北九州市周辺海域底質中の多環芳香族炭化水素の濃度分布と特徴

花田喜文, 石川精一, 末田新太郎, 城戸浩三

北九州市環境衛生研究所

The Characteristics and Distribution of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Sea Sediments in Kitakyushu Area

YOSHIFUMI HANADA, SEIICHI ISHIKAWA, SHINTARO SUETA and KOZO KIDO

*Kitakyushu Municipal Institute of Environmental Health Sciences,
Shin-ike 1-2-1, Tobata-ku, Kitakyushu 804, Japan*

(Received June 8, 1989)

Fourteen polycyclic aromatic hydrocarbons (PAH) in sea and seashore sediments in the Kitakyushu district were determined by GC-MS. The similarity and characteristics among the sea areas or sampling sites were defined by the multivariate analysis of PAH composition.

The concentration of total PAH (T · PAH) in the sediments of Dokai Bay, Kanmon Strait, Sea of Suo and the seashore along Sea of Suo were 5.57—36.6, 6.00, 0.522—1.80 and 0.083—0.796 $\mu\text{g/g} \cdot \text{dry weight}$, respectively. Fourteen PAH were detected at every sites and the level of benzo[b]fluoranthene was the highest of all PAH at every sites except a site of the seashore. The level of benzo[a]pyrene+benzo[e]pyrene concentration in the 3 sea areas was higher than that in Tokyo Bay. The fact would be characteristic of the industrial city which had developed with coal and petroleum.

In the mouth of Dokai Bay, the value of T · PAH was the highest. This cause was assumed to be an inflow of coke oven effluent by the cluster analysis.

The level of T · PAH concentration in the sea of Suo was the lowest. The ratio of lower molecular weight (178—228) PAH in the northeastern site were relatively higher than that of the other site. The value of T · PAH in the seashore was lower than that in the sea of Suo. By considering these characteristics, it would be assumed that the influence from Kitakyushu side was less than that from the other sides in this sea area. This was confirmed by the principal component analysis.

The interpretation of the results obtained from the multivariate analysis of PAH patterns made it possible to define the characteristics of PAH accumulated in the sea sediments.

Keywords — polycyclic aromatic hydrocarbon; sea sediment; GC-MS; cluster analysis; principal component analysis

緒 言

多環芳香族炭化水素 (PAH) は大部分化石燃料の燃焼過程において生成し、環境中に放出されるため気圏、水圏を含む環境中に広く分布している。¹⁾ また、化石燃料自体にも含まれており工場排水や都市下水等の種々の排水からも検出されている。²⁾ そのため、環境中では人間活動の激しい市街地や工場地

帯で多く検出されている。³⁾ 排出された PAH は河川や海へ流入し底質に移行し蓄積される。したがって底質中の PAH の分析は、その海域における汚染度の指標となり得るものと考えられる。北九州市は明治以来、石炭、石油を用いた重化学工業を中心として発達してきた工業都市であることから、化石燃料による汚染が進行しているものと思われる。そこで著者らは、半閉鎖性海域である洞海湾、潮流の激

しい関門海峡、堆積作用の強い周防灘の三様の海域について、化石燃料由来の汚染状況の実態を把握する目的で、海域底質中のPAHの定量を行った。また、底質中のPAH組成を多変量解析することによって得た結果から、地点間の類似性及び特徴づけを行い地域の特性を調べた。分析したPAHは底質中から確認されたものの中から比較的多量に検出されたフェナントレン (Phe)、アントラセン (An)、フルオランテン (Fl), ピレン (Py), ベンゾ [a] フレオレン (B [a] F), ベンゾ [b] フレオレン (B [b] F), ベンゾ [a] アントラセン (B [a] A), クリセン (Ch)+トリフェニレン (Tr), ベンゾ [b] フルオランテン (B [b] Fl), ベンゾ [e] ピレン (B [e] P), ベンゾ [a] ピレン (B [a] P), ペリレン (Per), インデノ [1,2,3-cd] ピレン (Ind), ベンゾ [ghi] ペリレン (B [ghi] p) の14種である。

調査及び実験方法

1. 調査地点及び試料 調査地点を Fig. 1 に示した。

調査は近年清浄化されつつあるが、まだ環境基準 (A ランク: COD が 2 ppm 以下) を達成していない周防灘海域を中心に行った。周防灘に関しては陸からの影響を調べるため沿岸部の底質についても調査した。試料の採取は 1988 年 3—10 月にかけて行った。沿岸部は移植ごてを用い表層 (10 cm) を採り、海域については Ekman-Berge 採泥器を用いた。採取した試料は冷暗所に保存した後分析に使用した。

