

(7) 全国湖沼底質中の直鎖アルキルベンゼンスルホン酸塩 (LAS) の分布特性

DISTRIBUTION OF LINEAR ALKYL BENZENESULFONATES (LAS) IN LAKE SEDIMENTS

天野 耕二・福島 武彦・中杉 修身

Koji AMANO* Takehiko FUKUSHIMA* Osami NAKASUGI*

ABSTRACT; Linear alkylbenzenesulfonate (LAS) was detected in 15 of 28 shallow, polluted lake sediments in Japan. Vertical profiles of the LAS homologues (C_{11} - C_{14}) and isomers (2ϕ , 3ϕ , 4ϕ , 5ϕ - 7ϕ) found in the sediment cores were analyzed. Results showed that both the component rate of homologues with the longer alkyl chain (C_{13} , C_{14}) and the rate of the 2ϕ isomers were greater in the sediments than in the water. Moreover, it was seen that, while the concentration of all the homologues and isomers, the composition of 2ϕ isomers in the sediments were related to those in the water, there was little relationship between the composition of the homologues in the sediments and that in the water. The selective adsorption of the homologues with the longer alkyl chain to the sediments was expected. LAS was detected at more than 20-cm depth in some lake sediments, and vertical profiles varied with the lake. Inflow loadings, biodegradation, biological and physical disturbance, and sorption-desorption reaction were all expected to influence the vertical profiles. The longitudinal changes of LAS in the sediments showed a marked decrease, but the composition of the homologues hardly changed longitudinally due to the effect of selective adsorption. LAS content in the lake sediments was related to the presence of anthropogenic pollutant, such as Zn and Cu, and also related to such watershed characteristics as population density.

KEYWORDS; LAS, lake sediment, vertical profile, longitudinal change

1. はじめに

都市河川の有機汚濁、閉鎖性水域の富栄養化に加えて、合成有機化合物による微量汚染が新たな水質問題として注目されている。農薬のDDTやBHCに代表されるような難分解性の化合物は既に規制を受けてほとんど使用されていないが、ある程度分解性があり、毒性も弱いものは使用量が多く用途が開放系でもほとんど未規制となっている(東海, 1988)。合成洗剤の主成分については、昭和四十年代に通産省の行政指導により、難分解性のABS(分岐鎖型アルキルベンゼンスルホン酸塩)から易分解性のLAS(直鎖アルキルベンゼンスルホン酸塩)に転換されたが、その使用量は年々増大している(近藤, 1980)。LASは易分解性とはいえ各種の生物影響、濃縮性、蓄積性が全くないわけではなく、他の化合物や重金属との相互作用で毒性を増大させたり、生体への吸収を促進する役割を持つ可能性も指摘されている(Little, 1981)。現在日本で生産・使用されている合成有機化合物の数は約二万種と推定されているが、工場・事業所等で使用されている特定の物質や農地から流出する農薬などが、時期的、場所的に偏った発生負荷となるのに対して、LASは日常生活排水に含まれるため、年間を通じて全国的に汚染が進行する唯一の汚染物質といえることができる。

環境中のLASについては従来からMBASによる測定が広く行われていたが、MBASにはLAS以外の物質も同時に含まれるために正確な汚染状況がつかめなかった。市販の洗剤中のLASには主に C_{12} から C_{14} のアルキル鎖長を有した同族体が含まれ、各々の同族体にはフェニル基のアルキル鎖上の置換位置が異なった異性体が含ま

れている。通常、異性体はアルキル鎖末端メチル基から2番目の炭素にフェニル基が置換したものを2-フェニル体LAS (2 ϕ C_n-LAS)、3番目のものを3-フェニル体LAS (3 ϕ C_n-LAS)、以下順に4 ϕ C_n-LAS、5 ϕ C_n-LASと書き表されることが多い(吉村, 1984)。最近、LASの成分分析の研究(例えば、Nakaeら, 1981)が進み、各同族体・異性体別LASの分別定量が可能となり、汚染指標としてのLASを測定する意義が生じてきた。易分解性で水中の濃度変化の激しいLASの汚染状況を的確に把握するためには水質のみならず底質への残留や蓄積を調査する必要があるが、特に湖沼や海域などの閉鎖性水域では、汚染された底質からの負荷を無視できないため、底質中の鉛直方向の分布に関する情報も重要である。これまで都市河川を中心として底質中のLAS濃度が測定されている(Hon-namiら, 1980; 宇都宮ら, 1980; 岡本ら, 1981; 田中ら, 1983; 吉村ら, 1984)が湖沼における調査は少なく、またいずれもエクマン採泥器やスコップで採取した表層底質を分析したものであり、鉛直方向のLASの分布については扱っていない。鉛直分布については、東京湾底質におけるABS (Ambe, 1973) や城沼底質におけるMBAS (内山ら, 1980) が報告されているが、同族体・異性体組成を含むLASの鉛直分布についての情報は得られていない。そこで、合成有機化合物の汚染指標としてのLASの特性を整理することを目的として、全国の浅く、汚濁の進行した湖沼を対象として底質中の鉛直分布を中心とした調査を行い、直上水中および底質中のLASを各同族体・異性体別に分析した。LASの同族体・異性体組成もそれ自身が情報を持つものとして指標化を行った上、LAS濃度とともに水中と底質中での値の関係、底質中の鉛直分布、流下方向の変化、他の汚濁指標との関係などについて考察を行った。

