

大気浮遊粒子状物質発生源寄与の解析手法について

Receptor-oriented Source Apportioning and Analyzing Methods for Ambient Suspended Particulate Matter

埼玉大学大学院理工学研究科環境制御工学専攻 王 青躍, 坂本 和彦

Dept. of Environ. Sci. & Human Eng., Graduate School of Sci. & Eng., Saitama Univ.

Q. WANG and K. SAKAMOTO

Source apportionment of particulate matter in urban atmosphere is becoming important in air pollution control strategies. There are two techniques used for evaluating the source-receptor relationship. Receptor models are utilized for the identification and the apportionment of release sources using various data of ambient suspended particulate matters (or called ambient aerosols). The application of chemical mass balance method (CMB) is described, in which source profiles are needed to improve the CMB calculations. The analytical methods used for obtaining receptor data and source profiles are also introduced.

1. はじめに

環境大気中のエアロゾルの発生源は自然起源と人為起源に分類される一方, 粒子の生成過程からは一次粒子と二次粒子に分類できる. 粒子状物質の典型的質量粒度分布は二山型となっている. 小粒径側は主として燃焼過程を中心とした人為起源一次粒子からなり, 大粒子側は主として機械的な力により分散した自然起源一次粒子からなる(Fig. 1).

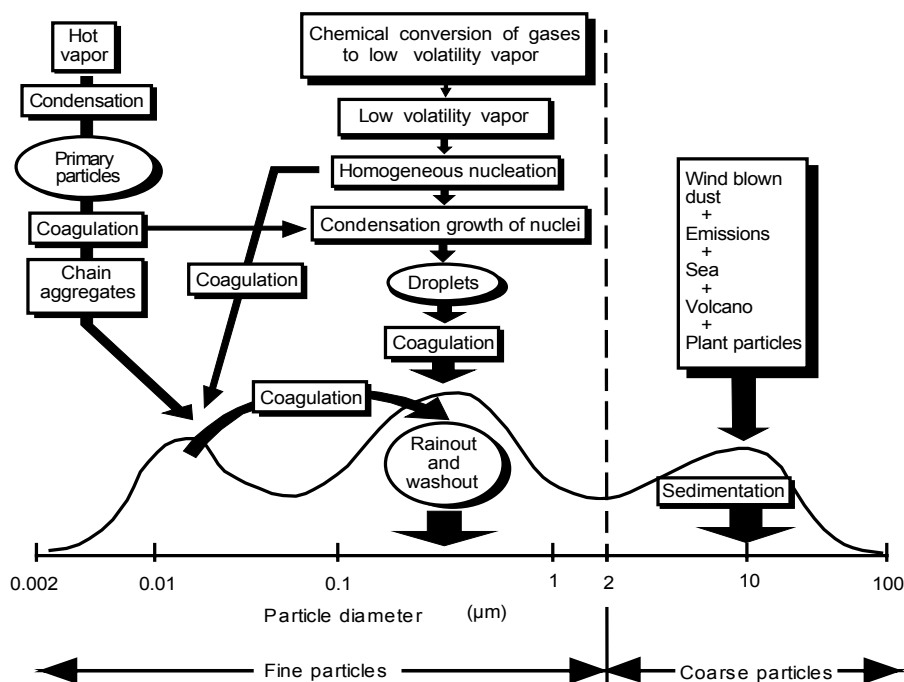


Fig. 1. Size distribution and sources for ambient aerosols.

都市域における長期平均的な化学成分の構成比は、元素状炭素と有機状炭素が最も多く、その次は二次生成した硝酸塩と硫酸塩となり、金属成分はかなり少ないが、発生源に関する多量の情報を含んでいることから、発生源寄与率解析には不可欠な情報である¹⁾。

大気浮遊粒子状物質の汚染に係る環境への影響評価や環境保全対策を策定するためには、発生源における排出強度と対象地点(リセプター)中での環境濃度との相関特性を定量的に正しく把握する環境影響予測が基本的要件となる。この発生源とリセプターの関連性を研究するため、発生源情報に基づく発生源について考えるソースモデル(拡散モデル)と環境での測定データを用いるリセプターに考えを集中するリセプターモデルという二つの基本的手法^{2~3)}が使われている(Fig. 2)。

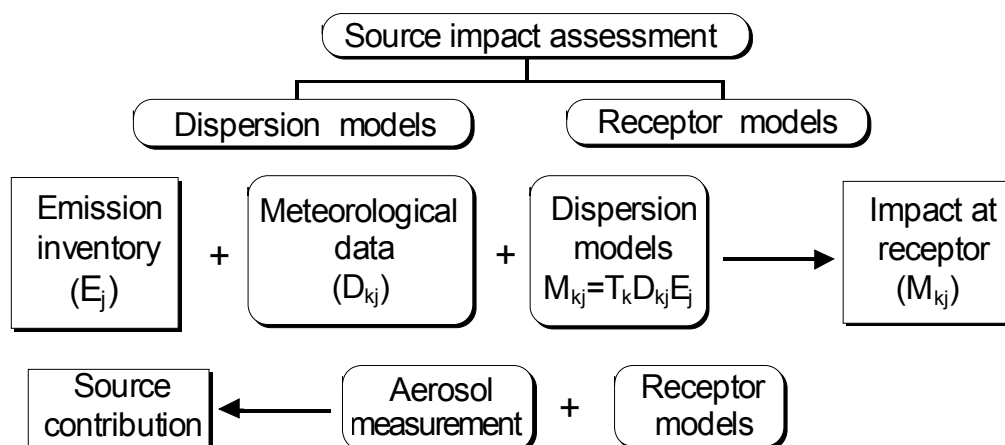


Fig.2. Comparison of source assessment methods.

