

原著論文

岡山におけるろ過式採取法による降水の観測 (IV)
-2006年7月～2011年6月-江國真幸¹・渡邊恵三²・山下栄次³・松尾太郎⁴・正木智美⁴Measurement of the precipitation by the filtration type sampling method in Okayama city (IV).
-From July 2006 to June 2011-Masaki EKUNI¹, Keizo WATANABE², Eiji YAMASHITA³, Taro MATSUO⁴ and Tomomi MASAKI⁴

I. はじめに

技術科学研究所は、加計学園(岡山理科大学)自然植物園との共同研究で、岡山理科大学生態システム園における酸性雨の実態を把握する目的で、2000年5月から現在(2011年6月)も継続して、降水のモニタリングを行っている。

2000年5月から2006年11月までの測定のための、1雨毎の降り始めから8mmまでの初期降雨を採取し、森林空地、森林内、岡山理科大学10号館屋上における短期変動を観測することであった。降水の採取にはレインゴーランドⅡを用いた。レインゴーランドⅡの詳細と基礎実験については、既報(小林他 2003)に記した。またこの観測結果は、小林他(2003, 2004, 2007), 満崎他(2008), 山下他(2009)として報告した。

2006年3月からは、降水の長期影響を明らかにすることを目的とし、降水採取方法をろ過式採取法へと変更した。採取場所は、森林空地、森林内、岡山理科大学10号館屋上である。ろ過式採取法の詳細と基礎実験については、既報(渡邊他 2009a)に記した。また観測結果については、渡邊他(2009b), 山下他(2011)として報告した。渡邊他(2009b)では、2006年9月から2008年8月の2年間、2週間毎に降

水を採取し分析した。山下他(2011)では、2007年1月から2009年12月の3年間、2週間毎に降水を採取し分析した結果について、降水量別に解析した結果を報告した。

今回は、2006年7月から2011年6月の5年間について、2週間毎に採取した降水のpH(水素イオン濃度指数), EC(電気伝導度), イオン濃度, 降下量の時系列変化(年変化, 月変化), 相関分析について報告する。なお本報告の単位は、環境省酸性雨モニタリング報告書(2009)に従い、ECの単位を $\mu\text{S}/\text{cm}$ から mS/m に、イオンの単位を mg/l から $\mu\text{mol}/\text{l}$ に換算して示した。また、pH, EC, イオン濃度の平均値は、酸性雨調査法研究会(1993)に従い、降水量で重み付けした加重平均にて算出した。

II. 方法

1. 酸性雨ろ過式採取装置

酸性雨ろ過式採取装置(以下ろ過式と記す)は、酸性雨調査法研究会(1993)に記載されている降水採取装置で、その詳細は、既報(渡邊他 2009a, 2009b)に記した。本研究に使用した採取装置は、ADVANTEC社製、酸性雨採取装置ACDR-047型である。ろ紙は、ADVANTEC社製メンブレンフィル

1) 岡山理科大学総合情報研究科生物地球システム専攻

2) 岡山理科大学工学部応用化学科, (現)エクセルバック・カバヤ(株)

3) 岡山理科大学技術科学研究所

4) 加計学園(岡山理科大学)自然植物園

ターA080A047A 孔径0.80 μ mを使用した。本装置は、湿性沈着物と乾性沈着物を合わせた総沈着物の採取を目的としたものである。また、酸性雨採取装置ACDR-047型3台の並行実験を行い(渡邊他2009a)、機器誤差の少ない降水採取装置であることが明らかとなった。

2. 降水採取場所、採取期間、採取頻度、検体数、解析期間

降水採取場所は、岡山理科大学生態システム園内に2箇所(Sta. 1, Sta. 2), 岡山理科大学構内に1箇所(Sta. 3)である。図1(a)~(c)に降水採取場所を、図2(a)~(c)に各Sta. の周囲と上空の様子を示した。Sta. 1は標高112mにあり、周りは樹木が少なく、上空が開けている森林空地である。Sta. 2は標高136mにあり、周りに樹木が生い茂っている山道内で、上空は樹木で覆われている森林内である。Sta. 3は標高75mにあり、岡山理科大学内でも南側に位置している10学舎屋上である。Sta. 1とSta. 2の水平距離は65mである。Sta. 1とSta. 3の水平距離は1650mである。

採取期間は、Sta. 1, Sta. 2, Sta. 3共に2006年7月14日~2011年7月4日である。採取頻度は、原則2週間である。検体数は、Sta. 1とSta. 2は120検体、Sta. 3は123検体である。欠測数は、Sta. 1とSta. 2は10検体、Sta. 3は7検体である。解析期間は、月変化は2006年7月14日~2011年7月4日までの5年間である。年変化は2006年12月28日~2011年1月4日までの4年間である。

3. 測定項目及び方法

測定項目は、降水採取量(ml), 降水量(mm), 水素イオン濃度指数(pH), 電気伝導度(EC, mS/m), 陽イオンと陰イオン(μ mol/l)である。

降水採取量(ml)はメスシリンダーを用いて計量した。

pHとECの測定には、堀場製作所製、pH/cond meter D-54, pH glass electrode 9669-10D(2006年7月26日~2007年8月8日), pH glass electrode 9611-

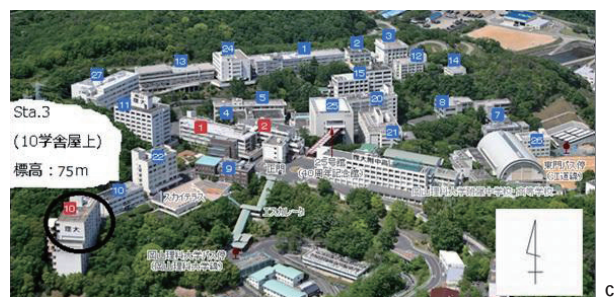
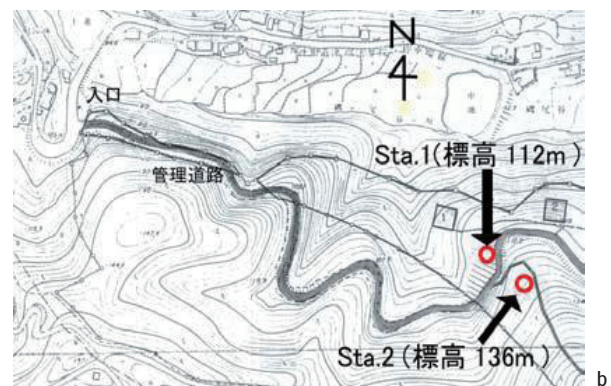


図1. 降水採取場所の位置図。(a)測定場所の位置図。(b)生態システム園内図。(c)岡山理科大学構内図。

10D(2007年8月24日~2011年7月6日), EC glass electrode 3574-10Cを用いた。

陽イオンと陰イオンの分析は、イオンクロマトグラフ法を用いた。使用した分析器は、島津製作所製パーソナルイオンアナライザPIA-1000である。測定したイオンは、 Na^+ , NH_4^+ , K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} , Cl^- , NO_3^- , SO_4^{2-} である。

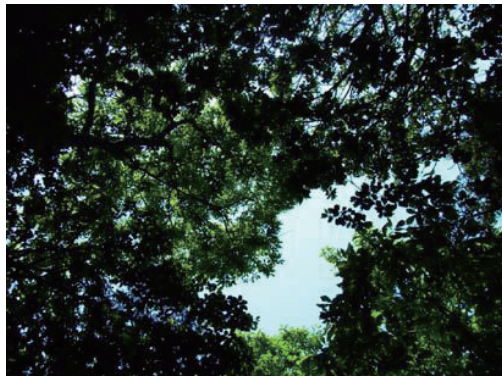
イオンの定性及び定量方法、分析カラム、標準溶液の成分濃度、繰り返し精度実験結果は、既報(渡邊ほか 2009a)に記した。



(a) Sta.1



(b) Sta.2



(c) Sta.3



図2. 各Sta.の周囲と上空の様子. Sta. 1は森林内の「空き地」. Sta. 2は森林内. Sta. 3は岡山理科大学10学舎「屋上」.

