[Jpn. J. Toxicol. Environ. Health]
[衛 生 化 学]
40 (5) 454-460 (1994)]

環境中成分濃度の長期変動の解析に関する研究
—季節変動を伴う長期変動を解析するための時系列分析の開発—

能村京子, 宮崎元一

金沢大学薬学部

Analysis of Long-term Variations in Concentrations of Environmental Components
—Development of Time Series Analysis for Long-term Variation with Seasonal Variation—

KYOKO NOMURA and MOTOICHI MIYAZAKI

Faculty of Pharmaceutical Sciences, Kanazawa University, Takara-machi 13-1,
Kanazawa 920, Japan

(Received May 13, 1994)

We developed a new time series analysis [TSA] for long-term variation with seasonal variation in concentrations of environmental components. The regression curve with two terms is used in this TSA. One term means long-term tendency of an increase or a decrease in concentration of the component. Another gives numerical information about seasonal variation, *i.e.* time when the highest concentration is observed in a year and regularity on seasonal cycle.

The proposed TSA was successfully applied for characterizing the long-term variation in the amount of soluble and insoluble compounds in deposit samples collected for 12 years in Kanazawa. Variations in inorganic components in deposit samples were divided into three classes and five groups. This classification was in good agreement with that obtained by the factor analysis [FA]. Our TSA seemed to be helpful in characterizing the factors in FA.

Keywords — time series analysis; seasonal variation; deposit; factor analysis; environment

緒 言

ある物質の環境濃度の測定値から, その物質の環境動態を解明するため様々な解析法が用いられる.

そして, その解析法の多くは, 対象物質の(1)他物質との相互関係や(2)時間経過による変化の傾向を見いだすことを目標にしている.

(1)他物質との相互関係を見いだす解析法として繁用されるのは, 個々の物質間の直線回帰による相関係数である. この方法は, 物質間の相関の有無を明らかにする¹⁾だけでなく, 発生源の推定²⁾や環境中での反応³⁾を示唆するなど有用である. また, 多数の物質間の複雑な相互関係を分析する方法として, 主成分分析^{4,5)}や因子分析,⁶⁾重回帰分析⁴⁾などの多変量解析法が用いられている.

一方, (2)時間経過による変化の傾向を明らかにす

る解析法として, 平均値の比較や比率の検定⁷⁾が挙げられるが, 最も適用範囲が広いのは時系列分析^{6,8)}であろう. 時系列分析は, 物質の濃度測定時 (又は試料採取時) を独立変数 t とし, t の時のその物質の濃度を従属変数 $C(t)$ で表すとき, 最小自乗法などによって回帰式 (多くは $C(t) = at + b$ で表される一次式) を求める方法で, 傾き a の比較による採取地の分類や, t の代入による将来予測⁹⁾ など得られる情報は多様である.

ところで, 環境中物質によっては, 地球規模の気象学的変化や人間の産業活動などを原因とする長期にわたる増加や減少だけでなく, 例年一定の時期に極大や極小を生じる, いわゆる季節変動が観察されるものもある. この季節変動が, その特徴 (一年間で極大または極小を示す時期) や反復の規則性から定量的に比較評価できれば, 物質間の変化の類似性

など、これまでの時系列分析に比べより多くの情報を得ることが可能である。

そこで、今回著者らは環境中の成分の長期変動における増減の傾向を解析するこれまでの時系列分析の手法に改良を加え、新たに季節変動も併せて解析することを試みた。すなわち、長期にわたる増減と季節変動を併せて表す時系列分析のための回帰式(以降、長期変動曲線)を構築した。また、構築した長期変動曲線を用いて長期間データの時系列分析を行い、さらに因子分析結果との比較や因子分析の解釈に本法を適用し、有用性を見いだしたので報告する。

