

## 酸性降下物陸水影響の現状と予測手法の課題

EFFECT OF ACID PRECIPITATION ON SURFACE WATERS AND ITS PREDICTION METHOD: A REVIEW

池田 英史\*・宮永洋一\*\*

Hideshi IKEDA\*, Yoichi MIYANAGA\*\*

ABSTRACT; The surface water acidification caused by artificial acid materials has become significant in the United State and European countries since 1960s. On the other hand, the surface water acidification has not been observed yet in Japan. However, in order to estimate the long-term acidification of surface water, it is necessary to make an appropriate predictive method. The long-term effect of acid deposition in Japan should be predicted using a numerical model, which take into account neutralizing reactions in watershed reasonably. From the viewpoint of reliability and applicability, 4 previous models developed in the United State and Europe: ETD, MAGIC, Birkenes and ILWAS should be taken into account. However, all of these models have not been verified sufficiently on their runoff components, mineral weathering and forest submodels that require refinement in their applications to Japan.

KEYWORDS; Acid Deposition, Surface Water Chemistry, Acidification Prediction, Mathematical Model

### 1. まえがき

大気中の炭酸ガスを溶解し、平衡状態にある降水のpHは約5.6である。この降水に火山や海洋から発生した天然の酸性物質や、工場、自動車から発生する人為起源の酸性物質が溶解するとpHが5.6以下となり、酸性雨、酸性雪、酸性霧となる。また樹木の衰退という点では $\text{O}_3$ 、 $\text{NO}_x$ 、 $\text{SO}_x$ などの酸性のガスや粒子状物質の影響も問題視されている<sup>1)</sup>。前者は湿性降下物、後者は乾性降下物と呼ばれ、酸性降下物と総称されている。

pHが5.6を下回る降水は図-1に示すように地球上の広い範囲で観測されている<sup>2)</sup>。一方、酸性降下物によると考えられる被害は、1960年代からヨーロッパやアメリカで目立つようになり、森林の大規模な衰退、湖沼の酸性化、建築物・彫刻の腐食などの人間社会への影響が問題になっている。それに伴い、種々の予測手法も提案され、適用が計られている<sup>3)</sup>。わが国では、大規模な被害は報告されていないが、その影響の実態や発現機構の解明、予測手法の確立は未だなされていない。ここでは、文献調査により内外の実態を解明し、国外で開発されたモデルを、比較、検討することにより、日本に適用する際に注意する必要がある点の抽出を行った。

\* ; 電力中央研究所我孫子研究所水理部環境水理研究室; Environmental Hydraulics Section, Hydraulics Department, Abiko Research Laboratory, Central Research Institute of Electric Power Industry.

\*\* ; 電力中央研究所我孫子研究所水理部環境水理研究室長, 工博, Ditto, Manager, Dr. Eng.

2. 酸性雨陸水影響の実態

2. 1 欧米の事例

ヨーロッパでは19世紀より産業革命後の石炭使用量の増大による大気汚染や降水の酸性化が問題視されてきた。Oden (1976) はスウェーデン、ルウェー各地で観測された降水分析結果より1955年前後にはpH 5.4~5.8とほぼ天然の状態であった降水のpHが20年間で1以上も低下していることを明らかにした<sup>4)</sup>。またアメリカでもNADP (National Acidification Deposition Program) の調査によれば降水pHの低下がみられる<sup>5)</sup>。一方、これらの地域の多くの湖沼ではpHの低下や<sup>4, 6)</sup>、その影響と考えられる魚類生息数の減少、プランクトンの減少による透明度の上昇<sup>5, 6, 7)</sup>などが報告されている。図-2にアメリカ北東部アディロンダック地域の湖沼水pHの頻度分布を示す<sup>7)</sup>。上段が1975年、下段が1930年代の調査結果であり、黒色が魚類が生息している湖沼、白色が生息していない湖沼を示す。これより、多くの湖沼でpHが低下し、魚類がみられなくなっていることがわかる。しかし、同じように酸性降水物の負荷を受けても、急速に酸性化する湖沼としない湖沼とがある。図-3は、欧米の酸性雨域にある河川・湖沼32地点のデータを文献より抽出し、比較したものである<sup>3)</sup>。横軸はH<sup>+</sup>の湿性負荷量であり、降水中的の水素イオン濃度と降水量の積である。縦軸は河川水、湖沼水のアルカリ度であり、上ほど酸性物質を中和するポテンシャルが高く、酸性化しにくいことを示す。アルカリ度の小さい地点は、土壌層が薄いか、または漂粘土、砂質土、ポドゾル、泥炭など、酸緩衝能が小さいと考えられる土壌よりなる。特にPanther湖は、H<sup>+</sup>の負荷量がWoods湖とほぼ等しいにもかかわらず陸水のアルカリ度が高く、酸性化していない<sup>8)</sup>。これは、Panther湖流域の土壌層厚が25mとWoods湖の2mに比べ厚く、降水の流域内の滞留時間が長いから、アルカリ度や塩基の供給があるためと推察される<sup>9)</sup>。