4. データ処理方法及び解析方法

降水量は降水採取量(ml)から次式より求めた.
単位はmmである.

降水量(mm) = 降水採取量(ml) / 開口面積(cm^2) $\times 10$

ただし, 降水採取量: $\text{ml} = \text{cm}^3$, 開口面積: $10 \times 10 \times 3.14 \text{ cm}^2$ である.

pHの降水量加重平均値は, 次式より求めた.

$$-\log \frac{\sum (10^{-\text{pHi}} \times \text{Qi})}{\sum \text{Qi}}$$

ただし, pHi: 測定値, Qi: 降水量(mm)である.

EC, イオン濃度の降水量加重平均値は, 次式より求めた.

$$\frac{\sum (\text{ai} \times \text{Qi})}{\sum \text{Qi}}$$

ただし、 ai : EC(mS/m)とイオン濃度($\mu\text{mol}/\ell$),
 Qi : 降水量(mm)である.

非海洋由来成分(non sea salt : nss)の計算方法は、
 酸性雨調査法研究会(1993)を参考にした. nssを算出
 する理由は、海塩由来の Ca^{2+} と SO_4^{2-} の値を除いた値
 を得るためである. nss-Ca^{2+} と nss-SO_4^{2-} は、以下の
 式より求めた. 単位は $\mu\text{mol}/\ell$ である.

$$\text{nss-Ca}^{2+}(\mu\text{mol}/\ell)=[\text{Ca}^{2+}]-0.038\times[\text{Na}^+]$$

$$\text{nss-SO}_4^{2-}(\mu\text{mol}/\ell)=[\text{SO}_4^{2-}]-0.251\times[\text{Na}^+]$$

ただし、 $[\text{Na}^+]$: Na^+ 測定値($\mu\text{mol}/\ell$), $[\text{Ca}^{2+}]$:
 Ca^{2+} 測定値($\mu\text{mol}/\ell$), $[\text{SO}_4^{2-}]$: SO_4^{2-} 測定値($\mu\text{mol}/\ell$)
)である.

降下量は、以下の式より求めた. 単位は $\text{mmol}/\text{m}^2/2\text{weeks}$
 である.

$$\text{降下量}(\text{mmol}/\text{m}^2/2\text{weeks})=\text{イオン濃度}(\mu\text{mol}/\ell)\times$$

$$\text{降水量}(\text{l}/\text{m}^2/2\text{weeks})\times 10^{-3}$$

降水量, pH, EC, イオン濃度の月平均値は、測
 定値が属している同じ年月のデータを集め、その平
 均を算出した. 降水量は算術平均を、pH, EC, イオ
 ン濃度は降水量加重平均を算出した.

降水量, pH, EC, イオン濃度の月変化は、月平
 均値が属している月の、5ヶ年のデータを集め、
 その平均を算出した値を用いた. 降水量は算術平
 均を、pH, EC, イオン濃度は降水量加重平均を算
 出した.

pH, EC, イオン濃度の年平均値は、月平均値が
 属している年の、12カ月分のデータを集め、降水
 量加重平均を算出した.

降水量, 降下量の年積算値は、測定値の1年間積
 算値を算出した.

降水量, pH, EC, イオン濃度, 降下量の年変化
 は、年平均値と年積算値を用いた.

自己相関関数の計算は、岡山理科大学総合情報学
 部生物地球システム学科西村敬一教授自作のプログ
 ラムソフトを用いた. このソフトは、 $n=0$ の関数値
 が1.0になるように正規化されている. 自己相関関
 数の計算には、降水量, pH, EC, イオン濃度の月平
 均値を、プログラムソフトで解析を行った.

表1. 各Sta.における年積算降水量とその統計値. 単位: mm.
 測定期間: 2006年12月28日~2011年1月4日.

年	降水量		
	Sta.1	Sta.2	Sta.3
2007	828.4	614.3	748.0
2008	1174.7	859.1	1156.9
2009	1191.6	968.2	1104.9
2010	1298.3	940.6	1210.6
最大値	1298.3	968.2	1210.6
最小値	828.4	614.3	748.0
範囲	469.9	353.9	462.6
算術平均	1123.2	845.5	1055.1
標準偏差	204.0	161.0	209.2
CV %	18	19	20

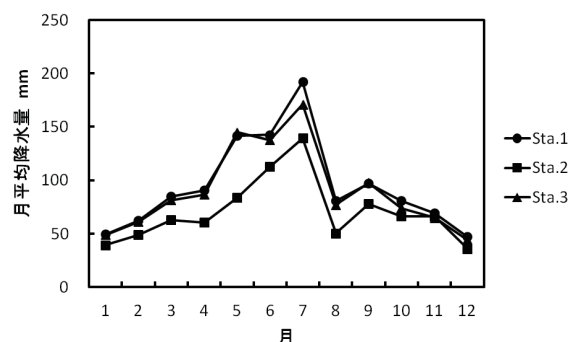


図3. 各Sta.における降水量の月変化. 測定期間: 2006年7月
 14日~2011年7月4日.

III. 測定結果及び考察

1. 降水量の年変化, 月変化

表1に、各Sta.における年積算降水量とその統計
 値(最大値, 最小値, 範囲, 算術平均, 標準偏差, C
 V%)を示した. 単位はmmである. Sta. 1の最大値
 は2010年の1298.3mm, 最小値は2007年の828.4mmで
 あった. Sta. 2の最大値は2009年の968.2mm, 最小
 値は2007年の614.3mmであった. Sta. 3の最大値は
 2010年の1210.6mm, 最小値は2007年の748.0mmで
 あった. 各Sta. 共に、最小値は2007年であった.

値の位相を見ると、Sta. 1とSta. 3は、2007年~
 2008年にかけて増加し、2008年~2009年は横ばい、
 2009年~2010年にかけて増加していた. Sta. 2は、
 2007年~2009年にかけて増加し、2009年~2010年は
 横ばいであった. しかし、統計年数が4年では、経
 年的な変化は明らかでなかった.

4年間平均値を用いて3地点の特徴を見ると、大
 小関係は、Sta. 1 \approx Sta. 3 > Sta. 2 となった. Sta. 2

表 2. 各Sta. における年平均pHとその統計値. 測定期間: 2006年12月28日~2011年1月4日.

年	pH		
	Sta.1	Sta.2	Sta.3
2007	4.67	4.52	4.64
2008	5.33	5.18	5.32
2009	5.87	5.78	5.84
2010	5.81	5.68	5.79
最大値	5.87	5.78	5.84
最小値	4.67	4.52	4.64
範囲	1.20	1.25	1.20
加重平均	5.23	5.09	5.20
標準偏差	0.56	0.57	0.56
CV %	10	11	10

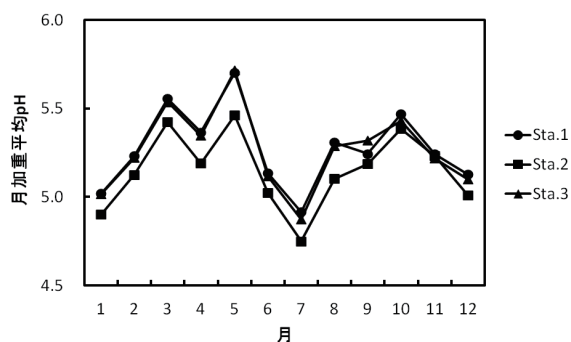


図 4. 各Sta. におけるpHの月変化. 測定期間: 2006年7月14日~2011年7月4日.

