

団粒構造の発達した火山灰土壌の撥水性発現機構の解明

Mechanism of Soil Water Repellency in Aggregated Volcanic Ash Soils

川本 健^{1*}, 中村 寿人²
Ken Kawamoto¹, Hisato Nakamura²

¹ 埼玉大学 工学部建設工学科

Department of Civil and Environmental Engineering, Faculty of Engineering, Saitama University

² 埼玉大学大学院 理工学研究科

Graduate School of Science and Engineering, Saitama University

Abstract

We investigated the degree of soil water repellency (WR) in aggregated volcanic ash soils associated with organic matter content and initial water content. A series of tests of WR, namely, Water Drop Penetration Time (WDPT) test, Ninety Degree Surface Tension (NDST) test, and capillary rise test were applied. Results show that the degree of WR varied greatly with both organic matter content and initial water content, and that three distinct WR areas of 'Extremely WR area,' 'Transitional area,' and 'Wettable area' were recognized in the scatter diagram obtained from WDPT test. In three WR tests, initial water content values that yield the highest degree of WR were found to be identically between WDPT and capillary rise tests, and the value obtained from NDST test was deviated from former two tests. The degree of WR in aggregated soil was closely associated with a soil structure and morphological features of water retention in aggregates. The degree of WR was enhanced mostly at the water content corresponding to a moisture condition at which water in intraaggregate pores was drained to a moderate extent.

Key Words: Soil water repellency, Volcanic ash soil, Organic matter content, Aggregate

1. はじめに

表層境界において絶えず落葉等の有機物供給が存在する自然浅層土壌では、活発な土壌生物活動や微生物作用により団粒構造やマクロポアが発達する。このような団粒構造やマクロポアは、深層土壌では発達せず、浅層土壌特有の性質として見なすことができる。団粒構造の発達には、表層土壌を軟潤にし、大きな保水性と良好な排水性の両者を土壌に与える

ことから、植物の生育を目的とする農地土壌や植生回復には欠かせないものとなっている。しかし、土壌有機物の存在は、微生物作用により団粒構造を発達させる一方、その土壌有機物の分解と腐植化によって疎水基を有する有機物質（例えば、フミン酸）の生成へとつながる。この疎水基を有する有機物質は、土粒子や団粒表面を被覆することにより、水を吸収しにくい、あるいは水が濡れにくいといった性

* 〒338-8570 さいたま市桜区下大久保255 電話：048-858-3572 FAX：048-858-7374
Email：kawamoto@post.saitama-u.ac.jp

質, いわゆる土壤撥水性を土壤に与える。

土壤の撥水性 (Soil Water Repellency, 以下 WR) は, 植物の発芽や生育の抑制, 地表流の発生および土壤浸食の促進の要因となり, 浅層土壤における水移動や土壤保全などの諸問題を考える際に重要な鍵を握る [1] [2]. さらに, WR は選択流, とりわけフィンガ一流の発生と密接に関連する [3]. フィンガ一流によって土壤内に形成される局所的な水みちは, 根圏での水分分布を不均一にし [4], 土壤下方への物質移動を速め [5], 撥水性土壤における物質移動予測を困難なものとする。

一般に, 土壤有機物含有量 (c_o) が増加すれば WR が強まり, 高熱で土壤有機物を灰化处理すれば WR は消失する [6]. また一方, WR は土壤の初期水分量 (θ_i) に強く依存し, 乾燥した条件で顕著になり, 湿潤な条件で消失する. しかし, θ_i の増加は一方向的に WR を弱めるばかりでなく, θ_i の増加で WR が強まる水分域をもつ撥水性土壤も存在することが報告されている [7].

以上のように, WR の度合いは c_o と θ_i の双方に依存するにも関わらず, これまで WR の評価は, 主に風乾 (もしくは自然含水比) の土を用いて調べられてきた [4]. この場合, 先述のような θ_i 変化が WR に及ぼす影響を正しく把握することはできず, 土壤によっては WR の度合いを過小評価する可能性がある. さらに, これまでの WR に関する研究は, 砂質土を中心に行われ [8], 我が国の火山灰土壤表土のように団粒構造が発達した土を対象とした研究は少ない。

本研究では, 団粒構造の発達した火山灰土壤を用いて, WR の発現メカニズムを明らかにすることを目的とした. 具体的には, 3 種類の試験を用いて, 土壤の c_o と θ_i が WR に及ぼす影響を定量的に評価し, WR の発現メカニズムに関する考察を団粒構造とその保水形態に注目して行った。

