

토양 시료 중의 무기 Priority Pollutants 정량법 연구

安泰好 · 李赫熙 · 李石根*

한국화학연구소 분석실

(1994. 1. 26 접수)

The Determination of Inorganic Priority Pollutants in Soil

Tae-Ho Ahn, Hyuk-Hee Lee, and Sueg-Geun Lee*

Chemical Analysis Division, Korea Research Institute of Chemical Technology,
Daejeon 305-606, Korea

(Received January 26, 1994)

일반적으로 환경시료는 대기, 수질, 토양 및 고체 폐기물 등으로 구분할 수 있으나 국내의 수질오염 공정시험방법¹과 미국의 EPA 방법²에서 다루는 토양의 분류에는 차이가 있다. EPA 방법(SW-846)에서는 토양을 고체 폐기물과 같이 분류하고 EPA 3050 법에서 AAS와 ICP로 분석할 시료의 전처리방법을 명시해 놓고 있다. 이와는 달리 수질오염공정시험방법에서는 토양편을 따로 분류하고 있으나, 환경적인 측면보다는 농작물의 오염상태 조사나 농수산물 재배에 더 비중을 두고 있으며 항목별 시험법에서 Cd, Cu, As의 시험법만을 규정해 놓고 있다. 그러나 수질시료에 대해 이차오염원으로 작용하는 토양의 역할은 그 중요성이 매우 크다고 할 수 있으며, 따라서 더 이상 토양을 농작물과 관련된 환경시료로만 볼 수 없는 형편이다.

수질오염공정시험방법의 토양편이 완전하지 않기 때문에 토양에 함유된 무기 priority pollutants를 추출하여 정량하기 위해 폐기물공정시험방법³의 용출시험방법 및 정량법을 대신 이용하고 있는 실정이다. 그러나 이 방법은 매립처분용 폐기물시료를 목적으로 제정된 것이므로 그대로 토양에 적용하기에는 무리가 있다. 또한 토양은 물론 고체 폐기물의 경우에도 환경오염의 심화와 산성비 등의 영향을 고려해 볼 때 pH 5.8~6.3의 약한 추출조건을 지켜온 폐기물공정시험방법의 용출시험방법은 문제가 있는 것으로 사료된다. 그러나 국내에서는 토양 및 고체

폐기물에 관한 효율적인 추출법과 분석법에 관한 체계적인 연구가 거의 이루어지지 않고 있는 실정이다. 따라서 EPA 3050법과의 비교를 통해 토양시료에 대해 현재 사용되고 있는 폐기물공정시험방법의 용출시험방법의 효율성을 진단하는데 본 연구의 목적이 있다.

본 연구에서는 토양을 대상시료로 정하고 전술한 두 추출법을 사용하여 EPA에서 지정한 무기 priority pollutants 중에서 asbestos를 제외한 14종의 무기성분을 정량하였다. 시안을 제외한 13종의 무기원소는 AAS와 HG-AAS를 주로 이용하여 정량하였으며, 결과의 신뢰도를 확인하기 위해 ICP/MS(Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometer)를 이용한 분석도 같이 수행하였다. 시안 분석은 폐기물공정시험방법의 전극법과 비색법을 이용하였다.

실 험

시약 및 기기

본 연구에 사용한 토양은 Environmental Resource Associates⁴ 제품(Cat. No. BMD-57: Inorganic blank soil standard)으로 염산, 질산, 그리고 증류수로 10회 이상 추출하여 무기성분을 제거한 후 사용하였다. 위와 같이 준비한 blank soil을 EPA 3050법에 따라 추출한 후 AAS, HG-AAS, ICP/MS로 분석한 결과를 보면 모든 원소가 검출한계 이하의

값을 나타냈다. 최종적으로 추출방법 및 분석방법의 평가를 위해 Environmental Resource Associates의 certified soil(Cat. No. PPS-46)을 사용하였다.

본 연구에서 사용한 AAS 및 HG-AAS는 Perkin-Elmer사 2380 Atomic Absorption Spectrophotometer 및 MHS-10 Mercury Hydride System을 사용하였으며 ICP/MS는 VG Elemental사 PQ II PLUS를 사용하였다. 시안 분석에는 Shimadzu UV-2100과 Corning사 pH meter model 130을 사용하였다. AAS 및 HG-AAS의 분석조건은 기기 제작사가 추천하는 표준조건에 따랐으며 ICP/MS 분석조건은 다음과 같다.