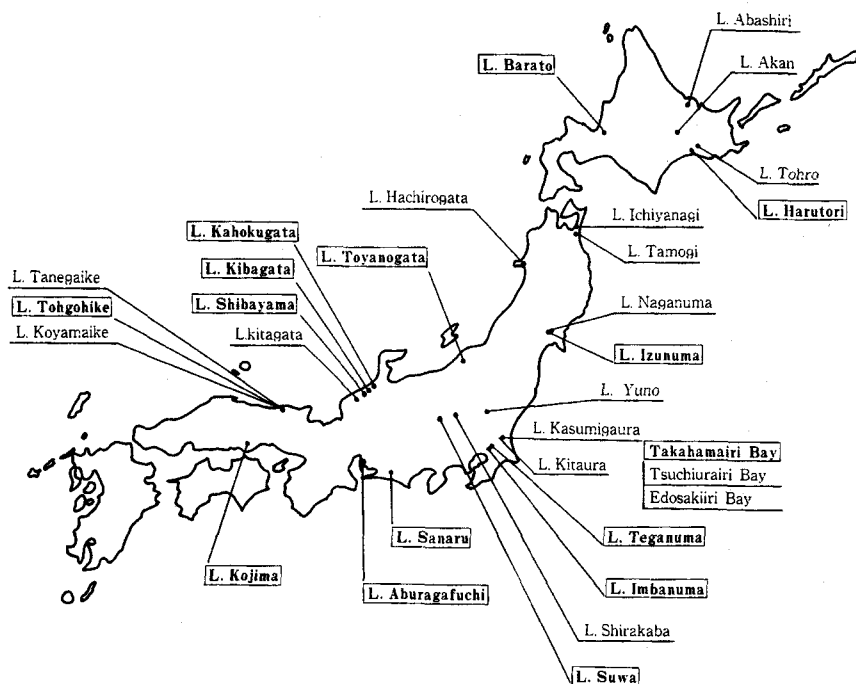


Fig. 1 Location of twenty-eight lakes where the sediment core samples have been gotten. LAS was detected in the sediments of fifteen lakes whose names are surrounded by square in this figure.

2. 対象水域および測定方法

日本国内の水深が浅く、汚濁の進行した28の湖沼を対象とした。各湖沼の位置を図1に示す。底質中にLASが検出されたのは図中四角で囲んである15湖沼である。各湖沼では、主要な流入河川の河口域から湖心にかけて、流線に沿った複数の採泥地点を取り、ピストン式のコアサンプラーで底質を採取した。地点毎に得られた数本のコアサンプルを厚さ2cm毎にスライスしたものを凍結乾燥して分析に供した。ただし、粒径分布

については湿泥のまま測定した。

底質中のLASは、メタノールに超音波抽出した後、塩化カリウム水溶液を加えてメチルイソブチルケトンに転溶して水溶性の夾雑物を排除し、さらにn-ヘキサンと水を混合して水相にLASを逆抽出することによって脂溶性の夾雑物を除いた上で、高速液体クロマトグラフィーで各同族体 (C_{11} , C_{12} , C_{13} , C_{14})、異性体 (2ϕ , 3ϕ , 4ϕ , $5\phi \sim 7\phi$) 別に定量した (Inabaら, 1988)。水中のLASは、塩化カリウムを加えてメチルイソブチルケトンに抽出し、同様に水相に逆抽出して分析した。その他として、 $20\mu m$ と $74\mu m$ のふるいを用いた湿式ふるい法による粒径分布、CHNコーダー (柳本) による有機炭素 (POC) と有機窒素 (PON)、オートアナライザー (テクニコン) による全リン (PP) の測定を行った。また、各種金属 (Na, Mg, Al, Ca, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Cu, Zn, Sr, K) 濃度を、硝酸、フッ酸で $160^\circ C$ 加熱分解後ICP (Jarrel-Ash Atomcomp) で測定した (詳細は福島県「全国富栄養化湖沼の底質特性について」(1989)参照)。

3. 結果および考察

3.1 LASの同族体・異性体組成

LASが検出された15湖沼の河口と湖心における底質中LAS濃度の鉛直分布、およびLAS同族体 ($C_{11} \sim C_{14}$)・異性体 (2ϕ 体とそれ以外) の組成の鉛直分布を図2に示す。

