

^3H - ^3He 測定による地下水年代測定のための技術的検討Technical development on the ^3H - ^3He method dating the age of groundwater

(財) 電力中央研究所 水理部 馬原保典 Yasunori Mahara

Some geohydrologic investigations before disposing of radiowastes into underground facilities are necessary, because the safety assessment should be required assuming that hazardous radionuclides might be released into geoenvironments from the radioactive contaminated materials. The flow velocity of groundwater, the recharged origin and the basin have to be determined through in-situ observations. In this study, the ^3H - ^3He dating method has been researched and developed in some technical points to estimate the age of groundwater. This method was preliminarily applied to the confined aquifer in Mishima lava flow to estimate the groundwater flow velocity and reasonable results compared with past some investigations were drawn.

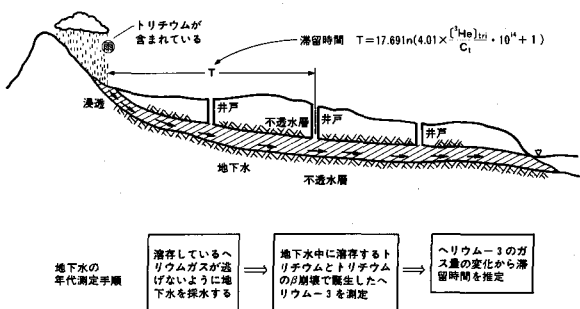
Keywords: tritium (^3H), helium-3, groundwater age, dating method, mass spectrometry

1. はじめに

水資源の開発あるいは、高レベル放射性廃棄物の深層処分に伴う環境影響評価のためには、対象地域での地下水のマクロな流動状況の把握が必要である。このための一つの方法として、地下水の水質を調べることによって地下水の流動を把握しようとする新技術の開発が近年盛となっている。地下水の適切な水質因子を選択すれば、地下水を包蔵する周辺岩盤の環境条件をも推定することも可能であり、その意味では地下水に溶存している物質は天然のトレーサーと考えることができる。

天然トレーサーを用いた水質調査には、①溶存イオン量・溶存ガス量あるいは重水(D) 重酸素(^{18}O)等の同位体比の変動によって地下水の流域区分や涵養源等の推定^(1~6)、②天然地下水中に存在する放射性核種の放射崩壊による時計性によって地下水の年代(滞留時間)を推定^(7~12)する方法とがある。特に、これらの内で地下水に含まれ地下水と同一挙動をとると考えられている^(13~14)天然放射性トレーサー ^3H 、 ^{14}C 、 ^{36}Cl 、 ^{129}I の地下水中濃度の経時的変化を測定することによって直接的に地下水の滞留時間を推定することができるのは②の年代決定法である。年代決定に活用される放射性核種の内では、 ^3H を除いた核種は、いずれも半減期が5400年以上ときわめて長いために我国のように比較的水循環の速い地域では、滞留時間が数千年を越える地下水が存在する可能性は低いものと考えられる。一方、 ^3H による地下水年代の推定は、滞留時間として約70年(^3H の6半減期)程度までは可能であるが、最近のように降水中の ^3H 濃度の低下に伴い同一地点における長期間(2~5年)連続測定を行なわなければ滞留時間の推定は困難となりつつある^(15~17)。この ^3H 法の欠点(長期連続測定、推定時間~70年)をおぎない1回の測定で滞留時間としては最長120年までの推定を可能とする方法として ^3H - ^3He 測定法が考えられる^(18~22)。この手法は、元来海洋や湖沼での大きな水循環とガス交換率の測定に活用され成果を収め^(23~24)、地下水の年代決定への適用が示唆されている⁽¹⁸⁾が、今だ十分な成果を上げていないのが現状である。

本研究では、 ^3H - ^3He 法による地下水年代決定を現場に適用する際に技術的に解決を図っておかなければならない課題として、①現位置地下

図-1 ^3H - ^3He 法による地下水年代決定

水採水技術および② ^3He 測定技術について検討を加え、更に現場（富士溶岩流地下水の三島湧水群）に本手法を適用しその成立性について予備検討を行った。

2. 地下水年代決定原理と採水・分析技術

2.1 ^3H - ^3He 年代決定原理

議論を簡単にするために図-1に示すような上下を不透水層で区切られた被圧地下水層を考える。今、ある固有のトリチウム濃度を持った降水が地下に浸透し地下水を涵養すると考える。一度地下に浸透した降水に対しては、周辺地層からの ^3H 供給は殆ど無視できる程度であり⁽²⁵⁾、かつ地下水の流れがピストン流的で流れによる混合拡散も小さいと考えると地下水中 ^3H 濃度は、浸透初期の降水 ^3H 濃度と滞留時間の関数式(1)で表わすことができる。

$$C_t = C_0 e^{-\lambda T} \text{----- (1)}$$

ここに C_t ；採水時の ^3H 濃度(T.U.)