ここで、 E_j は発生源 j の排出強度、 D_{kj} は輸送と拡散因子、 T_k は変換係数、 M_{kj} は大気浮遊粒子状物質試料 k 中の発生源 j からの粒子質量である。

ソースモデルは①大気中での二次生成粒子発生源の評価、②事前環境影響の予測、③同一性状を持つ多数の発生源についても個別にその影響の評価が可能である。しかしながら大気浮遊粒子状物質発生源が多岐にわたるのに加え、排出条件と強度の見積りが困難な自然発生源や二次生成粒子あるいは種々の不特定の発生源(Fugitive source)の汚染寄与が大きいことから、ソースモデルのみにより環境中の粒子濃度を推定することは事実上不可能である。ところで、リセプターモデルの解析手法は粒子性状データに化学組成データが用いられれば発生源のタイプ別に定量的な汚染寄与率が推定でき、ソースモデルでは評価の難しい自然起源や二次粒子の汚染寄与率を推定することが可能となる。

リセプターモデルには Fig. 3 に示しているように顕微鏡的手法(光学顕微鏡と走査型電子顕微鏡など)、化学的解析法[濃縮係数法、時系列、空間分布解析法、化学質量収支法(Chemical Mass Balance Model⁴⁾、略 CMB 法)と多変量解析法など]および物理的解析法(汚染空気塊流跡線解析法と X 線回折法など)のいくつかの独立した解析手法が含まれる。

それぞれの方法の特徴は、以下のように要約できる。

- (1) 汚染空気塊流跡線分析 → 不特定の発生源の定性的な同定法。
- (2) 多重線形回帰分析 → 指標物質を独立変量とし、粒子状物質濃度に関して計算が行われる。
特定の発生源の寄与率が求められる。
- (3) 因子分析 → 発生源の定性的な同定に有効な手法。
- (4) 顕微鏡的手法 → 特定物質の観測ができる方法。
- (5) その他の手法。

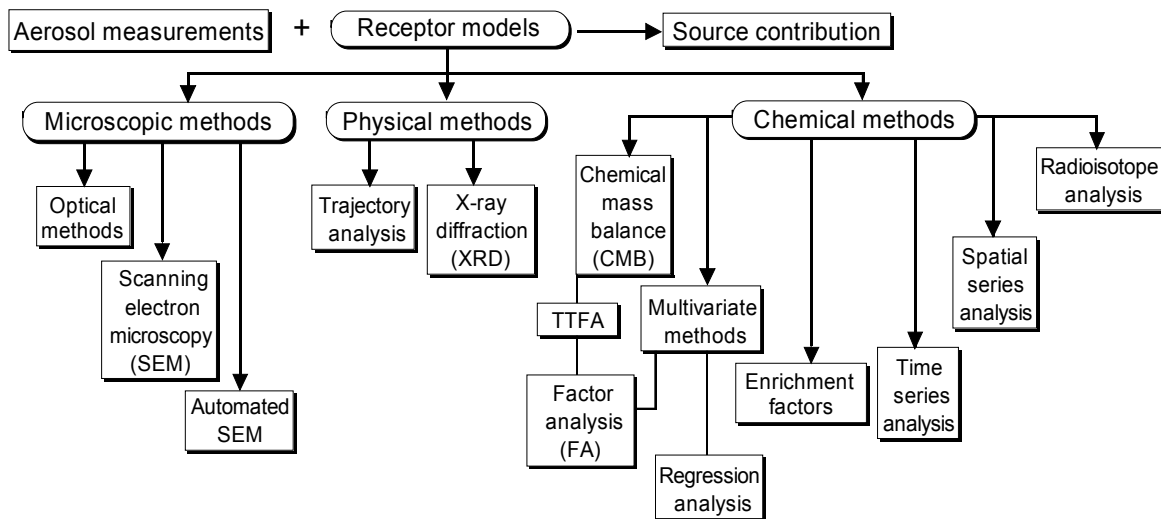


Fig. 3. Various types of receptor models to analyze source-receptor relationship.

2. 発生源とリセプター間の相関特性の数学的取扱

化学成分 i が発生源 j から測定地点(リセプター)に到着するまでに粒子の変質による組成の変化の割合を意味するフラクショネーション係数(Fractionation coefficient)を α_{ikj} とし, 大気浮遊粒子状物質試料 k の全質量を M_k , その中に含まれる化学成分 i の質量を m_{ik} , また試料 k 中の発生源 j からの粒子状物質の質量を M_{kj} , 発生源 j からの粒子状物質中の化学成分 i の質量を F_{ij} , 発生源の数を p とすれば,

$$m_{ik} = \sum_{j=1}^p \alpha_{ikj} F_{ij} M_{kj} \quad (1)$$

化学成分 i の総数を m とすると,

$$M_k = \sum_{j=1}^p M_{kj} = \sum_{i=1}^m m_{ik} \quad (2)$$

式(1)の両辺を M_k で割れば,

$$C_{ik} = \sum_{j=1}^p \alpha_{ikj} F_{ij} S_{kj} \quad (3)$$

ここで, $C_{ik} = m_{ik} / M_k$ (試料 k 中の化学成分 i の質量比), $S_{kj} = M_{kj} / M_k$ (試料 k における発生源 j の寄与率)を意味している.