底質中のLASの同族体組成については、都市河川についていくつかの知見が得られており、水中の溶存LASと比較して底質中には C_{12} や C_{13} といった長鎖同族体が多いことが報告されている (Hon-namiら, 1980; 宇都宮ら, 1980; 岡本ら, 1981; 田中ら, 1983; 吉村ら, 1984)。また、異性体組成については、水中でも底質中でも市販の洗剤中のLASの組成と比較して 3ϕ より内側の内部位置異性体の比率が高くなる傾向があることが報告されている (吉村ら, 1984)。これらの傾向は長鎖のLASほど分解を受けやすく、吸着しやすいというSwisherの「距離則」 (Swisher, 1970) で説明されており、古武家は C_{12} と C_{13} の同族体が $C_{10} \sim C_{13}$ -LASの中でしめる組成比 (C_{12+13} 比) と各同族体における 2ϕ 異性体比 (2ϕ 比) を指標として河川水中のLASの生分解の状態を表わしている (古武家, 1985)。今回の調査結果は、これまでの知見と同様の傾向を示したが、従来のほとんどの知見では C_{14} LASが検出限界以下として考慮されていないにもかかわらず、全国の湖沼底質中には検出限界を十分上回る C_{14} LASを含む地点が多かった。市販の合成洗剤中のLASの同族体は C_{10} から C_{13} までが大部分であるが、 C_{14} LASも少量ながら含まれており、長鎖のLASほど毒性が強くなるという報告 (大場ら, 1977) から、多くの湖沼底質中での C_{13} や C_{14} といった長鎖同族体の残留は重要な意味を持つものと思われる。そこで、以後の解析を行うにあたり、長鎖同族体の指標として($2\phi \sim 7\phi$) C_{13+14} -LAS / ($2\phi \sim 7\phi$) $C_{(11+12+13+14)}$ -LAS比 (以下 C_{13+14} 比) を、また外部位置異性体の指標として $2\phi C_{(11+12+13+14)}$ -LAS / ($2\phi \sim 7\phi$) $C_{(11+12+13+14)}$ -LAS比 (以下 2ϕ 比) を算定した。

Table.1 LAS concentration, C_{13+14} rate and 2ϕ rate in water and surface sediment(0-2cm)

		lake water			surface sediment		
		total-LAS mg/l	C_{13+14} RT %	2ϕ RT %	total-LAS $\mu g/g$	C_{13+14} RT %	2ϕ RT %
L.Teganuma	st.1	0.0101	4.3	0.0	172.62	57.1	13.4
L.Aburagafuchi	st.1	0.0214	13.1	9.1	14.08	53.8	14.8
	st.2	0.0088	9.8	0.0	4.04	48.4	0.0
L.Kahokugata	st.1	0.0150	10.4	0.7	7.60	66.4	14.3
L.Kibagata	st.2	0.0336	5.5	5.2	16.96	62.7	13.0
L.Shibayamagata	st.2	0.0059	0.0	0.0	5.79	76.1	14.5
L.Kojima	st.2	0.0036	15.5	5.0	0.34	44.0	5.1
L.Barato	st.1	0.0356	10.0	20.2	98.02	72.5	27.7
L.Izunuma	st.1	0.0267	4.3	7.1	3.31	56.1	10.4
L.Toyanogata	st.1	0.1459	12.6	18.7	129.05	58.4	25.2
	st.2	0.1966	12.1	19.1	184.38	60.0	30.7
	st.3	0.2168	11.3	18.8	390.00	64.6	28.2