2. 試薬 Phe, An, Fl, Py, B[a]P, Per:

関東化学社製を, B [a] F, B [b] Fl, B [e] P: 和光純薬工業社製を, B [b] F, B [a] A: 東京化成工業社製を, Ch, B [ghi] P: Aldrich 社製を使用し, その他の試薬は市販の残留農薬用又は 1 級試薬を蒸留して使用した。

3. PAH の分析方法 PAH の分析法としては、数多くの分析法が報告されているが、¹⁻³⁾ まだ確立された方法はない。著者らは底質中有機物の抽出力が高いアセトン⁴⁾で抽出を行い、川田ら⁵⁾の報告にある Sep-pak シリカカートリッジによるクリーンアップを行った後、選択性、感度の面で優れているキャピラリーカラム GC-MS を使用した。その結果良好な PAH の分析結果を得た。操作方法、回収実験の結果を以下に示す。

3-1 操作方法——底質試料 5—50 g (湿重量) をアセトン 100 ml ずつで 2 回振とう抽出し、抽出したアセトン溶液を分液漏斗に移し、ジクロロメタン 100 ml を加えた後純水 200 ml ずつで 2 回洗浄した。ジクロロメタン層を Kuderna-Danish 濃縮器を用いて濃縮を行ったが、濃縮途中でイソオクタン 10 ml を加えて最終的に 2 ml のイソオクタン溶液になるまで濃縮した。濃縮液のクリーンアップは Sep-pak シリカカートリッジ (Waters 社製) を用いて行った。濃縮液に析出物が多く析出物が容器に付着する場合は、濃縮液を Sep-pak シリカカートリッジに通した後、容器に残っている析出物をジクロロメタン 50 μ l で溶かした。次いでイソオクタン 1 ml を加えて濃縮液を通した Sep-pak シリカカートリッジに吸着させた。Sep-pak シリカカートリッジから

Fig. 1. Location of Sample Sites

TABLE I. Operational Conditions for GC-MS Analysis

GC Condition	
Column :	ultra 2 (5% phenylmethylsilicone) 25 m×0.32 mm i.d.
Column temp. :	80°C (1 min)—(30°C/min)— 200°C— (10°C/min)—300°C
Injector temp. :	300°C
Injector mode :	splitless
Carrier gas :	He
Internal standard :	<i>p</i> -terphenyl-d 14
MS Condition	
Ionization mode :	electron ionization (EI)
Ion accelerating voltage :	3 kV
Ionization voltage :	70 eV
Ionizing current :	300 μ A
Ion source temp. :	280°C
Measurement mode :	selected ion monitoring (SIM)

の溶出は、イソオクタン：ベンゼン溶液（1：1）8 mlで行った。この溶出液を窒素ガスで2 mlまで濃縮し、内部標準（*p*-ターフェニル-d 14）を加えた後GC-MSで分析した。GC-MS装置は日本電子製DX 303型にヒューレtpカード製5890 A型GC装置を接続したものを使用した。その測定条件をTable Iに示した。

3-2 回収実験——周防灘海域の1地点（S2）の底質50 gに各PAH 50 μ gづつを添加し、操作方法に従って測定した。対照としてPAHを添加していない底質を同様に分析して回収率を計算した。その結果をTable IIに、またPAHを添加した底質のSIMクロマトグラムをFig. 2に示した。

その結果、すべてのPAHは80%以上の回収率を示し、またSep-pakシリカカートリッジに通すこと

により妨害物質を除去することができた。

結果及び考察

1. PAHの濃度分布

北九州市周辺海域と周防灘沿岸部の24地点におけるPAHの定量結果をTable IIIに示した。対象とした14種のPAHは測定したすべての底質中から検出された。

定量した14種のPAHの合計を全PAH（T・PAH）として計算した結果、海域が0.52—36.6 μ g/g、周防灘沿岸部が0.083—0.796 μ g/gで海域の方が高い傾向を示した。海域の中でも洞海湾のD2地点が36.6 μ g/gで調査地点中最高であり、次にD1地点の35.8 μ g/gで、D3及び関門海峡のK1地点もそれぞれ5.57、6.00 μ g/gと他の地点に比べ高い値を示した。また、洞海湾湾口に近いD1及びD2の

