

## Supplementary Materials:

Fumikazu Ikemori <sup>1,\*</sup>, Rie Nishimura <sup>2</sup>, Shinji Saito <sup>3</sup>, Masayuki Akiyama <sup>4</sup>, Shigekazu Yamamoto <sup>5</sup>, Akihiro Iijima <sup>6</sup> and Seiji Sugata <sup>7</sup>

**Table S1.** Sampling dates during spring and summer at each sampling site.

Spring						
Month	Start day	Dazaifu	Osaka	Nagoya	Tokyo	Sapporo
April	21	○	○	○	○	○
	22	○	○	○	○	○
	23	○	○	○	○	○
	24	○	○	○	○	○ 3 days
	25	○	○	○	○	
	26	○	○	○	○	
	27	○	○	○	○	○
	28	○	○	○	○	○ 2 days
	29	○	○	○	○	
	30	○	○	○	○	○
Total		10	10	10	10	7
Summer						
Month	Start day	Dazaifu	Izumotsu	Nagoya	Tokyo	Sapporo
July	22	○	○	○	○	○
	23	○	○	○	○	○
	24	○	○	○	○	○
	25	○	○	○ 2 days	○	○
	26	○	○		○	○
	27	○	○	○	○	○
	28	○	○	○	○	○
	29	○	○	○	○	○
	30	○	○	○	○	○
	31	○	○	○	○	○
	August	1	○	○	○	○
2		○	○	○	○	○
3		○	○	○	○	○
4		○	○	○	○	○
5		○	○	○	○	○
6		○	○	○	○	○
Total		16	16	15	16	16

**Table S2.** Correlations among OC, WSOC, and PO during (a) spring and (b) summer at each sampling site (\*p < 0.05, \*\*p < 0.01).

(a) Spring				(b) Summer			
Dazaifu	WSOC	OC	PO	Dazaifu	WSOC	OC	PO
WSOC	1.00	0.95	0.83	WSOC	1.00	0.95	0.78
OC	**	1.00	0.83	OC	**	1.00	0.62
PO	**	**	1.00	PO	**	*	1.00
Osaka	WSOC	OC	PO	Izumitsu	WSOC	OC	PO
WSOC	1.00	0.95	0.83	WSOC	1.00	0.97	0.93
OC	**	1.00	0.77	OC	**	1.00	0.90
PO	**	**	1.00	PO	**	**	1.00
Nagoya	WSOC	OC	PO	Nagoya	WSOC	OC	PO
WSOC	1.00	0.98	0.88	WSOC	1.00	0.96	0.90
OC	**	1.00	0.86	OC	**	1.00	0.77
PO	**	**	1.00	PO	**	**	1.00
Tokyo	WSOC	OC	PO	Tokyo	WSOC	OC	PO
WSOC	1.00	0.97	0.77	WSOC	1.00	0.94	0.90
OC	**	1.00	0.68	OC	**	1.00	0.87
PO	**	*	1.00	PO	**	**	1.00
Sapporo	WSOC	OC	PO	Sapporo	WSOC	OC	PO
WSOC	1.00	0.59	0.71	WSOC	1.00	0.43	0.51
OC	-	1.00	0.25	OC	-	1.00	0.07
PO	-	-	1.00	PO	*	-	1.00

**Table S3.** Correlations among organic tracers during (a) spring and (b) summer at each sampling site (\*p < 0.05, \*\*p < 0.01).

(a) Spring

Dazaifu	DHOPA	PhA	4MPHa	PNOA	PA	3HGA	MBTCA	2MTT	2MET	2MGA	LEV	MAN	GLA	tPhA	ARA	MAT	GLU
DHOPA	1.00	0.69	0.70	-0.43	-0.09	0.97	0.61	-0.20	-0.27	0.77	0.22	0.31	0.27	0.79	-0.58	-0.39	-0.10
PhA	*	1.00	0.84	-0.70	-0.46	0.61	0.29	-0.42	-0.48	0.33	0.40	0.58	0.40	0.32	-0.62	-0.30	0.11
4MPHa	*	**	1.00	-0.25	0.01	0.70	0.60	-0.15	-0.32	0.55	0.65	0.74	0.62	0.62	-0.40	-0.07	0.24
PNOA	-	*	-	1.00	0.83	-0.26	0.14	0.49	0.35	-0.02	0.23	0.05	0.21	0.07	0.52	0.44	0.28
PA	-	-	-	**	1.00	0.02	0.52	0.33	0.21	0.09	0.33	0.20	0.31	0.28	0.47	0.48	0.38
3HGA	**	-	*	-	-	1.00	0.59	-0.19	-0.32	0.82	0.27	0.35	0.32	0.85	-0.60	-0.36	-0.05
MBTCA	-	-	-	-	-	-	1.00	0.35	0.27	0.57	0.36	0.35	0.37	0.69	0.16	0.28	0.16
2MTT	-	-	-	-	-	-	-	1.00	0.95	0.22	-0.19	-0.34	-0.21	0.08	0.67	0.42	-0.30
2MET	-	-	-	-	-	-	-	**	1.00	0.07	-0.31	-0.47	-0.32	-0.07	0.73	0.38	-0.34
2MGA	**	-	-	-	-	**	-	-	-	1.00	0.07	0.10	0.08	0.92	-0.20	-0.10	-0.16
LEV	-	-	*	-	-	-	-	-	-	-	1.00	0.93	0.99	0.23	-0.25	-0.07	0.65
MAN	-	-	*	-	-	-	-	-	-	-	**	1.00	0.93	0.22	-0.32	0.03	0.76
GLA	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	**	**	1.00	0.22	-0.31	-0.13	0.65
tPhA	**	-	-	-	-	**	*	-	-	**	-	-	-	1.00	-0.23	-0.07	-0.05
ARA	-	-	-	-	-	-	-	*	*	-	-	-	-	-	1.00	0.82	0.13
MAT	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	**	1.00	0.42
GLU	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	*	*	*	-	-	-	1.00

