

大阪府におけるダイオキシン類の環境調査について(2)

上堀美知子*、高橋 幸治*、鎌田 暁義*、岸田 真男*
清水 武憲*、田村 友宣*、山本 仁史*、服部 幸和*

* 大阪府公害監視センター化学環境課

はじめに

ダイオキシン類対策特別措置法の施行に伴い大阪府では平成12年度からダイオキシン類の常時監視を実施している。調査結果については環境白書等で公表している。

本報告では、ダイオキシン類による汚染状況をより詳しく把握するために、平成１２年度の調査結果について府下の河川における水質及び底質中のダイオキシン類濃度の構成成分割合や水域の特性などについて検討したので報告する。

調査方法

測定は、水質についてはJIS K 0312（工業用水・工場排水中のダイオキシン類及びコプラナーPCBsの測定方法）、底質は「ダイオキシン類に係る底質調査測定マニュアル」（平成12年3月環境庁水質保全局水質管理課）に従った。

調査結果及び考察

１．水質のダイオキシン類濃度

(1)濃度レベル

平成12年8月から11月にかけて府下の36河川の水質についてダイオキシン類濃度を測定した結果を表１に示す。ダイオキシン類濃度は最大1.8pg-TEQ/L、平均0.50pg-TEQ/L、最小

0.076pg-TEQ/Lであった。

水質基準を上回った地点は神崎川水域・神崎川の新三国橋、寝屋川水域・寝屋川の住道大橋、恩智川の住道新橋の3地点であった。図１に水域毎のダイオキシン類の最大・平均・最小濃度を示す。淀川・大和川水域は全体に低い濃度レベルにあるが、神崎川・寝屋川水域はやや高い濃度レベルにあった。

環境省は平成12年度の全国調査結果について平均0.31pg-TEQ/L、濃度範囲は0.012～48pg-TEQ/Lと報告している。府下36河川の平均は全国平均よりもやや高い値であった

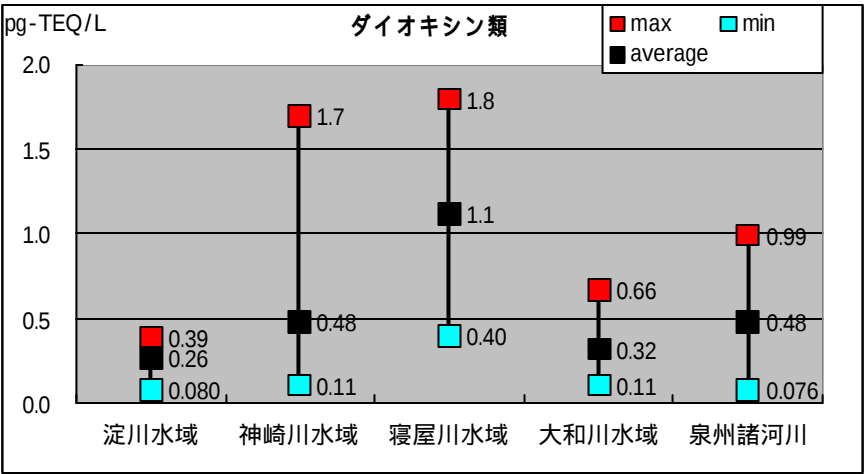


図１．ダイオキシン類の濃度範囲

表１．水質測定結果 (pg/L)

水域名	河川名	調査地点	TeCDDs	PeCDDs	HxCDDs	HpCDDs	OCDD	TeCDFs	PeCDFs	HxCDFs	HpCDFs	OCDF	ノゾルトCo-PCBs	モノルトCo-PCBs	ダイオキシン類 (pg-TEQ/L)
淀川水域	船橋川	新登橋上流	14	1.3	3.0	9.0	39	2.5	1.6	2.3	1.9	1.8	19	60	0.31
	穂谷川	淀川合流直前	19	1.6	2.4	5.4	22	2.8	1.8	2.3	1.5	1.5	10	76	0.32
	檜尾川	鷺手神社前	15	1.7	1.5	4.9	37	1.3	1.0	1.5	1.3	0.88	4.5	32	0.22
	天野川	淀川合流直前	20	2.6	3.0	6.6	34	4.3	2.4	3.3	2.7	1.6	17	89	0.39
	水無瀬川	名神高速道路高架橋下	1.2	0.13	0.23	0.71	4.1	0.57	0.35	0.35	0.22	0.15	2.8	12	0.080
神崎川水域	神崎川	新三国橋	27	6.4	11	20	89	7.2	8.2	18	22	14	26	200	1.7
	左門殿川	辰巳橋	8.8	2.5	3.3	7.1	37	2.3	2.4	4.0	5.1	3.5	21	160	0.54
	安威川	宮島橋	6.8	3.7	4.4	7.5	22	6.1	4.9	5.8	5.0	2.9	6.7	49	0.76
	安威川	新京阪橋	17	2.4	3.6	7.5	44	1.9	2.5	4.0	4.3	3.3	8.8	51	0.44
	茨木川	安威川合流直前	5.3	1.0	1.2	3.5	17	2.1	1.1	1.3	0.99	0.54	3.7	27	0.20
	大正川	安威川合流直前	3.7	1.0	2.5	7.2	37	2.3	1.8	1.8	1.6	1.1	12	150	0.32
	勝尾寺川	中河原橋	8.3	1.5	2.5	3.9	22	2.8	1.8	4.0	0.84	0.76	3.2	41	0.37
	箕面川	府県境	1.1	0.45	0.91	1.4	6.3	1.1	0.76	1.0	0.57	0.26	0.085	15	0.11
	余野川	猪名川合流直前	1.5	0.84	2.6	7.2	26	6.2	1.3	0.91	0.97	0.46	8.0	15	0.25
	千里川	猪名川合流直前	2.7	0.35	0.17	1.7	6.0	1.1	0.20	0.027	0.51	0.28	0.62	210	0.11
寝屋川水域	寝屋川	萱島橋	14	2.7	4.2	9.8	50	3.7	2.7	4.0	4.70	2.9	11	89	0.56
	寝屋川	住道大橋	35	6.8	8.1	17	97	9.6	7.9	8.5	7.5	4.6	240	1300	1.8
	恩智川	住道新橋	27	6.2	9.5	20	73	9.9	7.5	10	9.5	5.1	98	540	1.7
	第二寝屋川	新金吾郎橋	5.9	1.3	1.9	4.1	18	2.3	1.4	2.1	1.9	1.4	6.6	50	0.40
大和川水域	千早川	石川合流直前	3.7	0.43	0.51	1.1	5.2	0.93	0.63	0.70	0.43	0.24	3.5	15	0.11
	天見川	新喜多橋	11	0.77	0.68	1.2	5.0	1.2	0.79	0.88	0.61	0.36	6.7	17	0.14
	石見川	新高野橋	3.4	0.37	0.53	0.90	2.6	0.70	0.44	0.79	0.55	0.25	4.1	8.0	0.11
	東除川	明治小橋	17	2.7	3.8	7.6	43	4.6	4.2	3.8	3.0	1.7	12	99	0.56
	西除川	狭山池流出端	20	3.3	5.1	20	190	2.6	2.8	5.1	6.1	3.5	6.3	42	0.66
泉州諸河川	大津川	大津川橋	23	6.6	7.1	18	100	11	6.2	5.4	5.9	3.9	24	140	0.99
	春木川	春木橋	28	3.4	6.9	21	170	3.3	2.9	3.5	2.6	2.0	1.1	100	0.63
	津田川	昭代橋	34	5.7	8.4	30	200	3.9	3.8	4.6	4.3	3.6	11	94	0.83
	近木川	近木川橋	15	2.7	5.4	12	57	2.0	2.1	3.4	2.2	1.9	9.2	90	0.51
	見出川	見出橋	20	3.6	5.8	14	94	3.3	4.5	7.3	7.1	4.3	7.5	80	0.78
	佐野川	昭平橋	15	2.2	2.7	9.1	60	2.5	2.0	2.1	2.0	2.0	0.59	38	0.33
	櫻井川	櫻井川橋	16	6.9	8.1	14	100	3.2	3.3	3.7	2.7	1.8	0.93	57	0.94
	男里川	男里川橋	3.9	0.67	0.96	3.1	23	0.81	0.75	0.92	0.73	0.39	0.32	24	0.13
	番川	田身輪橋	1.3	0.27	0.24	0.71	7.0	0.21	0.25	0.32	0.20	0.18	0.00	3.0	0.076
	大川	昭南橋	1.9	0.74	0.94	3.3	26	1.1	0.97	1.4	0.82	0.83	4.2	19	0.16
	東川	一軒家橋	3.4	0.96	2.8	11	47	0.30	0.67	1.2	0.74	0.41	0.40	5.4	0.23
	西川	こうや橋	2.6	0.50	0.52	2.2	28	0.34	0.39	0.87	0.54	0.39	0.00	5.1	0.11

