



Title	融雪にともなう河川水の一時的なpH低下
Author(s)	石井, 吉之; ISHII, Yoshiyuki; 小林, 大二 他
Citation	北海道大学地球物理学研究報告, 59, 15-24
Issue Date	1996-03-25
DOI	<a href="https://doi.org/10.14943/gbhu.59.15">https://doi.org/10.14943/gbhu.59.15</a>
Doc URL	<a href="https://hdl.handle.net/2115/14227">https://hdl.handle.net/2115/14227</a>
Type	departmental bulletin paper
File Information	59_p15-24.pdf



## 融雪にともなう河川水の一時的な pH 低下

石井 吉之・小林 大二

北海道大学低温科学研究所

(1995年12月20日受理)

### Episodic Acidification of Stream Water Caused by Snowmelt

Yoshiyuki ISHII and Daiji KOBAYASHI

Institute of Low Temperature Science, Hokkaido University

(Received December 20, 1995)

Episodic acidification of stream water was observed in a small forested watershed in the northern Hokkaido during the snowmelt season in 1995. Diurnal variation of pH in the stream water showed an inverted correlation with those of streamflow. Rainfall-runoff event at the beginning of the snowmelt season had the smallest pH from 7.1 to 6.1. With the decrease of pH value, alkalinity and the concentrations of  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$  and  $\text{Mg}^{2+}$  of the stream water decreased. Under this condition, the decline of alkalinity was largest due to the base cation dilution. The  $\text{H}^+$  concentration increase due to the decline of pH was small compared to the concentration decrease of other ions. Therefore, it is difficult to explain the pH declination by ion concentration variation, and it is necessary to consider the role of dissolved carbonate in the stream water. The variation of pH with streamflow categorized to 'preceed', 'delayed' and 'simultaneous' type. The 'delayed' type was most frequently observed in the intensive snowmelt period, and the lag was 2 to 3 hours.

### I. はじめに

日本を含む東アジア地域は北欧や北米大陸東部と並んで酸性降下物の多い地域として知られる。環境庁が行なった2ヶ年間(1986年4月~1988年3月)の調査によれば、日本全国29地点における降水の平均pH値は4.7で、欧米2地域で報告された値と同程度であった(Hara, 1991)。スカンジナビア半島やカナダ東部などでは、すでに酸性降水が原因とみられる被害が陸水・森林・土壌等の生態系に現れているのに対し、日本ではまだ被害が顕在化していない。その理由として従来より流域内での酸緩衝力の強さが指摘されている。最近では緩衝の場を直接確かめようとする試みもなされている(大類ほか, 1995; Ohte *et al.*, 1995)。

冬期にほとんど融雪が起きない寒冷積雪地域では、冬期間中の酸性降下物は積雪内に蓄積され、融雪初期にこれらが濃縮されて融雪水とともに流出する。このため河川水や湖沼水のpHが一時的に急低下し、陸水生態系に深刻な影響を与えている(Johannessen and Henriksen, 1978; Andrew *et al.*, 1980; 鈴木, 1989)。この現象は“snowmelt acidic shock”と呼ばれ、積雪地帯では酸性降水以上に

重要な環境問題になっている。

著者らはカナダ東部の森林小流域において、融雪出水に伴う河川水の pH 変化を連続測定した(石井ほか, 1992; 鈴木ほか, 1992)。pH は流量の日周変動と逆比例するように変化し、融雪期直前の 6.7 から最大で 5.1 まで低下した。同様の観測を北海道北部の森林小流域(母子里試験地)で行なったところ、同じように流量変化と逆比例する pH 変化が観測された。ただし、pH の変化幅はカナダ東部と比べて小さく、融雪期直前の 6.8 から最大で 6.3 までの低下であった。一般に、降雨や融雪によって河川が増水すると、川水のアルカリ度が一時的に減少することが知られている(DeWalle and Swistock, 1994)。カナダや北海道で観測された pH 変化はこの現象と密にかかわっている。アルカリ度が減少する要因としては、1) event water の増加に伴うカチオンの希釈、2)  $\text{SO}_4^{2-}$  と  $\text{NO}_3^-$  の流出負荷量の増加などが考えられている。

本研究では、1995 年の融雪期に母子里試験地において、再度、川水の pH やアルカリ度等の化学成分を連続的に観測し、pH の日及び時間変化やその要因を化学成分の分析結果をもとに考察した。

