

多摩地域飲用井戸水および多摩川水系河川水中の内分泌かく乱化学物質の実態調査

鈴木俊也*, 矢口久美子*, 五十嵐剛*, 稲葉美佐子*,
宇佐美美穂子*, 安田和男*

Monitoring of Endocrine Disrupting Chemicals in Well Water for Drinking and in Tama River at Tama Region in Tokyo

Toshinari SUZUKI*, Kumiko YAGUCHI*, Tsuyoshi IGARASHI*, Misako INABA*,
Mihoko USAMI*, and Kazuo YASUDA*

Keywords: 内分泌かく乱化学物質 endocrine disrupting chemicals, 飲用井戸水 well water for drinking, 河川水 river water, 実態調査 monitoring, フタル酸ジエステル phthalic acid diester, フタル酸モノエステル phthalic acid monoester, ビスフェノールA bisphenol A, 4-ノニルフェノール 4-nonylphenol, ノニルフェノールポリエトキシレト nonylphenol polyethoxylate

緒言

近年, 内分泌かく乱化学物質(いわゆる環境ホルモン)によるヒトや野生生物に及ぼす影響が問題視されるようになった。環境庁は平成10年にその作用が疑われる約70の化学物質を公表した¹⁾。それ以降, 国や地方自治体などによりそれら化学物質の環境や食品さらには野生生物中の汚染実態調査が行われている。これまでの調査報告によると, 河川水や地下水などの環境試料からはプラスチックの可塑剤であるフタル酸エステル, ポリカーボネート樹脂の原料であるビスフェノールAおよび界面活性剤の分解物である4-ノニルフェノールなどが高頻度で検出されることが明らかになっている²⁻⁴⁾。

多摩地域では地下水が個人の井戸水として飲み水や雑用水などの生活用水に利用されるほか, 都水道局や昭島市などの水道事業体では水道水原水として利用されている⁵⁾。一方, 河川水については, 多摩川上流部の水は都民の水道水原水として貴重な水資源となっている。また, 多摩川流域には親水公園が多く設けられ, 釣りや川遊び等都民の憩いの場として親しまれている。

そこで, 都民が利用しているこれらの地下水や河川水の安全性を調べるために, 内分泌かく乱化学物質を調査するとともに, その由来および環境中での分解物についても調査したので, それらの結果を報告する。

調査方法

1. 調査対象

1) 飲用井戸水 飲用井戸水は主に多摩地域の深さ30 m以内の浅井戸から既設の電動または手動ポンプで汲み上げ, 予めアセトンで洗浄した褐色ガラス瓶に採取した。塩素消毒がしてある場合には, 試料1Lに対して0.02 gのアスコルビ

ン酸ナトリウムを添加することにより残留塩素を除去した。2) 河川水 河川水の採水は図1に示すように多摩川水系(多摩川, 秋川および浅川)の6地点で行った。河川水は予めアセトンで洗浄した褐色ガラス瓶に直接採取し, 試料1Lに対して0.5 gのアスコルビン酸ナトリウムを添加した。

2. 分析方法

水試料の前処理は採水当日または冷蔵庫内(4℃)で保存し翌日に下記の分析方法により行った。

1) 内分泌かく乱化学物質 表1の化合物を調査対象とした。フタル酸ジエステル 各化合物のサロゲートを用いて測定した。抽出はUSEPAの方法⁶⁾に準じてディスク型固相(エムポアディスクSDB-XD)を用い, 定量はGC/MS-SIMにより行った⁷⁾。

アルキルフェノールおよびビスフェノールA 各化合物は環境省の外因性内分泌攪乱化学物質調査暫定マニュアル⁸⁾に準じてカトリッジ型固相(セップバックPS-2)を用いて抽出し, 定量についてはアルキルフェノールはBSTFAによるトリメチルシリル誘導体化後, GC/MS-SIMにより行い⁹⁾, ビスフェノールA(以下BPAと略す)はサロゲート法により定量した。

