

C-3 酸性降下物の陸水・土壤への影響機構に関する研究

(2) 地質・土壤の酸性雨に対する水文・地質学的応答特性に関する研究

研究代表者 地質調査所 田口 雄作

通商産業省 工業技術院地質調査所

環境地質部 水文地質課

田口雄作・安原正也・丸井 敦尚

鉱物資源部鉱床鉱物課

月村勝宏

地質部層序構造課

柳沢幸夫

鹿児島大学教育学部

塙田公彦

平成2-4年度合計予算額 19,884千円

【要旨】酸性雨の地下水に対する影響評価のためには、酸性雨がもたらされる流域の地質・土壤・岩石の水文地質学的特性（浸透能・粒度・水分量等）および化学的・鉱物学的特性の把握が必要である。本研究では、わが国の土壤として、きわめて一般的な火山灰起源のシラスと関東ロームに焦点を絞り、現地で得られた試料を基に、人工酸性水との反応実験を実施し、酸性雨に対する影響の出易さを評価した。とくに、関東ロームにおいては、関東地方全域にわたるバッファー能力を地図化することを試みた。

【キーワード】 土壌、浸透、バッファー能力、シラス、関東ローム

1 序

酸性雨に関する問題は、まさに地球環境規模で広がりつつあり、現在、酸性雨による被害が現れていない地域においても、今後その被害が及ぶことは必至であると言っても過言ではない。ひとたび酸性雨に犯され始めると、建造物はもちろん生態系にまでその被害はおよび、自覚症状の現れたときには、取り返しのつかない状況に陥っていることが多いことは周知の事実である。

日本を始めとする酸性雨の被害の顕著でない国々においては、酸性雨がもたらされたときに、いかなる部分がまず被害を受けるかを確認し、対策を講ずるための優先順位を設ける必要がある。そのために、入力である酸性雨がもたらされることを前提に、浸透・吸着・流出といった汚染物質の移動系を把握しなくてはならず、これには土質・地形を考慮した地下水流动のシステムを基礎的に解明することが緊急の課題である。

地表近傍の汚染は、浸透能と土壤の吸着性によって決定されるものであり、いずれも地層堆積物および基岩（風化物の源）の土質によってきまる。また、土層深部まで含めた地域的な汚染の拡大、汚染ゾーンの集中に関する問題は地形・土質によって決まる。

本研究においては、硬い岩石より直に酸性雨の影響が出ると見られる火山灰土壤に焦点を絞り、水文地質学的な検討を加え、酸性雨の広域的な影響評価を行うことにした。酸性雨が地下に浸透し、帶水層に混入、地下水として流動を開始すると、その影響はより広域的なものとなる。酸性雨の集中が起こりやすい地域を的確に把握し、地図化して明示すれば、今後の地下水資源に対する酸性雨対策に寄与できるものと考える。

2 研究目的

酸性雨がもたらされた時、もっとも早く反応するのは、当然硬い岩石よりも、地表に広く分布する柔らかい土壌である。酸性雨の地下水への影響を考えるとき、柔らかい土壌の存在を無視することができない。なぜならば、酸性雨が地下に浸透する際、表層に堆積するそれらの土壌を、最初に透過しなければならないからである。

本研究では、柔らかい土壌の代表として、わが国の代表的な火山灰起源の土壌である2種類を対象試料として扱うことにする。一つは、南九州に分布するシラスと桜島の風化溶岩で、他の方は関東地方に広く分布する関東ロームである。各々の試料と酸性水溶液との反応実験を行い、土壌の鉱物組成と水溶液の滞留時間が、酸性水溶液のpH変化や陽イオン濃度変化に、どのような影響を与えるかについて検討を行い、それらが酸性水に対してどのような特性を有するのか明らかにすることを目的とする。

3 シラスの酸性水に対する応答特性

(1) 試料

実験に用いた土壌は、南九州に分布するシラス3試料と桜島の風化溶岩1試料である。シラスは鹿児島県湯之野温泉の地表下5mの位置、宮崎県えびの市岡元の地表下1mおよび10mの位置で試料を採取した。桜島の風化溶岩は表層から採取した（試料採取地点は図1に示す）。

