

柑橘類果樹園地からの流出水水質特性に 関する調査研究

FIELD STUDY ON THE WATER QUALITY CHARACTERISTICS OF CITRUS GROVE SOIL LEACHATE

西村文武¹・菅谷真美²・赤瀬孝也³・増田理子⁴・渡邊政広⁵・津野洋⁶
Fumitake NISHIMURA, Mami SUGAYA, Takaya AKASE, Michiko MASUDA,
Masahiro WATANABE and Hiroshi TSUNO

¹正会員 博士(工) 京都大学准教授 大学院都市環境工学専攻(〒615-8540 京都市西京区京都大学桂C1)

²学生員 愛媛大学大学院生産環境工学専攻(〒790-8577 松山市文京町3番)

³修士(工) (株)修成建設コンサルタント 総合計画部(〒553-0006 大阪市福島区吉野一丁目10-13)

⁴正会員 博士(理) 名古屋工業大学准教授 大学院社会工学専攻(〒466-8555 名古屋市昭和区御器所町)

⁵正会員 工博 愛媛大学教授 大学院生産環境工学専攻(〒790-8577 松山市文京町3番)

⁶フェロー会員 工博 京都大学教授 大学院都市環境工学専攻(〒615-8540 京都市西京区京都大学桂C1)

In this study, water quality characteristics of citrus grove soil leachate were investigated. Citrus grove soil contains nitrogen and phosphorus in high concentrations due to the high amount of fertilization, and its soil pH is also very low. Therefore it is considered that not only nutrients but also some problematic materials such as Al and Pb for aquatic livings and ecosystem at the watershed can be contained in the leachate. It is also concerned that the materials can be discharged into the downstream site as a result.

It is observed that pH of leachate is in the range of neutral, and the concentration of Al is not at the level where the aquatic livings and ecosystem can be affected. However, some heavy metals can be discharged and nutrients can cause eutrophication. It is suggested that citrus grove can be a big non-point source of nutrients.

Key Words : citrus grove soil, leachate, nutrients, element discharge, non-point source

1. はじめに

流域内での水質汚濁原因物質となりうる化学物質の挙動を把握することは、閉鎖性水域での富栄養化問題など流域における水環境問題、ひいては生態系への影響予測や評価など流域内外での環境問題を考える上で必要不可欠な事項である。従来から、様々な地域において流域内での物質の動態やそれに影響を及ぼす因子について数多くの研究がなされてきており¹⁾²⁾³⁾、また近年では、地理情報システム(Geographic Information System; GIS)の発展により、より詳細な流域環境の把握や現象解析を行うようになってきた⁴⁾。しかし、これらの研究の基礎となるのは汚濁発生原単位などの調査研究であり、双方の進展が流域内環境管理には求められている。

一方、我が国では下水道普及率が全国平均で70%近くになり、また様々な廃水処理技術が開発され適用されつつあり、都市域や各事業所などの特定汚染源からの排出発生汚濁物質量は減少傾向にある。今後はノンポイント汚染源対策が、流域内での環境管理においてますます大きな課題となるものと考えられる。ノンポイント汚染源の中でも農耕地は、地方においては流域内で都市化域よりも広い面積を占める場合がある。また農耕地でも作目により施肥量や成分が異なることや、地域ごとに気象等の環境条件が異なることから、流域における詳細な環境管理のためには対象地域における作目毎の農地からの汚濁発生特性の把握が必要となる。

本研究では、農耕地の例として愛媛県松山市内の柑橘類果樹園地を対象として、そこからの汚濁物流出特性の把握を目的とした。松山地方は瀬戸内海に面しており、

発生汚濁物の流達水域は瀬戸内海となる。また伊予柑をはじめとする柑橘類は地域の主要農作物のひとつである。松山市の地目別土地面積割合では農耕地が33%であり、中でも果樹園地はその43%を占め最も比率が高くなっている⁵⁾。ここでは、約半年にわたる継続観測と、一降雨による土壌流出水の水質特性を調査し、汚濁発生特性を検討した。

2. 調査方法

調査は松山市北西部の太山寺町に位置する標高104mの山の東側斜面を対象として行った。本対象地は伊予柑を栽培しており集水域約940m²の面積を有する。母岩は第4期層・洪積世の地層である礫砂泥に周囲を囲まれた中生代花崗閃緑岩である。施肥は年4回、3月、6月、9月、11月にそれぞれ0.50、0.50、0.29、0.36kg/m²で行われている。施肥には、窒素・リン酸・カリウムを主成分とした有機無機の混合肥料が用られ、春から夏にかけてはスプリンクラーにて散水が行われる。この果樹園地土壌の化学特性について表-1にまとめる。果樹園地下部にある通路に面した擁壁の排水口より常時流出している土壌流出水を

