

環境同位体による塩水化地下水の 地球化学的考察

GEOCHEMICAL INVESTIGATIONS OF SALINIZED GROUNDWATER USING ENVIRONMENTAL ISOTOPES

広城吉成¹・神野健二²・佐伯和利³・池見洋明⁴
岩月輝希⁵・松岡信明⁶・岡村正紀⁷・田籠久也⁷

Yoshinari HIROSHIRO, Kenji JINNO, Kazutoshi SAEKI, Hiroaki IKEMI,
Teruki IWATSUKI, Nobuaki MATSUOKA, Masaki OKAMURA and Hisaya TAGOMORI

¹正会員 博士(工) 九州大学助教授 工学研究院環境都市部門(〒812-8581 福岡市東区箱崎6-10-1)

²正会員 工博 九州大学教授 工学研究院環境都市部門(〒812-8581 福岡市東区箱崎6-10-1)

³博士(農) 大分大学講師 教育福祉科学部(〒870-1192 大分市旦野原700)

⁴博士(理) 九州大学非常勤研究員 工学研究院環境都市部門(〒812-8581 福岡市東区箱崎6-10-1)

⁵理修 核燃料サイクル開発機構 東濃地科学センター(〒509-5102 岐阜県土岐市泉町定林寺959-31)

⁶理博 (財)九州環境管理協会 分析科学部(〒813-0004 福岡市東区松香台1-10-1)

⁷(財)九州環境管理協会 分析科学部(〒813-0004 福岡市東区松香台1-10-1)

Geochemical investigations of salinized groundwater in Motooka area, west of Fukuoka City, Japan were carried out. The measured tritium concentrations in the shallow groundwater system are higher than those of the deeper groundwater system. From the results of hydrogen-oxygen isotope ratio plotting on the mixing line of meteoric water and seawater, it was inferred that the deeper groundwater is affected by seawater. ¹⁴C isotope dating of a shell that was collected at the depth of approximately 2m from the core samples of B2 indicated the age of about 2000 years. Accordingly, the salinized groundwater in this area was assumed to be originally below the sea bottom. Further, it was found that the geochemical properties of salinized groundwater should be utilized as the index of the environmental isotopes as well as characterization of the water quality using Piper diagram.

Key Words : salinized groundwater, geochemistry, fraction of seawater, Piper diagram, tritium, hydrogen-oxygen isotope ratio, ¹⁴C

1. はじめに

一般に、深層部における塩水化地下水の水循環移動速度は浅層部より遅い。また、帯水層構成母材の違い、例えば粘土鉱物が主体であるのか、砂礫であるかによっても、またそれらと塩水との接触時間によっても塩水化地下水の水質形成過程は異なる。したがって、塩水化地下水問題が生じている地域において、農業用水および水資源の開発可能性を評価するためには、塩水化地下水の水質形成機構を地球化学的に理解することが必要となる。塩水化地下水の地球化学的組成の成因について、池田¹⁾は、帯水層構成母材中のイオン交換体のもっている交換

性陽イオンの組成が、塩水化地下水の化学的組成をほとんど決定し、その水質変化をイオン交換反応で十分説明できることを示している。一方、Wicks *et al.*²⁾は、深度別に塩水化地下水の水質形成機構をCalcite, Dolomite, Gypsumの水-岩石相互作用による溶解・沈殿反応および続成作用によって説明した。Price *et al.*³⁾は、塩水化地下水における炭酸塩鉱物の溶解・沈殿反応の考察のほか、地下水への海水の混入割合で変化する化学種の地球化学的考察を行っている。

本研究では、地下水の塩水化が確認されている福岡市西区元岡で採水した地下水を、主要な溶存化学種による解析と環境同位体によるアプローチとを合わせて地球化学的に解析し、この地域の水質形成の要因を考察する。