(2) 土壌の分析

土壌のpH測定は、抽出溶液として蒸留水（pH 5.70）、または1N塩化カリウム溶液（pH 7.02）を使用した。蒸留水によるpHは土壌水の水素イオン濃度を表し、塩化カリウム溶液によるpHは、土壌水中の水素イオンと土粒子表面に吸着している水素イオンの合計を表している。

土壌のpH値は、100mlビーカーに試料土30gと蒸留水50ml、または塩化カリウム溶液50mlを入れ、ポリスマンで土を溶き解し完全な懸濁液にし、3時間放置した後、ガラス棒で軽くかき混ぜ、ガラス電極式pH計で水溶液を測定して得た。

土壌の有機物含有量測定は、有機物が50%以下の土壌に適する重クロム酸法を用いた。

土壌の鉱物組成はX線粉末回折法

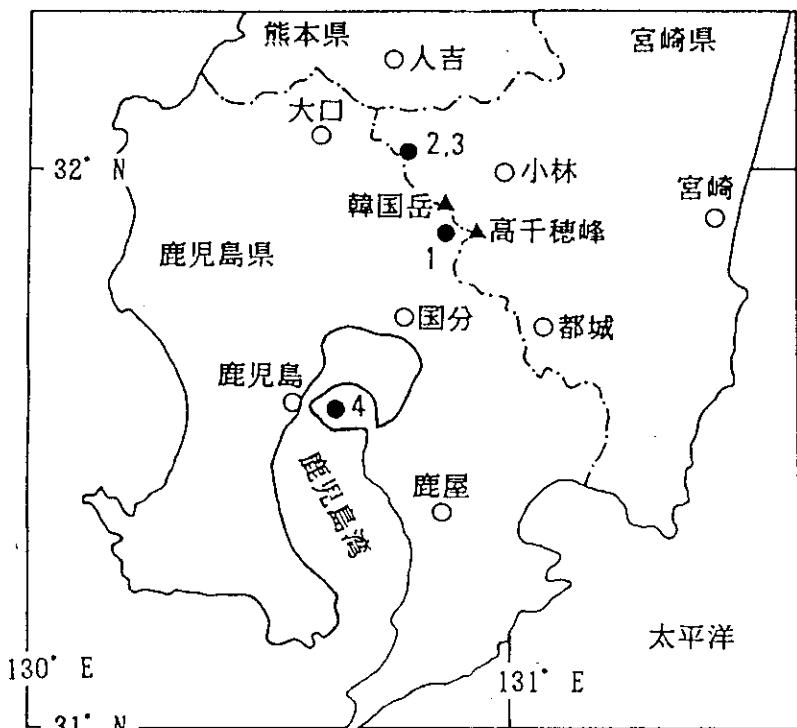


図1 試料採取地点（黒丸）

1：湯之野温泉，2 & 3：岡元，4：桜島

によって決定した。土壤を110°Cで24時間乾燥し、乳鉢でよく粉碎した後、有機物を除くため、標準網ふるい150μmであるい分けて、通過した土をピーカーに取り、30%過酸化水素水を追加する。発泡のおさまった後、上澄液は棄却し、残ったものを水で洗い、濾過したものを試料土とした。主な分析対象の鉱物は石英、長石、雲母、カオリナイトである。

(3) 土壌と人工酸性水の反応実験

土壌との反応実験に使われた酸性水は、硫酸塩と硝酸塩を7:3の比で混ぜて作ったpH2の水溶液である。土壌と人工酸性水の反応実験は内径75mmで、高さ500mmの円柱型のカラムの上部から人工酸性水を供給して行った。

土壌カラムから排出する水溶液は採水し、pHを測定した。また、ICPを用いてCa, Mg, Na, K, Si, Fe, Alを測定した。

(4) 結果

① 土壌の特性

土壌の水分含量は湯之野、岡元下部、岡元上部のシラスがそれぞれ32.9%、17.7%、32.5%であり、桜島の風化溶岩が最も低い2.4%である。pH(H₂O)は、採取深度が深い湯之野および岡元下部が、それぞれ7.23および7.12と高い値を示すのに対して、表層土壌である岡元上部および桜島が、それぞれ4.80、5.15と低い値を示す。

pH(KCl)の値も、湯之野が5.69、岡元下部が4.98であったのに対して、岡元上部が3.90、桜島が4.62と低い値であった。土壌の鉱物組成は、すべての土壌が非結晶であるガラスを含有し、湯之野、岡元上部はカオリナイトを含んでいる。