TABLE II. Recoveries of PAH from Sediment

PAH	Mol. wt.	Recovery (%) $n=3$
Phe	178	87 $\pm$ 3
An	178	80 $\pm$ 4
Fl	202	92 $\pm$ 3
Py	202	91 $\pm$ 3
B[a]F	216	92 $\pm$ 3
B[b]F	216	92 $\pm$ 2
B[a]A	228	95 $\pm$ 3
Ch+Tr	228	97 $\pm$ 2
B[b]Fl	252	103 $\pm$ 2
B[e]P	252	104 $\pm$ 4
B[a]P	252	97 $\pm$ 4
Per	252	96 $\pm$ 5
B[ghi]P	276	100 $\pm$ 7

Each 50 μ g of PAH was added to 50 g sediment.

Fig. 2. SIM Chromatogram of PAH

TABLE III. Concentrations of PAH in Sediment

[$\mu\text{g/g}\cdot\text{dry}$]

Site	Phe	An	Fl	Py	B[a]F	B[b]F	B[a]A	Ch+Tr
D1	1.3	0.94	2.6	3.4	1.3	1.0	2.2	2.8
D2	1.4	0.94	2.8	4.1	1.3	1.1	2.2	2.8
D3	0.33	0.24	0.42	0.54	0.29	0.25	0.28	0.32
K1	0.30	0.21	0.47	0.61	0.27	0.22	0.33	0.40
S1	0.061	0.032	0.15	0.194	0.066	0.041	0.12	0.14
S2	0.035	0.018	0.087	0.11	0.039	0.025	0.072	0.079
S3	0.036	0.017	0.075	0.11	0.033	0.021	0.057	0.059
S4	0.017	0.009	0.041	0.069	0.020	0.013	0.037	0.036
S5	0.050	0.024	0.10	0.13	0.045	0.029	0.078	0.092
S6	0.042	0.019	0.085	0.098	0.034	0.023	0.059	0.065
S7	0.037	0.017	0.081	0.11	0.032	0.020	0.055	0.064
S8	0.037	0.019	0.087	0.11	0.038	0.026	0.072	0.079
S9	0.043	0.020	0.098	0.12	0.040	0.025	0.071	0.081
S10	0.027	0.012	0.064	0.078	0.026	0.013	0.047	0.051
E1	0.004	0.004	0.008	0.006	0.007	0.007	0.009	0.009
E2	0.015	0.007	0.041	0.051	0.018	0.013	0.033	0.038
E3	0.007	0.004	0.009	0.009	0.009	0.006	0.008	0.008
E4	0.005	0.003	0.007	0.007	0.006	0.005	0.006	0.005
E5	0.043	0.010	0.071	0.090	0.029	0.021	0.045	0.058
E6	0.017	0.011	0.059	0.082	0.035	0.026	0.057	0.075
E7	0.022	0.010	0.053	0.074	0.024	0.017	0.041	0.053
E8	0.025	0.011	0.073	0.092	0.030	0.020	0.055	0.063
E9	0.030	0.012	0.078	0.11	0.033	0.023	0.054	0.070
E10	0.016	0.009	0.043	0.061	0.021	0.016	0.037	0.039
Site	B[b]F1	B[e]P	B[a]P	Per	Ind	B[ghi]P	T·PAH	IL(%)
D1	6.8	3.1	4.0	1.2	2.8	2.5	35.8	
D2	6.9	3.1	4.0	1.1	2.6	2.3	36.6	
D3	0.80	0.46	0.56	0.31	0.40	0.38	5.57	
K1	0.92	0.51	0.59	0.30	0.42	0.45	6.00	
S1	0.36	0.12	0.19	0.049	0.15	0.14	1.80	5.6
S2	0.22	0.078	0.12	0.034	0.093	0.084	1.09	4.9
S3	0.18	0.062	0.081	0.025	0.071	0.066	0.884	4.9
S4	0.10	0.037	0.050	0.015	0.037	0.038	0.522	5.8
S5	0.22	0.076	0.11	0.033	0.089	0.083	1.16	4.6
S6	0.15	0.052	0.079	0.022	0.063	0.056	0.842	5.5
S7	0.16	0.059	0.080	0.023	0.069	0.062	0.870	4.9
S8	0.17	0.055	0.091	0.026	0.067	0.039	0.912	5.1
S9	0.21	0.072	0.11	0.031	0.086	0.077	1.08	5.7
S10	0.15	0.052	0.073	0.022	0.066	0.060	0.736	5.8
E1	0.014	0.008	0.011	0.008	0.009	0.014	0.117	4.9
E2	0.064	0.024	0.042	0.013	0.037	0.036	0.431	3.5
E3	0.013	0.007	0.009	0.007	0.011	0.010	0.115	3.5
E4	0.008	0.005	0.006	0.005	0.008	0.008	0.083	11.9
E5	0.099	0.038	0.058	0.016	0.045	0.041	0.664	10.0
E6	0.13	0.051	0.075	0.020	0.063	0.057	0.760	22.0
E7	0.10	0.039	0.051	0.017	0.045	0.042	0.591	21.8
E8	0.12	0.048	0.069	0.018	0.058	0.052	0.735	10.0
E9	0.13	0.047	0.069	0.019	0.062	0.059	0.796	5.1
E10	0.054	0.030	0.046	0.013	0.040	0.036	0.462	4.1

