

# 秩父山地の滝川流域, 入川流域で採取した湧水の CFCs と SF<sub>6</sub> を用いた平均滞留時間推定

浅野友子\*<sup>1</sup>・川崎雅俊\*<sup>2</sup>・浅井和由\*<sup>3</sup>

キーワード：涵養年代, 秩父演習林, 平均滞留時間, 湧水, 六フッ化硫黄

Estimation of mean transit times of the seeps taken at Takikawa and Irikawa catchment in the Chichibu Mountains using Chlorofluorocarbons and Sulfur hexafluoride.

Yuko ASANO\*<sup>1</sup>, Masatoshi KAWASAKI\*<sup>2</sup>, Kazuyoshi ASAI\*<sup>3</sup>

Keywords: recharge age, The Chichibu Forest, mean transit times, seeps, sulfur hexafluoride

## 1. はじめに

秩父山地の水文過程を知る一歩として, 湧水の CFCs (クロロフルオロカーボン類) と SF<sub>6</sub> (六フッ化硫黄) を分析し, いくつかの仮定と 2 つの水流出モデルを用いて涵養年代と滞留時間を推定したので報告する。CFCs と SF<sub>6</sub> は浅層地下水の滞留時間を求めるのに有効なトレーサで, 推定方法はほぼ確立されており, 詳細は他にあるので本報告では簡単に述べる (IAEA, 2006; Busenberg and Plummer, 1992; 2000; 浅井ら, 2017; 榊原ら, 2017; 浅野ら, 2011)。ここで湧水とは, 入川軌道や入川林道沿いの法面の岩の亀裂からしみ出しているもの, 0 次谷からしみ出して川の起点となるものを指している。また, 採取した水試料の一般水質分析も行ったので報告する。

### 1.1 CFCs の性質と起源

CFCs は, 冷却剤や洗浄剤などの用途で 1930 年代に人工的に生成された有機化合物で, 極めて安定な性質を持ち, 使用された CFCs は最終的には大気に放出されるため, 生産量の増加に伴って大気中に蓄積された。しかし, CFCs は成層圏内のオゾン層の破壊に寄与し, 温暖化物質でもあることから現在は生産・使用が制限されている。そのため大気中の CFCs 濃度は 1990 年代まで単調増加し, その後減少しているものの, 現在でも高い濃度を保っている (IAEA,

---

\* 1 東京大学大学院農学生命科学研究科

Graduate School of Agricultural and Life Sciences, The University of Tokyo

\* 2 サントリーグローバルイノベーションセンター(株) 水科学研究所

Institute for Water Science, Suntory Global Innovation Center Limited

\* 3 株式会社 地球科学研究所

Geo-Science Laboratory

2006)。現在この大気中の CFCs 濃度の変化を利用すると、滞留時間 20～60 年の地下水の年代推定が可能である。

## 1.2 SF<sub>6</sub> の性質と起源

SF<sub>6</sub> は変圧器の絶縁ガスなどに使用されている気体で、化学的に非常に安定な性質を持つ。1953 年以降世界各地で使われるようになった結果、1950 年代初頭には大気中 SF<sub>6</sub> 濃度はほぼ 0pptv であったのが、2016 年には北半球平均で 8.9 pptv となっており、濃度が上昇し続けている。この過去 40～50 年間の大気中 SF<sub>6</sub> 濃度の急激な上昇を利用すると、現在、滞留時間 10 年未満の地下水の年代推定が時間分解能 1 年で可能である（例えば榊原ら、2017）。また、SF<sub>6</sub> は微生物分解や吸着の影響が小さい。自然起源の SF<sub>6</sub> 付加もあるが、火山活動が活発な地域などを除き、その影響は小さいと考えられる（Maiss and Brenninkmeijer, 1998）。

## 2. 方法

### 2.1 涵養年代推定

CFCs, SF<sub>6</sub> は化学的に極めて安定な性質を持つため、地下水中では基本的に涵養された時の濃度を保存したまま流動し、流出すると考える。地中に浸透した降水は、不飽和帯中を降下浸透する際に、土壌中の気体と濃度溶解平衡に達し、その後地下水を涵養する。ここで土壌中の気体に含まれる CFCs, SF<sub>6</sub> 濃度は大気中の CFCs, SF<sub>6</sub> 濃度と同じであると仮定している。そして地下水の CFCs, SF<sub>6</sub> 濃度は、涵養時の大気中の CFCs, SF<sub>6</sub> 濃度と溶解度を反映し、地下水の流動・流出の過程で変化しないと仮定し、以下の 3 つの手順で年代を得る。詳しくは Busenberg and Plummer (1992; 2000) や榊原ら (2017) を参照して欲しい。