- Forward power: 1300 W
- Reflected power: <10 W
- Ar cool gas flow: 13 l/min
- Ar auxiliary gas flow: 0.6 l/min
- Ar nebuliser gas flow: 0.70 l/min
- Sampling depth: 12 mm

실험방법

표준용액의 조제. 시안을 제외한 13종의 무기원소의 경우 AAS 분석을 위해 Aldrich사 1000 ppm 저장용액을 제작사가 추천한 농도범위로, 그리고 ICP/MS 분석에는 SPEX사 100 ppm 다원소 표준용액을 0.05~0.2 ppm의 검정 농도범위로 각각 희석하여 사용하였다.

시안이온 표준용액은 1000 ppm의 저장용액 적당량을 취해 전극법의 경우 0.01~10 ppm의 범위로, 비색법의 경우 0.05~2.0 ppm의 범위로 희석하여 사용하였다.

토양시료의 조제. AAS 및 ICP/MS 분석용 토양시료는 100 ppm의 표준용액 5.0 mL를 취해 50 g의 미리 건조된 blank 토양에 각각 첨가한 후 다음과 같은 네 가지 방법으로 건조시켜 조제하였다. 첫번째 방법(Method 1)은 낮은 온도의 가열판에서 3~4일 동안 서서히 가열한 후 105±5°C의 오븐에서 4시간 건조하였고, 두번째 방법(Method 2)은 rotary evaporator를 사용하여 물을 증발시킨 후 소량의 증류수로 증발접시에 옮겨 역시 오븐에서 4시간 건조시켰다. 세번째 방법(Method 3)은 먼저 표준용액이 첨가된 시료를 6시간 shaking 해준 후에 두번째 방법과 동일한 방법으로 건조시켰으며, 네번째 방법

(Method 4)은 표준용액을 첨가하여 24시간 정치시킨 후 위 세번째 방법과 동일하게 조제하였다.

시안 분석용 토양시료는 blank soil과 certified soil 각각 40 g에 2% 수산화나트륨 용액 20 mL를 가하여 염기성으로 만든 후, 시안이온 1000 ppm 저장용액 5.0 mL를 첨가하여 공기중에서 풍건시켜 조제하였다.

추출법. 폐기물공정시험방법의 추출법은 폐기물공정시험방법의 용출시험방법 과정에 따라 실험하였으며, 단 Ag의 경우는 염산 대신 질산을 사용하였다. EPA 방법의 추출법은 EPA 3050법에 따라 실험하였으며, ICP/MS 분석용 용액과 Ag의 경우에는 진한 염산 대신 분자이온의 방해가 가장 적은 진한 질산을 사용하였다.⁵ 시안이온은 다른 이온의 방해⁶가 심하여 반드시 분리과정이 필요하며 전처리하는 폐기물공정시험방법에 따라 수행하였다.

분석법. Cd, Cr, Cu, Pb, Ni, Ag, Zn는 AAS로 정량하였으며 그 분석방법은 일반적인 AAS 분석방법에 의하였다. 검정용 표준용액과 시료의 산 농도는 가능한 한 일정하게 조절한 후 실험하여 매트릭스에 의한 방해를 제거하였으며 바탕보정은 하지 않았다.

Sb, As, Se, Hg는 HG-AAS로 정량하였다. 환원제로는 1% NaOH 수용액에 녹여 조제한 3% NaBH₄ 수용액을 사용하였으며 운반기체로는 2.5 kg/cm² 압력의 Ar을 사용하였다. Sb, As, Se의 경우 공기는 11.5 L/min, 아세틸렌은 2.5 L/min의 유속으로 사용했으며 Hg의 경우는 비불꽃 상태로 분석하였다.

