

# GIS ベースレセプターモデルによる汚染源解析手法の開発と展望 ～残留性有機フッ素化合物(PFCs)による広域水環境汚染における解析事例～

横国大環境研究院 ○頭士泰之, 益永茂樹

Development and Future Prospects of Novel Source Apportionment Method by GIS-based Receptor Model –Case Study on Diffuse Water Pollution by Perfluorinated Compound (PFCs)–, by Yasuyuki ZUSHI and Shigeki, MASUNAGA (Grad. Sch. of Env. and Infor. Sci., YNU)

## 1. 緒言

残留性有機フッ素化合物(PFCs)による汚染は世界中の至る所で確認され、その遍在的な汚染状況から Ubiquitous 汚染とも呼ばれる。2009年5月に国際的な残留性有機汚染物質(POPs)の規制・廃絶に係る条約(POPs条約)の締約国会議が開かれ、ペルフルオロオクタンスルホン酸(PFOS)とその合成出発物質(PFOSF)が Annex B(制限的製造・使用)として POPs に指定された。これを受けて日本においても、2010年5月より化審法の対象物質に登録されている。

しかし、PFOSをはじめとする PFCs (表1参照) の用途は撥水スプレー、繊維製品、消火剤など多岐に渡り、市販製品にも多く利用されていることから、これらを製造・利用する工場・事業所以外にも、流出源が面的に広域に存在する(いわゆるノンポイント汚染)と考えられ、製造・加工段階における一部用途への使用・製造等の規制のみでは汚染低減効果が低いと考えられる。

実際に、著者らは水環境中での PFC のノンポイント汚染実態を報告し<sup>1,2)</sup>、また東京湾底質の柱状サンプルを利用した PFC 汚染の歴史トレンド調査から一部 PFC 同族体について明確な減少傾向がみられていないことを報告してきた<sup>3)</sup>。これらのことから PFC 汚染は複雑な成り立ちとなっていると考えられ、汚染低減のためには汚染源の把握とその寄与の定量化を行い、それら情報に基づき対策に取り組む事が重要と言える。

先にも述べたとおり、PFCs による遍在的汚染が報告されており、水環境においてもノンポイント汚染形態を有し、広域に分布した汚染原因が PFC 汚染に寄与していると考えられる。著者らはこれまでに、このような特殊なタイプと言える新規汚染に対し、地理情報システム(GIS)を導入し、PFCs の汚染源把握のための新規手法開発に取り組んできた<sup>4)</sup>。GIS は近年急速に発展している技術の一つであり、環境分野においては調査・統計結果や数理モデルの計算結果を地図上に表示する等、視覚的な情報伝達を促進させる役割からその利用が注目されている。一方で GIS を「地理情報データベース」として活用した解析についてはまだ事例が多いとは言えない。化学物質汚染に関する研究分野においては、汚染予測や汚染によるリスクを表現するために GIS ベースでのモデルシミュレーション開発が行われてきており、SHANEL<sup>5)</sup>、G-CIEMS<sup>6)</sup>、ADMER<sup>7)</sup>などはフリーウェアとして一般利用可能となっている。しかしこれら GIS モデ

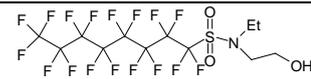
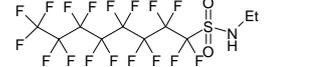
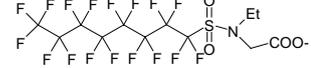
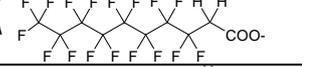
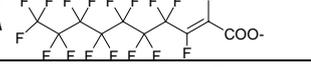
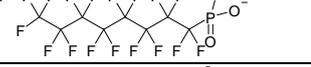
ルはいわゆるソースモデルとして分類されるべきものであり、基本的には環境放出量情報に基づいて汚染予測がなされる。このことから、「放出量情報の無い汚染」や「ミッシングソース(認知されていない汚染源)の存在」には対応できない。

上述の課題とその解決案を要約すると、PFC 汚染は

- 1) ノンポイント汚染形態を有し、空間的解析・評価が必要であり、GIS の活用が有効である
- 2) 新規汚染であり、未だ情報が限られている  
そのため寄与の大きい未知汚染源があり、ソースモデルではなく、環境中濃度(レセプターデータ)の解析から汚染源を探索するレセプターモデルによる解析が必要不可欠である