2. 2 国内の事例

次に日本国内の酸性降水物と河川・湖沼水質に関する事例を検討する。降水のpHは四日市や熊本で低下していることが報告されている<sup>10)</sup>。また図-4に示すように現在では大部分の観測点で年平均pHが5.6を下回っており日本でも降水の酸性化は進んでいると考えられる<sup>11)</sup>。一方、わが国の河川・湖沼の水質データとして公表されている「日本河川水質年鑑」<sup>11)</sup>および「全国公共用水域水質年鑑」<sup>12)</sup>より、全国の河川・湖沼のpHについて頻度分布を示すと図-5、6のようになり、年度により調査地点数に差はあるものの、1971~1990年の20年間で pHの低い地点が増えているという傾向はみられない。

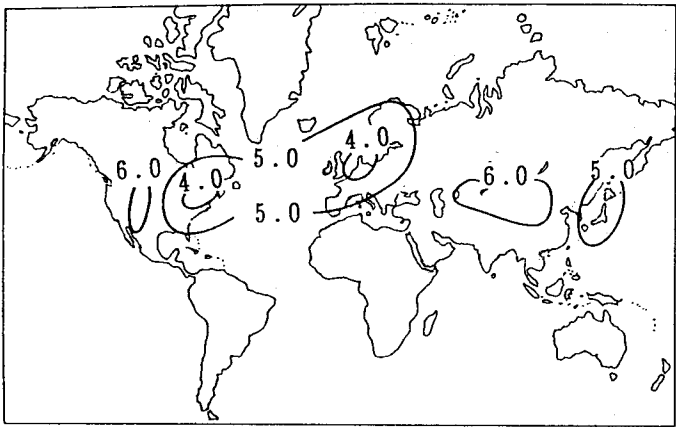


図-1 1970年代末期における降水の年平均pHの分布  
(内嶋, 1988<sup>2)</sup>を元に作成)

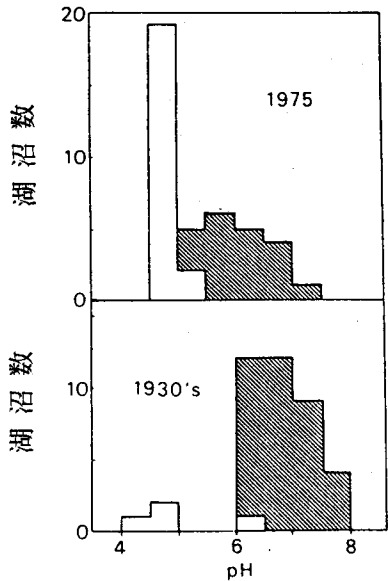


図-2 湖沼水のpHの頻度分布の変化  
(アメリカ、アディロンダックの例, Schofield(1976)<sup>7)</sup>)  
黒色：魚類が生息、白色：魚類が生息せず