2. 試料

試料は福島県西郷村の丘陵地の 3 地点より採取した. 3 地点の土壤はいずれも那須火山帯起源の火山灰を母材とする火山灰土壤であるが, 表層を被覆す

Table 1 Soil physical properties

Vegetation cover	Depth	$\rho_s^{(1)}$ (g/cm ³)	ρ_d (g/cm ³)	K_{sat} (cm/s)	Particle size distribution			
					Clay (%) (0.002mm<)	Silt (%) (0.002-0.02mm)	Sand (%) (0.02-2mm)	Gravel (%) (2mm>)
Deciduous tree (Konara oak)	5	2.60	0.72	2.1×10^{-3}	9.6	35.5	52.9	2.1
	25	2.65	0.62	3.9×10^{-3}	4.6	12.8	81.7	0.9
Conifer (Red pine)	5	2.41	0.54	3.3×10^{-3}	17.6	27.3	54.6	0.5
	25	2.57	0.57	2.8×10^{-3}	13.1	32.4	53.3	1.2
Conifer (Cedar)	5	2.44	0.47	2.9×10^{-3}	9.3	41.3	49.0	0.5
	25	2.61	0.62	3.4×10^{-3}	8.2	32.4	57.9	1.6

Table 2 Soil chemical properties

Vegetation cover	Depth	pH	EC (mS/cm)	C_o (%)	Li (%)	C (%)	N (%)	C/N
Deciduous tree (Konara oak)	5	5.4	2.4	15.3	20.7	7.8	0.5	17.2
	25	5.7	1.1	3.8	9.8	2.8	0.2	17.4
Conifer (Red pine)	5	4.9	6.4	19.8	28.7	12.3	0.8	16.3
	25	5.6	4.8	1.9	13.9	1.0	0.1	8.4
Conifer (Cedar)	5	5.9	6.6	23.3	30.6	11.8	0.9	12.4
	25	5.4	3.0	4.5	13.5	2.8	0.3	9.2

る植生に違いがあり、それぞれコナラを中心とした広葉樹林内、アカマツを中心とした針葉樹林内、スギを中心とした針葉樹林内であった。土性は、地表から深さ 10cm 程度が黒色の A 層、それ以深が褐色の B 層であった。A 層ではマクロポアを多数含む団粒構造が発達し、B 層ではマクロポアが点在する壁状構造であった。試料採取は有機物に富む表層 5cm を中心に、深さ 30cm までを 5cm 深さ間隔で行い、攪乱試料および 100cc コアサンプラーによる不攪乱試料を採取した。

土壌撥水性 (WR) の試験に先立ち、土壌物理性として土粒子密度 (ρ_s)、乾燥密度 (ρ_d)、飽和透水係数 (K_{sat})、および粒度分布を測定し、Table 1 に示した。ここで、 ρ_d および K_{sat} は不攪乱コア試料にて測定した。さらに、土壌化学性として土壌 pH、EC、有機物含有量 (C_o)、強熱減量 (L_i)、炭素含量 (C)、窒素含量 (N)、および C/N 比を測定し、Table 2 に示した。ここで、 C_o は重クロム酸法を用いて測定し[9]、 C 、 N および C/N 比は CN コーダーを用いて測定した。なお、化学性の試験は粗大有機物の影響を取り除くため、すべて 2mm 篩通過試料に対して行った

Fig. 1 の手順で試料を準備した。採取試料 (自然体積含水率 $\theta_f = 0.35-0.40$) を、2mm 篩を用いて篩別した。その後、 θ_f 試料を加湿もしくは乾燥することで、 $\theta_i = 0.00-0.51$ の範囲の試料を作成した。具体的には、 θ_f より大きな θ_i 試料は試料に蒸留水を噴霧して加湿することで、 θ_f より小さな θ_i 試料は 60°C に設定した乾燥炉で段階的に乾燥させることで得た。加湿もしくは乾燥して水分調整を行った試料は、袋に入れて 24 時間以上静置した後、WR 試験と L_i の測定を行った。また、WR 試験に用いた試料の C_o は、 L_i の測定値と C_o-L_i の関係式を用いて算出した。

2mm 篩通過試料 (Fig. 1) の団粒分布を調べるため、団粒分析試験 (水中篩別法) を行い、Fig. 2 に示した。また、試料の粒径加積曲線 (Table 1) を同図に示した。深さ 5cm 試料の団粒の平均質量直径は、広葉樹林内試料が 0.89mm、針葉樹林内試料が