C_0 ；地下水の初期 ^3H 濃度(T.U.)

λ ； ^3H の崩壊定数(1/T)

T；滞留時間

しかしながら初期濃度 C_0 については、最近のように降水 ^3H 濃度が10T.U.前後に低下してくると、長期間の測定を行わなければ決定することが困難となってきた。一回の測定で C_0 を決定する方法として、 ^3H が β 崩壊して生成される ^3He を同時に同一試料水について測定できれば、式(2)より

$$(^3\text{He})_{\text{tri}} = C_0(1 - e^{-\lambda T}) \text{----- (2)}$$

C_0 を決定できる。ただし $(^3\text{He})_{\text{tri}}$ は、 ^3H の β 崩壊によって発生する ^3He 原子の数である。(1)(2)式より地下水年代(滞留時間)Tは、次式で与えられる。

$$T = 17.69 \ln (4.01 \frac{(^3\text{He})_{\text{tri}}}{C_t} \cdot 10^{14} + 1) \text{---- (3)}$$

ここに $(^3\text{He})_{\text{tri}}$ ；地下水中 ^3H の β 崩壊によって生成された ^3He 量(ccSTP/g)

$(^3\text{He})_{\text{tri}}$ の評価については、Torgersen⁽¹⁸⁾等によって詳しく論ぜられているのでそれらを参照されたい。

2.2 地下水採水技術

(1) 採水器設計と採水概要

地下水中で ^3H の β 崩壊によって生成された超微量 ^3He

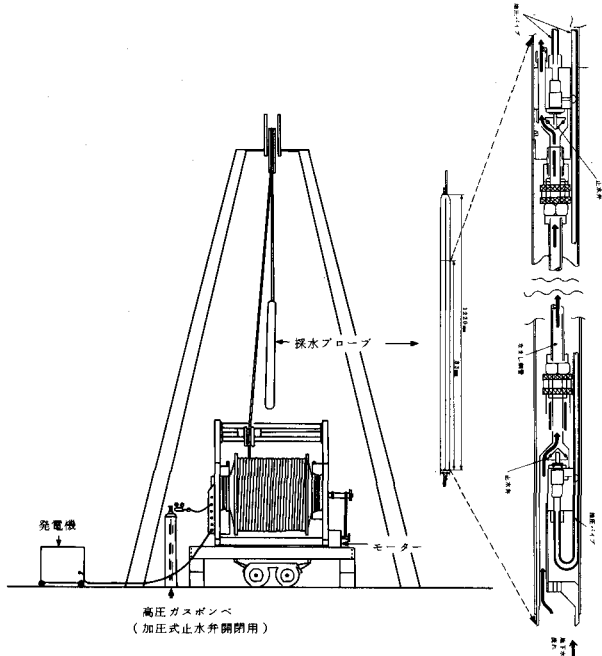


図-2 採水器全景と採水プローブ概略

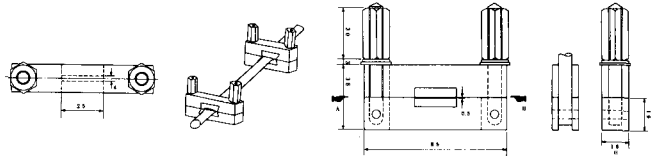


図-3 鋼製クランプ

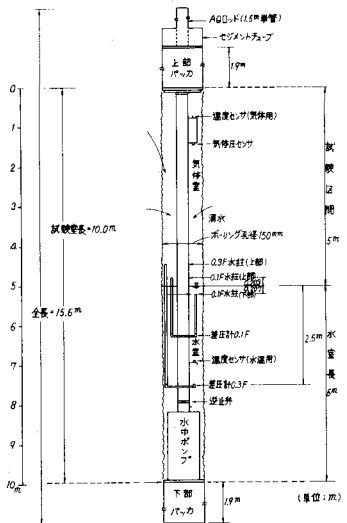


図-4 孔内装置の概要

($\sim 10^{-14}$ ccSTP/g) を高精度で分析するには、まず生成した ^3He を逃さないように採水する必要がある。そのためには、採水後の水圧変動において溶存ガスが気化逸散しないよう原位置水圧に等しい圧力を掛けたまま採水できるような採水器と採取試料水の保存方法とを検討しなければならない。