α_{ikj} を 1 とすると, 式(3)を行列を用いて表せる.

$$\begin{aligned}
 C &= FS & (4) \\
 C &= [C_{ik}] & m \times n \text{ 行列 (化学成分数} \times \text{試料数)} \\
 F &= [F_{ij}] & m \times p \text{ 行列 (化学成分数} \times \text{発生源数)} \\
 S &= [S_{kj}] & p \times n \text{ 行列 (発生源数} \times \text{試料数)}
 \end{aligned}$$

上述の発生源とリセプター間の相関特性の概略は Fig. 4 に示す.

以下, 発生源とリセプターを関係づけるリセプターモデル(化学的解析法)のうち最も中心となる有効な CMB 法について紹介する.

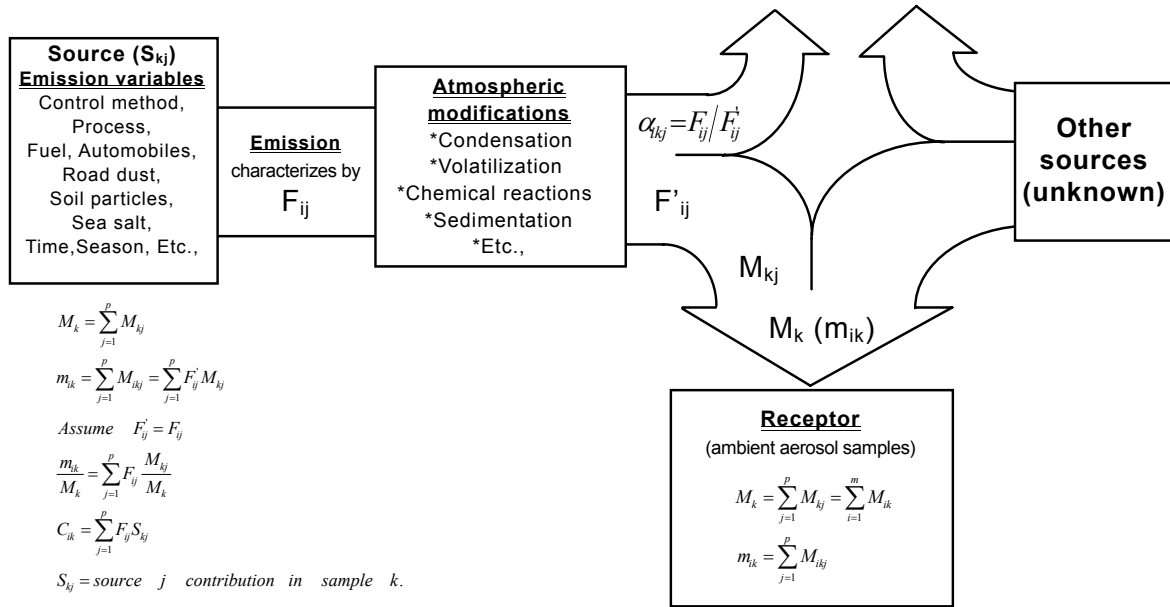


Fig. 4. Schematic and mathematical representation of source-receptor relationship in receptor models.

3. CMB 法による発生源寄与率の推定原理およびその算出手法

CMB 法は SMB 法(Species Mass Balance Model), CEB 法(Chemical Element Balance)と Chemical Mass Accounting Technique とも呼ばれている. CMB 法は次の二つの仮定に基づいている. 第一に, サンプルング地点においてフィルター上に捕集された大気浮遊粒子状物質の量は多くの発生源の各々から由来したものの合計である(線形的結合). 第二に発生源から排出された大気浮遊粒子状物質およびその成分は発生からサンプルングされる時点まで大気中で粒子の沈着, 凝縮, 蒸発などによる変質がなく, 大気浮遊粒子状物質として保持される.

Miller らによって最初(1972 年)に CMB 法を提案され, その後, Friedlander ら⁴⁾(1973 年)は CMB 法の基本原理をまとめ, 発生源寄与率の推定に応用した. CMB 法は一つの試料について解析を行うことから, 式(1)から(3)で表す発生源とリセプター間の相関特性式⁵⁾の添字 k を省略すれば CMB の基礎式となる.

すなわち, リセプターでの粒子状物質の質量濃度 m は個々の発生源からの寄与濃度 M_j の線形和となる(第一仮定).

$$M = \sum_{j=1}^p M_j \quad (5)$$

そして, 大気浮遊粒子状物質中の成分 i の質量濃度 m_i は次のようになる.

$$m_i = \sum_{j=1}^p M_{ij} = \sum_{j=1}^p F'_{ij} M_j \quad (6)$$

ここで, $F'_{ij} = \alpha_{ij} F_{ij}$, α_{ij} はフラクシヨネーション係数である. $\alpha_{ij} = 1$ と第二の仮定をすると, $F'_{ij} = F_{ij}$ となり, すなわち,

$$C_i = \sum_{j=1}^p F'_{ij} S_j = \sum_{j=1}^p F_{ij} S_j \quad (7)$$

ここで, F_{ij} は発生源 j からリセプターに来る粒子状物質中の i 成分の濃度(発生源データ)であり, C_i

は大気浮遊粒子状物質中の成分 i の濃度とする. $p \leq m$ ならば, j 発生源寄与濃度 S_j は線型連立方程式を解くことによって計算できる. 本研究室において, 大気浮遊粒子状物質の発生源寄与率を推定するため, CMB 法を用いて以下の Fig. 5 のような手順で解析を行った.