表-1 採水深度

Motooka (18 Feb., 2000)		
Sampling site	Depth(m)	Symbol
B1	10	B1-10
B1	30	B1-30
B2	10	B2-10
B2	30	B2-30
B3	10	B3-10
B3	30	B3-30
B4	10	B4-10
B4	50	B4-50

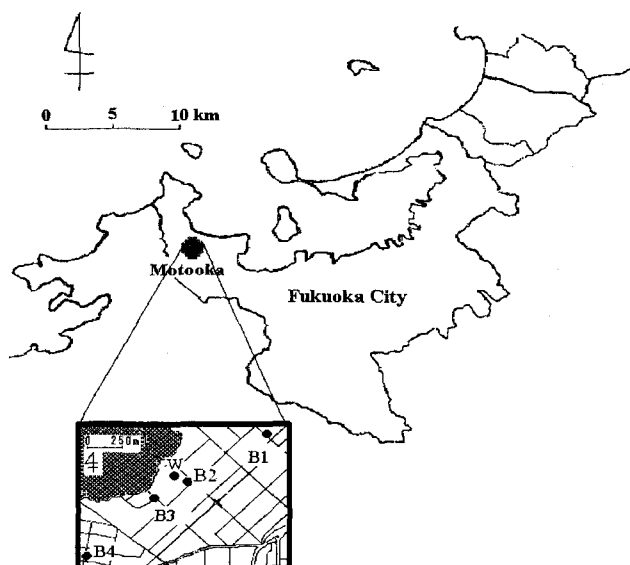


図-1 調査対象地域

2. 調査地域の概要と分析項目および分析方法

塩水化地下水の調査対象とした地域は、福岡市西区元岡である。この地域における採水箇所を図-1に示し、また採水した深度を表-1に示す。この地域の土地利用は、施設園芸、水田、畑などであり、特に施設園芸で使用する農業用水には地下水が用いられている。

分析対象とした項目は、水温、pH、EC（Electric Conductivity）、DO（Dissolved Oxygen）、ORP（Oxidation Reduction Potential）、 Cl^- 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、Na、K、Mg、Ca、Mn、Fe、 ^3H 、 δD 、 $\delta^{18}\text{O}$ 、 $\delta^{13}\text{C}$ 、 ^{14}C である。なお $\delta^{13}\text{C}$ 、 ^{14}C についてはB2のボーリングコアサンプル中の貝殻とボーリング井戸Wの深度10mおよび30mの地下水についてのみ測定した。

採取した水の水温、pH、EC、DO、ORPについては現地で測定を行い、Na、K、Mg、Ca、Mn、Feについては原子吸光法、 Cl^- 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} についてはイオンクロマトグラフィー、 ^3H については電解濃縮法と液体シンチレーション測定法⁴⁾との併用、 δD 、 $\delta^{18}\text{O}$ についてはウランウム還元法および $\text{H}_2\text{O}-\text{CO}_2$ 平衡法による ^{14}C の測定は、核燃料サイクル開発機構東濃地科学センターのタンデム型加速器質量分析計を用いて測定した。なお、 ^{14}C の測定方法およびその精度についてはSheng Xuら⁵⁾の文献を参照されたい。

測定された同位体比は δ 値（‰）で表示した。

$$\delta = \left[\frac{R_x - R_s}{R_s} \right] \times 1000 \quad (1)$$

ここで、Rは同位体比（D/H、 $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$ および $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ ）、XおよびSは、それぞれ試料および標準物質（標準平均海

水：SMOW）を表す。測定精度（ 2σ ）は、 δD については $\pm 1.9\%$ 、 $\delta^{18}\text{O}$ については $\pm 0.03\%$ 、 $\delta^{13}\text{C}$ については $\pm 0.2\%$ であった。なお、原子吸光法およびイオンクロマトグラフィーによる分析において、塩濃度の高いサンプルについては高倍率の希釈（5000倍）を行って測定した。 HCO_3^- 濃度については陽イオンおよび陰イオンの当量バランスから算出した値を用いた。