## II. 観 測 方 法

母子里試験地は石狩川支流雨龍川の源頭部(北緯  $44^{\circ}22'$ 、東経  $142^{\circ}17'$ )に位置する(Fig. 1)。流域面積は  $1.3 \text{ km}^2$ 、標高は 290~545 m、平均勾配は約  $17^{\circ}$  である。表層基盤の地質は新第三紀の安山岩質凝灰角礫岩で(今西, 1956)、この上を厚さ 3~5 m の風化火山灰質土壌が覆っている。森林はエゾマツ、トドマツ、ミズナラ、ダケカンバ、イタヤ等の疎な針広混交林からなり、林床には高さ 1 m ほどのチシマザサが密生する。北海道大学雨龍演習林(1990)の気象資料によると、1980~1989 年の年

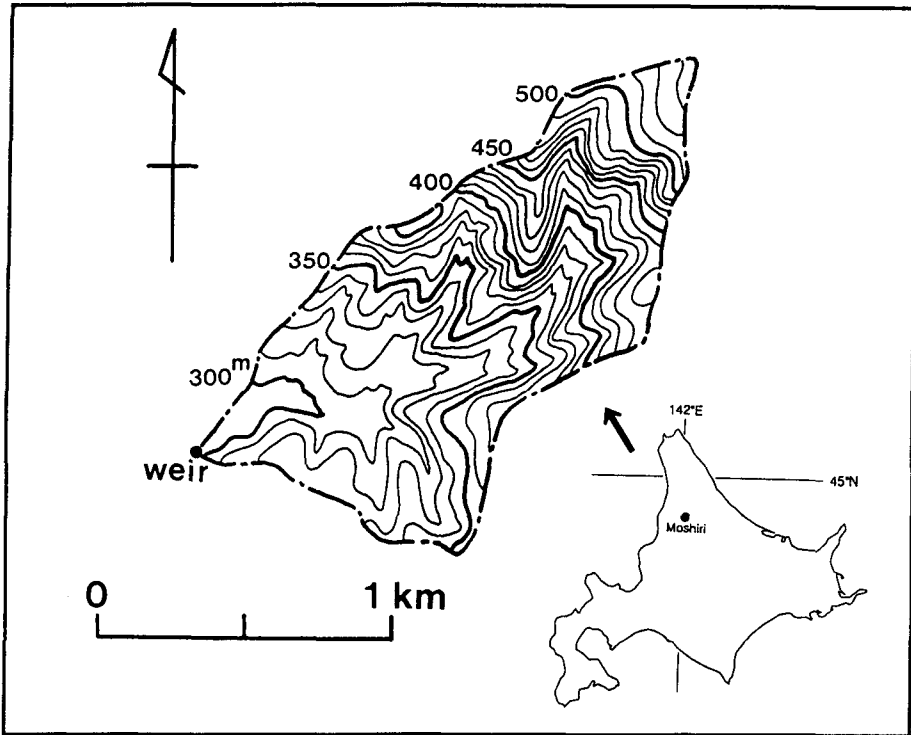


Fig. 1. Location map of the Moshiri experimental basin.

平均気温、年降水量、最深積雪の10ヶ年平均値はそれぞれ2.4℃、1385 mm、205 cmであり、冬期の多雪寒冷な気候がこの地域の特徴である。

観測は1995年3月中旬から5月中旬にかけて行なった。流域末端では河道に全幅堰(2 m幅)と直角三角堰を二段構えで設置し、高い精度で河川流量の観測を行なった。測定可能範囲は $2 \times 10^{-3} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ から $1.0 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ である。同じ場所で河川水の水温、比電導度、pHをそれぞれ白金測温抵抗体、導電率計(DKK製WD-36D)、pH計(DKK製6430型ガラス電極)によって自記測定し、また、河道近傍の開地で雪面上1.5~2 mの気温を自記測定した。これらの観測値は10分間隔でデータロガーに収録した。さらに、自動採水器(ISCO製2700型)を用いて河川水を毎日朝夕2回採取した。採取時刻は流量の日最小時(5~6時)と日最大時(17~18時)にほぼ対応するように設定した。試水は実験室に持ち帰りpHと比電導度を再計測した後、サプレッサー式イオンクロマトグラフィー(DIONEX製2000i/SP)により主要イオン濃度( $\text{Na}^+$ 、 $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{K}^+$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$ )を、硫酸滴定法(平沼産業製COM-500)によりpH4.3アルカリ度を分析した。なお、採水した期間は3月30日から5月12日までである。流量観測地点から500 m程離れた盆地中央の気象観測露場では、積雪深と降水量をそれぞれ超音波積雪深計といっ水式雨雪量計を用いて観測した。