表-1 果樹園地土壌の化学特性

pH(H ₂ O)	4.25										
pH(KCl)	3.68										
CEC (meq/100g乾土)	9.05										
塩基飽和度 (-)	1.41										
交換性陽イオン量 (水溶性陽イオン量) (meq/100g乾土)	<table border="1"> <tr> <td>Na⁺</td><td>2.08 (0.66)</td></tr> <tr> <td>K⁺</td><td>3.25 (0.81)</td></tr> <tr> <td>Mg²⁺</td><td>1.24 (0.60)</td></tr> <tr> <td>Ca²⁺</td><td>6.19 (1.24)</td></tr> <tr> <td>Al³⁺</td><td>0.61 (0.32)</td></tr> </table>	Na ⁺	2.08 (0.66)	K ⁺	3.25 (0.81)	Mg ²⁺	1.24 (0.60)	Ca ²⁺	6.19 (1.24)	Al ³⁺	0.61 (0.32)
Na ⁺	2.08 (0.66)										
K ⁺	3.25 (0.81)										
Mg ²⁺	1.24 (0.60)										
Ca ²⁺	6.19 (1.24)										
Al ³⁺	0.61 (0.32)										
全リン量 (mgP/100g乾土)	228										
水溶性リン量 (mgP/100g乾土)	4.28										

表-2 調査項目及び調査方法

調査項目	調査方法
流量	メスシリンダー+ストップウォッチ
水温	赤液棒状温度計
pH	ガラス電極法(セントラル科学 UC-23 DIGITAL pH METER)
SS	ガラス繊維ろ紙法*
TOC	燃焼酸化-赤外線式TOC自動計測法 (島津製作所 TOC-5000A)
全窒素濃度	紫外線吸光度法*
NH ₄ -N濃度	インドフェノール青吸光度法*
全リン濃度	酸化分解後モリブデン青吸光度法*
イオン濃度 (Cl ⁻ , NO ₃ ⁻ , SO ₄ ²⁻) (Na ⁺ , K ⁺ , Mg ²⁺ , Ca ²⁺)	イオンクロマトグラフ(島津製作所 LC-10A) 検出器 CDD-6A 分離カラム 陰イオン:Shim-pack IC-A3 陽イオン:Shim-pack IC-C3 移動相 陰イオン:8.0mM p-ヒドロキシアニソ酸, 3.2mM Bis-Tris混合液 陽イオン:3.0mM しゅう酸水溶液
Al, Si, Ba, Cd, Cl, Co, Cr, Cu, Fe, Mn, Ni, Pb, Se, Sr, V, Zn	ICP発光分光分析装置 (PERLIN ELMER Optoma3000)

*下水試験方法に記載の水質分析方法に準拠

採水して水質特性を把握した。排水口は3ヶ所あり、北側からNo.1, No.2, No.3とした。継続観測は平成11年7月27日より開始し平成12年1月16日の間行った。一降雨観測は平成11年10月26日～10月27日と平成11年10月31日～11月1日にかけての2回行った。測定項目及び測定方法を表-2に示す。基本的には下水試験方法⁶⁾に記載の水質分析方法に準拠して行った。

3. 調査結果および考察

(1) 一降雨観測による果樹園地土壌流出水の水質特性

一降雨観測では降雨時における土壌流出水の水質特性について、降雨による流量変動や、土壌流出水のpH低下が溶出物質の挙動に及ぼす影響を考察する。図-1に土壌流出水の流量の経時変化と降雨量の変化を示す。10/26～10/27、10/31～11/1ともにNo.2の流量がもっとも大きく他の二つは同程度である。降雨量のピーク値と流量のピーク値の時間的なずれは2時間以内であることより、この果樹園地では降雨に対する応答が速いと思われる。