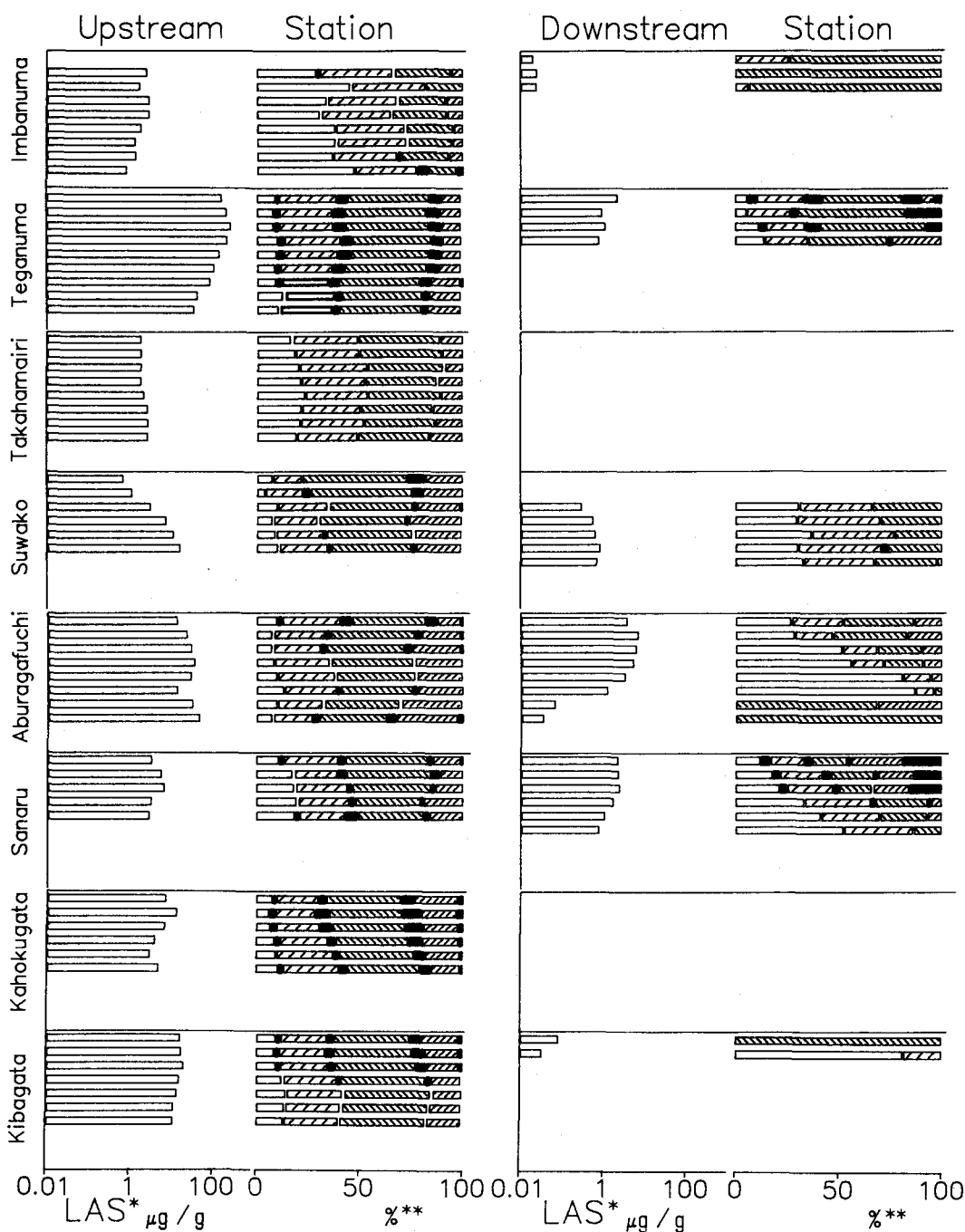


Fig. 2 Vertical profiles of LAS concentration* and composition** in fifteen lakes sediments. *:C₁₁-C₁₄ LAS homologues **:each LAS homologue is divided into the 2Ø isomer and others.

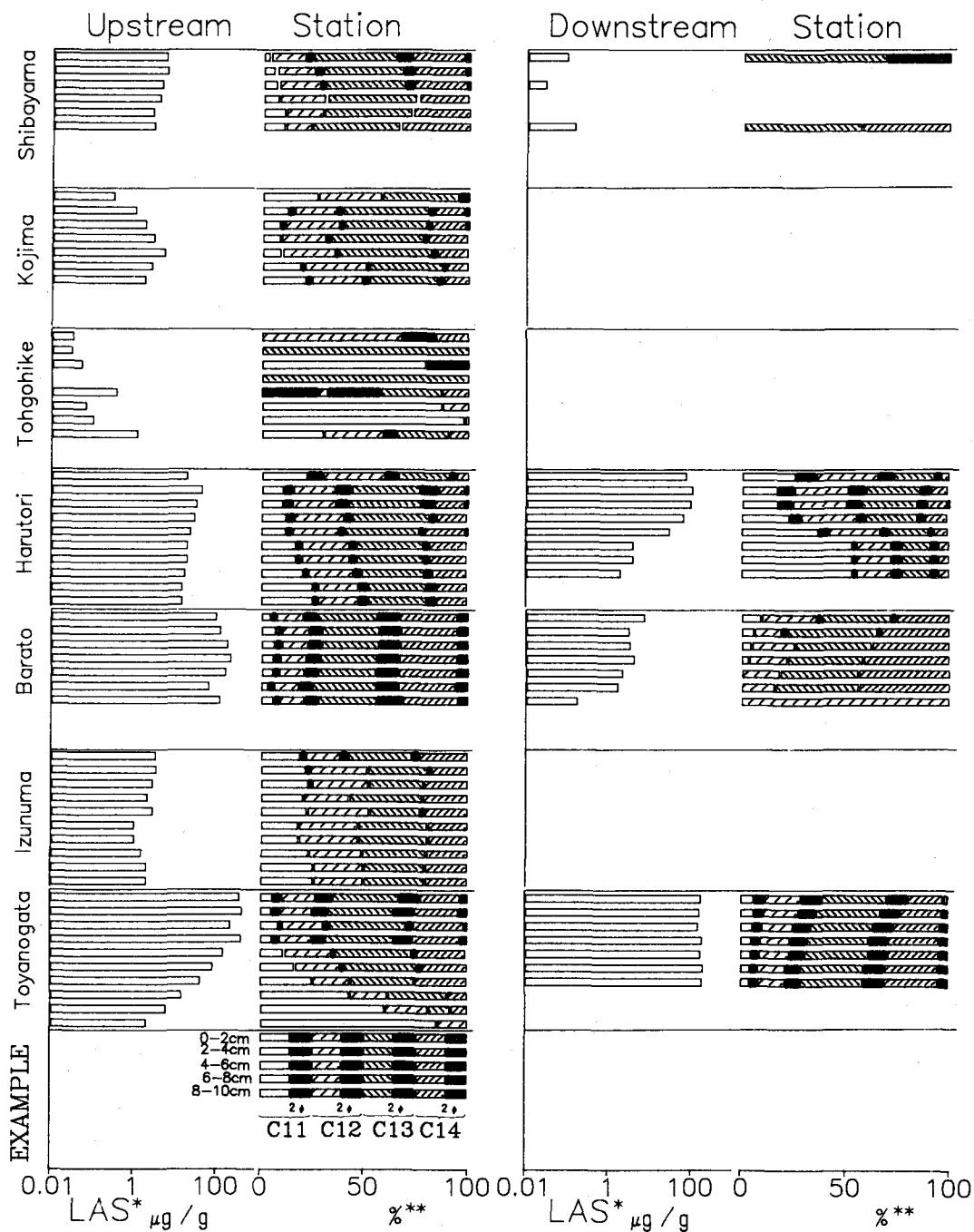


Fig. 2 (continued)

