

石川市嘉手苅地区における地下水水銀汚染について

吉田直史, 普天間朝好, 宮城俊彦, 與儀喜真¹⁾, 嘉数江美子¹⁾, 下地武芳²⁾

Underground water pollution by mercury in Kadekaru, Ishikawa city

Naofumi YOSHIDA, Tomoyoshi FUTENMA, Toshihiko MIYAGI,
Kishin YOGI, Emiko KAKAZU and Takeyoshi SHIMOJI

1) 現環境保全課 2) 現環境整備課

Abstract : Mercury was detected over the limit of Japanese underground water quality standard (0.0005mg/L) from well water at two places in Kadekaru, Ishikawa city. In this area, there were no places where industrial waste had been disposed and mercury was used. From the results of some investigations such as well water quality, mercury gas in the soil etc., finally, it was suggested that the mercury gas had risen from deep underground along the fault and dissolved to the well water. Therefore, the well water pollutions by mercury were caused by origin from nature.

Key words : well water, mercury pollution, mercury gas, fault, origin from nature

I はじめに

平成9年10月、沖縄県の地下水概況調査において石川市嘉手苅地区の井戸（W-1）から総水銀が地下水環境基準（0.0005mg/L以下）を超えて検出された。その後の汚染井戸周辺調査により、井戸（W-2）からも総水銀が基準を超えて検出された。当地区は主に住宅地や耕作地からなり、周辺に水銀を使用する事業所や廃棄物処分場は無く、汚染井戸内への水銀系廃棄物の投棄や汚染井戸付近での水銀系農薬の使用事例も確認されなかった。また地質、水質、土壤、底質及び水銀蒸気検出調査等の結果から、当地区における汚染は人為的汚染ではなく、地下深部より断層に沿って上昇してきた水銀蒸気が地下水に溶け込んだもの、つまり自然由来であると推定された。なお、W-1、W-2の汚染が判明した以降、年2回のモニタリングを行っており、これまでW-1、W-2ともに一度もアルキル水銀は検出されたことはなく、よってW-1、W-2の汚染は無機水銀によるものである。

II 調査地区の地質

嘉手苅地区は、基盤岩には不透水層を形成する国頭層群名護層千枚岩が分布している。その上位には良好な透水層を形成する琉球石灰岩及び同時異層の国頭礫岩が分布している。最上位には地表から約2～4mに不透水層

を形成する粘土層が分布している。当地区では琉球石灰岩を帶水層としている。

III 調査方法

1. 地下水質調査

W-1において総水銀の検出が判明した後、周辺の井戸26地点、湧水7地点、生活排水溝1地点について総水銀の検出状況を調査した。W-1、W-2および周辺井戸3地点について、1年間月1回の頻度で採水し、水銀及びイオン成分等分析を行い、その相関を調べた。またW-1、W-2を含む井戸21地点の水質についてトリリニアダイヤグラム解析を行った。分析方法については総水銀、イオン成分等各項目ともJIS K 0102又は上水試験方法に準拠して行った。

2. 土壤調査

(1) 表層土壤調査

汚染井戸周辺の表層土壤22地点の溶出試験及び含有試験を行った。溶出試験は平成3年8月23日付環境庁告示第46号別表（土壤の汚染に係る環境基準について）に従つて、含有試験は底質調査方法に基づいて行った。

(2) ポーリング調査

W-1、W-2それぞれの汚染井戸近傍で井戸と同程度の

深さ（約12m）まで1本ずつボーリングを行い、1m深さごとにコアの総水銀溶出試験、含有試験を行った。試験方法は2.(1)と同様にした。

3. 底質調査

(1) 含有試験及び様々な溶媒での溶出試験

W-1, W-2及び周辺井戸4地点の底質について、含有試験、通常の超純水での溶出試験、弱酸性水での溶出試験、イオン含有水での溶出試験、酢酸アンモニウム溶液での溶出試験を行った。試験方法は含有試験及び通常の溶出試験は2.(1)と同様にした。他の溶媒での溶出試験方法については以下に示す。なお、試験に用いた底質は、採泥された後常温で保存され、数年経過したものである。