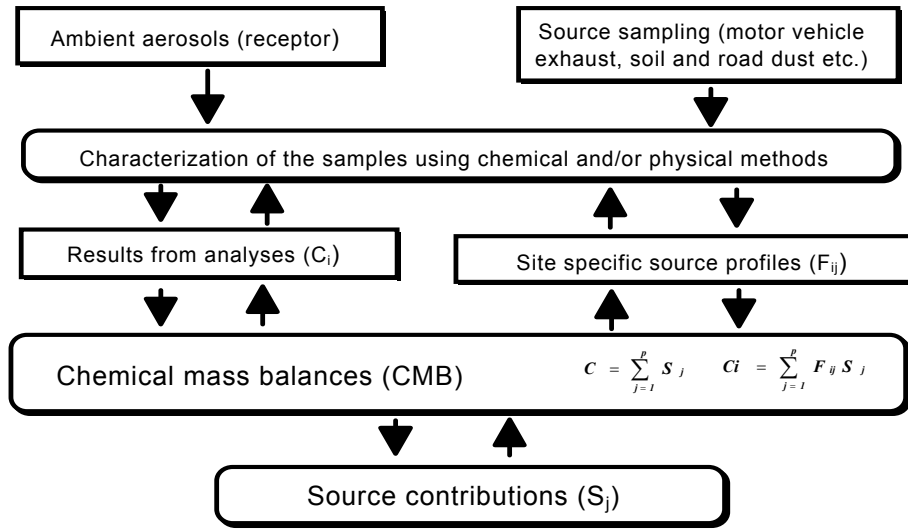


Fig. 5. The procedure for chemical mass balance (CMB) analysis in our studies.

CMB 法には, 指標元素法, 線形計画法と最小二乗法などの計算が用いられているが, 有効分散最小二乗法の計算方式が最も多く使用され, それぞれの化学成分に発生源プロフィールデータおよびリセプターでの測定データの精度に比例した重率をかけて式(7)を解く. すなわち, 次の関数 χ^2 を最小にする S_j を繰り返し計算によって求める.

$$\chi^2 = \frac{\left(C_i - \sum_{j=1}^p F_{ij} S_j \right)^2}{\sigma_{C_i}^2 + \sum_{j=1}^p \sigma_{F_{ij}}^2 S_j^2} \rightarrow \min \quad (8)$$

$\sigma_{F_{ij}}$ は F_{ij} の測定に伴う誤差である.

$$V_{eff,i} = \sigma_{C_i}^2 + \sum_{j=1}^p \sigma_{F_{ij}}^2 S_j^2 \quad (9)$$

ここで, $V_{eff,i}$ は有効分散と呼ばれる. 式(8)の計算から式(4)に対する最小二乗法の解は次の式となる.

$$S = (F'VF)^{-1} F'VC \quad (10)$$

V は $V_{eff,i}^{-1}$ を対角成分に持つ対角行列である. この計算方法による S_j の推定誤差は次の行列の対角成分と与えられる.

$$(F'V^{-1}F)^{-1} \quad (11)$$

4. 発生源プロフィール, 環境濃度データおよび分析手法

CMB 法を用いてある地域の大気浮遊粒子状物質について発生源寄与率推定を行う際に, 良好な結果を得るために次の条件は重要である.

- 問題とする地域に関係する主要な大気浮遊粒子状物質発生源をできるだけ網羅すること(地域によりそれらの種類は当然異なる).
- 発生源プロフィール(Source profile, F_{ij})に信頼できるデータを用いること.
- C_i に関する信頼できるデータを用いること.
- 主要な大気浮遊粒子状物質発生源の種類に応じて適切な指標元素を選ぶこと.

4-1. 発生源プロフィールとその指標物質(元素)の選定

対象地域における発生源の数を与え, またその発生源に対応する指標物質データを用いて解析を行い, 指標物質以外の元素による推定濃度と観測濃度と比較することにより, 計算結果の適合性を評価できる. しかし, ①様々な発生源の組成を知ることとは十分でなく, ②煙源(発生源)と環境条件の違い, 環境中での物理, 化学的変質により煙源(発生源)粒子と大気粒子の組成変化, ③ガスの粒子変換による二次粒子生成などの要因があるために指標物質の選定と CMB 法による適合性はまだ十分とは言えない. 一般に, 代表的な発生源種別の指標元素として, 土壌成分(Al, Fe, Sc, Ca), 自動車排ガス(Pb, Br, 有機炭素(Cao), 元素状炭素(Cae), Ce), 石炭燃焼(Al, As, S), 重油燃焼(V, Ni), 海塩粒子(Na, Cl), 廃棄物焼却炉(Zn, K, Na, Cl), 鉄鋼業(Fe, Mn, Zn, Cr)が用いられている. ここでは典型的な発生源プロフィールの一例⁷⁾を Table 1 に示す.

Table 1. An example of source profiles (Tokyo) used in CMB calculations.