実 験

1. 降下煤塵試料の採取 衛生試験法⁹⁾に準拠し、英国規格降下煤塵計(口径 30.5 cm, ポリエチレン製)で、雨水を含む降下煤塵を一ヶ月毎ポリエチレン製瓶中に採取した(防藻剤は無添加)。採取地点は、日本海海岸線より約 9 km 内陸部の金沢大学薬学部(石川県金沢市宝町)屋上(地上約 14 m)で、付近は主として住宅街であり、大きな工場などの人為的大気汚染物を多量に放出する発生源はない。

2. 試料の処理及び測定 採取した試料は液量を測定後、メンブランフィルター(孔径 0.45 μm)で水溶性と(水)不溶性物質に分画した。水溶性分画の一部を蒸発乾固し、重量を測定して水溶性物質総量を求めた。不溶性分画はフィルター及び残渣を 110°C で乾燥、恒量とし、その重量からフィルター分を差し引いて不溶性物質総量を求めた。水溶性分画中の金属は、塩酸を添加し原子吸光光度法(AAS)及び蛍光光度法で、陰イオンは HPLC 法^{10,11)}で測定した。不溶性分画中の金属は、約 800°C の電気炉でフィルターごと灰化し、その残渣を硝酸に溶解して、水溶性分画と同様に測定した。

なお、解析は 1979 年 1 月から 1990 年 12 月の 12 年間に採取された試料の全測定データに基づいて行った。各成分のデータ数は、悪天候などによる試料の欠損のため、水溶性分画中の成分が 143、不溶性分画中の成分が 140 である。

3. 解析法の構築 時系列分析によって、環境中成分の長期変動における増減の傾向を解析するだけでなく、季節変動をその特徴(一年間で極大または極小を示す時期)や反復の規則性から定量的に評価比較するため、季節変動を表す項を含む長期変動曲線を構築した。本稿では、測定値全体のばらつきを二つの要因と誤差によるものに分割して比較する

二元配置分散分析の考え方¹²⁾を応用した。すなわち、環境中成分の測定値(y_t)は、その地点の長期にわたる増加または減少(要因 1, $g(t)$)、季節変動(要因 2, $h(t)$)、誤差(e_t)によるものに分けることができるかと仮定した。

$$y_t = g(t) + h(t) + e_t \quad \dots\dots\dots (1)$$

また、測定値より誤差を除いた値を長期変動 $f(t)$ とおき、(1)式より、

$$f(t) = g(t) + h(t) \quad \dots\dots\dots (2)$$

さらに季節変動を、周期性を持ち、年に各々 1 回ずつ極大・極小を生じる変動と定義して余弦曲線で近似し、

$$h(t) = \underline{h}(t) \cdot \cos(t - m) \quad (m: \text{定数}) \quad \dots\dots\dots (3)$$

これを(2)式に代入して(4)式を得た。

$$f(t) = g(t) + \underline{h}(t) \cdot \cos(t - m) \quad (m: \text{定数}) \quad \dots\dots\dots (4)$$

(4)式の各項の値は、その物質の試料採取時又は濃度測定時を示す独立変数 t のもとに従属の関係にある。

この $g(t)$ 及び $\underline{h}(t)$ の関数形は、対象成分の発生量や輸送などの複合的影響を受けるため普遍的近似式の規定は困難である。しかし、長期的増減の傾向を表す $g(t)$ は、数年から数十年間といった比較的短い期間の変動を対象とする場合、一次式、すなわち(5)式で近似することが可能である。

$$g(t) = at + b \quad (a, b: \text{定数}) \quad \dots\dots\dots (5)$$

そこで、 $g(t)$ は、時系列データを最小自乗法により(5)式へ回帰し求めた。ただし、得られた相関係数に関して 1% の有意水準で検定を行い¹²⁾ 相関があるとは言えない場合、平均値を $g(t)$ とした。

一方、季節変動の振幅 $\underline{h}(t)$ には、長期的増減によらず一定のとき、

$$\underline{h}(t) = c \quad (c: \text{定数}) \quad \dots\dots\dots (6)$$

長期的増減に比例して変動するとき、

$$\underline{h}(t) = c \cdot g(t) \quad (c: \text{定数}) \quad \dots\dots\dots (7)$$