T·PAH : total amounts of 14 PAH.

IL : ignition loss.

地点は湾奥の D3 地点より高濃度であったので、湾口付近に局所的な汚染源が考えられる。Searl ら⁶⁾は、コークス製造工場排水中から B[a]P などの PAH が ppb レベルで検出されたことを報告しているが、実際に洞海湾周辺に存在する 1 つのコークス製造工場の排水を分析したところ、今回対象とした 14 種の PAH すべてが検出され、その T・PAH 濃度は $37.4 \mu\text{g/l}$ であった。この排水口からの負荷量を排水量から算出すると、T・PAH で 2.6 kg/d となり、かなりの PAH を排出していることがわかった。洞海湾の周辺及び関門海峡西部に面している地域は、北九州市の工場地帯でありコークス炉や貯炭場などの多い地域である。したがって、D1、D2、D3 及び K1 地点で工場で使用される化石燃料からの排ガスとともに化石燃料関係工場からの排水の影響を強く受けていることが予想される。

周防灘海域底質中の T・PAH 濃度は、最高で $1.80 \mu\text{g/g}$ であり、洞海湾や関門海峡に比べて低い濃度レベルであった。周防灘海域では、北部 (S1, S2, S5, S8 及び S9) が $0.91\text{--}1.80 \mu\text{g/g}$ で南部 (S3, S4, S6, S7 及び S10) の $0.52\text{--}0.88 \mu\text{g/g}$ に比べ約 2 倍の PAH の堆積が認められた。

周防灘沿岸部 (E1—E10) の T・PAH 濃度は $0.083\text{--}0.796 \mu\text{g/g}$ と周防灘海域に比べ低い濃度レベルであった。しかし、強熱減量 (IL) をみると周防灘沿岸部では底質中の含有有機物量に大きく差がある。PAH の底質への吸着は、底質中の有機物量に依存することから、⁷⁾ 底質重量当りの T・PAH 濃度では、地点毎の PAH の蓄積状況を正確には表していない。そこで、IL あたりの T・PAH 量を算出して比較すると、沿岸部は $0.7\text{--}15.6 \mu\text{g/g}$ 、海域は $9.0\text{--}32.1 \mu\text{g/g}$ となり、沿岸部が低い傾向を示した。

したがって、周防灘海域では陸からの PAH 汚染の影響は少ないことが推定される。

発ガン性が確認されている B[a]P とその異性体である B[e]P の濃度について、東京湾⁸⁾と比較すると、その合計は東京湾では $0.038\text{--}0.173 \mu\text{g/g}$ であるのに対し、洞海湾 (D1—D3) では $1.0\text{--}7.1 \mu\text{g/g}$ 、関門海峡 (K1) では $1.1 \mu\text{g/g}$ 、周防灘 (S1—S10) では $0.087\text{--}0.31 \mu\text{g/g}$ とすべての海域で東京湾より高い傾向がみられた。

2. PAH のパターン分析による汚染状況の解析

各地点の T・PAH 値より、底質の PAH による汚染状況の概要が把握できたが、更に 3 海域の PAH の組成を解析することにより、周辺海域の詳細な汚

染状況を調べた。洞海湾 (D1—D3)、関門海峡 (K1) 及び周防灘 (S1—S10) においてどの調査地点も 14 種の PAH が全て検出され、また B[b]Fl が最も高く地点間の PAH 組成に大きな差は認められなかった。そこで 14 種の PAH の相対割合を特性値として、クラスター分析⁹⁾ 及び主成分分析¹⁰⁾ を行った。

クラスター分析は標準ユークリッド距離に基づいて distance index を計算し、その後階層的方法のうちクラスター化を行ってもクラスター間の距離が保存される群平均法に従って系統分類を行った。分析結果を樹系図として Fig. 3 に示した。