3. 結果および考察

(1) 電気伝導度の鉛直分布

図-2は電気伝導度の鉛直分布を示している。電気伝導度は鉛直下向きに1m間隔で、なるべくボーリング坑内の水を乱さないようにゆっくりと上から順に測定した。B1は深度約20m、B2は深度約15m、B3では深度約15mで大きく電気伝導度が増加しており、B1、B2、B3ともに明瞭な塩淡水境界面が現れている。B4では深度2mで約 0.5 mS cm^{-1} から 10 mS cm^{-1} 急激に上昇し、その状態が深度30m付近まで続いている。電気伝導度は30m以深から深度60m付近まで徐々に大きくなり、60m以深で急激に変化している。B4の深度1mの電気伝導度値は 0.5 mS cm^{-1} であり、淡水の値としては決して低くない。またB1、B2、B3の浅層部の値は2～10 mS cm^{-1} で、通常この程度の値を示す地下水は農業用水として使用することはできない。これら観測井周辺の土地利用は、施設園芸、水田、畑である。電気伝導度への寄与として一部肥料などの影響も考えられるが、後述する(6)の ^{14}C による地層形成年代の推定から、元来この地域は海底であったので、深部に存在している塩水が、地下水の汲み上げ等によってUpconingし、淡水と混合したものと考えられる。

(2) パイパーダイアグラムによる水質特性

B1-30はアルカリ土類重炭酸塩型〔 $\text{Ca}(\text{HCO}_3)_2$ 型〕の淡水に分類された。他のサンプル（B1-10、B2-10、B2-30、B3-10、B3-30、B4-10、B4-50）はアルカリ非炭酸塩型〔 Na_2SO_4 または NaCl 型〕に分類された（図-3）。陰イ

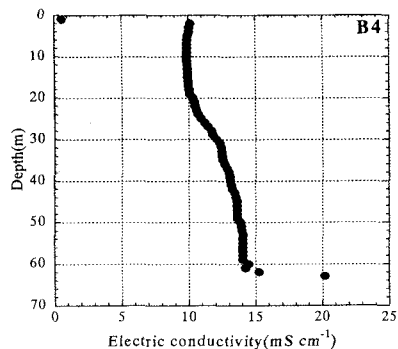
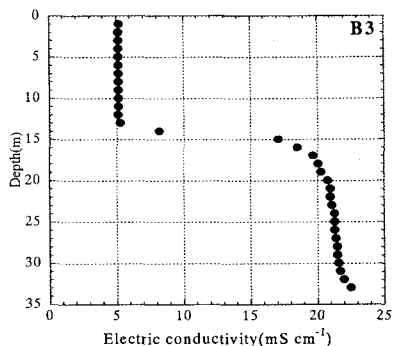
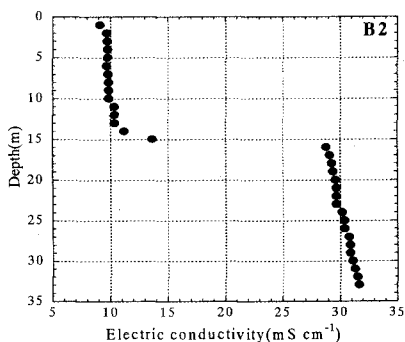
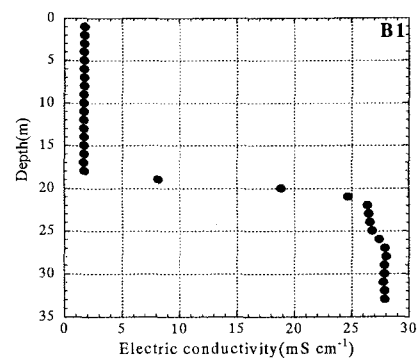