(2) ダイオキシン類の構成割合

TEQ濃度

表2に水域毎のTEQ値に対するPCDDs/PCDFs/Co-PCBs寄与率を示す。

	PCDDs	PCDFs	ノオルト Co-PCBs	モノオルト Co-PCBs
淀川水域	45	39	13	2.8
神崎川水域	34	55	8.7	2.6
寝屋川水域	37	38	19	6.0
大和川水域	44	47	8.2	1.6
泉州諸河川	52	38	8.4	1.6

表2．TEQ値に対する寄与率(%)

水域によって寄与率の構成割合が少し異なり、淀川水域と泉州諸河川はPCDDs > PCDFs > Co-PCBs、神崎川・寝屋川・大和川水域はPCDFs > PCDDs > Co-PCBsとなっているが8～9割がPCDDsとPCDFsで占められていた。但し、寝屋川水域では他の水域に比べてCo-PCBsの寄与率が高く、特にノンオルトCo-PCBsの寄与率が高かった。

実測濃度

図2に水域毎のPCDDs/PCDFs/Co-PCBsの最大・平均・最小濃度を示す。全河川の濃度範囲はPCDDs：0.13～200pg/L、PCDFs：0.027～22pg/L、Co-PCBs：0.00～1300pg/Lであった。水域によって実測濃度に特徴的な傾向が見られる。神崎川水域はPCDFsが高く、大和川・泉州諸河川はPCDDs、寝屋川水域はCo-PCBsが高い値を示す地点がみられた。しかし、各項目とも平均値では

寝屋川水域のCo-PCBs以外は大差なかった。図3に構成割合を示した。淀川・神崎川・寝屋川水域はCo-PCBsの割合が高いが、大和川・泉州諸河川ではPCDDsの占める割合が高い傾向にあった。