ここで開発した採水器⁽²⁶⁾は、通常のボーリング孔 ($\phi \geq 50\text{mm}$) においても採水可能な小型の加圧式採水プローブを有するもので最大採水深度は、400m、最大加圧力は50気圧、最大採水容量は、30mlである。 ^3He 分析に必要な試水量としては、15ml以上あれば通常の分析においては十分である。図-2に採水器の全景と採水プローブの概略図を示す。

本採水器において採取した地下水は、採水器の中心に接続された銅製の採水管内に封入される。採水管 (内径8mm銅管肉厚1mm) には、試料水の密封性能を考慮して神戸製鋼所製冷蔵庫用なまし銅管 (JISH3300 C1220 T-0) を使用した。なまし銅を用いた理由は、試料水を含んだ採水管をクランプで密封する際に延性に富み密着性が良好で分析に際し試料水を抽出する場合に密着した部分を再度押し抜けても破断せずガスの漏洩を防ぐことができるからである。

本採水器によって原位置において採水管内に採取された地下水は、止水弁の両端に採水深度を2~3気圧上回る圧力を掛けたままの状態で地上に引き上げ、なまし銅製の採水管の両端を直接銅製クランプで締め付けつぶして密閉する。この方法を用いると地下水中に溶存するヘリウムは、10000年でわずか0.1%が逸散するに過ぎないと Weiss⁽²⁷⁾ は述べている。密封用の銅製クランプとしては、図-3に示すものを新に設計製作した。このクランプを用いて地下水試料のはいったなまし銅管をつぶすと、全銅管肉厚2mmは0.8mm程度になり1.2mm厚さ分の銅がクランプエッジによって引き伸ばされ完全に密着し溶存ガスの漏洩と外からの大気ガスの侵入を防ぐ。

(2) 採水器の性能評価試験

K地点のボーリング孔 (地水位GL-30m) において上下2段にダブルパッカーによって区切られる気密室 (全長10m、図-4参照) を設け、室内の水位を一定に保った状態で周辺岩盤からの湧水量と室内のガス圧変化の測定を行う湧気量試験を実施した。その結果、各測定深度において大気圧下での溶解量を上回る過剰溶存ガスの存在が確認された。この同一ボーリング孔において、本研究において開発試作した採水器を用いて湧気量試験が実施された同一深度において採水し溶存ガス量をガスクロマトグラフを用いて分析した。その結果をパッカーを用いた湧気量試験結果と比較し図-5に示す。採水器による採水結果は、最大溶存ガス量が存在する深度 (GL-90m) を中心に上下に溶存ガスが若干拡散している傾向が見られる。

しかしながら、湧気量試験における湧水量、ガス量測定の精度等を勘案すると、二つの結果は、比較的良く一致しており、採水性能はほぼ満足しており実用に供しうるものと判断される。

(3) クランプ密封性能試験

現場で採取しなまし銅製採水管内に設計試作した銅製クランプにより封入した5個の地下水試料を約一年間保管した後、溶存している ^4He と ^{20}Ne

を分析し、クランプの密閉性能を調べた。 ^4He は、地殻に含まれるウラン、トリウム系列の α 核種が α 崩壊した際に放出されるので、降水を起源とした地下水では、一般に過剰に含まれている。一方、 ^{20}Ne は、地殻で生成される可能性は非常に少なく、地下水中では一般に最大飽和量 (2.3×10^{-7} ccSTP/g) 以下である。したがって、 ^{20}Ne 量に