まず、酸性雨等の影響により水銀が底質から地下水中に溶出する可能性を検討するため、弱酸性水での溶出試験を行った。超純水に塩酸を用いてpH4.0に調整した弱酸性水200mlを底質湿試料20gに加え、6時間振とう抽出を行った。これを遠心分離後0.45μmメンブランフィルターでろ過し、ろ液中の総水銀含有量を測定した。

次に地下水中に含まれるイオン成分の影響により水銀が底質から地下水中に溶出する可能性を検討するため、イオン含有水での溶出試験を行った。W-1の井戸水中のイオン含有濃度を参考にして、NaCl 30mg/L, KCl 10mg/L, MgSO₄ · 7H₂O 20mg/L, CaSO₄ 90mg/L, Ca (NO₃)₂ · 4H₂O 50mg/Lとなるようなイオン含有水を調製した。底質湿質量20gに調製したイオン含有水200mlを加え、後の操作は弱酸性水での溶出試験と同様にした。

底質の土粒子に交換態陽イオンとして吸着している水銀が地下水に溶出する可能性を検討するため、酢酸アンモニウム溶液での溶出試験を行った。底質湿試料20gに1M酢酸アンモニウム溶液200mlを加え、後の操作は弱酸性水での溶出試験と同様にした。

(2) 粒度分布試験、乾燥減量・強熱減量試験

土粒子の組成及び有機物量と水銀含有量の相関を検討するため、粒度分布及び乾燥減量・強熱減量試験を行った。粒度分布については、1mmのふるいにかけた底質湿試料をレーザ回折式粒度分布測定装置（島津SALD-3000）を用いて試験した。乾燥減量・強熱減量については底質調査方法に従って試験した。

なお、試験に用いた底質は、採泥された後常温で保存され、数年経過したものである。

4. 水銀蒸気検出調査（金線調査）

水銀は金属の中で唯一、常温で液体であり、気化しやすいという性質をもつ。この性質を利用した温泉や断層分布の調査方法が知られている。つまり、地下深部から放出され断層等地層の隙間を上昇してきた水銀蒸気を地表付近で金や白金に捕集する。これを測定し、濃度センター図を作成することにより、温泉や断層の位置が推定できる。当地区には温泉はないが、地区の南部及び北東部に北西～南東方向に平行に走る断層が存在するため、W-1, W-2の近傍にも隠れた断層が存在し、断層に沿って上昇した水銀蒸気が井戸水に溶解したのではないかと考え以下の調査を行った。

(1) ピット法による金線調査

断層は平行及び直交して存在することが多いため、地区的南西部に位置する断層に平行及び直交するようにメッシュを引き、その交点にできるだけ調査地点を設けた。83調査地点及び断層の存在が不明瞭な対照地域の5地点（沖縄市、大里村）において径約8cm、深さ約30cmの縦穴を掘り、あらかじめ加熱気化（750°C）により水銀を除去した金線（直径1mm、長さ10cm、純度約100%）を縦穴中に糸で吊した。穴の入り口を厚紙で覆い、5日間設置後金線を回収し、加熱気化水銀分析装置を用いて水銀蒸気捕集量を測定した。

(2) ボーリング法による金線調査

当地区的地質は、帯水層である琉球石灰岩層の上部（地表から約2～4m）に不透水層で通気性の悪い粘土層が分布している。従って、地表付近においては地下深部から上昇してくる水銀蒸気が到達しづらい地盤環境にある可能性がある。そこでより高濃度の水銀蒸気を捕集することを期待して、以下の方法で調査を行った。

26地点において、まず粘土層を突き抜け琉球石灰岩層に至ったところからさらに50cm深くまでボーリングした。次に下方から上昇する水銀蒸気のみを捕集するためその孔に塩ビパイプを通し、ピット法と同様に5日間金線を設置後回収し水銀蒸気捕集量測定した。