- (1) 湧水の CFCs, SF<sub>6</sub> 濃度を測定する。
- (2) ヘンリーの溶解平衡式にもとづき湧水の測定値を地下水涵養時の大気濃度に変換する。
- (3) 変換された値を過去の大気中の CFCs, SF<sub>6</sub> 濃度と比べる。

ヘンリーの法則によれば、空気と平衡状態にある水に溶解している気体中の CFCs, SF<sub>6</sub> 濃度は空気中のその分圧 ( $p_i$ ) に比例する。

$$C_i = K_H p_i \quad (1)$$

ここで  $C_i$  は水中の CFCs, SF<sub>6</sub> 濃度、 $K_H$  はヘンリー一定数である。空気中の CFCs, SF<sub>6</sub> 分圧は以下で表される。

$$p_i = x_i (P - p_{H_2O}) \quad (2)$$

ここで  $x_i$  は空気中の CFCs, SF<sub>6</sub> モル比、 $P$  は大気圧、 $p_{H_2O}$  は水蒸気圧である。ヘンリー一定数は、一定の温度、塩分濃度の範囲では以下で与えられる。

$$\ln K_H = a_1 + a_2 \left( \frac{100}{T} \right) + a_3 \ln \left( \frac{T}{100} \right) + S \left[ b_1 + b_2 \left( \frac{T}{100} \right) + b_3 \left( \frac{T}{100} \right)^2 \right] \quad (3)$$

ここで  $T$  は絶対温度,  $S$  は塩分濃度 (重量%), 定数  $a_1, a_2, a_3, b_1, b_2, b_3$  はそれぞれ CFCs, SF<sub>6</sub> について得られている (Warner and Weiss, 1985; Bu and Warner, 1995; Bullister *et al.*, 2002)。このように溶存気体の溶解度は, 温度, 大気圧, 塩分濃度の関数である。地下水涵養時の温度 (涵養温度) ( $T$ ) は, 湧水の起源である地下水帯が降水によって涵養される際の温度であるため, ここでは試料採取時の湧水の水温とした。地下水涵養時の大気圧 ( $P$ ) は, 地下水の涵養標高 ( $H$ ) を地形図から読み取った湧水の集水域の最小, 最大標高の中間の値とし, 以下の式から求めた (List, 1949)。

$$\ln P = -H/8300 \quad (4)$$

塩分濃度については 0 % とした。水蒸気圧  $p_{H_2O}$  は Weiss and Price (1980) の経験式から計算した。ここでは年単位の滞留時間を求めるため, 年平均的な涵養条件を設定し, 涵養条件の年変動は考慮しない。

年代推定のトレーサとなる CFCs には CFC-11, CFC-12, CFC-113 の 3 種があるが, 通常は地中での微生物分解や吸着等の影響による濃度変化が最も小さい CFC-12 の結果を優先する。

過去の大気 of CFCs 濃度については, Bullister (2017) により北半球の平均濃度として公表されているデータを用いた。過去の大気 of SF<sub>6</sub> 濃度については, 日本国内の大気 SF<sub>6</sub> 濃度の空間分布を調査した浅井ら (2017) によると, 中部地方の山岳地域の大気 SF<sub>6</sub> 濃度は前述の文献に示されている北半球の平均濃度に比べて 15 % 高かったことから, 北半球の平均濃度を 1.15 倍した値を用いた。

## 2.2 滞留時間推定

地中での水移動形態を仮定し, 滞留時間を推定する。ここではピストン流モデル (押し出し流モデルともいう。地中で混合がおこらず雨水は降った順に流出する) と, 完全混合モデル (雨水は地中に入った瞬間に, 地中にあるすべての水と完全に混合したのち流出する。) を仮定して, 滞留時間を推定した。この二つのモデルは両極端な水移動形態を仮定している。実際の地下水の移動メカニズムはモデルで仮定した二つのメカニズムが何らかの割合で共存していると考えられる。方法の詳細は浅野ら (2011) に述べた。

## 2.3 水試料の採取と分析方法

水試料は 2017 年 5 月 30 日, 31 日に 8 か所で採取した。採取地点とその概要は図-1 と表-1 に, 採取地点, 湧水採取の様子を図-2, 図-3 に示す。