図-2 電気伝導度の空間分布

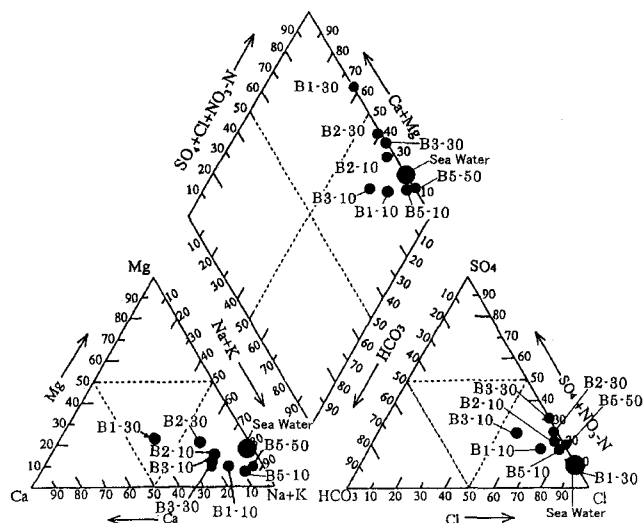


図-3 パイパーダイアグラム

オンに関しては、どのサンプルも Cl^- が卓越し、次に $\text{SO}_4 + \text{NO}_3$ の割合となった。B1～B4の深部は、図-2から塩化地下水であることは明白であるが、B1-30は他の地点と異なって、 Ca^{2+} の割合が高かった。B1-30の地質は泥質片岩であり、他の地点の深部は風化花崗岩である。一般に泥質片岩のほうが風化花崗岩よりも陽イオン交換容量は大きいと推察され、池田¹⁾ が指摘しているように、陽イオン交換反応により Na^+ と置き換わった Ca^{2+} が他の地点よりも多く間隙水中に放出されたためと考えられる。

(3) 海水混合比

地下水中に含まれる海水混合比を求めるにはその地下水が形成された淡水濃度（背景淡水濃度）との比較が必要となる⁶⁾。

イオン i の濃度は、海水と淡水の保存化学種の混合によって次式となる。

$$m_{i,\text{mix}} = f_{\text{sea}} \cdot m_{i,\text{sea}} + (1 - f_{\text{sea}}) \cdot m_{i,\text{fresh}} \quad (2)$$

f_{sea} は混合水中の海水の混合比、 $m_{i,\text{mix}}$ 、 $m_{i,\text{sea}}$ 、 $m_{i,\text{fresh}}$ は保存混合による化学種、海水および淡水のイオン i の濃度 (meq L^{-1}) を示している。

海水混合による影響を除いた実質の化学反応によるイオン i の濃度は $m_{i,\text{react}}$ として次式のように表せる。

$$m_{i,\text{react}} = m_{i,\text{sample}} - m_{i,\text{mix}} = m_{i,\text{sample}} - (f_{\text{sea}} \cdot m_{i,\text{sea}} + (1 - f_{\text{sea}}) \cdot m_{i,\text{fresh}}) \quad (3)$$

$m_{i,\text{sample}}$ はサンプル中で実際に測定された濃度である。

表-2 海水混合比(meq L⁻¹)

B1-30	Seawater	Sample	Mix	React	Fresh water
Na ⁺	485	116.0	265.3	-149.3	13.6
K ⁺	10.6	0.7	5.7	-5.1	0.1
Mg ²⁺	110.2	138.0	59.6	78.4	1.6
Ca ²⁺	21.4	123.0	12.8	110.2	2.8
Cl ⁻	566	308.0	308.2	-0.2	12.8
(NO ₃ ⁻)+(HCO ₃ ⁻)	2.4	10.0	2.6	7.4	2.8
SO ₄ ²⁻	58.6	18.2	32.4	-14.4	2.4
%seawater	100	53.4			

B2-30	Seawater	Sample	Mix	React	Fresh water
Na ⁺	485.0	221.0	235.0	-14.0	53.9
K ⁺	10.6	0.44	.6	-4.2	0.2
Mg ²⁺	110.2	145.0	52.8	92.2	11.2
Ca ²⁺	21.4	82.8	17.4	65.4	14.4
Cl ⁻	566.0	272.0	272.2	-0.2	59.4
(NO ₃ ⁻)+(HCO ₃ ⁻)	2.4	53.37	.9	45.4	11.9
SO ₄ ²⁻	58.6	51.4	29.4	21.8	8.2
%seawater	100	42.0			