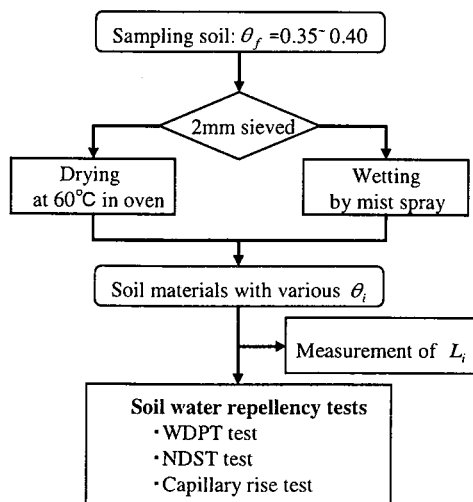


Fig. 1 Preparation of materials for soil water repellency tests

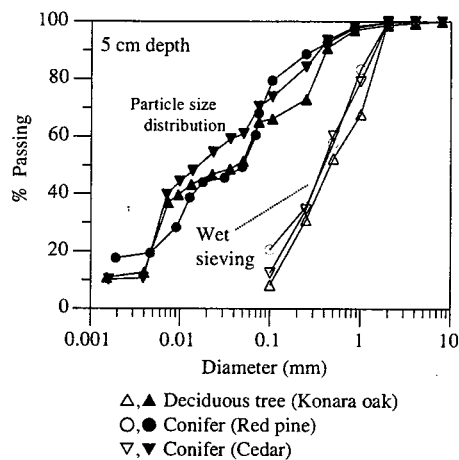


Fig. 2 Aggregate size and particle size distributions

0.44mm (アカマツ)、0.60mm (スギ) となり、団粒化の進行が確認できる。

3. 土壌撥水性 (WR) 試験

3.1 水滴浸入時間試験

水滴浸入時間 (Water drop penetration time, 以下 WDPT) 試験は、試料表面に水滴を滴下し、その浸入時間の大小で以って WR の指標とする試験である。WDPT が大きい程、WR の度合いは大きくなる。試験は容易であるが、水滴浸入終了 (消失) の確認が難しい点が短所として挙げられる。

本研究では、直径 5cm、高さ 2cm の輪切りカラムに試料を充填し、その表面に注射針を用いて水滴 (直

径約 5mm) を滴下し, WDPT を測定した. なお, WDPT 試験を含め WR 試験における乾燥密度 ρ_d は, 採取地の ρ_d (Table 1) と充填しやすさを考慮して $\rho_d = 0.56$ とし, 充填の際は団粒を破壊しないよう注意した. また, WDPT 試験をはじめとする WR の試験はすべて $20 \pm 1^\circ\text{C}$ の恒温室で行った.

3.2 90° 水滴浸入時間試験

90° 表面張力 (Ninety degree surface tension, 以下 NDST) 試験は, 様々な濃度のエタノール水溶液の液滴を試料表面に滴下し, 液滴が 5 秒内で浸入する最小濃度の水溶液の表面張力 (以下 γ_{ND}) を以って, WR の指標とする (Watson and Letey, 1970). この γ_{ND} が小さい程, WR の度合いは大きくなる. NDST 試験では, エタノール水溶液濃度として重量パーセント濃度 (wt %) もしくは体積パーセント濃度 (vol. %) が用いられる. 本研究では, WDPT 試験と同様に試料を充填し, NDST 試験を行った.

3.3 毛管上昇試験

毛管上昇試験は, 水と, 土との接触角 0° を与える既知の液体 (例えば, 100 wt % のエタノール溶液) の二種類の液体を用いて試験を行い, 両者の毛管上昇高の時間変化を比較することで水と土との見かけの接触角 (Apparent contact angle, α) を求める方法である [10]. この時, α ($^\circ$) が WR の指標となり, α が大きい程 WR の度合いは大きくなる. なお, 毛管上昇試験で求まる α は前進接触角である.