現在の大気中には CFCs や SF<sub>6</sub> が高濃度で含まれるため, 水が湧出する箇所にチューブを挿入

表-1 湧水採取地点概要

採取地点	採取日時	採水地点標高 (m)	緯度経度	備考
あ	2017/5/30 10:15	1050	35° 54′ 45.9″ N 138° 49′ 5.6″ E	
い	2017/5/30 10:55	1170	35° 54′ 52.7″ N 138° 49′ 6.5″ E	
う	2017/5/30 14:36	1000	35° 54′ 38.6″ N 138° 49′ 10.8″ E	
え	2017/5/31 10:30	840	35° 56′ 12.4″ N 138° 48′ 40.7″ E	浅野ら (2013) C21と同じ
お	2017/5/31 11:36	770	35° 56′ 23.4″ N 138° 49′ 18.5″ E	浅野ら (2013) C11と同じ
か	2017/5/31 13:05	950	35° 56′ 44.6″ N 138° 49′ 6.6″ E	
き	2017/3/31 13:49	1070	35° 56′ 46.8″ N 138° 48′ 59.6″ E	浅野ら (2013) C8と同じ
く	2017/5/31 14:58	1150	35° 56′ 27.1″ N 138° 48′ 32.8″ E	

し、湧水をできるだけ大気と接触のないように採取した。機材からの汚染がおこらないようにフロン類が使用されていないことが確認されている素材のみを用いて水の採取と運搬を行った。

CFCs と SF<sub>6</sub> の分析は (株)地球化学研究所にて Purge and Trap-GC-ECD 法で行った。分析誤差は 3% である。

一般水質分析用の水試料も採取し、分析した。

### 3. 結果

#### 3.1 湧水試料採取日の特徴

湧水を採取した 2017 年 5 月 30 日～31 日は晴れていて、気象観測地「ワサビ沢」では、前日の 5 月 29 日の降水量は 0 mm、5 月 30 日までの 10 日間降水量は 37.5 mm だった (東京大学大学院農学生命科学研究科附属演習林基盤データ整備委員会水文水質部門, 2020)。バケモノ沢のハイドログラフから、湧水を採取した日は 1 年の中でも流量が少なく、安定している期間であったことがわかる (図-4)。