Osaka	DHOPA	PhA	4MPHa	PNOA	PA	3HGA	MBTCA	2MTT	2MET	2MGA	LEV	MAN	GLA	tPhA	ARA	MAT	GLU
DHOPA	1.00	0.92	0.75	0.33	0.18	0.67	0.72	-0.36	-0.23	0.21	0.78	0.72	0.73	0.46	0.73	0.74	0.70
PhA	**	1.00	0.87	0.35	0.40	0.60	0.70	-0.44	-0.35	0.31	0.81	0.73	0.71	0.48	0.73	0.74	0.70
4MPHa	*	**	1.00	0.01	0.17	0.60	0.79	-0.22	-0.18	0.08	0.51	0.40	0.34	0.51	0.71	0.66	0.67
PNOA	-	-	-	1.00	0.75	-0.01	0.00	-0.02	0.02	0.23	0.71	0.79	0.80	-0.11	-0.16	-0.06	-0.19
PA	-	-	-	*	1.00	0.00	0.11	-0.14	-0.13	0.54	0.56	0.59	0.57	0.10	0.01	0.13	0.02
3HGA	*	-	-	-	-	1.00	0.83	0.15	0.26	0.12	0.26	0.22	0.27	0.85	0.42	0.39	0.47
MBTCA	*	*	**	-	-	**	1.00	-0.01	0.06	0.08	0.29	0.21	0.22	0.58	0.50	0.47	0.49
2MTT	-	-	-	-	-	-	-	1.00	0.98	-0.20	-0.49	-0.41	-0.39	0.15	-0.52	-0.56	-0.52
2MET	-	-	-	-	-	-	-	**	1.00	-0.15	-0.38	-0.31	-0.27	0.27	-0.39	-0.43	-0.39
2MGA	-	-	-	-	-	-	-	-	-	1.00	0.21	0.21	0.25	0.27	0.28	0.40	0.30
LEV	**	**	-	*	-	-	-	-	-	-	1.00	0.99	0.97	0.22	0.52	0.58	0.50
MAN	*	*	-	**	-	-	-	-	-	-	**	1.00	0.99	0.18	0.42	0.49	0.41
GLA	*	*	-	**	-	-	-	-	-	**	**	**	1.00	0.23	0.40	0.48	0.39
tPhA	-	-	-	-	-	**	-	-	-	-	-	-	-	1.00	0.51	0.49	0.60
ARA	*	*	*	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	1.00	0.99	0.99
MAT	*	*	*	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	**	1.00	0.98
GLU	*	*	*	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	**	**	1.00

Nagoya	DHOPA	PhA	4MPHa	PNOA	PA	3HGA	MBTCA	2MTT	2MET	2MGA	LEV	MAN	GLA	tPhA	ARA	MAT	GLU
DHOPA	1.00	0.92	0.46	0.27	0.51	0.90	0.72	0.34	0.43	0.75	0.68	0.59	0.68	0.78	0.59	0.50	0.76
PhA	**	1.00	0.74	0.45	0.64	0.95	0.89	0.56	0.60	0.85	0.60	0.54	0.60	0.89	0.74	0.65	0.87
4MPHa	-	*	1.00	0.48	0.56	0.70	0.88	0.68	0.67	0.69	0.17	0.14	0.13	0.73	0.82	0.79	0.82
PNOA	-	-	-	1.00	0.90	0.51	0.58	0.74	0.77	0.73	0.55	0.54	0.53	0.73	0.51	0.41	0.57
PA	-	*	-	**	1.00	0.73	0.73	0.75	0.81	0.84	0.64	0.56	0.62	0.86	0.59	0.47	0.65
3HGA	**	**	*	-	*	1.00	0.93	0.69	0.74	0.93	0.53	0.42	0.52	0.95	0.68	0.57	0.83
MBTCA	*	**	**	-	*	**	1.00	0.81	0.83	0.92	0.33	0.25	0.31	0.93	0.74	0.65	0.86
2MTT	-	-	*	*	*	*	**	1.00	0.98	0.85	0.15	0.08	0.13	0.80	0.51	0.45	0.61
2MET	-	-	*	**	**	*	**	**	1.00	0.91	0.28	0.20	0.25	0.85	0.58	0.51	0.68
2MGA	*	**	*	*	**	**	**	**	**	1.00	0.55	0.46	0.52	0.98	0.70	0.60	0.86
LEV	**	-	-	-	*	-	-	-	-	-	1.00	0.98	0.99	0.59	0.55	0.48	0.59
MAN	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	**	1.00	0.98	0.50	0.50	0.44	0.54
GLA	*	-	-	-	-	-	-	-	-	-	**	**	1.00	0.57	0.47	0.40	0.54
tPhA	**	**	*	*	**	**	**	**	**	**	-	-	-	1.00	0.76	0.66	0.88
ARA	-	*	**	-	-	*	*	-	-	*	-	-	-	*	1.00	0.98	0.93
MAT	-	*	**	-	-	-	*	-	-	-	-	-	-	*	**	1.00	0.88
GLU	*	**	**	-	*	**	**	-	*	**	-	-	-	**	**	**	1.00

