment Agency. (2007) EMEP/CORINAIR Emission Inventory Guidebook.
- Fitz-Simons, T.S., Mathias, S. & Rizzo, M. Analyses of 1999 PM data for the PM NAAQS review. <http://www.epa.gov/oar/oaqps/pm25/analyses.html>
- Friedlander, S.K. (1973) Chemical element balances and identification of air pollution sources. *Environmental Science & Technology*, 7, 234-240.
- Frontier Research Center for Global Change. Regional Emission inventory in ASia.
<http://www.jamstec.go.jp/frsgc/research/d4/emission.htm>
- 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 Champion Basin, VT. *Journal of Air & Waste Management Association*, 56, 1607-1620.
- Gordon, G.E., Pierson, W.R., Daisey, J.M., Liroy, 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.

- Guenther, A.G., C.; Pierce, T.; Lamb, B.; Harley, P.; Fall, R. . (2000) Natural emissions of non-methane volatile organic compounds, carbon monoxide, and oxides of nitrogen from North America. . *Atmospheric Environment*, 34.
- 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.
- IMPROVE Steering Committee. IMPROVE(Interagency Monitoring of Protected Visual Environments).
<http://vista.cira.colostate.edu/IMPROVE/Default.htm>
- Janssen, L.H.J.M., Buringh, E., van der Meulen, A. & van den Hout, K.D. (1999) A method to estimate the distribution of various fractions of PM10 in ambient air in the Netherlands. *Atmospheric Environment*, 33, 3325-3334.
- Janssen, N.A., Hoek, G., Brunekreef, B., Harssema, H., Mensink, I. & Zuidhof, A. (1998) Personal sampling of particles in adults: relation among personal, indoor, and outdoor air concentrations. *American Journal of Epidemiology*, 147, 537-547.
- Janssen, N.A., Hoek, G., Harssema, H. & Brunekreef, B. (1997) Childhood exposure to PM10: relation between personal, classroom, and outdoor concentrations. *Occupational and Environmental Medicine*, 54, 888-894.
- Janssen, N.A.H., Hoek, G., Harssema, H. & Brunekreef, B. (1995) A relation between personal and ambient. In *Epidemiology*, Vol. 6. pp. suppl.
- 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.

- Kannari, A., Tonooka, Y., Baba, T. & Murano, K. (2007) Development of multiple-species 1 km x 1 km resolution hourly basis emissions inventory for Japan. *Atmospheric Environment*, 41, 3428-3439.
- 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.I. & 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 PM2.5 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 PM2.5 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., Gu'rer, K. & Allen, P. (2006) Off-line diagnostic analyses of a three-dimensional PM model using two matrix factorization methods. *Atmospheric Environment*, 40, 5759-5767.

- Lipfert, F.W. (1998) Trends in airborne particulate matter in the United States. *Applied Occupational & Environmental Hygiene*, 13, 370-384. .
- 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.
- Long, C.M., Suh, H.H., Catalano, P.J. & Koutrakis, P. (2001) Using time- and size-resolved particulate data to quantify indoor penetration and deposition behavior. *Environ Sci Technol*, 35, 2089-2099.
- 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.
- Mage, D., Wilson, W., Hasselblad, V. & Grant, L. (1999) Assessment of human exposure to ambient particulate matter. *Journal of Air & Waste Management Association*, 49, 1280-1291.
- 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.
- Maykut, N.N., Lewtas, J., Kim, E. & Larson, T.V. (2003) Source Apportionment of PM_{2.5} at an Urban IMPROVE Site in Seattle, Washington. *Environmental Science and Technology*, 37, 5135-5142.
- Mizohata, A., Ito, N. & Masuda, Y. (1995) Quantitative determination of the airborne particulate matter sources by motor vehicles using TTFA. In *Jpn Soc Atmos Environ*, Vol. 30. pp. 243-255.
- Morandi, M.T., Daisey, J.M. & Liroy, P.J. (1987) Development of a modified factor analysis / multiple regression model to apportion suspended particulate matter in a complex urban airshed. *Atmospheric Environment*, 21, 1821-1831.
- Mukai, H., Machida, T., Tanaka, A., Vera, Y.P. & Uematsu, M. (2001) Lead isotope ratios in the urban air of eastern and central Russia. *Atmospheric Environment*, 35, 2783-2793.