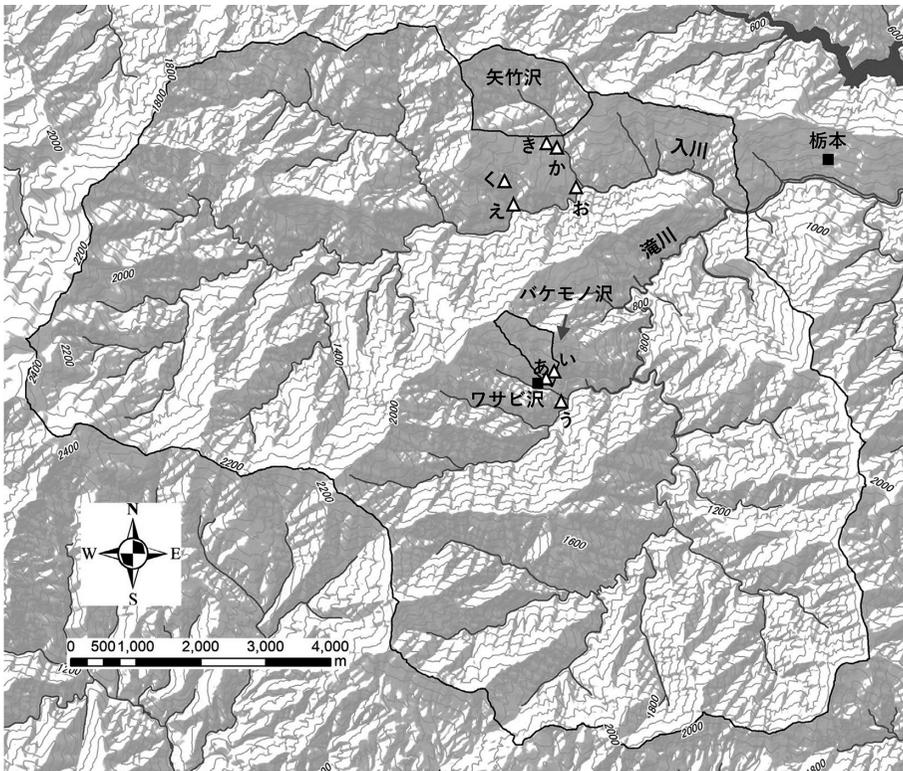


図-1 流域の地形と湧水採取地点 (あ)～(く)。△は湧水採取地点、■は気象観測地「ワサビ沢」を示す

### 3.2 大気換算濃度、涵養年代、滞留時間

CFCsとSF<sub>6</sub>の分析値から、涵養時の大気中CFCsとSF<sub>6</sub>濃度（大気換算濃度）に換算した（表-2）。この結果に基づき、地中での水移動形態はピストン流であると仮定して涵養年代を推定した（表-2 涵養年代、図-5）。涵養時の大気に換算したCFC-12濃度は、1980年代中頃から現在までの大気と一致していることから、これらの湧水は1980年代以降に涵養されたことを示す。一方、SF<sub>6</sub>濃度は2008年以降の大気中濃度と同じ範囲だった。CFCsの結果からは、滞留時間が30年以内であること、SF<sub>6</sub>の結果は10年以内であることを示すが、大気中CFCs濃度が低下するこの年代範囲においてはSF<sub>6</sub>のほうが年代特定の感度が高いので、SF<sub>6</sub>に基づく年代推定結果の方が信頼性が高いと判断する。SF<sub>6</sub>に基づくピストン流を仮定した滞留時間推定結果は3～9年、完全混合モデルを仮定した平均滞留時間は1～9年であった（表-2）。湧水の水質分析結果を表-3に示す。

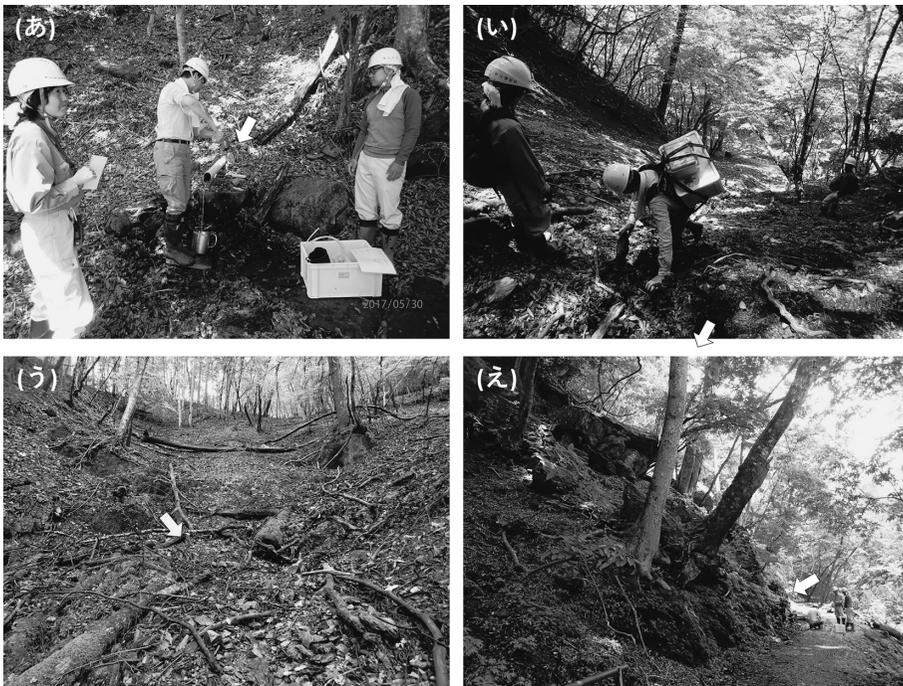


図-2 湧水採取地点の様子。矢印は試料水採取を行った、地中から水が湧き出している地点。(あ) バケモノ沢園地の湧水、(い) バケモノ沢流域内の0次谷、湧水採取地点は写真の外、矢印のあたり、(う) ワサビ沢流域内の0次谷からの湧水、(え) 入川軌道沿い法面岩盤からの湧水

### 3.3 $SF_6$ を用いた湧水の年代推定における誤差について

ここで、今回推定された平均滞留時間に誤差がどの程度あるか、主な誤差要因から検討してみる。

誤差が生じる主要因の一つに不飽和帯の厚さがある。不飽和帯が厚いと、大気中の  $SF_6$  濃度の変化が不飽和帯中に伝わるのに遅れが生じ、それが平均滞留時間を過大評価させることが知られている。不飽和帯の厚さが5 m 程度の場合は大気と土層間隙内の  $SF_6$  濃度に遅れ時間はほとんど無いが、10 m では1年の差、40 m では12年の差があるという (Busenberg and Plummer, 2000)、つまり不飽和帯が10 m 存在する場合  $SF_6$  を用いた地下水の平均滞留時間は1年過大評価される (榊原ら, 2017)。秩父演習林内での調査から、急な斜面の表土層は薄い、なだらかな尾根は2~3.2 m の関東ローム層で覆われている箇所もあることがわかっている (秩父地質研究グループ, 1966)。仮に不飽和帯の厚さが表土の厚さと同じであると仮定すると、不飽和帯の厚さによる誤差はそれほど大きくないと考えられる。しかし、対象流域では基岩中の水移動が降雨一流出に寄与していることが示されてきている (Asano *et al.*, 2020)。つまり、不飽和帯の厚さが表土の厚さより大きい可能性もあるが、基岩中の地下水帯の深さや涵養プロセスについてはよくわかってお