(3) 土壤からの水銀蒸気検出室内試験

土壤中の水銀含有量と、土壤そのものから放出される水銀蒸気量の相関を検討するため、以下の方法により試験を行った。

土壤からの水銀蒸気検出試験は、(2)の調査で高値を示した3地点のボーリングコアを約50cm深度別に100gを取り、これを軽く粉碎し、ガラス容器に入れた。金線を土壤にふれないように糸で吊し、ふたを閉めて密閉状態にした。これを25°Cで5日間放置し、金線を回収して

水銀蒸気捕集量を測定した。

土壤中の水銀含有試験については、土壤汚染対策法（試料と溶媒（1N塩酸）を重量体積比3%で混合し、2時間振とう抽出を行う。）に従って行った。

IV 結果及び考察

1. 地下水質調査結果

W-1周辺の井戸26地点、湧水7地点、生活排水溝1地点について総水銀の検出状況を調査したところ、井戸1地点（W-2）において地下水環境基準を超えて検出され、他の地点では不検出であった。W-1、W-2の汚染状況及び水質の特徴を把握するため、周辺井戸3地点を含め1年間月1回の頻度で採水し、総水銀及びイオン成分等分析を行った。その結果、総水銀濃度については、W-1では<0.0005~0.021mg/L、W-2では<0.0005~0.0042mg/Lの範囲であった。また、W-1においてはHgに対して Ca^{2+} 、 Br^- 、 HCO_3^- が比較的強い正の相関を、DO、 NO_3^- -Nが比較的強い負の相関を示した。表1にその相関係数を示す。

表1. W-1におけるHgとイオン成分等との相関

	DO	Ca^{2+}	HCO_3^-	Br^-	NO_3^- -N
相関係数	-0.856	0.755	0.891	0.949	-0.752

(DO : n=11, Ca^{2+} , HCO_3^- , Br^- , NO_3^- -N : n=12)

W-1において、pH、EC（電気伝導度）、ORP（酸化還元電位）、 Na^+ 、 K^+ 、 Mg^{2+} 、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 F^- 、 Cl^- 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 SO_4^{2-} 、 PO_4^{3-} 、Fe、MnとHgとでは強い相関は認められなかった。またW-2ではHgと全ての項目で相関は認められなかった。W-1ではその他の特徴としてECが他の井戸4地点に比べて高い傾向にあること、水銀濃度が夏期～秋期に低く、冬期～春期に高い傾向にあることが認められた。図1に平成13年度におけるW-1での1年間の水銀濃度と降雨量合計の推移を示した。ただし、降雨量合計とは、石川市に隣接する金武町における、採水日より70日前から採水日前日までの降雨量合計を示す。W-1では水銀濃度と降雨量合計との相関係数は-0.818であり、負の相関が認められた。よって、W-1では梅雨後等の夏期や秋期には地下水量も増え水銀濃度が希釈され低値になり、また降雨量の少ない秋期～冬期の影響を受け、冬期～春期では地下水量が減り、水銀濃度が高値になることが推察される。しかし、W-2においては相関は認められなかった。なお降雨量合計を採水日より70日前

から採水日前日としたのは、1、2週間及び30日～80日（10日間隔）前から採水日前日までの降雨量合計において、水銀との相関係数が、-0.358～-0.818の範囲であり、70日前において最も強い相関が認められたことによる。