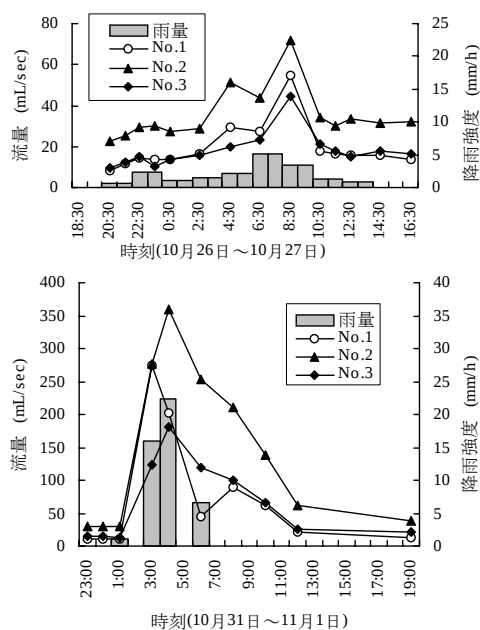


図-1 土壌流出水の流量の経時変化と降雨量の変化

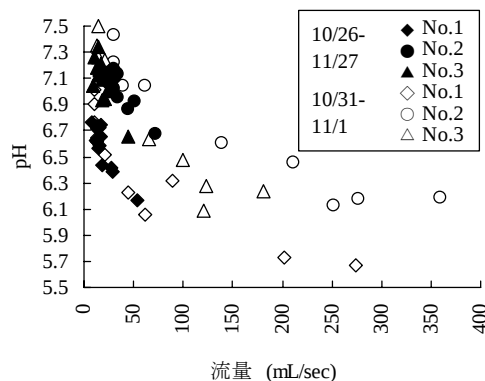


図-2 流出流量とpHの関係

た。また降雨量に対する流出量の割合は10/26～10/27の観測では降雨量の0.9%程度であり、10/31～11/1の観測では33%程度となっている。これは雨量、降雨継続時間、降雨強度などの違いが考えられ、2回目の観測の方が降雨量、降雨強度ともに強いいため地下に浸透する水の割合が減少したものと考えられた。

図-2に流出流量とpHの関係を示す。いずれのケースも流量が増加するとpHは低下している。観測日別にpHの変化を見ると、No.1において1回目の観測で流量のピーク値である60mL/secのときにpHは6.1程度、2回目の観測では流量のピーク値が300mL/secとなりpHは5.7程度に低下した。これは土壌流出水のpH低下は雨水の流入によるものであり、pHは雨水の占める割合により決定されたためと思われる。一方pHの変化を排水口別に見ると1回目、2回目観測ともにNo.1が最もpHが低い。しかし流量はNo.2が最も多い。よってpHの低下は流量のみに関係があるのではなく、流出水の通る間隙の状況も影響しており採水口により異なった特性を示したと考えられた。

図-3に陽イオン濃度の変化を示す。いずれのケースも Mg^{2+} が最も高い濃度で溶出しており、 Ca^{2+} 、 Na^{+} 、 K^{+} の順に高くなっていた。表-1に示した土壌の化学特性分析では交換性陽イオン、水溶性陽イオンともに Ca^{2+} 含有量が最も多く、 Mg^{2+} については交換性陽イオン、水溶性陽イオンともに最も少なかったが、溶出濃度は最大となった。これは以下の理由が考えられる。まず土壌が酸性化しており水溶性陽イオンの測定時に液相のpHが4.0程度と酸性を呈した。そのため交換性陽イオンも定量している可能性があり、必ずしも中性域での溶出濃度を反映していないことが挙げられる。また果樹園地では土壌改良剤として水酸化マグネシウムが散布されることがあり土

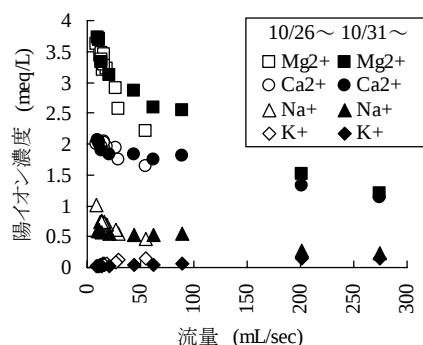


図-3 流出流量と陽イオン濃度の関係

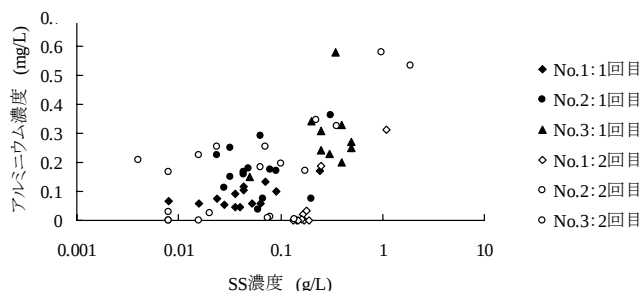


図-4 SS濃度とアルミニウム濃度との関係

壌中の Mg^{2+} のなかに水溶性陽イオンの占める割合が高いことがある。流量増加に伴う濃度の減少も Mg^{2+} が最も多く水溶性のものが多くという考えに合致する。また Ca^{2+} や Na^{+} の減少量が Mg^{2+} に比べて少ないことはpH低下により交換性陽イオンの溶出が起こったためと思われる。以上より流量が増加すると希釈効果により濃度は減少し、その減少量は水溶性陽イオンを多く含む Mg^{2+} が多い。また流量増加は同時にpH低下も生じさせ交換性陽イオンの溶出を増加させることが示された。また K^{+} については流量増加に伴い溶出量は増加した。 K^{+} は肥料成分として土壌に散布され、土壌中では吸着態および水溶性として存在しているものの他に、一次鉱物や粘土に含まれる非交換態のものもある。そのため流量増加による土粒子の流出が起こり濃度の上昇が起こったと考えられる。