の値が他のSta. よりも低いのは, 上空には樹木があり, 雨がそれに捕捉されているためであると考えられる.

図 3 に, 各Sta. における降水量の月変化を示した. Sta. 1 の最大値は7月の192.3mm, 最小値は12月の47.2mmであった. Sta. 2 の最大値は7月の139.2mm, 最小値は12月の35.8mmであった. Sta. 3 の最大値は7月の171.0mm, 最小値は12月の44.1mmであった. 各Sta. 共に, 最大値は7月, 最小値は12月であった.

値の位相を見ると, 各Sta. 共に同じであった. 7月が最大値となったのは, 梅雨の影響が考えられる.

2. pHの年変化, 月変化

表 2 に, 各Sta. における年平均pHとその統計値を示した. Sta. 1 の最大値は2009年の5.87, 最小値は2007年の4.67であった. Sta. 2 の最大値は2010年

の5.78, 最小値は2007年の4.52であった. Sta. 3 の最大値は2009年の5.84, 最小値は2007年の4.64であった. 各Sta. 共に, 最大値は2009年, 最小値は2007年であった.

値の位相を見ると, 各Sta. 共に, 2007年~2009年にかけて上昇し, 2009年と2010年は横ばいであった. しかし, 統計年数が4年では, 経年的な変化は明らかでなかった.

4年間平均値を用いて3地点の特徴を見ると, 大小関係は, Sta. 1 \simeq Sta. 3 > Sta. 2 となった. Sta. 2 の値が他のSta. よりも低いのは, 上空の樹木に雨が当たった際, 樹木に沈着していた乾生沈着物が雨に溶け込む現象が起きているからであると考えられる.

図 4 に, 各Sta. におけるpHの月変化を示した. Sta. 1 の最大値は5月の5.70, 最小値は7月の4.91であった. Sta. 2 の最大値は5月の5.46, 最小値は7月の4.75であった. Sta. 3 の最大値は5月の5.72, 最小値は7月の4.87であった. 各Sta. 共に, 最大値は5月, 最小値は7月であった.

値の位相を見ると, 各Sta. 共に, 1月~7月, 7月~12月の二山の変化をしていた.

3. ECの年変化, 月変化

表 3 に, 各Sta. における年平均ECとその統計値を示した. 単位はmS/mである. Sta. 1 の最大値は2007年の2.7mS/m, 最小値は2009年と2010年の1.5mS/mであった. Sta. 2 の最大値は2007年の2.9mS/m, 最小値は2010年の1.8mS/mであった. Sta. 3 の最大値は2007年の2.5mS/m, 最小値は2010年の1.3mS/mであった. 各Sta. 共に, 最小値は2010年, 最大値は2007年であった.

値の位相を見ると, Sta. 1 は, 2007年~2009年にかけて減少し, 2009年~2010年は共に1.5mS/mと横ばいであった. Sta. 2 とSta. 3 は, 年毎に減少していた. しかし, 統計年数が4年では, 経年的な変化は明らかでなかった.

4年間平均値を用いて3地点の特徴を見ると, 大小関係は, Sta. 2 > Sta. 1 \simeq Sta. 3 となった.

表3. 各Sta.における年平均ECとその統計値. 単位: mS/m. 測定期間: 2006年12月28日～2011年1月4日.

年	EC		
	Sta.1	Sta.2	Sta.3
2007	2.7	2.9	2.5
2008	1.9	2.6	1.6
2009	1.5	2.0	1.4
2010	1.5	1.8	1.3
最大値	2.7	2.9	2.5
最小値	1.5	1.8	1.3
範囲	1.2	1.0	1.2
加重平均	1.8	2.2	1.6
標準偏差	0.6	0.5	0.6
CV %	30	21	33

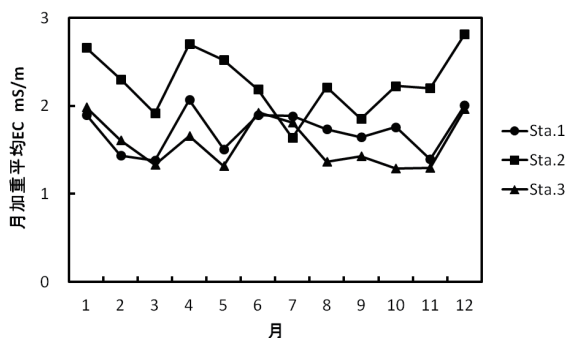


図5. 各Sta.におけるECの月変化. 測定期間: 2006年7月14日～2011年7月4日.

Sta. 2のECが他のSta.よりも高いのは、上空の樹木に雨が当たった際、樹木に沈着していた乾生沈着物が雨に溶け込む現象が起きているからであると考えられる。

図5に、各Sta.におけるECの月変化を示した。Sta. 1の最大値は4月の2.1mS/m、最小値は2月、3月、11月の1.4mS/mであった。Sta. 2の最大値は12月の2.8mS/m、最小値は7月の1.6mS/mであった。Sta. 3の最大値は1月と12月の2.0mS/m、最小値は3月、5月、10月、11月の1.3mS/mであった。

値の位相を見ると、Sta. 1とSta. 3は似ており、Sta. 2のみ異なっていた。

4. イオン濃度の年変化, 月変化

(1) イオン濃度の年変化

表4に、各Sta.における年平均陽イオン濃度とその統計値を示した。単位は $\mu\text{mol}/\ell$ である。値の位相を見ると、各Sta.の NH_4^+ は、2007年～2008年にか

けて減少、2008年～2009年にかけて増加、2009年～2010年にかけて減少していた。各Sta.の nss-Ca^{2+} は、2007年～2009年にかけて減少、2009年～2010年にかけて増加していた。Sta. 2の Na^+ 、 K^+ 、Sta. 3の K^+ は、2007年～2008年にかけて増加、2008年～2009年にかけて減少、2009年～2010年にかけて増加していた。Sta. 1の Na^+ 、 K^+ は、2007年～2008年にかけて増加、2008年～2010年にかけて減少していた。しかし、統計年数が4年では、経年的な変化は明らかでなかった。

4年間平均値を用いて3地点の特徴を見ると、各陽イオン共に大小関係は、Sta. 2 > Sta. 1 \approx Sta. 3であった。Sta. 2の値が他のSta.よりも高いのは、上空の樹木に雨が当たった際、樹木に沈着していた乾生沈着物が雨に溶け込む現象が起きているからであると考えられる。また K^+ は、Sta. 2の4年間平均値が、Sta. 1とSta. 3よりも約5倍大きかった。これは、樹木の葉や枝に雨が当たった際の K^+ の溶出が考えられる。

測定場所毎の4年間平均値の大小関係を見ると、Sta. 1とSta. 3は、 $\text{NH}_4^+ > \text{Na}^+ > \text{nss-Ca}^{2+} > \text{K}^+ > \text{Mg}^{2+}$ であった。Sta. 2は、 $\text{nss-Ca}^{2+} > \text{K}^+ > \text{Na}^+ > \text{NH}_4^+ > \text{Mg}^{2+}$ であった。Sta. 1とSta. 3は水平距離で1650m離れているが、上空が開けているので、同じ大小関係になったと考えられる。Sta. 2は上空が樹木で覆われているため、Sta. 1とSta. 3とは異なる大小関係になったと考えられる。

表5に、各Sta.における年平均陰イオン濃度とその統計値を示した。単位は $\mu\text{mol}/\ell$ である。年毎の値の位相を見ると、各Sta.の NO_3^- と nss-SO_4^{2-} 、ならびにSta. 3の Cl^- は、年ごとに減少していた。しかし、統計年数が4年では、経年的な変化は明らかでなかった。

4年間平均値を用いて3地点の特徴を見ると、大小関係は、 Cl^- は、Sta. 2 > Sta. 1 \approx Sta. 3であった。 NO_3^- と nss-SO_4^{2-} は、Sta. 2 > Sta. 3 > Sta. 1であった。Sta. 2の値が他のSta.よりも高いのは、陽イオンと同じ要因が考えられる。

測定場所毎の4年間平均値の大小関係を見ると、

表 4. 各Sta. における年平均陽イオン濃度とその統計値. 単位: $\mu\text{mol}/\ell$. 測定期間: 2006年12月28日～2011年1月4日.