上記の2点より PFCs 汚染に対しては、GIS ベースのレセプターモデルによる汚染源解析とその汚染寄与の評価が重要になる。

表1 主要な PFCs と大別について

PFC の大別	化合物例	化学構造	備考
PFSA	PFOS (n=7), PFDS (n=9) など	$CF_3(CF_2)_nSO_3^-$	末端がスルホン酸
PFCA	PFOA (n=6), PFNA (n=7) など	$CF_3(CF_2)_nCOO^-$	末端がカルボン酸
FOSE	<i>N</i> -MeFOSE, <i>N</i> -EtFOSE (右図) など		
FOSA	<i>N</i> -MeFOSE, <i>N</i> -EtFOSE (右図), FOSA など		PFOS の分解前駆物質
FOSAA	<i>N</i> -MeFOSAA, <i>N</i> -EtFOSAA (右図) など		
FTCA	8:2 FTUCA (n=8, 右図), 10:2FTUCA (n=10) など		PFCA の分解前駆物質
FTUCA	8:2 FTUCA (n=8, 右図), 10:2FTUCA (n=10) など		テロマー物質とも呼ばれる
PFPA	PFHxPA (n=6), PFOPA (n=8, 右図) など		末端がリン酸
THPFOS	THPFOS (右図)		テロマースルホン酸

先に触れた GIS を活用した PFCs の汚染源解析の事例は、レセプターデータと GIS データベースに備えた地理情報データとの関連性解析から、商業用地や交通関連用

地がなど面的に広がった要素が PFC 汚染に強く関連していることを明らかにしており、ノンポイント汚染源の把握に GIS 利用が効果的であることを示している<sup>4)</sup>。一方でこの事例は小流域における調査解析であり、その解析結果や手法適用の拡張性についての検討やノンポイント汚染源からの寄与の評価にさらなる検討が必要であった。

そこで著者らは、解析対象範囲を東京湾流域全域に拡大し、GIS ベースレセプターモデルによる汚染源解析のさらなる発展を試み、広域に分布した未知の汚染源把握とその寄与の評価の検討を行った。

## 2. 解析方法

### 汚染源解析のフロー

東京湾流域全域の河川における PFC 汚染調査データ (レセプターデータ : 50 地点)<sup>8)</sup>を用いて GIS データベースを活用した統計アプローチによる汚染源解析、すなわち GIS ベースレセプターモデルによる汚染源解析を行った。具体的には図 1 に示したように GIS データベースから東京湾流域における集水域ブロックごとの地理情報を抽出し、これらから汚染要因の候補変数を選定した。この汚染要因候補変数を説明変数、レセプターデータを目的変数とし、重回帰分析により汚染源の探索を行った。さらにこうして得られた重回帰モデルから汚染要因の空間分布を示し、汚染予測マップの作成を行った。この結果を基に、空間的に分布した汚染要因による汚染寄与 (すなわちノンポイントソース)・ポイントソースによる汚染寄与の推定を行った。

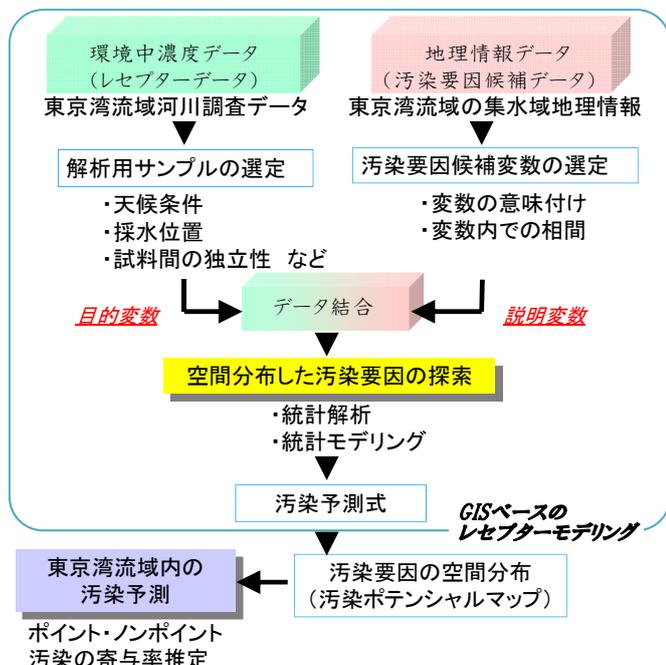


図 1 GIS ベースレセプターモデルによる PFCs の汚染源同定と寄与探索のフロー

### レセプターデータ

解析に用いるレセプターデータは、東京湾流域における PFC 汚染調査<sup>8)</sup> (調査期間 : 2009 年 4 月 3 日~5 月 1 日) によって得られたデータを利用した。このデータのうち、統計解析上のバイアスや汚染源に関係しない環境要因影響を極力排除するため、以下の条件に基づくもののみを利用した。