3.2 水中LASと底質中LASの関係

直上水中からも溶存LASが検出された9湖沼の12地点における水中および表層(0-2cm)底質中のLAS($C_{11} \sim C_{14}$)濃度、 C_{13+14} 比と2 ϕ 比を表1に示す。また各項目について、水中の値と底質中の値の関係を図3~5に示す。水中の溶存LAS濃度と表層底質に吸着しているLAS濃度には明確な正の相関が認められるが、ppmのオーダーで比較して底質中の濃度の方が水中の濃度よりも約千倍も高いことがわかる。

水中の C_{13+14} 比は柴山潟でゼロとなった以外では10%前後であるが、底質中では40~80%になっている。市販の洗剤に含まれているLASの平均的な C_{13+14} 比は10~20%であり、短鎖同族体よりも分解されやすい長鎖同族体の組成比が、水中では元の洗剤中よりも小さいが、底質中では逆に大きく、長鎖同族体が相対的に多く残留していることがわかる。しかし、水中の C_{13+14} 比と底質中の C_{13+14} 比の間にはさほど明白な関係は認められない(図4)。それゆえ、水中の同族体組成が生分解や水中懸濁粒子あるいは底質粒子への吸着によって変化しても、水中の組成とは関係なく表層底質に長鎖同族体から順に選択的に吸着していると考えられる。すなわち、底質中の C_{13+14} 比は水中あるいは間隙水中から底質粒子へのLASの選択的吸着の程度を反映していることが予想される。

2 ϕ 比は、極端に高い値を示している茨戸湖と鳥屋野潟を除くと、水中で0~数%、底質中では十数%のところが多数。市販のLASの2 ϕ 比は平均で20%前後であり、2 ϕ 体も長鎖同族体と同様に水中では生分解や吸着によって減少しているが、3 ϕ より内側の内部位置異性体よりも底質に移行しやすいことがわかる。しかし水中と底質中の2 ϕ 比の間には、極端に高い値(茨戸湖と鳥屋野潟)に引きずられたものではあるが、やや正の相関がみられる(図5)、表層底質の異性体組成(2 ϕ 比)は水中の組成と関係を持ちながら変動していることがわかる。

3.3 底質中のLASの鉛直分布

LASによる汚染は底質中かなりの深さまで達しており、20cm付近の深さまで検出された湖沼も数多くみられた。しかし、鉛直分布のパターンに一般的な傾向はなく、かなり深いところで濃度が最大になる地点もあった。また、印旛沼、諏訪湖、柴山潟、東郷池などでは表層あるいは途中の層で不検出でありながら、さらに深い層から検出された。

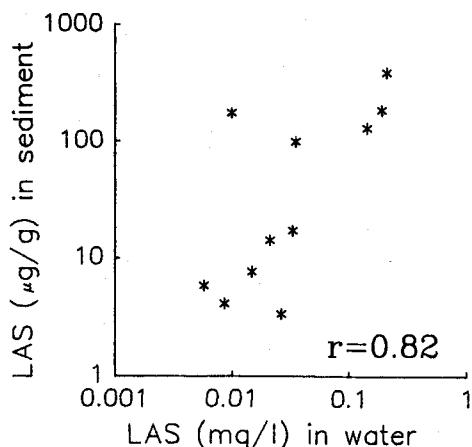


Fig. 3 Relationship between LAS concentration in the lake water and that in the lake sediments (at surface layer).

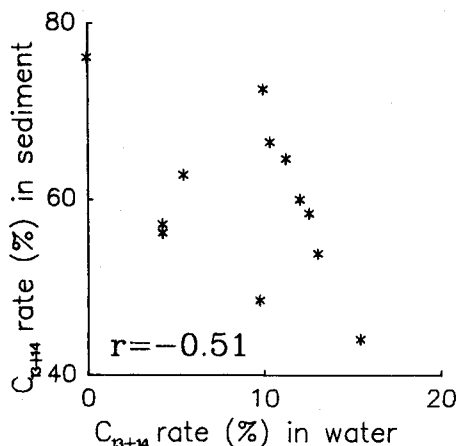


Fig. 4 Relationship between C_{13+14} rate in the lake water and that in the lake sediments (at surface layer).

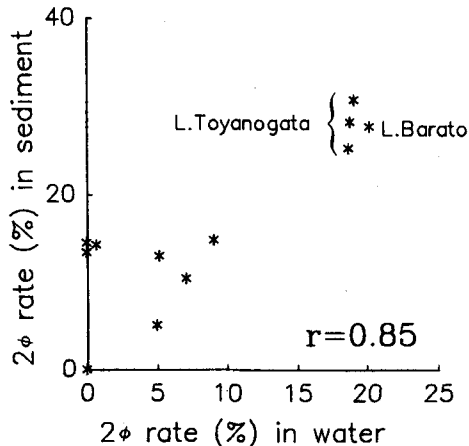


Fig. 5 Relationship between 2 ϕ rate in the lake water and that in the lake sediments (at surface layer).