アジピン酸ジ-2-エチルヘキシル, ベンゾ(a)ピレンおよびスチレンオリゴマー 各化合物の抽出はフタル酸ジエステルの抽出と同時にを行い, GC/MS-SIMにより定量した⁸⁾。

17β-エストラジオール 17β-エストラジオールは環境省の外因性内分泌攪乱化学物質調査暫定マニュアル⁸⁾に準じてカトリッジ型固相(セップバックPS-2)を用いて抽出し, 抱合体を塩酸で加水分解し, 定量はBSTFAによるトリメチルシリル誘導体化後, GC/MS-SIMにより行った。

農薬 各農薬は上水試験方法¹⁰⁾に準じて, カトリッジ型固相(PS-2)を用いて抽出し, 定量はGC/MS-SIMにより行っ

* 東京都立衛生研究所多摩支所理化学研究科 190-0023東京都立川市柴崎町3-16-25

* Tama Branch Laboratory, The Tokyo Metropolitan Research Laboratory of Public Health,
3-16-25, Shibasaki-cho, Tachikawa, Tokyo 190-0023 Japan



図1. 多摩川水系河川水の試料採取場所

た。ただし、カルバリル、メソミルおよびペノミルの定量はLC/MSにより行った。

2) 内分泌かく乱化学物質関連化合物 表2および3に示した化合物について調査した。

ノニルフェノールポリエトキシレト¹¹⁾ ノニルフェノールポリエトキシレト(以下NPnEOと略す)およびその分解物は水試料500 mLに塩化ナトリウム25 gを加え、ジクロロメタン25 mLで2回抽出した。ジクロロメタン溶液は無水硫酸ナトリウムで脱水し、メタノール1 mLに転溶し、LC/MSで分析した。LC/MSの条件は次のとおりである。LQ Alliance, 日本ウォータース社製): カラム, Inertsil PH(2.1 mm i.d. x 150 mm, GLサイエンス社製); 溶離液; 70%メタノール(流速0.2 mL/分); MS(ZMD, 日本ウォータース社製): イオン化法, ポジティブESI; モニタ-イオン, NPnEOのn=1~15の各[M+Na]⁺

フタル酸モノエステル⁷⁾ フタル酸モノエステルは水試料500 mL(塩酸でpH 2に調整)を予めジクロロメタン, アセトン, メタノール, 水(塩酸でpH 2に調整)の順で各10 mLを用いてコンディショニングしたPS-2に流速15 mL/minで通水した。PS-2の上部にセップパックAC-2(日本ウォータース社製)を取り付け, 30分間の通気により固相を乾燥させた後, フタル酸モノエステルをジクロロメタン5 mLで溶出した。ジクロロメタン溶液は無水硫酸ナトリウムで脱水し, 窒素気流下で0.5 mLに濃縮した。濃縮液はジアゾメタンでメチル化後GC/MS-SIMで分析した。GC/MS条件は次のとおりである。GC(HP5890II, ヒュレットパッカド社製): 注入口温度, 220, キャリア-ガス, ヘリウム; カラムヘッド圧, 80 kPa; オートサンプリング, HP7673; 注入法, スプリットレス(1 μL, パージ開始時間1分); カラム, HP-5MS(0.25 mm i.d. x 30 m, 膜厚0.25 μm); カラム温度, 50(1 min) - 10 /min - 200 -6 /min - 300; MS(オートマスII, 日本電子製): イオン化電圧, 70 eV; イオン化電流, 300 μA; イオン化法, EI⁺; イオン源温度, 220; インタフェイス温度, 250; モニタ-イオン, m/z 163。

結果および考察

1. 飲用井戸水中の内分泌かく乱化学物質の調査

1) 実態調査

平成10年度から平成13年度に行った調査結果を表1に示す。調査した44化合物のうち、多摩地域の飲用井戸水から検出されたのはフタル酸ジ-*n*-ブチル(以下DBPと略す), フタル酸ジ-2-エチルヘキシル(以下DEHPと略す), アジピン酸ジ-2-エチルヘキシル(以下DEHAと略す), 4-*tert*-ブチルフェノール, 4-*tert*-オクチルフェノール, BPAおよびシマジンの7物質であった。各化合物の最高検出濃度はそれぞれ0.5, 1.0, 0.01, 0.01, 0.03, 3.29および0.04 μg/Lであった。検出率については、シマジンが11%で最も高く、ついでDBPの8%であり、その他は4%未満であった。環境省が平成12年度に行った地下水中の内分泌かく乱化学物質の実態調査では、本調査で検出された物質のほかフタル酸ジエチルおよび17β-エストラジオールが数十ng/Lの濃度で検出されている²⁾。