図-3 湧水採取地点の様子。矢印は試料水採取を行った地中から水が湧き出している地点。  
(お) 入川林道法面石垣からの湧水, (か) 第一作業道沿い大きな岩の下にわく湧水,  
(き) 第二作業道沿い湧水, (く) 大面積プロットそば0次谷での湧水

らず、過大評価している可能性を消すことはできない。

一方、過剰空気 (excess air) は滞留時間を過小評価させる要因である (Goody et al., 2006)。地下水は通常、雨水との単純な平衡によって溶解した空気に加えて、過剰に空気を含んでいる。これは、水が浸透する際に土壌や岩石に閉じ込められた気泡が強制的に溶解するためである

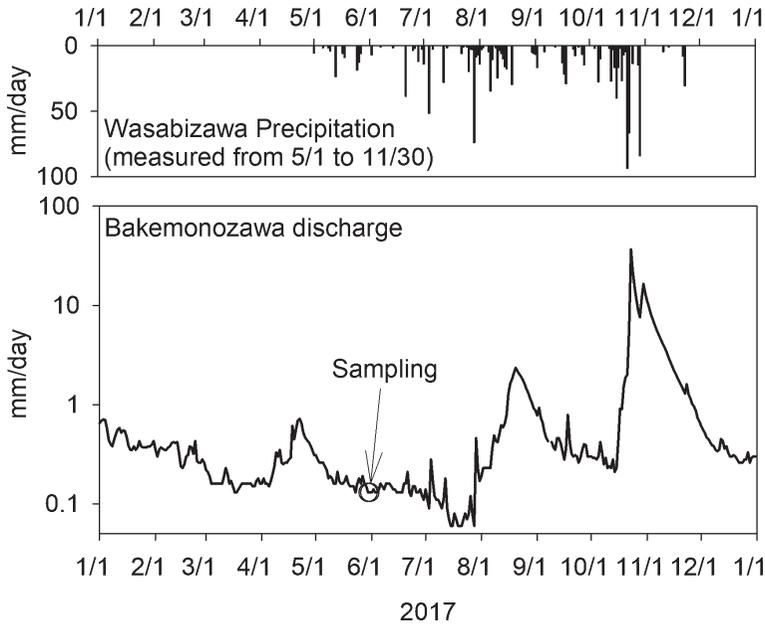


図-4 気象観測地「ワサビ沢」の日降水量(観測期間 5/1 ~ 11/30)とバケモノ沢の日流出量。湧水試料採取日を○で示す。東京大学大学院農学生命科学研究科附属演習林基盤データ整備委員会水文水質部門(2020)をもとに作成

(Heaton and Vogel, 1981)。例えば日本の山地小流域の複数地点で湧水を調査した例では、平均で約 2 ccSTP/kg (水 1 kg に溶解している気体量を 0℃, 1 気圧の気体の体積量に換算した単位) の過剰空気が存在しており、その場合、滞留時間は 6.6 年過小評価されていることになるという(浅井ら, 2021)。

以上,  $SF_6$  を用いた地下水涵養年代に推定における二つの主要な誤差要因について検討したところ、過小と過大、両方の可能性があった。過小・過大どちらの影響が大きいかの判断をするには現時点では情報が不足しているが、過小評価の影響が大きそうである。

対象流域での地中の水移動については現在研究を進めている。また、最近では過剰空気は地下水試料中の窒素ガスや希ガス成分から推定できることがわかってきており (IAEA, 2006), 日本国内でも過剰空気の影響評価を行うこともできるようになってきた(浅井ら, 2021)。今後  $SF_6$  を用いる湧水の涵養年代や平均滞留時間の推定精度は向上する見通しである。

## 謝辞

本研究はサントリー天然水の森 東京大学秩父演習林プロジェクト研究助成を得て行った。(株)サントリーホールディングス鈴木健氏には試料水採取にご協力いただいた。秩父演習林技術職員諸氏には湧水情報の提供、湧水地点探索、試料水採取にご協力いただいた。記して謝意を表します。