Tokyo	DHOPA	PhA	4MPHa	PNOA	PA	3HGA	MBTCA	2MTT	2MET	2MGA	LEV	MAN	GLA	tPhA	ARA	MAT	GLU
DHOPA	1.00	0.86	0.83	-0.04	0.34	0.56	0.74	-0.01	-0.16	0.72	0.30	0.35	0.41	0.61	0.32	0.32	0.59
PhA	**	1.00	0.92	-0.21	0.16	0.42	0.55	0.00	-0.07	0.71	0.54	0.60	0.65	0.89	0.52	0.49	0.73
4MPHa	**	**	1.00	-0.07	0.30	0.38	0.56	0.09	0.00	0.69	0.37	0.40	0.47	0.72	0.20	0.15	0.50
PNOA	-	-	-	1.00	0.57	-0.20	0.09	-0.27	-0.23	-0.42	-0.48	-0.53	-0.58	-0.40	-0.33	-0.26	-0.47
PA	-	-	-	-	1.00	0.62	0.76	0.46	0.36	0.41	-0.54	-0.52	-0.45	0.04	-0.39	-0.30	-0.24
3HGA	-	-	-	-	-	1.00	0.89	0.65	0.54	0.88	-0.19	-0.09	0.03	0.45	0.02	0.09	0.25
MBTCA	*	-	-	-	*	**	1.00	0.44	0.26	0.82	-0.20	-0.13	-0.05	0.47	0.05	0.14	0.25
2MTT	-	-	-	-	-	*	-	1.00	0.93	0.59	-0.53	-0.45	-0.31	0.09	-0.44	-0.40	-0.19
2MET	-	-	-	-	-	-	-	**	1.00	0.45	-0.49	-0.41	-0.28	0.08	-0.44	-0.42	-0.28
2MGA	*	*	*	-	-	**	**	-	-	1.00	0.10	0.20	0.33	0.68	0.16	0.17	0.50
LEV	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	1.00	0.99	0.96	0.57	0.69	0.56	0.75
MAN	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	**	1.00	0.98	0.65	0.72	0.60	0.79
GLA	-	*	-	-	-	-	-	-	-	-	**	**	1.00	0.68	0.67	0.55	0.84
tPhA	-	**	*	-	-	-	-	-	-	*	-	*	*	1.00	0.68	0.65	0.74
ARA	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	*	*	*	*	1.00	0.98	0.83
MAT	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	*	**	1.00	0.76
GLU	-	*	-	-	-	-	-	-	-	-	*	**	**	*	**	*	1.00

Sapporo	DHOPA	PhA	4MPhA	PNOA	PA	3HGA	MBTCA	2MTT	2MET	2MGA	LEV	MAN	GLA	tPhA	ARA	MAT	GLU
DHOPA	1.00	0.80	0.16	-0.15	-0.09	0.17	0.19	0.25	0.09	0.12	0.54	0.41	0.48	0.21	0.15	-0.03	0.54
PhA	*	1.00	0.68	0.16	-0.01	0.22	0.55	0.55	0.39	0.40	0.23	0.17	0.20	0.53	-0.22	-0.28	0.16
4MPhA	-	-	1.00	0.57	0.34	0.36	0.85	0.73	0.67	0.69	-0.31	-0.23	-0.27	0.84	-0.42	-0.22	-0.45
PNOA	-	-	-	1.00	0.73	0.67	0.82	0.34	0.15	0.75	-0.80	-0.85	-0.84	0.71	0.20	0.44	0.03
PA	-	-	-	-	1.00	0.93	0.74	0.55	0.42	0.88	-0.72	-0.70	-0.73	0.77	0.34	0.59	-0.09
3HGA	-	-	-	-	**	1.00	0.78	0.68	0.49	0.92	-0.65	-0.63	-0.64	0.77	0.25	0.42	0.12
MBTCA	-	-	*	*	-	*	1.00	0.78	0.62	0.94	-0.59	-0.55	-0.57	0.97	-0.08	0.15	-0.16
2MTT	-	-	-	-	-	-	*	1.00	0.95	0.83	-0.36	-0.16	-0.23	0.84	-0.45	-0.28	-0.38
2MET	-	-	-	-	-	-	-	**	1.00	0.67	-0.26	0.02	-0.07	0.72	-0.60	-0.42	-0.60
2MGA	-	-	-	-	**	**	**	*	-	1.00	-0.67	-0.61	-0.64	0.95	0.00	0.23	-0.16
LEV	-	-	-	*	-	-	-	-	-	1.00	0.91	0.95	-0.50	0.01	-0.25	0.18	
MAN	-	-	-	*	-	-	-	-	-	-	**	1.00	0.99	-0.43	-0.31	-0.51	-0.05
GLA	-	-	-	*	-	-	-	-	-	**	**	1.00	-0.47	-0.23	-0.45	0.05	
tPhA	-	-	*	-	*	*	**	*	-	**	-	-	1.00	-0.09	0.15	-0.28	
ARA	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	1.00	0.94	0.57
MAT	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	**	1.00	0.35
GLU	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	1.00