年	Na^+			NH_4^+			K^+		
	Sta.1	Sta.2	Sta.3	Sta.1	Sta.2	Sta.3	Sta.1	Sta.2	Sta.3
2007	16.53	31.22	20.21	23.64	22.77	27.40	5.50	41.06	5.22
2008	17.91	32.80	19.26	13.51	18.99	16.51	9.72	41.72	8.45
2009	17.04	23.18	15.36	25.15	27.06	19.06	6.00	31.91	5.25
2010	12.95	24.38	13.65	11.75	14.43	13.41	5.84	32.13	6.36
最大値	17.91	32.80	20.21	25.15	27.06	27.40	9.72	41.72	8.45
最小値	12.95	23.18	13.65	11.75	14.43	13.41	5.50	31.91	5.22
範囲	4.97	9.62	6.56	13.40	12.63	13.99	4.22	9.81	3.24
加重平均	15.99	27.42	16.79	17.96	20.72	18.22	6.83	36.12	6.44
標準偏差	2.18	4.82	3.12	6.86	5.38	6.00	1.98	5.42	1.52
CV %	14	17	18	37	26	31	29	15	24

年	Mg^{2+}			nss- Ca^{2+}		
	Sta.1	Sta.2	Sta.3	Sta.1	Sta.2	Sta.3
2007	3.96	20.67	3.70	16.78	51.19	20.95
2008	3.02	16.15	4.80	14.34	41.63	15.88
2009	4.21	10.51	4.53	12.73	30.33	13.89
2010	4.62	12.09	4.45	14.62	36.43	14.32
最大値	4.62	20.67	4.80	16.78	51.19	20.95
最小値	3.02	10.51	3.70	12.73	30.33	13.89
範囲	1.60	10.17	1.10	4.05	20.85	7.06
加重平均	3.97	14.23	4.43	14.44	38.69	15.81
標準偏差	0.68	4.55	0.47	1.66	8.83	3.24
CV %	17	31	11	11	22	20

表 5. 各Sta. における年平均陰イオン濃度とその統計値. 単位: $\mu\text{mol}/\ell$. 測定期間: 2006年12月28日～2011年1月4日.

年	Cl^-			NO_3^-			nss- SO_4^{2-}		
	Sta.1	Sta.2	Sta.3	Sta.1	Sta.2	Sta.3	Sta.1	Sta.2	Sta.3
2007	21.86	58.99	25.89	35.51	61.08	44.42	36.90	50.42	43.40
2008	22.53	54.87	21.92	25.17	55.54	28.81	31.66	44.47	34.20
2009	21.48	33.79	20.15	21.45	37.86	26.80	17.33	24.35	20.05
2010	17.58	38.63	17.57	18.71	31.48	22.94	12.55	20.44	15.37
最大値	22.53	58.99	25.89	35.51	61.08	44.42	36.90	50.42	43.40
最小値	17.58	33.79	17.57	18.71	31.48	22.94	12.55	20.44	15.37
範囲	4.96	25.21	8.32	16.80	29.60	21.48	24.35	29.97	28.03
加重平均	20.70	45.07	20.91	24.23	44.80	29.37	23.30	33.11	26.73
標準偏差	2.23	12.24	3.49	7.36	14.08	9.44	11.53	14.75	12.88
CV %	11	26	16	29	30	31	47	42	46

Sta. 1 とSta. 3 は, $\text{NO}_3^- > \text{nss-SO}_4^{2-} > \text{Cl}^-$ であった.
Sta. 2 は, $\text{Cl}^- > \text{NO}_3^- > \text{nss-SO}_4^{2-}$ であった. Sta. 1 とSta. 3 のイオンの大小関係が同じで, Sta. 2 のみ異なることは, 陽イオンと同じ要因が考えられる.

(2) イオン濃度の月変化

図 6 に, 各Sta. における Na^+ 濃度の月変化を示した. Sta. 1 の最大値は12月の22.12 $\mu\text{mol}/\ell$, 最小値は8月の9.95 $\mu\text{mol}/\ell$ であった. Sta. 2 の最大値は12月の66.21 $\mu\text{mol}/\ell$, 最小値は7月の10.44 $\mu\text{mol}/\ell$ であった. Sta. 3 の最大値は12月の25.86 $\mu\text{mol}/\ell$, 最

小値は6月の9.15 $\mu\text{mol}/\ell$ であった. 各Sta. 共に, 最大値は12月であった. Sta. 2 においては, 1月も63.64 $\mu\text{mol}/\ell$ で最大値に近かった.

値の位相を見ると, Sta. 1 とSta. 3 は似ていた. Sta. 2 は7月を底とした一谷の変化をしていた.

図 7 に, 各Sta. における NH_4^+ 濃度の月変化を示した. Sta. 1 の最大値は3月の27.54 $\mu\text{mol}/\ell$, 最小値は8月の9.07 $\mu\text{mol}/\ell$ であった. Sta. 2 の最大値は1月の45.49 $\mu\text{mol}/\ell$, 最小値は11月の5.79 $\mu\text{mol}/\ell$ であった. Sta. 3 の最大値は2月の27.30 $\mu\text{mol}/\ell$, 最小値は9月の7.54 $\mu\text{mol}/\ell$ であった.

値の位相を見ると, Sta. 1 とSta. 3は似ていた。
Sta. 2は, 1月～11月にかけて減少傾向にあった。

図8に, 各Sta. における K^+ 濃度の月変化を示した。Sta. 1の最大値は12月の $14.31\mu\text{mol}/\ell$, 最小値は8月の $1.95\mu\text{mol}/\ell$ であった。Sta. 2の最大値は5月の $54.62\mu\text{mol}/\ell$, 最小値は3月の $12.50\mu\text{mol}/\ell$ であった。Sta. 3の最大値は5月の $10.86\mu\text{mol}/\ell$, 最小値は8月の $1.70\mu\text{mol}/\ell$ であった。Sta. 2においては, 4月, 6月, 11月, 12月が, $46.84\mu\text{mol}/\ell$, $46.28\mu\text{mol}/\ell$, $47.87\mu\text{mol}/\ell$, $45.29\mu\text{mol}/\ell$ で, 最大値に次いで高かった。

値の位相を見ると, Sta. 1 とSta. 3は似ており, Sta. 2のみ異なっていた。

図9に, 各Sta. における Mg^{2+} 濃度の月変化を示した。Sta. 1の最大値は11月の $7.82\mu\text{mol}/\ell$, 最小値は7月の $2.31\mu\text{mol}/\ell$ であった。Sta. 2の最大値は12月の $29.36\mu\text{mol}/\ell$, 最小値は7月の $8.16\mu\text{mol}/\ell$ であった。Sta. 3の最大値は5月の $5.57\mu\text{mol}/\ell$, 最小値は7月の $2.47\mu\text{mol}/\ell$ であった。各Sta. 共に, 最小値は7月であった。Sta. 2においては, 4月, 5月, 6月, 11月が, $18.33\mu\text{mol}/\ell$, $23.11\mu\text{mol}/\ell$, $14.81\mu\text{mol}/\ell$, $21.53\mu\text{mol}/\ell$ で, 最大値に次いで高かった。