有機物含量はシラスが0.81%（湯之野）、1.20%（岡元下部）、0.79%（岡元上部）と低く、桜島風化溶岩が2.69%と若干高い。

② 土壌と酸性水溶液の浸透反応実験

土壌4試料の浸透反応実験はいずれも34~35日間で終了した。液の総排出量は、土壌の透水係数により異なり、14.4l（湯之野）、4.2l（岡元下部）、7.3l（岡元上部）、12.2l（桜島）であった。

試料を浸透した流出水の採取回数は、湯之野18回、岡元下部8回、岡元上部12回、桜島16回である。本実験に用いた酸性水溶液はpH2であるから、1l中にH⁺イオンを10⁻²当量、すなわち10ミリ当量(meq)含む。土壌中を通過するとき、このH⁺イオンは土壌中の陽イオンと交換したり¹⁾、陰イオンと結合したりして^{2), 3), 4)}濃度が減少する。減少したH⁺イオン量と土壌から抽出された総陽イオン量を比較すると図2のようになり、H⁺イオンの減少の50~60%が土壌との陽イオン交換反応によるものであることがわかる。

図2にはpHの変化を排出水量の関数として、合わせて示した。土壌のバッファー能力は試料ごとに大きく異なる。pH5以上のバッファー機能は、湯之野が9l、岡元上部・下部が4lまであるが、桜島はpH5以上のバッファー機能を持っていない。

反応前後における鉱物組成を比較したが、量の変化は検知できなかった。これは本実験で鉱物の風化や変質がほとんど進んでいないことを示している。

(5) 考察

本反応実験の期間は35日間と短く、室温下でおこなったため、土壌水との反応、鉱物表面でのイオン交換反応、コロイド粒子との反応など、速い反応だけが進行したと考えられる。鉱物の風

化や変質も、pHバッファー機構として機能するが^{5), 6)}、これらの反応は遅く、ほとんど進行していないので、本実験結果は土壤のもっているバッファー機能の一部しか示していないことになる。数10年から数100年では室温下でも鉱物と風化や変質が進む。これらの反応を含めたバッファー機能を評価するためには、反応速度を上げるために高温下での反応実験が必要である。

今回のH⁺イオン抽出量は、年間降水量2000mmの地域で、pH4の酸性雨が20~75年間降った量に相当する。pH5以上のバッファー機能はpH2の酸性雨で湯之野が9l、岡元上部・下部が4lまであるが、これはそれぞれ45年間および20年間の降水(pH4 2000mm/年)に相当する。今回用いたコアの長さは50cmであるから、土壤50cmの層だけでもこれだけの期間pH5以上に保つ能力がある。一方、桜島の風化溶岩はpH5以上に保つバッファー能力がない。

土壤のpHバッファー能力と土壤のpHとは若干の相関がある。もっともバッファー能力の高い湯之野のpH(H₂O)およびpH(KCl)が7.23、5.69ともっとも高いが、他の試料についてはほとんど相関がない。今回の4試料については、水分量・有機物含有量・鉱物組成も、土壤のpHバッファー能力とはほとんど相関がない。

4 関東ロームの酸性水に対する応答特性

(1) 試料採取地点・方法と試料の特徴

関東地方に広く分布する関東ロームは、富士火山や箱根火山等から供給された火山灰を起源としている。関東ロームは堆積した時代により、古いものから多摩ローム、下末吉ローム、武藏野ローム、立川ロームの4種類に分類されている。これら4種類のロームはそれぞれ物理化学的性質が異なると考えられる。また、たとえ同じロームであっても供給源からの距離によって、粒度や透水性等の物理的性質が異なることが予想されるが、ここではロームの種類は問題にせず、表層に堆積しているロームを関東ロームとして一様に取り扱うこととする。すなわち、関東平野表層部の酸性雨に対する反応特性の地域的な差異について検討することにする。

関東ローム試料の採取を、関東地方の全域にわたる以下の18地点で行った。

1. 東京都稻城市, 2. 神奈川県平塚市, 3. 静岡県御殿場市, 4. 千葉県木更津市,
5. 千葉県茂原市, 6. 千葉県野田市, 7. 茨城県常陸太田市, 8. 茨城県千代田町,