### III. 観 測 結 果

#### 1. 融雪期間中のpH変化

3月16日から5月1日までの積雪深、降水量、気温、河川流量、pHの変化をFig.2に示す。3月1日時点での積雪深は136 cm(水当量461 mm)で例年同時期よりやや少なめであった。本格的な融雪は3月29日頃から始まるが、それ以前の3月16、17日にも気温が一時的に上昇し21 mmの降雨が観測された。この時の河川増水は降雨から30時間以上も遅れて応答した。しかしながら、川水のpHは6.1まで低下し全期間を通じて最も低い値を示した。3月29日頃から日最高気温が0℃以上となって融雪が始まり、河川流量にも顕著な日周変化が見られるようになった。4月22日頃までは日平均気温が0℃前後を推移し、気温が高い日には顕著な河川増水が起きた。4月22日以降は日平均気温が日毎に上昇するようになり、それに応じて河川流量も著しく増加した。露場での消雪日は5月1日であった。

川水のpHは流量の日周変化と逆比例するように変化し、両者の変化には明瞭な鏡像関係が認められる。特にpH低下が著しいのは3月31日、4月7日、4月19日および融雪末期(4月21日以降)の4期間であり、この時の川水のイオン濃度を低下前と比較してTable1に示した。アニオンでは $\text{Cl}^-$ 、カチオンでは $\text{Na}^+$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ の組成比が大きく、pHの低下時にはこれらの濃度低下が顕著であった。酸性化寄与物質と考えられる $\text{NO}_3^-$ や $\text{SO}_4^{2-}$ の濃度変化は増減両方の場合があるが、いずれにしても変化量は小さい。また、 $\text{K}^+$ にはほとんど変化がなく、 $\text{NH}_4^+$ は組成比そのものが微小なので省略した。Table1にはアルカリ度と $\text{H}^+$ 濃度(pH値からの計算値)を併記したが、アルカリ度低下はイオン濃度の低下以上に大きく、 $\text{H}^+$ の増加はわずかであった。

#### 2. pHの時間変化

融雪期直前の3月17~20日に起きた21 mmの降雨に伴う川水のpH低下のようすを、降水量、河川流量、比電導度とともにFig.3に示す。川水採取を始める前であったためイオン濃度変化のようすはわからない。17日正午頃から降雨が始まり、初めの数時間は流量のわずかな増加と比電導度の減少およびpHの低下兆候が見られる。その後、比電導度が $10 \mu \text{Scm}^{-1}$ 程度増加し、川水中のイオン総量が