- Mukerjee, S., Norris, G.A., Smith, L.A., Noble, C.A., Neas, L.M., Özkaynak, A.H. & Gonzales, M. (2004) Receptor Model Comparisons and Wind Direction Analyses of Volatile Organic Compounds and Submicrometer Particles in an Arid, Binational, Urban Air Shed. *Environmental Science & Technology*, 38, 2317 - 2327.
- Nansai, K., Suzuki, N., Tanabe, K., Kobayashi, S. & Moriguchi, Y. (2004) Design of Georeference-Based Emission Activity Modeling System (G-BEAMS) for Japanese Emission Inventory Management. In 13th International Emission Inventory Conference in Clearwater: Florida.
- NATAIR. Improving and Applying Methods for the Calculation of Natural and Biogenic Emissions and Assessment of Impacts on Air Quality. <http://www.ist-world.org/ProjectDetails.aspx?ProjectId=50aeb6c0b10e49d6a9e11dbf1ecfad6d&SourceDatabaseId=7cff9226e582440894200b751bab883f>
- NHK 放送文化研究所. (2006) 国民生活時間調査:データブック.2005. 日本放送出版協会: 東京.
- Oglesby, L., Kunzli, N., Roosli, M., Braun-Fahrlander, C., Mathys, P., Stern, W., Jantunen, M. & Kousa, A. (2000) Validity of ambient levels of fine particles as surrogate for personal exposure to outdoor air pollution--results of the European EXPOLIS-EAS Study (Swiss Center Basel). *Journal of Air & Waste Management Association*, 50, 1251-1261.
- Okamoto, S., Hayashi, M., Nakajima, M., Kainuma, Y. & Shiozawa, K. (1990) A factor analysis-multiple regression model for source apportionment of suspended particulate matter. *Atmospheric Environment*, 20A, 2089-2097.
- Paatero, P. & Tapper, U. (1994) Positive matrix factorization: A non-negative factor model with optimal utilization of error estimate of data values. *Environmetrics*, 5, 111-126.
- Park, S.S., Bae, M.S. & Kim, Y.J. (2001a) Chemical Composition and Source Apportionment of PM_{2.5} Particles in the Sihwa Area, Korea. *Journal of Air & Waste Management Association*, 51, 393-405.
- Park, S.S., Kim, Y.J. & Fung, K. (2001b) Characteristics of PM_{2.5} carbonaceous aerosol in the Sihwa industrial area, Korea. *Atmospheric Environment*, 35, 657-665.
- Pinto, J.P., Stevens, R.K., Willis, R.D., Kellogg, R., Mamane, Y., Novak, J., Santroch, J., Bene, I., Leniek, J. & Bure, V. (1998) Czech Air Quality Monitoring and Receptor Modering Study. *Environmental Science & Technology*, 32, 843-854.
- Poirot, R.L., Wishinski, P.R., Hopke, P.K. & Polissar, A.V. (2001) Comparative Application of Multiple Receptor Methods to Identify Aerosol Sources in Northern Vermont. *Environmental Science and Technology*, 35, 4622-4636.