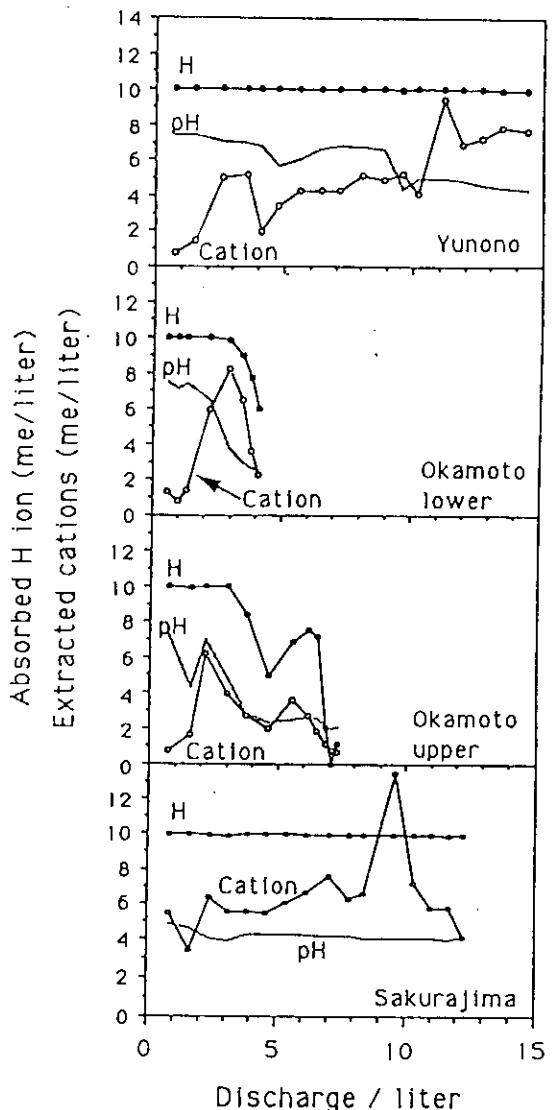


図2 排出水量とpH、水素イオン減少、抽出総陽イオン量との関係

9. 千葉県佐倉市, 10. 千葉県銚子市, 11. 神奈川県横須賀市, 12. 埼玉県狭山市,
13. 埼玉県寄居町, 14. 埼玉県栗橋町, 15. 栃木県壬生町, 16. 群馬県桐生市,
17. 群馬県渋川市, 18. 千葉県千葉市

試料の採取は、自然状態下で残されている台地（沖積面との比高は3~20m）上の森林内において、表面の枯れ葉層ならびに腐植層を除去した後に、最初に現われる”新鮮な”関東ロームを対象に行った。採取深度は、いずれの場合も、地表面下20~50cm程度であった。ただし、地点1では適当な森林採取地点が見つからなかったため、芝造成地の端の露頭において最浅部のロームを採取した。地点15と16でも露頭において新鮮な地層面を堀り出した後、露頭最浅部のロームを採取した。また、千葉市稻毛（地点18）では、酸性雨に対する関東ロームのvulnerabilityの深さによる違いを明らかにするために、オールコアボーリングによって深度1m、3mおよび6mから試料を採取した。各地点において採取された約2,000gの試料は、ビニール袋に密封して実験室に持ち帰った。

（2）粒度分析と土壤のpH測定結果

各試料の中央粒径（d50）を島津製作所製粒度分析装置（CP-3L型）を用いて測定した。その結果、6μm（地点5）から25.5μm（地点2）まで大きさに差異があることが判明した。中央粒径は、富士・箱根火山に近い地域（地点1~3）が大きい値を示すほか、関東平野の西縁地域（地点12, 13, 17）においても、20μm以上と大きい傾向が認められる。このことは、関東ロームの供給源である富士・箱根火山に近い地域ほど、中央粒径が相対的に大きいことを意味し、一般的な常識と整合する。

つぎに、一定量の試料を乾燥器を用いて110°C下で24時間乾燥させ、乾燥重量を測定して求めた含水比に基づき、乾土30g相当の土壤を各地点の試料から取り、土壤のpH測定を行った。測定は200mlビーカーに試料30gを取り、抽出溶液として蒸留水（H₂O : pH5.70）、または1N塩化カリウム溶液（KCl : pH7.02）50mlを入れて攪拌し、沈殿を待って東亜電波製のガラス電極式pH計を用いて速やかに実施した。pH（H₂O）とpH（KCl）の値は、概ね同じ傾向を有するようである。また、中央粒径の大きい富士・箱根火山に近い地域（地点1~3）は、pH（H₂O）とpH（KCl）の値ともに大きい。