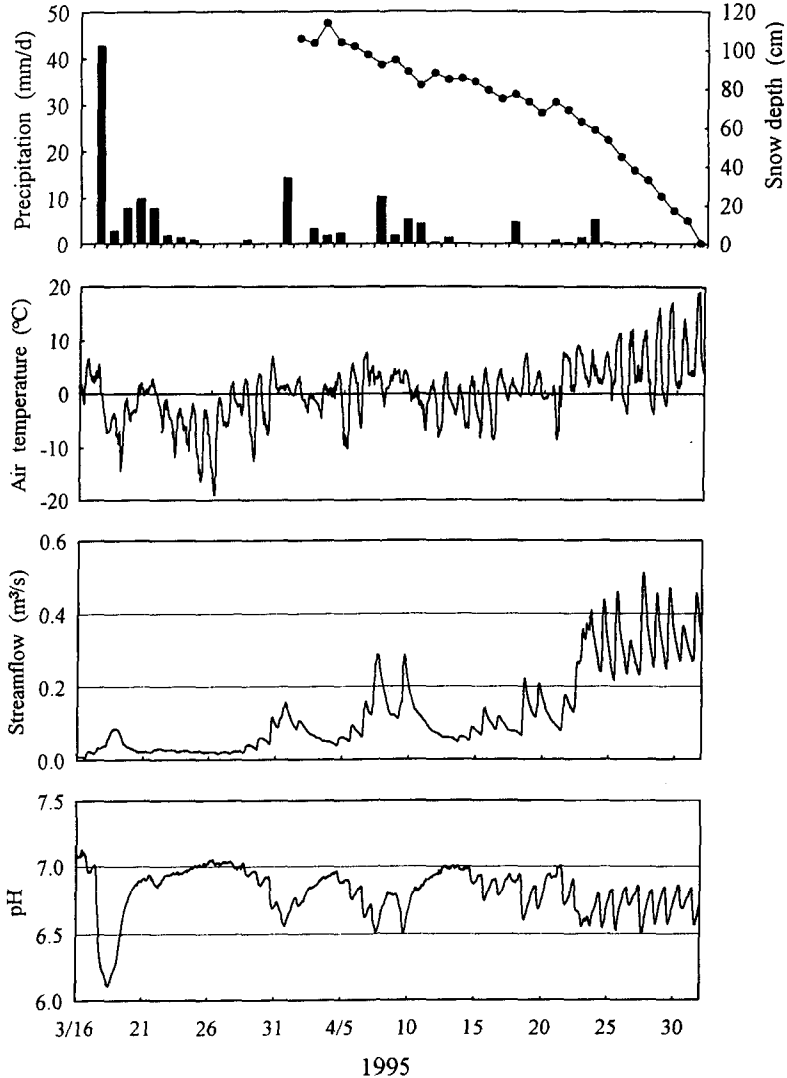


Fig. 2. Daily variations of snow depth, precipitation, air temperature, streamflow and pH during the snowmelt season in 1995.

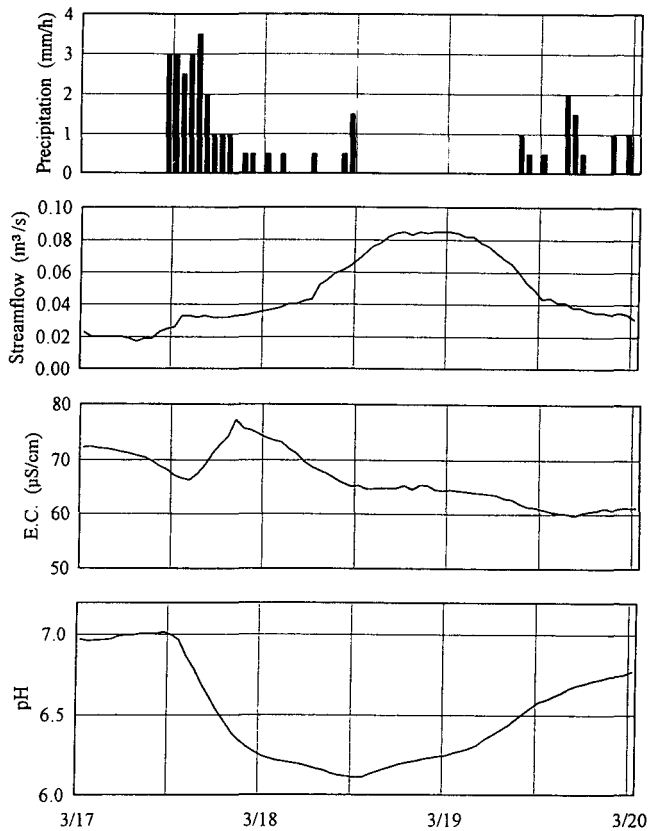
増加するにつれて pH が著しく低下した。しかし、流量変化はほとんど起きていない。降り始めから 24 時間後の 18 日正午には、比電導度は降雨前の長期的な低下傾向にもどり、pH は極小となる。流量はこれ以前から徐々に増加し始めているが、極大となるのは 18 日夕刻以降で変化は緩慢である。総体的に見ると降雨に対する応答時間は 比電導度 < pH < 流量 の順であった。

融雪期中頃の 4 月 14~16 日における同様の変化を Fig. 4 に示す。この期間は晴天日が続く、典型的な日射による融雪が起きた。積雪深は 84~75 cm である。流量は毎日正午過ぎから増え始め、17~18 時に極大となる日周変化を繰り返す。これと呼応して比電導度や pH が逆向きの日周変化を起こす。ところが、比電導度変化は流量変化との時間差がほとんどないのに対し、pH 変化は 2~3 時間も遅れて現れ、融雪に対する応答時間は 流量 = 比電導度 < pH の順であった。なお図には示さないが、融雪期前期の 4 月 5~7 日の連続した晴天日にも、同じような pH 変化の遅れが観測された。

**Table 1.** Changes of major ion concentrations during the four intensive acidification periods.

date	time	Cl <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	ANC	H <sup>+</sup>
March 29	15:00	247	11	52	173	15	116	176	312	0.1
	31 18:00	225	26	53	152	15	94	150	231	0.2
		Δ	22	-15	-1	21	0	22	81	-0.1
April 4	18:00	217	16	42	160	14	94	155	293	0.1
	7 18:00	184	20	45	130	14	64	112	190	0.3
		Δ	33	-4	-3	30	0	30	103	-0.2
April 14	06:00	195	18	39	148	12	84	144	272	0.1
	19 17:00	164	10	35	134	11	76	125	229	0.2
		Δ	31	8	4	14	8	19	43	-0.1
April 21	05:00	193	13	38	152	12	88	145	264	0.1
	27 17:00	141	13	34	114	10	53	93	157	0.3
		Δ	52	0	4	38	2	35	107	-0.2

Concentration unit are in  $\mu\text{eq}\cdot\text{L}^{-1}$ . ANC is alkalinity and Δ is calculated from upper row minus lower one.