表-2 CFCs と SF<sub>6</sub> の大気換算濃度と、涵養年代（ピストン流モデルを仮定）、滞留時間（ピストン流モデルを仮定）、平均滞留時間（完全混合モデルを仮定）の推定結果

試料名	涵養条件		大気換算濃度 (pptv)								
	涵養温度 (°C)	涵養標高 (m)	滞留時間 (ピストン流モデル)			平均滞留時間 (完全混合モデル)					
			CFC12	CFC11	CFC113	SF <sub>6</sub>	CFC12	CFC113	SF <sub>6</sub>		
あ	10.1	1345	491.8	235.7	61.4	9.31					
い	11.8	1215	561.1	253.3	52.2	9.55					
う	9.5	1075	477.6	220.8	56.6	8.61					
え	11.5	1165	544.5	255.9	62.8	9.44					
お	12.1	1120	519.1	242.9	64.2	9.74					
か	10.8	1210	529.6	256.0	62.5	9.83					
き	9.5	1270	486.7	227.3	60.3	7.95					
く	9.9	1350	495.3	238.0	60.5	7.51					

試料名	涵養年代 (ピストン流モデル)						滞留時間 (ピストン流モデル, 年)						平均滞留時間 (完全混合モデル, 年)	
	CFC12	CFC11	CFC113	SF <sub>6</sub>	CFC12	SF <sub>6</sub>	CFC12	CFC11	CFC113	SF <sub>6</sub>	CFC12	SF <sub>6</sub>	CFC12	SF <sub>6</sub>
あ	1990	1987, 2013	1988	2013	27	4 or 30	29	4 or 30	29	4	14	3		
い	Modern	1988, 2005	1987	2014	np	12 or 29	30	12 or 29	30	3	np	2		
う	1989	1985	1987	2011	28	32	30	32	30	6	16	5		
え	1999, 2005	1987, 2004	1988	2013	12 or 18	13 or 30	29	12 or 18	29	4	np	3		
お	1993, 2016	1987, 2009	1988	2014	1 or 24	8 or 30	29	1 or 24	29	3	10	1		
か	1995, 2011	1988, 2003	1988	2014	6 or 22	14 or 29	29	6 or 22	29	3	6	1		
き	1989	1986	1988	2009	28	31	29	28	29	8	15	8		
く	1990	1987, 2011	1988	2008	27	6 or 30	29	27	29	9	14	9		

表-3 湧水の一般水質分析結果

試料名	pH	EC 電気伝導率 (ms/m)	Cl <sup>-</sup> (mg/L)	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (mg/L)	N (NO <sub>3</sub> ) <sup>-</sup> (mg/L)	PO <sub>4</sub> <sup>3-</sup> (mg/L)	Na <sup>+</sup> (mg/L)	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> (mg/L)	K <sup>+</sup> (mg/L)	Mg <sup>2+</sup> (mg/L)
あ	7.35	6.0	0.47	6.38	ND	ND	3.14	ND	0.17	0.79
い	7.00	4.4	0.50	3.78	0.30	ND	2.60	ND	0.23	0.52
う	6.78	3.3	0.42	2.13	0.16	ND	2.73	ND	ND	0.45
え	7.22	8.2	0.49	13.67	0.21	ND	2.48	ND	0.22	1.12
お	7.25	4.6	0.58	2.08	1.01	ND	2.98	ND	0.22	0.83
か	7.04	2.6	0.57	0.88	0.27	ND	1.96	ND	0.17	0.39
き	6.85	2.8	0.60	0.74	0.35	ND	2.01	ND	0.29	0.45
く	6.53	2.4	0.47	1.31	0.24	ND	2.28	ND	0.16	0.30

試料名	Ca <sup>2+</sup> (mg/L)	総硬度 (計算値) (mg/L)	SiO <sub>2</sub> (mg/L)	吸光度		TOC (ppb)	11 B (ppb)	27 Al (ppb)	31 P (ppb)	47 Ti (ppb)
				250nm	260nm					
あ	7.72	22.5	14.5	0.001	0.001	149	1.36	7.42	16.04	0.42
い	5.04	14.7	13.1	0.001	0.001	149	1.74	0.88	15.22	0.14
う	2.96	9.2	14.7	0.002	0.002	153	1.08	3.11	14.44	0.48
え	11.26	32.7	11.4	0.004	0.004	219	2.05	107.71	9.69	1.17
お	4.53	14.7	15.2	0.002	0.002	147	1.70	0.71	21.87	0.15
か	1.97	6.5	12.3	0.003	0.003	171	1.29	<0.000	15.60	0.09
き	2.32	7.6	12.7	0.002	0.002	148	1.40	0.57	28.11	0.11
く	1.50	5.0	13.1	0.003	0.003	179	1.63	2.92	25.75	0.18