Species	Sea salt	Steel	Fuel	Refuse	Diesel	Gasoline	NH ₄ Cl	NH ₄ NO ₃	(NH ₄) ₂ SO ₄
Cao	0	0	1.7	17.0	10.0	26.3	0	0	0
Cae	0	0.5	30.0	6.7	68.0	30.1	0	0	0
NH ₄ ⁺	0	0.0036	0.2	0.27	1.4	0	33.7	22.5	27.3
NO ₃ ⁻	0	0	0	0	3.6	0	0	77.5	0
Na	30.4	1.4	1	12	0.015	0.027	0	0	0
Al	0.00003	1.0	0.21	0.42	0.061	0.15	0	0	0
SO ₄ ²⁻	7.7	0	13.09	13.6	0	0	0	0	72.7
Cl ⁻	55.1	3.4	0.092	27	0.066	0	66.3	0	0
K	1.1	1.3	0.085	20	0.037	0	0	0	0
Ca	1.2	4.5	0.085	1.1	0.061	0	0	0	0
Sc	0	0.0001	1E-05	0.00005	0	0	0	0	0
Ti	0	0.1	0.074	0.09	0.011	0	0	0	0
V	0.00001	0.0125	0.92	0.0027	0.00075	0	0	0	0
Cr	0	0.32	0.021	0.085	0.00067	0	0	0	0
Mn	0.00001	2.2	0.012	0.033	0.0012	0	0	0	0
Fe	0.00003	15.7	0.46	0.61	0.036	0.41	0	0	0
Co	0	0.0044	0.003	0.0021	0.00013	0	0	0	0
Ni	0	0.29	0.49	0	0.0018	0.0039	0	0	0
Cu	0	0.37	0	0.36	0	0	0	0	0
Zn	0	0.15	0.04	2.6	0.56	0.15	0	0	0
As	0	0.0103	0.002	0.015	0.00027	0	0	0	0
Se	0.00001	0.0051	0.005	0	0.0001	0	0	0	0
Ba	0.00009	0	0	0.039	0	0	0	0	0
La	0	0.001	0	0.00077	0.00002	0	0	0	0
Pb	0	1.4	0.033	1.7	0.049	3.7	0	0	0

発生源プロフィール(F_{ij})を得る方法として, 直接法(発生源試料の成分分析)と間接法(リセプター試料の成分分析, 例えば, 主成分分析法を用いて, 主成分得点から F_{ij} , TTFA 法と FA 因子分析法による計算結果の因子負荷量として F_{ij})がある. しかし, CMB 法によって発生源の推定を行うときには, 化学的に類似した発生源に対して, 多重同一線形性(Multi-colinearity)によって評価ができないこともある. 一般的に, 道路粉塵と土壌粒子の元素組成が同様であるといわれている. また岩石, アスフ

アルトと石炭粉塵も似たようなパターンを示している. その場合, CMB 法の計算にしばしば負の値が得られることがある. そのため, 化学的, 物理的, 統計的手法を用いて解決しなければならない. 例えば, 道路粉塵と土壌粒子中の炭酸塩成分(CO_3^{2-})⁷⁻⁸⁾, Caと炭素成分(CaeとCao)の含有量が大きく相異していることから, CO_3^{2-} , Ca, CaeとCaoを指標物質としてのCMB法の計算では, 道路粉塵と土壌粒子の大気浮遊粒子状物質への寄与を区別することができる. また, ディーゼル自動車排ガスと燃料燃焼の寄与率を推定するとき, 同一線形性による影響に対し, 多くの有機化合物を含む発生源プロフィール⁹⁾を用いることによって異なるディーゼル車と燃料燃焼の寄与率を推定する可能性が報告されている.

発生源プロフィールは地域別特徴があるため, CMB 法が適用される地域発生源の条件を十分に検討し, 地域別発生源組成を把握する必要がある. しかし, 指標元素およびその濃度は各国の異なる発生源状況に対応して大きく変動し, 各地域でも変動がある. したがって, 国別と地域別の発生源プロフィールの情報の蓄積は重要である. 地域別発生源を明らかにするため, 各国の研究者によって特定研究地域の発生源プロフィール(Site specific source profile)の研究が行われている. その他, 分析方法によって, F_{ij} の測定に伴う誤差 $\sigma_{F_{ij}}$ および C_i の測定に伴う誤差 σ_{C_i} が異なり, このような発生源プロフィールを用いてCMB解析による発生源寄与率の推定は過大評価あるいは過小評価を考慮して最小限に補正しなければならない.

4-2. 環境濃度データ (Data set, C_i)

サンプリングに際しては目的や分析法の感度などの諸条件を考え合わせて, サンプラー, フィルター, サンプリング時間及び場所を選定しなければならない.

また, 環境濃度データが得られるため, 様々な測定方法が用いられているが, 簡単に分類すると非破壊と破壊分析法に分けられる. 当研究室では, 以下 Fig. 6 のようなサンプリングと測定手法を用いて総大気浮遊粒子状物質(TSP)と微小粒子状物質 PM2.5(粒径 $\leq 2.5 \mu\text{m}$)の発生源寄与率の推定を行ってきた⁷⁾.