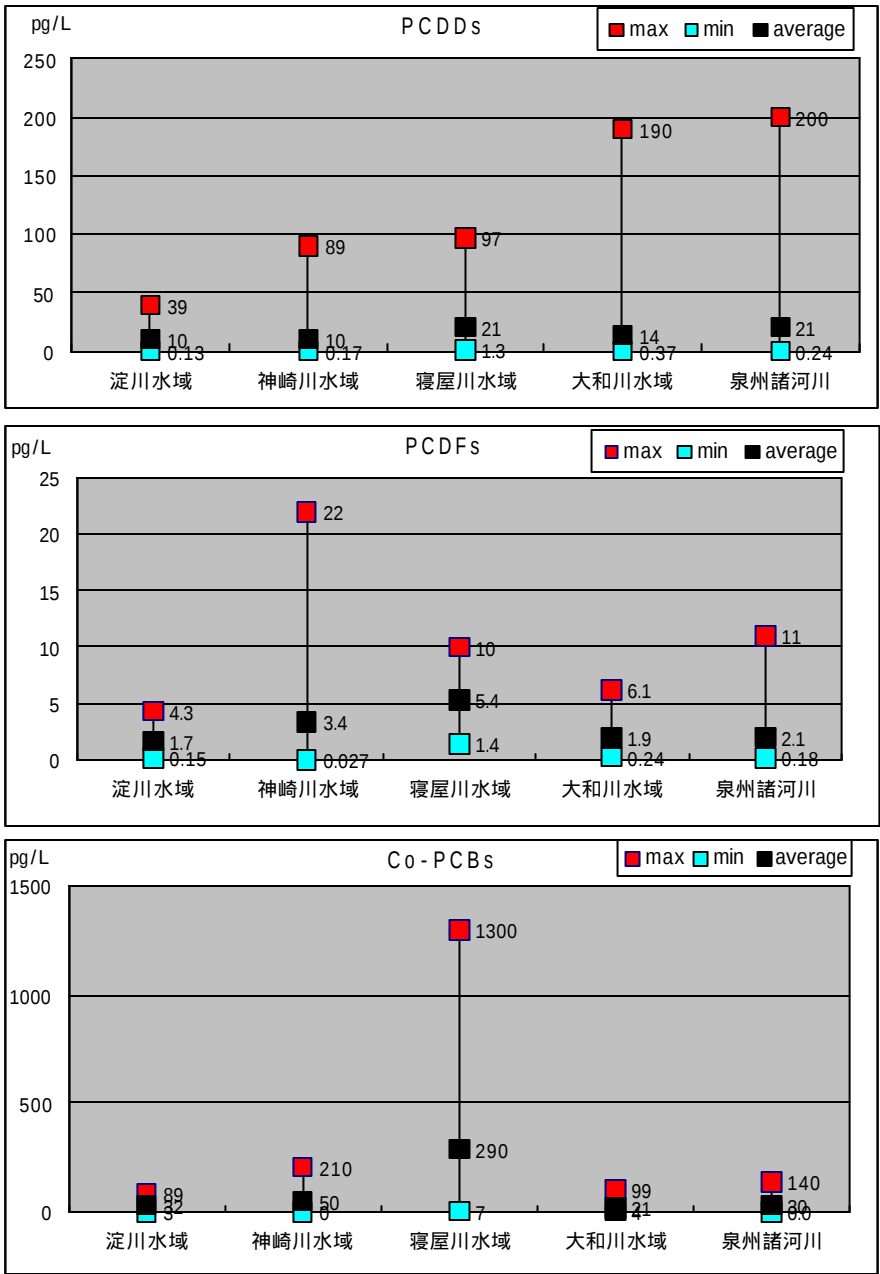


図2．各水域の実測濃度

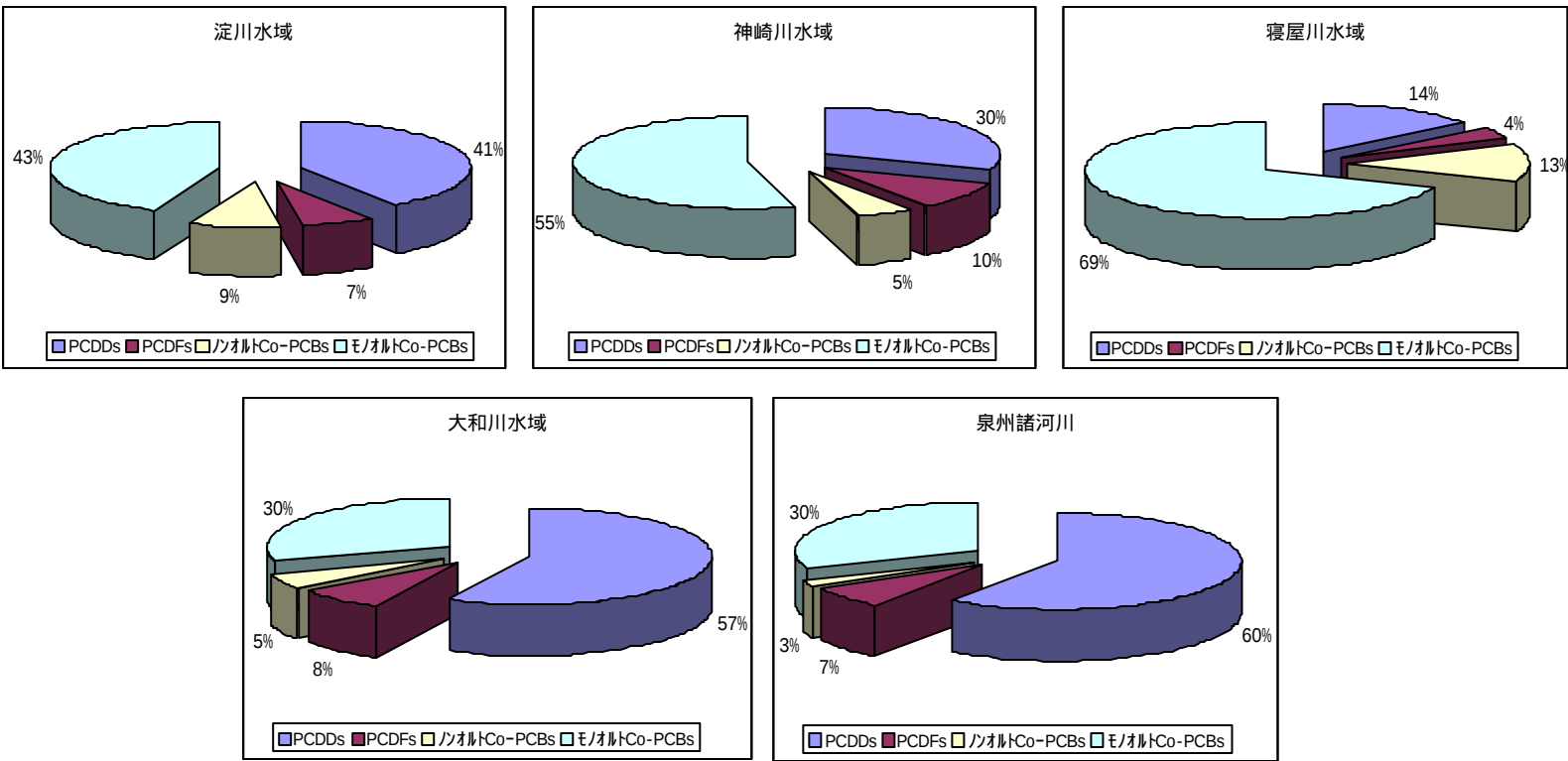


図3．各水域のダイオキシン類の構成（水質）

同族体及び異性体の構成成分

-1. PCDDs/PCDFs同族体

図4にPCDDs/PCDFs同族体組成を全河川の平均濃度で示した。ひげは標準偏差である。36河川のOCDD濃度が広い範囲に分布している。また、図5は同族体組成割合を示した。OCDDの濃度割合が高く全体の55%を占めており、次にTeCDDsが14%, HpCDDsが9%であった。その他の同族体間の差はあまり見られなかった。水域別の同族体組成を図6に示した。PCDDsでは水域による組成パターンの大きな違いはないが、各成分の濃度レベルの差は顕著であった。しかし、PCDFsでは各水域の組成パターンが同じで、各成分の濃度レベルにもほとんど差がなかった。

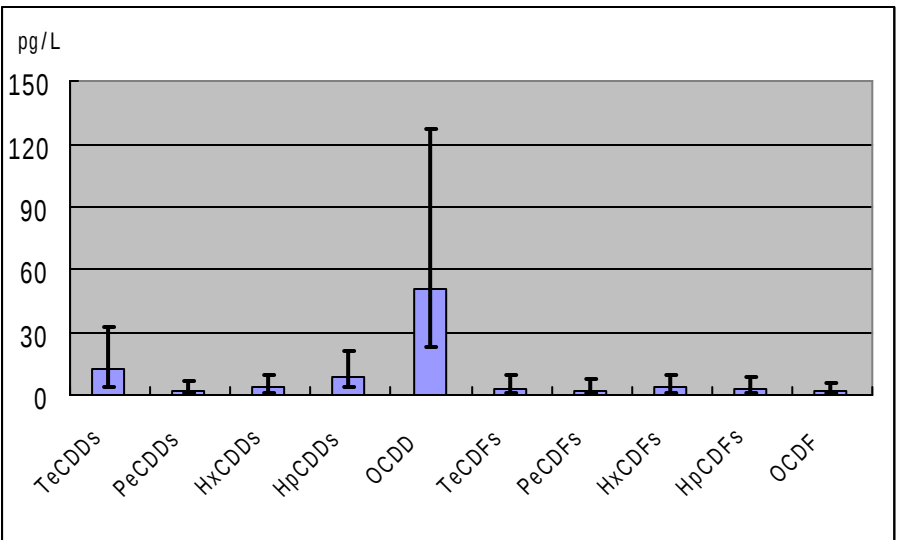


図4. 同族体組成濃度（全河川平均）

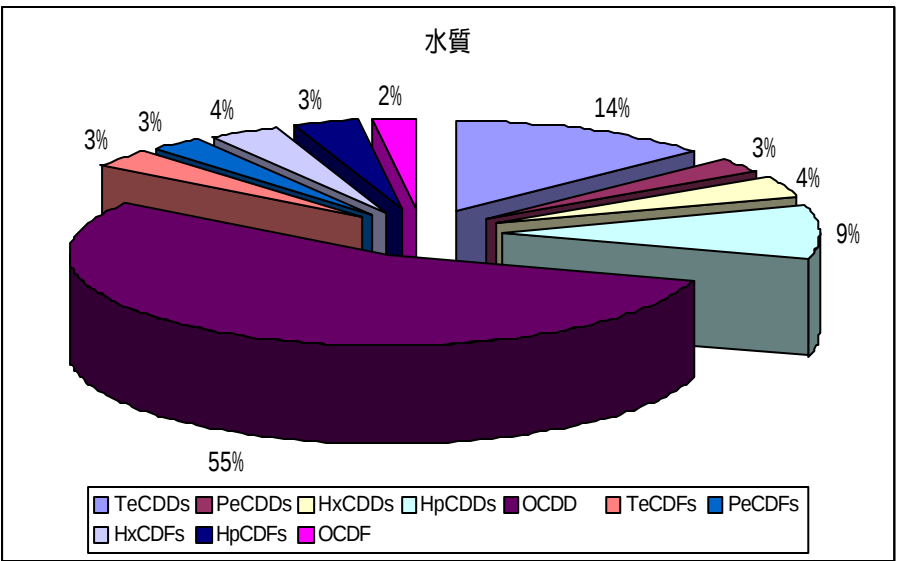


図5. 同族体組成割合（全河川平均）

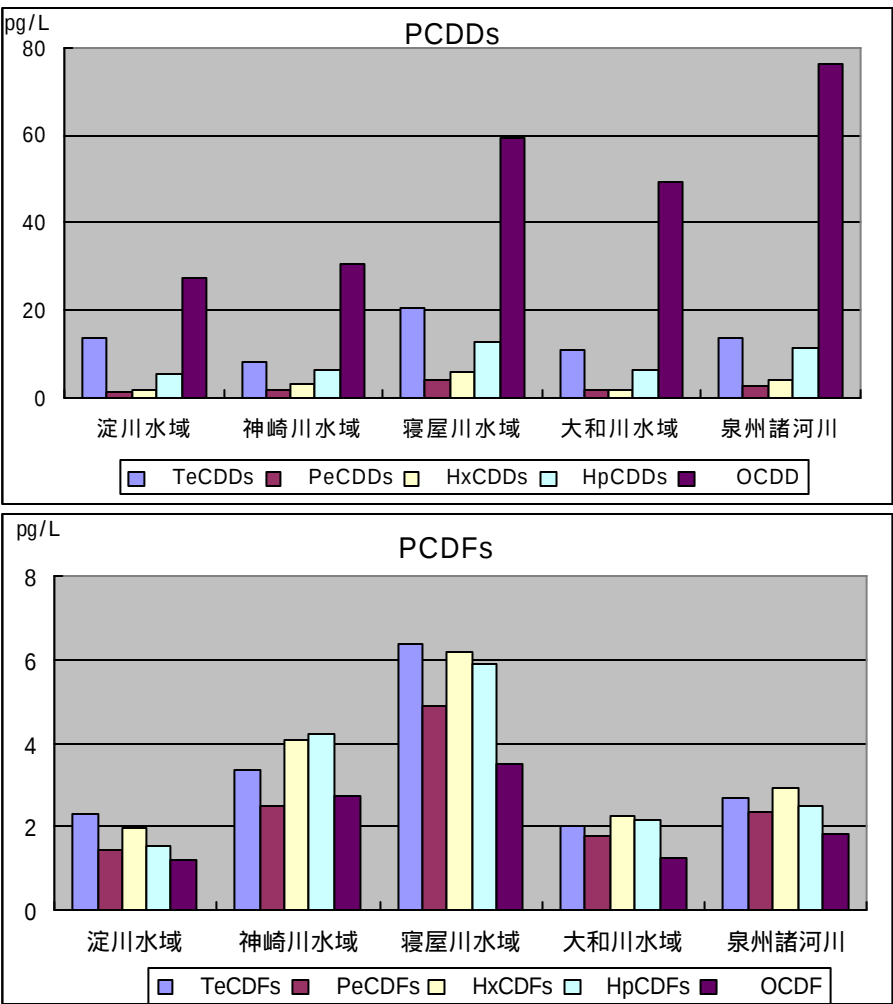


図6. 同族体組成濃度（水質：水域別の平均）

-2. Co-PCBs異性体

図7にCo-PCBs異性体組成を全河川の平均濃度で示した。#118が全体の48%を占め、#105が23%、以下#77>#156>#123の順であった。また、ノンオルト体>モノオルト体の関係にあった。