Be, Cr, Ni, Cu, Zn, As, Se, Cd, Sb, Tl, Pb는 ICP/MS로 정량하였으며, Hg는 기억효과⁷가 심하여 정량하지 않았다. Ag는 표준용액과 시료에 잔류하는 Cl⁻의 영향으로 동시분석이 불가능하여 정량하지 않았다. 분석방법은 일반적인 ICP/MS 분석법에 따랐으며 정량에 사용한 동위원소의 질량(m/z)과 가능한 방해원소 및 분자를 Table 1에 나타내었다. 이중 Zn와 Cd은 방해 효과가 없는 것으로 생각되나 As과 Se의 경우는 상당한 방해를 받는 것으로 알려져 있다. As의 경우 일반적인 방법(식 (1))⁸으로 ArCl의 방해를 보정해 주었으나 Cl과 분자이온인 ArCl의 동위원소비가 일정하지 않은 경우가 많아 오차를 수반하게 된다. Se에 대한 Ar₂의 방해는 보정하거나 제거시키기는 힘들며 Ni의 경우도 sample cone의

Table 1. Isotopes used for ICP/MS determination and possible interfering ions

Element	Mass (m/z)	Abundance	Interference
As	75	100	ArCl ⁺
Be	9	100	—
Cd	111	12.86	MoO ⁻
Cr	52	83.76	ArC ⁺ , ArO ⁺
Cu	65	30.91	—
Ni	58	67.76	Ni ⁺ from Cone
Pb	208	52.38	—
Sb	121	57.25	—
Se	78	23.61	Ar ₂ ⁺
Tl	205	70.50	—
Zn	66	27.81	S ₂ ⁺ , SO ₂ ⁺

상태, 산의 농도, 그리고 분석시간에 따라 일정하지 않은 방해를 받는다.

$$\begin{aligned} \text{Corrected arsenic signal} &= (\text{m/z } 75 \text{ signal}) \\ &- (3.13) (\text{m/z } 77 \text{ signal}) \\ &+ (2.53) (\text{m/z } 82 \text{ signal}) \end{aligned} \quad (1)$$

내부표준물은 실제 시료에 들어 있을 확률이 적고 존재비가 100%에 가까운 원소를 사용한다. 본 실험에서는 질량(m/z) 115의 In을 사용하여 ICP/MS의 단점인 신호 세기의 시간에 따른 불안정성을 보정해 주었다.

시안이온의 분석은 폐기물공정시험방법에 따라 전처리한 시료를 비색법과 전극법으로 분석하였다.

결과 및 고찰

조제된 토양시료의 분석. 토양시료에서 priority pollutants 원소의 정량 가능성과 토양시료의 균일성을 조사하기 위하여 EPA에서 지정한 14종의 무기 priority pollutants를 임의로 blank 토양에 첨가하여 실험실에서 언급한 네 가지 방법으로 토양시료를 조제하였으며, 두 추출법중 추출효율성이 우세한 EPA 3050법으로 추출하여 AAS 및 ICP/MS로 분석하였다. AAS 및 ICP/MS로 분석한 각 원소의 농도계산은 단순 선형 회귀분석(simple linear regression analysis)에 의하였다. 원소의 농도와 흡광도 또는 원소의 농도와 면적은 일직선 관계가 있으며,

Table 2. Analytical results of inorganic priority pollutants in spiked soil samples by EPA 3050 method and AAS method

Element	Mean recovery ^a (%)				MDL ^b (µg/g)
	Method 1 ^c	Method 2 ^c	Method 3 ^c	Method 4 ^c	
Cd	85 (2.6)	86 (0.6)	91 (2.9)	102 (4.2)	0.5
Cr	91 (0.6)	95 (5.2)	101 (7.6)	96 (3.7)	5
Cu	83 (0.6)	85 (2.1)	90 (4.0)	86 (2.3)	2
Ni	95 (0.6)	95 (1.0)	103 (1.7)	99 (3.0)	4
Pb	59 (3.8)	94 (7.2)	94 (4.0)	100 (6.3)	10
Zn	80 (1.5)	85 (1.5)	94 (4.0)	91 (2.1)	0.5

^aMean value from three measurements for Method 1~3 and from six measurements for Method 4. Values in parentheses are percent relative standard deviations.

^bMethod detection limit is the minimum concentration that can be measured with 99% confidence that the concentration is greater than zero.¹⁰ ^cDescribed in Experimental section.

상관계수(correlation coefficient)가 모든 원소의 경우에 대해 0.9984보다 큰 값으로 나타났다.