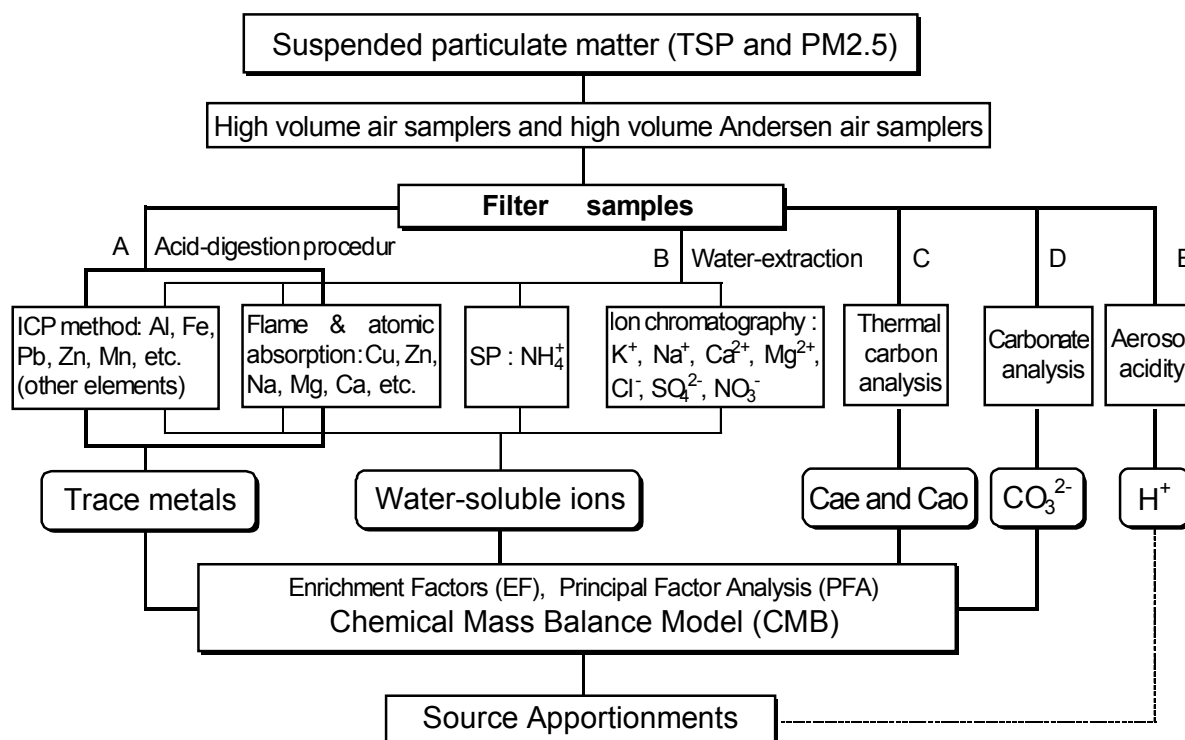


Fig. 6. Sampling and characterizing methods of ambient suspended particulate matter.

5. CMB 法の応用例

5-1. 高濃度大気浮遊粒子状物質の発生源寄与率の推定

近年、南関東地域における初冬に高濃度大気汚染現象が観測されている。この現象が現れたときの発生源別寄与率を推定するために、本研究室では、CMB 法を用いて測定データの解析を行った。そのとき、地域周辺のみ自動車走行により発生した道路粉塵の濃度が著しく増加する気象的要因があるため、各地域の発生源種別寄与率の推定に必要となる地域ごとの地殻起源物質(土壌粒子や道路粉塵)のソースプロフィールを用いなければならない。そこで、対象地域における道路粉塵と土壌粒子プロフィール、ならびに人為起源としての鉄鋼業、燃料燃焼、廃棄物焼却、自動車排ガスのソースプロフィールと二次生成アンモニウム塩粒子と仮定したプロフィールを用いて、CMB 法により各地域の発生源種別寄与率の推定を行った⁷⁻⁸⁾。ここで、1991 年と 1990 年の浦和調査地点のデータを用いた CMB の計算結果を Fig. 7 と Table 2 にまとめて示している。

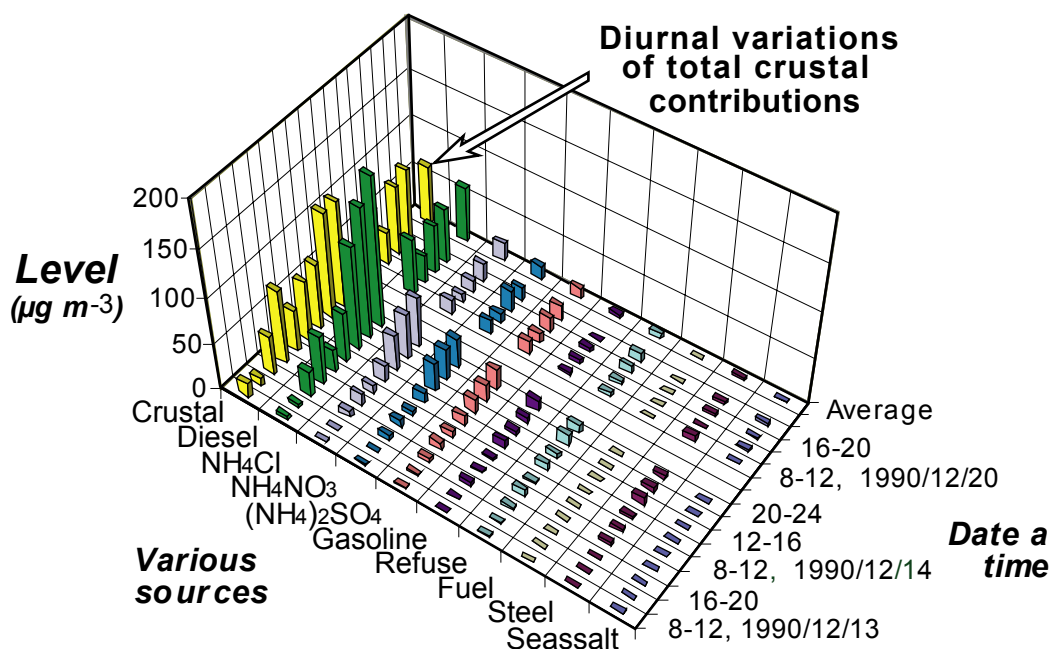


Fig. 7. Diurnal variations of source contributions for Urawa site.