- Polissar, A.V., Hopke, P.K. & Poirot, R.L. (2001) Atmospheric Aerosol over Vermont: Chemical Composition and Sources. *Environmental Science and Technology*, 35, 4604-4621.
- Ramadan, Z., Song, X.-H. & Hopke, P.K. (2000) Identification of Sources of Phoenix Aerosol by Positive Matrix Factorization. *Journal of Air & Waste Management Association*, 50, 1308-1320.
- Rees, S.L., Robinson, A.L., Khlystov, A., Stanier, C.O. & Pandis, S.N. (2004) Mass balance closure and the Federal Reference Method for PM_{2.5} in Pittsburgh, Pennsylvania. *Atmospheric Environment*, 38, 3305-3318.
- Sattler, M.L. & Liljestrand, H.M. (2005) Chemical Mass Balance Model with Fractionation for Apportioning PM_{2.5}: A Test Case for Los Angeles Traffic Sources. *Journal of Air & Waste Management Association*, 55, 1335-1344.
- Schauer, J.J. & Cass, G.R. (2000) Source Apportionment of Wintertime Gas-Phase and Particle-Phase Air Pollutants Using Organic Compounds as Tracers. *Environmental Science & Technology*, 34, 1821-1832.
- Schauer, J.J., Lough, G.C., Shafer, M.M., Christensen, W.F., Arndt, M.F., DeMinter, J.T. & Park, J.-S. (2006) Characterization of Metals Emitted from Motor Vehicles.
- Schauer, J.J., Rogge, W.F., Hildemann, L.M., Mazurek, M.A., Cass, G.R. & Simoneit, B.R.T. (1996) Source Apportionment of Airborne Particulate Matter Using Organic Compounds as Tracers. *Atmospheric Environment*, 30, 3837-3855.
- Sillanpää, M., Hillamo, R., Saarikoski, S., Frey, A., Pennanen, A., Makkonen, U., Spolnik, Z., Grieken, R.V., Braniš, M., Brunekreef, B., Chalbot, M.-C., Kuhlbusch, T., Sunyer, J., Kerminen, V.-M., Kulmala, M. & Salonen, R.O. (2006) Chemical composition and mass closure of particulate matter at six urban sites in Europe. *Atmospheric Environment*, 40, S212-S223.
- Song, X.-H., Polissar, A.V. & Hopke, P.K. (2001) Sources of fine particle composition in the northeastern US. *Atmospheric Environment*, 35, 5277-5286.
- Song, Y., Zhang, Y., Xie, S., Zeng, L., Zheng, M., Salmon, L.G., Shao, M. & Slanina, S. (2006) Source apportionment of PM_{2.5} in Beijing by positive matrix factorization. *Atmospheric Environment*, 40, 1526-1537.
- Stevens, R.K. & Pace, T.G. (1984) Overview of the mathematical and empirical receptor models workshop (Quail Roost II). In *Atmospheric Environment*, Vol. 18. pp. 1499-1505.
- Streets, D.G., Bond, T.C., Carmichael, G.R., Fernandes, S.D., Fu, Q., He, D., Klimont, Z., Nelson, S.M., Tsai, N.Y., Wang, M.Q., Woo, J.H. & Yarber, K.F. (2003) An inventory of gaseous and primary aerosol emissions in Asia in the year 2000. *Journal of Geophysical Research*, 108 (D21), 8809.