（3）酸性水反応実験

①バッチ試験1

シラスの反応実験と同様に、硫酸塩と硝酸塩を7:3の比で混合したpH2の酸性水を用いて、以下のようにバッチ試験を行った。一定量の試料を乾燥器を用いて110°C下で24時間乾燥させ、乾燥重量を測定して含水比を求める。得られた含水比に基づき、乾土100g相当の土壤を各試料から取りだし、直径8.0cm、高さ11.0cmのポリエチレン容器に入れ、酸性水250mlと混ぜる。試水は、1日1回十分攪拌し、上澄み液のpHを東亜電波製（モデルHM-7E）のガラス電極式pH計を用いて測定する。測定終了後、容器に蓋をし、室温23~25°C下で外気と完全に遮断して、次の測定時まで保存する。測定は30日間継続して行った。結果を図2に示す。

各地点とも約5日目までpH値は上昇し、その後はほぼ一定となる傾向があるが、各地点のロームは最終pH値から大きく2つのグループに分類できる。すなわち、関東地方の南西部に位置するバッファー能力の相対的に高いグループ（地点1~3, 9, 10）と、他の低いグループである。また、各グループ内でも、南西から北東に向かうに従って、バッファー能力が低下する傾向

にあることが注目される。

各地点・深度の試料とも約10日目まで、pH値は大きく変動しながら上昇するが、その後はほぼ一定となり、最終的にはpH5.5～6.5の値をとることが分かった。さらに、地点12, 13, 15, 16, 17においては、相対的にバッファー能力(pH最終値)が小さい傾向が見られる。また、地点18の測定結果では、深度3mの試料のバッファー能力が多少高い傾向があるものの、バッファー能力の深度による顕著な相違は認められなかった。

②バッジ試験2

含水比に基づき乾土15g相当の土壤試料を取りだし、前述のポリエチレン容器に入れ、試験1と同じpH2の酸性水300mlと混ぜ合わせ、試験1と同様な手順によってpHを測定した。本試験は試料と酸性水の重量比からみて、後述の通水試験に相当する。

各地点・深度の試料とも、測定開始約10日目以後はほぼ一定のpH値となる。関東ロームはpHの最終値から2つのグループに分けられる。すなわち、バッファー能力が高いと考えられるグループ（地点12, 13および地点18の深度1mと3m）と、その他のバッファー能力が低いグループである。地点15, 16, 17では、本試験の結果でもバッファー能力が相対的に低いことなど、試験1と整合的な点も見られる一方、地点12および13のバッファー能力が本試験では高く評価されるなど、試験1のそれと異なる結果も得られた。地点18の測定結果では、深度1mと3mの浅い部分の試料のバッファー能力が高い。反対に、深度6mの試料のバッファー能力は著しく小さいことが明らかとなった。

③通水試験

通水実験は、直径8.5cm、長さ21cmのポリエチレン製のカラムを用いて実施した。カラムの底には直径1cm程度の流出口が設けてある。流出口からの試料の流亡を防ぐため濾紙を敷いた後、各地点の試料（乾土300g相当）を詰め、計11本の通水実験カラムをセットした。試料の充填に当たっては、各カラムともほぼ等しい密度で試料が詰まるように注意を払った。カラムには、毎日午前8～10時にその上端から、バッジ試験と同じpH2の酸性水200mlを注入した。下端からの排水はビーカーで採取した。酸性水注入の3～5時間後に排水が終了したことを確認した後、ガラス電極式pH計を用いてpH測定を行った。酸性水の注入・pH測定は、室温23～25℃下で1か月間毎日続けられた。各地点のロームは2つのグループに分けられる。すなわち、バッファー能力の高い