Fig. 7 と Table 2 より、自動車排ガスの寄与率は人為起源の中で最も高く、気象条件の変化にあまり影響されていないと推定される。気象条件の変化にともなう二次生成大気浮遊粒子状物質の寄与率あるいは他の人為的起源の寄与率の経時変化を考察したところ、二次生成粒子(NH_4Cl , NH_4NO_3 と $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$)の寄与は高く、気象状況に大きく依存し、大気浮遊粒子状物質酸性度と密接に関連していることが分かった。また道路粉塵からの大気浮遊粒子状物質酸性度への強い影響も見られた。微小粒子状物質 $\text{PM}_{2.5}$ に対する人為発生源の寄与が土壌と道路粉塵起源よりもはるかに大きく、高い大気エアロゾル酸性度と高濃度大気汚染を導く要因と推定される。TSP と $\text{PM}_{2.5}$ の両者の場合、道路粉塵の寄与が高くなるほど大気エアロゾル酸性度が低くなる傾向がみられた。一方、土壌粒子の寄与が高くなってもエアロゾル酸性度が人為起源の寄与に支配されて増減していた。すなわち、大気エアロゾル酸性度に対する土壌粒子の影響は小さいことがこの研究から明らかにされた⁸⁾。さらに、二次生成粒子 NH_4Cl を構成する塩化物(Cl^-)の非海塩起源については、ごみ・廃棄物焼却排気由来の可能性が高いことを示唆している¹⁰⁾。

局地あるいは地域的な発生源寄与率の推定のほか、大気汚染移流・長距離輸送解析に関する CMB 解析・応用例として、(1) 海洋の大気環境における海塩粒子と大陸大気浮遊粒子状物質の寄

与率の推定, (2) 北半球と南半球の大気浮遊粒子状物質由来の検討, (3) 黄砂現象の解明, 並びに(4) 広域大気浮遊粒子状物質の輸送などに関する多数の研究が報告されている。

Table 2. Examples of source contributions from CMB calculations⁷⁾.

Date & time	PM 2.5					TSP				
	Road (%)	Soil (%)	AN ^{a)} (%)	SPM ($\mu\text{g m}^{-3}$)	H+ (neq m^{-3})	Road (%)	Soil (%)	AN ^{a)} (%)	SPM ($\mu\text{g m}^{-3}$)	H+ (neq m^{-3})
11/26/8-12	9.7	0.4	55.8	146.7	56.2	14.9	13.7	49.4	290.3	51.8
12-16	16.2	1.5	54.8	135.6	35.0	18.8	6.9	52.9	293.7	25.5
16-20	12.3	5.9	60.1	240.1	25.1	17.0	3.6	47.1	483.3	21.4
11/26/20-11/27/2	6.4	9.2	61.2	162.9	46.0	22.0	1.9	60.3	309.0	29.0
2-8	14.0	3.6	56.4	99.7	27.2	18.5	4.2	55.6	216.1	14.5
8-12	7.7	3.5	64.6	187.6	58.5	16.9	6.0	50.4	306.9	29.3
12-16	4.2	9.2	60.6	202.6	118.5	6.5	16.2	51.7	321.7	97.9
16-20	7.6	1.5	64.5	269.3	156.3	16.4	14.6	45.6	449.7	87.4
12/6/8-12	6.2	6.3	60.7	200.1	40.2	9.6	9.1	56.6	303.2	32.7
12-16	3.8	7.1	65.3	187.2	105.2	6.6	11.1	52.8	298.0	100.7
16-20	5.0	1.4	69.5	332.2	218.1	6.5	16.8	51.7	530.6	184.4
12/6/20-12/7/2	6.1	4.2	64.3	244.2	116.7	7.7	7.0	57.3	348.5	53.7
2-8	8.8	1.8	63.1	174.6	77.3	15.0	11.0	55.2	242.9	67.0
8-12	10.4	8.4	49.5	173.0	46.3	13.3	11.0	48.8	257.1	43.2
12-16	9.6	9.1	42.4	131.3	12.5	18.1	10.6	37.1	207.4	12.0
16-20	14.4	6.1	58.3	289.6	25.8	26.5	8.3	34.9	463.4	10.5
Average	8.9	4.9	60.7	198.5	72.8	14.6	9.5	50.3	332.6	53.8

a) [Anthropogenic] = [Steel industry] + [Fuel combustion] + [Refuse incineration]
+ [Diesel automobiles] + [Gasoline automobiles] + [Ammonium salts]

5-2. 複合リセプター解析手法およびその活用

CMB 法をさらに発生源寄与率推定に有効に利用するため, いくつかの他のリセプター解析手法と同時に用いば, よい汚染解析「処方」を選択することが可能であろう. 例えば, 他のリセプター手法によって発生源種類を断定した後, CMB 法による発生源寄与率推定を行うことは有効である.