**Fig. 3.** Hourly variations of precipitation, streamflow, specific electric conductivity (E.C.) and pH for March 17–20, 1995

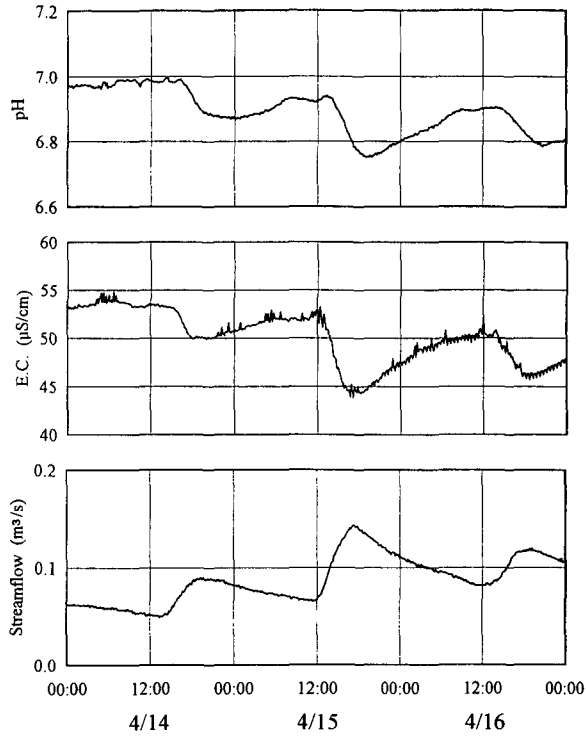


Fig. 4. Hourly variations of pH, E.C. and streamflow for April 14-17, 1995

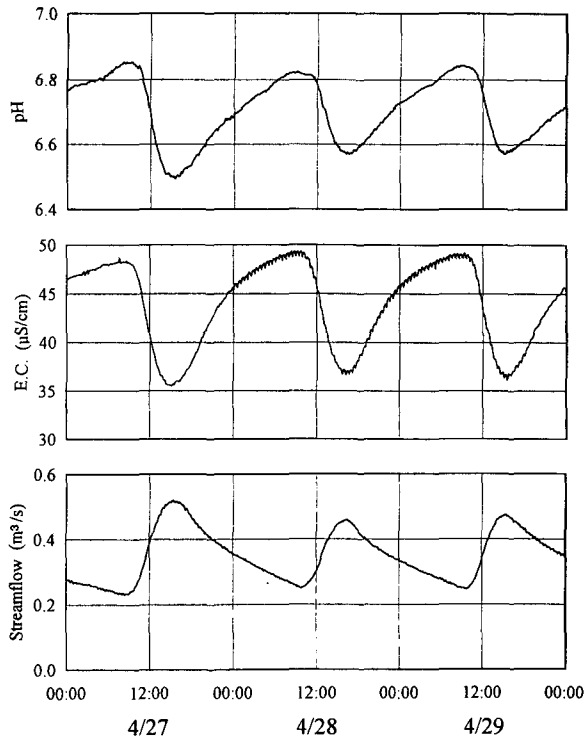


Fig. 5. Hourly variations of pH, E.C. and streamflow for April 27-30, 1995

融雪期末期の4月27~29日における同様の変化を Fig. 5 に示す。この期間も連続した晴天日が続き、積雪深は 33~17 cm まで低下した。流量・比電導度・pH のそれぞれが日変化幅を増し、極大（或は極小）値からの減衰が大きくなった。このため Fig. 4 に比べ日周変化がより明瞭である。また、流量変化とほぼ同時刻に pH 変化が起こり、Fig. 4 で見られたような遅れはない。融雪に対する応答時間は 流量=比電導度=pH であった。

Fig. 4 と Fig. 5 に示された期間中のイオン分析結果をまとめて Table 2 に示す。採水頻度が1日2回のため、必ずしも河川流量の日最大最小時刻とは対応しないが、Table 1 と同じような傾向が1日の変化にも現れている。イオン濃度の変化量は融雪末期の方が中期よりも大きく、比電導度の測定結果とも合致する。