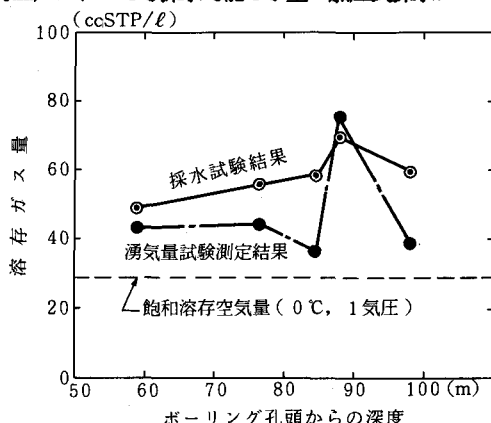


図-5 湧気量試験と採水試験による溶存ガス量と測定深度

表-1 試料地下水溶存希ガス分析結果

番号	採水深度 (GL m)	採水量 (g)	ヘリウム (^4He) 量 (ccSTP/g)	ネオン (^{20}Ne) 量 (ccSTP/g)	$^3\text{He}/^4\text{He}$ 比
1	-11	17.74	4.36×10^{-8}	2.20×10^{-7}	1.35×10^{-6}
2	-15	19.67	4.84×10^{-8}	2.18×10^{-7}	1.35×10^{-6}
3	-90	17.64	5.07×10^{-8}	2.27×10^{-7}	1.33×10^{-6}
4	-19	17.66	4.62×10^{-8}	2.19×10^{-7}	2.48×10^{-6}
5	-14	16.92	4.53×10^{-8}	1.98×10^{-7}	1.38×10^{-6}

よって大気空気の侵入の有無を判断することができる。分析結果を表-1に示す。いずれの試料も ^{20}Ne 量は、最大溶存飽和量を下回っており、クランプの密封性能は満足されたと判断できる。

2.3 溶存希ガス分析

^3He 分析のためには、採取した地下水試料より溶存ガスを抽出・精製した後質量分析器へ導入し ^4He 絶対量と($^3\text{He}/^4\text{He}$)比を測定する。

溶存ガス抽出は、なまし銅管製の採水管を抽出装置に接続し、系全体を超真空($\sim 10^{-8}\text{mbr}$)とした後、採水管を密閉している鋼製クランプの片方はずし銅管の密着部分を押し上げ一度試料水をステンレス製の水容器内に落す。水容器に移された試料水は、活性炭の入った2個のトラップを液体窒素で冷却し5分間高周波洗浄器で溶存ガスを追出しながら水蒸気と共に活性炭上に捕取する。この操作を別々に2個の活性炭トラップに対して行う。

溶存ガスを捕取した活性炭トラップを抽出装置からはずし、溶存ガス清浄化装置に接続し、一度系全体を超真空($\sim 10^{-8}\text{mbr}$)にした後2ヶ所に設けた液体窒素で冷したU字管を通して水蒸気および凝縮性のガス成分を除去する。さらにチタン・ゲッターポンプによって活性ガス成分(例えば H_2 , N_2 , O_2 , 炭化水素等)を除去した後、 He 分析に不都合な Ar 等の不活性ガス成分を液体窒素で冷却した活性炭上に捕取除去した後、残存ガス成分を質量分析器(VG-5400, 分解能600以上)に導入し ^4He 量及び($^3\text{He}/^4\text{He}$)比を同様の操作によって処理した標準空気試料より作成した He 試料($^3\text{He}/^4\text{He} = 1.400 \times 10^{-6}$)と比較測定した。

分析の精度としては、 $15\sim 17(\text{g})$ の地下水中に含まれる ^3He 量としては、概ね 10^{-15}ccSTP/g まで測定が可能である。

3. フィールドへの適用

$^3\text{H} - ^3\text{He}$ 地下水年代測定法のフィールドへの適用性を探る目的で、過去に詳細な水理地質調査、ラジオアイソトープ流速計による地下水流速測定ならびに ^3H による年代推定が実施された三島市周辺の富士溶岩流内地下川を研究対象に選んだ。

3.1 水理地質概要

蔵田⁽²⁸⁾、金子⁽²⁹⁾、落合⁽³⁰⁾等によれば、玄武岩を主体とする三島溶岩流は、富士山南東斜面須山山地内に源を発し愛鷹山・箱根山の裾合谷を流下し表層部は三島市楽寿園付近で止っているが、一部はさらに南下し柿田川さらに沼津方面に延びている。三島市内および柿田川の各湧泉群はこの溶岩流の末端部分に位置している。この溶岩流の間隙率は、伊豆島田付近での測定によれば $10\sim 90\%$ と大きく平均的には 30% 程度であり、溶岩層全体での平均透水係数は、 $2\sim 3\text{cm/sec}$ と見積られている^(29,30)。地下水は、主にこの溶岩流内を北から南へ流下しており、その量は $1.7 \times 10^6\text{ m}^3/\text{day}$ と見積られ我国最大級の地下川となっている。