アルミニウムは土壌の酸性化が進行し、交換性陽イオンが枯渇すると溶出を開始する。そのときの土壌流出水のpHは4.0程度で土壌の種類による違いはあまり見られない。太山寺果樹園地土は土壌の化学的特性から酸性化はしているものの交換性陽イオンは枯渇しておらず緩衝能を有している。そのためアルミニウムの溶出量は少ないと思われた。しかし流量が増加すると濃度は上昇し、ピーク時には0.6mg/Lとなった。このときの土壌流出水のpHは6.5～7.5程度であり溶出が顕著になるpH範囲ではなく、またNo.2のアルミニウム濃度が1回目、2回目の観測ともに最も高いが、pHはNo.1が最も低いことも観測された。よってこの溶出はpH低下によるものの以外の要因が支配的であると考えられた。アルミニウムは交換態だけでなく土粒子中に鉱物としても存在している。よって今回の溶出は流量増加による土粒子の流出が原因とも考えられた。図-4にSS濃度とアルミニウム濃度の関係を示す。SS濃度の上昇に伴いアルミニウム濃度も上昇して

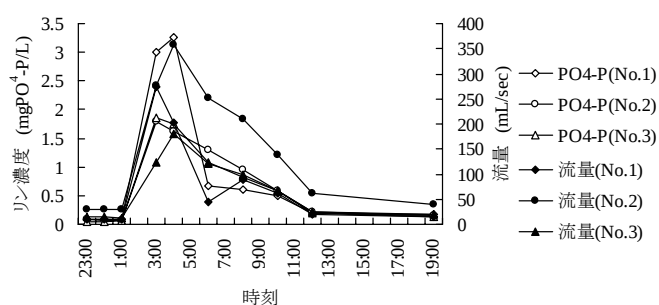


図-5 流量とリン濃度変化(10/31～11/1)

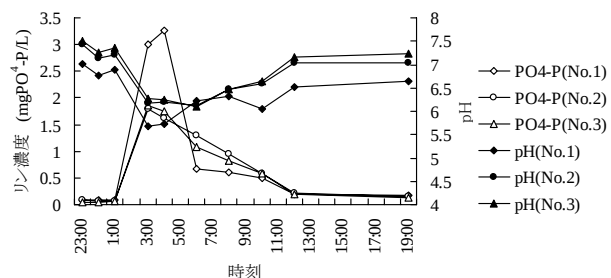


図-6 pHとリンと濃度変化(10/31～11/1)

いる。これよりアルミニウムの溶出はpH低下によるものではなく流量増加に伴う土粒子の溶出に関連していることが示された。

図-5, -6にリンの濃度変化を示す。リンは土壌中では吸着態として存在しているものが多く土壌流出水中の濃度は低い⁷⁾。またpHが6.5~5.5程度に低下するとCa²⁺と形成していた塩が溶解し溶出する。溶出濃度を採水口別にみると、1回目、2回目ともNo.1で最も溶出濃度が高かった。No.1は他の2つに比べ常時pHが低く、また2回目の観測結果からNo.2, No.3は流量が異なるもののpHは同程度であり、リン濃度も同程度であることがわかる。ここでリン濃度とpHの関係を図-7に示す。pHが6.5以下になる辺りよりリン濃度が上昇している。採水地点や観測日による差異もあまり見られない。よってリンの溶出は土壌流出水のpHに依存しており溶出量はpHが低くなるほど増加することが示された。

図-8, -9に窒素の濃度変化例を示す。全窒素濃度は流量が平常時当たりのときは40mgN/L程度である。しかし流量が増加すると濃度は減少し低いところでは15mgN/L程度となった。その組成を見てみるとその約9割は硝酸態でアンモニア態と亜硝酸態はほとんど検出されなかった。土壌には肥料としてアンモニア態の窒素が散布されるが、それらは植物による吸収や土壌中の硝化菌の作用により、土壌中では硝酸態のものが多くなる。硝酸態の