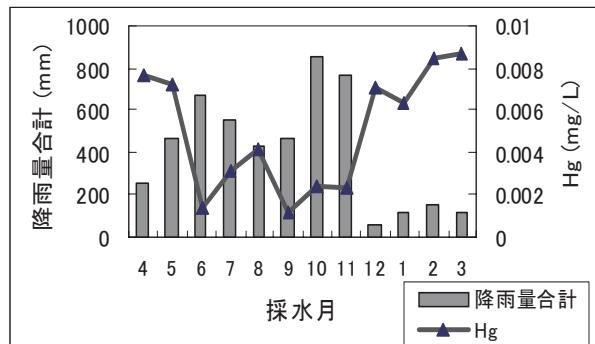


図1. W-1における水銀濃度と降雨量の推移

W-1、W-2及び周辺井戸を含む井戸21地点の水質のトリリニアダイヤグラム解析結果を図2に示す。

解析結果によると、ほとんどの地点で浅層地下水の一般的な水質を表すII型（アルカリ土類炭酸塩型）に属することがわかった。嘉手苅地区の井戸はほとんどが地表から約10mの深さであり、琉球石灰岩層を帶水層としている。W-1、W-2の水銀検出井戸だけが他の水銀不検出井戸と違う水質を示すわけではないことがわかった。

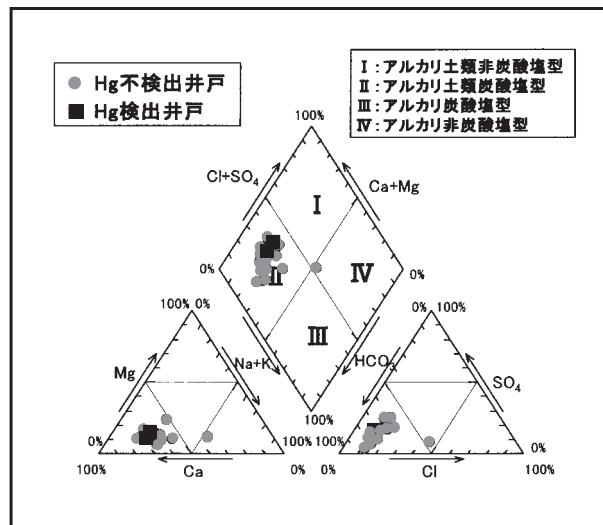


図2. 井戸21地点のトリリニアダイヤグラム解析

2. 土壤調査結果

(1) 表層土壤調査結果

汚染井戸周辺の表層土壤22地点の総水銀を測定したところ、溶出試験では全地点で不検出であり、含有試験では0.05～0.55mg/kgの範囲で検出された。一般に、水銀は土壤中に0.04～0.8mg/kg存在すると報告¹⁾されてお

り、含有試験結果もこの範囲に該当することから、特に人為的に汚染されたということはないと考えられる。また濃度コンター図を作成できるような特徴的な濃度分布傾向は認められなかった。

(2) ポーリング調査結果

W-1, W-2近傍でそれぞれ1本ずつポーリングを行い、そのコア（W-1近傍のコアをC-1, W-2近傍のコアをC-2とする。）の1m深さごとの総水銀を測定したところ、溶出試験は全ての試料で不検出であった。含有試験はC-1で0.03～0.44mg/kg, C-2で0.07～0.71mg/kgであり、表層土壤調査結果と同様に人為的な汚染の可能性は低いと考えられた。C-1, C-2ともに地質的にはほぼ同じで粘土、シルト等粒子の細かい地質からなり、地質や深度に対する特徴的な水銀濃度の傾向は認められなかった。

3. 底質調査結果

(1) 含有試験及び様々な溶媒での溶出試験結果

W-1, W-2及び周辺井戸4地点（W-3～W-6）の底質を用いた含有試験及び様々な溶媒での溶出試験結果を表2に示す。

表2. 底質の含有試験、溶出試験結果

	W-1	W-2	W-3	W-4	W-5	W-6
含有試験	1.04	3.31	11.4	0.12	0.12	0.06
溶出試験	<0.0001	<0.0001	<0.0001	<0.0001	<0.0001	<0.0001
弱酸性水での溶出試験	<0.0001	<0.0001	<0.0001	<0.0001	<0.0001	<0.0001
イオン含有水での溶出試験	<0.0001	<0.0001	<0.0001	<0.0001	<0.0001	<0.0001
酢酸アンモニウム溶液での溶出試験	<0.0001	<0.0001	0.0001	<0.0001	<0.0001	<0.0001