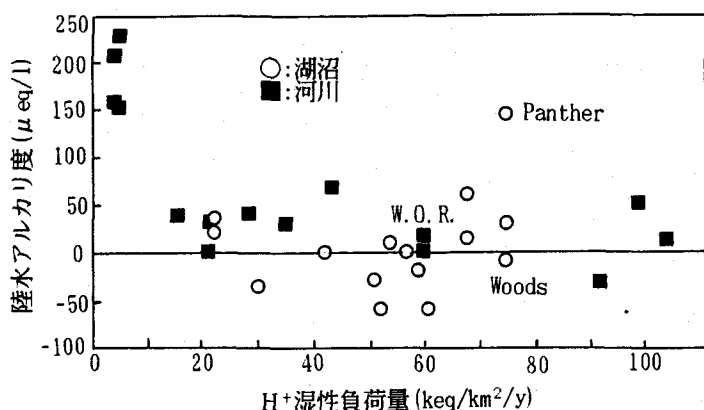


図-3 欧米の河川・湖沼のアルカリ度と  
H<sup>+</sup>湿性負荷量の関係<sup>3)</sup>

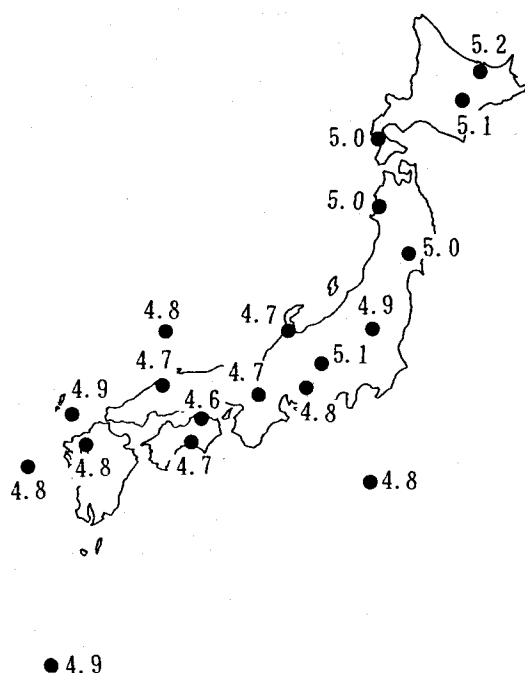


図-4 わが国の降水pHの観測値<sup>1)</sup>  
( '87-'90年のH<sup>+</sup>濃度の降水量加重平均)

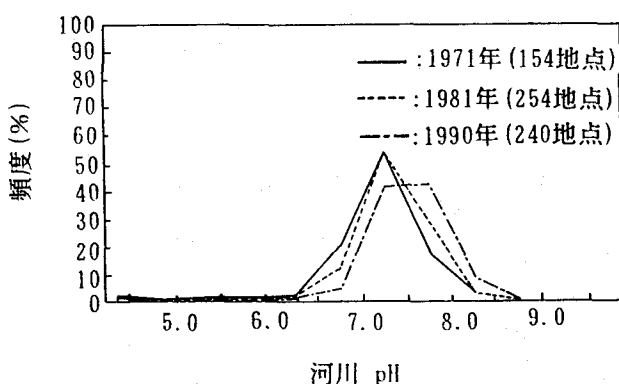


図-5 わが国の河川pHの頻度分布と経年変化  
(日本河川水質年鑑<sup>11)</sup>, '71-'90年)

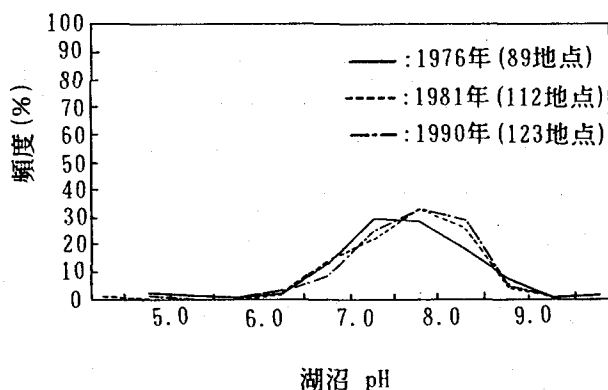


図-6 わが国の湖沼pHの頻度分布と経年変化  
(公共用水域水質年鑑<sup>12)</sup>, '76-'90年)

### 3. 既往の予測モデルの概要

#### 3. 1 酸性化および中和の機構

降水と河川水の水質の差は流域内の水質変化機構によるものである。水質変化機構のうち、主要と考えられるものを図-7に示す。図中の各作用のうち、+で示したものは土壌水を酸性化する要因を、-で示したものは土壌水を中和する要因を示す。このうち、植生によるものとしては降水が森林の林冠部(Canopy)に接触する際の樹葉表面からK<sup>+</sup>などの塩基の溶脱(Leaching)<sup>13)</sup>や吸収、土壌中での落葉の分解<sup>14)</sup>などがある。一方、土壌によるものとしては土壌表面の交換性塩基による陽イオン交換<sup>15)</sup>、陰イオンの吸着<sup>15)</sup>、一次鉱物の化学的風化にともなう塩基の供給<sup>16)</sup>、微生物によるSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>などの還元<sup>17)</sup>、炭酸ガスの溶解とそれに伴う土壌や鉱物からの塩基の供給などが考えられる。実際の流域では、これらの反応が組み合わされ河川水質が形成されている。酸性降下物に対する流域の緩衝能を評価し長期的な水質変化を予測するためには、これらの反応による中和機構を正確に評価する必要がある。

