論 文

東北地方内陸部の森林流域における年間および融雪期の渓流水質

志知 幸治^{*1}・橋本 徹¹・三浦 寛¹・相澤 州平²・池田 重人²

志知幸治・橋本 徹・三浦 寛・相澤州平・池田重人：東北地方内陸部の森林流域における年間および融雪期の渓流水質
日林誌 87：340~350, 2005 東北地方内陸部の森林流域における渓流水質の特徴と、融雪期の水質形成要因を明らかにするため、姫神山試験地の溪流において水質調査を行った。姫神山試験地の渓流水の主要イオン濃度は全国平均と比べて低かった。水質は降水や融雪に伴う流量の変化に伴っておもに変化し、流量と pH、EC および Na^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} 、 HCO_3^- 、 Cl^- 、 SiO_2 濃度との間には負の相関が、流量と NO_3^- と SO_4^{2-} 濃度との間には正の相関がみられた。融雪初期には、積雪から高濃度の溶存成分を含む融雪水が流出するために、 Na^+ 、 Cl^- 、 NO_3^- および SO_4^{2-} 濃度は上昇した。一方、融雪最盛期から後期には、融雪初期に比べて低濃度の融雪水が付加されることによる希釈効果のため、降雨によるピーク流出と同様に Na^+ 、 Cl^- および SiO_2 濃度は低下した。しかし、これらの期間においても、流量の増加に伴う NO_3^- と SO_4^{2-} 濃度の上昇がみられた。その要因として、両イオンともに積雪からの流出と土壌表層からの溶出が考えられたが、両者の濃度変化過程から SO_4^{2-} は前者の、 NO_3^- は後者の寄与がより高いと推定した。
キーワード：渓流水質、積雪、東北地方内陸部、融雪、流量

Shichi, K., Hashimoto, T., Miura, S., Aizawa, S., and Ikeda, S.: Streamwater Quality through Years and Snowmelt Period in a Forested Inland Basin in Tohoku, Northern Japan. J. Jpn. For. Soc. 87: 340~350, 2005
Streamwater quality was measured for two years in a small, forested snow-covered basin in an inland part of Tohoku, Japan. The average major ion concentrations in the Himekami Experimental Basin were lower than nationwide averages. A change in streamwater quality mainly arose from the change in water discharge caused by rain or snowmelt. Positive correlations were found between discharge and pH, electrical conductivity (EC), and the Na^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} , Cl^- , HCO_3^- and SiO_2 concentrations, and negative correlations were found between discharge and the SO_4^{2-} and NO_3^- concentrations. In the early stage of snowmelt, we observed a clear effect of snow coverage on the water quality, and the Na^+ , Cl^- , SO_4^{2-} , and NO_3^- concentration increased with snowmelt, owing to the high concentrations in snow. After the active stage of snowmelt, the Na^+ , Cl^- , and SiO_2 concentrations were affected by a dilution effect of the water from melting snow. By contrast, the SO_4^{2-} and NO_3^- concentrations also increased after the active stage of snowmelt. Increases of both ion concentrations are attributed to either outflow out of the snowpack or their elution from shallow soils. However, the response of the two ions during an event that involved both rain and melt water suggests that SO_4^{2-} and NO_3^- in streamwater during snowmelt were strongly affected by outflow out of the snowpack and their elution from shallow soils, respectively.

Key words: inland part of Tohoku, snow coverage, snowmelt, streamwater quality, water discharge

I. は じ め に

積雪地域の多くの森林流域では、積雪の存在が渓流水質の形成に大きな影響を及ぼしている可能性がある。スカンジナビア半島では、融雪期に酸性度の高い融雪水が積雪中から流出し (Johannessen and Henriksen, 1978), 融雪水の河川への付加が魚類の死滅を引き起こしたこと (Leivestad and Muniz, 1976) が報告されている。これまでのところ、日本では融雪による陸水生生態系への影響は報告されていない (竹内, 1995)。しかし、東アジアにおける経済活動の活発化に伴い、硫黄および窒素酸化物等の排出量が増加しており、長距離越境大気汚染による日本への酸性降下物の負荷量の増加が懸念され (藤田ら, 2000, 2001), 今後、融雪による酸性物質の流出が顕在化することが危惧される (竹内, 1995)。このため、積雪が渓流水質に及ぼす影響を明らかにすること、さらには、積雪地域における森林流域

からの物質負荷量を評価することが求められている。

海外では融雪期の渓流水質に関する研究は多く行われており (たとえば, Rascher *et al.*, 1987; Abrahams *et al.*, 1989; Williams *et al.*, 1995), 同位体を用いた融雪期の渓流水質の形成要因を解明しようとする研究も進められている (たとえば, Durka *et al.*, 1994; Burns and Kendall, 2002; Ohte *et al.*, 2004)。しかし、日本では、融雪期における渓流水質の観測は行われているものの (たとえば, 野堀ら, 1980; 佐藤ら, 1993; 中田, 1999 など), 融雪期の渓流水質の形成要因を考察した研究や、森林流域からの物質負荷量を評価した研究は多いとはいえない (飯田・上木, 1993; 飯田ら, 1998; 柴田ら, 2002)。日本の森林流域では、積雪量、土壌、基岩など、渓流水質に影響を及ぼす立地要因は多岐に渡っており、積雪が渓流水質に及ぼす影響を評価するためには、立地条件の異なる積雪地域において渓流水質の研究を積み重ねる必要がある。また、融雪期におけ

* 連絡・別刷請求先 (Corresponding author) E-mail: shichi@ffpri.affrc.go.jp

¹ 森林総合研究所東北支所 (020-0123 盛岡市下厨川字鍋屋敷 92-25)

Tohoku Research Center, Forestry and Forest Products Research Institute, 92-25 Nabeyashiki, Shimokuriyagawa, Morioka 020-0123, Japan.

² 森林総合研究所 (305-8687 つくば市松の里 1)

Forestry and Forest Products Research Institute, 1 Matsunosato, Tsukuba 305-8687, Japan.