조제된 시료를 EPA 3050법에 따라 분석한 결과를 AAS는 Table 2에, ICP/MS는 Table 3에 나타냈다. 각 화합물의 회수율은 Method 4를 제외하고는 각각 3회 반복 추출하여 실험한 결과이며 Method 4의 경우는 6회 반복 추출한 실험의 결과이다. Table 2의 AAS 분석결과와 Table 3의 Sb과 Se을 제외한 ICP/MS 분석결과는 전반적으로 좋은 회수율을 나타냈다. AAS method는 91%, 그리고 ICP/MS method는 93%의 평균회수율을 나타냈다.

AAS 및 HG-AAS 분석결과 중에서 Sb과 Se은 전혀 재현성이 없었으며, Hg와 질산으로만 처리한 Ag의 경우는 검출한계 이하의 결과로 나타나 Table 2에 그 결과를 보고하지 않았다. Table 3의 Sb과 Se의 경우도 ICP/MS 측정결과 회수율의 재현성이 없는 것으로 보아 분석방법보다는 시료조제의 재현성에 더 많은 문제가 있는 것으로 사료되며, 균일한 토양시료를 얻는데는 더 많은 연구가 필요할 것으로 생각된다. 실제로 Table 3의 Se과 Sb의 분석결과를 보면 Se의 경우 Method 4에서 아주 좋은 회수율을 보여주며, Sb의 경우 Method 1, Method 2의 높은 RSD 값이 Method 3, Method 4로 갈수록 더 낮은

Table 3. Analytical results of inorganic priority pollutants in spiked soil samples by EPA 3050 method and ICP/MS method

Element	Mean recovery ^a (%)				MDL ^b (µg/g)
	Method 1 ^c	Method 2 ^c	Method 3 ^c	Method 4 ^c	
As	113 (4.7)	114 (18.6)	123 (14.9)	109 (7.1)	0.80
Be	115 (11.1)	132 (17.6)	129 (4.7)	106 (8.4)	1.8
Cd	82 (3.2)	86 (2.9)	88 (4.5)	98 (4.3)	0.08
Cr	71 (2.9)	73 (5.1)	80 (1.3)	103 (4.9)	0.20
Cu	104 (2.5)	101 (3.8)	107 (5.2)	90 (3.3)	0.19
Ni	91 (4.0)	86 (5.2)	94 (1.7)	99 (5.3)	0.15
Pb	82 (8.0)	96 (1.0)	105 (6.7)	81 (6.8)	0.05
Sb	139 (14.6)	55 (4.0)	52 (2.6)	74 (9.4)	0.02
Se	49 (13.2)	55 (26.7)	47 (13.9)	103 (4.6)	4.6
Tl	98 (4.2)	90 (2.1)	97 (6.4)	83 (6.2)	0.05
Zn	101 (1.0)	104 (6.0)	107 (6.2)	96 (5.9)	0.25

^aMean value from three measurements for Method 1~3 and from six measurements for Method 4. Values in parentheses are percent relative standard deviations. ^bMethod detection limit is the minimum concentration that can be measured with 99% confidence that the concentration is greater than zero.¹⁰ ^cDescribed in Experimental section.

RSD 값을 보여준다.

Table 2와 3을 비교해 보면 조제방법 별로 일정한 경향성은 없으나 대체적으로 회수율과 재현성이 Method 4에서 만족스럽게 나타났다. 평균 RSD 값이 AAS가 3.0, ICP/MS가 6.1로 나타나 AAS가 재현성에서는 더 우수하게 나타났다. Method detection limit는 AAS method는 0.5~10 µg/g의 범위에 있으며 ICP/MS method는 Be과 Se의 두 원소를 제외하면 0.05~0.8 µg/g 범위에 있어 AAS보다는 ICP/MS가 미량 분석이 용이하며, 적당한 농축방법을 사용하면 검출한계를 더 낮출 수 있으므로 극미량 분석이 가능하다. Be은 검출신호의 바탕값이 높아 method detection limit가 높게 나타났다. Se은 Ar₂⁺, 그리고 As은 ArCl의 영향으로 method detection limit가 비교적 높게 나타났다.