含有試験の単位: mg/kg 溶出試験の単位: mg/L

含有試験の結果、W-3で最高濃度値を示し、続いてW-2, W-1の順に高濃度値を示した。しかし、W-3の井戸水から水銀が検出されたことはなく、底質に水銀が高濃度で含有されるというだけで、必ずしも井戸水の汚染が直ちに起こるわけではないことが示された。

平成3年8月23日付環境庁告示第46号別表の方法による通常の溶出試験の結果、6地点全てにおいて不検出であった。

弱酸性水で溶出試験を行った結果、全ての地点で不検出であった。従って酸性雨等の影響では底質中水銀は溶出されにくいと考えられた。

イオン含有水で溶出試験を行った結果、全ての地点で不検出であった。従って地下水に含まれるイオン成分の

影響では底質中水銀は溶出されにくいと考えられた。

1M酢酸アンモニウム溶液で溶出試験を行った結果、W-3で0.0001mg/L検出され、その他は不検出であった。W-3で検出されたのはW-3の底質の水銀含有量がかなり多く、用いた溶媒も高濃度のため、土粒子に吸着していた微量の水銀がイオン交換により溶出したものだとおもわれる。しかしながら、W-1, W-2で不検出であることやW-3の井戸水から水銀が検出されたことはないということを考慮すると、底質中の土粒子に吸着した水銀がイオン交換により溶出され、地下水汚染をおこしたという可能性は低いと考えられた。また底質中の水銀のほとんどは吸着態としては存在しないと考えられ、土壤中水銀の大部分は有機物とのキレート結合態として存在するとの報告¹⁾に合致する。

以上のことから、底質中の水銀は安定で溶出しにくいことが考えられる。

(2) 粒度分布試験、乾燥減量・強熱減量試験結果

底質粒度分布試験結果を表3に示す。表3によると、6地点すべてにおいてシルトの割合が高く、同じような分布をもつことが確認された。また、底質の水銀含有量とは相関がないことがわかった。

表3. 底質の粒度分布

粒子径(μm)	区分	W-1(%)	W-2(%)	W-3(%)	W-4(%)	W-5(%)	W-6(%)
200～1000	中砂	0.2	0.8	0.4	0.2	0.1	0.3
20～200	細砂	12.3	22.9	19.2	15.2	13.6	17.1
2～20	シルト	61.4	59.9	63.3	64.3	66.8	64.4
<2	粘土	26.1	16.3	17.2	20.2	19.5	18.3
	計	100	100	100	100	100	100

乾燥減量・強熱減量試験結果を表4に示す。W-1において比較的低値であり、保存状態が悪かった可能性が考えられる。底質の水銀含有量とは相関がないことがわかった。

表4. 底質の乾燥減量・強熱減量

	W-1	W-2	W-3	W-4	W-5	W-6
乾燥減量(%)	14.6	33.0	48.0	59.0	36.7	30.8
強熱減量(%)	4.7	6.6	6.8	9.0	6.3	4.8

4. 水銀蒸気検出調査（金線調査）結果

(1) ピット法による金線調査結果

当地区での83地点における水銀蒸気捕集量は0.41～9.68ng/5daysであり、対照地域の5地点では、0.05～1.90ng/5daysであった。各地点における水銀蒸気捕集量をもとに作成した水銀蒸気高濃度ゾーンを図3に示す。ただし、図3では2ng以上の地点を示しており、ゾーン作成は低値の地点も含めて考慮している。

水銀蒸気高濃度ゾーンは南側の断層沿い及び集落の中心部で断層と同じ方向に帯状に分布し、また断層とやや垂直方向に1つ帯状に分布している。W-1, W-2も高濃度ゾーンに位置することがわかった。よってW-1, W-2付近の地下に断層が存在し、それに沿って上昇した水銀蒸気がW-1, W-2の井戸水に溶解していると考えられる。