2) 検出原因の検討

平成10年度から平成12年度の調査で、いずれかの化合物が検出された井戸水を対象に平成13年度に再調査を行ったところ、シマジンは過去2年間と同程度検出されたことから、高い残留性が示唆された。シマジンは現在も多摩地域で使用されており、また、多摩地域の飲用井戸水から検出されることが報告されているため¹²⁾、今後も継続して実態調査が必要であると考えられる。その他の化合物は検出されず、過去2年間に検出された原因は地下水汚染によるものではなく、井戸水を汲み上げるポンプや配管などの材質に使用されていた化合物が井戸水中に溶出したものと考えられる。特に、BPAが3.29 μg/Lと比較的高濃度に検出された井戸水はポンプを新しいものと交換した直後に採水した水であり、2ヶ月および13ヶ月後の再調査ではBPAはそれぞれ0.11 μg/Lおよび検出下限値未満であった。このため、ポンプや配管の新設または布設替え直後には井戸水中のBPAを調査する必要があると考えられる。

表1. 多摩地域飲用井戸水および多摩川水系河川水中の内分泌かく乱化学物質のモニタリング結果

化合物	定量法 ^{a)}	DL ^{b)} ($\mu\text{g/L}$)	飲用井戸水 ^{c)}			河川水 ^{d)}		
			DN / SN	検出率 (%)	濃度 ($\mu\text{g/L}$)	DN / SN	検出率 (%)	濃度 ($\mu\text{g/L}$)
フタル酸ジエステル	1	0.01(0.1)	0 / 134	0	ND	43 / 72	60	0.31
フタル酸ジエチル	1	0.01(0.1)	0 / 134	0	ND	0 / 36	0	ND
フタル酸ジイソプロピル	1	0.01(0.1)	0 / 134	0	ND	0 / 72	0	ND
フタル酸ジ- <i>n</i> -プロピル	1	0.01(0.1)	0 / 134	0	ND	6 / 36	17	0.03
フタル酸ジイソブチル	1	0.01(0.1)	11 / 134	8	0.5	64 / 72	89	0.54
フタル酸ジ- <i>n</i> -ブチル(DBP)	1	0.01(0.1)	0 / 134	0	ND	0 / 72	0	ND
フタル酸ジ- <i>n</i> -ペンチル	1	0.01(0.1)	0 / 134	0	ND	0 / 36	0	ND
フタル酸ジヘキシル	1	0.01(0.1)	0 / 134	0	ND	0 / 72	0	ND
フタル酸ジ-2-エチルヘキシル(DEHP)	1	0.01(0.1)	2 / 134	1	1.0	65 / 72	90	3.60
フタル酸ベンジルブチル	1	0.01(0.1)	0 / 134	0	ND	41 / 72	57	0.06
17 β エストラジオール	1	0.001	0 / 134	0	ND	11 / 72	15	0.012
アジピン酸エステル								
アジピン酸ジ-2-エチルヘキシル(DEHA)	1	0.01	1 / 134	1	0.01	0 / 36	0	ND
ベンゾ(a)ピレン	1	0.01	0 / 134	0	ND	0 / 36	0	ND
スチレンオリゴマー								
1,3-ジフェニルプロパン	1	0.01	0 / 134	0	ND	0 / 36	0	ND
<i>cis</i> -1,2-ジフェニルシクロブタン	1	0.01	0 / 134	0	ND	0 / 36	0	ND
2,4-ジフェニル-1-ブテン	1	0.01	0 / 134	0	ND	0 / 36	0	ND
<i>trans</i> -1,2-ジフェニルシクロブタン	1	0.01	0 / 134	0	ND	0 / 36	0	ND