(2004年10月20日受付; 2005年5月30日受理)

る詳細な水質の解析は、積雪からの物質負荷量や流出機構の解明に不可欠である。

本研究では、東北地方内陸部の森林流域における渓流水質の特徴を明らかにするために、岩手県玉山村・姫神山試験地の森林小流域から流出する渓流水の2年間に渡る流量調査および水質調査を行った。さらに、寒冷な積雪地域に特徴的にみられる融雪期の流出特性に着目し、その詳細な流量調査および水質調査を行った。これらの結果に基づき、融雪期における渓流水質の形成要因と、積雪が水質に及ぼす影響について考察した。

II. 調査地と方法

1. 調査地の概要

調査は岩手県玉山村の森林総合研究所東北支所の姫神山酸性雨等モニタリング試験地を含む流域(図-1)で行った。調査地(北緯 39°50′, 東経 141°16′)は北上山地の最西部に位置し、盛岡市の市街地からは約 20 km 離れている。流域内の踏査と地図から判別した流域面積は約 14.7 ha であった。流域の標高は 760~890 m である。流域の基岩は花崗岩であり、その上に風化をうけた褐色火山灰(浮石質)が覆っている(高木ら, 1990)。土壌は適潤性黒色土(B₁₀)から適潤性黒色土偏乾亜型(B₁₀(d))である(高木ら, 1990)。調査地から約 8 km 南東のアメダス観測点・藪川における 2002 年の降水量は平年より多い 1,895 mm, 平均気温は 6.1°C, 2003 年の降水量は平年並みの 1,389 mm, 平均気温は 6.2°C であった。調査流域では, 2001 年 11 月中旬から 2002 年 4 月中旬まで, また 2002 年 11 月中旬から 2003 年 4 月中旬まで積雪がみられた。北上山地は多雪地帯の奥

羽山脈と比べて積雪は少ないものの, 姫神山試験地周辺では積雪深は 1 m 以上になる。採水時に観測した積雪深の最大値は, 2002 年 3 月上旬に約 1.2 m, 2003 年 3 月中旬に約 1.7 m であった。調査地の植生は, 1965 年植栽のカラマツ人工林が調査流域の約 6 割を占め, 谷部と尾根近くには落葉広葉樹林が調査流域の約 4 割存在し, 頂部の平坦な稜線付近にはわずかにヒノキ人工林が帯状に残されている。

2. 降水の採取方法

調査流域内の開空地に, 無降雪期には開口部断面積 346 cm² のロートを, 降雪期には同 1,810 cm² のポリ容器を設置し, おおよそ 10 日に 1 回の頻度で, 2002 年 1 月 7 日から 2003 年 12 月 25 日まで降水を採取した。

3. 流量の測定方法

流量の測定は, 調査流域の出口付近の溪流に 6 インチの簡易堰(パーシャルフリューム)を設置して行った。簡易堰に水位計を取り付け, 10 分間隔で水位測定を行った。流量は簡易堰の水位と流量の関係式(水位流量曲線)から算出した。

4. 渓流水の採水方法

通年の水質調査は, 2002 年 1 月 7 日から 2003 年 12 月 25 日までの 2 年間, おおよそ 10 日に 1 回の頻度で行った。簡易堰のすぐ上流側より, ポリビンを用いて直接採水した。

融雪期における詳細な水質調査は, 2002 年 3 月 11 日~12 日(融雪開始前の期間(I)), 3 月 25 日~26 日(融雪初期の期間(II)), 4 月 5 日~6 日および 4 月 16 日~18 日(融雪最盛期の期間(IIIa) および期間(IIIb)), 4 月 21 日~22 日(融雪後期の期間(IV))に行った。期間(I)のみ, ポリビンを用いて直接採水した。それ以後の期間は, 簡易堰のすぐ上流側に自動採水装置(ISCO 6700 型)を設置して行った。それぞれ当日 12 時から翌日(翌々日) 12 時まで, 1 時間ごとに採水した。

また, 融雪期における水質変化と比較するために, 2001 年 7 月 12 日(夏季降雨時の期間(C))に, 上記の自動採水装置により 1 時間ごとの採水を行った。ただし, 19 時から 21 時までには試料が採水できなかったため, 欠測している。

5. 降水および渓流水質の分析方法

採取した降水試料は重量を測定し, 各採取期間中の降水量を算出した。すべての降水および渓流水試料は, その一部を用いて pH および EC(電気伝導度)を測定し, 残りを定量濾紙 No. 5 A で濾過して冷蔵庫で保管し, 主要イオン濃度を分析した。pH はガラス電極法により, EC は EC メーターにより測定した。主要イオンのうち Mg²⁺, Ca²⁺ は原子吸光法(日立ハイテクノロジーズ, Z-5310)で, Na⁺, K⁺, NH₄⁺, Cl⁻, SO₄²⁻, NO₃⁻, PO₄³⁻ は 0.45 μm のメンブランフィルターで濾過後, イオンクロマト法(横河アナリティカルシステムズ, IC 7000)で測定した。すべての渓流水試料で PO₄³⁻ は検出されず, NH₄⁺ もほとんどが検出限界以下であった。また, 渓流水の SiO₂ は ICP 発光分析法(Fisons Instruments, Maxim)で, 無機炭素(IC)は燃

図-1. 姫神山試験地の観測対象流域位置図

Location of Himekami Experimental Basin (adapted from the 1:25,000 topographic maps of Rikuchu-Minamiyamagata and Sotoyama, published by the Geographical Survey Institute).

図-2. 姫神山試験地の観測期間中における降水中の pH, EC および主要イオン濃度の季節変化
Variation in pH, electrical conductivity (EC), and the major ion concentrations in precipitation at Himekami Experimental Basin during the observation period.

焼-紫外吸光法（島津製作所, TOC-5000 A）で測定した。試料の pH 値から IC はすべて HCO_3^- であるとの仮定により, IC の値を C の原子量で除し HCO_3^- の分子量で乗じて HCO_3^- を算出した。

III. 結 果

1. 降水水質の季節変化

図-2 に観測期間中における降水中の pH, EC および主要イオン濃度の季節変化を示す。pH は 4.1~7.2 の間で推移し, 特に季節変動はみられなかったが, 黄砂の影響により 2003 年は 3 月中旬に, 2004 年は 4 月中旬にそれぞれ上昇した。EC は 0.3~5.7 mS m^{-1} で推移し, 冬季に高かった。Na⁺ および Cl⁻ は冬季に高く, 夏季は低かった。NO₃⁻

図-3. 姫神山試験地の観測期間中における降水量と流量の変化

Precipitation and discharge in Himekami Experimental Basin during the observation period.