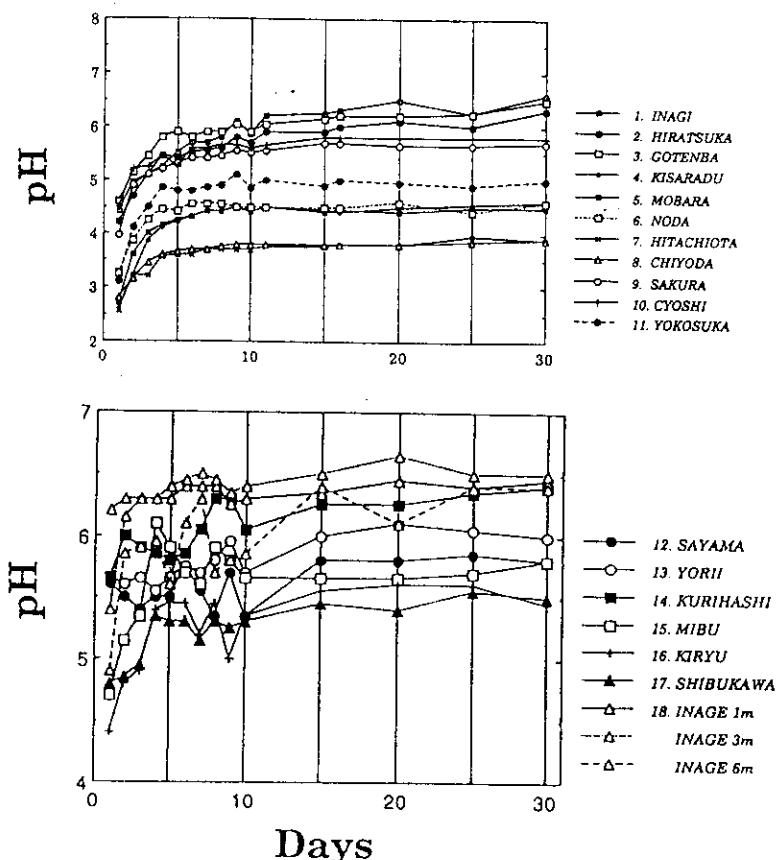


図3 バッジ試験1におけるpH値の経時変化

と考えられるグループ（地点1～3, 9, 10）と、その他の低いグループである。これはバッチ試験と全く同じ結果であった。前者は高いpH安定値を呈する。とりわけ、関東地方の南西部の富士・箱根火山に近い地点1～3の3地点の試料は、実験開始14日目までpH6.5～7.0と一定の値をとることから、とくにバッファー能力が高いと推定される。ただし、その後減少傾向を示すが、pHの減少速度は各地点で異なる。また、後者は15日以降に低いpHの安定値を呈し、その後きわめてゆっくりとした速度で減少してゆく。この変化パターンとpH安定値が、関東ロームの酸性降水に対する脆さの程度（vulnerability）を支配するものと考えられる。

④水溶液相の分析

30日間のバッチ試験終了後および通水試験開始から1日後、2日後、3日後、5日後、10日後、20日後、30日後に得られた試水の陽イオンの測定は、島津製作所製原子吸光分光光度計A-650によりNa, K, Ca, Mgを、セイコー電子工業（株）製誘導結合プラズマ発光分光分析装置SPS-7000を用いてSi, Fe, Alを行った。さらに、同時に導電率も測定した。

その結果、一般的に言って、一部の項目を除いて、バッチ試験2の試水の方が、試験1のそれよりも溶存成分が増加し、そのため導電率も増加する傾向がある。これはバッチ試験2の方が土壤試料が少ない上、酸性水の量が多かったため、同じ時間内では土壤と酸性水の接触がより十分になされ、土壤中に含まれていた成分が溶出したことを意味している。この傾向は、Ca, Mg, Fe, Al, Siに顕著である。地域的には関東平野北西部の試料に、ことに顕著である。また、千葉県千葉市の試料では、深さが増すほどこの傾向が強く観察された。

通水実験に使用した酸性水が浸透することによって、土壤との間にイオン交換が生じるとすれば、排出水の陽イオン濃度は時間の経過とともに増加するはずである。しかし、採取した土壤の性質によって必ずしもそうなるとは限らない。

地点1と2はバッチ試験および通水試験の両者ともFeとAlの溶出がみられなかった。また、地点3もほとんどFeとAlの溶出は痕跡程度であった。これに対し、そのほかの地点ではFeとAlの溶出がみられたが、とくに地点5, 7, 8での溶出は顕著であり、地点8の通水試験終了時のAlは85.5mg/lを記録した。