2,4,6-トリフェニル-1-ヘキセン	1	0.01	0 / 134	0	ND	0 / 36	0	ND
1-フェニル-4-(1'-フェニルエチル)テトラリン	1	0.01	0 / 134	0	ND	0 / 36	0	ND
アルキルフェノール								
4-エチルフェノール	2	0.01	0 / 140	0	ND	8 / 36	22	0.10
4-プロピルフェノール	2	0.01	0 / 140	0	ND	1 / 36	3	0.01
4- <i>tert</i> -ブチルフェノール	2	0.01	1 / 140	1	0.01	0 / 72	0	ND
4- <i>sec</i> -ブチルフェノール	2	0.01	0 / 140	0	ND	0 / 36	0	ND
4- <i>n</i> -ブチルフェノール	2	0.01	0 / 140	0	ND	0 / 72	0	ND
4- <i>tert</i> -ペンチルフェノール	2	0.01	0 / 140	0	ND	1 / 36	3	0.01
4- <i>n</i> -ペンチルフェノール	2	0.01	0 / 140	0	ND	1 / 72	1	0.01
4- <i>n</i> -プトキシフェノール	2	0.01	0 / 140	0	ND	0 / 36	0	ND
4- <i>n</i> -ヘキシルフェノール	2	0.01	0 / 140	0	ND	0 / 72	0	ND
4- <i>tert</i> -オクチルフェノール	2	0.01	5 / 140	4	0.03	25 / 72	35	0.04
4- <i>n</i> -ヘプチルフェノール	2	0.01	0 / 140	0	ND	0 / 72	0	ND
4- <i>n</i> -ヘキロキシフェノール	2	0.01	0 / 140	0	ND	1 / 36	3	0.01
4-フェニルフェノール	2	0.01	0 / 140	0	ND	2 / 36	6	0.02
4- <i>n</i> -オクチルフェノール	2	0.01	0 / 140	0	ND	0 / 72	0	ND
4-ノニルフェノール(4-NP)	2	0.1	0 / 146	0	ND	26 / 72	36	0.3
ビスフェノールA(BPA)	1	0.01	4 / 153	3	3.29	38 / 72	53	0.20
農薬								
アラクロール	2	0.01	0 / 131	0	ND	-	-	-
α -エンドスルファン	2	0.01	0 / 131	0	ND	-	-	-
β -エンドスルファン	2	0.01	0 / 131	0	ND	-	-	-
馬拉チオン	2	0.01	0 / 131	0	ND	-	-	-
シマジン	1	0.01	14 / 131	11	0.04	-	-	-
トリフルラリン	2	0.01	0 / 131	0	ND	-	-	-
カルバリル	3	0.01	0 / 131	0	ND	-	-	-
メソミル	3	0.03	0 / 131	0	ND	-	-	-
ベノミル	3	0.01	0 / 131	0	ND	-	-	-

a)1:GC/MS(サロゲート法), 2:GC/MS(内部標準法), 3:LC/MS.

b)DL:定量下限値, ()内は井戸水の定量下限値.

c)浅井戸:深さ30m以内, 調査期間:平成10年から平成13年, ND:定量下限値未滿, DN:検出数, SN:試料数, 濃度:最高濃度

d)調査河川:多摩川, 秋川および浅川, 調査期間:平成11年3月から平成12年2月, ND:定量下限値未滿, DN:検出数, SN:試料数, 濃度:最高濃度.