は 3 月から 6 月に上昇する傾向にあった。NO₃⁻ および SO₄²⁻ は夏季から秋季にかけて低かった。

2. 渓流水質の季節変化

図-3 に観測期間中における時間降水量（藪川・アメダス値）と 10 分ごとの流量の変化を示す。両年とも, 融雪期と夏季降雨時の年 2 回, 流量の増加が確認された。特に, 2002 年は 7 月から 8 月にかけて台風の通過によって降雨量が増大し, 簡易堰に越流が生じたことから, 流量の測定が一時不能となった。両年とも, 1 月下旬に降水に伴う流量の増加がみられたものの, 冬季の 1 月から 3 月中旬にかけてはおおむね 4 L s^{-1} で安定していた。

図-4 に採水時の流量と pH, EC および主要イオン濃度の季節変化を示す。融雪期や降雨時の流量増加時にその濃度が低下する成分と, 逆に上昇する成分がみられた。pH は 7.1~7.3 を示すことが多かった。両年とも, 3 月から 4 月の融雪期および, 降雨に伴う流量の増加時に低い傾向であったが, 2002 年 12 月中旬のような流量の安定時においても 6.94 に低下する場合もみられた。EC は両年とも 9 月から 3 月にかけて 3.00~3.67 mS m^{-1} と高く, 4 月から 7 月に 2.46~3.35 mS m^{-1} と低かった。Ca²⁺, Mg²⁺ および Na⁺ は, 両年とも 1 月から 3 月にかけて高く, 融雪期の 4 月および夏季の流量増加時に低い傾向であった。K⁺ ははっきりとした季節変化はみられなかった。HCO₃⁻ は両年とも 9 月から 3 月にかけて高く, 3 月から 5 月および 7 月から 8 月に低い傾向であった。Cl⁻ は 4 月および夏季の流量増加時に濃度の低下がみられたものの, それ以外の時期では約 2.2 mg L^{-1} 程度で安定していた。NO₃⁻ は 2002 年 3 月中旬から 5 月初旬および 2003 年 3 月下旬から 5 月下旬に 1.0 mg L^{-1} 以上と高かった。また, 夏季の流量増加時にも NO₃⁻ 濃度の上昇がみられた。SO₄²⁻ は NO₃⁻ と同様に, 融雪期と夏季の流量増加時に高かった。ただし両年とも, 融雪期の SO₄²⁻ 濃度の上昇のピークは, NO₃⁻ 濃度の上昇のピークよりも半月ほど早かった。SiO₂ は融雪期と夏季の流量増加時に低く, 秋季から冬季にかけては高かった。

図-4. 姫神山試験地の観測期間中における渓流水中の pH, EC および主要イオン濃度の季節変化
Variation in pH, EC, and the major ion concentrations in streamwater at Himekami Experimental Basin during the observation period.

SiO₂ は Ca²⁺, Mg²⁺, Na⁺ および Cl⁻ と同じ変化傾向を示した。

図-5 に流量と主要イオン濃度の関係を示す。一般的に、両者の関係は累乗式で表される場合が多く(飯田ら, 1998; 金子ら, 2002 など), 本研究でもそれに従っている。図中の曲線は流量 (x) に対する主要イオン濃度 (y) の回帰式 $y = ax^b$ を表し, その決定係数 (r^2) を示す。また, 表-1 に回帰式の係数, 決定係数 (r^2) および p -値を示す。流量と主要イオン濃度の関係については, 以下の三つのパターンが認められた。Na⁺ や Ca²⁺ は流量が増加するに伴いその濃度

図-5. 姫神山試験地の渓流水の流量と主要イオン濃度の関係

The relation between discharge and the major ion concentrations in streamwater at Himekami Experimental Basin.

表-1. 流量 (x) に対する主要イオン濃度 (y) の回帰式 ($y = ax^b$) における係数 (a , b), 決定係数 (r^2) および p -値

Parameters (a , b), coefficients of determination (r^2) and p -values on regression curves ($y = ax^b$) fitted to constituent concentrations (y) plotted upon discharge (x).

Himekami 2002~2003	a	b	r^2	p
pH	7.32	-0.01	0.28	<0.001
EC	3.77	-0.09	0.45	<0.001
Ca ²⁺	3.12	-0.11	0.59	<0.001
Mg ²⁺	0.77	-0.10	0.43	<0.001
Na ⁺	3.35	-0.17	0.72	<0.001
K ⁺	0.26	-0.02	0.00	0.55
HCO ₃ ⁻	17.20	-0.19	0.52	<0.001
Cl ⁻	2.58	-0.10	0.55	<0.001
NO ₃ ⁻	0.28	0.45	0.56	<0.001
SO ₄ ²⁻	0.79	0.13	0.41	<0.001
SiO ₂	19.68	-0.16	0.57	<0.001

は低下した。Mg²⁺, Cl⁻, HCO₃⁻, SiO₂ に加えて pH と EC もこれと同様の傾向であった。Na⁺, Ca²⁺, HCO₃⁻, Cl⁻ および SiO₂ では r^2 が 0.5 より大きく, 流量増加と濃度低下の関係は明瞭であったが, pH では r^2 が 0.28 と両者の関係は弱かった。一方, NO₃⁻ および SO₄²⁻ は流量が増加するに伴い濃度が上昇した。NO₃⁻ では r^2 が 0.56 と流量増加と濃度上昇の関係は明瞭であり, SO₄²⁻ では r^2 が 0.41 と両者の関係はやや弱かった。K⁺ は流量と濃度の間に関係が認められなかった。

表-2 に姫神山試験地の渓流水質の単純平均値を, 全国の渓流水質の単純平均値(広瀬ら, 1988)とともに示す。全

表-2. 姫神山試験地の渓流水質と他の渓流水質の比較

Comparison of streamwater chemistry at Himekami Experimental Basin and those in the other streams in Japan.

		pH	EC	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Na ⁺	K ⁺	NH ₄ ⁺	HCO ₃ ⁻	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	SiO ₂
			mS m ⁻¹	mg L ⁻¹									
Himekami (2002~2003)	ME	7.18	3.19	2.53	0.64	2.47	0.25	0.03	12.13	2.15	0.72	1.01	14.72
	SD	0.08	0.25	0.22	0.06	0.27	0.06	0.04	1.92	0.16	0.33	0.13	1.66
Other streams*	ME	6.83	8.28	4.88	1.61	6.01	1.10	0.01		4.98	1.15	7.04	

*Average of 34 streams in Japan by Hirose (1988); ME, Arithmetic mean; SD, Standard deviation.

表-3. 姫神山試験地の降水水質と渓流水質の比較

Comparison of rainwater and streamwater chemistry at Himekami Experimental Basin.

Himekami (2002~2003)		pH	EC	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Na ⁺	K ⁺	NH ₄ ⁺	HCO ₃ ⁻	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	SiO ₂
			mS m ⁻¹	mg L ⁻¹									
Streamwater	WM	7.14	3.05	2.40	0.61	2.27	0.25	0.03	11.09	2.05	0.93	1.08	13.63
Rainwater	WM	5.01	1.27	0.26	0.08	0.42	0.15	0.29		0.74	0.87	1.30	

WM, Volume weighted mean.

図-6. 姫神山試験地の2002年融雪期における気温、降水量と流量の変化

Temperature, precipitation, and discharge during snowmelt in the Himekami Experimental Basin in 2002.