(b) Summer

Dazaifu	DHOPA	PhA	4MPhA	PNOA	PA	3HGA	MBTCA	2MTT	2MET	2MGA	LEV	MAN	GLA	tPhA	ARA	MAT	GLU
DHOPA	1.00	0.88	0.56	0.25	0.69	0.90	0.58	0.52	0.54	0.77	0.30	0.29	0.35	0.60	0.33	0.19	0.41
PhA	**	1.00	0.65	0.35	0.72	0.87	0.69	0.57	0.58	0.75	0.36	0.39	0.45	0.51	0.24	0.17	0.43
4MPhA	*	**	1.00	0.53	0.90	0.72	0.85	0.79	0.82	0.90	0.65	0.75	0.89	0.54	0.58	0.46	0.56
PNOA	-	-	*	1.00	0.48	0.46	0.75	0.73	0.72	0.52	0.86	0.66	0.53	0.01	0.54	0.68	0.72
PA	**	**	**	-	1.00	0.89	0.90	0.86	0.86	0.92	0.52	0.61	0.73	0.53	0.34	0.29	0.58
3HGA	**	**	**	-	**	1.00	0.83	0.76	0.76	0.86	0.46	0.48	0.53	0.50	0.26	0.27	0.63
MBTCA	*	**	**	**	**	**	1.00	0.88	0.88	0.84	0.72	0.69	0.71	0.32	0.43	0.46	0.72
2MTT	*	*	**	**	**	**	**	1.00	0.99	0.84	0.62	0.59	0.63	0.17	0.46	0.41	0.76
2MET	**	*	**	**	**	**	**	**	1.00	0.85	0.62	0.59	0.64	0.18	0.51	0.41	0.72
2MGA	**	**	**	*	**	**	**	**	**	1.00	0.52	0.54	0.69	0.56	0.57	0.37	0.56
LEV	-	-	**	**	*	-	**	*	**	*	1.00	0.90	0.77	0.34	0.61	0.86	0.76
MAN	-	-	**	**	*	-	**	*	*	*	**	1.00	0.93	0.52	0.45	0.77	0.70
GLA	-	-	**	*	**	*	**	**	**	**	**	**	1.00	0.63	0.50	0.66	0.60
tPhA	*	*	*	*	*	*	-	-	-	*	-	*	**	1.00	0.28	0.36	0.17
ARA	-	-	*	*	-	-	-	-	*	*	*	-	*	-	1.00	0.68	0.39
MAT	-	-	-	**	-	-	-	-	-	**	**	**	**	-	**	1.00	0.75
GLU	-	-	*	**	*	**	**	**	**	*	**	**	*	-	-	**	1.00

Izumiotsu	DHOPA	PhA	4MPhA	PNOA	PA	3HGA	MBTCA	2MTT	2MET	2MGA	LEV	MAN	GLA	tPhA	ARA	MAT	GLU
DHOPA	1.00	0.94	0.78	0.48	0.79	0.93	0.85	0.92	0.94	0.92	0.67	0.60	0.87	0.95	0.56	0.26	0.55
PhA	**	1.00	0.88	0.69	0.72	0.85	0.78	0.83	0.87	0.78	0.80	0.72	0.91	0.91	0.72	0.46	0.71
4MPhA	**	**	1.00	0.73	0.73	0.78	0.77	0.73	0.75	0.69	0.64	0.57	0.69	0.83	0.77	0.54	0.80
PNOA	-	**	**	1.00	0.47	0.44	0.49	0.35	0.39	0.30	0.59	0.61	0.58	0.50	0.55	0.39	0.59
PA	**	**	**	-	1.00	0.93	0.98	0.81	0.78	0.87	0.33	0.34	0.57	0.89	0.56	0.22	0.52
3HGA	**	**	**	-	**	1.00	0.94	0.94	0.95	0.96	0.52	0.48	0.71	0.98	0.61	0.30	0.58
MBTCA	**	**	**	-	**	**	1.00	0.86	0.83	0.91	0.41	0.41	0.65	0.91	0.55	0.20	0.55
2MTT	**	**	**	-	**	**	**	1.00	0.99	0.95	0.50	0.46	0.70	0.94	0.57	0.25	0.57
2MET	**	**	**	-	**	**	**	**	1.00	0.94	0.60	0.53	0.75	0.96	0.62	0.33	0.60
2MGA	**	**	**	-	**	**	**	**	**	1.00	0.47	0.40	0.69	0.94	0.48	0.16	0.48
LEV	**	**	**	*	-	*	-	*	*	-	1.00	0.93	0.89	0.63	0.55	0.40	0.49
MAN	*	**	*	*	-	-	-	-	*	-	**	1.00	0.81	0.57	0.42	0.25	0.39
GLA	**	**	**	*	*	**	**	**	**	**	**	**	1.00	0.79	0.52	0.28	0.49
tPhA	**	**	**	*	**	**	**	**	**	**	**	**	*	1.00	0.70	0.40	0.67
ARA	*	**	**	*	*	*	*	*	*	-	*	-	*	**	1.00	0.90	0.94
MAT	-	-	*	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	**	1.00	0.86
GLU	*	**	**	*	*	*	*	*	*	-	-	-	-	**	**	**	1.00