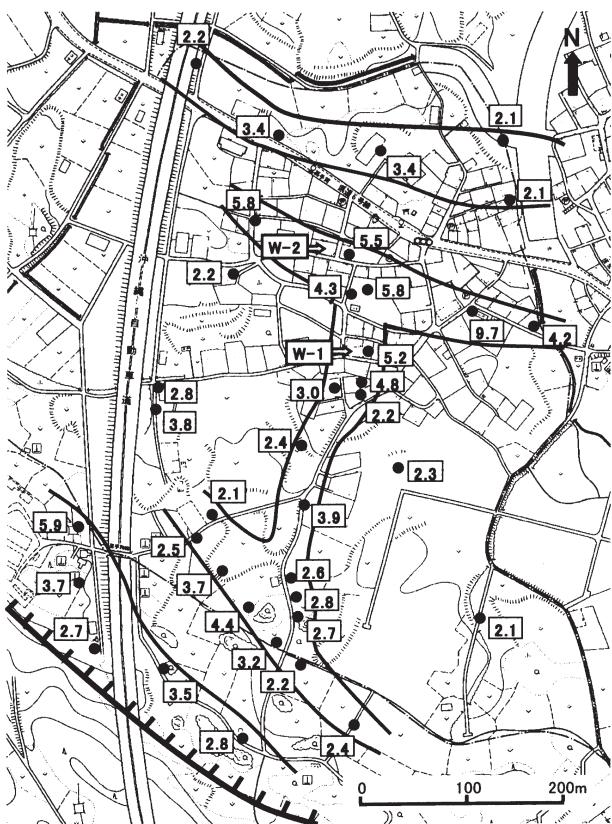


図3. ピット法による水銀蒸気高濃度ゾーン
(実線で示した部分)

(2) ポーリング法による金線調査結果

26地点における水銀蒸気捕集量をもとに作成した水銀蒸気高濃度ゾーンを図4に示す。

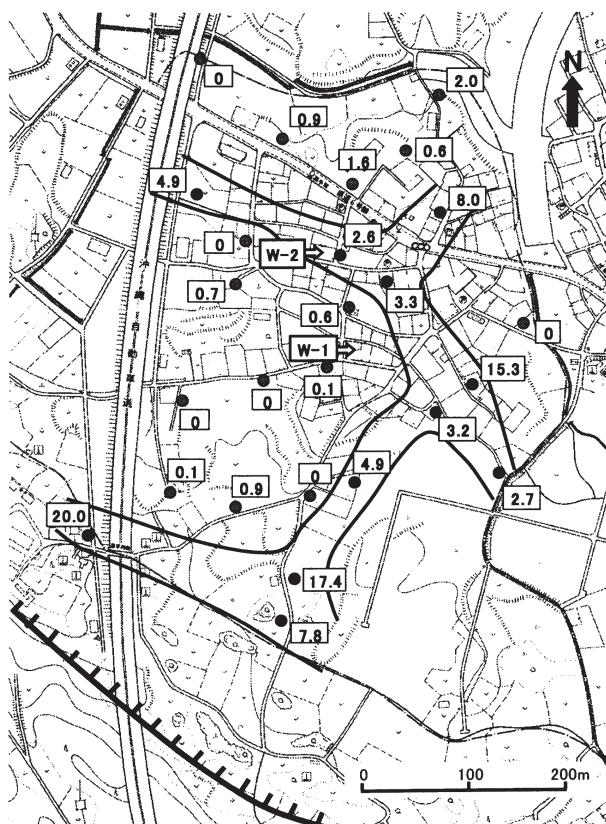


図4. ポーリング法による水銀蒸気高濃度ゾーン
(実線で示した部分)

26地点における水銀蒸気捕集量は0～20.0ng/5daysであり、ピット法よりも高い値が検出された。従って、地下深部から上昇してきた水銀蒸気をより高感度に捕らえたものだと考えられる。