α は, 土壌間隙を毛細管と仮定して, ラプラス式とポアズーユの法則を用いて毛管上昇現象を表した Washburn の式を利用して求めることができる [11] [12]. そして, 重力の影響の小さい毛管上昇初期に注目すると, α は最終的に次式で与えられる.

$$\cos \alpha = \left(\frac{K}{K'} \right)^2 \frac{\nu \gamma'}{\nu' \gamma} \quad (1)$$

ここで, ν , ν' , γ , γ' はそれぞれ水とエタノール溶液 (100 wt %) の粘性係数 (Pa·s), 表面張力 (N/m) である. K, K' は, 水とエタノール溶液 (100 wt %)

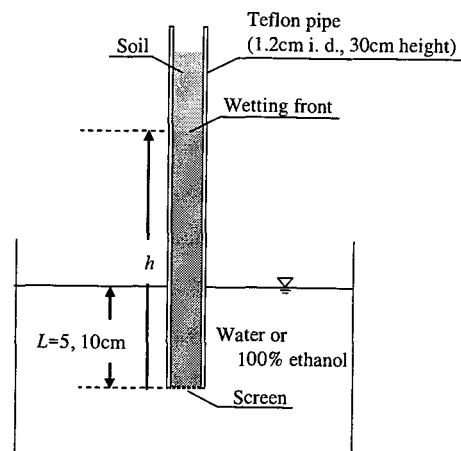


Fig. 3 Experimental setup for capillary rise tests

での毛管上昇高 h (cm) と時間の平方根 \sqrt{t} ($\text{s}^{1/2}$) の関係の初期勾配 ($= h/\sqrt{t}$) として求まる.

毛管上昇試験に用いた装置を Fig. 3 に示した. 試料を充填するパイプはテフロン®製のパイプ (水に対する接触角 108°) を用いた. この理由は, ガラスパイプ (水に対する接触角 $0-10^\circ$) のようにパイプ壁面が水に対して疎水性でない場合, 水が充填試料内よりも壁面を伝って優先的に上昇する危険性があるためである [6]. 試料を充填したパイプを, 水もしくは 100 wt % のエタノール溶液に瞬時に水浸し, 浸潤前線の位置 h を肉眼で読み取った. この時, 測定時間 t は水浸後 0, 15, 30, 60, 120, 300, 600, 1800, 3600s とし, 水面からの高さ L は 5, 10cm の 2 通りで行った.

4. 結果および考察

4.1 WDPT 試験による WR の評価

WDPT 試験から得られた結果を, Bisdom ら (1993) [13] の分類に基づいて整理し, Fig. 4 に示した. 彼らは WR の度合いを, Extremely WR (WDPT: $>3600\text{s}$), Severely WR (WDPT: 600-3600), Strongly WR (WDPT: 60-600s), Slightly WR (WDPT: 5-60s), そして撥水性を示さない Wetttable (WDPT: $<5\text{s}$) の 5 階級に分類した.

いずれの被覆植生から採取した試料も, c_o と θ_i の変化にともない, Wetttable から Extremely WR までの 5 階級すべての WR が確認できた. そして, WR の

度合いは $C_o - \theta_i$ 上で, Extremely WR が現れる極めて撥水性が強い領域 (以下, 極撥水性領域), 撥水性を示さず Wettable からなる領域 (以下, 親水性領域), そして極撥水性と親水性領域に挟まれ, Severely WR, Strongly WR, Slightly WR から構成される領域 (以下, 遷移領域) の3つの領域に区別できた。

4.2 NDST 試験による WR の評価

C_o の異なる2種類の試料に対して, θ_i を変化させて NDST 試験を行い, 得られた γ_{ND} を θ_i の関数として Fig. 5 に示した。いずれの試料も θ_i が 0.05 から増加するに従って γ_{ND} は低下し (WR の度合いが強まり), $\theta_i = 0.3$ 付近でピークとなる最小表面張力を示した。ピーク後は僅かな水分量の増加で急激に γ_{ND} は増加し, WR が消失した。

NDST 試験 (Fig. 5) と WDPT 試験 (Fig. 4) の結果と比較すると, γ_{min} が相当する θ_i は, WDPT 試験の極撥水性領域と遷移領域の境界に近い, 遷移領域内に位置し, 最も WR の度合いが強まる水分域が両試験間で異なることが分かる。この理由は定かではないが, WR の指標が, NDST 試験では表面張力, WDPT 試験では (水滴浸入) 時間と異なることが要因と考えられる。

4.3 毛管上昇試験による WR の評価

毛管上昇試験より, 水とエタノール溶液 (100 wt %) での毛管上昇高 h (cm) と時間の平方根 \sqrt{t} ($s^{1/2}$) の関係の初期勾配 K, K' を求め, (1)式より水と土との見かけの接触角 α ($^\circ$) を算出し, Table 3 に示した。ここで, K, K' は $t = 0, 15, 30s$ の3点を直線回帰する