B3-30	Seawater	Sample	Mix	React	Fresh water
Na ⁺	485	153.0	169.5	-16.5	37.5
K ⁺	10.6	0.4	3.2	-2.9	0.2
Mg ²⁺	110.2	72.2	37.2	35.0	6.6
Ca ²⁺	21.4	54.6	14.4	40.0	11.6
Cl ⁻	566	189.0	189.00	.0	31.3
(NO ₃ ⁻)+(HCO ₃ ⁻)	2.4	48.4	13.5	34.9	18.1
SO ₄ ²⁻	58.6	42.4	21.8	20.6	6.4
%seawater	100	29.5			

B4-50	Seawater	Sample	Mix	React	Fresh water
Na ⁺	485	118.0	116.5	1.5	88.8
K ⁺	10.6	0.4	1.2	-0.8	0.5
Mg ²⁺	110.2	23.8	14.2	9.6	7.0
Ca ²⁺	21.4	8.6	10.8	-2.4	10.2
Cl ⁻	566	118.0	117.8	0.2	84.1
(NO ₃ ⁻)+(HCO ₃ ⁻)	2.4	7.9	11.5	-3.5	12.2
SO ₄ ²⁻	58.6	19.8	13.6	6.2	10.2
%seawater	100	7.0			

海水の混合比は通常、サンプル中のCl⁻濃度に基づいている。Cl⁻は保存化学種パラメータとして仮定される。Cl⁻に基づいた海水の混合比は次式となる。

$$f_{sea} = \frac{m_{Cl^{-},sample} - m_{Cl^{-},fresh}}{m_{Cl^{-},sea} - m_{Cl^{-},fresh}} \quad (4)$$

海水以外のCl源がない場合は、 $m_{Cl^{-},fresh} = 0$ と考えてよく、

式(4)は単に次式ようになる。

表-3 トリチウム濃度

Sampling Site	Tritium conc. (TR)
B1-10	0.8
B1-30	less than 0.3
B2-10	4.4
B2-30	less than 0.3
B3-10	4.1
B3-30	0.5
B4-10	1.1
B5-50	less than 0.3

$$f_{sea} = \frac{m_{Cl^{-},sample}}{566} \quad (5)$$

Cl⁻はmeq L⁻¹で表され、海水35%の濃度は566 meq L⁻¹である（ただし、海洋中のCl⁻濃度は地球上のどの地点でもほぼ一定と仮定した）。

表-2は式(2)~(5)を用いて、地下水における海水の混合比、化学反応に寄与した各化学種の量を計算しまとめたものである。

表中のreactは、例えば陽イオンであれば、陽イオン交換反応や酸化還元反応により+では固相から液相へ移動したことを表し、-では液相から固相へ移動したことを表している。mixは地下水中の海水混合比から単純に計算された濃度を表している。

なお、元岡地区では各井戸の深度10mの地下水を、海水由来のClの影響が小さいと考え、背景淡水濃度（表中のFresh waterの欄）と仮定した。

B1-30（53.4%）、B2-30（42.0%）、B3-30（29.5%）、B4-50（7.0%）の順で海水混合比が低くなった。B1-30では、149.3meq L⁻¹のNa⁺および5.1meq L⁻¹のK⁺が液相から固相へ吸着し、78.4meq L⁻¹のMg²⁺および110.2meq L⁻¹のCa²⁺が、固相から液相へ溶脱し、Mg²⁺、Ca²⁺の方が34.2 meq L⁻¹多くなっている。このバランスの差は、主として陽イオン交換反応による影響で生じたと考えられる。以上、陽イオン交換反応による地下水の水質形成機構については帯水層土壌物質中のイオン交換体のもっている交換性陽イオンの組成を評価し水質形成機構を論じる必要がある。