水銀蒸気高濃度ゾーンはピット法と多少のずれはあるものの、断層にやや平行及び垂直方向に同様な帯状分布を示し、また両者に共通する低濃度のゾーンもみられた。高濃度ゾーンのずれは、断層の傾斜によるずれや、粘土層の不均一性に規制された水銀蒸気上昇によるずれが考えられる。

(3) 土壤からの水銀蒸気検出室内試験結果

ポーリング法による金線調査で高値を示した3地点のコア (sample A～C)について、室内実験として土壤から放出される水銀蒸気捕集量及び土壤中の水銀含有量を試験した結果を表5に示す。

表5. コア水銀蒸気捕集量及び水銀含有量室内試験

	地表からの深度(cm)	水銀蒸気量(ng/100g,5days)	水銀含有量(mg/kg)
Sample A	10	2.7	0.01
	50	1.4	0.05
	100	1.8	0.01
	150	0.7	<0.01
	200	2.5	0.02
	250	3.8	0.04
	290	6.5	0.48
Sample B	10	2.5	<0.01
	30	0.9	0.01
	50	2.3	0.01
	100	4.7	<0.01
	150	9.4	0.01
	200	5.2	0.04
	240	2.3	0.10
	280	3.2	0.01
Sample C	10	0.9	0.03
	30	1.7	0.01
	80	0.9	0.06
	120	6.6	0.02
	170	4.6	0.02
	250	9.8	0.03
	380	2.9	0.04

水銀蒸気捕集量は0.7~9.8ng/100g,5days, 土壤中水銀含有量は<0.01~0.48mg/kgであり、両者の相関はみられなかった。また深度による濃度傾向もみられなかつた。従って、図3や図4で示された水銀蒸気高濃度ゾーン内の土壤水銀含有量は必ずしも高値になるとは言えず、表層土壤調査結果からも水銀含有量高濃度ゾーンといった帶状分布は示されなかつた。このことは、温泉や断層分布の調査で土壤中水銀より水銀蒸気の方がより的確に評価できるということからも推察できる。W-1, W-2井戸水の汚染が水銀蒸気によるものとすれば、非汚染井戸であるW-3の底質中水銀含有量はW-1, W-2よりも高いが、W-3の井戸水から水銀が検出されないのは、底質中の水銀含有量と水銀蒸気捕集量とは相関がないためだと説明できる。ちなみに室内試験での水銀蒸気捕集量を換算するとおよそ 10^{-6} ~ 10^{-4} mg/kgのオーダーであり、土壤に含有される水銀のおよそ1/1,000~1/10,000が5日間で蒸気となって捕集されたということが見積もられた。

5. 井戸水の水銀汚染メカニズム

当地区で環境基準を超えて水銀が検出されたのはW-1, W-2のみである。当地区の地下水は大局的には南側から北側へかけて、また中央部から東西方向へ流れることが想定されており、また、非汚染井戸と汚染井戸も近接し

ていることから汚染がさらに広がっていると考えられそうであるが、実際の汚染は局所的である。しかし、この事実は人為的汚染の可能性をも否定する。つまり、ある地点に水銀廃棄物が埋設され、W-1, W-2の井戸水を汚染しているのであれば、汚染は局所的ではなく、より広範囲に広がると考えられるからである。