- Subramanian, R., Donahue, N.M., Bernardo-Bricker, A., Rogge, W.F. & Robinson, A.L. (2006) Contribution of motor vehicle emissions to organic carbon and fine particle mass in Pittsburgh, Pennsylvania: Effects of varying source profiles and seasonal trends in ambient marker concentrations. *Atmospheric Environment*, 40, 8002-8019.
- Sweet, C.W. & Vermette, S.J. (1992) Toxic volatile organic compounds in urban air in Illinois. *Environmental Science and Technology*, 26, 165-173.
- Takahashi, K., Hirabayashi, M., Tanabe, K., Shibata, Y., Nishikawa, M. & Sakamoto, K. (2007) Radiocarbon content in urban atmospheric aerosols. *Water, Air, & Soil Pollution*, 185, 305-310.
- Tamura, K., Ando, M., Sagai, M. & Matsumoto, Y. (1996) Estimation of levels of personal exposure to suspended particulate matter and nitrogen dioxide in Tokyo. In *Environ Sci (Tokyo)*, Vol. 4. pp. 37-51.
- Thurston, G.D. & Spengler, J.D. (1985) A quantitative assessment of source contributions to inhalable particulate matter pollution in metropolitan Boston. *Atmospheric Environment*, 19, 9-25.
- Turpin, B. & Lim, H.-J. (2001) Species contributions to PM_{2.5} mass concentrations: revisiting common assumptions for estimating organic mass. *Aerosol Science and Technology*, 35, 602-610.
- U.S. NCAR (The National Center for Atmospheric Research). Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature (MEGAN). <http://bai.acd.ucar.edu/Megan/>
- U.S.CEMPD (Center for Environmental Modeling for Policy Development) SMOKE - Sparse Matrix Operator Kernel Emissions. <http://www.smoke-model.org/index.cfm>
- U.S.EPA. Community Multiscale Air Quality (CMAQ). <http://www.epa.gov/AMD/CMAQ/>
- U.S.EPA. MOBILE6 Vehicle Emission Modeling Software. <http://www.epa.gov/otaq/m6.htm>
- U.S.EPA. National Emissions Inventory (NEI) Air Pollutant Emissions Trends Data. <http://www.epa.gov/ttn/chief/trends/>
- U.S.EPA. NONROAD Model (nonroad engines, equipment, and vehicles) <http://www.epa.gov/otaq/nonrdmdl.htm>
- U.S.EPA. PM 2.5 Inventory Resource Center. <http://www.epa.gov/ttn/chief/eiip/pm25inventory/index.html>
- U.S.EPA. WebFIRE. <http://cfpub.epa.gov/oarweb/index.cfm?action=fire.main>
- U.S.EPA. AP42:Compilation of Air Pollutant Emission Factors, Volume I:Stationary Point and Area Sources. <http://www.epa.gov/otaq/ap42.htm>
- U.S.EPA. (1996)Air Quality Criteria for Particulate Matter. EPA report no.EPA/600/P-95/001aF.
- U.S.EPA. (2004)Air quality criteria for particulate matter. . EPA report no. EPA/600/P-99/002aF.

- U.S.EPA. SPECIATE Version 4.0.
<http://www.epa.gov/ttn/chief/software/speciate/index.html>
- U.S.EPA & NOAA(National Oceanic and Atmospheric Administration).
 Biogenic Emissions Inventory System (BEIS) Modeling.
<http://www.epa.gov/AMD/biogen.html>
- U.S.EPA (AIRS/AFS). AIRS(Aerometric Information Retrieval System).
<http://www.epa.gov/enviro/html/airs/index.html>
- U.S.EPA National Center for Environmental Assessment of Office of
 Research and Development. (1997)Exposure Factors Handbook.
- U.S.EPA Office of Air Quality Planning and Standards. (1990) CMB7 User's
 Manual. Receptor model technical series vol. III (1989 revision), Vol.
 EPA-450/4-90-004.
- U.S.EPA Office of Air Quality Planning and Standards. (2001) CMB8 User's
 Manual. Vol. EPA-454/R-01-XXX: Research Triangle Park, NC 27711.
- Vega, E., García, I., Apam, D., Ruíz, M.E. & Barbiaux, M. (1997) Application
 of a Chemical Mass Balance Receptor Model to Respirable Particulate
 Matter in Mexico City. *Journal of Air & Waste Management
 Association*, 47 524-529.
- Wang, Y.Q., Zhang, X.Y., Arimoto, R., Cao, J.J. & Shen, Z.X. (2005)
 Characteristics of carbonate content and carbon and oxygen isotopic
 composition of northern China soil and dust aerosol and its application
 to tracing dust sources. *Atmospheric Environment*, 39, 2631-2642.
- Ward, T.J. & Smith, G.C. (2005) The 2000/2001 Missoula Valley PM 2.5
 chemical mass balance study, including the 2000 wildfire
 season-seasonal source apportionment. *Atmospheric Environment*, 39,
 709-717.
- Watson, J.G. (1979) Chemical element balance receptor model methodology
 for assessing the sources of fine and total suspended particulate matter
 in Portland,Oregon., Vol. Ph.D.dissertation. Oregon Graduate Center:
 Beaverton,Oregon.
- Watson, J.G., Blumenthal, D.L., Chow, J.C., Cahill, C.F., Richards, L.W.,
 Dietrich, D., Morris, R., Houck, J.E., Dickson, R.J. & Andersen, S.R.
 (1996)Mt. Zirkel Wilderness Area reasonable attribution study of
 visibility impairments Vol. II: Results of data analysis and modeling.
 Prepared for Colorado Department of Public Health and Environment,
 Denver, CO.
- Watson, J.G., Chow, J.C. & Fujita, E.M. (2001) Review of volatile organic
 compound source apportionment by chemical mass balance.
Atmospheric Environment, 35, 1567-1584.
- Watson, J.G., Chow, J.C., Lowenthal, D.H., Pritchett, L.C., Frazier, C.A.,
 Neuroth, G.R. & Robbins, R. (1994) Differences in the Carbon
 Composition of Source Profiles for Diesel- and Gasoline-Powered
 Vehicles. *Atmospheric Environment*, 28, 2493-2505.