조제된 시안 분석용 시료의 분석결과는 Table 4에 나타났다. 시료를 충분히 염기성으로 만들어 시안이 온을 첨가한 후 풍건하였으나, blank soil에 첨가하여 조제한 시료는 시안이온이 전혀 검출이 되지 않았으며 certified soil에 첨가한 시료는 회수율이 예상보다는 낮으나 만족할 만한 결과를 보여주었다. 이것은 시안이온이 불안정하여 blank soil에서는 건조 중에 모두 유실이 되는 반면에 certified soil의 경

Table 4. Analytical results of cyanide in spiked soil samples extracted by the test method offered by ministry of environment in Korea

Soil sample	Mean recovery ^a (%)	
	Electrode method	Colorimetric method
Blank soil	— ^b	— ^b
Certified soil	67 (2.5)	82 (4.4)

^aMean value from four measurements. Values in parentheses are percent relative standard deviations. ^bNot detected.

우는 시안이온과 착물을 이룰 수 있는 원소가 포함되어 시안이온을 안정화¹¹시키기 때문인 것으로 생각된다. 전극법보다는 비색법에서 높은 회수율을 보여주며 재현성면에서는 전극법이 약간 우수하게 나타났다.

표준시료의 분석. 두 추출법과 각 분석방법의 평가를 위해 미국의 Environmental Resource Associates의 certified soil을 분석하였다. AAS 및 HG-AAS, 그리고 ICP/MS의 분석결과를 Table 5에 나타내었다. EPA 추출법의 경우 98%의 평균회수율을 보여 전반적으로 만족할 만한 결과를 얻었으나, 폐기물공정시험방법중 용출시험방법의 경우는 평균회

Table 5. Analytical results of inorganic priority pollutants in certified soil samples by AAS, HG-AAS, and ICP/MS method

Element	Spiked amount ($\mu\text{g/g}$)	Mean recovery ^a (%)			
		Extraction Method 1 ^b		Extraction Method 2 ^b	
		AAS and HG-AAS	ICP/MS	AAS and HG-AAS	ICP/MS
Ag	8.81	22 (0)	— ^c	— ^d	— ^c
As	15	78 (8.4)	115 (0.6)	1.7 (0.2)	1.3 (0.5)
Be	8.77	— ^c	120 (6.4)	— ^c	68 (8.0)
Cd	7.91	110 (0)	106 (2.6)	99 (7.2)	106 (5.3)
Cr	6.62	124 (1.5)	114 (4.0)	— ^d	0.46 (0.08)
Cu	3.48	115 (2.9)	98 (2.1)	16 (1.9)	29 (3.8)
Hg	2.59	77 (10)	— ^c	75 (7.4)	— ^c
Ni	16.8	101 (1.8)	144 (4.0)	74 (0.9)	83 (5.2)
Pb	10.1	105 (5.0)	50 (16.6)	— ^d	2.2 (0.7)
Sb	2.98	55 (4.3)	76 (5.5)	3.2 (0.2)	5.3 (1.0)
Se	7.35	29 (9.1)	103 (3.8)	0.46 (0.04)	1.9 (0.9)
Tl	7.71	— ^c	59 (17.6)	— ^c	15 (3.2)
Zn	24.6	111 (2.4)	102 (2.0)	91 (1.8)	93 (2.0)

^aMean value from three measurements. Values in parentheses are percent relative standard deviations. ^bExtraction Method 1 is EPA 3050 method and Extraction Method 2 is the test method offered by Ministry of Environment in Korea. ^cNot determined. ^dNot detected.

수율이 42%로 Cd, Hg, Ni, Zn 등의 몇 원소를 제외하고는 좋지 않은 회수율을 보였다. EPA 추출법의 경우도 AAS method에서 Sb, As, Se, Ag의 회수율에 여전히 문제가 있는 것으로 나타났으며, ICP/MS method에서는 Sb, Tl, Pb는 낮은 회수율을 보이고 있다. Sb, As, Se의 경우 AAS method와 ICP/MS method의 두 결과를 비교해 보면 As과 Se은 측정 방법에 문제가 있음을 나타내 주며, Sb은 시료의 추출방법에 문제가 있는 것으로 생각된다.

EPA 3050법에 따라 추출한 결과를 분석방법별로 보면 HG-AAS가 79%의 평균회수율과 11%의 평균 상대표준편차를, AAS가 111%의 평균회수율과 2.3%의 평균 상대표준편차를, 그리고 ICP/MS가 99%의 평균회수율과 5.9%의 평균상대표준편차를 보여 아직 HG-AAS의 경우 정확도와 정밀도에 문제가 있는 것으로 나타났다.