などが仮定される。このいずれを近似式として使用するかは対象毎の検討が必要である。本稿では降下煤塵試料の 15 測定項目について長期変動曲線を用いた時系列分析を行った。これら各項目についてその年平均值と標準偏差間の関係を調べたところ、いずれの成分でも強い一次相関($\gamma = 0.89 \pm 0.06$)が見られた。そこで、 $h(t)$ には(3)式に(5)式及び(7)式を代入した(8)式を用いることとした。

$$h(t) = c \cdot (at + b) \cdot \cos(t - m) \quad \dots\dots\dots (8)$$

更に、この(8)式と(5)式を(2)式に代入して(9)式を得た。

$$f(t) = (at+b)\{1+c\cdot\cos(t-m)\} \quad \cdots\cdots(9)$$

ところで、季節変動を解析する場合、一年間で極大・極小となる時期を推定したり、その変動の形が数年から数十年にわたってほぼ一定であるかを検討するためには、一年当たりの測定値は最低でも季節毎の4点が必要である。本稿では、一ヶ月毎に採取される降下煤塵試料を解析対象としているため、一年当たりの測定値を12個に固定することとした。採取時は、まず採取した期間を考慮するため、その期間の中間の日(D)を用い、採取した月(M)を以下のように補正する。

$$M' = M + \frac{D-1}{M \text{ 月の全日数}} \quad \cdots\cdots(10)$$

この補正値を分子、12を分母とする分数に採取した年(Y)を加え、独立変数 t とした。

$$t = Y + \frac{M'}{12} \quad \cdots\cdots(11)$$

これより(8)式は、

$$h(t) = c \cdot (at+b) \cdot \cos \frac{\pi}{6} (12t-m') \quad (m': \text{定数}) \quad \cdots\cdots(12)$$

(9)式は、

$$f(t) = (at+b)\{1+c\cdot\cos \frac{\pi}{6} (12t-m')\} \quad (m': \text{定数}) \quad \cdots\cdots(13)$$

にそれぞれ変換される。降下煤塵試料の各測定項目の時系列分析式として最終的に得られた(9)式は、 $g(t) = at+b$ を振幅の軸とする振り幅 $c(at+b)$ 、周期一年の周期変動(=季節変動)を表す。また、 m' の値は極大となる月に対応し($1 \leq m' < 13$)、必然的に $m'+6$ の値は極小となる月に対応する。

4. 時系列式の検定 長期にわたる増減の傾向を表す式 $g(t)$ は、前述のように(5)式に回帰したときの相関係数によって検定した。

一方、測定値 yt から $g(t)$ の値を引くことで、各測定値から長期的増減の傾向を除くと、(1)式は、

$$yt - g(t) = h(t) + et \quad \cdots\cdots(14)$$

となる。(14)式の左辺のばらつきは、右辺より季節変動と誤差によるものに分けることができるので、季節変動を表す式 $h(t)$ は、一元配置分散分析によって検定を行った。すなわち、季節変動による分散 V_h (自由度11)と誤差分散 V_e (自由度 $N-12$)の比 F_{ca1} は、自由度(11, $N-12$)のF分布に従う。なお、有意水準はいずれも1%とした。

$$V_h = \frac{\sum\{h(t)\}^2}{11} = \frac{\sum\{f(t) - g(t)\}^2}{11} \quad \cdots\cdots(15)$$

$$V_e = \frac{\sum(et)^2}{N-12} = \frac{\sum\{yt - f(t)\}^2}{N-12}$$

(N : 各測定項目のデータ数) $\cdots\cdots(16)$

$$F_{ca1} = V_h / V_e \quad \cdots\cdots(17)$$

結果及び考察

1. 長期変動曲線による時系列分析

1-1. 水溶性及び不溶性物質降下量 一ヶ月(30日)間に、1 km² 当たりに降下した水溶性及び不溶性物質の和として定義される降下煤塵量は、一定地域の大気汚染度の定量的及び定性的判断の資料となることから、都市の大気汚染の調査においてその概要を知る目的で測定されることが比較的多い。¹³⁾ 本採取地域でも降下煤塵量についていくつかの検討を行い、増減の傾向、季節変動を明らかにし、^{2,14,15)} さらに、水溶性分画中の無機成分相互の関係から、由来や季節変動に及ぼす因子を検討している。¹⁴⁾ そこで、まず水溶性及び不溶性物質の各月間降下量について、本稿で構築した長期変動曲線による時系列分析を試み、その有用性を検討した。