2. 多摩川水系河川水中の内分泌かく乱化学物質の調査

1) 実態調査

平成11年3月から平成12年2月に行った調査結果を表1に示す。調査した35化合物のうち、河川水から検出されたのはフタル酸ジエチル、フタル酸ジイソブチル、DBP、DEHP、フタル酸ベンジルブチル、17β-エストラジオール、4-エチルフェノール、4-プロピルフェノール、4-tert-ペンチルフェノール、4-n-ペンチルフェノール、4-tert-オクチルフェノール、4-n-ヘキソキシフェノール、4-フェニルフェノール、4-ノニルフェノール（以下4-NPと略す）およびBPAの15物質であった。最高検出濃度はDEHPでは3.60 μg/L、BPAでは0.20 μg/L、DBPでは0.54 μg/L、4-NPでは0.3 μg/Lであった。検出率が比較的高かった化合物は、DEHPおよびDBPで約90%、フタル酸ジエチルおよびフタル酸ベンジルブチルで約60%、BPAで53%、4-tert-オクチルフェノールおよび4-NPで約35%であった。人畜由来の内分泌かく乱化学物質である17β-エストラジオールの検出率は15%で、最高検出濃度は0.012 μg/Lであった。環境省が平成12年度に行った河川水中の内分泌かく乱化学物質の実態調査では、本調査で検出された物質のほかDEHAが0.01~0.03 μg/Lの濃度で検出されている²⁾。

2) 採水地点別、月別による濃度変化

検出率および濃度が高かったBPA、4-NP、DBPおよびDEHPの平均濃度を採水地点別に図2に示す。各化合物の平均濃度は多摩川（～）では上流から下流に行くに従い増加す

る傾向が見られた。特に、浅川下流域の各化合物の平均濃度は他の地点に比べて高かった。しかし、秋川下流域では平均濃度は低かった。これら化合物の濃度の経月変化を図3に示す。BPA、DBPおよびDEHPは7月から11月に濃度が低く、12月から6月に濃度が高かった。この濃度変化は河川水量の影響が大きいと考えられた。