Co-PCBsについては水域による異性体組成パターンの変化はほとんど見られなかった。

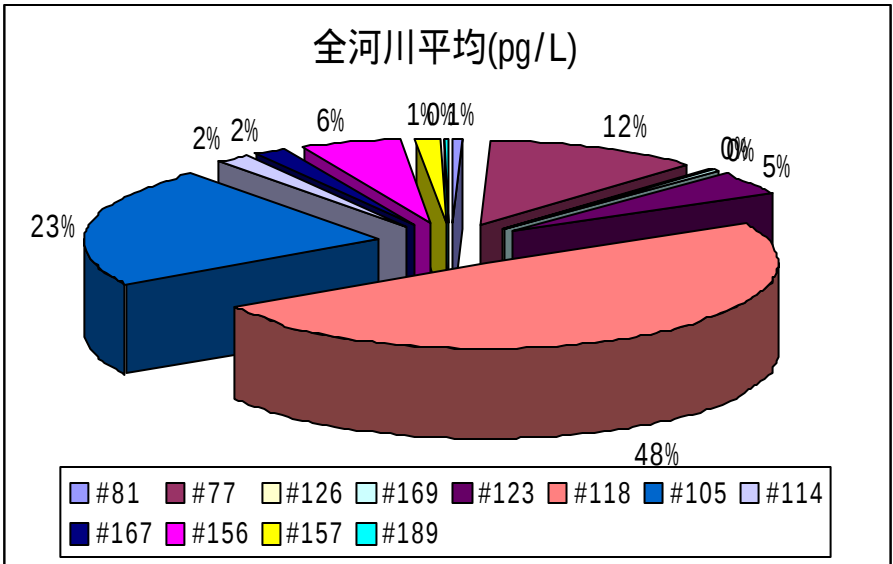


図7. Co-PCBs異性体の組成割合（水質）

-3. PCB類について

PCB類については製品由来あるいは燃焼由来によって異性体組成が異なる。製品由来では#77:#126:#169の比が99:1:0.006⁽¹⁾、燃焼由来では50:40:10⁽²⁾である。また、PCB原料（KC300、KC400等）によっても異性体の組成が異なる⁽³⁾。各水域の組成比の一例を図8に示す。図8及び測定結果から全水域ともPCB製

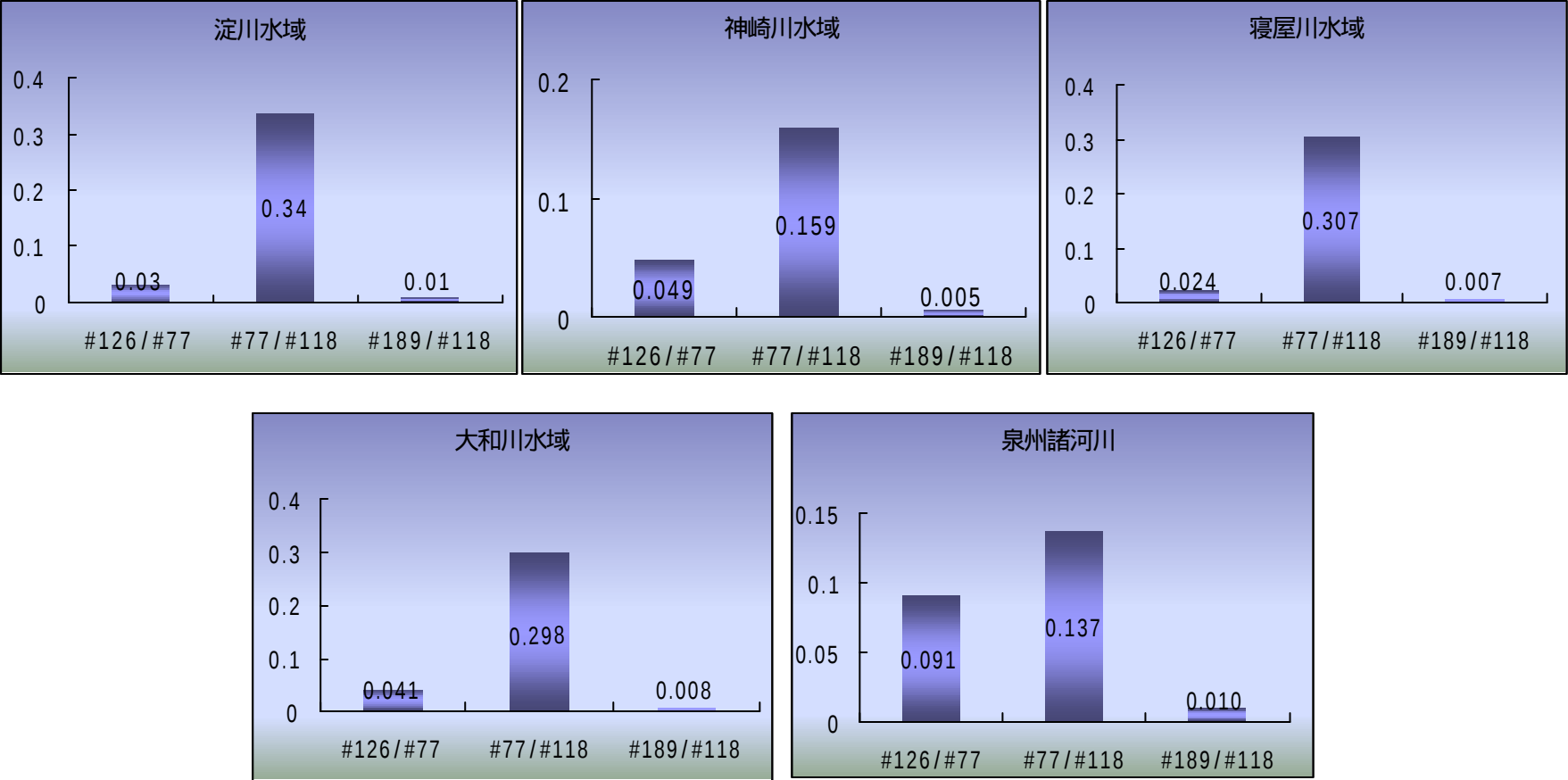


図8 . Co-PCBs異性体の組成比（水質）

品由来による汚染が推定され、淀川、寝屋川及び大和川水域は低塩素化合物からの影響が強く、神崎川や泉州諸河川では高塩素化合物を含む製品による影響も大きいことが推定される。

他の水質項目との関係について

ダイオキシン類濃度と同時に測定したpH・SS等との関係について検討した。

表3 . 相関係数

項 目	1/T	pH	EC	SS
TeCDDs	-0.06	-0.42	0.51	0.41
PeCDDs	-0.13	-0.39	0.41	0.44
HxCDDs	-0.12	-0.42	0.46	0.48
HpCDDs	0.01	-0.41	0.37	0.46
OCDD	0.17	-0.33	0.27	0.34
TeCDFs	-0.39	-0.28	0.45	0.31
PeCDFs	-0.27	-0.38	0.52	0.35
HxCDFs	-0.30	-0.34	0.57	0.26
HpCDFs	-0.32	-0.36	0.62	0.18
OCDF	-0.31	-0.38	0.63	0.22
PCDDs	0.11	-0.37	0.34	0.38
PCDFs	-0.34	-0.37	0.60	0.27
Co-PCBs	-0.15	-0.27	0.12	0.06
TEQ	-0.23	-0.41	0.45	0.33