水溶性及び不溶性物質降下量の経時変化と、最小自乗法により得られた長期変動曲線 $f(t)$ をFig. 1に示した。水溶性物質の $g(t)$ は、前述の方法で検定を行ったところ(5)式が棄却されたことから、長期にわたる顕著な増減はないと判定された。また $F_{ca1} = 7.07$ は、有意水準1%、自由度(11, 143-12)のF分布表の値2.39より大きく、水溶性物質の季節変動は非常に規則的であることが示された。また、極大を示す時期は m' の値より12月下旬、極小を示す時期はその半年後の6月下旬であることが推定された。しかし、Fig. 1(A)でも明らかなように、極小を示す時期の測定値に比べ極大を示す時期の測定値は振幅の軸(平均値)から著しく外れている。そのため、最小自乗法によって得られた長期変動曲線の位相は極大を示す時期の測定値の影響を強く受ける。すなわち、長期変動曲線では極大を示す時期(m' の値)の方がその成分の季節変動を反映した指標と考えられる。

一方、不溶性物質では、 $g(t)$ の傾き a が負であったので、わずかではあるが減少傾向にあることが示された。 $h(t)$ は $F_{ca1} = 2.24$ より有意水準1%で棄却され、2月下旬に極大を迎える不溶性物質の季節変動は水溶性物質ほど規則的でないことが明らかとなった。

以上のように、長期変動曲線を用いて時系列分析を行うことにより、長期にわたる増減の傾向、季節

Fig. 1. Variation of Soluble (A) and Insoluble (B) Fraction Compounds from Jan. 1979 to Dec. 1990 in Kanazawa

(A), $f(t) = 4.16 \{1 + 0.82 \cdot \cos \frac{\pi}{6} (12t - 12.7)\}$; (B), $f(t) = (-0.253t + 155) \{1 + 0.55 \cdot \cos \frac{\pi}{6} (12t - 2.6)\}$.

変動の水溶性及び不溶性物質質量間の相違点を数値あるいは数式によって定量的に比較することができた。

1-2. 無機成分量 次に、解析の対象を降下煤塵試料中の無機成分(水溶性 Fe, Zn, Mn, Ca, Mg, Na, Cl^- , SO_4^{2-} , 不溶性 Fe, Zn, Mn, Mg, Na)に拡張し時系列分析の結果の相違点だけでなく、類似点にも着目して成分の分類を試みた。なお、不溶性 Ca については定量時、検出下限を下回った試料が多くを占めたため解析より除外した。

Table I には各成分の長期変動曲線の係数を分散比の値が大きい (= 季節変動が規則的) ものから順に示した。水溶性 Cl^- , Na, Mg, Ca, SO_4^{2-} はいずれも $g(t)$ の一次式の棄却より長期にわたる増減の傾向は認められず、分散比の値が大きいことより、

TABLE I. Values of Parameters Obtained by Time Series Analysis of Deposited Inorganic Components

Component	$g(t)$		$h(t)$		
	a	b	c	m'	F_{cal}
Soluble					
Cl^-	—	1 290	1.3	12.8	10.52
Na	—	852	1.3	12.8	10.00
Mg	—	107	1.2	12.8	8.92
Ca	—	102	0.63	1.8	5.46
SO_4^{2-}	—	703	1.1	1.4	2.63
Fe	-2.89	5 750	0.82	12.8	1.86
Mn	-0.194	388	0.28	12.8	0.34
Zn	-0.621	1 240	0.12	12.7	0.07
Insoluble					
Mg	-0.811	155	0.55	2.6	2.93
Mn	-0.058	115	0.58	3.5	1.75
Na	—	2.20	0.49	2.3	1.52
Zn	-0.042	83.8	0.51	3.3	0.97
Fe	-5.27	10 500	0.55	2.6	0.88

$g(t)$ was defined as equation (5) in text. If equation (5) was rejected at significant level of 0.01, following equation was used: $g(t) = b$, where b was average.