試料名	53 Cr (ppb)	55 Mn (ppb)	56 Fe (ppb)	60 Ni (ppb)	63 Cu (ppb)	66 Zn (ppb)	72 Ge (ppb)	75 As (ppb)	82 Se (ppb)	90 Zr (ppb)
あ	0.12	0.88	8.84	0.08	0.06	<0.000	0.01	0.30	0.36	0.01
い	0.05	0.05	0.82	0.12	0.40	0.36	0.01	0.37	0.26	0.01
う	0.06	0.14	1.68	0.02	0.18	0.70	0.01	0.18	0.20	0.01
え	0.18	10.54	109.42	0.35	1.38	0.46	0.08	3.02	0.36	0.02
お	0.09	0.03	0.85	0.04	<0.000	<0.000	0.01	0.37	0.27	0.01
か	0.08	0.05	0.38	0.04	0.02	<0.000	0.01	0.39	0.25	0.01
き	0.09	0.13	0.98	0.05	0.03	<0.000	0.01	0.49	0.23	0.01
く	0.06	0.27	3.41	0.06	0.16	0.41	0.01	0.14	0.27	0.01

試料名	93 Nb (ppb)	95 Mo (ppb)	111 Cd (ppb)	121 Sb (ppb)	181 Ta (ppb)	182 W (ppb)	185 Re (ppb)	208 Pb (ppb)	238 U (ppb)
あ	0.02	0.16	0.00	0.03	0.01	0.06	0.01	0.02	0.00
い	0.04	0.77	0.00	0.02	0.02	0.19	0.01	0.02	0.00
う	0.02	<0.000	0.00	0.02	0.01	0.05	0.01	<0.000	0.00
え	0.02	0.09	0.01	0.10	0.01	0.06	0.01	0.44	0.10
お	0.02	<0.000	0.00	0.05	0.01	0.05	0.00	<0.000	0.00
か	0.03	0.03	<0.000	0.04	0.01	0.09	0.01	<0.000	0.00
き	0.02	<0.000	<0.000	0.05	0.01	0.07	0.01	0.01	0.00
く	0.02	<0.000	0.00	0.03	0.01	0.06	0.01	0.01	0.00

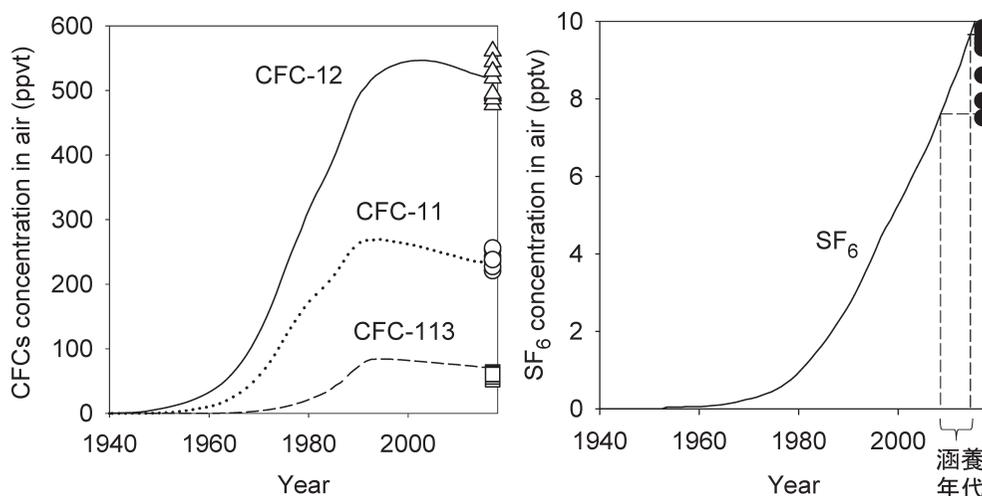


図-5 北半球の大気中 (a) CFCs 濃度と (b) SF<sub>6</sub> 濃度の経年変化

経年変化データは Bullister (2017) による北半球の平均濃度をもとにしているが、SF<sub>6</sub> については浅井ら (2017) の中部地方の山岳地域での結果にもとづき Bullister (2017) による北半球の平均濃度を 1.15 倍した。△, ○, □, ● はそれぞれ 2017 年 5 月 30~31 日に採取した湧水の分析結果から換算した地下水涵養時の大気中 CFC-12, CFC-11, CFC-113, SF<sub>6</sub> 濃度を示す