3. 2 モデルの種類と特徴<sup>3)</sup>

酸性降水物による将来の陸水の酸性化を予測し、有効な対策を検討するために、欧米で様々な陸水影響予測モデルが開発されている。これらの予測モデルを分類すると、対象別には土壌モデル、湖沼モデル、流域モデル、流域・湖沼モデルの4種類、メカニズムの取り扱い方からは集約モデルと素過程複合モデル、時間的には定常モデルと非定常モデル、などに分けられる。ここで集約モデルとは流域内の化学反応を少ないパラメータで代表させるものであり、素過程複合モデルとは、3. 1で述べた反応を別個のモデル化するものである。以下、主要な予測モデルの内容を対象別に述べる。

(A) 土壌モデル

酸性沈着に対する土壌および土壌水の酸性化を予測するモデルであり、代表的なものとしてReuss(1980)<sup>18)</sup>のモデルがある。これは、表層土壌における各種イオンの挙動を、陽イオン交換、陰イオン吸着、CO<sub>2</sub>溶解平衡、アルミニウム溶解平衡、の4つの素過程で表わし、大気からの各種イオンの沈着量を入力条件として、土壌-土壌水系の応答を解析するものである。メカニズムの取り扱いは素過程複合的であるが、植生、微生物、風化、有機酸などの寄与は無視されている。時間的には定常状態が解析される。

(B) 湖沼モデル

酸性沈着に対する湖沼の酸性化を予測するモデルであり、Henriksen(1979)<sup>19)</sup>、Wright and Henriksen(1983)<sup>20)</sup>などがある。ここでの湖沼モデルとは、流域での酸性物質の中和機構を考慮していないか、あるいは著しく簡略化しているものを指す。流域の中和機構を素過程から取り扱ったものは、(D)の流域・湖沼モデルに分類される。

(C) 流域モデル

土壌モデルに水文モデルを組み合わせ、沈着から河川流出にいたる酸性物質の挙動を予測するモデルである。流域モデルおよび流域・湖沼モデルのうち主要なものの概要を表-1に示す。

流域モデルの代表的なものであるBirkenesモデル(Christophersen et al., 1982<sup>21)</sup>)は、ノルウェー工業研究センター(Center for Industrial Research)によって開発された実用指向のモデルである。Birkenes(ビルクネス)とは、SNSFプロジェクト(Sur Nederdørs Virkning pa Skog og Fisk: "Acid Precipitation Effects on Forest and Fish")の調査対象の一つになった試験流域の地名である。水文モデルは、流域2層に積雪を加えた3層構造のタンクモデルである。化学モデルは、タンクモデルの流域2層について、土壌モデルの主要な素過程を考慮している。化学モデルで計算する状態変数は、土壌水と河川水のH<sup>+</sup>、2価の陽イオン(≡Ca<sup>2+</sup>+Mg<sup>2+</sup>)、Al<sup>3+</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>であるが、拡張されたバージョンでは、さらにNa<sup>+</sup>、HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>、有機酸が加えられている(Rustad et al., 1986<sup>22)</sup>)。このモデルは、Birkenes流域のほか、スウェーデン、英国、カナダ等のいくつかの流域に適用されている。