⑤鉱物組成

鉱物組成は、石英 SiO_2 、斜長石 $(\text{Na}, \text{Ca})(\text{Si}, \text{Al})\text{AlSi}_2\text{O}_8$ 、ハロイサイト $\text{Al}_4\text{Si}_4\text{O}_{10}(\text{OH})_8$ などの結晶質の鉱物をX線回折法で分析し、示差熱天秤法でハロイサイトおよび非晶質であるアロフェン $1-2\text{SiO}_2 \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ の分析を行った。試料は土壤水の影響を取り除くために70°Cで乾燥させた後、粉末化した。

X線回折には、回転対陰極型X線粉末回折装置（リガクRAD-rA）を使用し、X線源にはCuK α 線（40kV, 100mA）を用いた。測定領域は $2\theta = 2-40$ 度である。試料は、有機物を取り除くために30%過酸化水素水を試料に加えホットプレート上で加熱し、そのまま乾燥させた。測定の結果、石英、斜長石、ハロイサイトが検出された。それぞれの最高回折線ピーク値（100cps）を見ると、通水実験およびバッチ実験の反応前後で、さしたる変化が見られず、鉱物組成の変化はほとんどなかったことが分かる。

示差熱天秤法では、実験前の試料につきアロフェンとハロイサイトの分析を行った。試料は土壤水の影響を取り除くために70°Cで乾燥させた。測定装置はマックサイエンス社製熱分析システムTAPS1000を用いた。ハロイサイトは470°C付近の吸熱ピークに対応して減量するが、アロフェ

ンは80°C付近から800°C付近まで、連続して滑らかに減量する。温度領域300-380°C、380-540°C、540-630°Cでの減量の割合をそれぞれw1、w2、w3%とすると、w1およびw3はアロフェンの減量であり、w2はアロフェンとハロイサイトの両者の減量をえたものである。w2のうちアロフェンの減量を $1.15w_1 + 0.85w_3$ で近似し、ハロイサイトの減量を $w_2 - (1.15w_1 + 0.85w_3)$ として計算した。 $1.15w_1 + 0.85w_3$ はアロフェンの量に比例し、 $w_2 - (1.15w_1 + 0.85w_3)$ はハロイサイト量に比例する。

5 まとめ

- シラスの酸性水に対する反応実験の結果、以下のことが判明した。
- ①実験期間が35日間と短かかったため、土壤水との反応、鉱物表面でのイオン交換反応、コロイド粒子との反応などの速い反応だけが進行し、鉱物の風化、変質などの遅い反応はほとんど進行していなかった。
 - ②土壤のpHバッファー機能の50-60%が、陽イオン交換反応であった。
 - ③年間降水量2000mmの地域でpH 4の酸性雨が降り続いたとき、厚さ50cmの土壤が地下水をpH 5以上に保てる期間は、湯之野（シラス）で45年間、岡元上部・下部（シラス）で20年間である。これは速い反応だけを計算に入れた値であり、遅い反応も含めれば期間はさらに長くなる。一方、桜島（火山灰）はpH 5以上に保つバッファー機能はなかった。