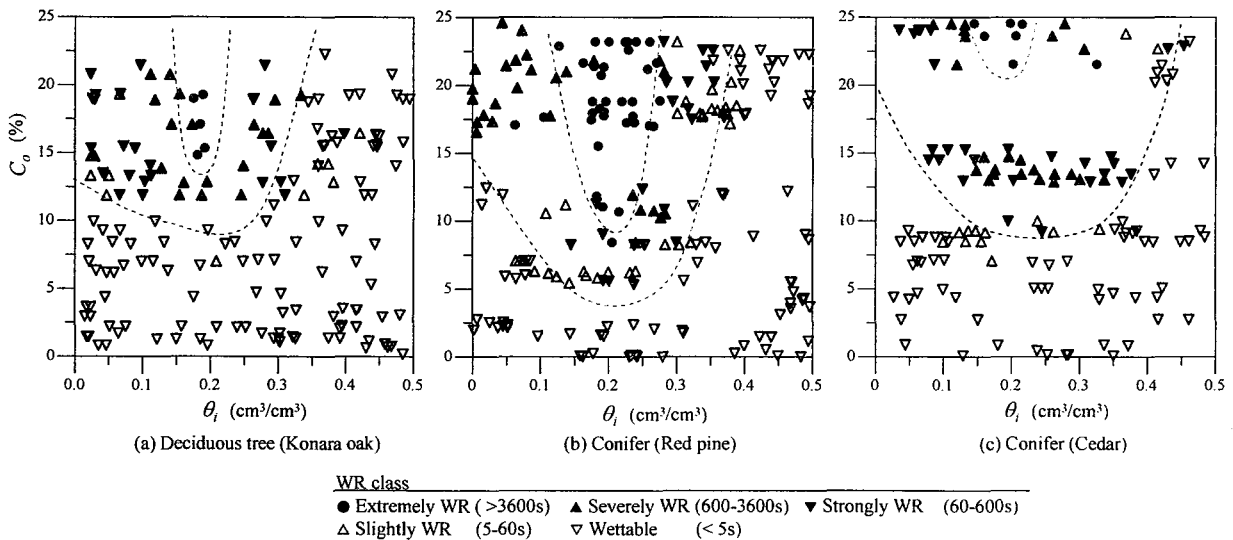


Fig. 4 Scatter diagram of degree of soil water repellency obtained from WDPT tests for each vegetation cover

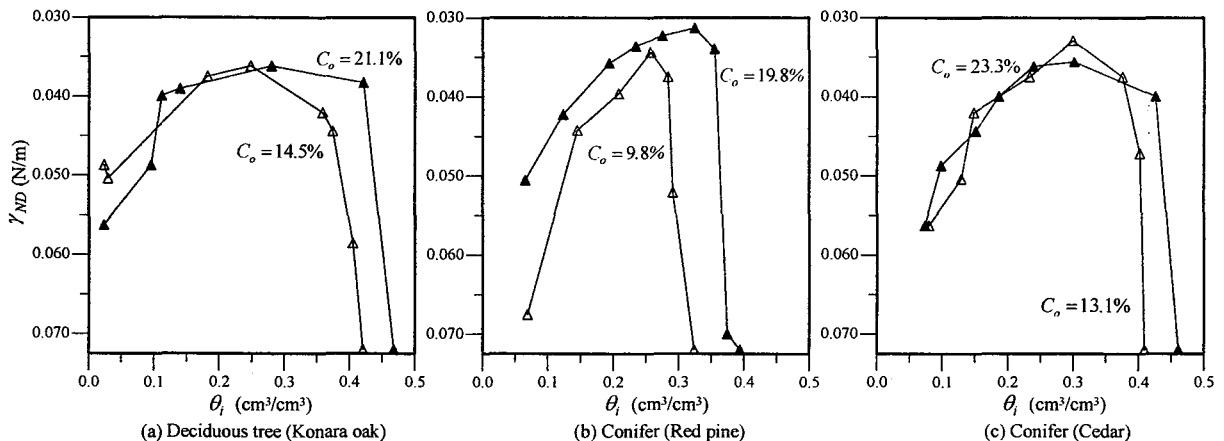


Fig. 5 γ_{ND} as a function of initial volumetric water content θ_i

Table 3 Apparent contact angles obtained from capillary rise tests and γ_{ND} from NDST tests