- 1) 互いに独立した試料である (直接的に上流・下流の関係がなく、河川水の混じり合いがない)
- 2) 潮汐による大きな水質変動を受けていない
- 3) 採取点が集水域の末端から大きくずれていない
- 4) 前日~採取時までの間に降雨が無く、runoff イベントの影響が少ない

### 汚染要因候補変数

汚染源解析において重要となる GIS データベースについては表 2 のように情報整備を行った。

表 2 整備した主要な地理情報データ

No.	抽出変数・データ	データ名	データ形式・解像度	データ年度
1	空港占有率	空港データ	ベクター	平成 19 年度
2	廃棄物処理場個数密度 (平成 2 年度のみ)	公共施設データ	ベクター	(平成 18 年度) 平成 2 年度
3	道路幅員密度	道路密度・道路延長メッシュ	1 km メッシュ	平成 16 年度
4	各種土地利用の面積密度	土地利用細分メッシュデータ	100 m メッシュ	平成 18 年度
5	駅占有率	鉄道データ	ベクター	平成 17 年度
6	感潮予測ライン	標高・傾斜度細分メッシュ	250 m メッシュ	昭和 56 年度
7	人口密度	国勢調査 (人口)	1 km メッシュ	平成 17 年度
8	事業者・事業所数密度	事業所・企業統計データ	1 km メッシュ	平成 18 年度
9	下水整備率	下水整備状況	ベクター	平成 16 年度
10	集水域境界/面積	東京湾流域分水界データ	ベクター	平成 16 年度
11	公共・商業施設位置	全国基盤地図	ベクター	平成 21 年販売開始年

このデータベースを基に集水域ごとに地理情報を集計し、汚染要因候補変数としてまとめた。汚染源解析に用いたデータは、

- 1) 汚染要因として解釈が可能なもの
- 2) 変数間で高い相関がなく、独立した影響要因と捉えられるもの ( $r < 0.7$ )

として、土地利用種 (農用地、森林荒地以外、交通用地、河川地及び湖沼、その他の用地、ゴルフ場)、下水整備率、下水集水面積密度、廃棄物処理場個数密度、駅占有率、

人口密度の11種を抽出した。森林荒地以外とは人的負荷のかからない「森林」と「荒地」の土地以外の用地であり、土地利用形態に関わらず人的負荷が一樣にかかる地域を表現するものとした。駅占有率は、集水域内に占める駅を中心とした半径50m範囲の割合として求め、都市化の指標値とした。下水集水面積密度は、集水域内に下水処理場が立地する場合、集水域内に占めるその処理場の集水面積の割合とし、下水負荷の指標とした。

人口密度については、いくつかの変数と  $r = 0.9$  以上の相関係数を示したが、先行研究においてPFC汚染指標として用いられており<sup>9,10</sup>、それらとの比較検討のために残し、変数間の強相関による多重共線性については、重回帰分析における変数選択のステップにて対処した。

GISベースレセプターモデルによる汚染源探索

レセプターデータと汚染要因候補データ間での関係性解析を行うことで、GISベースレセプターモデルによる汚染源探索を行った。環境中の化学物質濃度の分布は一般的に対数正規分布することが知られており、PFC濃度データもその分布形状から対数変換した。この対数濃度と汚染要因候補データとの間に相関がみられる場合、多くのケースで対数関数の関係が見られたことから、最終的に汚染要因候補データも対数変換して両対数として重回帰分析を行い、パラメータ推定を行った。変数の絞り込みはステップワイズ前進法 ( $p_{in}, p_{out} < 0.05$ ) により行った。回帰モデルは式(I)の一般式で表わされる。

$$PFC_{conc} = \prod_{j=0}^n f_j^{\beta_j} \dots (I)$$

ここで、ある汚染要因を  $j$  とし、 $f_j$  は  $j$  の汚染要因スコア、 $\beta_j$  は回帰における推定パラメータである。ただし、 $j = 0$  のとき  $f_j = e$  である。