The solid line, Discharge; The gray line, Temperature; The bars, Precipitation; (I), 2002.3.12~3.13, before snowmelt; (II), 2002.3.25~3.26, the early stage of snowmelt; (IIIa), 2002.4.5~4.6, the active stage of snowmelt; (IIIb), 2002.4.16~4.18, the active stage of snowmelt, including the influence of rain; (IV), 2002.4.21~4.22, the late stage of snowmelt.

国の渓流水質と比較してpHは0.4高く、ECは約0.4倍であった。また、Mg²⁺は約0.4倍、Ca²⁺は約0.5倍、Na⁺は約0.4倍、K⁺は約0.2倍、Cl⁻は約0.4倍、NO₃⁻は約0.6倍、SO₄²⁻は約0.1倍であった。姫神山試験地の渓流水質の主要イオン濃度は、全国平均と比べて総じて低かった。

表-3に姫神山試験地の渓流水質の加重平均値と、2002年および2003年の降水水質(図-2)の加重平均値を示す。両年に観測された降水水質は、同一地点で観測された1995年から2001年までの結果(相澤ら, 2003)とほぼ同様の傾向であった。相澤ら(2003)は主要イオンの負荷量を全国規模の調査結果と比較し、K⁺およびNO₃⁻以外は全国平均の0.2~0.6倍、K⁺およびNO₃⁻は0.8倍と、姫神山試験地において降水からの主要イオンの負荷は少ないことを示している。

3. 融雪期の水質変化

図-6に2002年3月1日から5月1日までの降水量と気

温(藪川・アメダス値)および流量の変化を示す。採水期間(I)直後の3月15日に気温が9°Cまで上昇し、また18mmの降雨があったため流量は増加しはじめた。その後、期間(II)から3日後の3月29日から30日にかけては43mm、期間(IIIb)中の4月16日から17日にかけては24mmのまとまった降雨があり、流量は増大した。流量は4月17日にピークに達した後、日変化をみせながら徐々に減少し、4月30日にはほぼ安定した。流量の変化の様子から、2002年の融雪期は3月15日から4月30日までとした。融雪による流量の日変化は3月20日から始まり、その後、4月27日までの気温の上昇時にみられた。4月4日に日変化は最大となり、4月4日の最大流量と最小流量の比は約2倍であった。

図-7に融雪期における流量と主要イオン濃度の日変化を、気温(藪川・アメダス値)の変化とともに、融雪開始前から融雪後期までの5期間に分けて示す。

融雪開始前の期間(I)(3月12日~13日)では、流量の変化はみられず、pHとK⁺およびCa²⁺の値にややばらつきがみられたものの、主要イオン濃度の変化はほとんど認められなかった。

融雪初期の期間(II)(3月25日~26日)では、昼間の気温上昇に遅れて、流量は25日19時に同日12時に比べて0.2 L s⁻¹増加し、期間(II)の最大となった。その後、翌26日の12時まで流量は徐々に減少した。Na⁺、Cl⁻、NO₃⁻およびSO₄²⁻濃度は、流量が最大になった19時から遅れて、22時から翌0時にかけて最大になった。NO₃⁻およびSO₄²⁻濃度の上昇幅は大きかったが、Na⁺およびCl⁻濃度の上昇はわずかであった。その後、流量が減少するにつれてNa⁺、Cl⁻、NO₃⁻およびSO₄²⁻濃度は低下した。流量の増加と減少に同調したNa⁺およびCl⁻の挙動は、この期間に特有の傾向であった。SiO₂濃度は他の成分とは逆に、流量の増加時には低下し、流量の減少時には上昇する傾向であった。Ca²⁺、Mg²⁺、K⁺およびpHの変化は特に認めら

図-7. 姫神山試験地の融雪期における流量と pH, EC および主要イオン濃度の変化

Variation in the pH, EC, and the major ion concentrations in streamwater in the Himekami Experimental Basin during the snowmelt period.

The solid line, Discharge; The broken line, Temperature; The bars, Precipitation. (I), 2002.3.12~3.13, before snowmelt; (II), 2002.3.25~3.26, the early stage of snowmelt; (IIIa), 2002.4.5~4.6, the active stage of snowmelt; (IIIb), 2002.4.16~4.18, the active stage of snowmelt, including the influence of rain; (IV), 2002.4.21~4.22, the late stage of snowmelt.

図-8. 姫神山試験地の融雪期における流量と主要イオン濃度の関係

The relationship between discharge and the major ion concentrations in streamwater at Himekami Experimental Basin during the snowmelt period.

+, Before snowmelt (2002.1.7~3.1); □, Period I (2002.3.12~3.13); ◇, Period II (2002.3.25~3.26); ○, Period IIIa (2002.4.5~4.6); ●, Period IIIb (2002.4.16~4.18); △, Period IV (2002.4.21~4.22); ×, After snowmelt (2002.5.2~5.25).

The solid lines are regression curves ($y = ax^b$) fitted to constituent concentrations (y) plotted versus discharge (x) during the melt period. The broken lines are the regression curves ($y = ax^b$) for two years (Fig. 4 and Table 1).

れなかった。

融雪最盛期の期間 (IIIa) (4月5日~6日) では、気温の上昇と対応して5日15時に流量は最大となり、同日12時に比べて3.5 L s⁻¹ 増加した。流量が増加するに伴い SiO₂, Na⁺ および Cl⁻ 濃度は低下し、逆に NO₃⁻ および SO₄²⁻ 濃度は上昇した。5日16時に SO₄²⁻ および NO₃⁻ 濃度は最大に、Na⁺ および Cl⁻ 濃度は最小になった。また、同日17時に SiO₂ 濃度は最小になった。同日16時以降では流量は徐々に減少し、それに対応するように NO₃⁻ および SO₄²⁻ 濃度は低下し、SiO₂, Na⁺ および Cl⁻ 濃度は上昇した。pH は流量の増加時には低下し、流量の減少時には上昇する傾向を示した。Ca²⁺, Mg²⁺ および K⁺ の変化は特に認められなかった。