(4) トリチウム濃度

トリチウムによる地下水の年代推定は、降水中のトリチウム初期濃度を決め、地下水の流れが単一流路を混合のない分散を伴わないピストン流で流れていると仮定した時に可能となる。しかし、現実の地下水はいくつかの系統の地下水が混合されたもので、結局どのような年代のものがどのような割合で混合しているかをある程度想定することが重要となる⁷⁾。特に塩水化地下水では(2)の海水混合比で考察したように各井戸は海水の影響を受けた地下水である。トリチウムによる地下水の年代推定

表-4 C-14による年代測定結果

Sample	Depth(m)	$\delta^{13}\text{C}$	$^{14}\text{C}(\text{pMC})$	+/-	Libby age(yr)	+/-
plant(root)	0.2	-13.9	111.45	0.53	modern	
shell	1.9	0.92	76.64	0.46	2137	49
shell	2.8	0.33	55.57	0.34	4720	49
shell	3.7	-1.9	45.39	0.29	6344	51
shell	4.3	-0.09	44.44	0.3	6514	53
shell	5.27	-3.33	41.14	0.28	7134	55
shell	9.9	-1.86	41.37	0.28	7090	55
water(W)	10	-16.44	76.36	0.4	2166	42
water(W)	30	-10.45	38.11	0.27	7749	56

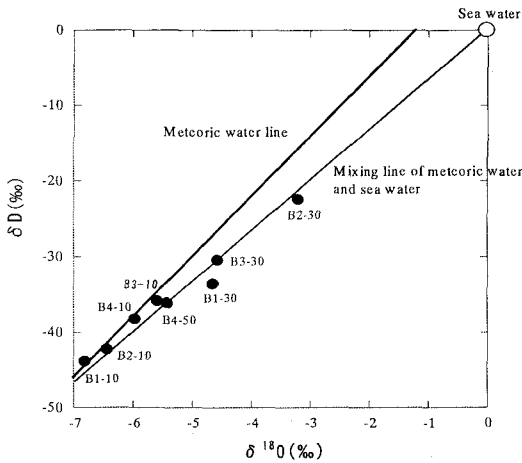


図-4 水素・酸素同位体比

はこの影響も考慮せねばならない。また、岡村ら⁸⁾によれば、福岡市における降水中のトリチウム濃度は季節変動することが報告されており、トリチウムによって地下水の年代を推定するには、季節変動も考慮しなければならないと指摘している。

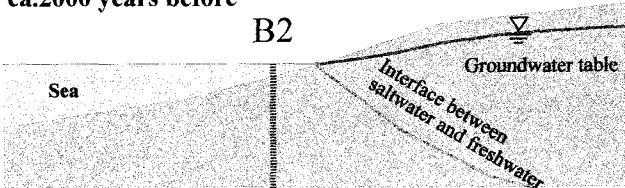
表-3は、福岡市西区元岡における各井戸の深度別トリチウム濃度を示している。Kakiuchi *et al.*⁹⁾によれば、太平洋東部およびインド洋における海水表面水のトリチウム濃度は0.3~3.4TRと報告している。ここでは地下水中の海水のトリチウム濃度を T_{sea} とおき、B1-30、B2-30、B3-30、B4-50における海水混合比およびそこでの実測トリチウム濃度を用いて、海水の影響がない場合の地下水中のトリチウム濃度を以下の式に従って推算した。

$$TR_{calc} = \frac{TR_{meas} - T_{sea} f_{sea}}{1 - f_{sea}} \tag{6}$$

ただし、 TR_{meas} は、B1-30、B2-30、B3-30、B4-50における実測トリチウム濃度、 TR_{calc} は海水混合の影響を排除したB1-30、B2-30、B3-30、B4-50におけるトリチウム濃度である。