$h(t)$ was defined as equations (12) in text.

F_{cal} was calculated according to equations (15)–(17) in text.

規則的季節変動を示すという特徴を有した。これ等のイオンはいずれも海水中の多量成分であり、¹⁶⁾ 前述のような特徴は発生的大部分が自然発生であること、すなわち冬季に多い日本海側からの北西の季節風によって運ばれた海塩粒子に由来することを示唆した。さらに、これら 5 成分は極大を迎える時期 m' により Cl^- , Na, Mg (12 月下旬) と Ca, SO_4^{2-} (1 月中旬から下旬) に分けられる。これは、ほぼ 100% 海塩由来である前者に対し、後者には他の発生源が存在し¹³⁾ その季節変動の複合的影響を反映したためであろうと推定された。

一方、不溶性 Na を除く残りの成分、水溶性 Fe, Mn, Zn, 不溶性 Mg, Mn, Zn, Fe はいずれも $g(t)$ の傾き a が負であることより長期的には減少傾向にあり、不溶性 Mg 以外は $h(t)$ の棄却より規則的な季節変動が見られないと判断された。しかし、 $h(t)$ が棄却されたにもかかわらず水溶性 Fe, Mn, Zn は 12 月、不溶性 Mg, Mn, Na, Zn, Fe は 2–3 月に極大となり顕著な相違が確認された。その理由として、一般に、粒子状物質中の各元素に比べて土壌中の元素は難溶性であること、¹⁷⁾ Mg, Mn, Na, Fe は土壌中の多量成分であること、¹⁸⁾ 不溶性 Mg, Mn, Na, Zn, Fe の極大となる時期などから後者群は越

冬汚泥（タイヤに付着して持ち込まれた土壌などが氷雪と混じって春まで道路端に残存したもの）¹⁹⁾が乾燥して生じた土壌粉塵の影響を受けていることが考えられる。なお、これ等の減少傾向は、融雪装置の普及により路面が洗浄され、越冬汚泥自体が減少したためと推測している。

以上のように、時系列分析結果を比較することによりその変化の特徴から、降下煤塵試料中の無機成分は①水溶性 Cl^- , Na, Mg, ①' 水溶性 Ca, SO_4^{2-} , ②水溶性 Fe, Mn, Zn, ③不溶性 Mn, Zn, Fe, ③' 不溶性 Mg, Na の3群5種への分類が可能であった。また、それらの構成成分より、海塩・越冬汚泥など由来の一部が推定された。

2. 有用性の検討

2-1. 因子分析結果との比較 因子分析は、観測される各変数 $y_1, \dots, y_p$ が複数個の変数に共通な少数の要因（共通因子, $f_1, \dots, f_m$ ）とそれぞれの変数に固有な要因（独立因子, e_j ）の和に分解されるとする(13)式のようなモデルを仮定し、潜在的な変数である共通因子を経由してデータの簡潔な記述を行い、多数の測定項目間の相関関係を浮き彫りにする解析手法である。²⁰⁾

$$y_j = \lambda_{j1}f_1 + \lambda_{j2}f_2 + \dots + \lambda_{jm}f_m + e_j \quad (j=1, \dots, p) \quad (18)$$

ここでは、長期にわたる増減の傾向や季節変動も共通因子として比較可能な因子分析によって降下煤塵試料中の無機成分間の分類を行い、長期変動曲線を用いた時系列分析の結果との比較を行った。なお、因子分析の演算は、主因子法により得られた因子負荷量行列に対して、バリマックス回転を施すプログラムにより行った。²⁰⁾