窒素は移動性が高く速やかに流域に溶出するため流量が多いほど流出量も多くなる⁸⁾。図-10に窒素流出量と流量の関係を示す。採水地点に関係なく窒素の流出量は流量の増加に伴い増加している。以上より窒素は降雨などにより流量が増加すると、希釈により濃度は減少するが流出量は増加することが示された。

DOCは、1回目、2回目の観測ともに初期には採水地点による濃度の差は見られなかった。しかし降雨量が増加し流量の増加が起こるとNo.1の濃度が最も高くなり、他の二つは同程度であった。No.1はpHが最も低い、観測初期から他に比べて低いため溶出にpHはあまり関与していないと思われた。流量はNo.2が最も高いことからDOCの溶出はpHや流量の大きさのみに関係しているのではなく採水地点の特性により異なると思われた。一方ケイ素は流量の増加に伴い濃度は減少した。ケイ素はケイ酸塩として動物体の全ての部位もしくは植物の外部の組織の細胞膜中などに存在する⁹⁾。また粘土、岩石などの微粒子に懸濁した状態で存在する⁹⁾。それらが流量の増加により外部に流出したが同時に雨水による希釈作用も受けたと考えられた。また、陰イオンについてはCl⁻、SO₄²⁻ともに流量の増加に伴い濃度は減少した。しかし流量が初期の量に低下すると濃度も回復した。また採水口により流量は異なるものの濃度の違いは見られなかった。

以上より果樹園地における土壌流出水の水質特性とし

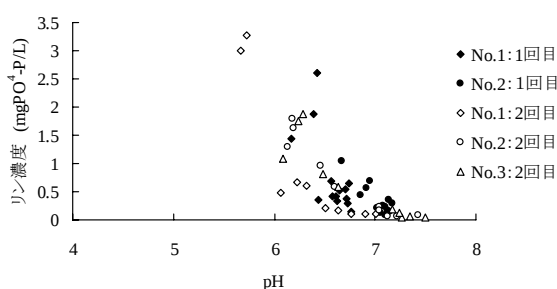


図-7 pHとリン濃度の関係

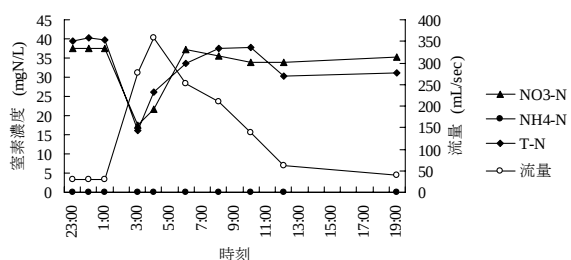


図-8 流量と窒素濃度変化(10/31~11/1)

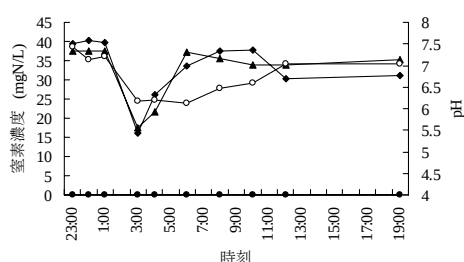


図-9 pHと窒素濃度変化(10/31~11/1)