Vegetation cover	θ_i (cm ³ /cm ³)	C_o (%)	L=5 cm			L=10 cm			WR class	γ_{ND} (N/m)
			K (cm/s ^{1/2})	K' (cm/s ^{1/2})	α (°)	K (cm/s ^{1/2})	K' (cm/s ^{1/2})	α (°)		
Deciduous tree (Konara oak)	0.17	15.3	0.20	0.98	89	0.87	1.21	82	Severely WR	0.039
	0.02	3.8	1.18	1.12	74	2.13	1.63	64	Wettable	0.072
	0.19	15.3	0.07	0.89	90	0.78	1.15	83	Extremely WR	0.038
	0.02	15.0	0.91	1.05	79	1.38	1.77	81	Strongly (or Slightly) WR	0.056
Conifer (Red pine)	0.05	17.3	0.19	0.77	89	0.62	0.94	84	Severely WR	0.051
	0.06	7.6	0.73	0.51	58	1.02	0.72	59	Wettable	0.072
	0.19	18.2	0.02	0.64	90	0.24	0.82	89	Extremely WR	0.036
	0.34	16.0	0.31	0.51	85	0.69	0.63	72	Strongly (or Slightly) WR	0.031
Conifer (Cedar)	0.24	23.1	0.17	1.08	90	0.92	1.72	86	Severely WR	0.036
	0.08	4.5	1.37	1.20	71	1.82	1.77	74	Wettable	0.072
	0.20	23.3	0.06	1.01	90	0.72	1.50	87	Extremely WR	0.039
	0.08	22.8	0.73	1.29	85	1.25	1.99	84	Strongly (or Slightly) WR	0.056

ことで求めた。また、比較のため、WDPT 試験で得られた WR の階級、NDST 試験で得られた γ_{ND} を同表に示した

α は WDPT 試験で得られた WR の階級に応じて変化し、いづれの被覆植生においても、Extremely WR で約 90° と最も大きな値、Wettable で約 60° と最も小さな値を示し、Severely WR, Strongly WR, Slightly WR では 60-90° の中間の値を概ね示した。また、先の NDST 試験と WDPT 試験の関係と同様に、毛管上昇試験から得られる α の大小関係は NDST 試験から得られる γ_{ND} の大小関係と対応しなかった。

4.4 団粒土における土壤撥水性 (WR) の発現・消失メカニズムに関する考察

本試料の WR の度合いは、Extremely WR から Wettable へと θ_i の大きさに変化する (Fig. 4)。このメカニズムを探るため、試料の土壌構造およびその保水形態に注目した。Fig. 6 に本試料の水分特性曲線 (脱水過程) を示した。1-120cm のサクシオン領域は吸引法、120-4082cm は加圧板法で測定した [14]。4082cm 以上のサクシオン領域は水分ポテンシャルメーター (WP4, デカゴン社) を用いて測定した。団粒構造の発達した本試料は、団粒外間隙と団粒内間隙からなる二重間隙構造を有し [15] [16]、それぞれの空気侵入サクシオンは 30cm と 3000cm に位置した。また、同図に体積含水率 θ の各水分域が θ_i として対応する WR の階級 (WDPT 試験, Fig. 4) を示

し、水分域 1-4 とした。

Fig. 7 に水分特性曲線 (Fig. 6) から推察した各水分域における団粒土の保水形態の概念図を示した。ここで、団粒表面は、一部が疎水性を有する有機物質にコーティングされた疎水性表面、それ以外が親水性表面であり、両者が混在する不均一面と仮定する (Fig. 7 (a)) [17]。Fig. 7 (d) の水分域 4 は、団粒外間隙に水分が保持され、団粒表面はすべて膜状水で覆われている。このため、団粒表面に疎水性部位は存在せず、新たに侵入した水は膜状水と結びつくことで団粒外間隙に保持される (Wettable)。Fig. 7 (c) の水分域 3 は、団粒外間隙の水が抜け、団粒内間隙の空気侵入が始まる前後の水分域であり、膜状水による団粒表面の被覆は完全ではない。このため、表面の一部の疎水性部位が機能しはじめ、WDPT 試験において Severely WR, Strongly WR, Slightly WR が発現する。Fig. 7 (b) の水分域 2 は、膜状水による団粒表面の被覆は完全になくなり、団粒内間隙の脱水が $\theta = 0.10$ 程度、適度に進行した水分域である。団粒表面の疎水性部位が十分に機能し、団粒表面は極めて強い撥水性、Extremely WR を示す。Fig. 7 (a) の水分域 1 は、団粒内間隙の脱水が十分に進行した水分域である。Fig. 7 (b) の水分域 2 と同様に、団粒表面の疎水性部位が十分に機能し、団粒表面は強い撥水性を有する。しかし、新たに侵入した水に対して、一部の親水性表面を通して団粒内の微細間隙による毛管力が作用するため、Fig. 7 (b) の水分域 2 よりも