値の位相を見ると, Sta. 1 とSta. 3は似ており, Sta. 2のみ異なっていた。

図10に, 各Sta. における $nss-Ca^{2+}$ 濃度の月変化を示した。Sta. 1の最大値は12月の $25.53\mu\text{mol}/\ell$, 最小値は8月の $5.52\mu\text{mol}/\ell$ であった。Sta. 2の最大値は12月の $85.00\mu\text{mol}/\ell$, 最小値は7月の $25.46\mu\text{mol}/\ell$ であった。Sta. 3の最大値は4月の $25.93\mu\text{mol}/\ell$, 最小値は10月の $6.86\mu\text{mol}/\ell$ であった。Sta. 2においては, 最大値に次いで高い月は5月の $51.71\mu\text{mol}/\ell$ で, 最大値との差は $33.29\mu\text{mol}/\ell$ であるので, 12月の濃度は極めて高かった。

値の位相を見ると, Sta. 1 とSta. 3は似ており, Sta. 2のみ異なっていた。

図11に, 各Sta. における Cl^- 濃度の月変化を示した。Sta. 1の最大値は12月の $33.93\mu\text{mol}/\ell$, 最小値は6月の $13.10\mu\text{mol}/\ell$ であった。Sta. 2の最大値は12月

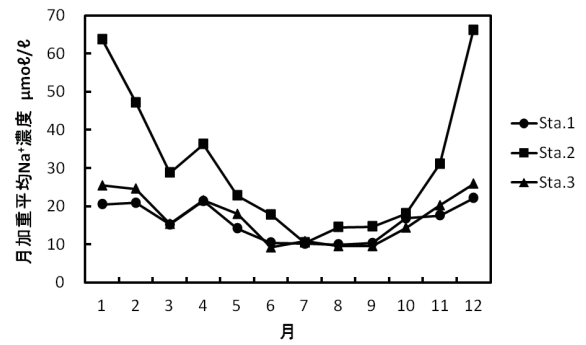


図6. 各Sta. における Na^+ 濃度の月変化. 測定期間: 2006年7月14日～2011年7月4日.

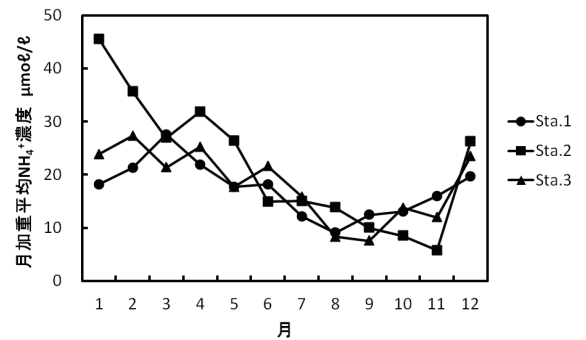


図7. 各Sta. における NH_4^+ 濃度の月変化. 測定期間: 2006年7月14日～2011年7月4日.

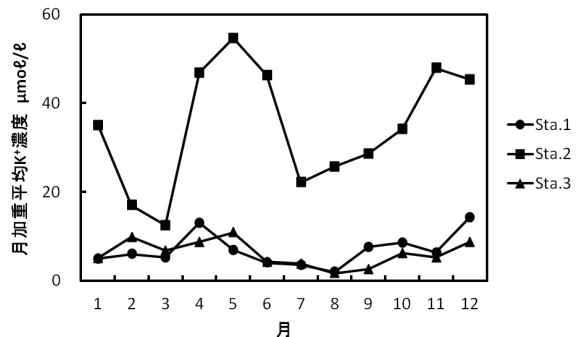


図8. 各Sta. における K^+ 濃度の月変化. 測定期間: 2006年7月14日～2011年7月4日.

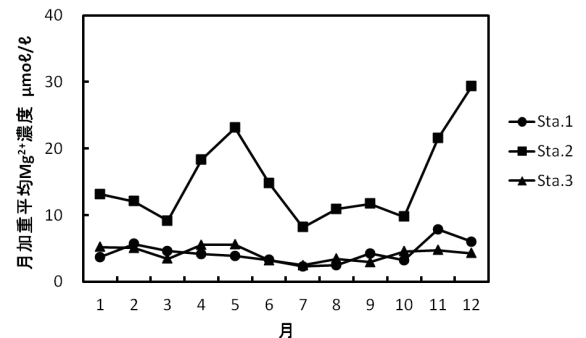


図9. 各Sta. における Mg^{2+} 濃度の月変化. 測定期間: 2006年7月14日～2011年7月4日.

の $130.30\mu\text{mol}/\ell$ 、最小値は7月の $22.46\mu\text{mol}/\ell$ であった。Sta. 3の最大値は12月の $49.09\mu\text{mol}/\ell$ 、最小値は8月の $11.85\mu\text{mol}/\ell$ であった。各Sta. 共に、最大値は12月であった。

値の位相を見ると、Sta. 1とSta. 3は似ていた。Sta. 2は、7月を底とした一谷の変化をしていた。このSta. 2の月変化は、 Na^+ のSta. 2の月変化と似ていた。

図12に、各Sta. における NO_3^- 濃度の月変化を示した。Sta. 1の最大値は12月の $35.82\mu\text{mol}/\ell$ 、最小値は5月の $17.60\mu\text{mol}/\ell$ であった。Sta. 2の最大値は12月の $72.46\mu\text{mol}/\ell$ 、最小値は10月の $26.31\mu\text{mol}/\ell$ であった。Sta. 3の最大値は12月の $56.62\mu\text{mol}/\ell$ 、最小値は5月の $21.06\mu\text{mol}/\ell$ であった。各Sta. 共に、最大値は12月であった。Sta. 2においては、1月～4月が、 $61.43\mu\text{mol}/\ell$ 、 $63.45\mu\text{mol}/\ell$ 、 $57.78\mu\text{mol}/\ell$ 、 $62.19\mu\text{mol}/\ell$ で、最大値に次いで高かった。

値の位相を見ると、Sta. 1とSta. 3は似ており、Sta. 2のみ異なっていた。

図13に、各Sta. における nss-SO_4^{2-} の月変化を示した。Sta. 1の最大値は1月の $32.07\mu\text{mol}/\ell$ 、最小値は10月の $11.54\mu\text{mol}/\ell$ であった。Sta. 2の最大値は4月の $42.29\mu\text{mol}/\ell$ 、最小値は10月の $18.13\mu\text{mol}/\ell$ であった。Sta. 3の最大値は12月の $41.05\mu\text{mol}/\ell$ 、最小値は10月の $13.40\mu\text{mol}/\ell$ であった。各Sta. 共に、最小値は10月であった。

値の位相を見ると、Sta. 1とSta. 3は似ており、Sta. 2のみ異なっていた。

5. 降下量の年変化

表6に、各Sta. における年積算陽イオン降下量とその統計値を示した。単位は $\text{mmol}/\text{m}^2/\text{year}$ である。値の位相を見ると、各Sta. の nss-Ca^{2+} 、Sta. 2の Na^+ 、 Mg^{2+} 、Sta. 3の K^+ 、 Mg^{2+} は、2007年～2008年にかけて増加、2008年～2009年にかけて減少、2009年～2010年にかけて増加していた。Sta. 1の Na^+ 、Sta. 2の K^+ 、Sta. 3の Na^+ は、2007年～2008年にかけて増加、2008年～2010年にかけて減少していた。Sta. 1の NH_4^+ とSta. 3の NH_4^+ は、2007年～2008年にか

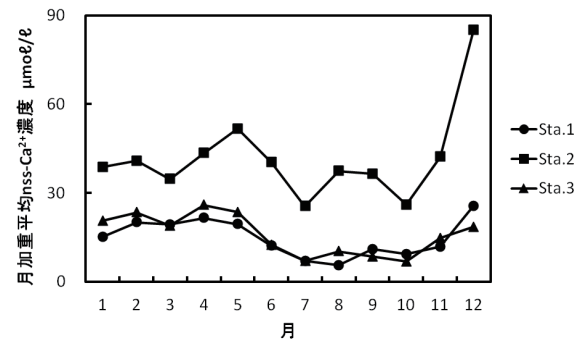


図10. 各Sta. における nss-Ca^{2+} 濃度の月変化. 測定期間：2006年7月14日～2011年7月4日.