降雨と融雪が重なった期間 (IIIb) (4月16日~18日) では、流量のピークが16日16時、17日4時および16時の3回みられた。16日16時のピーク以前には降水は観測されておらず、また、気温が18°Cまで上昇したため、1回目のピークは融雪によるピークである。2回目と3回目のピークは、降雨と融雪の影響が重なったことによる。17日1時から4時の間に7 mmの降雨(藪川・アメダス値)があり、一方、同日13時から16時の間に12 mmの降雨があった。期間 (IIIb) において、流量が増加するほど SiO₂, Na⁺ および Cl⁻ 濃度は低下し、NO₃⁻ および SO₄²⁻ 濃度は上昇した。しかし、NO₃⁻ は降雨の影響を受けて複雑な挙動を示した。1回目の流量のピークがみられた16日15時から16時に、SO₄²⁻ 濃度は極大に、SiO₂, Na⁺ および Cl⁻ 濃度は極小になった。NO₃⁻ 濃度は、16日16時には同日12時と比べてわずかに上昇したが、その後の流量の減少にも関わらず NO₃⁻ 濃度はさらに上昇を続けた。2回目の流量のピークがみられた17日4時から5時に、SO₄²⁻ 濃度は極大になり、SiO₂, Na⁺ および Cl⁻ 濃度は極小になった。このとき、NO₃⁻ 濃度が極大となったのは2回目の流量のピークから4時間遅れた8時であり、その後も4時間ほど高濃度を保っていた。3回目の流量のピークがみられた17日16時に、再び SO₄²⁻ 濃度は極大に、SiO₂, Na⁺ および Cl⁻ 濃度は極小になった。NO₃⁻ 濃度は、それより1時間遅れて同日17時に極大となった。pH は期間 (IIIb) を通じて、流量の増加時には低下し、流量の減少時には上昇する傾向を示した。この期間においてのみ、流量の増加に伴う Ca²⁺ および Mg²⁺ 濃度の減少がみられた。また、K⁺ は2回の降雨時に濃度の上昇がみられた。

融雪後期の期間 (IV) (4月21日~22日) では、21日の13時において、流量は同日12時に比べて0.3 L s⁻¹ 増加し、期間 (IV) の最大となった。その後、流量は減少し、翌22日の12時には前日の12時に比べて約2.1 L s⁻¹ 減少した。期間 (IV) においては、流量が減少するに伴い SiO₂, Na⁺ および Cl⁻ 濃度はわずかずつ上昇し、NO₃⁻ および SO₄²⁻ 濃度はわずかずつ低下した。Ca²⁺, Mg²⁺, K⁺ および pH の変化は特に認められなかった。

図-8に融雪期を含む2002年1月から5月までの流量と主要イオン濃度の関係を示す。図中の実線は融雪期における流量 (x) に対するイオン濃度 (y) の回帰式 $y = ax^b$ を表し、その回帰式の係数 (a , b) および決定係数 (r^2) を示す。実線で示された回帰式の p -値はすべて0.1%で有意であった。また、破線は2002年から2003年の2年間における主要イオン濃度の回帰式 (表-1) を示す。融雪期 (実線) と通年 (破線) ではやや回帰式の違いはあるものの、SiO₂, Na⁺ および Cl⁻ は流量の増加に伴い濃度の低下がみられ、NO₃⁻ は流量の増加に伴い濃度の増加がみられる点は共通していた。しかし、SO₄²⁻ の回帰式は $y = 0.98 x^{0.07}$, r^2 は0.19であり、流量と SO₄²⁻ 濃度の関係は弱かった。

4. 夏季降雨時の水質変化

図-9に夏季降雨時の期間 (C) (2001年7月12日) にお

図-9. 姫神山試験地の降雨時の期間C (2001.7.12) における流量とpH, ECおよび主要イオン濃度の変化

Variation in pH, EC, and the major ion concentrations in streamwater in Himekami Experimental Basin during the rain event C (2001.7.12).

The solid line, Discharge; The broken line, Temperature; The bars, Precipitation.

ける流量とpH, ECおよび主要イオン濃度の変化を示す。12日7時から12時の間に40mmの降雨があり、それに伴い流量は増加した。同日11時に流量はピークとなり、その後は徐々に減少した。流量が増加するに伴い、 Na^+ および Cl^- 濃度は低下し、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 NO_3^- および SO_4^{2-} 濃度は上昇した。 Ca^{2+} および Mg^{2+} は流量のピークよりも2時間早い9時に最大となった。 Na^+ は12時、 Cl^- は14時に最小に、 SO_4^{2-} は12時、 NO_3^- は13時に最大となり、流量のピークと主要イオン濃度のピークの間には1~3時間の差がみられた。一方、降雨終了後の流量の減少に伴い、 Na^+ および Cl^- 濃度は上昇し、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 NO_3^- および SO_4^{2-} 濃度は低下した。12日23時には、流量がほぼ降雨前の水準まで減少したのに対して、主要イオン濃度は降雨前の水準まで回復していなかった。pHは流量の増加時には低下し、流量の減少時には上昇する傾向を示した。

IV. 考 察

1. 姫神山試験地の渓流水質の特徴

姫神山試験地の渓流水質中の主要イオン濃度は、全国平均に比べて総じて低かった(表-2)。 Na^+ および Cl^- 濃度は渓流水の全国平均の約4割であった。渓流水において Na^+ や Cl^- 等の海塩由来の成分濃度は、海岸線に近いほど

高く(鶴見・一國, 1989)、また、太平洋側に比べて日本海側の方が高い(小林, 1961)。姫神山試験地は日本海岸から東に約110km、太平洋岸から西に約60km内陸に位置している。この地理的な要因が、 Na^+ および Cl^- の降水からの負荷量を少なくし、渓流水中の Na^+ および Cl^- 濃度を低下させていると考えられる。 Ca^{2+} および Mg^{2+} 濃度は渓流水の全国平均の約5割程度であった。全国平均に比べて、降水からの Ca^{2+} および Mg^{2+} の負荷は少ない(相澤ら, 2003)。また、変成岩流域や石灰岩流域に比べて、花崗岩流域では渓流水中の Ca^{2+} および Mg^{2+} 濃度は低いとされている(加藤ら, 1999)。降水および風化帯からの負荷が少ないことが、 Ca^{2+} および Mg^{2+} 濃度が低い要因となっていると考えられる。

NO_3^- 濃度は渓流水の全国平均の約6割であった。融雪期の平均 NO_3^- 濃度は 1.25 mg L^{-1} であり、渓流水質の全国平均(広瀬ら, 1988)の1.1倍であったが、融雪期を除いた平均 NO_3^- 濃度は 0.62 mg L^{-1} であり、同0.5倍であった。このように、融雪期以外では NO_3^- 濃度は低かった。姫神山試験地では全国平均に比べて降水からの NO_3^- の負荷はほぼ同等、 NH_4^+ の負荷は7割程度であり(相澤ら, 2003)、全国平均に比べて降水からの窒素の負荷量に大きな違いはみられない。一方、森林土壤中における窒素の無機化について、高橋ら(1994)は、地温が上昇するほど無機化は促進されることを明らかにしている。姫神山試験地では地温の測定結果は得られていないが、年間を通じて地温は低いことが予想され、温暖な地域に比べて年間の窒素無機化量が低く抑えられていると考えられる。さらに、表層土壤中に存在する NO_3^- の多くが植物等によって吸収されるために、渓流水の NO_3^- は降水のそれに比べて低くなっていると考えられる。