3.2 地下水採取

三島溶岩流内の地下川主流上に位置すると考えられる伊豆島田にある三島市上水場深井戸、三島市一番町湧泉と

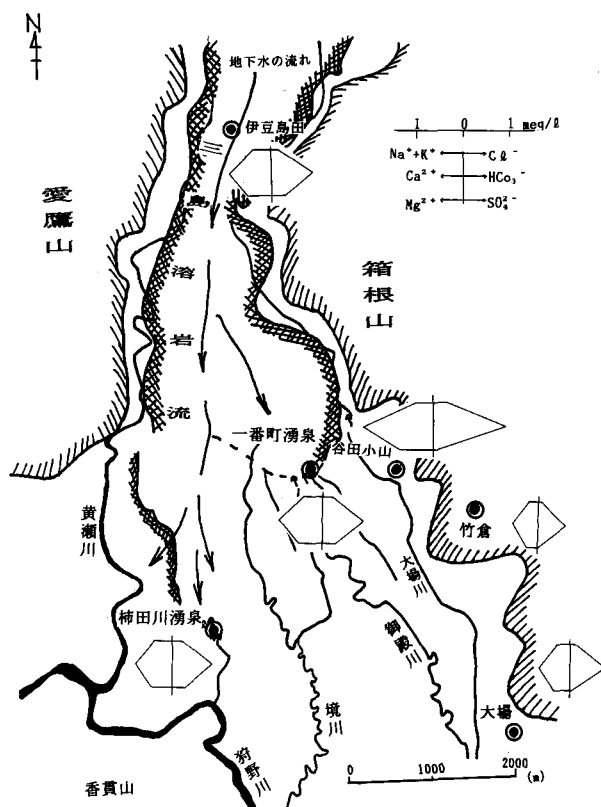


図-6 三島溶岩流地下川の概要と地下水採取地点(●)とヘキサダイアグラム

柿田川湧泉群および三島溶岩流地下川主流からは離れている三島市内の自噴井戸である谷田小山、竹倉、大場の6地点において、 ^3He 分析用の地下水試料(16ml)を各4個ずつおよび ^3H 分析ならびに溶存イオン分析用地下水試料として各1000mlを採した。 ^3He 分析用地下水採取は、1988年11月9～10日に行なった。図-6に地下水採取地点を示す。

3.3 地下水水質分析および ^3H 分析

まず、採取した6地点の地下水試料について、①溶存イオン濃度分析；② ^3H 濃度分析を実施した。

① 溶存イオン濃度分析の測定項目は、 Na^+ 、 K^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 HCO_3^- （以上JIS規格による分析）および Cl^- 、 SO_4^{2-} （以上イオンクロマトグラフィーによる分析）である。分析結果を表-2に示す。この結果を基にヘキサダイアグラムを描いてみると、三島溶岩流地下川上に位置すると考えられる伊豆島田、一番町および柿田川湧泉は殆んどその形状大きさは一致する。一方、谷田小山、竹倉、大場の地下水のそれは、前述の3地点のものと若干異なる。また、② ^3H 濃度分析（電解濃縮の後科技庁マニュアルによる測定）は、6地点とも10T.U.以下（表-2参照）であるが、三島溶岩流内地下川上の3地点(6.9～9.1T.U.)は、他3地点(4.5～7.0T.U.)に比べ若干高い傾向にある。以上の結果から、三島溶岩流地下川上に位置する伊豆島田、一番町、柿田川湧泉の地下水は同一水系の地下水であり、谷田小山、竹倉および大場の地下水とは水系が若干異なるものと判断される。

三島溶岩流地下川は、北から南つまり伊豆島田から柿田川へ向けて流下しておりこの地下川上の3地点において採水した地下水について ^3H - ^3He 年代測定を実施すれば、地下川の南に位置する程滞留時間は、長くなり地下水年代は古くなることが予想される。

3.4 ^3He 分析

伊豆島田、一番町、柿田川湧泉地下水について ^4He 濃度および($^3\text{He}/^4\text{He}$)比の測定を行い、その結果を表-3に示す。 ^4He 濃度は、 $3.0 \times 10^{-8} \sim 4.7 \times 10^{-8} \text{ccSTP/g}$ にあり、降水が地下に涵養した時の涵養温度を正確に推定することができなかったが、三島地域の平均気温を15℃その際の ^4He 溶解量 $4.55 \times 10^{-8} \text{ccSTP/g}$ として Torgersen⁽¹⁸⁾等の方法による ^3He 評価法と Takaoka⁽³¹⁾が富山県庄川扇状地地下水に対し ^3He 量評価に用いた手法

$$(^3\text{He})_{\text{tri}} = (\text{Rm} - \text{Rs}) (^4\text{He})_{\text{m}} \quad \text{---(4)}$$