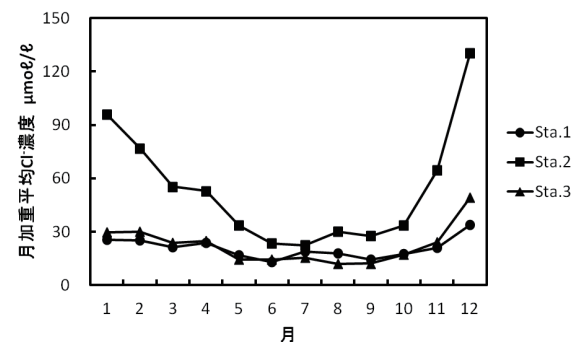


図11. 各Sta. における Cl^- 濃度の月変化. 測定期間：2006年7月14日～2011年7月4日.

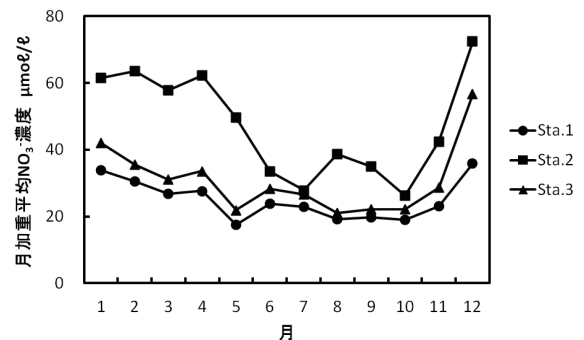


図12. 各Sta. における NO_3^- 濃度の月変化. 測定期間：2006年7月14日～2011年7月4日.

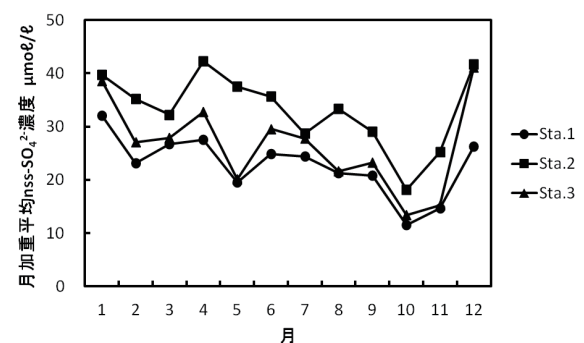


図13. 各Sta. における nss-SO_4^{2-} 濃度の月変化. 測定期間：2006年7月14日～2011年7月4日.

表6. 各Sta.における年積算陽イオン降下量とその統計値. 単位: mmol/m²/year. 測定期間: 2006年12月28日～2011年1月4日.

年	Na ⁺			NH ₄ ⁺			K ⁺		
	Sta.1	Sta.2	Sta.3	Sta.1	Sta.2	Sta.3	Sta.1	Sta.2	Sta.3
2007	13.7	19.2	15.1	19.6	14.0	20.5	4.6	25.2	3.9
2008	21.0	28.2	22.3	15.9	16.3	19.1	11.4	35.8	9.8
2009	20.3	22.4	17.0	30.0	26.2	21.1	7.1	30.9	5.8
2010	16.8	22.9	16.5	15.3	13.6	16.2	7.6	30.2	7.7
最大値	21.0	28.2	22.3	30.0	26.2	21.1	11.4	35.8	9.8
最小値	13.7	19.2	15.1	15.3	13.6	16.2	4.6	25.2	3.9
範囲	7.4	9.0	7.2	14.7	12.6	4.8	6.9	10.6	5.9
算術平均	18.0	23.2	17.7	20.2	17.5	19.2	7.7	30.5	6.8
標準偏差	3.4	3.7	3.1	6.8	5.9	2.2	2.8	4.3	2.5
CV %	19	16	18	34	34	11	37	14	37

年	Mg ²⁺			nss-Ca ²⁺		
	Sta.1	Sta.2	Sta.3	Sta.1	Sta.2	Sta.3
2007	3.3	12.7	2.8	13.9	31.4	15.7
2008	3.5	13.9	5.6	16.9	35.8	18.4
2009	5.0	10.2	5.0	15.2	29.4	15.4
2010	6.0	11.4	5.4	19.0	34.3	17.3
最大値	6.0	13.9	5.6	19.0	35.8	18.4
最小値	3.3	10.2	2.8	13.9	29.4	15.4
範囲	2.7	3.7	2.8	5.1	6.4	3.0
算術平均	4.5	12.0	4.7	16.2	32.7	16.7
標準偏差	1.3	1.6	1.3	2.2	2.9	1.4
CV %	29	13	28	14	9	9

表7. 各Sta.における年積算陰イオン降下量とその統計値. 単位: mmol/m²/year. 測定期間: 2006年12月28日～2011年1月4日.

年	Cl ⁻			NO ₃ ⁻			nss-SO ₄ ²⁻		
	Sta.1	Sta.2	Sta.3	Sta.1	Sta.2	Sta.3	Sta.1	Sta.2	Sta.3
2007	18.1	36.2	19.4	29.4	37.5	33.2	30.6	31.0	32.5
2008	26.5	47.1	25.4	29.6	47.7	33.3	37.2	38.2	39.6
2009	25.6	32.7	22.3	25.6	36.7	29.6	20.6	23.6	22.2
2010	22.8	36.3	21.3	24.3	29.6	27.8	16.3	19.2	18.6
最大値	26.5	47.1	25.4	29.6	47.7	33.3	37.2	38.2	39.6
最小値	18.1	32.7	19.4	24.3	29.6	27.8	16.3	19.2	18.6
範囲	8.4	14.4	6.0	5.3	18.1	5.6	20.9	19.0	21.0
算術平均	23.2	38.1	22.1	27.2	37.9	31.0	26.2	28.0	28.2
標準偏差	3.8	6.3	2.5	2.7	7.5	2.8	9.5	8.4	9.6
CV %	16	16	11	10	20	9	36	30	34

て減少, 2008年～2009年にかけて増加, 2009年～2010年にかけて減少していた. Sta. 2のNH₄⁺は, 2007年～2009年にかけて増加, 2009年～2010年にかけて減少していた. しかし, 統計年数が4年では, 経年的な変化は明らかでなかった.

4年間平均値を用いて3地点の特徴を見ると, 大小関係は, Na⁺, K⁺, Mg²⁺, nss-Ca²⁺は, Sta. 2 > Sta. 1 ≒ Sta. 3であった. NH₄⁺は, Sta. 1 ≒ Sta. 3 > Sta. 2であった. Sta. 2の降水量の4年間平均値が他のSta. よりも低いのににもかかわらず, Sta. 2のNa⁺, K⁺, Mg²⁺, nss-Ca²⁺降下量の4年間平均値が

他のSta. よりも高いのは, それらの森林内での降水中濃度が高いことを示している. しかし, Sta. 2のNH₄⁺降下量の4年間平均値が他のSta. よりも低い要因は, 明らかではない.

測定場所毎の4年間平均値の大小関係を見ると, Sta. 1はとSta. 3は, NH₄⁺ > Na⁺ > nss-Ca²⁺ > K⁺ > Mg²⁺であった. Sta. 2は, nss-Ca²⁺ > K⁺ > Na⁺ > NH₄⁺ > Mg²⁺であった. 測定場所毎の, 降下量の4年間平均値の大小関係は, 陽イオン濃度と同じ結果となった.