汚染ポテンシャルマップ

得られた回帰モデルを用いて汚染要因の空間密度分布を算出した。この分布図は各集水域ブロックにおけるPFC汚染要因の集中度を示し、集水域ブロックが持つPFC汚染に寄与する潜在能であることから、汚染ポテンシャルマップと呼ぶ事とする。ここで考慮される汚染要因は空間分布したもののみで、スポット的に大きな負荷のかかるポイント汚染源については、GIS情報やサンプルの少なさ等の問題から回帰モデルに組み込んでいない。このようなポイント汚染源と考えられた影響については、後述する統計処理の段階で回帰モデルから除外した。すなわちここでの回帰モデルは面的な広がりを持ついわゆるノンポイント汚染源からの影響のみを評価するものとなる。

汚染寄与推定

上述の汚染ポテンシャルマップは汚染要因分布を示すものであり、河川中濃度を表現するものではない。東京湾流域河川におけるPFC濃度予測には、汚染ポテンシャルマップについて河川流下に伴う各集水域ブロックからの河川水の流入によるPFC濃度の混合・希釈を考慮する必要がある。今回の解析においては、各集水域における流量データの取得が困難であったため、流下に伴うPFC負荷量の加算によって濃度を計算することができなかった。そこで、流下過程ごとに集水域を再構築して地理情報を再集計し、回帰モデルから濃度を再算出することで、流下を考慮したPFC汚染予測マップを算出した。この結果を基に、ポイント・ノンポイントソースによる汚染寄与の推定を行った。

3. 解析結果と考察

GISベースレセプターモデルの結果

PFOS, PFOA, PFNA, 溶存有機炭素 (DOC), 懸濁物質 (SS), 電気伝導度 (EC, イオン性物質の指標) について汚染要因探索の結果を表3に示す。

表3 汚染源探索において得られた回帰モデル

物質	$\beta_j$ 説明変数名 (上段) 偏回帰係数 (中段) 標準化偏回帰係数 (下段)	$\beta_2$	$\beta_3$	$\beta_0$	$R^2$ -ad	定量可能サンプル (%)
PFOA	森林荒地以外	-	-	定数	0.84	98
	1.3	-	-	2.2		
	0.91	-	-	-		
PFNA	森林荒地以外	-	-	定数	0.68	94
	1.4	0.15	-	4.4		
	0.77	0.22	-	-		
PFOS	交通用地	-	-	定数	0.84	94
	0.83	0.42	-	1.6		
	0.51	0.46	-	-		
DOC	交通用地	-	-	定数	0.07	100
	0.75	-	-	2.0		
	0.30	-	-	-		
SS	森林荒地以外	-	-	定数	0.39	98
	0.56	-0.34	0.24	1.2		
	0.55	-0.44	0.32	-		
EC	駅占有率	-	-	定数	0.22	92
	0.39	-	-	8.0		
	0.48	-	-	-		

PFCsについては18種の同族体 (PFCA6種, 鎖長が枝分かれした分岐PFCA4種, PFSA2種, PFOS, 分岐PFOS2種, PFOSの前駆物質3種) について同様の解析を行ったが、濃度データの45%以上が < LOQ となる同族体

(PFPeS, NMeFOSAA) では自由度調整済み  $R^2(R^2\text{-ad})$  が 0.4 以下と低い結果となり、有効な解析には  $>LOQ$  のデータが一定割合以上必要であると言える。DOC, SS, EC については表 3 に示したように、有効なデータ数が十分そろっていたものの、 $R^2\text{-ad}$  が低い結果となった。DOC についてはノンポイント汚染による負荷があると考えられ、降雨時に runoff により流出量が増加する現象も観測されている<sup>2)</sup>。SS についてもノンポイント汚染負荷として降雨時の流出量の増加が見られる<sup>11)</sup>。一方で、SS と都市域（もしくは森林域）土地被覆との間に有意な相関が見られなかったとする報告があり<sup>12)</sup>、SS のように、降雨流出によって顕在化するタイプのノンポイント汚染に対して、平水時の状況を分析する本手法ではその影響の捕捉ができないと言える。これに対し PFCs は水溶性の高いイオン性物質であり、高い土壌浸透特性<sup>13)</sup>、それ由来すると考えられる地下水汚染<sup>14)</sup>が報告されている。すなわち、PFCs のような水溶性の高い物質は降雨流出によってのみ汚染が顕在化するわけではなく、基底流量時においても常に一定した流出があると言える。このような水溶性の物質であるという PFCs の性質が本手法によって空間分布した PFC の汚染要因を捉える事を可能にしていると考えられる。水域における GIS ベースレセプターモデルの適用の際には、この点をよく検討することが重要になると言える。