**Table 2.** Chemical compositions of stream water for April 14-17 and 27-30, 1995.

date	time	Cl <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	ANC	H <sup>+</sup>	
April 14	06:00	195	18	39	148	12	84	144	272	0.1	
	18:00	180	18	37	139	12	76	133	259	0.1	
	15	06:00	188	18	39	142	11	79	136	258	0.1
		18:00	160	18	36	135	12	86	136	227	0.2
	16	06:00	187	17	39	149	13	94	147	241	0.1
		18:00	168	17	36	141	12	90	143	247	0.1
April 27	05:00	176	9	37	140	11	71	124	219	0.2	
	17:00	141	13	34	114	10	53	93	157	0.3	
	28	05:00	179	11	38	141	11	69	121	212	0.2
		17:00	140	11	33	116	10	54	96	172	0.3
	29	05:00	178	9	37	141	11	70	123	218	0.2
		17:00	142	10	34	117	10	55	97	174	0.3

Concentration unit are in  $\mu\text{eq}\cdot\text{L}^{-1}$ . ANC is alkalinity.

## IV. 考 察

### 1. pH とアルカリ度の変化

川水の pH が低下する時にはアルカリ度や Cl<sup>-</sup>, Na<sup>+</sup>, Ca<sup>2+</sup>, Mg<sup>2+</sup> 等のイオン濃度が低下し、特にアルカリ度の低下が著しい。アルカリ度と pH の関係を Fig. 6 に、流量とアルカリ度の関係を Fig. 7 に示すが、アルカリ度は pH との相関性が高く、流量との逆比例関係も明瞭である。このことから、pH 変化と同じように流量変化に応じた増減をしているとみなされる。アメリカ東部でも同じような観測結果が報告されている (O'Brien *et al.*, 1993)。そこで、こうしたアルカリ度の変化をひき起こす要因をイオン濃度変化から考えてみる。

いま、電気的中性条件を仮定し、川水中でのイオン平衡を次式で考える。

$$\begin{aligned}
 & [\text{H}^+] + [\text{Na}^+] + [\text{NH}_4^+] + [\text{K}^+] + [\text{Ca}^{2+}] + [\text{Mg}^{2+}] \\
 & = [\text{Cl}^-] + [\text{NO}_3^-] + [\text{SO}_4^{2-}] + [\text{HCO}_3^-]
 \end{aligned}
 \tag{1}$$

ここに、[ ] は各イオンの当量濃度を示す。イオン平衡にはこのほか有機酸や Fe<sup>n+</sup>, Al<sup>n+</sup> なども関与するが、濃度は小さいと判断しここでは考慮しない。(1)式を次のように書き換える。

$$[\text{HCO}_3^-] - [\text{H}^+] = \Sigma C_b - \Sigma C_a
 \tag{2}$$

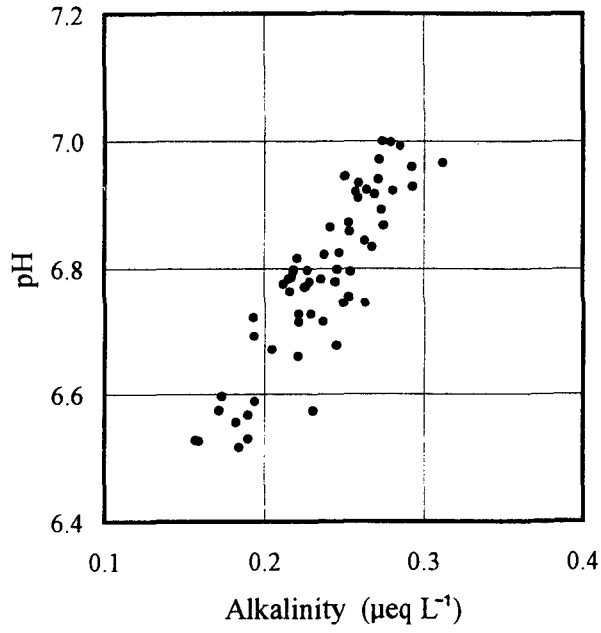


Fig. 6. Relationship between pH and alkalinity.

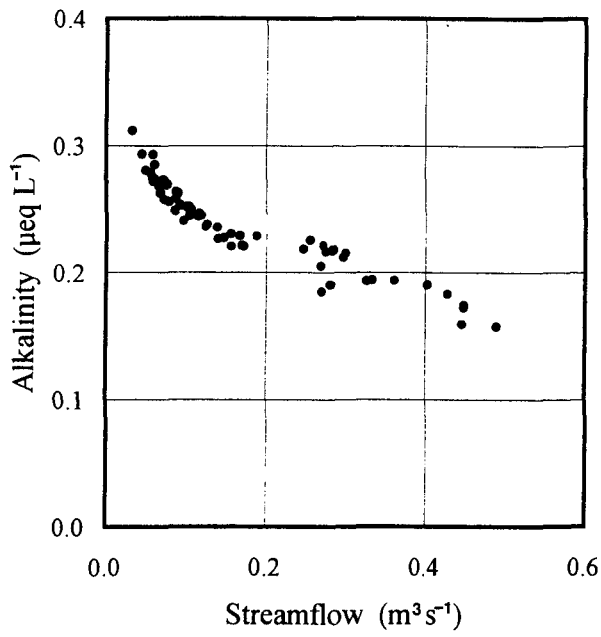


Fig. 7. Relationship between alkalinity and streamflow.