因子分析で抽出された三因子により各測定値の変動の約60%が説明され、因子数を増やしてもその率は顕著に増加しなかった。そこで、変動の説明率（寄与）の高いものから第一、第二、第三因子と名付け第三因子までを用いて解析をおこなった。

各因子と各成分量の相関関係を明らかにするため、各因子に対する因子負荷量をプロットし Fig. 2 に示した。これより各成分量は破線で囲んだ3群5種に大別できた。すなわち、第一因子と高相関の群は水溶性 Cl^- , Na, Mg, 続いて水溶性 SO_4^{2-} , Ca, 第三因子と高相関の群は水溶性 Mn, Fe, Zn で構成された。不溶性成分は、いずれの因子とも相関が低く図の中央に集中したが、不溶性 Mn, Fe, Zn は第二因子と高相関であった。

このように、降下煤塵試料中の無機成分間の分類

Fig. 2. Factor Loadings of Each Component in Deposit Samples

Components in the insoluble fraction were underlined.

を目的としたとき、因子分析と長期変動曲線を用いた時系列分析は同様の結果を得ることができ、時系列分析の有用性が確認された。

2-2. 因子分析における因子の解釈への適用 因子分析では各因子の因子得点の経時変化からその特徴をつかむことができる⁹⁾が、その解釈は解析者の経験や直感に頼る部分が多く、解析者による解析結果の相違が危惧される。そこで、因子得点の経時変化について長期変動曲線による時系列分析を行い客観的解釈を試みた。結果を Table II に示す。ただし、第一因子は $g(t)=0$ となるため、長期変動曲線には(3)式または(4)式に(6)式を代入し最終的に得られる(19)式を用いた。

$$f(t) = h(t) = c \cdot \cos \frac{\pi}{6} (12t - m') \quad (19)$$

$g(t)$ の推定式や分散比 F_{cal} から、第一因子は長期にわたって顕著な増減のない、規則的な季節変動（12月下旬に極大）を示す因子、第二因子は長期的減少を示す不規則な季節変動（3月上旬に極大）因子、第三因子は季節変動を示さない長期的減少の因子であることが読み取れた。これを 1-2. 無機成分量の時系列分析の結果と比較したところ、第一因子は第一群の①、すなわち季節風によって運ばれる海塩の長期変動と、第二因子は第三群の③、すなわち越冬汚泥の長期変動とそれぞれ一致した特徴を有することが明らかとなり、各因子がどのような発生源からの影響を示す因子であるかが推定された。

TABLE II. Values of Parameters Obtained by Time Series Analysis of Factor Scores

Factor	$g(t)$		$h(t)$		
	a	b	c	m'	F_{cal}
1	—	0	0.95	12.8	10.81
2	-0.078	154	0.37	3.1	1.11
3	-0.076	151	0.18	12.6	0.29

$g(t)$ was defined as equation (5) in text. If equation (5) was rejected at significant level of 0.01, following equation was used: $g(t)=b$, where b was average.

$h(t)$ was defined as equation (19) with factor 1 and equation (12) with factors 2 and 3 in text.

F_{cal} was calculated according to equations (15)–(17) in text.

このように、時系列分析を行うことによって、これまでの直感による解釈では得ることのできなかった具体的な極大時期の推定や季節変動の規則性に対する数値による評価が可能となった。また、第二因子における減少傾向のように目視では判断の困難な微細な変動傾向も明らかにすることができた。よって、長期変動曲線を用いた時系列分析は、因子分析のような他解析法との組み合わせにより、より詳細で客観的な解釈を可能にすることが示唆された。