分岐 PFCA についても、低い  $R^2\text{-ad}$  を示したが、これはノンポイント汚染源からの流出が主要な汚染原因でないことを示唆するものと考えられる。分岐 PFCA の汚染源と環境動態については未だ不明な点が多いが、直鎖 PFCA とは異なる可能性が示唆されている。これまでに得られている知見については別報<sup>3,8,15)</sup>を参照されたい。PFOS について、回帰モデルによる推定値と実測値を、横軸を交通用地としてプロットしたものを図 2 に示した。

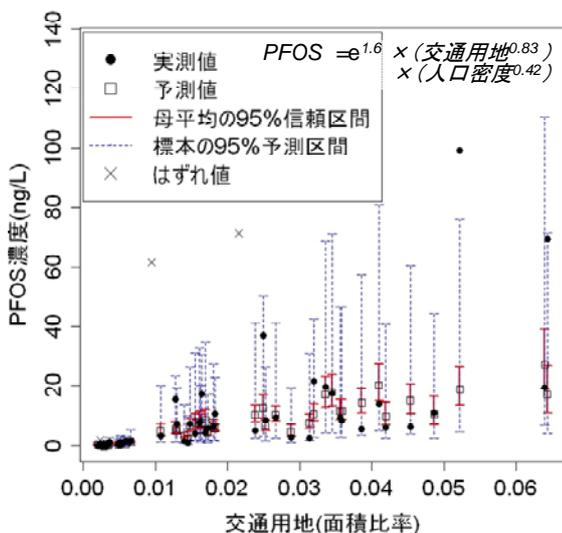


図 2 回帰モデルによる推定値と実測値のプロット

解析方法の節でも触れたが、スポット的に負荷のかかるポイント汚染源の影響については、解析結果に組み込むことが困難であるため、実測値が推定値を大きく上回る場合にはポイント汚染源からの負荷による影響があると考え、はずれ値として回帰分析に用いるデータから除外した。除外の基準は推定値  $+3\sigma$ （ここでの  $\sigma$  は標本の予測区間に基づく標準偏差）を上回る場合とした。50 プロットの内、いずれか 1 つの実測プロットでもこれを偶然上回る確率は 12.5% であり、基本的にはこれを上回るケースはポイント汚染源によるものと考えられる。実際にははずれ値と判断された地点には電子部品工場の集中的な立地、自衛隊演習場など汚染源と考えられるものの存在が確認された。

汚染源探索によって抽出された汚染要因について各 PFC 同族体の傾向を見たところ、PFCAs は人的負荷が一樣にかかる地域となる「森林荒地以外」の土地利用が共通して選択された。このことから PFCAs のノンポイント汚染源は、人的負荷がかかる地域に広範に分布していると言える。PFCAs の中でも PFNA については下水負荷の大きさの指標を表わす「下水集水面積密度」が森林荒地以外とともに選択された。これは PFNA の汚染源として下水処理場排水が寄与していることを示している。実際に、東京湾流域における水質調査においても下水処理場排水中の際立った PFNA 濃度レベルが確認されており<sup>8)</sup>、本結果は実際の結果を良く反映したものであると言える。PFSA, PFOS の分岐異性体と前駆物質については共通して交通用地が選択された。これまでに人口密度との相関が報告されていたが<sup>9,10)</sup>、交通用地の存在の方が汚染要因をより良く反映するものと言える。実際の環境調査において道路塵埃中に高濃度で PFC が含まれることが報告されており<sup>16)</sup>、PFCs によるノンポイント汚染を示唆するものと考えられる。ただし、これは PFOS 関連物質に特有のものではなく、PFCAs についても同様であったため、本解析において PFOS 関連物質のみ交通用地が汚染源として選択された結果を支持するものではない。特許公報データベースにおけるキーワード検索調査<sup>17)</sup>からは PFOS の交通関連における利用が示唆され、PFOS 関連物質の空間分布した汚染源については、本解析の結果と合わせてさらなる調査による特性化が求められる。