LASの検出された15湖沼31地点を対象とした、主要な項目毎のピーク位置（最大濃度の存在する深さcm）の頻度分布を図6に示す。LAS濃度と C_{13+14} 比については、0-4cmにピークがある地点が多いものの、4cm以深にピークがある地点もかなりみられ、2 ϕ 比については31地点中17地点で0-4cmにピークがあった。他の項目の中では、POCは半分以上の地点で0-4cmにピークがあるが、Znは0-4cmにピークがある地点が最も多いものの4-12cmにピークがある地点も他の項目に較べると多かった。また粒径分布については、20 μ m以下の微細粒子比率のピークは8-12cmにある地点が多く、74 μ m以上の粗粒子比率のピークは0-4cmにある地点が多くみられ、表層から深さ方向に細粒化していく傾向があった。他の測定項目も含めて、LASのピーク位置と一致する地点数を比較すると、2 ϕ 比が最も多く31地点中10地点、次いでCuとZnが8地点、Mn、PP、PON、74 μ m以上の粗粒子比率が7地点となっている。

底質中の各種物質の鉛直分布を決定する要因としては、次のようなものが考えられる。1)流入負荷量の変化、2)底質中での分解、3)物理的、生物学的底質の攪乱。底質粒子が深層ほど細粒化する傾向を持つ地点が多いことは、1)と3)が無視しうる場合に表層に堆積した有機物の粗い粒子が新たな粒子の堆積の結果、深くなっていくにつれて分解されて細粒化されていった結果と考えられる（Amanoら,1989）。そうであれば、底質中の有機物濃度は表層から深さ方向に漸減するはずであるが、確かにPOC、PONはこの傾向を持つ地点が多い。また2)と3)が無視しうる場合には、流域の発生負荷量の変化が底質中の鉛直分布に記録されていると考えられ、人為起源のCuやZnなどの分布がこのような情報を持っている可能性がある。

同じ人為起源のLASもまた、同様の情報を持っている可能性があるが、嫌気的な条件におけるLASの生分解の速度は非常に遅いことが報告されており（Maurer,1971）、また、LASが間隙水中での拡散と底質粒子への吸着の相互作用で蓄積と離脱を繰り返していることも報告されている（Uchiyama,1981）。そこで、LASの鉛直分布については、上記の3要因に加えてさらに底質中の吸脱着と拡散を考慮する必要がある、同族体・異性体組成の鉛直分布が重要になる。

図7にLAS濃度の高かった21地点における C_{13+14} 比の鉛直分布を、また、図8に2 ϕ 比の鉛直分布を示す。い

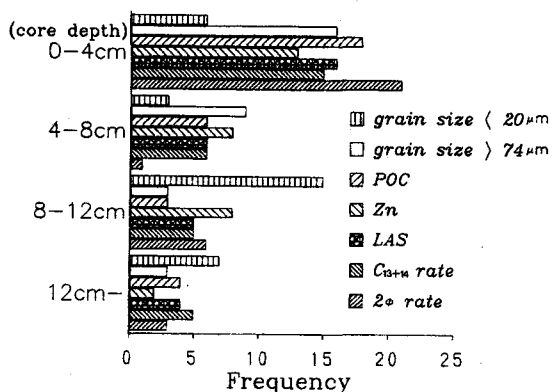


Fig. 6 Frequency distributions of the peak depth for seven items in the sediment cores.

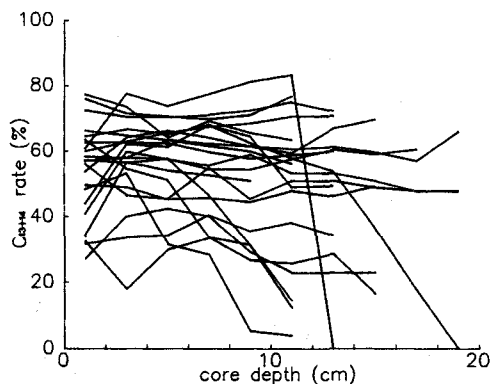


Fig. 7 Vertical profiles of C_{13+14} rate in the lake sediments.

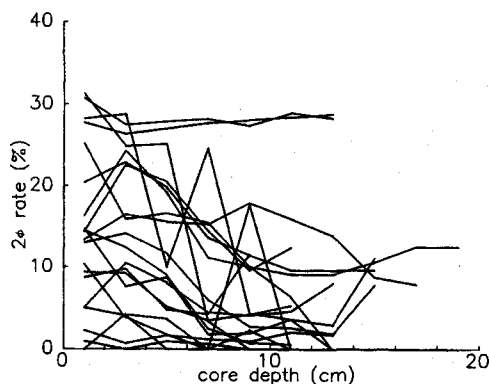


Fig. 8 Vertical profiles of 2 ϕ rate in the lake sediments.

ずれの組成比も深さ方向に減少している地点が多いが、ほとんど変化のない地点もいくつかみられる。深さ方向に減少している地点については、LASの吸着した懸濁粒子の沈降・堆積と底質中における生分解に加えて、LASが間隙水と底質粒子の間の吸着平衡を保持しつつ、表層から深層にかけて長鎖同族体から、また同じ同族体の中では2φ体から先に吸着していった過程が複合した結果と考えられる。また、ほとんど変化のない地点については、鉛直方向の物理的・生物的な擾乱が他の要因よりも卓越しているために、LASの濃度および組成の分布が均一化されたものと考えられる。