ま と め

季節変化を併う環境中成分濃度の長期変動を時系列分析によって解析するため、長期にわたる増減と季節変動を併せて表す時系列分析のための回帰式、長期変動曲線を構築した。

これを1979年1月から1990年12月の12年間、石川県金沢市において採取された降下煤塵試料の測定データの時系列分析に適用し、以下の結果を得た。

1) 水溶性及び不溶性物質降下量の長期変動を比較した結果、水溶性物質降下量は長期的増減が見られず12月下旬に極大となる非常に規則的な季節変動を示す一方、不溶性物質降下量はわずかだが長期的減少傾向にあり、2月下旬頃に極大を迎える少々不規則な季節変動を示し、両者は顕著に異なることが明らかとなった。

2) 時系列分析結果の比較により、降下煤塵試料中の無機成分は、海塩、越冬汚泥、その他に由来すると推定される群に、更に長期的増減の傾向や極大となる月の微細な相違から前者の2群を各2種ずつに細分し計3群5種に分類された。また、各群及び種の構成成分は、因子分析結果に一致した。

3) さらに、本法により因子分析の因子特性の解釈を行い、第一因子が季節風によって運ばれる海塩の、第二因子が越冬汚泥の長期変動とそれぞれ一致した特徴を有することが明らかとなった。

以上のように、長期変動曲線を用いた時系列分析は環境中成分の長期変動の定量的評価法として有用で、各成分の長期変動の類似点や相違点を明瞭に比較することができた。

本研究の一部は、第21回北陸公衆衛生学会(1993年11月、福井)及び日本薬学会第114年会(1994年3月、東京)において発表した。

謝辞 本研究に際し、御教示、御討論いただいた金沢大学薬学部 早川和一助教授、金沢大学大学院自然科学研究科 木津良一助手、国立公衆衛生院 小林淳博士、新技術事業団 寺井規子修士に心より感謝いたします。

引 用 文 献

- 1) 渡辺紀元, 岸 政美, 早川 修, 公害と対策, **23**, 29 (1987).
- 2) M. Miyazaki, N. Okubo, N. Wakao, K. Matsuzaki, R. Nakamura, *Eisei Kagaku*, **28**, 164 (1982).
- 3) 平井英二, 宮崎元一, 丁子哲治, 北村守次, 大久保登, 中川千枝, F.J. Ecker, 衛生化学, **36**, 480 (1990).
- 4) 松本光弘, 板野龍光, 大気汚染学会誌, **20**, 12 (1985).
- 5) 北村守次, 石川県衛生公害研究所年報, **26**, 89 (1989).
- 6) 前田 泉, 小田淳子, 市川省吾, 森 忠繁, 大気汚染学会誌, **27**, 304 (1992).
- 7) 宮本 潤, 公害と対策, **29**, 331 (1993); 宮本 潤, 公害と対策, **29**, 645 (1993).
- 8) 宮本 潤, 公害と対策, **29**, 1251 (1993).
- 9) 日本薬学会編, “衛生試験法・注解1980,” 金原出版, 東京, 1980, pp.1004–1006.
- 10) 田辺信三, 戸井田敏彦, 今成登志男, 大久保登, 宮崎元一, 分析化学, **29**, 543 (1980).
- 11) K. Hayakawa, K. Nomura, M. Miyazaki, *Anal. Sci.*, **8**, 111 (1992).
- 12) 関口愷夫, 篠原靖忠, 小森尚志, “基礎数理統計,” 共立出版, 東京, 1988.
- 13) 大気汚染研究全国協議会第二小委員会編, “大気汚染ハンドブック(1),” コロナ社, 東京, 1971.
- 14) 大久保登, 宮崎元一, 北陸公衛誌, **14**, 54 (1987).

- 15) 石川県保健環境センター編, “平成4年度環境大気調査報告書,” 1993, p.54.
- 16) 重松恒信, 日本海水学会誌, **21**, 227 (1968).
- 17) 杉前昭好, 分析化学, **29**, 184 (1980).
- 18) 日本化学会 (編), “土の化学 [季刊化学総説 No. 4],” 学会出版センター, 東京, 1989.
- 19) 小笠原義章, 公害と対策, **20**, 1180 (1984).
- 20) 柳井晴夫, 高木廣文 (編), “多変量解析ハンドブック,” 現代数学社, 京都, 1991.