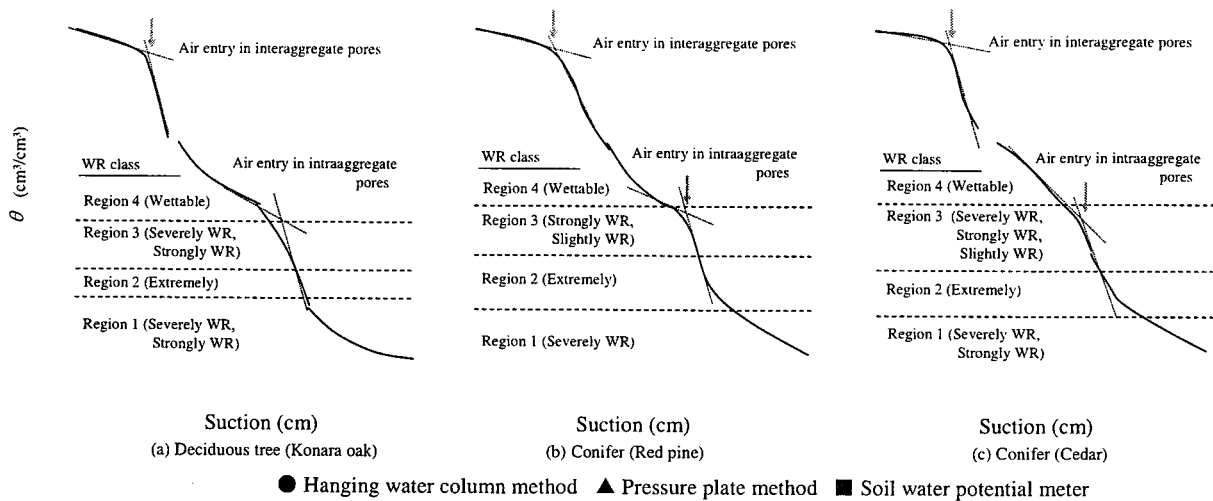


Fig. 6 Soil water characteristic curve (Drying process)

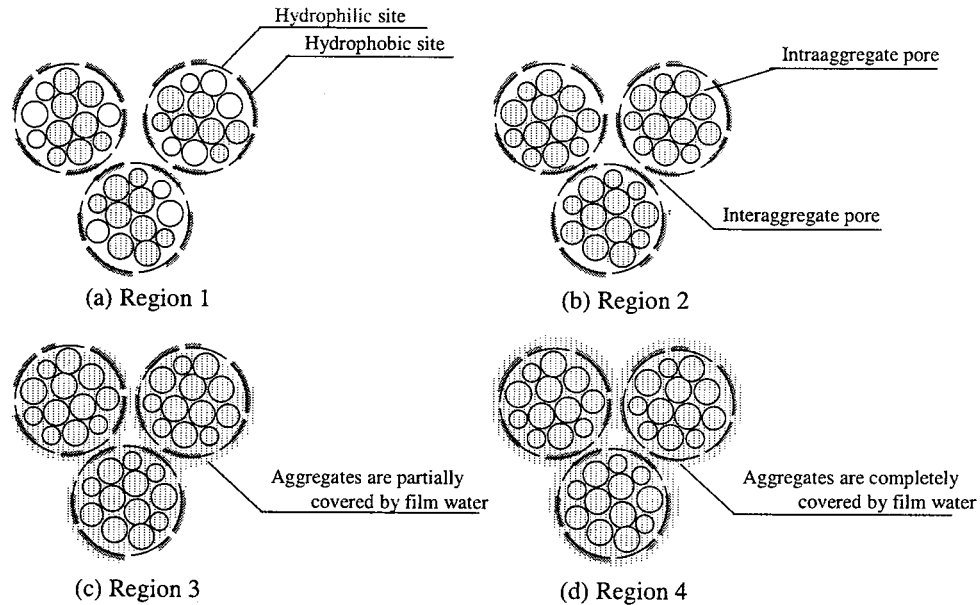


Fig. 7 Schematic diagrams of morphological features of water retention in aggregates for each water content region