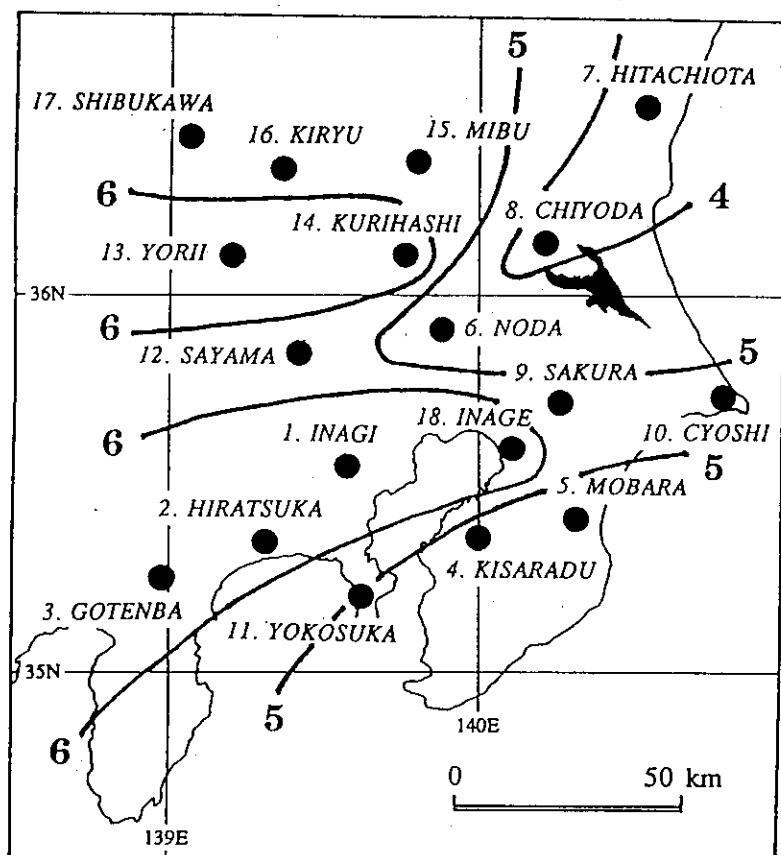


図4 関東ロームの酸性雨に対するバッファー能力
(pH最終値) 分布図

また、関東平野全域の18地点において、関東ロームのサンプリングを実施し、採取した試料を使用して、酸性水によるバッヂ試験および通水試験を行った。各地点の試料のバッヂ試験開始30日後のpH最終値を図4に示す。図4は関東平野におけるpH最終値の地域分布を表しており、pH値が高いほどその地点の表層土壤（地表面下20~50cm程度の関東ローム）の酸性雨に対するバッファー能力が大きいことを意味する。なお、地点18では、地表面下1mの試料で得られた値を便宜的に用いた。図4および鉱物組成、水質分析結果から、以下のことが言える。

- ①関東ロームのバッファー能力は一般に関東平野の西部で大きく（pH 6以上）、北東部～東部～南東部で小さい（pH 4～5もしくはそれ以下）。

②地点13, 14および地点1, 2, 3, 18を中心として、pH値が6以上を示すバッファー能力の大きい地域が西（南西）から東（東北東）方向に帯状に伸びる。

関東ロームの供給源は関東平野の西方に位置する火山群である。これらの火山が噴出した火山灰が偏西風によって関東平野にもたらされ、関東ロームが形成されたと考えられている。供給源に近い関東平野の西部でバッファー能力が大きいこと、また、偏西風の風向に沿って、バッファー能力の大きい地域が帯状に伸びていることなど、関東ロームの酸性雨に対するバッファー能力の地域分布（図4）は、供給源との相対的な位置関係と、卓越風向に関係した関東ロームの性状の、地域的な違いから説明できる可能性があることを示していると考えられる。

参考文献

- 1)Chao,T.T., M.E.Harward and S.C.Fang(1963):Cationic Effects on Sulfate Adsorption by Soils. Soil Science Society Proceedings, 27, 35-38.
- 2)Bolan,N.S., D.R.Scotter, J.K.Syers and R.W.Tillman(1986):The Effect of Adsorption on Sulfate Leaching. Soil Sci.Soc.Am.J., 50 ,1419-1424.
- 3)Johnson,D.W. and G.S.Henderson(1979):Surface Adsorption and Sulphur Fractions in a Highly Weathered Soil under a Mixed Deciduous Forest. Soil Science, 128(1), 34-40.
- 4)Nyborg,M., J.Crepin, D.Hocking and J.Baker(1977):Effect of Sulphur Dioxide on Precipitation and on the Sulphur Content and Acidity of Soils in Alberta, Canada. Water, Air and Soil Pollution, 7, 439-448.
- 5)Jacks,G., G.Knutsson, L.Maxe and A.Fykner(1984):Effect of Acid Rain on Soil and Groundwater in Sweden. In "The Unsaturated Zone between Soil Surface and Groundwater". Springer Verlag, 94-114.
- 6)Likens,G.E., R.F.Wright, J.N.Galloway and T.J.Butler(1979): Acid Rain. Scientific American, 241(4), 39-47.

このほか、以下の資料も参照した。

Nordstrom,D.K. and J.L. Munoz(1986):Geochemical Thermodynamics. Black well Scientific publications. 477p.

関東ローム研究グループ(1965):「関東ローム、その起源と性状」. 築地書館, 337p.

土質工学会(1989):「土の試験実習書」. 土質工学会, 267p.

下田 右(1985):「粘土鉱物研究法」. 創造社, 243p.

〔国際共同研究等の状況〕 なし

〔研究発表の状況〕 現在まではないが、学会誌等に発表準備中である。