ダイオキシン類濃度、TEQ、同族体濃度と水質条件（水温：1/T、pH、電気伝導度：EC、濁度：SS）についての相関分析を行った。結果を表3に示す。水温については同属体との間に明瞭な相関が見られないものの、pHとは負の相関、ECおよびSSとは正の相関の傾向が見られた。

2. 底質のダイオキシン類濃度

(1)濃度レベル

平成12年8月から11月にかけて河川水と同時に採取した底質についてダイオキシン類濃度を測定した結果を表4に示す。ダイオキシン類濃度は最大510pg-TEQ/g、平均27pg-TEQ/g、最小0.18pg-TEQ/gであった。

図9に水域毎のダイオキシン類の最大・平均・最小濃度を示す。淀川・大和川水域は全体に低い濃度レベルにあるが、神崎川・寝屋川水域は比較的高い濃度レベルを示し水質と同様の結果であった。

環境省は、平成12年度の全国調査結果について平均9.6pg-TEQ/g、濃度範囲は0.0011～1400pg-TEQ/gであったと報告している。府下の平均は、水質同様に底質についても全国平均より高い濃度であった。

表4．底質測定結果 (pg/g)

水域名	河川名	調査地点	TeCDDs	PeCDDs	HxCDDs	HpCDDs	OCDD	TeCDFs	PeCDFs	HxCDFs	HpCDFs	OCDF	ノオルトCo-PCBs	モノオルトCo-PCBs	ダイオキシン類(pg-TEQ/g)
淀川水域	船橋川	新登橋上流	5.9	2.9	4.9	7.5	34	5.4	4.6	4.6	3.0	1.9	17	160	0.55
	穂谷川	淀川合流直前	3.6	1.3	2.9	5.2	37	1.8	1.1	1.7	1.7	0.97	5.1	100	0.26
	檜尾川	磐手神社前	31	4.9	5.4	12	100	3.5	3.1	2.9	2.1	1.2	6.9	47	0.49
	天野川	淀川合流直前	5.9	1.5	2.3	5.1	35	2.4	2.2	2.5	2.0	1.3	18	740	0.45
	水無瀬川	名神高速道路高架橋下	5.5	2.6	4.3	5.9	60	4.3	3.9	3.8	2.4	1.4	10	63	0.54
神崎川水域	神崎川	新三国橋	1600	1800	2900	3600	6100	1400	2700	5800	6700	5400	2300	24000	510
	左門殿川	辰巳橋	1300	720	1500	1700	4200	810	1100	2200	1500	1600	22000	120000	260
	安威川	宮島橋	18	3.4	4.2	7.4	45	3.6	3.0	4.2	3.3	2.0	15	49	0.63
	安威川	新京阪橋	180	71	150	240	680	80	120	230	250	180	150	1300	24
	茨木川	安威川合流直前	17	3.4	4.2	9.6	58	2.3	2.4	2.7	2.1	1.1	3.7	38	0.46
	大正川	安威川合流直前	4.3	2.0	4.1	6.0	27	3.3	2.7	2.1	1.3	0.79	32	1100	0.68
	勝尾寺川	中河原橋	14	3.8	5.6	9.9	72	4.3	3.9	4.1	2.9	1.4	10	110	0.67
	箕面川	府県境	11	4.7	8.5	14	120	7.1	7.5	7.8	5.5	2.1	25	460	1.1
	余野川	猪名川合流直前	51	6.0	3.9	10	56	4.0	3.4	3.5	3.1	1.6	16	130	0.56
寝屋川水域	千里川	猪名川合流直前	5.5	2.1	5.4	11	61	2.9	1.9	2.0	1.5	0.80	11	590	0.47
	寝屋川	萱島橋	33	8.6	13	25	140	8.8	8.4	12	12	6.2	40	360	1.7
	寝屋川	住道大橋	45	15	23	26	110	48	72	35	15	9.6	670	6200	9.2
	恩智川	住道新橋	1000	470	1100	1600	4500	410	540	1000	640	650	3100	13000	120
大和川水域	第二寝屋川	新金吾郎橋	49	24	31	50	170	26	30	35	33	18	99	700	4.9
	千早川	石川合流直前	2.4	0.47	1.1	1.5	6.6	1.6	1.7	1.4	0.76	0.32	0.11	2.3	0.26
	天見川	新喜多橋	7.9	4.1	6.3	4.8	13	3.0	3.3	3.5	2.0	0.81	1.1	13	0.40
	石見川	新高野橋	2.5	0.32	0.30	0.97	2.7	0.67	0.90	0.46	0.76	0.41	1.9	4.8	0.18
	東除川	明治小橋	4.2	2.0	2.6	4.6	26	3.8	3.0	2.7	1.8	1.4	8.4	92	0.36
泉州諸河川	西除川	狭山池流出端	12	8.4	53	110	800	3.0	4.0	5.9	3.8	2.2	16	120	1.4
	大津川	大津川橋	7.7	2.5	4.6	8.4	78	1.9	1.7	1.9	1.3	0.89	8.3	61	0.34
	春木川	春木橋	36	7.4	10	26	180	4.9	4.7	5.9	6.3	5.1	37	380	1.3
	津田川	昭代橋	10	2.7	7.0	12	71	4.6	3.8	4.6	3.2	1.9	15	100	0.73
	近木川	近木川橋	13	4.1	9.3	19	94	6.8	6.3	5.3	3.6	3.2	120	2700	1.5
	見出川	見出橋	26	6.3	9.5	15	110	13	8.5	10	7.8	4.4	54	420	1.4
	佐野川	昭平橋	30	7.0	11	28	130	6.4	4.1	3.4	2.4	2.0	10	110	0.88
	樫井川	樫井川橋	21	20	28	27	160	50	38	39	21	8.6	12000	35000	19
	男里川	男里川橋	9.6	2.6	2.6	6.1	56	2.2	2.2	2.6	1.7	1.0	28	110	0.41
	番川	田身輪橋	18	8.2	9.7	21	290	15	8.2	7.7	6.4	3.2	30	84	1.2
	大川	昭南橋	17	12	18	28	400	22	15	16	8.4	4.1	14	120	2.1
	東川	一軒家橋	44	9.2	13	51	1100	12	7.5	8.6	5.4	2.4	24	100	1.6
	西川	こうや橋	62	68	140	270	1100	13	12	15	12	6.3	17	92	7.8

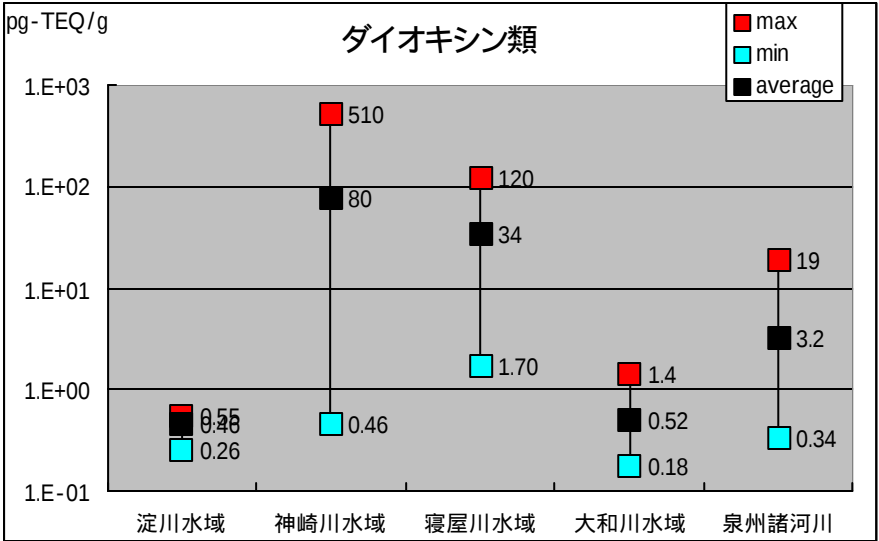


図9．ダイオキシン類の濃度範囲

(2)ダイオキシン類の構成割合

TEQ濃度

表5に水域毎のTEQ値に対するPCDDs/PCDFs/Co-PCBs寄与率を示す。

水域によって寄与率の構成割合にかなり明確な変化が見られ、淀川・神崎川・寝屋川水域はPCDFsの割合が大きく、大和川水域はPCDDs、泉州諸河川はCo-PCBsの割合が大きいという結果であった。