表7に, 各Sta.における年積算陰イオン降下量

表 8. 各Sta. におけるpH, EC, イオン濃度間の相関. 測定期間: 2006年7月14日~2011年7月4日 相関係数が0.700以上は枠で囲ってある.

Sta.1	pH	EC	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	nss-Ca ²⁺	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	nss-SO ₄ ²⁻
pH	1.000									
EC	-0.197	1.000								
Na ⁺	0.100	0.704	1.000							
NH ₄ ⁺	0.198	0.677	0.789	1.000						
K ⁺	0.096	0.481	0.292	0.314	1.000					
Mg ²⁺	0.166	0.616	0.782	0.517	0.510	1.000				
nss-Ca ²⁺	0.202	0.737	0.658	0.718	0.793	0.775	1.000			
Cl ⁻	0.078	0.666	0.902	0.624	0.468	0.801	0.725	1.000		
NO ₃ ⁻	-0.138	0.730	0.828	0.699	0.097	0.611	0.527	0.723	1.000	
nss-SO ₄ ²⁻	-0.361	0.768	0.666	0.632	0.086	0.433	0.471	0.573	0.836	1.000

Sta.2	pH	EC	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	nss-Ca ²⁺	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	nss-SO ₄ ²⁻
pH	1.000									
EC	-0.132	1.000								
Na ⁺	0.005	0.733	1.000							
NH ₄ ⁺	-0.045	0.719	0.861	1.000						
K ⁺	0.084	0.653	0.573	0.540	1.000					
Mg ²⁺	0.000	0.802	0.738	0.584	0.780	1.000				
nss-Ca ²⁺	-0.029	0.804	0.742	0.660	0.585	0.868	1.000			
Cl ⁻	-0.045	0.672	0.959	0.843	0.562	0.735	0.695	1.000		
NO ₃ ⁻	-0.169	0.814	0.797	0.797	0.468	0.763	0.759	0.791	1.000	
nss-SO ₄ ²⁻	-0.251	0.826	0.672	0.669	0.499	0.771	0.783	0.670	0.886	1.000

Sta.3	pH	EC	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	nss-Ca ²⁺	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	nss-SO ₄ ²⁻
pH	1.000									
EC	-0.232	1.000								
Na ⁺	0.091	0.791	1.000							
NH ₄ ⁺	0.003	0.850	0.736	1.000						
K ⁺	0.117	0.397	0.370	0.663	1.000					
Mg ²⁺	0.151	0.767	0.920	0.755	0.522	1.000				
nss-Ca ²⁺	0.164	0.813	0.837	0.813	0.392	0.867	1.000			
Cl ⁻	0.072	0.727	0.908	0.705	0.426	0.842	0.722	1.000		
NO ₃ ⁻	-0.118	0.909	0.835	0.804	0.410	0.835	0.861	0.823	1.000	
nss-SO ₄ ²⁻	-0.311	0.878	0.729	0.790	0.336	0.700	0.725	0.700	0.876	1.000

とその統計値を示した. 単位はmmol/m²/yearである. 年毎の値の位相を見ると, 各Sta. のNO₃⁻とnss-SO₄²⁻, ならびにSta. 1 のCl⁻とSta. 3 のCl⁻は, 2007年~2008年にかけて増加, 2008年~2010年にかけて減少していた. Sta. 2 のCl⁻は, 2007年~2008年にかけて増加, 2008年~2009年にかけて減少, 2009年~2010年にかけて増加していた. しかし, 統計年数が4年では, 経年的な変化は明らかでなかった.

4年間平均値を用いて3地点の特徴を見ると, 大小関係は, Cl⁻は, Sta. 2>Sta. 1=Sta. 3であった. NO₃⁻は, Sta. 2>Sta. 3>Sta. 1であった. nss-SO₄²⁻は, Sta. 3≒Sta. 2>Sta. 1であった. Sta. 2の降水量の4年間平均値が他のSta. よりも低いにもかかわらず, Sta. 2のCl⁻, NO₃⁻降下量の4年間平均値が他のSta. よりも高いのは, それらの森林内での降水濃度が高いことを示している. しかし, nss-SO₄²⁻

降下量の4年間平均値は, Sta. 1が他のSta. よりも低い, その要因は明らかでない.

測定場所毎の4年間平均値の大小関係を見ると, Sta. 1はとSta. 3は, NO₃⁻>nss-SO₄²⁻>Cl⁻であった. Sta. 2は, Cl⁻>NO₃⁻>nss-SO₄²⁻であった. 測定場所毎の, 降下量の4年間平均値の大小関係は, 陰イオン濃度と同じ結果となった.

6. pH, EC, イオン濃度間の相関

表8に, 各Sta. におけるpH, EC, イオン濃度の測定値の相関を示した. 表中で相関係数が0.700以上は, 枠で囲ってある. 全てのSta. で相関係数が0.700以上と高い相関を示した組み合わせは, ECとNa⁺, nss-Ca²⁺, NO₃⁻, nss-SO₄²⁻, Na⁺とNH₄⁺, Mg²⁺, Cl⁻, NO₃⁻, NH₄⁺とNO₃⁻, Mg²⁺とnss-Ca²⁺, Cl⁻, Cl⁻とNO₃⁻, NO₃⁻とnss-SO₄²⁻であった. この内, Na⁺とCl⁻

, Na^+ と Mg^{2+} , Mg^{2+} と Cl^- の組み合わせより, Na^+ , Mg^{2+} , Cl^- は, 海塩粒子が起源であると考えられる. 既報(山下ほか 2011)では, Mg^{2+} 濃度の測定場所の特徴として, Sta. 2が, Sta. 1とSta. 3に比べ高く, その理由は明らかではないとされていた. しかしこれは, 海塩粒子がSta. 2上空の樹木に沈着し, それが雨に溶け込んだのではないかと考えられる. また各Sta. 共に, K^+ はどのイオンとも相関が見られず, その理由は明らかでない.

7. 降水量, pH, EC, イオン濃度の自己相関関数

単独の波形データについて求める相関関数として自己相関関数(auto-correlation function)がある. この関数は, 波形データの時系列としての特性を表すのに適している(萩原・糸田 2001).

そこで降水量, pH, EC, イオン濃度の自己相関関数を求め, データの周期性について考察した. 比較的に周期性が明らかであった降水量, Na^+ 濃度, Cl^- 濃度の自己相関関数を, 図14~16に示した.

図14より, 降水量の自己相関関数は, Sta. 2において, 6カ月目に最大のピークが見られ, 次いで12カ月目にピークが見られたので, 半年の周期であると考えられる. Sta. 1とSta. 3においては, 値の位相は似ていたが, 周期性は見られなかった.

図15より, Na^+ 濃度の自己相関関数は, Sta. 2において, 6ヶ月目と12カ月目にピークが見られ, 12カ月目のピークが最大であった. 1年の周期であると考えられる. Sta. 1とSta. 3においては, 周期性は見られなかった.

図16より, Cl^- 濃度の自己相関関数は, Sta. 2において, 6ヶ月目と12カ月目にピークが見られたので, 6カ月の周期であると考えられる. Sta. 3において, 11カ月目にピークが見られたので, 11カ月の周期であると考えられる. Sta. 1においては, 周期性は見られなかった.

IV. まとめ

今回は, 2006年7月から2011年6月の5年間に

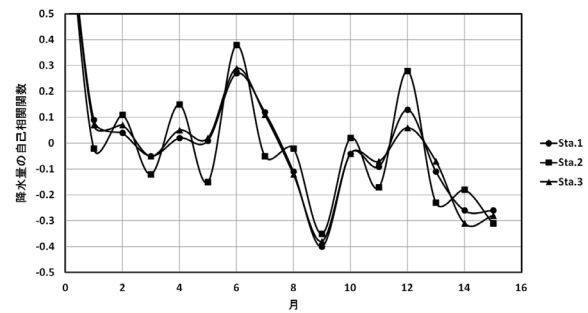


図14. 各Sta. における降水量の自己相関関数.