式(6)において $T_{sea}=1.85TR$ (1.85TR は0.3TRと3.4TRの算術平均値)として計算した結果、例えばB3-30では $TR_{meas}=0.5TR$ 、 $T_{sea}=1.85TR$ 、 $f_{sea}=0.295$ であるので $TR_{calc}=-0.065$ となり、他のB1-30、B2-30、B4-50も TR_{calc} はマイナスを示した。したがって、マイナス値を示したということは、地下水中の塩水のトリチウム濃度として用いた1.85TRは大きすぎたということになる。そこで海水が地下浸透し淡水地下水に混入するまでに相当な時間を要すると考えられるので、この地域での地下水中の塩水ではトリチウム濃度をほぼ0TRと考えても差し支えないと考えられる。 $T_{sea}=0TR$ としてトリチウム濃度を検討した結果、B1、B2、B3、B4とも深部地下水の方が浅部地下水より年代が古い地下水であることが推察された。

ca.2000 years before



the present

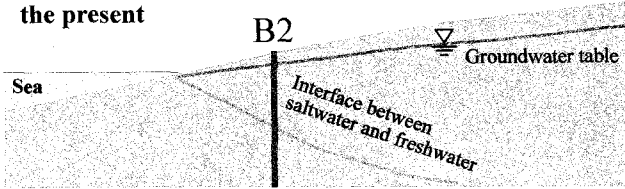


図-5 B2の断面模式図 (現在および約2000年前)

(5) 水素・酸素同位体比

図-4は水素同位体比と酸素同位体比との関係を示す。元岡における各井戸の深度10m地点の値はほぼ天水線上にあり、これら地下水の起源が降水であることが示唆される。一方、B2、B3の深度30m、B4の深度50m地下水は、天水-海水混合線上にあり、塩化物イオン濃度が高い地下水ほど $\delta^{18}\text{O}$ が正にシフトしている。これは地下水が海水の影響を受けたためと考えられる。B1-30は、天水-海水混合線より $\delta^{18}\text{O}$ の正側にさらにシフトした位置にプロットされた。この理由については海水による影響とともに、岩石(相対的に岩石は水よりも酸素同位体が高い)との接触時間がより長く、酸素の同位体交換が生じた結果であることが推察された^{10), 11)}。

(6) ^{14}C による地層形成年代の推定

一般に生物が死ぬと外界との炭素交換が行われなくなるので、生体中の ^{14}C の割合は年代とともに減少する¹²⁾。表-4はB2のコアサンプルから採取した貝殻およびB2近

傍にあるボーリング井戸Wの深度10m, 30mを採水し、C-14法で年代を測定した結果を示している。深度約2mで採取した貝殻の年代測定結果から、約2000年前のこの地域は海底であったことが示された。深度約4m以深では、6000年から7000年前に形成された地層であることがわかった。したがって、この地域は元来海であったが、河川からの土砂等により徐々に陸地化し、その後降雨などにより地下浅層部が淡水化し、塩淡水境界面が形成されたと考えられる。貝殻試料を採取したB2と近接したWから得られた地下水の年代は、深度10mで約2000年、深度30mで約8000年前後を示している。前者の年代に関して、深度10mは塩淡水境界面の上部にあり、Upconingによる塩水と淡水との混合のため、淡水のみの年代を示すものではないと思われる。後者の年代は深度4m以深の地層の堆積年代に近く、地層堆積時に地層中に浸透していた海水が長期にわたって閉じ込められていた可能性がある。図-5には約2000年前と現在のB2の断面模式図を示している。

4. まとめ

本研究で得られた知見は以下のようである。

トリチウムに関しては、全般的に濃度レベルも低く、地下水の年代を推定することはできなかったが、福岡市西区元岡の各井戸は浅部地下水の方が深部地下水よりトリチウム濃度が高く、深部地下水の方が古い地下水である可能性が示された。

水素および酸素同位体比に関しては、海水の影響が少ない地下水では、その起源が降水であることが示唆された。また天水-海水混合線上にプロットされた地下水は、海水の影響を受けた地下水であることが示された。