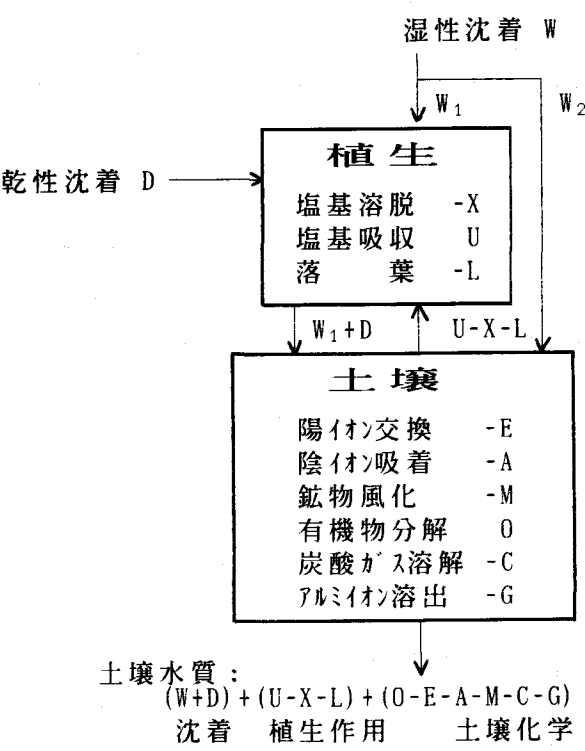


図-7 流域内での水質変化機構  
(土壌水の酸性化要因を正、  
中和要因を負で表示)

(D) 流域・湖沼モデル

土壌モデル、湖沼モデルに水文モデルを組み合せ、沈着から河川・湖沼にいたる酸性物質の挙動を予測するモデルである。陸水影響予測という点では、最も総合的なモデルといえる。

現在までに、種々の流域に適用された実績を持つ主要な流域・湖沼モデルは、米国アイオワ大学のETDモデル(Enhanced Trickle Down<sup>23)</sup>)、米国バージニア大学のMAGICモデル(Model of Acidification of Groundwater In Catchment<sup>24)</sup>)、米国電力研究所(Electric Power Research Institute)のILWASモデル(Integrated Lake and Watershed Acidification Study<sup>25)</sup>)などである。

ETDモデルは表-1に示すように、流域を積雪、土壌層、不飽和層、地下水層および湖沼に分割している。水文モデルは、各層の水収支を経験式で解析する。化学モデルは、陽イオン交換、風化、 $\text{SO}_4^{2-}$ 吸着、硫酸還元、を考慮している。化学モデルで計算する状態変数は、土壌水と湖水の $\text{H}^+$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{Cl}^-$ 、アルカリ度である。このモデルは、図-3に示す米国のPanther湖、Woods湖に適用されている。

表-1 酸性雨陸水影響モデルの比較

| モデル                | Birkenes         | ETD <sup>a</sup> | MAGIC <sup>b</sup> | ILWAS <sup>c</sup> |
|--------------------|------------------|------------------|--------------------|--------------------|
| 開発機関               | CIR <sup>d</sup> | Univ. Iowa       | Univ. Virginia     | EPRI <sup>e</sup>  |
| 流域分割               | 鉛直2-3層           | 鉛直1-3層           | 鉛直1-2層             | 鉛直多層               |
| 時間単位               | 日                | 日                | 年                  | 日                  |
| 酸性降下物              |                  |                  |                    |                    |
| 湿性・乾性区別            | ○                | ○                | —                  | ○                  |
| 樹冠作用               | —                | —                | —                  | ○                  |
| 水文過程               |                  |                  |                    |                    |
| 積雪・融雪              | ○                | ○                | ○                  | ○                  |
| 土壌・地下水             | ○                | ○                | ○                  | ○                  |
| 蒸発散                | ○                | ○                | —                  | ○                  |
| 河川水理               | —                | —                | —                  | ○                  |
| 湖沼水理               | —                | —                | —                  | ○                  |
| 地球化学過程             |                  |                  |                    |                    |
| 陽イオン交換             | ○                | ○                | ○                  | ○                  |
| 鉱物風化               | ○                | ○                | ○                  | ○                  |
| 陰イオン吸着             | ○                | ○                | ○                  | ○                  |
| $\text{CO}_2$ 溶解平衡 | ○                | ○                | ○                  | ○                  |
| アルミニウム溶解平衡         | ○                | —                | ○                  | ○                  |
| 有機酸                | ○                | —                | ○                  | ○                  |
| 生物化学過程             |                  |                  |                    |                    |
| 樹葉作用               | —                | —                | —                  | ○                  |
| 栄養塩吸収(土壌)          | —                | —                | ○                  | ○                  |
| 硝化                 | —                | —                | ○                  | ○                  |
| 根の呼吸               | —                | —                | —                  | ○                  |
| 栄養塩吸収(湖沼)          | —                | —                | ○                  | ○                  |
| 硫酸還元(湖沼)           | —                | ○                | ○                  | ○                  |
| 文 献                | (21)             | (23)             | (24)               | (25)               |

○ : 考慮している    — : 考慮していない

a : Enhanced Trickle Down

b : Model of Acidification of Groundwater In Catchment

c : Integrated Lake Watershed Acidification Study

d : Center for Industrial Research, Norway

e : Electric Power Research Institute, U.S.