東京都下水道局や建設省都市局では下水処理場の各処理過程での内分泌かく乱化学物質の濃度変動を調べている。

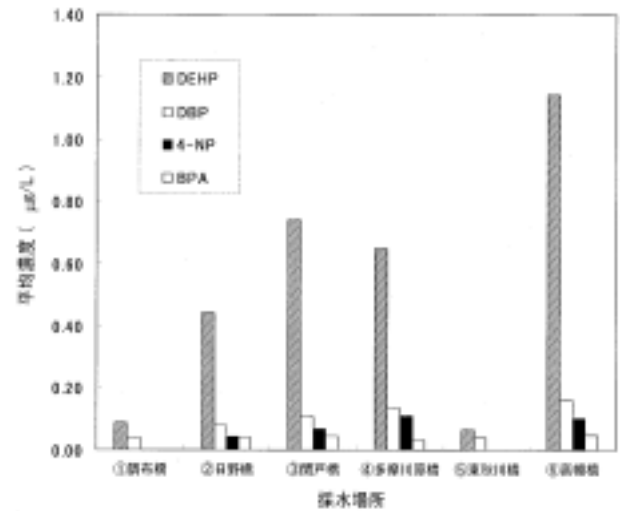


図2. 多摩川水系河川水中の主要化合物の平均濃度

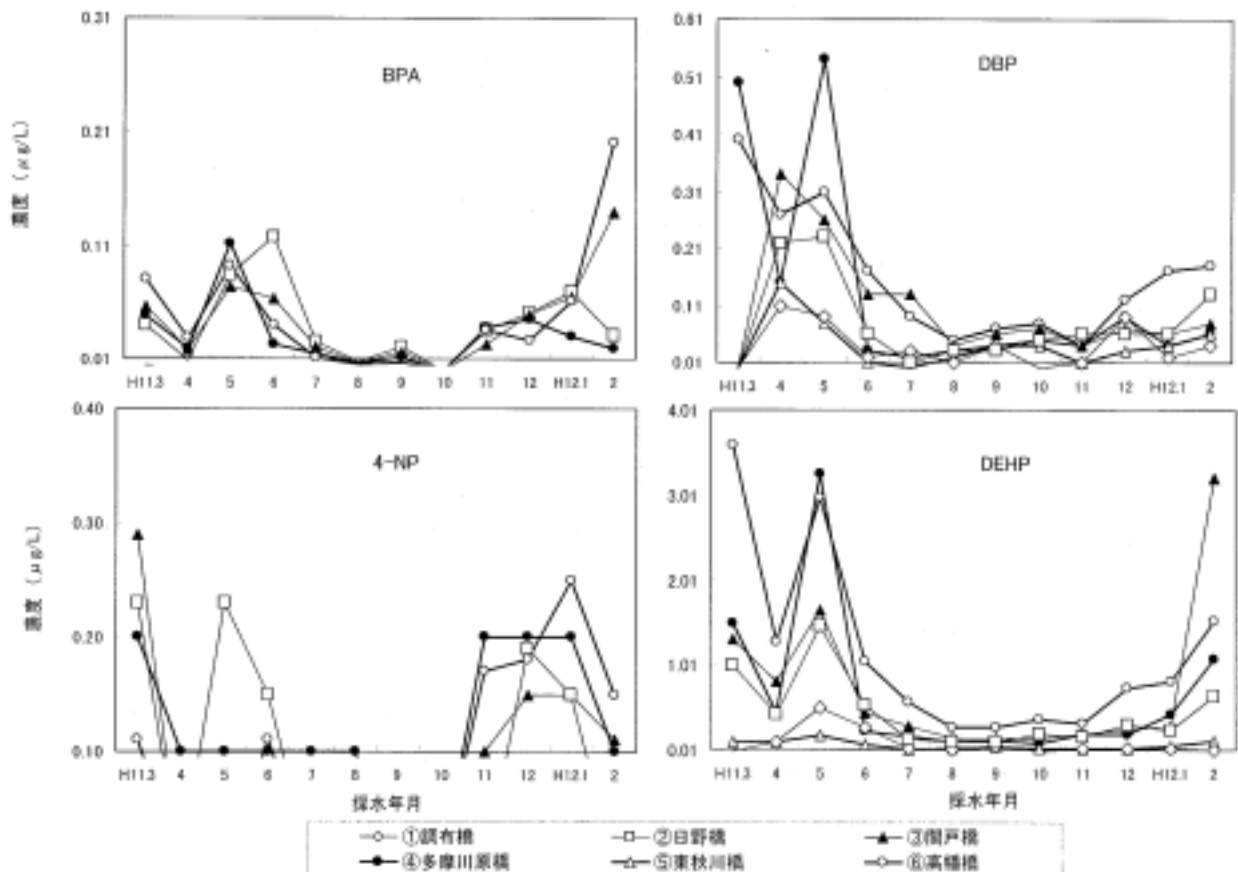


図3. 多摩川水系河川水中の主要化合物濃度の経月変化

流入水と放流水中の化合物の濃度から算出した減少率は17β-エストラジール等を除き、殆どの物質で90%以上で、放流水中BPA、DBP、DEHPおよび4-NPの濃度はそれぞれ0.1 μg/L未満、0.2 μg/L未満、1 μg/L未満および0.5 μg/L未満と報告されている^{13,14)}。一方、河川水の本調査ではDBPおよびDEHPの濃度は冬季から春期にかけて下水放流水よりも高い値を示した。これは多摩川中流域では河川水総量(約1,300,000トン/日)に占める下水放流水の割合は約50%である¹⁵⁾ことから、下水処理場を経由しない下水や表流水中にはDBPやDEHPが河川水濃度と同程度またはそれ以上の濃度で存在しているためと考えられる。

3. 内分泌かく乱化学物質関連化合物の調査

1) NPnEO

NPnEOは下水処理場等において好気性微生物によりエチレンオキシド基(EO基)単位で鎖長短縮されモノエトキシレ-トにまで分解され、最終的には嫌気性微生物がモノエトキシレ-トを4-NPに分解することが既に報告されている¹⁶⁾。そこで、各採水地点におけるNPnEOの濃度を測定した(表2)多摩川上流域や秋川からは低濃度のNPnEOが検出された。一方、多摩川中流域、および浅川からは、平均0.45~1.30 μg/LのNPnEOが検出された。特に、浅