- 多重線形回帰分析(MLR)－汚染空気塊流跡線分析－CMB 法¹¹⁾
- 因子分析(FA)－有効分散 CMB 法^{7,12)}
- 因子分析－多重線形回帰分析－CMB 法
- Target transformation 因子分析(TTFA)－顕微鏡的手法(LM-SAX)

e.g. Light microscopy と Scanning electron microscopy⁸⁾ など

様々な環境分野においての応用として, 有害物質(PCB, PAHs など)による河川・水系への沈着・汚濁発生源, 変換と輸送に関する評価^{12~13)}, 室内空間汚染物質の由来(クリーンルーム等の評価)にも応用可能である. 今年度(2002 年度), 東京都では, ディーゼルと花粉症による健康被害を評価し, その発生源寄与率を推定するために, CMB 法によるデータ解析も行っている. 今後, 模擬ソースプロフィールを整備し, かつ発生源の特徴を持つ新たな指標物質の模索, 固定・移動発生源の寄与率をより正確に評価し, 途上国における深刻な環境問題の汚染評価にも応用したい. 具体的には, 自動車の走行に伴って大気中に排出される SPM 中のタイヤダストに注目し, その成分分析手法の確立(新指標物質の発見含む)と, Cae, タイヤ磨耗粉じん中の有機硫黄化合物¹⁴⁾と有機炭化水素等に着目し, 炭素成分に関する総合的なデータから SPM 中の車種別の寄与を明らかにする研究も実施し, そのデータの蓄積を図っている.

6. まとめ

CMB 法などのリセプターモデルは環境中での粒子状物質の測定データに基づいて解析する手法であることから、いわゆる事前評価手法としては利用できないが、以下のような利欠点が知られている。

【利点】定量的方法であり、一個の試料又は少ないデータセットでも発生源寄与率の推定が可能、 σ_{ci} に注意を払えば短時間に捕集された試料にも適用できる。発生源寄与率の誤差(σ_{si})算定、解析データのチェックや発生源種類の決定ができる。

【欠点】発生源プロフィール(F_{ij})が必要となり、現段階では二次生成粒子の寄与率の算定には幾つかの仮定がなされている。また類似した化学組成を持った発生源について区別できない。

本研究室において、CMB 法では指標物質の選定が結果を決定づけるため、発生源の特徴を持つ新たな指標物質(Mass~Materials)を探索し、正確に発生源寄与率を推定するために変動の小さく代表性のある詳細な粒径別 F_{ij} , ならびに精度のよい C_i を測定手法や新たな複合手法を開発していく。同時に似た発生源に対しても寄与率推定可能の分解能の高いCMB法¹⁵⁾ プログラムに関する研究開発も必要である。

参考文献

- 1) K. Sakamoto, Q. Wang, G. George, Y. Hirota, K. Kimijima, M. Okuyama, T. Mizuno, H. Yoshikado and N. Kaneyasu, *Chem. Express*, **8**, 345-348 (1993).
- 2) M. Kasahara, *J. Jap. Soc. Air Pollut.*, **19**, 337-358 (1984) (in Japanese).
- 3) A. Mizohata, *J. Jap. Soc. Air Pollut.*, **26**, 59-71 (1991) (in Japanese).
- 4) S. K. Friedlander, *Environ. Sci. Technol.*, **7**, 235-239 (1973).
- 5) R. C. Henry, C. W. Lewis, P. K. Hopke and H. J., *Atmos. Environ.*, **18**, 1507-1515 (1984).
- 6) K. Sakamoto, Q. Wang, G. George, Y. Hirota, K. Kimijima, M. Okuyama, T. Mizuno, H. Yoshikado and N. Kaneyasu, *Environ. Sci.*, **7**, 237-244 (1994).
- 7) Q. Wang, the Doctoral dissertation (Dr. Eng.), Graduate School of Science & Engineering, Saitama University, Saitama, Japan, pp.104-118 (1995).
- 8) Q. Wang and K. Sakamoto, *Eaorozorukenyu (J. Aerosol Res., Jap.)*, **9**, 345-353 (1994) (in Japanese).
- 9) S. L. Miller, M. J. Anderson, Eileen P. Daly, Jana B. Milford, *Atmos. Environ.*, **36**, 3629-3641 (2002).
- 10) Q. Wang and K. Sakamoto, T. Mizuno, H. Yoshikado and N. Kaneyasu, *Eaorozorukenyu (J. Aerosol Res., Jap.)*, **13**, 216-221 (1998) (in Japanese).
- 11) J. G. Watson, J. C. Chow, E. M. Fujita, *Atmos. Environ.*, **35**, 1567-1584 (2001).
- 12) Ipek I., Erik R. C., *Water Research*, **36**, 3449-3462 (2002).
- 13) D. Golomb, E. Barry, G. Fisher, P. Varanusupakul, M. Koleda, T. Rooney, *Atmos. Environ.*, **35**, 6245-6258 (2001).
- 14) K. Sakamoto, Y. Hirota, T. Nezu, M. Tsubota, K. Kimijima and M. Okuyama, *Eaorozorukenyu (J. Aerosol Res., Jap.)*, **14**, 242-247 (1999) (in Japanese).
- 15) J.G. Watson, N.F. Robinson, C. Lewis, Coulter, Chemical Mass Balance Receptor Model Version 8(CMB8) User's Manual, *Desert Research Institute Document*, No. 1808, 1D1 (1997).