MAGICモデルはVirginia大学のB. J. Cosbyらにより開発されたモデルであり、アメリカおよびヨーロッパの流域に適用されている。流域は上層と下層に分けられる(積雪は考慮しない)。MAGICモデルはもともと長期の予測を目的とした化学モデルとして開発されたものであるが、新しいバージョンでは、Beven and Kirkby<sup>26)</sup>の水文モデルと組み合わせて適用されている。定常モデルではないが、解析の時間単位が1年であることが、他のモデルとの大きな違いの一つである。水文モデルは、降水量と蒸発散量を与え、表面流、浸透流および側方流を経験式で解析する。化学モデルは、土壌モデルの主要な素過程を考慮している。化学モデルで計算する状態変数は、土壌水・河川水の主要な交換性陽イオン、強酸性陰イオン、有機酸イオン、無機アルミニウム系物質、無機炭素系物質、 $H^+$ 、pH、および固相の各種イオンである。このモデルは、米国・バージニア州のWhite Oak Run流域(図-3参照)のほか、米国・デラウェア州、スコットランド、スウェーデン、ノルウェー等の流域・湖沼に適用されている。

ILWASモデルはアメリカ電力研究所(EPRI)が1977年より実施した Integrated Lake-Watershed Acidification Study(ILWAS)プロジェクトにおいて作成されたモデルである。ILWASプロジェクトの目的は水文・水質調査により酸性降下物影響予測モデルを作成・実証し、酸性降下物により湖沼がどの程度酸性化するか、また酸性化した湖沼の水質を回復させるにはどのような手段が有効か、を明らかにすることである。流域は、積雪、土壌層(多層)、河川および湖沼に分けられる。水文モデルは、各層の水収支を表面流、不飽和浸透流、飽和浸透流の物理式で解析する。化学モデルは、土壌モデルの主要な素過程のほか、降水と樹冠との相互作用、根からの吸収なども考慮している。化学モデルで計算する状態変数は、土壌水・河川水の主要な交換性陽イオン、強酸性陰イオン、有機酸イオン、無機アルミニウム系物質、無機炭素系物質、 $H^+$ 、pH、および固相の各種イオンである。このモデルも、米国のPanther湖、Woods湖に適用されている。

### 3. 3 モデルの適用性の評価と今後の課題

酸性雨の陸水影響予測モデルは、酸性沈着を入力条件とし、流域の酸性化あるいは酸性物質中和のメカニズムを数式化して、現象を再現、予測しようとするものである。メカニズムを構成する素過程の数が多いほど、複雑な現象を再現する能力は高くなるが、モデル自体も複雑なものとなり、モデル化の方法と与えるパラメータの値の適切さが予測の信頼性を支配する。

今回、調査対象とした4つの酸性化予測モデルを比較すると、あらゆる現象を表現するが、パラメータが多く大量の情報が必要となるモデル(ILWAS、Birkenes)と、重要と考えられる現象のみを扱い、パラメータを極力少なくするモデル(ETD、MAGIC)に大別できる。これらのモデルは、種々の流域や湖沼に適用され、拡張・改良が図られてきており、モデル化の合理性と適用性の点で一定の評価を得ており、わが国の陸水影響予測においても、参照すべきモデルと考えられる。

表-1によれば、流域を鉛直の層構造として捉えること、土壌水・地下水流動を含む流域の水収支を考慮すること、化学反応のうち陽イオン交換・鉱物風化・陰イオン吸着・炭酸平衡を考慮することは、各モデルに共通しており、これらが陸水影響予測においてきわめて重要であることが分かる。

土壌水・地下水流動の取扱いはモデルによって差があり、ETDとILWASモデルはDarcy則、MAGICとBirkenesモデルはタンクモデルを用いている。土壌中では深度方向に交換性塩基の量や一次鉱物の量などの酸緩衝因子が変化するため、特に水平・鉛直方向の流量配分を的確に表すことが重要であるが、これらのモデルはいずれも河川への総流出量のみで検証されており、深度方向の流出成分までは検証されていない。