ここにRm: 測定された($^3\text{He}/^4\text{He}$)比

Rs: He 飽和溶解時の($^3\text{He}/^4\text{He}$) = 1.38×10^{-6}

(^4He)_m: 測定された ^4He 量(ccSTP/g)

を適用し、地下水年代を求めることにした。

3.5 地下水年代の評価

^3He 測定の結果を基に推定した地下水年代は、表-3に示すように伊豆島田で9.7～10年、一番町湧泉で～3.2年、柿田川湧泉で10～11年であった。これらの内で、一番町湧泉は、例年は11月頃より冬期(渇水期)には枯渇し湧出していないことが多いが、昨年は、7月～9月の長雨の影響で11月においても湧水があり、そのためにごく最近の降水がかなりの量含まれているために滞留時間を非常に短くしているものと予想される。一番町湧泉を除く伊豆島田と柿田川湧泉を結ぶ三島溶岩流地下川の地下水の滞留時間としては、10年前後と推定される。伊豆島田

表-2 地下水溶存イオン濃度と ^3H 濃度分析結果

採水日と 測定項目	採水日	Na^+ (mg/L)	K^+ (mg/L)	Ca^{2+} (mg/L)	Mg^{2+} (mg/L)	Cl^- (mg/L)	SO_4^{2-} (mg/L)	HCO_3^- (mg/L)	^3H (T.U.)
伊豆島田上水場	(1988) 11/9	8.8	1.28	18.0	6.00	5.7	15.2	5.4	6.9±0.5
一番町湧水	(1988) 11/9	9.0	1.60	18.7	6.19	7.8	13.8	5.2	9.1±0.5
柿田川湧水	(1988) 11/10	8.8	1.26	16.6	5.65	7.1	13.3	5.2	7.4±0.5
谷田小山	(1988) 11/9	8.2	1.54	29.6	8.29	10.4	5.8	9.5	7.0±0.5
竹倉	(1988) 11/9	4.4	0.55	11.1	2.96	3.1	1.4	3.6	4.5±0.5
大場	(1988) 11/10	5.8	1.42	13.6	4.09	3.9	1.8	4.6	6.0±0.5
検出限界		0.1	0.02	0.2	0.02	0.1	0.5	1	0.9

と柿田川湧泉群までの距離を6kmとして上記地下水年代を基に地下水流速を概算すると、6～20km/y(16～55m/day)となる。一方、落合⁽³⁰⁾等が、ラジオアイソトープ流速計を用いて三島溶岩流層が愛鷹山と箱根山に挟まれて

最も狭くなっている伊豆島田付近で測定した流速は、0.01~700m/dayと広い範囲に分布している。この内で大きな流速は、主に溶岩空洞のように大間隙の部分において測定された値であり比較的透水性の悪い火山砂礫層および溶岩流の側辺部では、0.01~44m/day と比較的小さな値が測定されている。三島市内および柿田川湧泉群周辺の溶岩流層は、主に火山砂礫層で形成されており、伊豆島田付近で見られるような大間隙に富む溶岩層に比べ透水性は小さく、かつ地下川の透水断面も広がっていることを考慮すると、 ^3H - ^3He 年代法を基に概算した

地下水流速は、過去の流速測定結果と比較しても大きく掛け離れているとは言えない。いずれにしても、三島溶岩流地下川中の地下水流速はきわめて大きいと考えられる。

4. まとめ

地下水に含まれる溶存希ガスの気化逸散を防ぎ原位置採水を可能とする小型加圧採水器および試料水長期間保管技術の開発ならびに溶存している極微量な ^3He 測定に必要な分析技術の検討を行った。溶存希ガスの抽出分離技術におい

ては今後検討すべき課題は残されているが、フィールドにおいて ^3H - ^3He 年代測定法適用への見通しを得た。

謝辞 本研究の実施に当たり、地下水の採取に際しては、三島市水道部の相原巳代司氏に大変お世話になりました。また漏気試験ならびに溶存ガスのガスクロ分析については電中研の中川加明一郎、大隅多加志の両主査研究員にお世話になりましたこと深く感謝する次第です。