表2. 多摩川水系河川水中のNPnEOの濃度

採水地点	検出濃度 (μg/L)	平均値 [*] (μg/L)
調布橋	0.00 - 0.30	0.05
日野橋	0.01 - 1.33	0.45
関戸橋	0.03 - 1.07	0.45
多摩川原橋	0.02 - 0.64	0.35
東秋川橋	0.00 - 0.06	0.02
高幡橋	0.08 - 2.55	1.30

* 平成11年6月から平成12年2月の平均値 (n=9)

川では他の地点に比べ3倍近い濃度で検出され、汚染が進んでいることが明らかになった。また、各採水地点におけるNPnEOのEO基の付加モル数を調べた結果、多摩川、および浅川ではEO基が3個付加したものが最も多く、浅川ではEO基が5個付加したものも多く存在した(図4)。洗剤として用いられているNPnEOは、EO鎖長がn=3~18の混合物であり、通常鎖長が7~9の含有率が多く、短いものの含有率は少ないと言われている¹⁷⁾。これに比べて、多摩川水系におけるNPnEOは鎖長n=6以下の短いものが多く存在したことから、河川水中または下水処理場においてEO基の分解が進んでいることが推察される。

2) フタル酸モノエステル

フタル酸ジエステルは環境水中の微生物や人の体内でモノエステルに分解されることが知られている^{18,19)}。そこで、フタル酸モノエステルの調査を行った。調査した10化合物のうち、フタル酸モノ-n-ブチル(以下MBPと略す)とフタル酸モノ-2-エチルヘキシル(以下MEHPと略す)の2化合物

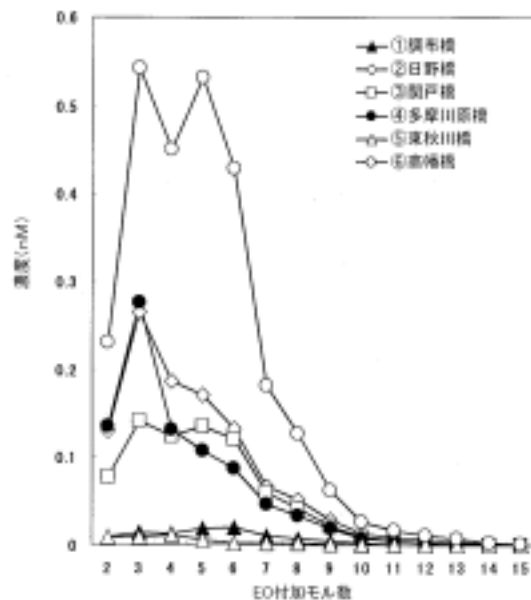


図4. 多摩川水系河川水中のNPnEOのEO付加モル数別濃度

表3. 多摩川水系河川水中のフタル酸モノエステルの濃度

フタル酸モノエステル	採水地点における濃度 (最小濃度 - 最大濃度, μg/L) [*]					
	調布橋	日野橋	関戸橋	多摩川原橋	東秋川橋	高幡橋
エチル	ND	ND	ND	ND	ND	ND
イソプロピル	ND	ND	ND	ND	ND	ND
n-プロピル	ND	ND	ND	ND	ND	ND
イソブチル	ND	ND	ND	ND	ND	ND
n-ブチル(MBP)	ND - 0.05	ND - 0.15	0.01 - 0.10	ND - 0.48	ND - 0.10	ND - 0.17
n-ペンチル	ND	ND	ND	ND	ND	ND
シクロヘキシル	ND	ND	ND	ND	ND	ND
2-エチルヘキシル(MEHP)	ND - 0.12	0.02 - 0.58	0.02 - 0.46	0.02 - 1.30	0.02 - 0.17	ND - 0.87
ベンジル	ND	ND	ND	ND	ND	ND
n-オクチル	ND	ND	ND	ND	ND	ND

* NDは0.01μg/L未満, 採水期間は平成11年3月から平成12年2月(毎月1回)