Fig. 3 の結果から海域の各調査地点を 4 個のクラスターに分類すると、S8 地点を除く周防灘海域 (A グループ)、D1 と D2 地点 (B グループ) 及び D3 と K1 地点 (C グループ) がグループ化された。各グループの T・PAH 濃度は A グループが $0.52\text{--}1.80 \mu\text{g/g}$ 、B グループが $35.8\text{--}36.6 \mu\text{g/g}$ 、C グループが $5.57\text{--}6.00 \mu\text{g/g}$ であり、グループ毎に同程度の汚染濃度となっている。このクラスター分析の結果から、今回調査した海域底質中 PAH の相対割合は、PAH 汚染濃度レベルが同程度の地域では、類似したパターンであることが示された。このことは各地域によって汚染源の種類あるいは汚染経路が異なることを意味しており、今後汚染源を解明し、地域の特性を把握していく上で重要な情報と

Fig. 3. Dendrogram Comparing Sample Sites

なり得るものと考えられる。1例として、クラスター分析により分類されたグループとコークス製造工場排水のPAHパターンの類似性を標準ユークリッド距離⁹⁾を算出して比較してみたところ、コークス製造工場排水に対しては、Bグループ(D1, D2)の値が17.3と最小であり、Aグループ、Cグループは各々22.9, 59.3であった。これは前節で局所的な汚染が観察されたD1, D2地点のPAHパターンは、他の地点よりコークス製造工場排水のPAHパターンと類似していることを示しており、この地域の汚染にはコークス製造工場排水の影響が強いことが推察される。

またクラスター分析では、同一海域でありながらS8地点のみが他の周防灘海域と異なる結果が得られたため、パターンの相違点を主成分分析から観察した。主成分分析は各地点のPAH相対割合を特性値として相関行列に基づいて行った。この場合の第1主成分(Z1)と第2主成分(Z2)の累積寄与率は0.753であった。主成分分析の結果をTable IV及びTable Vに示した。

Z1の主成分得点をみると、D1, D2がそれぞれ0.723, 0.728と近い値を示したことから、T・PAH濃度及びクラスター分析の結果と同様に、これらの汚染源が同一であると推察された。S8地点のZ1の主成分得点は-1.751で周防灘海域の-0.728—-1.912の範囲内であり、Z1からは特徴が示されていない。しかし、Z2の主成分得点ではS8地点が-3.348と最も負に偏った傾向を示した。Z2の因子負荷量をみると分子量252のB[b]Flが正負の境となっている。これは、Z2が分子量178のPheから分子量228のCh+Trまでの低分子量側の割合が増えると負に傾き、分子量252のB[b]Flから分子量276のB[ghi]Pまでの高分子量側の割合が増えると正に傾く特性のある主成分であることを示している。したがって、S8地点のPAHパターンは周防灘海域の中で低分子量側のPAHの割合が最も高いことを示している。尹ら⁸⁾の報告によれば、水中、懸濁浮遊粒子、堆積物へと移行するに従って、低分子量PAHのT・PAHに対する相対割合は減少し、また工場排水等が河川を通じて海域へ流入する場合、堆積物中の低分子量PAHの相対割合は河口からの距離が遠くなるに従って減少することを示唆している。周防灘海域底質中のPAH汚染が水系を主として行われるものと仮定し、この知見をS8地点に照らし合わせてみると、周防灘海域へのPAHの流れ込みはS8地点を最初に通過して行われる割合が大

TABLE IV. Values of Factor Loading and Eigenvalues of Z1 and Z2

PAH	Z1	Z2
Ph	0.7510	-0.5420
An	0.9818	-0.0992
Fl	-0.4866	-0.7352
Py	-0.5586	-0.5980
B[a]F	0.8514	-0.4214
B[b]F	0.9296	-0.2217
B[a]A	-0.8165	-0.4100
Ch+Tr	-0.6649	-0.1885
B[b]Fl	-0.9031	0.3776
B[e]P	0.7093	0.5547
B[a]P	0.1180	0.6723
Per	0.9699	0.0562
Ind	-0.5250	0.5537
B[ghi]P	0.0360	0.6070
Eigenvalue	7.324	3.213
RC	0.523	0.230
CUM. RC	0.523	0.753

RC : ratio of contribution.

CUM. RC : cumulative ratio of contribution.