$$\begin{aligned}\text{ただし, } \Sigma C_b &= [\text{Ca}^{2+}] + [\text{Mg}^{2+}] + [\text{Na}^+] + [\text{K}^+] + [\text{NH}_4^+] \\ \Sigma C_a &= [\text{SO}_4^{2-}] + [\text{NO}_3^-] + [\text{Cl}^-]\end{aligned}$$

である。アルカリ度(ANC)は(2)式の右辺で定義されることもある(Schaefer *et al.*, 1990; DeWalle and Swistock, 1994; 坂田ほか, 1993)が、ここでは半谷・小倉(1985)に従い、

$$\text{ANC} \propto (\Sigma C_b - \Sigma C_a) \quad (3)$$

と考える。(3)式によれば、総カチオン濃度( $\Sigma C_b$ )の減少が優越するか、総アニオン濃度( $\Sigma C_a$ )の増加が優越する場合にアルカリ度が減少することになる。融雪期にはイオン濃度の小さい融雪水が多量に河川に加わり、川水のイオン濃度は総じて減少する。しかしながら、Table 1 から明らかのように、 $\text{Ca}^{2+}$ や $\text{Mg}^{2+}$ の濃度低下が顕著な分だけ $\Sigma C_b$ の減少が $\Sigma C_a$ の減少を上回る。その結果としてアルカリ度が減少している。

pHとアルカリ度は流量変化に伴って同じように変化するが、pH低下に伴う $\text{H}^+$ 濃度の増加は他イオンの濃度変化と比べ著しく小さい。したがって、イオン濃度変化だけからpHの変化を説明することは困難である。川水中には炭酸物質が $\text{CO}_2$ 、 $\text{H}_2\text{CO}_3$ 、 $\text{HCO}_3^-$ 、 $\text{CO}_3^{2-}$ の形で存在しており、これらの割合が変化すればpHも変化する。このためpH変化のメカニズムは、炭酸物質の挙動を考慮して議論する必要があり、今後の課題である。なお、Ohte *et al.*(1995)は水中に溶存する二酸化炭素の分圧( $p_{\text{CO}_2}$ )の変化からpH変化を論じている。

## 2. 流量・比電導度・pHの変化の非同時性

流量変化に呼応するpH変化の現れ方は、流量変化を基準にすると3月17~20日が「先行型」、4月14~16日が「遅れ型」、4月27~29日が「同時型」に分類される。3月17~20日の場合には比電導度の変化もまた先行型で、pH変化よりも早く現れた。観測露場に設置された積雪ライシメータでは、21mmの降雨に対して約20mmの積雪下面流出が観測された。融雪期のごく初期であるため、河道上或はその近傍の積雪中に蓄積された一冬の海塩性降水物や酸性降水物が濃縮されて河川に流出し、比電導度の増加とそれに伴うpHの著しい低下をひき起こしたと考えられる。規模は小さいがいわゆる“snowmelt acidic shock”に相当する現象であった。地中浸透した水の多くが貯留量増加に費やされ、川まで到達した量が少なかったために流出率が非常に小さくなった。このことが流量の応答を30時間以上も遅れさせたと考えられる。

一方、4月14~16日と4月27~29日の場合はいずれも比電導度の変化は同時型で、融雪水による川水の希釈によって比電導度が低下する。同じ様な比電導度変化が起きているにもかかわらず、前者の場合のpH変化が遅れ型になる理由は現時点では不明である。川水温との関係も調べたがはっきりした傾向はつかめなかった。炭酸物質の挙動が影響していることも十分考えられる。しかしながら、このようなpH変化の遅れは4月5日頃から20日すぎまで頻繁に見られ、同時型の方が例は少ない。また、流域から完全に雪が消えた5月31日~6月1日の約50mmの降雨出水時にも遅れ型のpH変化が観測されるので、遅れ型が現れるのは積雪に起因するのではなさそうである。少なくとも母子里試験地においては、降雨・融雪出水時の川水のpH変化は遅れ型が一般的だと言える。