表5．TEQ値に対する寄与率(%)

	PCDDs	PCDFs	ノオルトCo-PCBs	モノオルトCo-PCBs
淀川水域	36	43	14	7.2
神崎川水域	26	66	5.0	2.4
寝屋川水域	40	49	7.1	2.1
大和川水域	56	39	6.0	1.2
泉州諸河川	35	22	30	15

淀川・神崎川水域は水質と同様の構成割合を示したが、寝屋川水域はCo-PCBsの割合が小さくなり、逆にPCDFsの割合が大きく、水質とは異なる傾向を示す地点が多かった。泉州諸河川では平均値での寄与率の順位は、Co-PCBs＞PCDDs＞PCDFsであったが、一部の河川で高い濃度レベルを示すCo-PCBsが影響しており、それ以外の河川については水質と同様（PCDDs＞PCDFs＞Co-PCBs）の傾向を示した。

実測濃度

図10に水域毎のPCDDs/PCDFs/Co-PCBsの最大・平均・最小濃度を示す。

全河川の濃度範囲はPCDDs：0.30～6100pg/g、PCDFs：0.32～6700pg/g、Co-PCBs：0.11～120000pg/g、平均値はそれぞれ240/190/3500pg/gであった。図11に水域毎の平均値でのPCDDs/PCDFs/Co-PCBsの構成割合を示す。

淀川・神崎川・寝屋川・泉州諸河川は65～90%がCo-PCBsで占められており、大和川水域はPCDDsの割合が大きく77%を占めて

いた。神崎川・寝屋川・大和川水域の構成は水質の構成割合と類似していた。泉州諸河川は水域の平均ではCo-PCBsが90%を占めていたが、水質と同様に一部の河川の高い濃度が平均値に影響した結果であり、それ以外の河川では水質と同様の結果であった。