弱い撥水性, Severely WR, Strongly WRが発現する。

毛管上昇試験より求まる水と土との見かけの接触角 α は, WDPT 試験による WR 評価と対応し, Extremely WR の水分域で最大値 (約 90°) が得られた (Table 3). このことから, 団粒土では, 疎水性表面と親水性表面が混在する不均一面である団粒表面において, 疎水性部位が十分に機能し, かつ団粒内の微細間隙による毛管力の作用が小さい水分域において最大の α を与えるものと考えられる。

5. まとめ

- 1) 火山灰土壤の撥水性の度合いは, 土壤の c_0 と θ_i の双方に依存し, WDPT 試験により, 最も撥水性の度合いが強まる極撥水性領域, 撥水性の度合いが中程度の遷移領域, 撥水性が発現しない親水性領域の3つの領域に区分できた。
- 2) 最も撥水性の度合いが強まる水分域の評価は, 毛管上昇試験と WDPT 試験では一致したが, NDST 試験と両者の間では異なった。

- 3) 火山灰土壌の撥水性の発現・消失は土壌の団粒構造や保水形態と密接に関係し、団粒内間隙の脱水が適度に進行した水分域で最も撥水性の度合いが強まり、団粒外間隙の水分増加にともない撥水性は消失する。

謝辞

本研究は、受託研究「自然調和型浅層地盤開発における基礎的研究」(委託：(株)高協基礎工事)の一環として行った。

参考文献

- [1] Bond, R. D. (1972) : Germination and yield of barley when grown in a water-repellent sand, *Agron. J.*, 64, 402-403.
- [2] Osborn, J. F., Pelishek, R. E., Krammes, J. S., and Letey, J. (1964) : Soil wettability as a factor in erodibility, *Soil Sci. Soc. Am. Proc.*, 28, 294-295.
- [3] Ritsema, C. J., Dekker, L. W., Hendrickx, J. M. H., and Hammnga, W. (1993) : Preferential flow mechanism in a water repellent sandy soil, *Water Resour. Res.*, 29, 2183-2193.
- [4] Dekker, L. W. and Ritsema, C. J. (1994) : How water moves in a water repellent sandy soil 1. Potential and actual water repellency, *Water Resour. Res.*, 30, 2507-2517.
- [5] de Rooij, G. H. (1995) : A three-region analytical model of solute leaching in a soil with a water-repellent top soil, *Water Resour. Res.*, 31, 2701-2707.
- [6] 仲谷紀男 (1981) : 有機物が関与する土壌の水分特性について—とくに、土壌有機物の存在様式と撥水性を中心にして—, *農技研報 B*, No.32, 1-74.
- [7] de Jonge, L. W., Jacobsen, O. H., and Moldrup, P. (1999) : Soil water repellency: Effects of water content, temperature, and particle size, *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 63, 437-442.
- [8] Dekker, L. W., Doerr, S. H., Oostindie K., Ziogas, A. K., and Ritsema, C. J. (2001) : Water repellency and critical soil water content in a dune sand, *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 65, 1667-1674.
- [9] 地盤工学会 (1990) : 土質試験の方法と解説, 145-151.
- [10] Letey, J., Osborn, J., and Pelishek, R. E. (1962) : Measurement of liquid-solid contact angles in soil and sand, *Soil Science*, 93, 149-153.
- [11] Dullien, F. A. L. (1979) : *Porous media -Fluid transport and pore structure*, Second edition, Academic Press, 387-395.
- [12] 石黒宗秀 and Koopal, L. K. (2000) : 土のコロイド現象の基礎と応用 (その 16) —ぬれと接触角の熱力学—, *農業土木学会誌*, 68(1), 75-82.
- [13] Bisdom, E. B. A., Dekker, L. W., and Schouthe, J. F. T. (1993) : Water repellency of sieve fractions from sandy soils and relationships with organic material and soil structure, *Geoderma*, 56, 105-118.
- [14] 中野政詩, 宮崎毅, 塩沢昌, 西村拓 (1995) : 土壌物理環境測定法, 東京大学出版会, 53-55.
- [15] Othmer, H., Dieckkruger, B., and Kutilek, M. (1991) : Bimodal porosity and unsaturated hydraulic conductivity, *Soil Science*, 152, 139-150.
- [16] Gerke, H. H., and van Genuchten, M. T. (1993) : A dual-porosity model for simulating the preferential movement of water and solutes in structured porous media, *Water Resour. Res.*, 29, 305-319.
- [17] 北原文雄 (1994) : 界面・コロイド化学の基礎, 講談社サイエンティフィク, 81-90.