B1-30はパイパーダイアグラムでの分類では、アルカリ土類重炭酸塩型〔 $\text{Ca}(\text{HCO}_3)_2$ 型〕の淡水に分類されたが、水素・酸素同位体比の測定結果では、天水-海水混合線より $\delta^{18}\text{O}$ が正にシフトした箇所にプロットされた。海水の混入とともに古海水のような岩石と長く反応した水の影響も示唆された。つまり塩水化地下水の特徴を把握するためには、パイパーダイアグラムによる分類のほかに、水素・酸素同位体比の測定結果を参照して決定しなければならないことがわかった。

^{14}C による地層形成年代の考察により、この地域の塩水化地下水は、元来、この地域が海であったことによるものと思われる。地下水の過剰な揚水によっては、Upconingによる塩水化、また水田の減少などによる地下水位の低下により、長期的にはGhyben-Herzbergの関係に示されるような塩水化の進行も考えられよう。

謝辞：本研究は核燃料サイクル開発機構による核燃料サイクル公募型研究助成「沿岸部帯水層内の古海水の地球化学的分析とその挙動に関する調査研究」（研究代表者：神野健二）の補助のもとに行われた。また、水素・酸素同位体測定にあたっては岡山大学固体地球センター教授千葉仁先生のご協力により同センターの同位体比測定装置を利用させて頂いた。 $\delta^{13}\text{C}$ 、 ^{14}C の測定にあたっては、核燃料サイクル開発機構東濃地科学センターのタンデム型加速器質量計を使用させて頂いた。ここに記して感謝を申し上げます。

参考文献

- 1) 池田喜代治：海岸平野における塩水化地下水の水・堆積物相互作用と化学組成。陸水学雑誌，Vol.4，No.4，303~314，1985。
- 2) Wicks, C.M., Herman, J.S., Randazzo, A.F. and Jee, J.L.: Water-rock interactions in a modern coastal mixing zone. *Geological Society of America Bulletin*, Vol.107, No.9, 1023~1032, 1995.
- 3) Price, R.M. and Herman, J.S.: Geochemical investigation of salt-water intrusion into a coastal carbonate aquifer: Mallorca, Spain. *Geological Society of America Bulletin*, Vol.103, No.10, 1270~1279, 1991.
- 4) 平井英治, 松岡信明, 高島良正：トリチウムの電解濃縮における減容比と回収率について - ノンスパイク法トリチウム分析の可能性 -, *RADIOISOTOPES*, Vol.39, No.11, 503-506, 1990.
- 5) Sheng, X., Ito, S., Iwatsuki, T., Abe, M. and Watanabe, M.: A new AMS facility at the JNC Tono Geoscience Center, Japan. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 172, ELSEVIER, 8~12, 2000.
- 6) Appelo, C.A.J. and Postma, D.: *Geochemistry, groundwater and pollution*. Balkema, Rotterdam, 142~148, 1994.
- 7) 五十嵐敏文, 馬原保典, 塩崎 功：地下水モデリングのためのデータ解析手法の基礎 4. 地下水環境状態のモデリング 4.1 水質解析・環境同位体・トレーサ. 地下水学会誌, 42, 243~262, 2000.
- 8) 岡村正紀, 平井英治, 松岡信明：福岡市における降水中トリチウム濃度の最近の変動. 地下水学会誌, 35, 87~93, 1993.
- 9) Kakiuchi, H., Momoshima, N., Okai, T. and Maeda, Y.: Tritium concentration in ocean. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Vol.239, No.3, 523~526, 1999.
- 10) 馬原保典：最近の地下水調査方法と計測技術, 7. 環境の計測, 7.2 環境同位体分析, 地下水学会誌, 36, 473~485, 1994.
- 11) 綿抜邦彦：地下水問題への環境同位体手法を用いたアプローチ, 地下水学会誌, 35, 307~311, 1993.
- 12) 兼岡一郎：年代測定概論, 東京大学出版会, 93~101, 1998.

(2001. 10. 1 受付)