Nagoya	DHOPA	PhA	4MPhA	PNOA	PA	3HGA	MBTCA	2MTT	2MET	2MGA	LEV	MAN	GLA	tPhA	ARA	MAT	GLU
DHOPA	1.00	0.72	0.51	0.27	0.76	0.92	0.69	0.94	0.85	0.84	0.39	0.40	0.84	0.46	0.36	0.27	0.45
PhA	**	1.00	0.69	0.12	0.69	0.72	0.65	0.66	0.57	0.77	0.29	0.31	0.70	0.59	0.47	0.43	0.53
4MPhA	-	**	1.00	-0.24	0.76	0.72	0.81	0.56	0.64	0.74	0.66	0.67	0.62	0.45	0.68	0.64	0.74
PNOA	-	-	-	1.00	-0.21	0.07	-0.33	0.36	0.27	0.03	-0.03	-0.11	0.19	0.09	-0.15	-0.18	-0.01
PA	**	**	**	-	1.00	0.92	0.95	0.72	0.65	0.93	0.38	0.36	0.75	0.48	0.49	0.39	0.44
3HGA	**	**	**	-	**	1.00	0.85	0.90	0.86	0.97	0.54	0.51	0.86	0.49	0.53	0.44	0.58
MBTCA	**	**	**	-	**	**	1.00	0.66	0.63	0.86	0.43	0.41	0.69	0.40	0.59	0.50	0.53
2MTT	**	**	*	-	**	**	**	1.00	0.95	0.82	0.46	0.46	0.80	0.43	0.39	0.30	0.53
2MET	**	*	*	-	**	**	*	**	1.00	0.78	0.61	0.61	0.70	0.39	0.53	0.48	0.71
2MGA	**	**	**	-	**	**	**	**	**	1.00	0.47	0.44	0.82	0.51	0.44	0.55	
LEV	-	-	**	-	-	*	-	-	-	1.00	0.94	0.60	0.09	0.67	0.66	0.77	
MAN	-	-	**	-	-	-	-	-	*	-	**	1.00	0.61	0.14	0.53	0.71	
GLA	**	**	*	-	**	**	**	**	**	**	*	*	1.00	0.35	0.32	0.23	0.41
tPhA	-	*	-	-	-	-	-	-	-	*	-	-	1.00	0.29	0.18	0.29	
ARA	-	-	**	-	-	*	*	-	*	-	**	*	-	1.00	0.98	0.92	
MAT	-	-	**	-	-	-	-	-	-	**	*	-	-	**	1.00	0.93	
GLU	-	*	**	-	-	*	*	*	**	*	**	**	-	-	**	**	1.00

Tokyo	DHOPA	PhA	4MPhA	PNOA	PA	3HGA	MBTCA	2MTT	2MET	2MGA	LEV	MAN	GLA	tPhA	ARA	MAT	GLU
DHOPA	1.00	0.91	0.81	0.04	0.84	0.97	0.96	0.80	0.87	0.91	0.74	0.74	0.77	0.80	0.35	0.42	0.33
PhA	**	1.00	0.94	0.21	0.84	0.92	0.93	0.80	0.84	0.87	0.70	0.74	0.79	0.82	0.45	0.52	0.42
4MPhA	**	**	1.00	0.28	0.70	0.81	0.85	0.74	0.80	0.82	0.77	0.81	0.79	0.80	0.54	0.60	0.55
PNOA	-	-	-	1.00	0.31	0.13	0.09	0.49	0.36	0.28	0.28	0.36	0.43	0.08	0.23	0.20	0.46
PA	**	**	**	-	1.00	0.93	0.90	0.85	0.85	0.89	0.50	0.56	0.67	0.65	0.45	0.50	0.50
3HGA	**	**	**	-	**	1.00	0.98	0.86	0.90	0.94	0.67	0.70	0.76	0.78	0.42	0.48	0.41
MBTCA	**	**	**	-	**	**	1.00	0.82	0.89	0.93	0.65	0.69	0.72	0.81	0.53	0.60	0.46
2MTT	**	**	**	-	**	**	**	1.00	0.98	0.94	0.71	0.76	0.82	0.74	0.46	0.50	0.54
2MET	**	**	**	-	**	**	**	**	1.00	0.98	0.74	0.78	0.81	0.79	0.56	0.60	0.59
2MGA	**	**	**	-	**	**	**	**	**	1.00	0.73	0.77	0.78	0.80	0.52	0.57	0.57
LEV	**	**	**	-	*	**	**	**	**	**	1.00	0.99	0.92	0.82	0.31	0.32	0.40
MAN	**	**	**	-	*	**	**	**	**	**	**	1.00	0.95	0.85	0.38	0.40	0.47
GLA	**	**	**	-	**	**	**	**	**	**	**	**	1.00	0.83	0.31	0.32	0.40
tPhA	**	**	**	-	**	**	**	**	**	**	**	**	**	1.00	0.51	0.54	0.39
ARA	-	-	*	-	-	-	*	-	*	*	-	-	-	*	1.00	0.98	0.86
MAT	-	*	*	-	-	-	*	*	*	*	-	-	-	*	**	1.00	0.84
GLU	-	-	*	-	*	-	-	*	*	*	-	-	-	-	**	**	1.00