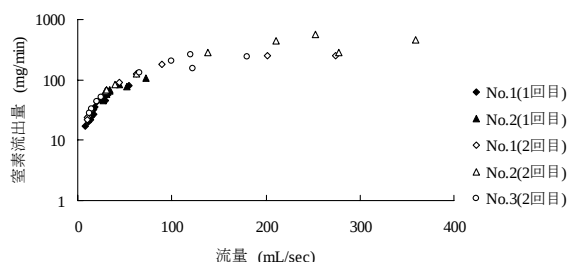


図-10 流量と窒素の流出量の関係

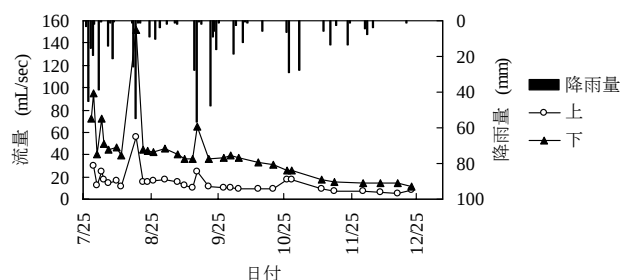


図-11 降雨量と流量の経日変化

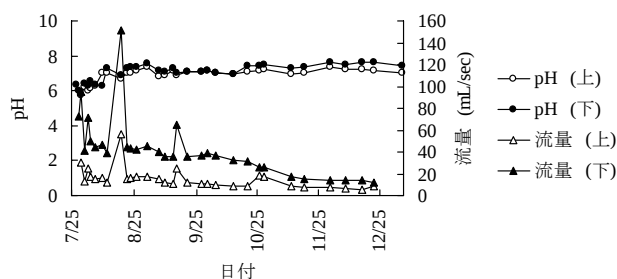


図-12 pHと流量の経日変化

て降雨時には流量増加とpH低下が起こる。それに伴いリン、カリウム、アルミニウムの溶出量は増加する。また窒素の溶出濃度は減少するが負荷量は増加することが示された。

(2) 継続観測の結果および考察

継続観測では果樹園地における土壌流出水の水質特性について一降雨観測のような短期間での変化ではなく、降雨量の年変化や、施肥、灌漑等の影響を加味した長期的な変動について考察を行った。

図-11に流量の経日変化を示す。また松山地方気象台より入手した松山市の降雨量も示す。降雨量が多い7,8月では流量もNo.1で40mL/sec, No.2で20mL/sec程度であるが、降雨量が減少した11及び12月ではそれぞれ20mL/sec, 15mL/sec程度に減少した。対象地での流量は降雨量の経日変化に伴い増減している。また8/18に流量の急激な上昇が見られたが、これは台風により降雨量が急増したためである。図-12にpHの変化を示す。pHは7前後の一定の値で推移した。瀬戸内地方の雨水pHは4.6程度であり¹⁰⁾、この値と比較すると流出水のpHは高く、土壌により緩衝されていることがわかる。

図-13に流出水の陽イオン濃度変化を示す。No.1, No.2ともに7月～9月にかけては変動しているが、9月以降ほぼ一定の濃度で推移している。これは7月～9月は降水量が多く、降雨量の変動が大きいと思われる。溶出濃度はNo.1, No.2ともにマグネシウムが多く続いてカルシウムが多い。この結果は一降雨観測の結果と一致する。それぞれの平均陽イオン濃度について、森林渓流水、野菜畑の流出水との比較を行った結果を表-3に示す^{11),12)}。2つに比べて全てのイオンで濃度が高い。またMg²⁺は44.08mg/L, 47.23mg/Lと特にその差が大きい。

図-14にアルミニウム濃度の変化を示す。No.1ではほ

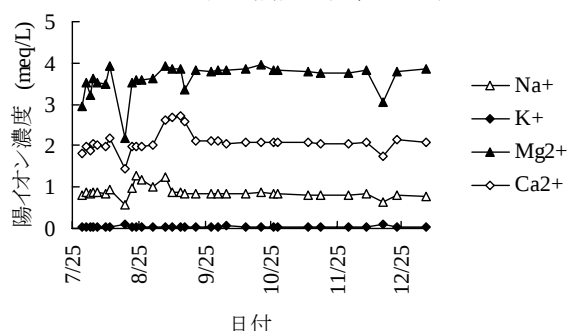


図-13 陽イオン濃度の経日変化

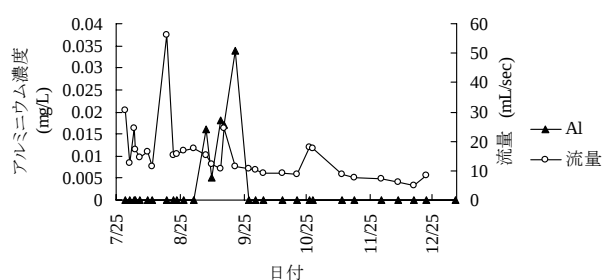


図-14 アルミニウム濃度の経日変化

とんど溶出が見られず、流量の高い時期に0.035mg/L程度の溶出が観測されただけであった。土壌流出水のpHは7.0前後の中性であり、一降雨観測の結果からこの溶出は土粒子中のアルミニウムに由来すると思われる。No.2においてもアルミニウムの溶出はほとんど見られず7月終わってから9月にかけて0.01mg/L程度の溶出が見られるだけであった。局所的に濃度の高いところはあったが、最高でも0.2mg/L程度であり、植物が生育阻害を受ける濃度の1.0mg/Lと比較するとアルミニウムによる水域への影響は少ないと考えられた。