また、生物化学過程の取扱いもモデルによる差が大きく、Birkenesモデルが現状では考慮していないのに対し、ILWASモデルは詳細にモデル化している。これは、生物化学過程が重要でないということではなく、むしろモデル化が難しいためと思われる。陽イオン交換や陰イオン吸着のように、室内実験が比較的容易な現象については、Gapon式、Gaines-Thomas式、Langmuir式などが適用されているが、風化や生物化学過程などは、モデル化するためのデータや知見が不足しており、改良の余地を残している。この点は、ILWASモデルも例外ではない。一次鉱物の風化については、最近の研究で鉱物の種類や土壌中の鉛直分布を考慮した詳細なモデルも提案されており<sup>27)</sup>、

精度の向上が期待できるが、現在のところ、酸性物質の流域における挙動を最も詳細に解析できるのは、ILWASモデルであろう。

解析の時間単位は、MAGICモデルのみが1年で、他は1日である。したがって、MAGICモデルは融雪時の変化や季節変化等の解析には適用できないが、数百年といった長期予測には適したモデルである。またILWASモデルと同様、化学モデルに経験式の導入が少ないこともMAGICモデルの特徴で、そのために汎用性の高いモデルになっている。

### 3. 4. 予測精度を向上させるための課題

以上のモデルが開発された地域と日本とは地質・気象・植生などの条件が異なっており、この差を考慮してモデルを構築（もしくは既成モデルを適用）する必要がある。特に、各モデルに共通な傾向として、土壌との陽イオン交換反応による中和作用を詳細に表現し、鉱物の風化による中和作用を簡略に扱っている。これは、欧米で酸性化が生じている湖沼は先に述べたWoods湖のように土壌が未発達で、降水の滞留時間が短いため、反応速度の小さい風化より、反応速度の大きいイオン交換が卓越するためと考えられる。よって、わが国の流域に適用しうる予測モデルを開発するためには、この降水の滞留時間および鉱物の風化を詳細にモデル化する必要があると考えられる。

### 4. あとがき

以上の内外の文献を調査した結果を示す。

欧米で酸性雨の影響が顕在化している流域・湖沼の一般的な特徴は、酸性沈着量が多く（降水のpH4.5以下）、流域の土壌が未発達（氷河堆積物やボトゾルなどが多い）で酸緩衝能が小さいことであるが、本調査では、文献に報告されているこれらの河川・湖沼のデータを比較して、その特徴を明らかにした。

一方、酸性雨の影響が顕在化していないといわれるわが国の河川・湖沼の現況については、既存の水質資料の検討結果から、年平均値で巨視的にみた場合、1971-90年の20年間に河川・湖沼の酸性化傾向は現われていない。

また、酸性雨の陸水影響を予測するためには、流域の植生、土壌、河川、湖沼にかかわる物理、化学、生物学的な諸過程を解明し、これらを定量的に評価するモデルを構築する必要がある。中でも、流域の酸緩衝能に直接かかわる土壌の陽イオン交換、鉱物の風化、炭酸平衡などの化学反応、および降水の流域での滞留時間にかかわる土壌中の水流動の把握は、特に重要と考えられる。

欧米における予測モデルの開発は、1980年頃から活発に行われてきており、簡易なものから複雑なものまで、数多くのモデルが発表されている。その中でも、モデル化の合理性と現地への適用性の点で実績のある4つのモデル-Birkenes, ETD, MAGIC, ILWASは、わが国の予測を行う上でも参照すべきモデルと考えられる。これらのモデルは、それぞれ簡易予測、長期予測、詳細解析など、目的に応じて使い分ける必要がある。また、いずれのモデルも図-7に示す水質変化機構を完全にモデル化しているわけではなく、植生の影響や鉱物の風化など、十分検証されていない部分もあり、欧米とは水文・地形・地質条件が異なるわが国に適用するためには、さらに検討が必要である。