3.4 底質中のLASの流下方向の変化

同じ湖沼でも河口付近と湖心では極端に濃度が異なっており、霞ヶ浦高浜入、河北潟、児島湖、東郷池、伊豆沼では河口付近で検出されながら下流の地点では不検出となった。その他の湖でも流下方向に一桁ないし二桁以上も濃度が減少しているところが多い。河口と湖心のいずれでも底質中にLASの検出された10湖沼について、湖心における各項目の濃度を河口における各項目の濃度で除した値（一種の残存率）を図9に示す。底質中の濃度は表層（0-2cm）のものをを用いた。他の項目と比較してLASは流下方向の残存率が小さく、しかもばらつきが大きいことがわかる。水中のLAS濃度が生分解や吸着により流下方向に激減するため、それに応じて底質中のLAS濃度も減少しているが、底質中のC₁₃₊₁₄比の流下方向の変動はさほど大きくない。これは、3.2でも述べたように、水中の濃度や組成比の変動とは関係なく、表層底質には長鎖同族体から選択的に吸着していった結果であると考えられる。ただし、2φ体については、水中の組成比の変動の影響を受けて、流下方向の変動がやや大きくなっている。春採湖と鳥屋野潟では2地点の濃度差があまりみられないが（図2）、これは湖が小さくしかも流入河川、水路が下流側にも存在するためである。

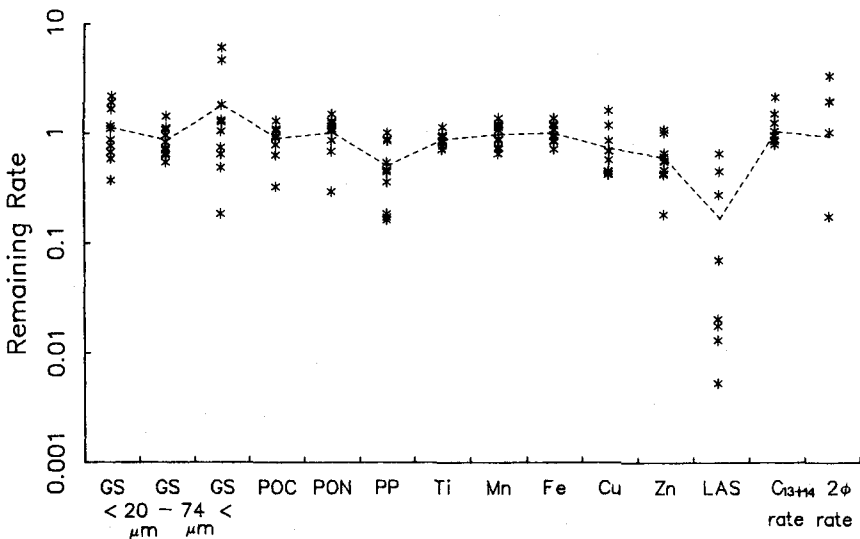


Fig. 9 Distributions of the longitudinal remaining rate in the sediments for fourteen items, which were calculated as "upstream concentration / downstream concentration" at surface layers. The broken line shows the mean values.

Table.2 Correlation coefficient between LAS and other eleven items
(using mean values of 0-10cm core samples)

	GS<20	20<GS<74	GS>74	POC	PON	PP	Ti	Mn	Fe	Cu	Zn
LAS conc.	.3096	-.1696	-.2326	.4621**	.5502**	.9070**	-.2138	.3691*	.5939**	.3355	.6544**
C ₁₃₊₁₄ rate	-.1875	-.0831	.2793	-.2139	-.2500	-.0637	.0852	-.0158	.1586	-.3017	-.0839
2φ rate	.1962	-.0773	-.2138	.2360	.2457	.1363	-.1916	-.0327	.1522	-.0852	.0832

* : significant at P<0.05

** : significant at P<0.01

3.5 他の項目とLASの関係

底質コアの0-10cmの部分の平均値を用いて計算された、LAS濃度、 C_{13+14} 比、2 ϕ 比と他の11の項目との相関係数を表2に示す。0-10cm平均値は鉛直分布を平均化するために用いた。LAS濃度はPP、Zn、Fe、PONなどと正の相関を持つが、PPやZnについては外部由来の負荷というLASと共通した起源が影響した結果と考えられる。流域からの人為負荷の指標のひとつとして流域の人口密度をとり、これと底質中のLAS濃度（0-10cm平均）との関係を図10に示す。図では同一湖沼の複数地点を含むため人口密度の同じ点がいくつかみられるが、底質中のLAS濃度は流域の人口密度と正の相関を持っている。

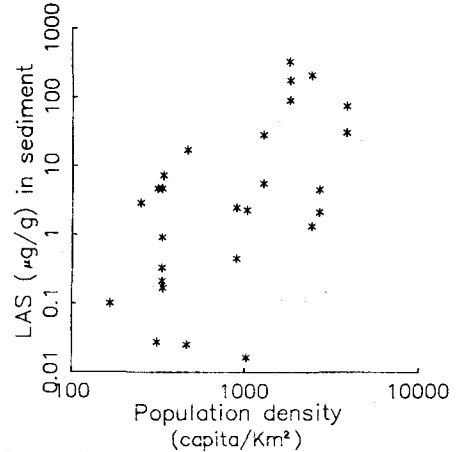


Fig. 10 Relationship between the population density in watershed and the LAS concentration in lake sediments (at surface layer).