SO_4^{2-} 濃度は渓流水の全国平均の約1割であった。全国平均と比べて降水からの非海塩性 SO_4^{2-} の負荷は7割と少なく、海塩性 SO_4^{2-} も少ない(相澤ら, 2003)。また、花崗岩流域では渓流水質中への SO_4^{2-} の溶出は、石灰岩や変成岩流域に比べて少ないとされている(加藤ら, 1999)。降水および風化帯からの負荷の少ないことが、 SO_4^{2-} 濃度が低い要因となっていると考えられる。さらに、姫神山試験地に分布する火山灰性の黒色土は SO_4^{2-} 吸着能が高いとされており(麓ら, 1996; Tanikawa *et al.*, 1999; Tanikawa and Takenaka, 1999; 谷川ら, 2003)、土壤中に SO_4^{2-} が蓄積され、渓流水中に溶出される SO_4^{2-} が低く抑えられている可能性も考えられる。

2. 渓流水質の季節変化とその形成要因

渓流水質の変化は、融雪期や夏季降雨時の流量増加時に顕著であった。流量の増加によりその濃度が低下する成分(Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 Na^+ 、 HCO_3^- 、 Cl^- および SiO_2)と逆に上昇する成分(NO_3^- および SO_4^{2-})が認められた。 K^+ 以外は、流量と主要イオン濃度との間に相関がみられたことから(表-1; 図-5)、大まかには、流量の変化に伴ってイオン濃度の季節変化が現れたと考えることができる。

Ca^{2+} , Mg^{2+} , Na^+ , HCO_3^- , Cl^- , SiO_2 濃度および EC と、流量との間には負の相関がみられた (表-1)。降水中の Ca^{2+} , Mg^{2+} , Na^+ , Cl^- 濃度および EC は、渓流水中のそれらに比べて低く (表-3), 降水中に HCO_3^- および SiO_2 はほとんど含まれていない。これらの成分は、流量が増加するに伴いその濃度が低下していることから、降水成分による希釈効果が季節変化を引き起こした主要要因であると考えられる。

一方、 NO_3^- および SO_4^{2-} は流量と濃度の間に正の相関がみられた。 NO_3^- については、積雪の影響が少ない森林流域においても同様の傾向がみられる (Ohrui and Mitchell, 1998; 金子ら, 2002)。降雨時の流量増加に伴う NO_3^- の上昇過程について、木平ら (1997) は降雨により谷部の表層土壌内の飽和帯が拡大し、そこから NO_3^- の溶出が起きたことを示している。降雨時については、これと同様の現象により、渓流水の NO_3^- 濃度が上昇したのと考えられる。 SO_4^{2-} については、姫神山試験地と同様に流量と SO_4^{2-} 濃度の間に正の相関を示す場合 (Ohrui and Mitchell, 1998) と、逆に両者の間に負の相関を示す場合 (金子ら, 2002) がみられる。姫神山試験地および Ohrui and Mitchell (1998) の試験流域 (大谷山演習林) は内陸に位置しており、一方、金子ら (2002) の試験流域 (竜の口山試験地) は瀬戸内の海岸近くに位置している。姫神山試験地および大谷山演習林における基底流出時の SO_4^{2-} 濃度は、海塩の影響があると考えられる竜の口山試験地の値に比べて低い。姫神山試験地では基底流出時の SO_4^{2-} 濃度に比べて降水中の SO_4^{2-} 濃度が相対的に高いため (表-3), 降水そのものの付加による流量の増加が渓流水中の SO_4^{2-} 濃度の上昇に寄与している可能性が考えられる。なお、Muraoka and Hirata (1988) は、流量の増加に伴い濃度が上昇するイオンは、表層土壌中においてその濃度が高いことを示している。また、Edwards (1973) は、基岩からの SO_4^{2-} の溶出が少ない流域で流量の増加に伴う SO_4^{2-} の上昇が起きた場合は、表層土壌中からの SO_4^{2-} の溶出が原因であると推測している。このように、降水や融雪水の浸透に伴う表層土壌中からの SO_4^{2-} の溶出が、流量増加時の SO_4^{2-} 濃度の上昇に寄与した可能性も考えられる。

3. 融雪期における渓流水質の経時変化とその形成要因

融雪初期における渓流水中の主要イオン濃度の上昇は広く認められている (たとえば, Abrahams *et al.*, 1989; 飯田ら, 1998; 柴田ら, 2002)。本研究の融雪初期の期間 (II) においても、流量の増加に伴う顕著な主要イオン濃度の上昇がみられた (図-7)。飯田・上木 (1993) は、積雪内に含まれるイオンのうち 67% 以上が、融雪初期の 8 日間で融雪水となって流出したことを示した。融雪初期に高濃度の融雪水が流出する原因は、融雪期まで積雪中に蓄積されたイオンが、積雪粒子の変態の過程で粒子表面に析出し、融雪初期の融雪水の浸透によって選択的に溶出するためであるとされる (Suzuki, 1982)。期間 (II) では、高濃度の融雪水が積雪から負荷されたことによって、 Na^+ , Cl^- , NO_3^- お

よび SO_4^{2-} 濃度が上昇したと考えられる。そのうち、 NO_3^- および SO_4^{2-} は積雪期間中の降水の濃度 (図-2) が比較的高いために、この期間における濃度上昇が顕著であったのであろう。また、 Na^+ および Cl^- は積雪期間中の降水の濃度 (図-2) に比べて、基底流出時における渓流水質の濃度 (図-4) が高いために、渓流水の濃度上昇が小さかったと考えられる。

期間 (II) とは逆に、融雪最盛期の期間 (IIIa) から融雪後期の期間 (IV) では、流量の増加に伴い Na^+ および Cl^- 濃度は低下した (図-7)。Suzuki (1982) は、融雪が進むにつれて融雪水中の主要イオン濃度が次第に低下することを示している。期間 (IIIa) から (IV) における、 Na^+ および Cl^- 濃度の低下も、積雪中から低濃度の融雪水が負荷されたことによる希釈効果が原因と考えられる。これは、夏季降雨時にみられるこれらのイオン濃度の変化 (図-9) と同様な応答であった。