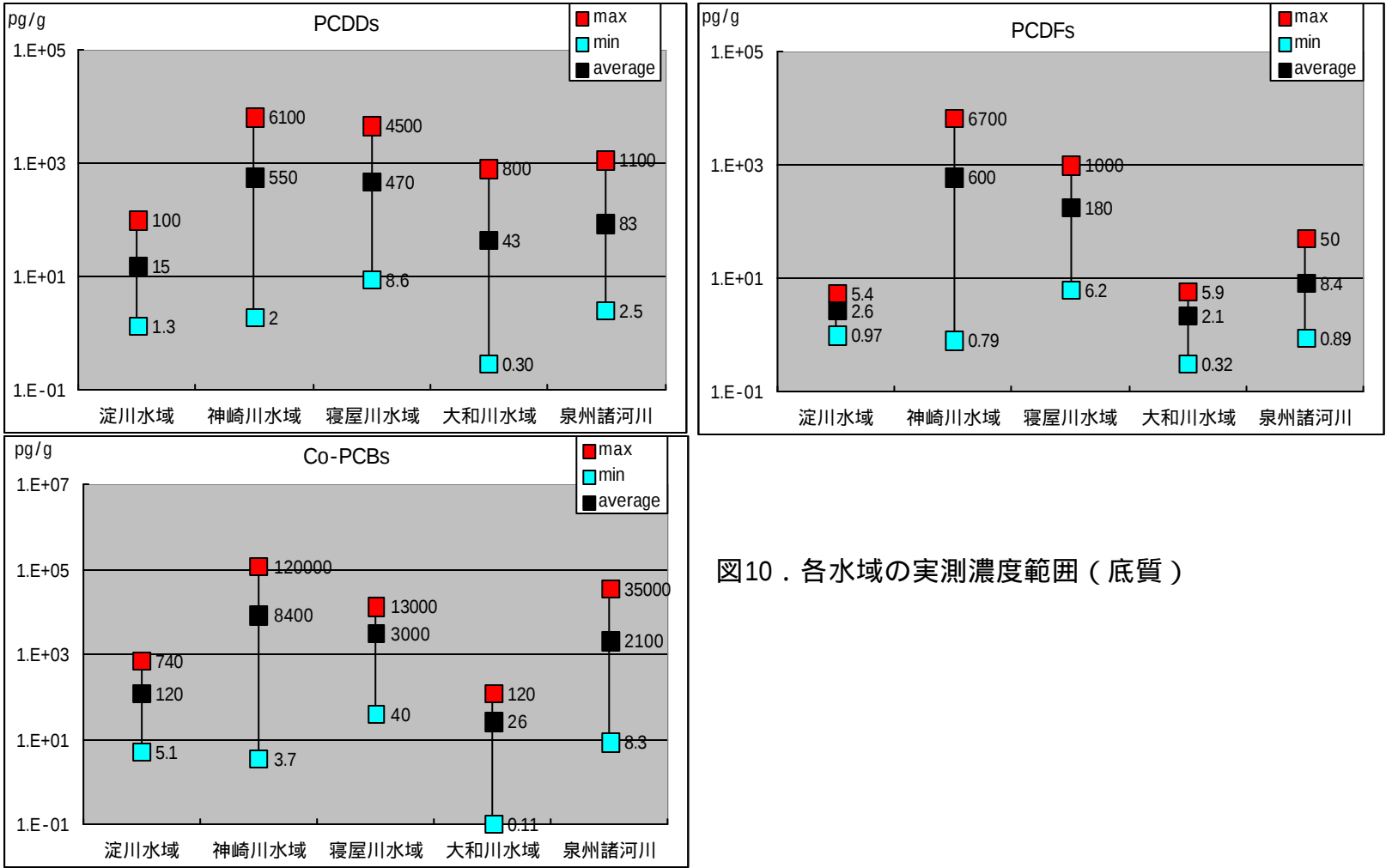


図10．各水域の実測濃度範囲（底質）

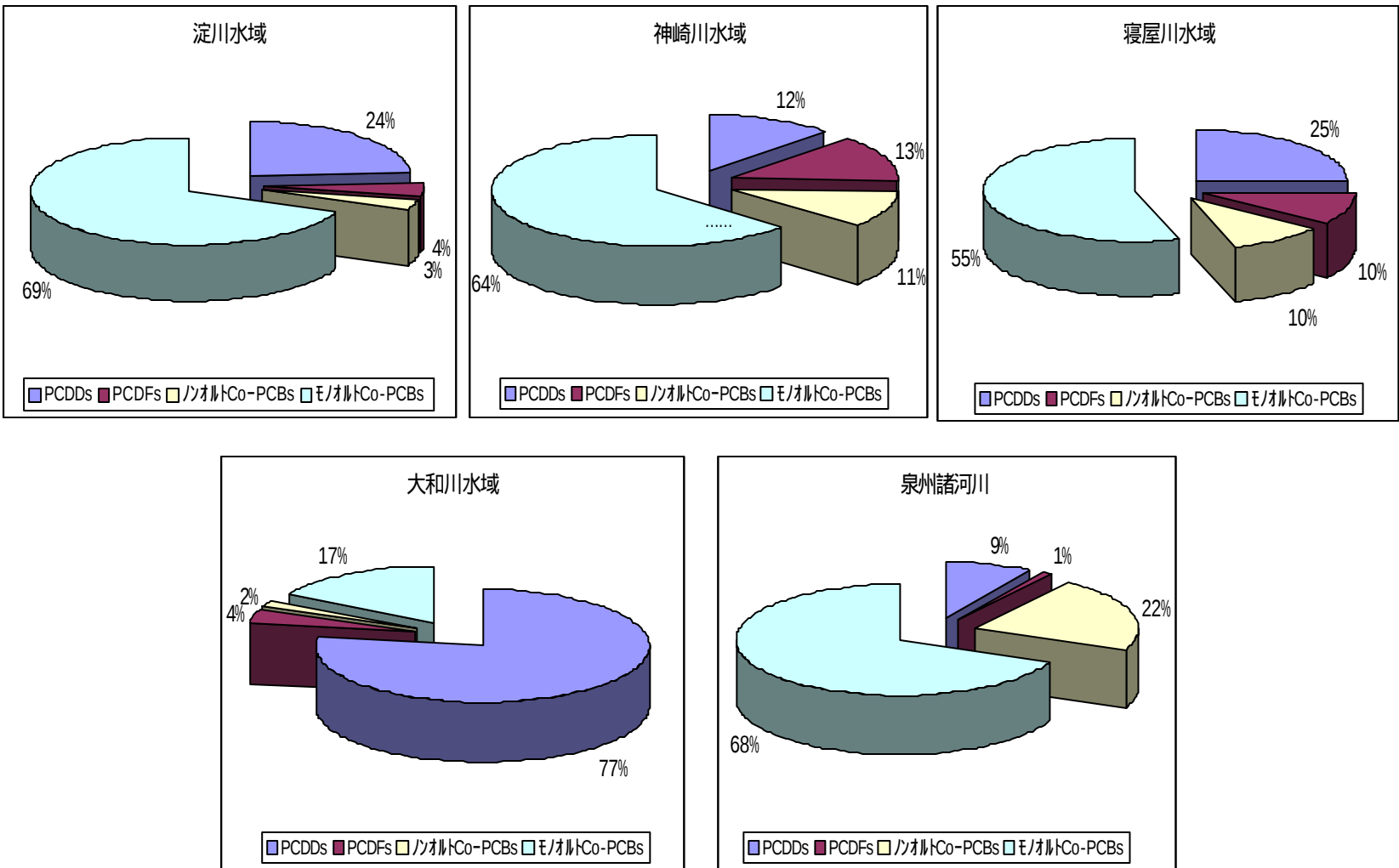


図11．各水域のダイオキシン類の構成（底質）

同族体及び異性体の構成成分

-1. PCDDs/PCDFs同族体

図12と図13にPCDDs/PCDFs同族体組成と割合を全河川の平均濃度で示した。ひげは標準偏差である。府下河川の底質の各成分濃度は河川により異なり広い範囲に分布し、また、水質とはかなり構成割合に違いが見られた。OCDDが水質では55%と半分以上を占めていたのに対して、底質は28%、その他 HxCDFs/HpCDFs：12%、OCDF：10%とPCDFsの高塩素化合物の占める割合が増加し、PCDDsの割合が高い水質とは異なる傾向であった。水域毎の同族体組成を図14に示した。水域によるPCDDs及びPCDFsの組成パターンはほとんど同じであるが、各組成の濃度レベルは水質（図6）ほど差はないものの変化が見られる。しかし、PCDFsは水域による組成パターンの変化もなく、組成の濃度レベルにも神崎川水域以外は変化がなかった。

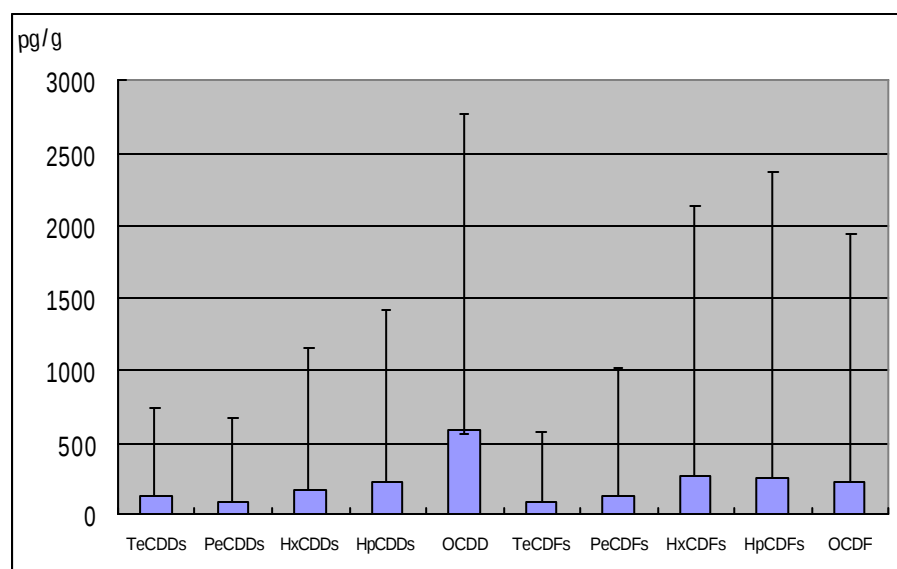


図12．同族体組成濃度（全河川平均）

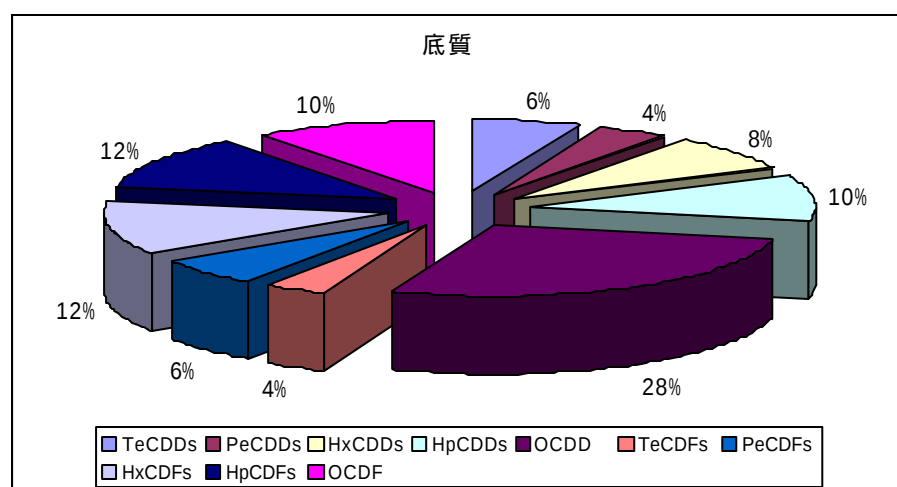


図13．同族体組成割合（全河川平均）

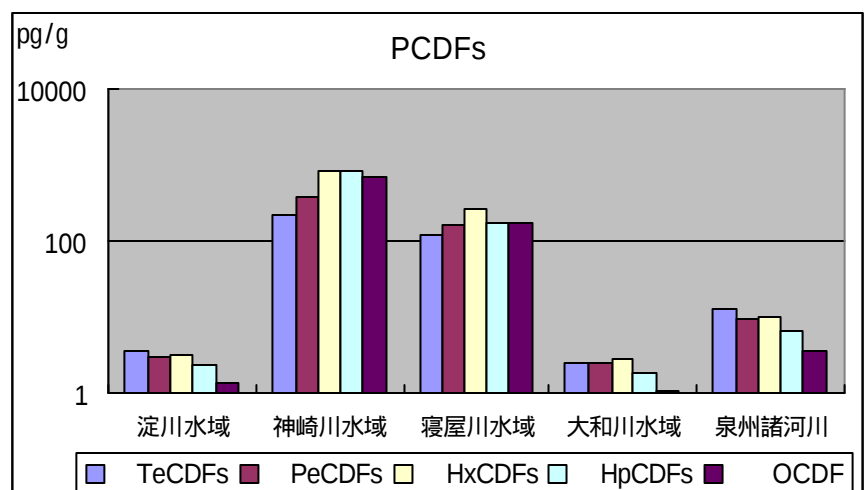
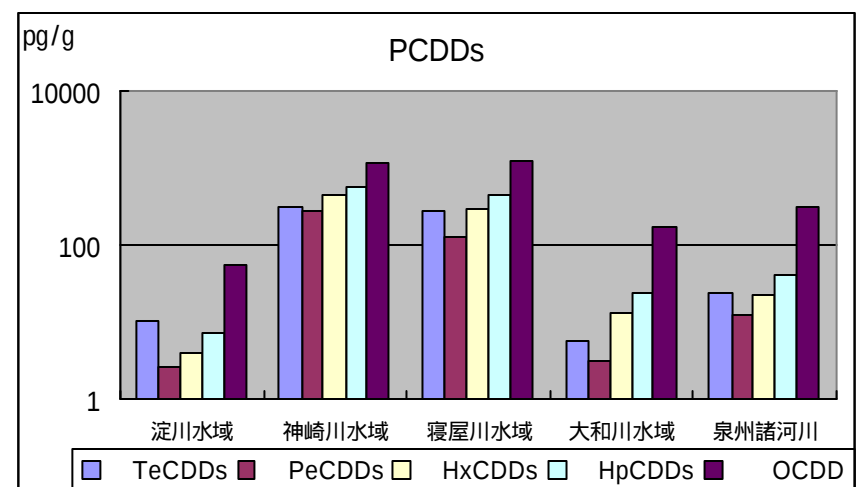