W-1, W-2は水銀蒸気検出調査により、図3に示したように水銀蒸気高濃度ゾーンに位置することから、以下のようなメカニズムが推察される。

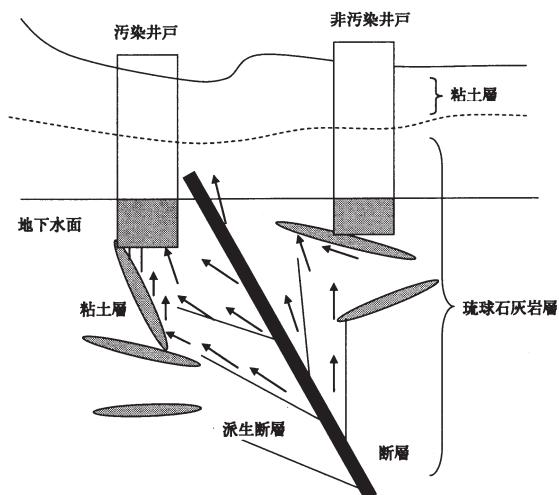


図5. 井戸水の水銀汚染メカニズム

図5に示すとおり、汚染井戸付近の地下に断層が存在し、断層及びその派生断層に沿って水銀蒸気が上昇する。帯水層である琉球石灰岩層中には粘土層が不均一に存在し、琉球石灰岩層と粘土層の境界面で水銀蒸気が高濃度に集積され、それが井戸水に溶解する。汚染が局所的なのは、近接する非汚染井戸は、派生断層から上昇する水銀蒸気の影響を直接受けない位置にあるか、影響を受けても不均質な粘土層により、井戸水への溶解が微量もしろくは阻害されていると考えられる。また汚染された井戸水中の水銀は地下水流によって拡散される際、希釈もしろくは不均質粘土に結びつくことにより、汚染は広がらないものだと考えられる。

V まとめ

石川市嘉手苅地区の井戸2地点から、総水銀が地下水環境基準を超えて検出された。当地区には廃棄物処分場や水銀を扱う事業所はなく、汚染井戸内への水銀系廃棄物の投棄や汚染井戸付近での水銀系農薬の使用事例も確認されなかつた。

井戸周辺の土壤からは高濃度の水銀は検出されず、汚

汚染井戸の底質からはやや高い値が検出されたが、底質中の水銀は安定で溶出しにくいということが推察された。

汚染井戸 1 地点においては水銀といくつかのイオン成分等で相関が認められたが、残りの 1 地点では相関は認められないことから両者に共通するわけではなく、汚染井戸の水質だけが周辺の非汚染井戸と違う水質を示すわけではないことがわかった。またアルキル水銀はこれまで一度も検出されたことがなく、無機態の水銀による汚染であることがわかった。

水銀蒸気検出調査から、ピット法及びボーリング法において、両者に多少のずれはあるものの地区南部の断層とほぼ平行及び垂直方向に帯状に水銀蒸気高濃度ゾーンが分布し、汚染井戸はそのゾーン内または近傍に位置することが認められた。またピット法よりボーリング法で高い値が検出された。

全ての調査結果を検討した結果、井戸 2 地点の水銀汚染は人為的汚染である可能性は非常に少なく、地下深部から断層に沿って上昇してきた水銀蒸気が井戸水中に溶解したことによる、自然由来の汚染であると推定された。

VI 参考文献

- 1) 土壌環境分析法：土壌環境分析法編集委員会編、博友社
- 2) 沖縄県 (2001) : 平成12年度石川市嘉手苅地区地下水汚染原因究明等調査報告書
- 3) 沖縄県 (2003) : 石川市嘉手苅地区地下水追跡業務報告書
- 4) 沖縄県 (2004) : 平成15年度石川市嘉手苅地区地下水汚染原因究明調査報告書
- 5) 沖縄県 (2004) : 平成15年度石川市嘉手苅地区ボーリングによる水銀蒸気測定業務報告書
- 6) 中牟田啓子・松原英隆・武田昭 (1996) : 地下水中の水銀に関する調査、環境化学, 6, 49-58
- 7) 中牟田啓子・木下誠・松原英隆他 (1998) : 金属水銀による地下水汚染機構の解明、水環境学会誌, 21, 875-878
- 8) 野田徹郎 (1982) : 金線による気体水銀の補足とその地熱探査への応用、日本地熱学会誌, 3, 149-163
- 9) 古賀昭人 (1985) : 水銀測定を利用した地熱源の探査、化学と工業, 38, 358-360
- 10) 島田～堯・久保田努・松原英隆 (2000) : 花崗岩を帶水層とする地下水中に含まれる水銀の起源とその地質学的意義－福岡県御笠川中流域における例－、九州大学大学院理学研究院研究報告、地球惑星科学, 21, 1, 1-8