がいずれかの採水地点で検出され、それらの濃度は下流に行くに従い増加していた(表3)。また、それらの濃度は親化合物であるDBPおよびDEHPの濃度と比べ若干低い値を示すことが明らかになり、ジエステル体が検出される場合にはモノエステル体も同時に検出されることが示唆された。モノエステル体の生物作用については、特にMEHPはラット肝臓のペルオキシゾームの増殖²⁰⁾や新生児ラットのセルトリ細胞の増殖²¹⁾などを惹起することが報告されている。これらのことから、フタル酸ジエステルに加え、MBPやMEHPなどのモノエステル体も併せて調査する必要があると考える。

文 献

- 1) 環境庁：「外因性内分泌攪乱化学物質問題への環境庁の対応方針について-環境ホルモン戦略計画SPEED'98-」, 環境庁, 1998年。
- 2) 環境省環境管理局水環境部水環境管理課：平成12年度水環境中の内分泌攪乱化学物質(いわゆる環境ホルモン)実態調査結果(<http://www.env.go.jp/chemi/end/kento1302/mat02.pdf>) , 平成13年10月。
- 3) 東京都水道局:平成13年度 水道水等における内分泌かく乱化学物質の実態調査結果(<http://www.waterworks.metro.tokyo.jp/winfo/storiku.htm>) , 平成14年5月。
- 4) 国土交通省河川局河川環境課：平成12年度水環境における内分泌攪乱物質に関する実態調査結果について(http://www.mlit.go.jp/kisha/kisha01/05/050724_2_.html) , 平成13年7月24日。
- 5) 東京都衛生局生活環境部:東京都の水道(平成12年版) , 平成12年12月。
- 6) Eichelberger, J.W., Behymer, T.D., Budde, W.L.: EPA method 525.2 Revision 1.0, USEPA, Environmental Monitoring System, Cincinnati, OH, 1994。
- 7) Suzuki, T., Yaguchi, K., Suzuki, S.: *Environ. Sci. Technol.*, 35, 3757-3763, 2001。
- 8) 環境庁水質保全局水質管理課：外因性内分泌攪乱化学物質調査暫定マニュアル(水質, 底質, 水生生物)平成10年10月。
- 9) 矢口久美子, 鈴木俊也, 鈴木助治：第34回日本水環境学会年会講演集, 11, 2000。
- 10) 日本水道協会：上水試験方法(1993年版)厚生省生活衛生局水道環境部監修, 1993, 日本水道協会, 東京。
- 11) SUN, G., GENO, P. W.: *Meas. Toxic. Air Pollut.*, 12, 477-485, 1997。
- 12) 鈴木俊也, 稲葉美佐子, 近藤治美, 他：東京都立衛生研究所年報, 49, 210-217, 1998。
- 13) 建設省都市局下水道部：平成11年度下水道における内分泌攪乱化学物質に関する調査報告(<http://www.mlit.go.jp/crd/city/sewerage/information/naib000419gaiyou.html>) , 平成12年4月。
- 14) 東京都下水道局：平成12年度下水道における内分泌かく乱化学物質の実態調査結果(概要)(<http://www.gesui.metro.tokyo.jp/info115.htm>) , 平成13年8月14日。
- 15) 東京都環境局環境評価部広域監視課, 平成12年度公共用水域及び地下水の水質測定結果, 平成13年8月。
- 16) Talmage, S.S.: *Environmental and Human Safety of Major Surfactants -Alcohol Ethoxylates and Alkylphenol Ethoxylates-*, The Soap and Detergents Association, 1994, Lewis Publishers.
- 17) Maryama, K., Yuan, M., Otsuki, A.: *Environ. Sci. Technol.*, 34, 343-348, 2000.
- 18) WHO, *Environmental Health Criteria 131, diethylhexyl Phthalate*, WHO, Geneva, 1992.
- 19) WHO, *Environmental Health Criteria 189, di-n-butyl Phthalate*, WHO, Geneva, 1997.
- 20) Elcombe, C.R., Mitchell, A.M.: *Environ. Health Perspect.*, 70, 211-219, 1986.
- 21) Li, L.H., Jester, W.F. Jr., Orth, J.M.: *Toxicol. Appl. Pharmacol.*, 153, 258-265, 1998.