## 引用文献

- 浅井和由・辻村真貴・浅井和見 (2021) 溶存窒素・アルゴン濃度からみた中部地方の地下水の Excess air — SF<sub>6</sub> 年代に与える Excess air の影響—. 地下水学会誌 63(4) : 267-277.
- 浅井和由・辻村真貴・茂木勝郎 (2017) 日本の都市域周辺における大気 SF<sub>6</sub> 濃度の分布. 地下水学会誌 59 (4) : 345-354.
- Asano, Y., Kawasaki, M., Saito, T., Haraguchi, R., Takatoku, K., Saiki, M., and Kimura, K. (2020), An increase in specific discharge with catchment area implies that bedrock infiltration feeds large rather than small mountain headwater streams. *Water Resources Research*. 56. e2019WR025658. doi.org/10.1029/2019WR025658.
- 浅野友子・芝野博文・田中延亮・大川あゆ子・浅井和由 (2011) フロン類をトレーサに用いた西達布川源流湧水の平均滞留時間推定. 演習林 50 : 41-48.
- Bullister, J.L., Wisegarver, D.P. and Menzi, F.A. (2002) The solubility of sulfur hexafluoride in water and seawater. *Deep-Sea Research I* 49: 175-187.
- Bullister, J.L. (2017) Atmospheric Histories (1765-2015) for CFC-11, CFC-12, CFC-113, CCl<sub>4</sub>, SF<sub>6</sub> and N<sub>2</sub>O (NCEI Accession 0164584). NOAA National Centers for Environmental Information. Unpublished Dataset. doi: 10.3334/CDIAC/otg.CFC\_ATM\_Hist\_2015. (2021 年 4 月 30 日閲覧)

- Busenberg, E. and Plummer, L.N. (1992) Use of chlorofluorocarbons ( $\text{CCl}_3\text{F}$  and  $\text{CCl}_2\text{F}_2$ ) as hydrologic tracers and age-dating tools: The alluvium and terrace system of central Oklahoma. *Water Resources Research* 28 (9): 2257-2283, doi:10.1029/92WR01263.
- Busenberg, E. and Plummer, L.N. (2000) Dating young groundwater with sulfur hexafluoride: Natural and anthropogenic sources of sulfur hexafluoride, *Water Resources Research* 36 (10): 3011-3030. doi:10.1029/2000WR900151.
- Bu, X. and Warner, M.J. (1995) Solubility of chlorofluorocarbon 113 in water and seawater. *Deep-Sea Research* 42: 1151-1161.
- 秩父地質研究グループ (1996) 秩父演習林付近の地質—栃本より上流地域について—. 演習林 16 : 73-85.
- Goody, D.C., Darling, W.G., Abesser, C. and Lapworth, D.J. (2006) Using chlorofluorocarbons (CFCs) and sulphur hexafluoride ( $\text{SF}_6$ ) to characterize groundwater movement and residence time in a lowland Chalk catchment. *Journal of Hydrology* 330 (1-2): 44-52. doi.org/10.1016/j.jhydrol.2006.04.011.
- Heaton, T.H.E. and Vogel, J.C. (1981) "Excess air" in groundwater. *Journal of Hydrology* 50: 201-216.
- IAEA (International Atomic Energy Agency) (2006) Use of Chlorofluorocarbons in Hydrology. 277pp., IAEA. Vienna.
- 榎原厚一・辻村真貴・浅井和由 (2017) 六フッ化硫黄 ( $\text{SF}_6$ ) を用いた地下水の滞留時間推定における課題と展望. *地下水学会誌* 59 (2) : 87-103.
- List, R.K. (1949) *Smithsonian Meteorological tables*. 6<sup>th</sup> edn., 527pp, Smithsonian Institution Press, Washington, D.C.
- Maiss, M. and Brenninkmeijer, C.A.M. (1998) Atmospheric  $\text{SF}_6$ : Trends, sources, and prospects. *Environmental Science and Technology* 32: 3077-3086.
- 東京大学大学院農学生命科学研究科附属演習林基盤データ整備委員会水文水質部門 (2020) 東京大学演習林水文観測・水質分析報告 (自2017年1月至2017年12月). 演習林 (東大) 62 : 93-113.
- Warner, M.J. and Weiss, R.F. (1985) Solubilities of Chlorofluorocarbons 11 and 12 in water and seawater. *Deep-Sea Research* 32: 1485-1497.
- Weiss, R.F. and Price, B.A. (1980) Nitrous oxide solubility in water and seawater. *Marine Chemistry* 8: 347-359.