参考文献

1. Sugisaki R., Am. J. Science., Vol. 259, P. 144-153 (1961);
2. 吉岡龍馬他, 京大防災研究所年報, 22号 B-1, P. 1-12 (1979);
3. 水谷義彦他, 地球化学, Vol. 17., P. 1-9 (1983);
4. Rauert, W. et al., Isotope Techniques in Groundwater Hydrology, Vol. 1, P. 431-441, IAEA-SM-182/24 (1974);
5. Burgman J. O., et al., Isotope hydrology Vol. 1, P. 27-42, IAEA-SM-228/3 (1978);
6. Rodhe, A., Isotope Hydrology, P. 55-66, IAEA-SM-270/65, (1983);
7. 北岡豪一, 水温の研究, Vol. 26, No. 5, P. 25-34, (1983);
8. 木村重彦, 農業土木試験場報告, No. 25 (1986);
9. Paul, H., Nature, Vol. 321, P. 511-515 (1986);
10. Martin J. F., Geochim. Cosmochim. Acta., Vol. 49., P. 337-347 (1985);
11. Bentley H. W., et al., Water Resour. Res., Vol. 22., P. 1991-2001 (1986);
12. Philips F. M., et al., Water Resour. Res., Vol. 22., P. 2003-2016, (1986);
13. Kaufman W. J., ASCE Transaction pap. No. 3203., (1961);
14. Kaufman W. L., et al., Phys. Rev. Vol. 93, P. 1337-1344, (1954);
15. 水谷義彦他, 地球科学, Vol. 21, P. 49-54 (1987);
16. 本島勲, 電中研報告: U86001, (1986);
17. 北岡豪一, 吉岡龍馬, 日本地下水学会誌, Vol. 26, P. 131-145, (1984);
18. Torgersen T., et al., Isotope Hydrology Vol. 2, IAEA-SM-228/49 (1978);
19. Mamyurin B. A. and Tolstikhin I. N., Helium Isotopes in Nature, Elsevier (1984);
20. Clarke W. B., et al., Economic Geology, Vol. 68, P. 243-251 (1973);
21. Clarke W. B., et al., Economic Geology, Vol. 72, P. 233-242, (1977);
22. Top Z., and Clarke W. B., Economic Geology, Vol. 76, P. 2018-2031 (1981);
23. Jenkins W. T., Science, Vol. 196, P. 291-292 (1976);
24. Torgersen T., et al., Limnol. Oceanogr., Vol. 22, P. 181-193 (1977);
25. Morrison P. and Pine J., Ann. New York Acad. Sci., Vol. 62, P. 69-82 (1955);
26. 馬原保典他, 電中研報告: U88020 (1988);
27. Weiss R. F., Deep-Sea Res., Vol. 15, P. 695-699 (1968);
28. 蔵田延男, 工業用水 Vol. 43, P. 39-47 (1962);
29. 金子良, 落合敏郎, 農業土木試験報 A 1号 P. 1-22, (1966);
30. 落合敏郎, 川崎宏直, 農業土木試験場報告第 8 号 P. 67-82, (1970);
31. Takaoka N., Mizutani Y., Earth Planet. Sci. Lett., Vol. 85, P. 74-78 (1987).

表-3 地下水溶存 He 量, ($^3\text{He}/^4\text{He}$) 比と地下水年代

測定項目と 採水場所	地下水流速 (ccSTP/g)	$^3\text{He}/^4\text{He}$ 比	計算された地下水年代 (年)	
			Torgersenの法	Takaokaの法
伊豆島田上水場	4.6×10^{-8}	1.68×10^{-6}	11.1	10.0
一番町湧泉	3.0×10^{-8}	1.53×10^{-6}	—	3.2
柿田川湧泉	4.7×10^{-8}	1.65×10^{-6}	10.1	9.7

*: 標準空気 ($^3\text{He}/^4\text{He}$) = 1.400×10^{-6}

*: 降水中に含まれる飽和 ^3He 量を、ここでは三島の平均気温 15℃での飽和溶存 ^3He 量 (4.55×10^{-8} ccSTP/g) と仮定し、Torgersen (18) が用いた手法により大気空气中に含まれる溶存した ^3He 量を補正した場合の地下水年代

*: 溶解時の ^3He 溶解量が不明なため、Takaoka が文献 (31) の中で用いた手法によって評価した地下水年代

*: 評価不詳