一方、融雪最盛期以降の NO_3^- および SO_4^{2-} 濃度はともに、一期間内でみれば流量が増加するほど濃度が上昇する傾向を示した。融雪期における渓流水中の NO_3^- の濃度上昇をもたらす要因として、積雪中からの流出 (Abrahams *et al.*, 1989) と表層土壌中からの溶出 (Rascher *et al.*, 1987) の二つが考えられている。Ohte *et al.* (2004) はベルモントの森林流域において、融雪初期には積雪からの寄与が大きいが、融雪中期から後期には徐々に表層土壌からの寄与が大きくなることを、渓流水に含まれる NO_3^- の酸素同位体分析によって明らかにした。姫神山試験地では融雪中期以降でも NO_3^- 濃度は上昇している (図-7) のに対し、欧米 (Abrahams *et al.*, 1989; Ohte *et al.*, 2004) や日本の他の流域 (飯田ら, 1998; 柴田ら, 2002) では、融雪初期に NO_3^- 濃度は急激に上昇するものの、流量のピーク時にはむしろ減少に転じている。また、Abrahams *et al.* (1989), 飯田ら (1998), 柴田ら (2002) の流域では、 NO_3^- と SO_4^{2-} は同様の経時変動を示しているが、姫神山試験地では SO_4^{2-} の変動のみが他の流域のそれと同じであり (図-4), NO_3^- の変動は他の流域とは異なっていた。融雪期における渓流水の NO_3^- と SO_4^{2-} 濃度の上昇が、主に積雪からの流出によってもたらされており、また、積雪中からの両イオンの流出が同じ存在割合で起きていると仮定するならば、渓流水中の NO_3^- と SO_4^{2-} 濃度の変動は同様になるはずである。姫神山試験地において融雪中期以降でも NO_3^- 濃度が高いのは、積雪中からの流出よりも、Ohte *et al.* (2004) が示したように、表層土壌中からの寄与が大きいのと考える方が妥当である。その表層土壌中からの溶出の割合は不明であるが、欧米や日本の他の流域と比べて、融雪期全体を通してその寄与は大きいものと考えられる。

NO_3^- とは反対に、 SO_4^{2-} は積雪中からの流出による寄与が大きいのと考えられる。融雪期における渓流水中の SO_4^{2-} の形成要因については、表層土壌中からの溶出 (Edwards, 1973) も考えられる。しかし、前述したように、

融雪期における SO_4^{2-} 濃度の上昇は NO_3^- のそれよりも半月ほど早く(図-4)、また、融雪中期以降は流量の増加に伴う SO_4^{2-} 濃度の上昇が小さかったことから、表層土壤中からの溶出よりも積雪中からの流出による寄与が大きいと推定した。

4. 積雪が水質に及ぼす影響

降雨と積雪が水質に及ぼす影響の違いを検討するために、融雪期の期間(IIIa)および(IIIb)(図-7)と、夏季降雨時の期間(C)(図-9)における主要イオン濃度の変化を比較する。いずれの期間においても、 SiO_2 、 Na^+ および Cl^- 濃度の変化は流量の変化とよく対応していた。また、 SO_4^{2-} 濃度についても、降雨のみ(期間(C))、融雪のみ(期間(IIIa))、降雨と融雪の両方(期間(IIIb))のいずれの影響があった場合においても、流量の変化とよく対応した。期間(IIIb)および期間(C)の降雨時において、降水の Na^+ および Cl^- 濃度は渓流水中の濃度に比べて低く、逆に、 SO_4^{2-} 濃度は高かった(図-2)。一方、 NO_3^- 濃度は降雨と融雪の両方の影響がみられたとき(期間(IIIb))のみ、流量の増加時に一時的な NO_3^- 濃度の低下がみられた。期間(C)を含む時期に観測された降水の NO_3^- 濃度は濃度上昇が起きる直前の渓流水中のそれよりも高かったが、期間(IIIb)を含む、2002年4月12日から18日に観測された降水中の NO_3^- 濃度は 1.4 mg L^{-1} であり、 NO_3^- 濃度の低下が起きる直前の渓流水の NO_3^- 濃度 (1.6 mg L^{-1}) よりやや低かった。降雨と融雪の両方の影響があった期間(IIIb)の場合においてのみ、降雨成分の付加に伴う NO_3^- の希釈が起きたと考えられる。なお、 Ca^{2+} および Mg^{2+} は、夏季降雨時において流量の増加に伴う濃度の上昇がみられたが、これは降雨初期に表層土壤中に含まれる成分の溶出が起きたために(Muraoka and Hirata, 1988)、流量のピークに先立ってそれらの濃度が上昇したのと考えられる。

次に、融雪期と通年における流量と水質の関係について検討する(図-8)。 SiO_2 、 Na^+ 、 Cl^- および NO_3^- については、融雪期と通年ではやや回帰式の違いはみられるものの、流量の増加に伴う濃度変化の傾向は同じであった。一方、融雪期の SO_4^{2-} の濃度変化は通年の傾向と異なっていた。融雪期の流量と SO_4^{2-} 濃度の関係は、一つの累乗式で表すよりも、むしろ、それぞれの連続観測期間ごとに独立の1次式で表す方が妥当と考えられた。期間(I)を含む2002年1月から5月までの基底流出時には SO_4^{2-} 濃度は $0.9 \sim 1.1 \text{ mg L}^{-1}$ の範囲であった。期間(II)では、流量の増加に対して SO_4^{2-} 濃度は急激に上昇し、1次式の傾きもきわめて大きかったが、期間(IIIa)および(IIIb)では、流量が増加するにつれて徐々にその傾きは小さくなっていった。このことは、積雪から流出する融雪水の SO_4^{2-} 濃度が徐々に低下していく過程を示していると考えられる。融雪水中の他のイオン濃度も徐々に低下していく(Suzuki, 1982)にも関わらず、 SO_4^{2-} のみ1次式で表されるのは、融雪期における渓流水中の SO_4^{2-} の形成において、積雪中からの流出の寄与が大きいことを示唆している。

以上述べたように、姫神山試験地において積雪が渓流水質に及ぼす影響は、積雪からの融雪水の増加が NO_3^- および SO_4^{2-} 以外のイオンの希釈を引き起こすという点では、降雨が水質に及ぼす影響とほとんど変わりがないと考えられた。しかし、積雪地域での多くの既往報告と同様に、融雪初期には積雪から高濃度の溶存成分を含む融雪水が流出するために、主要イオン濃度の顕著な上昇が認められた。また、融雪期の SO_4^{2-} の濃度変化の過程が融雪期以外の時期と異なることが姫神山試験地特有の現象として認められた。融雪期の NO_3^- および SO_4^{2-} 濃度上昇パターンの明瞭な相違から、本試験流域における NO_3^- の流出には土壤表層からの溶出の寄与が大きく、 SO_4^{2-} の流出には積雪からの流出の割合が大きいと推定された。

東北森林管理局の皆様には試験地の設定にあたってご尽力いただいた。森林総合研究所の岡本透主任研究官には簡易堰の設置にご協力いただいた。野月平テルさんには試料の前処理にご協力いただいた。森林総合研究所立地環境領域の皆様にはICP発光分光分析装置の使用に関して、同北海道支所土壤植物系研究グループの皆様には全有機炭素測定装置の使用に関して、それぞれ便宜を図っていただいた。森林総合研究所関西支所の谷川東子主任研究官には土壤中の硫黄の動態についてご教示いただいた。以上の方々に感謝申し上げます。なお、この研究の一部は森林総合研究所運営費交付金プロジェクト(課題番号:200002)によって行われた。