4. 結論

日本全国の浅く、汚濁の進行した28湖沼を対象として、底質中のLASの鉛直分布を各同族体・異性体別に分析したところ、15湖沼の底質からLASが検出された。得られた知見を以下にまとめる。

1) LASの同族体組成については、水中よりも底質中に長鎖同族体が多く含まれるという従来の知見と一致する結果を得た。しかし最も長鎖側である C_{14} 体が、従来の底質調査ではほとんど不検出であったにもかかわらず、多くの湖沼底質中に残留していることがわかった。

2) LASの異性体組成については、市販のLASと比較して2 ϕ 体が水中ではかなり分解されて少なくなっているが、底質中に市販のLASと同じかそれ以上の割合で存在していることがわかった。

3) 水中の溶存LAS濃度と表層底質LAS濃度の間には明確な正の相関があったが、底質中の濃度は水中の千倍程度濃縮されていた。また、表層底質には、直上水の同族体組成によらず、長鎖同族体が選択的に吸着していたが、異性体組成については直上水の異性体組成と関係があることがわかった。

4) LASによる汚染は底質中かなりの深さにまで達しており、その鉛直分布を決定する要因としては、流入負荷量の変化、底質中で生分解、物理的・生物学的な攪乱などに加えて、間隙水を通した吸脱着と拡散を考慮する必要がある。

5) 他の項目と比較して底質中のLAS濃度は流下方向に激減し、しかもその残存率にはばらつきがあったが、同族体組成は水中の濃度・組成の変動によらず、吸着特性で決っていた。

6) 底質中のLAS濃度はZnやCuといった人為起源の汚濁指標と正の相関を持ち、さらに流域の人口密度とも正の相関があることがわかった。

本研究を行うにあたり、全国の湖沼調査については国立公害研究所水質土壌環境部水質環境計画研究室の方々の協力をいただいた。また、同陸水環境研究室の稲葉一穂氏にはLASの分析に関して貴重な助言と機材の提供をいただいた。ここに記して感謝の意を表します。

参考文献

- Amano K., Fukushima T. (1989): On the Longitudinal and Vertical Changes in Lake Estuarine Sediments. Water Science and Technology. (印刷中)
- Ambe Y. (1973): Determination of Alkylbenzensulfonate (ABS) in Bottom Sediment. Environmental Science and Technology, 7(6), 542-545.
- Hon-nami H. and Hanya T. (1980): Difference in the Composition of Linear Alkylbenzene Sulfonate

- Homologues in River Sediment and River Water. 陸水学雑誌, 41(1), 1-4.
- Inaba K., Amano K.(1989): HPLC Determination of Linear Alkylbenzenesulfonate (LAS) in Aquatic Environment. Seasonal Changes in LAS Concentration in Polluted Lake Water and Sediment. Intern. J. Environ. Anal. Chem. (印刷中)
- 古武家善成(1985): 兵庫県内河川におけるLASの濃度とその同族体・異性体の存在割合. 陸水学雑誌, 46(4), 279-286.
- 近藤邦成(1980): 合成洗剤の動向と将来. 用水と廃水, 22(4), 467-476.
- Little Arthur D., Inc.(1981): 界面活性剤の科学. 米国石鹼洗剤工業会報告書(黒沢幸雄監訳). フレグランスジャーナル社, 35pp.
- Maurer E. W., Cordon T. C., Stirton A. J.(1971): Microaerophilic Biodegradation of Tallow-Based Anionic Detergents in River Water. J. Am. Oil Chem. Soc., 48, 163-165.
- Nakae A., Tsuji K., Yamanaka M.(1981): Determination of Alkyl Chain Distribution of Alkylbenzene sulfonates by Liquid Chromatography. Anal. Chem., 53, 1818-1821.
- 大場健吉・杉山豊樹・三浦千明・森崎やよい(1977): 生分解過程におけるLASの魚毒性. 日本水産学会誌 43(8), 1001-1008.
- 岡本拓・白根義治(1981): 広島県内の主要河川および港湾における直鎖アルキルベンゼンスルホン酸ナトリウム(LAS)汚染. 広島県環境センター研究報告, No.3, 60-65.
- Swisher R. D.(1963): Biodegradation of ABS in relation to chemical structure. J. Water Poll. Contr. Fed., 35, 877-892.
- 田中靖志・中西弘・津田泰三・松下邦子(1983): 含リン洗剤の使用禁止に伴う河川中のLAS量の推移. 陸水学雑誌, 44(4), 298-303.
- 東海明宏(1988): 環境運命予測にもとづく化学物質のリスク評価に関する研究. 大阪大学工学部環境工学科博士論文, 54pp.
- 内山征洋・山口道子(1980): 小さな湖におけるメチレンブルー活性物質の分布. 水質汚濁研究, 3(4), 175-180.
- Uchiyama M.(1981): The behaviour of Methylene Blue Active Substances (MBAS) in Bottom Muds under Laboratory Conditions. 陸水学雑誌, 42(3), 176-179.
- 宇都宮暁子・伊藤伸一・節田節子・内藤昭治・下里武治(1980): 直鎖アルキルベンゼンスルホン酸ナトリウム(LAS)に関する研究(第1報)相模川河口底質中のLASについて. 衛生化学, 26(4), 159-166.
- 吉村孝一・林克己・川瀬次朗・辻和郎(1984): 河川水中における陰イオン界面活性剤の存在. 陸水学雑誌, 45(1), 51-60.