Sapporo	DHOPA	PhA	4MPhA	PNOA	PA	3HGA	MBTCA	2MTT	2MET	2MGA	LEV	MAN	GLA	tPhA	ARA	MAT	GLU
DHOPA	1.00	0.74	0.78	-0.27	0.66	0.73	0.78	0.64	0.62	0.55	0.64	0.72	0.65	0.74	-0.02	-0.02	0.09
PhA	**	1.00	0.85	0.00	0.62	0.56	0.65	0.34	0.28	0.45	0.36	0.42	0.40	0.67	0.24	0.25	0.39
4MPhA	**	**	1.00	-0.01	0.77	0.67	0.80	0.55	0.53	0.57	0.43	0.65	0.48	0.59	0.29	0.34	0.48
PNOA	-	-	-	1.00	-0.28	-0.42	-0.33	-0.37	-0.38	-0.39	-0.33	-0.40	-0.35	-0.49	0.54	0.49	0.45
PA	**	*	**	-	1.00	0.93	0.96	0.76	0.74	0.81	0.45	0.63	0.48	0.75	0.14	0.25	0.41
3HGA	**	*	**	-	**	1.00	0.96	0.86	0.83	0.87	0.51	0.67	0.51	0.79	-0.06	0.03	0.22
MBTCA	**	**	**	-	**	**	1.00	0.81	0.80	0.79	0.55	0.71	0.56	0.78	0.12	0.20	0.36
2MTT	**	-	*	-	**	**	**	1.00	0.99	0.88	0.54	0.69	0.49	0.68	-0.19	-0.14	0.07
2MET	*	-	*	-	**	**	**	**	1.00	0.84	0.54	0.71	0.49	0.63	-0.16	-0.10	0.09
2MGA	*	-	*	-	**	**	**	**	**	1.00	0.27	0.49	0.26	0.66	-0.28	-0.18	0.06
LEV	**	-	-	-	-	*	*	*	*	-	1.00	0.90	0.96	0.76	0.04	-0.01	0.16
MAN	**	-	**	-	**	**	**	**	**	-	**	1.00	0.90	0.72	0.06	0.05	0.23
GLA	**	-	-	-	-	*	*	-	-	-	**	**	1.00	0.71	0.11	0.05	0.17
tPhA	**	**	*	-	**	**	**	**	**	**	**	**	**	1.00	-0.15	-0.11	0.15
ARA	-	-	-	*	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	1.00	0.97	0.84
MAT	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	**	1.00	0.88
GLU	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	**	**	1.00

**Table S4.** Correlations between PO and SOA tracers from all sampling sites during (a) spring ( $n = 47$ ) and (b) summer ( $n = 49$ ) (\* $p < 0.05$ , \*\* $p < 0.01$ ).

## (a) Spring

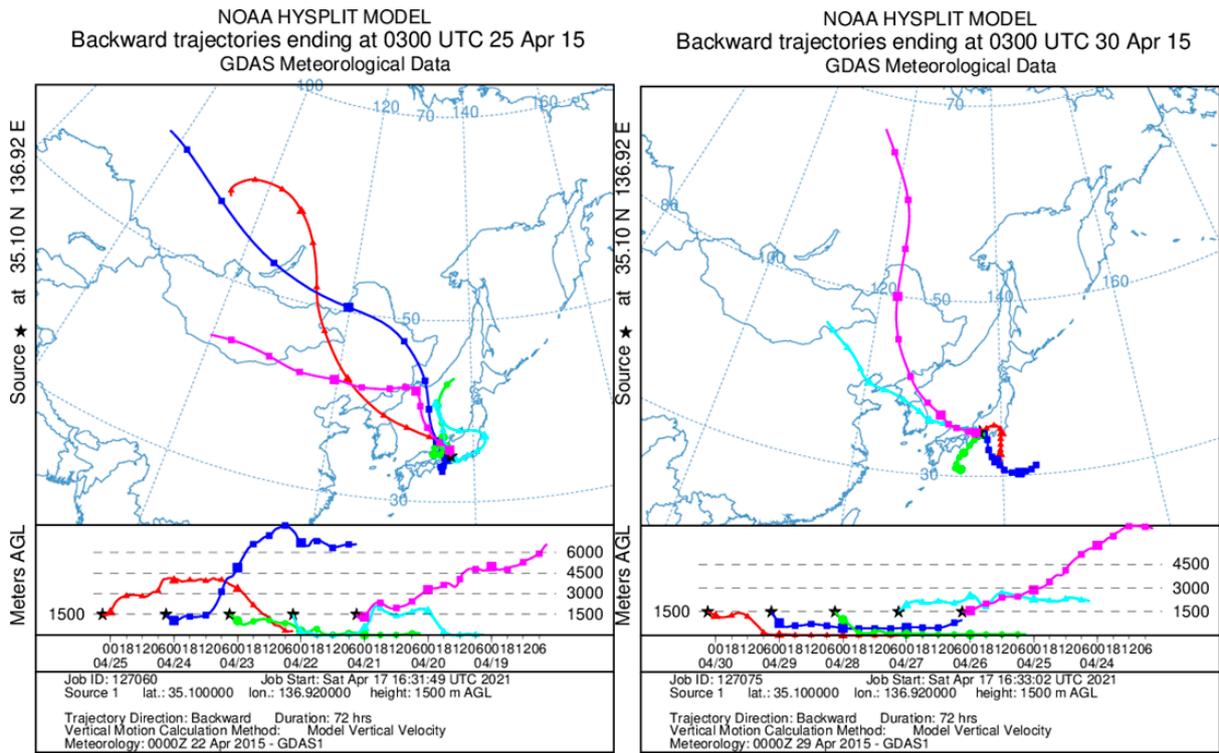
PO	DHOPA	PhA	4MPhA	PNOA	PA	3HGA	MBTCA	2MTT	2MET	2MGA
All sites	0.56 **	0.39 **	0.53 **	0.29 *	0.32 *	0.64 **	0.65 **	0.26	0.23	0.40 **