- Watson, J.G., Cooper, J. & Huntzicker, J. (1984) The effective variance weighting for least squares calculations applied to the mass balance receptor model. *Atmos Environ*, 18, 1347-1355.
- Watson, J.G., Fujita, E.M., Chow, J.C., Zielinska, B., Richards, L.W., Neff, W.D. & Dietrich, D. (1998) Northern Front Range Air Quality Study. Final report. Prepared for Colorado State University, Fort Collins, CO.
- Widory, D., Roy, S.e., Moullec, Y.L., Goupil, G., Cocherie, A. & Guerrot, C. (2004) The origin of atmospheric particles in Paris: a view through carbon and lead isotopes. *Atmospheric Environment*, 38, 953-961.
- Wilson, W.E., Mage, D.T. & Grant, L.D. (2000) Estimating separately personal exposure to ambient and nonambient particulate matter for epidemiology and risk assessment: why and how. *Journal of Air & Waste Management Association*, 50, 1167-1183.
- World Health Organization. (2006) Air Quality Guidelines Global Update 2005.
- Xie, Y.-L., Hopke, P.K., Paatero, P., Barrie, L.A. & Li, S.-M. (1999) Identification of source nature and seasonal variations of Arctic aerosol by positive matrix factorization. *Journal of Atmospheric Sciences*, 56, 249-260.
- Xie, Y. & Berkowitz, C.M. (2006) The use of positive matrix factorization with conditional probability functions in air quality studies: An application to hydrocarbon emissions in Houston, Texas. *Atmospheric Environment*, 40, 3070-3091.
- Zartarian, V.G., Ott, W.R. & Duan, N. (1997) A quantitative definition of exposure and related concepts. In *Journal of Exposure Analysis and Environmental Epidemiology*, Vol. 7. pp. 411-437.
- Zhang, Q., Alfarra, M.R., Worsnop, D.R., Allan, J.D., Coe, H., Canagaratna, M.R. & Jimenez, J.L. (2005) Deconvolution and Quantification of Hydrocarbon-like and Oxygenated Organic Aerosols Based on Aerosol Mass Spectrometry. *Environmental Science & Technology*, 39, 4938-4952.
- Zheng, M., Cass, G.R., Ke, L., Wang, F., Schauer, J.J., Edgerton, E.S. & Russell, A.G. (2007) Source Apportionment of Daily Fine Particulate Matter at Jefferson Street, Atlanta, GA, during Summer and Winter. *Journal of Air & Waste Management Association*, 57, 228-242.
- Zweidinger, R., Purdue, L., Fitzgerald, K., Carmichael, L. & Kellog, R. (1998) NERL PM research monitoring platforms: Baltimore, Fresno and Phoenix, data report. EPA/600/R-98/138.
- 塩津弥佳, 吉澤晋, 池田耕一, 野崎淳夫. (1998) 生活時間調査による屋内滞在時間量と活動量 : 室内空気汚染物質に対する曝露量評価に関する基礎的研究 その1. *日本建築学会計画系論文集*, 511, 45-52.
- 環境省. 局地的大気汚染の健康影響に関する疫学調査 (そらプロジェクト).
<http://www.env.go.jp/chemi/sora/index.html>
- 環境省. (1995) 未規制自動車からの排出実態調査報告書.