### 汚染ポテンシャルマップ

上述の回帰モデルに基づき、作成した PFOS のポテンシャルマップを図 3 に示す。図中の値は濃度で示されているが、これは集水域内に存在する汚染要因によって形成される各集水域ブロック末端の河川水中 PFOS 濃度を意味する。PFOS の汚染要因には交通用地と人口密度が選択され、都心に近づくほど汚染要因が集中する傾向が

見られた。

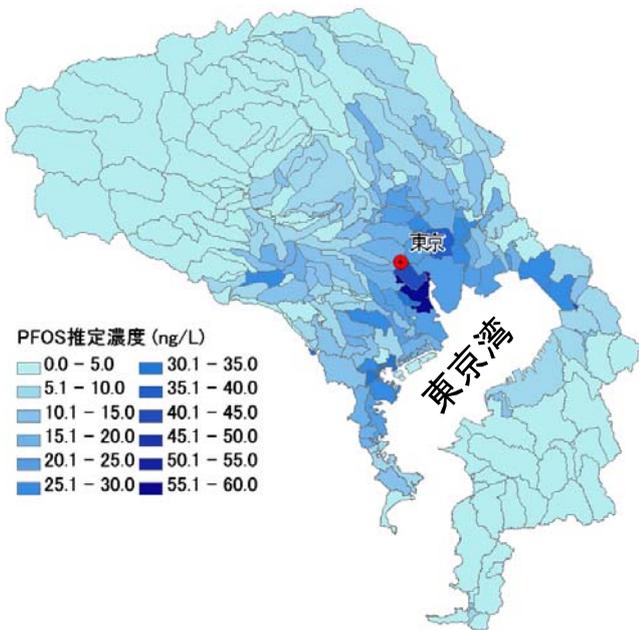


図3 東京湾流域におけるノンポイント汚染源の汚染ポテンシャルマップ (PFOS)  
集水域ブロックの区分けごとに汚染要因密度を表示

$R^2\text{-ad} > 0.5$  であった PFC 同族体についての汚染ポテンシャルマップを図4に示す。

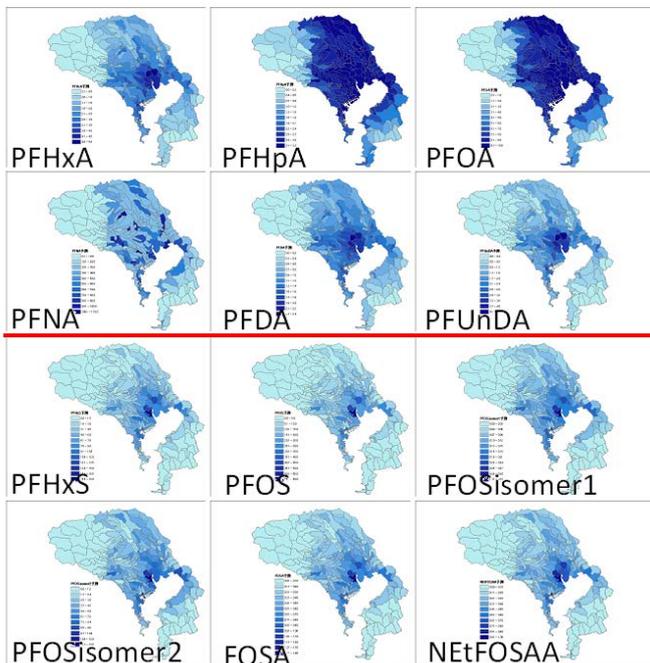


図4 各 PFC 同族体の汚染ポテンシャルマップ ( $R^2\text{-ad} > 0.5$ )

先述の通り、汚染要因の傾向はPFCAsとPFSAs及びその関連物質の2つに大別された。その結果の空間分布傾向について、PFCAs(図4の上半分)、特にPFHpAとPFOAは汚染要因が一樣に分布する傾向にあることが窺える。

この中でPFNAは下水処理場の存在によってスポット的に高いレベルになっている。それに対しPFSAs及びその関連物質(図4の下半分)は都心部に集中していることが窺える。PFCAs汚染要因分布がPFSAs等と比較して空間的に一樣であったことは、これらPFCAsの(ポイント汚染源を除く)空間分布した汚染源があらゆる点に拡散して存在し、汚染の遍在性がより高いことを示唆している。