以上の調査結果を踏まえ、今後は、既往のモデルを参考にし、より信頼性の高いモデルを構築して、わが国における酸性雨陸水影響の長期予測を行う予定である。

### 参 考 文 献

- 1) 酸性雨検討会：酸性雨の実態調査，電力中央研究所研究報告 T91019, 1992
- 2) 内嶋善兵衛：酸性雨と日本，科学58, 444-448, 1988.
- 3) 池田英史，宮永洋一：酸性雨の陸水影響とその予測手法：現状と課題，電力中央研究所調査報告，U92055 1993

- 4) Oden, S.: The acidity problem- an outline of concepts. *Wat. Air Soil Pollut.* 6, 137-166, 1976
- 5) Haines, T. A.: Acidic precipitation and its consequences for aquatic ecosystem: a review, *Transactions of the American Fisheries Society*, 10, 669-707, 1981
- 6) Almer, B., Dickson, C., Ekstrom, C., Horstrom E and Miller U.: Effects of acidification on Swedish lakes, *AMBIO*, 3, 30-36, 1974
- 7) Schofield, C.: Acid precipitation; effects on fish. *AMBIO*, 5, 228-230, 1976
- 8) Electric Power Research Institute: The Integrated Lake-Watershed Acidification Study Vpl. 4; Summary of Major Results, 1984
- 9) 池田英史, 宮永洋一: 流域内での酸性降下物中和機構に関する検討-山地流域を対象とした水文・水質調査-, *環境工学研究論文集*, 29, 103-114, 1992
- 10) 大喜多敏一: 酸性雨 *環境情報化学* 13(4), 11-20, 1984
- 11) 建設省河川局監修: 日本河川水質年鑑, 山海堂, 1972-1992.
- 12) 環境庁水質保全局監修: 全国公共用水域水質年鑑, 芙蓉情報センター, 1973-1992.
- 13) Electric Power Research Institute: The Integrated Lake-Watershed Acidification Study Vol. 1: Model Principles and Application Procedures, 1983
- 14) 河田弘: 森林土壌学概論 博友社, 1988
- 15) Bolt G. H. and Bruggenwert M. G. M.: 土壌の化学 学会出版センター, 1980
- 16) Drever J. I.: The Geochemistry of Natural Waters (2nd. Ed.), Prentice-Hall, 1988
- 17) De Vries and Breeuwsma W.: The relation between soil acidification and element cycling. *Wat. Air Soil Pollut.* 35, 293-310, 1987
- 18) Reuss, J. O.: Simulation of soil nutrient losses resulting from rainfall acidity, *Ecol. Modell.* 11, 15-38, 1980.
- 19) Henriksen, A.: A simple approach for identifying and measuring acidification of fresh water, *Nature* 278, 542-545, 1979.
- 20) Wright, R. F. and Henriksen, A.: Restoration of Norwegian lakes by reduction in sulfur deposition, *Nature* 305, 422-424, 1983.
- 21) Christophersen, N., Seip, H. M. and Wright, R. F.: A model for streamwater chemistry at Birkenes, Norway, *Wat. Resour. Res.* 18(4), 977-996, 1982.
- 22) Rustad, S., Christophersen, N., Seip, H. M. and Dillon, P. J.: Model for streamwater chemistry of a tributary to Harp Lake, Ontario, *Can. Jour. Fish. Aquat. Sci.* (43), 625-633, 1986.
- 23) Nikolaidis, N. P., Rajaram, H., Schnoor, J. L. and Georgakakos, K. P.: A generalized soft water acidification model, *Wat. Resour. Res.* 24(12), 1983-1996, 1988.
- 24) Cosby, B. J., Wright, R. F., Hornberger, G. M. and Galloway, J. N.: Modelling the effects of acid deposition, *Wat. Resour. Res.* 21(11), 1591-1601, 1985.
- 25) Gherini, S. A., Mok, L., Hudson, R. J. M., Davis, G. F., Chen, C. W. and Goldstein, R. A.: The ILWAS model, formulation and application, *Wat. Air Soil Pollut.* 26, 425-459, 1985.
- 26) Beven, K. J. and Kirkby, M. J.: A physically-based variable contributing area model of basin hydrology, *Hydrol. Sci. Bull.* 24, 43-69, 1979.
- 27) Sverdrup, H. and Warfvinge, P.: PROFILE - a mechanistic geochemical model for calculation of field weathering rates, in "Water-Rock Interaction" Kharaka & Maest (ed.), Balkema Int. Publishers, Rotterdam, 585-590, 1992.