## V. ま と め

北海道北部の森林小流域において、1995年融雪期に川水のpHや化学成分を連続的に観測した。そ

の結果、以下の知見が得られた。

1) 川水の pH は流量の日周変化と逆比例するように変化した。融雪初期の降雨時には pH が 7.1 から 6.1 まで低下し、融雪期間を通して最も低い値となった。

2) 顕著な pH 低下時にはアルカリ度や  $\text{Cl}^-$ 、 $\text{Na}^+$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$  の濃度が低下した。中でもアルカリ度の低下は最も大きく、総カチオン濃度の低下が総アニオン濃度の低下を上回ることによって生じている。

3) pH 低下に相当する  $\text{H}^+$  濃度増加は他イオンの濃度変化に比べ著しく小さい。したがって、イオン濃度変化だけから pH 低下を説明することは困難であり、水中に溶存する炭酸物質の挙動を考慮する必要がある。

4) 流量の時間変化に対応する pH の変化には、「先行型」、「遅れ型」、「同時型」の 3 通りが観測された。このうちの「遅れ型」が融雪最盛期に最も数多く観測され、遅れ時間は 2～3 時間であった。

**謝辞** この研究は北海道大学雨龍地方演習林において行なわれた。笹賀一郎林長をはじめとする演習林教職員の諸氏には様々な便宜をはかって頂いた。北大低温研の石川信敬助教授と兒玉裕二助手からは有益な助言を、また、北大大学院生の竹内由香里（現・防災科学技術研究所）、中林宏典（現・日本気象協会）、谷口健志郎の諸氏には現地観測に協力して頂いた。記して感謝致します。この研究の一部は文部省科学研究費（課題番号 06455002、代表・石川信敬）および文部省特定研究経費（代表・小林大二）によった。

## 文 献

- Andrew, H., S. Brandt and B.A. Smith, 1980. The Case Against the Rain. *A Report on Acid Precipitation and Ontario Programs for Remedial Action*, Ministry of the Environment, Ontario, Canada.
- DeWalle, D.R. and B.R. Swistock, 1994. Causes of episodic acidification in five Pennsylvania streams on the northern Appalachian Plateau. *Water Resour. Res.*, **30**, 1955–1963.
- 半谷高久・小倉紀雄, 1985. 水質調査法(改訂2版). 丸善, 378 pp.
- Hara, H., 1991. Acid precipitation chemistry of Japan. *Jap. J. Limnology*, **52**, 125–126.
- 北海道大学雨龍地方演習林, 1990. 雨龍地方演習林の気象報告. 母子里観測所. 演習林業務資料, **22**, 43–88.
- 今西茂, 1956. 五万分の一地質図幅説明書「名寄」. 北海道立地下資源調査所, 45 pp.
- 石井吉之・鈴木啓助・兒玉裕二・小林大二, 1992. カナダ東部, 北方針葉樹林地における融雪水の流出 I – 融雪特性と流出応答 –. 低温科学物理篇, **51**, 77–92.
- Johannessen, M. and A. Henriksen, 1978. Chemistry of snow meltwater: Changes in concentration during melting. *Water Resour. Res.*, **14**, 615–619.
- O'Brien, A.K., K.C. Rice, M.M. Kennedy and O.P. Bricker, 1993. Comparison of episodic acidification of Mid-Atlantic Upland and Coastal Plain streams. *Water Resour. Res.*, **29**, 3029–3039.
- 大類清和・相場芳憲・生原喜久雄, 1995. 森林小集水域での水質変化の過程. 水文・水資源学会誌, **8**, 367–381.
- Ohte, N., N. Tokuchi and M. Suzuki, 1995. Biogeochemical influences on the determination of water chemistry in a temperate forest basin: Factors determining the pH value. *Water Resour. Res.*, **31**, 2823–2834.
- 坂田康一・福山龍次・山根仁志, 1993. 北海道の酸性降下物の陸水酸性化影響調査 – 融雪期の小河川における酸性化 –. 北海道環境科学研究センター所報, **20**, 61–69.
- Schaefer, D.A., C.T. Driscoll, R.V. Dreason and C.P. Yatsko, 1990. The episodic acidification of Adirondack lakes during snowmelt. *Water Resour. Res.*, **26**, 1639–1647.
- 鈴木啓助, 1989. カナダ東部における融雪水の酸性化とその影響に関する研究. 地学雑誌, **98**, 491–495.
- 鈴木啓助・石井吉之・兒玉裕二・小林大二・H.G. Jones, 1992. カナダ東部, 北方針葉樹林地における融雪水の流出 II – 化学物質の流出過程 –. 低温科学物理篇, **51**, 93–108.