### ポイント/ノンポイント汚染の寄与率推定

東京湾流域におけるPFC汚染予測について、方法の項で述べた手順により流下過程での混合希釈を考慮した予測汚染マップを算出した。この予測汚染マップはノンポイント汚染源からの流出負荷分の影響のみを反映したものとなる。これに対して、実測値はポイント及びノンポイント汚染源からの流出負荷分であり、実測値と予測汚染マップでの推定値の差分から任意の地点でのポイント・ノンポイント汚染負荷の寄与内訳を推定することが可能となる。図5にPFOSについて、主要河川における寄与内訳の結果を示す。河川流域によっては、ノンポイント汚染負荷がポイント汚染負荷と同等かそれを上回るケースがあった。ここでノンポイント汚染源からの負荷量は晴天時におけるものである。PFC汚染は降雨時におけるrunoffによりノンポイント汚染源からの流出負荷量が増大することが明らかとなっており<sup>1,2,16,18,19)</sup>、降雨影響を含めた場合ノンポイント汚染源の寄与はより大きなものになると考えられる。

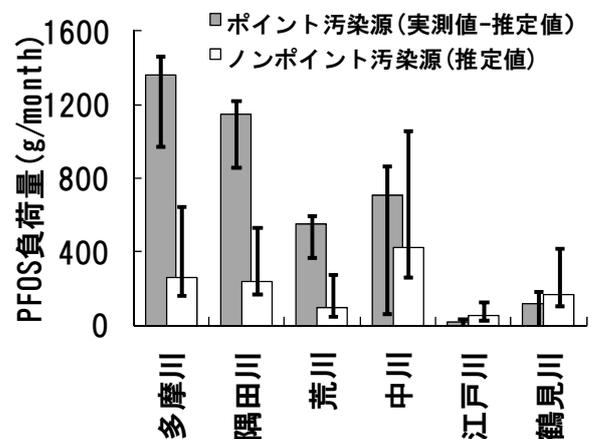


図5 東京湾主要河川におけるPFOSのポイント・ノンポイント汚染負荷内訳

実測値について、単回調査のため実測値変動幅はエラーバー(SD幅)には考慮されていない

### 4. まとめと今後の展望

PFC汚染に対し、GISを活用したレセプターモデルによる汚染源解析手法の開発を行った。

PFC 汚染は、未だにその情報が限られ、ノンポイント汚染源を持つことも知られており、「未知汚染源の把握」や「空間分布した汚染源の評価」に大きな課題が残されていた。本手法は、GIS ベースのレセプターモデルであり、それらの課題に対し、汚染源とその空間分布状況・寄与を示し、未知汚染源としてのノンポイント汚染源を明確化することに成功した。このことから本手法を、未知汚染源の探索手法、ノンポイント汚染の評価に対する有望な手段として提案できる。

一方で本研究を通じて、この手法における今後の発展のための課題が抽出された。それらは下記のようにまとめることができる。

- ・ 解像度が集水域単位と荒く、向上が望まれる
- ・ 個別のポイントソースの特定と評価方法が必要である
- ・ 汚染要因候補変数の拡充が必要、すなわち GIS データベースの増強が必要である
- ・ 流下過程における PFC 挙動の検討が必要である
- ・ PFC 汚染以外への適用性の検討が望まれる
- ・ 降雨時における負荷増大分の評価法への拡張検討が望まれる

今後これらの問題を克服し GIS ベースレセプターモデルをさらに発展させるために、解像度を向上させるための原単位算出、PRTR データの活用、GIS データベースの発展、降雨時の汚染増加影響の検討、集水域からの汚染物質の流出特性とその特性の GIS 解析への導入に関する研究などが必要となる。

## 謝辞

本研究は日本学術振興会特別研究員事業科研費補助金(213467, 研究課題名: PFCs による空間的・歴史的汚染実態及び対策に向けた汚染寄与の解明)の助成を受けて行なわれた。

また本研究は埼玉県環境科学国際センターと東京都健康安全研究センターとの東京湾流域汚染調査に関する共同研究から得られたデータを利用することで遂行する事が出来た。ここに共同研究者への謝意を記す。