環境省. 大気環境に係る固定発生源状況調査 平成 16 年度 (平成 14 年度実績).
<http://www.env.go.jp/air/osen/kotei/h16/index.html>

環境省. 揮発性有機化合物 (VOC) 排出インベントリ (報告) について.
<http://www.env.go.jp/press/press.php?serial=8430>

環境省. (2007b) 微小粒子状物質曝露影響調査報告書.

環境省 水・大気環境局大気環境課. (2007) 揮発性有機化合物 (VOC) 排出インベントリ (平成 12 年度及び平成 17 年度排出量).

環境庁大気保全局大気規制課監修. (1997) 浮遊粒子状物質汚染予測マニュアル.
東洋館出版社: 東京.

経済産業省経済産業政策局調査統計部. 化学工業統計年報.

国土交通省総合政策局情報管理部. 港湾統計年報.

国土交通省総合政策局情報管理部. 航空輸送統計年報.

国土交通省総合政策局情報管理部. 自動車輸送統計年報.
<http://toukei.mlit.go.jp/jidousya/jidousya.html>

国土交通省道路局. 道路交通センサからみた道路交通の現状、推移(データ集).
http://www.mlit.go.jp/road/ir/ir-data/data_shu.html

財団法人石油産業活性化センター. (2002) 平成 13 年度 JCAP 技術報告書 大気モデル技術報告書 (1).

財団法人石油産業活性化センター. (2005) 平成 16 年度 JCAP 技術報告書 CMAQ を用いた高濃度都市域の大気汚染解析技術の構築.

財団法人日本環境衛生センター. (1987) 浮遊粒子状物質汚染の解析・予測.

財団法人日本環境衛生センター. (2006) 平成 17 年度環境省請負業務調査結果報告書「道路粉じん等汚染寄与調査」.

財団法人日本気象協会. (2003) 環境省委託業務報告書 平成 14 年度浮遊粒子状物質環境汚染実態解析調査報告書 (第 2 編 SPM 濃度予測モデル).

資源エネルギー庁ガス市場整備課編. ガス事業統計月報. 日本ガス協会.

資源エネルギー庁長官官房総合政策課編. 総合エネルギー統計. 通商産業研究社.

社団法人環境情報科学センター. (2003) 平成 14 年度 揮発性有機化合物 (VOC) 排出に関する調査報告書～VOC インベントリー～.

石油連盟. 石油資料月報.

総務省統計局. 平成 18 年社会生活基本調査.
<http://www.stat.go.jp/data/shakai/2006/index.htm>

速水洋, 小林伸治. (2004) 大気中二次粒子の濃度予測手法の開発. 電力中央研究所報告, No.T03037.

通産省調査統計部資源エネルギー統計調査室. エネルギー生産需給統計年報.

國見均, 田代秀樹, 中塚誠次, 南斉規介. (2007) 自動車以外の発生源の排出インベントリ推計システムの構築と推計の実際. 第 48 回大気環境学会年会講演予稿集, 230-233.