## (b) Summer

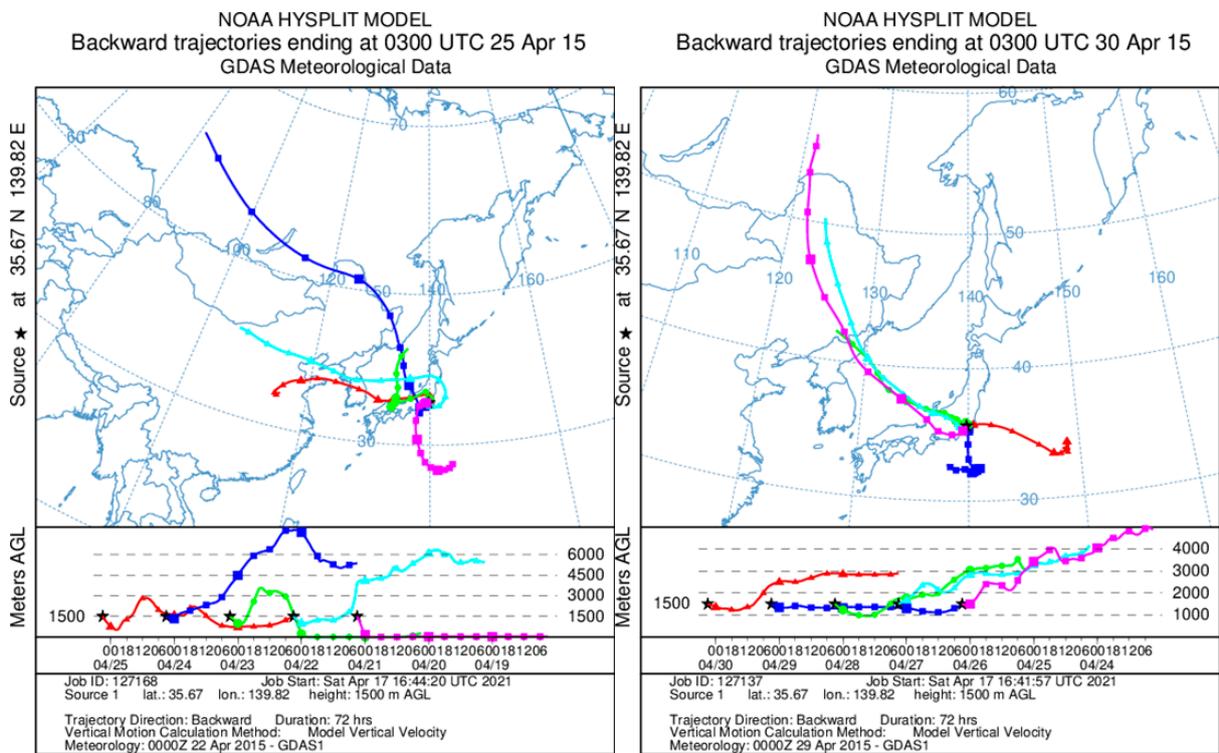
PO	DHOPA	PhA	4MPhA	PNOA	PA	3HGA	MBTCA	2MTT	2MET	2MGA
All sites	0.84 **	0.87 **	0.80 **	0.29 **	0.80 **	0.87 **	0.85 **	0.51 **	0.51 **	0.68 **