## 参考文献

- (1) Zushi Y., Takeda T. and Masunaga S., (2008) Existence of nonpoint source of perfluorinated compounds and their loads in the Tsurumi River basin, Japan, *Chemosphere*, **71**, 1566-1573.
- (2) Zushi Y. and Masunaga S., (2009) First-flush loads of perfluorinated compounds in stormwater runoff from Hayabuchi River basin, Japan served by separated sewerage system, *Chemosphere*, **76**, 833-840.
- (3) Zushi Y., Tamada M., Kanai Y. and Masunaga S., (2010) Time trends of perfluorinated compounds from the sediment core of Tokyo Bay, Japan (1950s-2004), *Environ. Pollut.*, **158**, 756-763.
- (4) Zushi Y. and Masunaga S., (2009) Identifying the nonpoint source of perfluorinated compounds using a geographic information system based approach, *Environ. Toxicol. Chem.*, **28**, 691-700.
- (5) 産業技術総合研究所, (2004) 産総研-水系曝露モデル AIST-SHANEL, <http://www.aist-riss.jp/projects/AIST-SHANEL/>.
- (6) 環境リスク研究センター, (2008) Grid-Catchment Integrated Environmental Modeling System(G-CIEMS), <http://www.nies.go.jp/gciems/gciems.html>.
- (7) 産業技術総合研究所, (2002) 産総研-曝露・リスク評価大気拡散モデル AIST-ADMER, [http://www.aist-riss.jp/software/admer/ja/index\\_ja.html](http://www.aist-riss.jp/software/admer/ja/index_ja.html).
- (8) Zushi Y., Ye F., Masunaga S., Motegi M., Nojiri K., Hosono S., Suzuki T., Kosugi Y. and Yaguchi K., (2010) Survey of perfluorinated compound (PFC) pollution in the basin of Tokyo Bay using the simultaneous analysis method for 35 types of PFC, *Organohalogen Compd.*, **72**, In Press.
- (9) Murakami M., Imamura E., Shinohara H., Kiri K., Muramatsu Y., Harada A. and Takada H., (2008) Occurrence and Sources of Perfluorinated Surfactants in Rivers in Japan, *Environ. Sci. Technol.*, **42**, 6566-6572.
- (10) Pistocchi A. and Loos R., (2009) A Map of European Emissions and Concentrations of PFOS and PFOA, *Environ. Sci. Technol.*, **43**, 9237-9244.
- (11) Furumai H., Balmer H. and Boller M., (2002) Dynamic behavior of suspended pollutants and particle size distribution in highway runoff, *Water Science and Technology*, **46**, 413-418.
- (12) Brett M. T., Arhonditsis G. B., Mueller S. E., Hartley D. M., Frodge J. D. and Funke D. E., (2005) Non-point-source impacts on stream nutrient concentrations along a forest to urban gradient, *Environmental Management*, **35**, 330-342.
- (13) Murakami M., Sato N., Anegawa A., Nakada N., Harada A., Komatsu T., Takada H., Tanaka H., Ono Y. and Furumai H., (2008) Multiple evaluations of the removal of pollutants in road runoff by soil infiltration, *Water Research*, **42**, 2745-2755.
- (14) Murakami M., Kuroda K., Sato N., Fukushi T., Takizawa S. and Takada H., (2009) Groundwater Pollution by Perfluorinated Surfactants in Tokyo, *Environmental Science & Technology*, **43**, 3480-3486.
- (15) Furdui V. I., Helm P. A., Crozier P. W., Lucaciu C., Reiner E. J., Marvin C. H., Whittle D. M., Mabury S. A. and Tomy G. T., (2008) Temporal trends of perfluoroalkyl compounds with isomer analysis in lake trout from Lake Ontario (1979-2004), *Environ. Sci. Technol.*, **42**, 4739-4744.
- (16) Murakami M., Shinohara H. and Takada H., (2009) Evaluation of wastewater and street runoff as sources of perfluorinated surfactants (PFSs), *Chemosphere*, **74**, 487-493.
- (17) 内海秀樹, 山崎貴裕, (2009) 有機フッ素化合物 PFOS を事例にした用途探索手法に関する研究, *環境システム研究論文集*, **137**, 183-189.
- (18) 岡本梨佐, 田中周平, 藤井滋穂, Shivakoti B. R., (2009) 琵琶湖南東岸流入河川における有機フッ素化合物類の存在形態, *第12回日本水環境学会シンポジウム講演集*, 207-208.
- (19) 錦織浩志, 村上道夫, 酒井宏治, 小熊久美子, 高田秀重, 滝沢智, (2010) 雨天時における入間川のフッ素系界面活性剤の実態調査, *第19回環境化学討論会*, 496-497.