TABLE V. Component Scores of Z1 and Z2

site	Z1	Z2
D1	0.723	-0.630
D2	0.728	1.028
D3	7.230	2.934
K1	4.753	-0.061
S1	-1.653	1.433
S2	-1.433	2.266
S3	-1.052	-0.141
S4	-1.323	-0.610
S5	-0.909	-0.851
S6	-0.728	-2.695
S7	-1.389	-1.086
S8	-1.751	-3.348
S9	-1.284	-0.167
S10	-1.912	1.928

きいことになる。S8地点は周防灘調査地点中最も北東部に位置し、北九州市の沿岸より遠い地点である。周防灘海域へのPAHの流れ込みがS8地点を最初に通過して行われるということは、前節で述べた「この海域が北九州市の沿岸部からの影響が小さい」ということと一致した。

結 語

北九州市周辺海域及び沿岸底質中のPAHを測定し、次のような結果を得た。

(1) T・PAH 濃度は洞海湾 5.57—36.6 $\mu\text{g/g}$, 関門海峡 6.00 $\mu\text{g/g}$, 周防灘 0.522—1.80 $\mu\text{g/g}$, 周防灘沿岸 0.083—0.796 $\mu\text{g/g}$ で, 周辺にコークス製造工場や貯炭場が多く存在する洞海湾で最も高い値を示した。すべての調査地点から 14 種の PAH が検出され, また沿岸部の 1 地点を除く全ての地点で B [b] Fl が最も高濃度で存在していた。

(2) 北九州市周辺海域底質中の B [a] P+B [e] P の濃度は 0.087—7.1 $\mu\text{g/g}$ で, どの海域も東京湾 (0.038—0.173 $\mu\text{g/g}$) より高い傾向があり, 石炭, 石油を中心に発達してきた工業都市の特徴がみられた。

(3) 洞海湾湾口に近い 2 地点で高い T・PAH 濃度が測定された。この原因はクラスター分析及び主成分分析から, 付近に存在するコークス製造工場排水の影響によるものと推定された。

(4) 堆積性の強い周防灘の底質は調査海域中最も

低い T・PAH 濃度レベルであった。海域北部の PAH 濃度が比較的高かったことと, 本市側沿岸底質中の濃度が海域底質中濃度よりも低かったことから, 本市沿岸からの PAH の流入の影響は小さいものと推定された。また, このことは主成分分析からも裏付けられた。

(5) 各 PAH の相対割合を特性値として多変量解析を行うことにより, 海域間及び調査地点間の類似性や特徴を詳細に観察することができた。

(6) 周防灘北東部底質中の PAH は分子量 178 の Phe から分子量 228 の Ch+Tr までの低分子量 PAH の割合が高いことが主成分分析から明らかとなった。

謝辞 本研究について御協力頂いた北九州市公害対策局水質騒音課の皆さまに感謝します。

引用文献

- 1) F.G. Prahl, E.C. Crecelius, T. Carpenter, *Environ. Sci. Technol.*, **18**, 687 (1984); R. Shinohara, M. Koga, A. Kido, S. Eto, T. Tabata, T. Hori, T. Akiyama, *Environment International*, **4**, 163 (1980); 田畑哲一, 末田新太郎, 重森伸康, 秋山 高, 大気汚染学会誌, **14**, 143 (1979).
- 2) 篠原亮太, 古賀 実, 堀 悌二, 秋山 高, 衛生化学, **24**, 304 (1978).
- 3) L. Martel, J.M. Gagnon, R. Masse, A. Leclerc, *Water Res.*, **21**, 699 (1987).
- 4) 北九州市環境衛生研究所, 昭和 53 年度化学物質環境追跡調査結果報告 (環境庁委託研究), 1979, p. 2.
- 5) 川田邦明, 横山ひろみ, 森山 登, 白井文雄, 衛生化学, **34**, 248 (1988).
- 6) T.D. Searl, F.J. Cassidy, W.H. King, R.A. Brown, *Anal. Chem.*, **42**, 954 (1970).
- 7) J.C. Means, *Environ. Sci. Technol.*, **14**, 1524 (1980).
- 8) 尹 順子, 石渡良志, 地球化学, **17**, 53 (1983).
- 9) 田中 豊, 垂水共之, 脇本和昌 (編), “パソコン統計解析ハンドブック II 多変量解析編,” 共立出版, 東京, 1984, p.226.
- 10) 奥野忠一, 芳賀敏郎, 久米 均, 古澤 正, “多変量解析法,” 改訂版, 日科技連, 東京, 1981, p.159.