引用文献

- Abrahams, P.W., Tranter, M., Davies, T.D., and Blackwood, I.L. (1989) Geochemical studies in a remote Scottish upland catchment, II, Streamwater chemistry during snow-melt. *Water Air Soil Pollut.* 43: 231-248.
- 相澤州平・岡本 透・池田重人 (2003) 東北地方内陸部森林地帯における降水中の溶存成分濃度の季節変化および溶存成分負荷量. *森林総研報* 2: 157-164.
- Burns, D. A. and Kendall, C. (2002) Analysis of $\delta^{15}\text{N}$ and $\delta^{18}\text{O}$ to differentiate NO_3^- sources in runoff at two watersheds in the Catskill Mountains of New York. *Water Resour. Res.* 38: 1051, doi: 10.1029/2001WR000292.
- Durka, W., Schulze, E.-D., Gebauer, G., and Voerkelius, S. (1994) Effects of forest decline on uptake and leaching of deposited nitrate determined from ^{15}N and ^{18}O measurements. *Nature* 372: 765-767.
- Edwards, A.M.C. (1973) The variation of dissolved constituents with discharge in some Norfolk rivers. *J. Hydrol.* 18: 219-242.
- 藤田慎一・市川陽一・速水 洋 (2001) 酸性物質の広域輸送. *電中研レビュー* 43: 19-30.
- 藤田慎一・高橋 章・速水 洋・櫻井達也 (2000) 日本列島における硝酸イオンとアンモニウムイオンの湿性沈着量. *環境科学会誌* 13: 491-501.
- 麓 多門・岩間秀矩・天野洋司 (1996) 林地黒ボク土の硫酸イオン含量と土壤特性, 硫酸イオン吸着能との関係. *土肥誌* 67: 648-654.
- 広瀬 顕・岩坪五郎・堤 利夫 (1988) 森林流出水の水質についての広域的考察(1). *京大演報* 60: 162-173.
- 飯田俊彰・上木勝司 (1993) 融雪初期における酸性汚染物質を高濃度を含む融雪水の流出現象. *農土論集* 166: 55-61.

- 飯田俊彰・上木勝司・塚原初男 (1998) 多雪山地小流域における陰イオンの収支解析. 農土論集 195: 77-84.
- Johannessen, M. and Henriksen, A. (1978) Chemistry of snow meltwater: changes in concentration during melting. *Water Resour. Res.* 14: 615-619.
- 金子真司・服部重昭・後藤義明・玉井幸治 (2002) 竜の口山森林理水試験地の渓流水質. 水・水学会誌 15: 472-485.
- 加藤正樹・池田重人・伊藤優子・金子真司・吉永秀一郎・生沢 均・佐々木重行 (1999) 森林と渓流水質—その形成メカニズムと実態—. 98pp, 林業科学技術振興所, 東京.
- 小林 純 (1961) 日本の河川の平均水質とその特徴に関する研究. 農学研究 48: 63-106.
- 木平英一・窪田順平・塚本良則 (1997) 降雨に伴う谷部飽和帯の拡大と渓流水の NO_3^- -N 濃度の変動. 水・水学会誌 10: 154-160.
- Leivestad, H. and Muniz, I. P. (1976) Fish kill at low pH in a Norwegian river. *Nature* 259: 391-392.
- Muraoka, K. and Hirata, T. (1988) Streamwater chemistry during rainfall events in a forested basin. *J. Hydrol.* 102: 235-253.
- 中田 誠 (1999) 森林地域における積雪の化学的性質と融雪期の水質形成過程の解明. 林業技術 689: 11-14.
- 野堀嘉裕・渡部房夫・上野 斉・塚原初男 (1980) 融雪期における硝酸態窒素の流出量. 日林東北支誌 32: 167-170.
- Ohte, N., Sebestyen, S. D., Shanley, J. B., Doctor, D. H., Kendall, C., Wankel, S. D., and Boyer, E. W. (2004) Tracing sources of nitrate in snowmelt runoff using a high-resolution isotopic technique. *Geophys. Res. Lett.* 31: L21506, doi: 10.1029/2004GL020908.
- Ohrui, K. and Mitchell, M. J. (1998) Stream water chemistry in Japanese forested watersheds and its variability on a small regional scale. *Water Resour. Res.* 34: 1553-1561.
- Rascher, C. M., Driscoll, C. T., and Peters, N. E. (1987) Concentration and flux of solutes from snow and forest floor during snowmelt in the West-Central Adirondack region of New York. *Biogeochemistry* 3: 209-224.
- 佐藤冬樹・笹賀一郎・藤原滉一郎・市川 一 (1993) 道北地方における降雪の化学性と小河川の水質 (II) —融雪期の小河川の水質—. 日林論 104: 757-758.
- 柴田英昭・市川 一・野村 睦・佐藤冬樹・笹賀一郎・石井吉之・小林大二 (2002) 積雪寒冷地域の森林流域での融雪期における物質収支. 日本水文科学会誌 32: 49-56.
- Suzuki, K. (1982) Chemical changes of snow cover by melting. *Jpn. J. Limnol.* 43: 102-112.
- 高木勇吉・池田重人・後藤和秋・長谷川浩一・佐々朋幸 (1990) 姫神山カラマツ人工林の酸性雨等モニタリング試験地について. 日林東北支誌 42: 264-266.
- 高橋輝昌・生原喜久雄・相場芳憲 (1994) スギ・ヒノキ造林地での斜面位置別の表層土壌の窒素無機化量. 森林立地 36: 15-21.
- 竹内 正 (1995) 環境庁による酸性雨問題への取組. 環境研究 99: 141-148.
- Tanikawa, T., Ishizuka, K., and Imai, A. (1999) Extractable sulfate content in Japanese forest soils. *J. For. Res.* 4: 191-194.
- Tanikawa, T. and Takenaka, C. (1999) Relating sulfate adsorption to soil properties in Japanese forest soils. *J. For. Res.* 4: 217-222.
- 谷川東子・高橋正通・今矢明宏・稲垣善之・石塚和裕 (2003) アンディソールとインセプティソールにおける硫酸イオンの断面分布と現存量—吸着態および溶存態硫酸イオンについて—. 土肥誌 74: 149-155.
- 鶴見 実・一國雅巳 (1989) 多摩川上流の沢水に含まれる無機成分の化学的特徴. 環境科学会誌 2: 9-16.
- Williams, M. W., Bales, R. C., Brown, A. D., and Melack, J. M. (1995) Fluxes and transformations of nitrogen in a high-elevation catchment, Sierra Nevada. *Biogeochemistry* 28: 1-31.