図-15に土壌流出水のリン酸濃度の変化を示す。リンはほとんどがリン酸態リンであった。リンはNo.1, No.2ともに観測初期の7月終わりは0.2mgP/L程度であったが緩やかに低下し12月の終わりには0.1mg/L程度となった。この傾向はカキ、ナシ、ブドウを栽培している果樹園地における調査¹³⁾でも同様に見られており、濃度も4月～10月は11月～3月の2倍になっていた。溶出濃度を土地利用形態の異なる土壌と比較すると^{11),12),13),14)}、水田や、作目の違う果樹園地(カキ、ナシ、ブドウ)では同程度の溶出濃度が観察されるが、野菜畑と比較すると1桁高く、森林渓流水中の濃度よりも30倍程度高いものであった。柑橘類果樹園地における土壌流出水リン濃度は他の農耕土壌に比べ高く、このことはリンの含有量が高いこと、土壌pHが低いことから推察される。

表-3 土地利用形態別の溶出陽イオン濃度(mg/L)

	Na ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺
果樹園地(上)	20.05	1.34	44.08	41.88
果樹園地(下)	21.36	1.48	47.23	47.86
野菜畑	6.9	0.9	15.3	31.1
森林渓流水	5.35	0.84	1.57	4.12

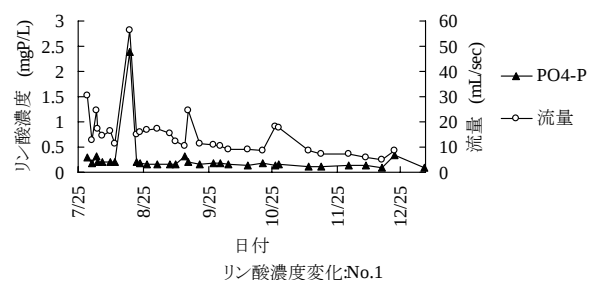


図-15 リン酸濃度の経日変化

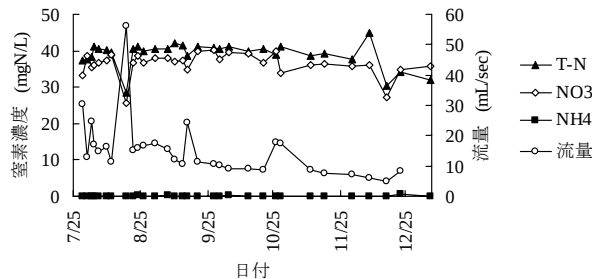


図-16 窒素濃度の経日変化

図-16に土壤中の窒素濃度の変化を示す。全窒素濃度は40mgN/L前後で推移し季節による変動は見られなかった。溶出した窒素の形態は一降雨観測の結果と同様ほとんどが硝酸態窒素でありアンモニア性窒素や亜硝酸性窒素はほとんど検出されなかった。全窒素濃度についてリンと同様土地利用形態の異なる土壤の流出水濃度と比較すると^{11),12),13),14)}、リンと同様に他の土壤と比べ溶出濃度が高く、他の果樹園地の土壤流出水の2倍、野菜畑の3/2倍、水田、森林溪流水と比較すると20倍近い高濃度で溶出している。また溶出量を考えると濃度の変化が小さいことから、夏の流量が多い時期には溶出量も増加すると考えられる。以上より本対象地における流出水は窒素、リンともに濃度が高く流達水域での富栄養化の原因となる可能性が高いことが示された。

土壤流出水のDOC濃度は2～6mgC/Lの範囲を変動しており流量増加に伴い濃度は上昇する傾向にあった。扇状地における地下水水質では、桑畑の地下水は平均濃度が3.98mgC/L、水田に隣接する地点では5.26mgC/Lとの報告例があり¹⁵⁾、本対象地の濃度も同程度であった。Cl⁻やSO₄²⁻等の陰イオン類は経日的な濃度変化は少なく、それぞれ0.5meq/L、1.5meq/Lで推移していた。これらは肥料に含まれる成分であるが大きな変化は観察されなかった。また微量元素類の平均濃度について表-4に示す。微量元素の中には人の健康の保護に関する環境基準や要監視項目および指針値として排出基準値が定められているものもある¹⁶⁾が、今回の観測ではPb、Seが基準値を超過する時があった。またPbについては植物に影響の出る濃度とされている0.027mg/L¹⁷⁾も超える観測結果となった。

以上より果樹園地における土壤流出水の水質特性として施肥等による濃度の急激な変化は見られなかった。栄養塩である窒素やリンは森林や他の農耕地に比べ高い濃度で溶出しており周辺流域での富栄養化の可能性が示唆された。また生育阻害物質であるアルミニウムは0.01mg/L程度の溶出でありアルミニウムによる水域への影響は少ないと思われたが、Pbで排出基準値を超過するケースも観察された。

表-4 微量元素の平均濃度(mg/L)