문제가 있는 원소는 추출방법이나 분석방법을 약간 수정하여 AAS로 분석을 시도하였으며 그 결과를 Table 6에 나타냈다. Sb은 매트릭스를 같게 해주기 위해 표준용액과 시료의 최종농도가 염산으로서 1%가 되게한 후 분석하였으며, As의 경우에는 염산

Table 6. Analytical results of several inorganic priority pollutants in certified soil samples by modified EPA method

Element	Spiked amount ($\mu\text{g/g}$)	Mean recovery ^a (%)	
		EPA Method	Modified EPA Method ^b
Ag	8.81	22 (0)	125 (16)
As	15	78 (8.4)	93 (6.4)
Sb	2.98	55 (4.3)	67 (4.3)
Se	7.35	29 (9.1)	77 (23)

^aMean value from three measurements. Values in parentheses are percent relative standard deviations.

^bMade to 1% HCl solution for Sb measurement. As was extracted by HCl only. Se was analyzed by standard addition method. Ag was analyzed by cyanogen iodide addition method in EPA 7760A method.

으로만 추출한 결과 회수율 및 정밀도가 증가하는 것을 알 수 있었다. Se의 경우 상당히 높은 바탕값으로 인하여 표준물 첨가법을 사용하였으며 회수율이 역시 증가되는 것을 알 수 있었다. Ag는 EPA 7760법의 cyanogen iodide addition method를 사용하여 개선된 결과를 얻었다. Se과 Ag의 경우는

회수율은 개선이 되었으나 재현성이 떨어지는 단점을 보였으며 Sb, Se 등은 회수율이 67, 77%로 낮으므로 이 부분에는 연구가 더 필요할 것으로 생각된다.

결론적으로 폐기물공정시험방법의 용출시험방법은 추출 효율성 면에서 많은 문제가 있는 것으로 나타났다. 그러나 본 연구의 실험결과는 blank soil을 사용한 매질이 비교적 복잡하지 않은 경우의 결과이므로 실제 시료의 경우와는 차이가 있을 것으로 생각된다. 따라서 본 연구진은 실제 토양 중의 한 종류인 개펄시료에 관한 연구를 진행 중에 있으며 아울러 고체폐기물 중에서 분석 빈도가 가장 높은 sludge에 관한 연구도 병행하고 있다.

본 연구는 과학기술처의 특정연구개발 연구비를 이루어진 연구의 일부이며, 연구비 지원에 감사드립니다.

인 용 문 헌

1. 수질오염공정시험방법; 환경처 고시 제 91-85호; 환경처: 서울, 1991.
2. U. S. Environmental Protection Agency; *Test Methods for Evaluating Solid Wastes, Physical/Chemical Method*; Report No. SW-846; EPA: Washington, DC., 1986.
3. 폐기물공정시험방법; 환경처 고시 제 91-97호; 환경처: 서울, 1991.
4. Environmental Resource Associates, 5540 Marshall Street, Arvada, Colorado 80002, USA.
5. Jarvis, K. E.; Gray, A. L.; Houk, R. S. *Handbook of Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry*; Chapman and Hall Inc.: New York, 1992; p 174~180.
6. Ludzack, F. J.; Moore, W. A.; Ruchhoft, C. C. *Anal. Chem.* **1954**, *26*, 1784.
7. Jarvis, K. E.; Gray, A. L.; Houk, R. S. *Handbook of Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry*; Chapman and Hall Inc.: New York, 1992; p 70.
8. U. S. Environmental Protection Agency; *Test Methods for Evaluating Solid Wastes, Physical/Chemical Method*; Report No. SW-846; Method 6020; EPA: Washington, DC., 1990.
9. Jarvis, K. E.; Gray, A. L.; Houk, R. S. *Handbook of Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry*; Chapman and Hall Inc.: New York, 1992; p 337.
10. Glaser, J. A.; Foerst, D. L.; Mckee, G. D.; Quave, S. A.; Budde, W. L. *Environ. Sci. Technol.* **1981**, *15*, 1426.
11. Cotton, F. A.; Wilkinson, G. *Advanced Inorganic Chemistry*, 4th Ed.; John Wiley & Sons Inc.: New York, 1980; p 113.