(c) Nagoya



(d) Tokyo



(e) Sapporo

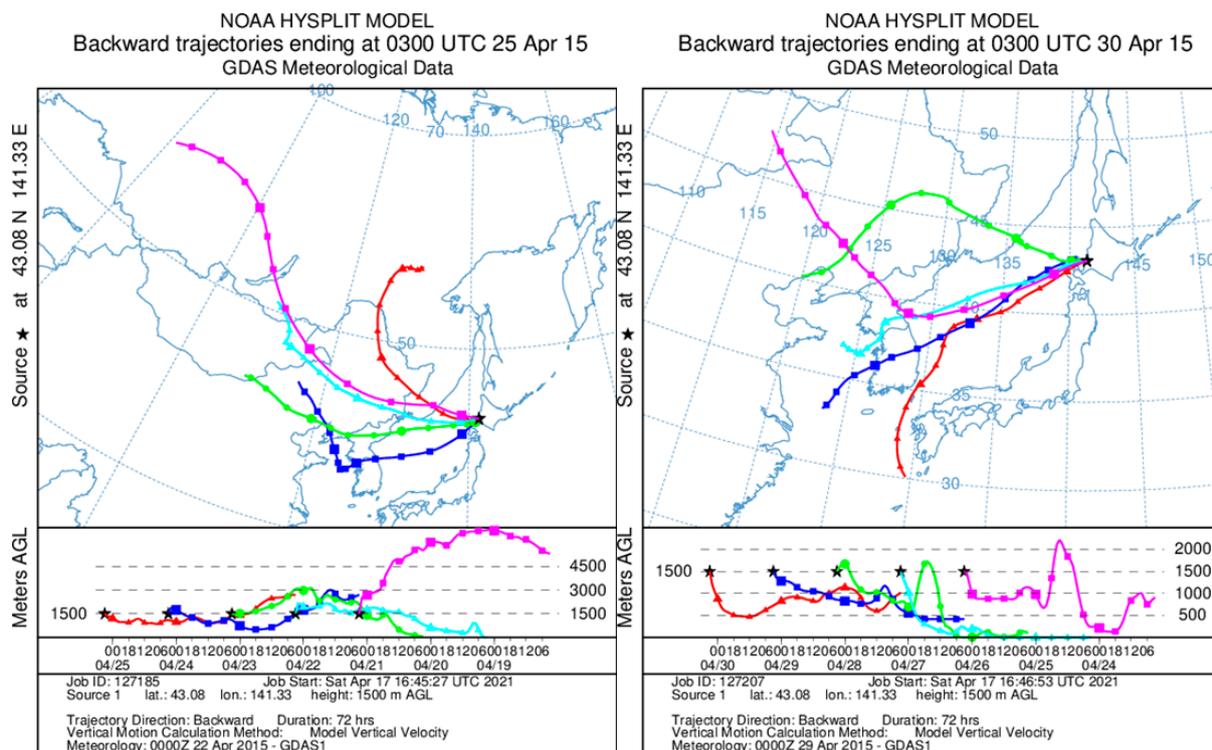
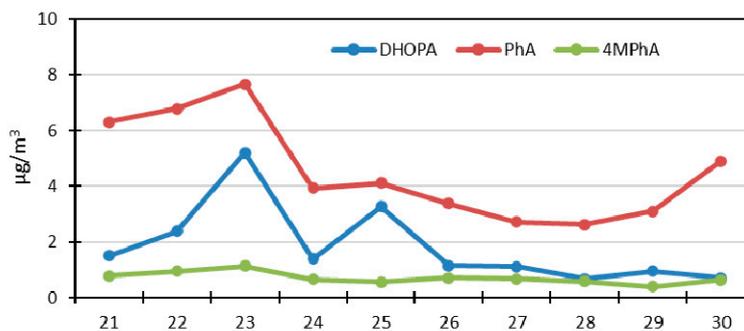
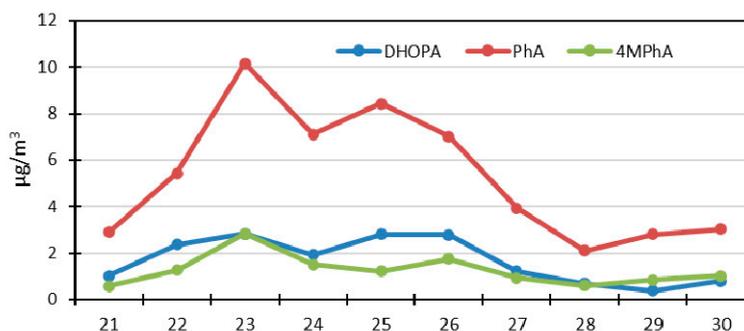


Figure S1. 72-h backward trajectories at (a) Dazaifu, (b) Osaka, (c) Nagoya, (d) Tokyo, and (e) Sapporo from April 21<sup>st</sup> to April 30<sup>th</sup>, 2015.

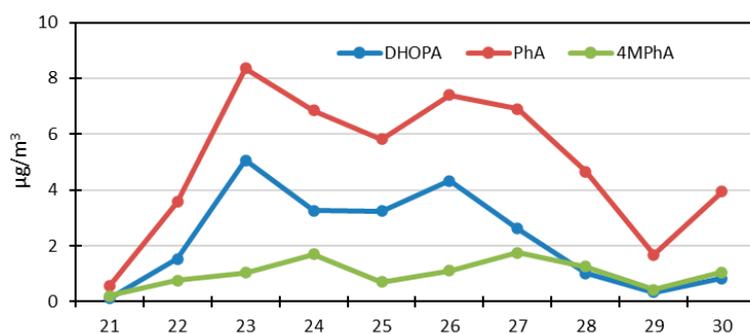
(a) Dazaifu



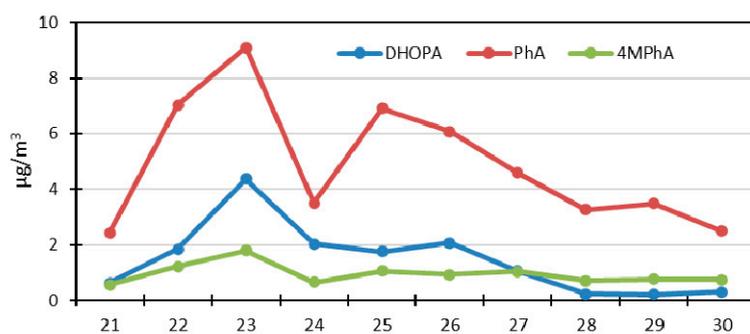
(b) Osaka



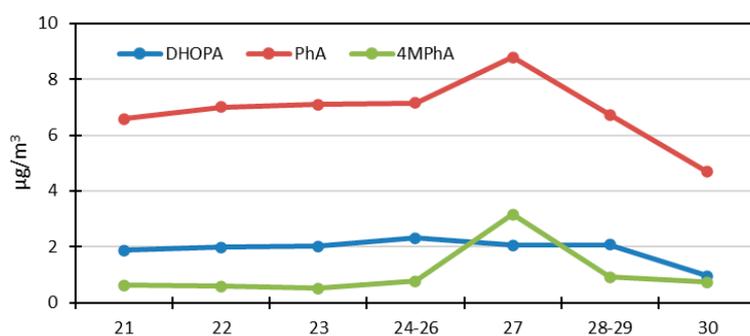
(c) Nagoya



(d) Tokyo



(e) Sapporo



**Figure S2.** Variations in ASOA tracers (DHOPA, phthalic acid (PhA), and 4-methylphthalic acid (4MPHA)) at (a) Dazaifu, (b) Osaka, (c) Nagoya, (d) Tokyo, and (e) Sapporo from April 21<sup>st</sup> to April 30<sup>th</sup>, 2015.