	Ba	Cd	Cl	Co	Cr	Cu	Fe
No.1	0.03	0.00	0.00	0.00	0.06	0.00	0.15
No.2	0.02	0.00	0.00	0.00	0.07	0.00	0.16
	Mn	Ni	Pb	Se	Sr	V	Zn
No.1	0.00	0.00	0.03	0.02	0.20	0.01	0.01
No.2	0.00	0.00	0.03	0.01	0.19	0.01	0.01

4. 結論

本研究では愛媛県松山地域における柑橘類果樹園地からの土壤流出水の水質特性を調査・考察した。得られた結果を以下に示す。

1)pHは7.0前後の中性であり、土壤により緩衝されている。

- 2)窒素は40mgN/L程度で溶出し大部分が硝酸態であり、流量増加に伴い濃度は減少するが溶出量は増加する。また施肥等による濃度の季節的変動は少なかった。
- 3)リンはpH低下により溶出量が増加し、夏期の方が溶出濃度は高く冬期の2倍程度である。その濃度は夏期で0.2mgP/L、冬期で0.1mgP/Lであった。
- 4)アルミニウムの溶出は土粒子成分に由来するものが大部分であると考えられた。溶出濃度は土壤流出水のpHが高いため雨天時を除くと0.01mg/L程度であった。
- 5)窒素・リンの栄養塩類溶出濃度は、土壤流出水は他の農耕地や森林系流水に比べると高い結果となった。一方でアルミニウムは生物の生育を阻害する濃度では溶出していない。そのため土壤流出水の流達水域での富栄養化の可能性が高いことが示唆された。

謝辞：本研究の一部は平成10年度公益信託下水道振興基金の助成を受けました。ここに記して謝意を表します。

参考文献

- 1) 海老瀬潜一：流域内土地利用形態別流出負荷量原単位の解析，国立公害研究所研究報告，第50号，pp. 89-102, 1994.
- 2) 井伊博行，平田健正，松尾宏，田瀬則雄，西川雅高：茶畑施肥に由来する硝酸性窒素と周辺表流水に及ぼす影響，土木学会水工学論文集，41，pp. 575-580, 1997.
- 3) 都築克紀，篠田成郎，山内幸雄，田中雅彦，野村一保，湯浅昌：長良川流域内の全窒素・全リン流出特性に及ぼす土地被覆空間配置の影響評価，土木学会水工学論文集，44，pp. 1143-1148, 2000.
- 4) 市川新：地理情報システム(GIS)を用いた流域管理のあり方と今後の課題，システム/制御/情報，Vol.43, No.8，pp. 402-411, 1999.
- 5) 松山市：松山市統計書，平成8年度版，2，1997.
- 6) 建設省都市局下水道部，厚生省生活衛生局下水道部環境局監修：下水試験方法，日本下水道協会，1997.
- 7) 一國雅巳，岡崎正規，企画・編集，加藤秀正：季刊化学総説 土の化学，学会出版センター，pp. 103-105, 1989.
- 8) 國松孝雄，村岡浩爾 編著：河川汚濁のモデル解析，技報堂出版，p. 63, 1994.
- 9) 日本分析化学会北海道支部編：水の分析-第4版-，化学同人，pp. 182-183, 1994.
- 10) 原宏：酸性雨-第2講 酸性雨とその生成メカニズム-，大気汚染学会誌，26，(2)，pp. 33-44, 1991.
- 11) 平田健正，唐常源，村岡浩爾：筑波森林試験地における渓流水質の長期変動，土木学会水工学論文集，39，pp. 215-221, 1995.
- 12) 小山田勉，酒井一，津田公男：やさい栽培畑からの肥料成分の流出，茨城県農業試験場報告書，26，pp. 159-175, 1986.
- 13) 井戸豊，伊藤敏彦，豊田一郎，加藤博美，早川岩夫，澤田守男，森健治朗：丘陵樹園地における栄養塩類の流出，愛知農総試験報，17，pp. 312-319, 1985.
- 14) 井上恵子，庄籠徹也：福岡県における農業用水の水質，日本土壤肥料学雑誌，62(6)，pp. 577-583, 1991.
- 15) 日高伸，伊藤信：荒川扇状地における地下水水質の実態解析と調査法，埼玉県農業試験場報告書，42，pp. 61-84, 1987.
- 16) 水文水資源学会編：水文水資源ハンドブック，朝倉書店，p.408, 1997.
- 17) 「酸性雨」編集委員会，ゴルフアーの緑化促進協力会編：酸性雨：複合作用と生態系に与える影響，博友社，p.214, 1996.

(2007. 9. 30受付)