図14. 同族体組成濃度（底質：水域別の平均）

-2. Co-PCBs異性体

図15にCo-PCBs異性体組成を全河川の平均濃度で示した。#118が全体の51%を占め、#105が21%、以下#77>#156の順であった。また、ノンオルト体>モノオルト体の関係にあった。水域による異性体組成パターンの変化はほとんど見られず、全河川の平均値で代表することができる。また、底質の異性体組成パターンがそのまま水質に反映される結果となっていた。

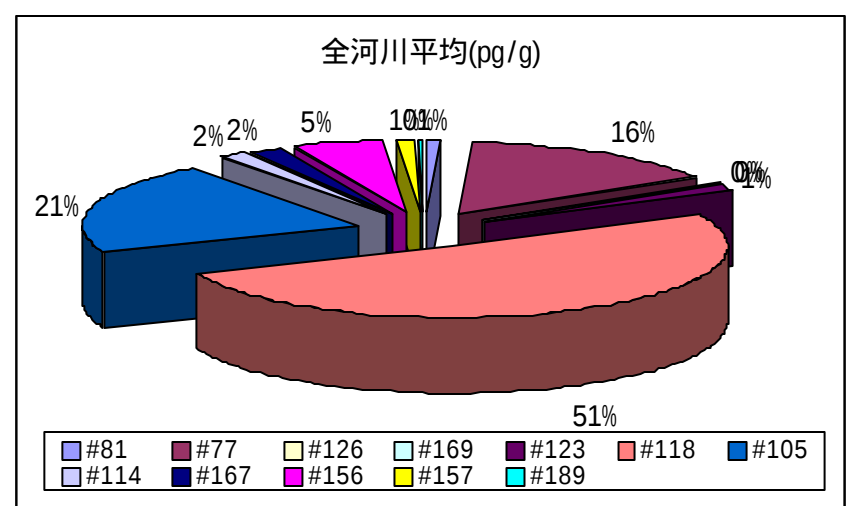


図15．Co-PCBs異性体組成割合（底質）

-3. PCB類について

PCB類の由来について検討した。各水域についての組成比を図16に示す。全水域ともPCB製品由来による汚染が推定され、泉州諸河川では特に顕著であったが、構成比は水域によって異なっていた。構成比はPCB原料によって異なることから、神崎川、寝屋川・泉州諸河川は低塩素化合物からの影響が強く、淀川・大和川水域では高塩素化合物を含む製品由来の汚染も推定される。この現象は水質の様子と少し異なっていた。

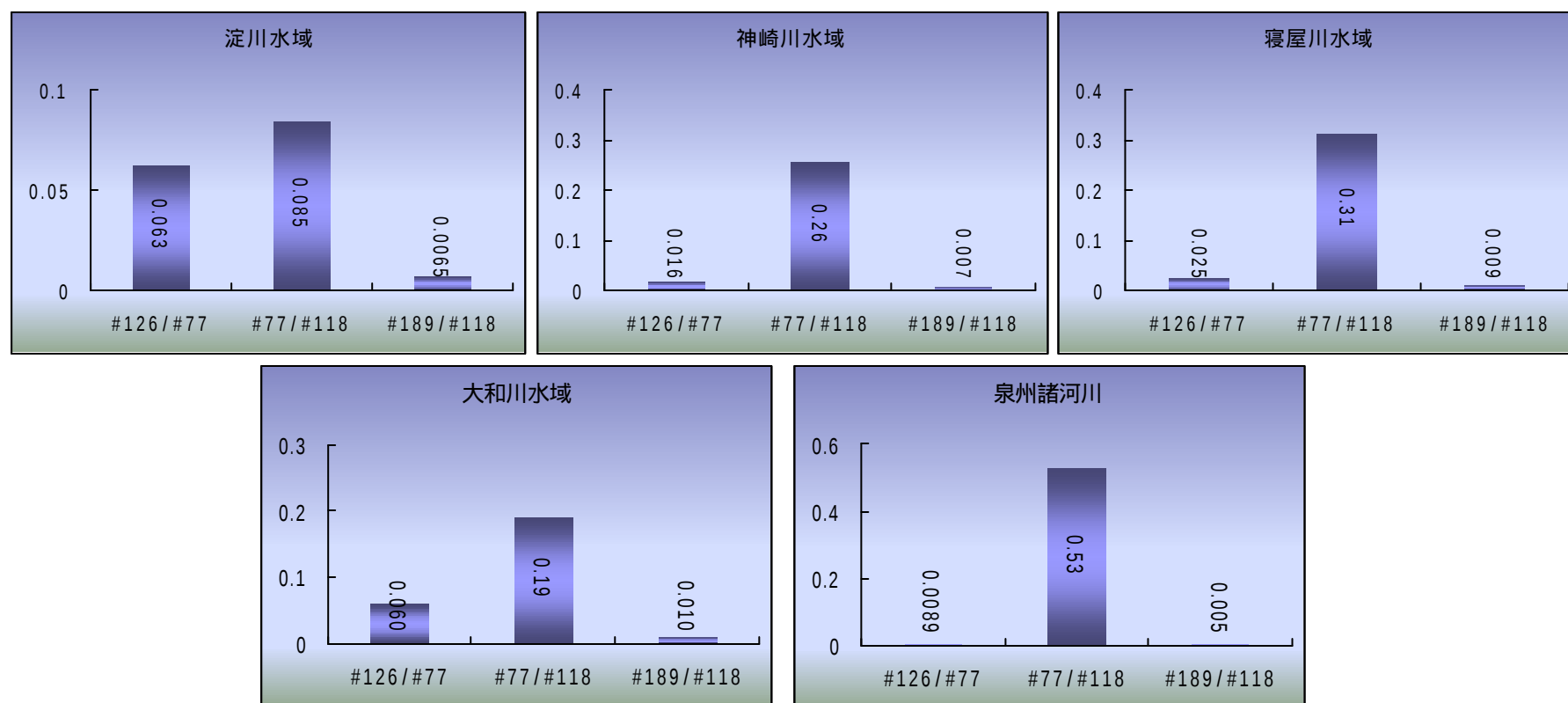


図16 . Co-PCBs異性体の組成比（底質）

まとめ

- (1)平成12年8月から11月にかけて府下36河川の水質及び底質についてダイオキシン類濃度を測定した結果、水質の濃度範囲は0.076pg ~ 1.8pg-TEQ/L、平均0.50pg-TEQ/L、底質は0.18 ~ 510pg-TEQ/g、平均27pg-TEQ/gとともに全国調査の平均値に比べてやや高い濃度であった。
- (2)水域によってダイオキシン類の構成割合が異なっていた。水質については平均値でみると神崎川・寝屋川水域はCo-PCBs、大和川・泉州諸河川はPCDDsの占める割合が高く、底質については淀川・神崎川・寝屋川・泉州諸河川はCo-PCBs、大和川水域はPCDDsが高かった。
- (3)PCDDs/PCDFs同族体組成は水質と底質でかなり類似の構成比を示した。水質ではPCDDsの中ではOCDDの占める割合が大きく、PCDFsは成分による差はあまり見られなかった。底質については水質ほど顕著な差がなかった。
- (4)Co-PCBsについては水質と底質ともに河川によって濃度差があるものの、異性体の構成比・パターンとも水域による差はほとんどなく、また、ともにPCB製品由来の汚染と考えられる。

今後は、さらにデータが蓄積されることにより大気、土壌との関係、他の水質測定項目との関連性などについて検討することが重要であると考えます。

参考文献

- 1)K.Kannan, .Tanabe,T.Wakimoto,R.Tatsukawa:J.Assoc.Off..Anal.C hem.**70**,451-454(1987)
- 2)S.Sakai,M.Hiraoka,N.Takeda,K.Shiozaki:Chemosphere,**29**,1979-1986(1994)
- 3)中野,松村,鶴川,藤森:第9回環境化学討論会講演要旨集,448-449(2000)