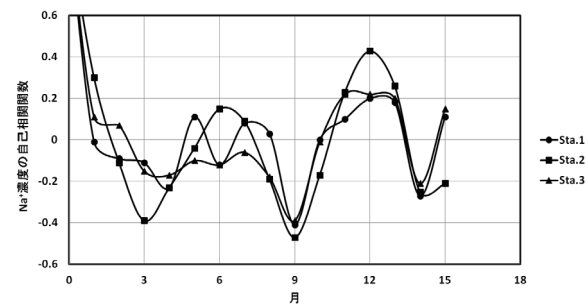


図15. 各Sta. における Na^+ 濃度の自己相関関数.

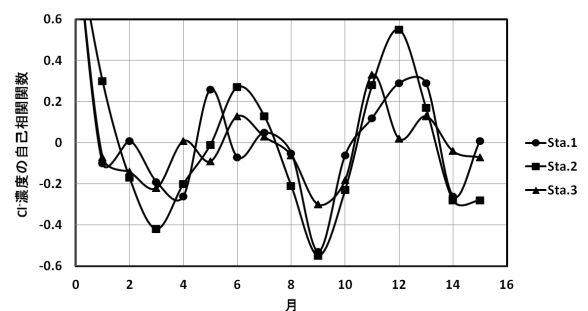


図16. 各Sta. における Cl^- 濃度の自己相関関数.

ついて, 2週間毎に採取した降水のpH, EC, イオン濃度, 降下量の時系列変化(年変化, 月変化), 相関分析について報告した. なお本報告の単位は, 環境省酸性雨モニタリング報告書(2009)に従い, ECの単位を $\mu\text{S}/\text{cm}$ から mS/m に, イオンの単位を mg/ℓ から $\mu\text{mol}/\ell$ に換算して示した. また, pH, EC, イオン濃度の平均値は, 酸性雨調査法研究会(1993)に従い, 降水量で重み付けした加重平均にて算出した.

降水量の年変化より, 統計年数が4年では, 経年的な変化は明らかでなかった. 降水量の4年間平均値を用いて3地点の特徴を見ると, 大小関係は, $\text{Sta. 1} \approx \text{Sta. 3} > \text{Sta. 2}$ となった. 降水量の月変化よ

り、値の位相を見ると、各Sta. 共に同じであった。

pHの年変化より、統計年数が4年では、経年的な変化は明らかでなかった。pHの4年間平均値を用いて3地点の特徴を見ると、大小関係は、Sta. 1 \equiv Sta. 3 > Sta. 2 となった。pHの月変化より、値の位相を見ると、各Sta. 共に、1月～7月、7月～12月の二山の変化をしていた。

ECの年変化より、統計年数が4年では、経年的な変化は明らかでなかった。ECの4年間平均値を用いて3地点の特徴を見ると、大小関係は、Sta. 2 > Sta. 1 \equiv Sta. 3 となった。ECの月変化より、値の位相を見ると、Sta. 1 とSta. 3は似ており、Sta. 2のみ異なっていた。

陽イオン濃度の年変化より、統計年数が4年では、経年的な変化は明らかでなかった。陽イオン濃度の4年間平均値を用いて3地点の特徴を見ると、各陽イオン共に大小関係は、Sta. 2 > Sta. 1 \equiv Sta. 3 であった。

陰イオンの年変化より、統計年数が4年では、経年的な変化は明らかでなかった。陰イオン濃度の4年間平均値を用いて3地点の特徴を見ると、大小関係は、 Cl^- は、Sta. 2 > Sta. 1 \equiv Sta. 3 であった。 NO_3^- と nss-SO_4^{2-} は、Sta. 2 > Sta. 3 > Sta. 1 であった。

イオン濃度の月変化より、値の位相を見ると、全てのイオンで、Sta. 1 とSta. 3は似ており、Sta. 2は異なっていた。

陽イオン降下量の年変化より、統計年数が4年では、経年的な変化は明らかでなかった。4年間平均値を用いて3地点の特徴を見ると、大小関係は、 Na^+ 、 K^+ 、 Mg^{2+} 、 nss-Ca^{2+} は、Sta. 2 > Sta. 1 \equiv Sta. 3 であった。 NH_4^+ は、Sta. 1 \equiv Sta. 3 > Sta. 2 であった。

陰イオン降下量の年変化より、統計年数が4年では、経年的な変化は明らかでなかった。大小関係は、 Cl^- は、Sta. 2 > Sta. 1 = Sta. 3 であった。 NO_3^- は、Sta. 2 > Sta. 3 > Sta. 1 であった。 nss-SO_4^{2-} は、Sta. 3 \equiv Sta. 2 > Sta. 1 であった。

pH、EC、イオン濃度間の相関より、各Sta. 共に、 Na^+ 、 Mg^{2+} 、 Cl^- 間の相関が高く、海塩粒子が起

源であると考えられる。また各Sta. 共に、 K^+ はどのイオンとも相関が見られず、その理由は明らかでない。

降水量、pH、EC、イオン濃度の自己相関関数より、比較的に周期性が明らかであったのは、降水量、 Na^+ 濃度、 Cl^- 濃度であった。

謝辞

本研究のイオンクロマトグラフィー分析において、ご協力いただいた技術科学研究所山下研究室の筈野倫弘院生、海野雅人学生、久保斉彬学生、阪本健太郎学生、山本真也学生、高木亮学生の皆さんに深謝します。また、自己相関関数の計算プログラムソフトを提供して下さいました総合情報学部生物地球システム学科の西村敬一先生に深謝します。

引用文献

- 環境省(2009). 酸性雨長期モニタリング報告書(平成15～19年度). 環境省. pp15. 18.
- 小林 賢・松尾太郎・正木智美・山下栄次(2003). レインゴーランド法による生態システム園の酸性雨測定-2000年5月～2002年12月-. 岡山理科大学自然植物園研究報告 8: 31-45.
- 小林 賢・矢部智恒・松尾太郎・正木智美・山下栄次(2004). レインゴーランド法による生態システム園の酸性雨測定Ⅱ-2000年5月～2004年5月-. 岡山理科大学自然植物園. Naturalistae 9: 55-62.
- 小林 賢・満崎 純・松尾太郎・正木智美・山下栄次(2007). レインゴーランド法による生態システム園の酸性雨測定Ⅲ-2000年5月～2006年7月-. 岡山理科大学自然植物園. Naturalistae 11: 95-103.
- 酸性雨調査法研究会編(1993). 酸性雨調査法. 株式会社ぎょうせい. pp64-77. 267-268. 280.
- 萩原幸男・糸田千鶴(2001). 地球システムのデータ解析. 株式会社朝倉書店. pp59.

- 満崎 純・小林 賢・松尾太郎・正木智美・山下栄次(2008). レインゴーランド法による生態システム園の酸性雨測定Ⅳ-2000年5月～2006年11月-. 岡山理科大学自然植物園. *Naturalistae* 12: 9-19.
- 渡邊恵三・山下栄次・松尾太郎・正木智美(2009a). 岡山市におけるろ過式採取法による降水の観測-ろ過式採取法の並行測定-. 岡山理科大学自然植物園. *Naturalistae* 13: 37-44.
- 渡邊恵三・山下栄次・松尾太郎・正木智美(2009b). 岡山市におけるろ過式採取法による降水の観測(Ⅱ)-2006年9月～2008年8月-. 岡山理科大学自然植物園. *Naturalistae* 14: 23-29.
- 山下栄次・小林 賢・矢部智恒・満崎 純・月森新一郎・平田圭祐・松尾太郎・正木智美(2009). レインゴーランド法による生態システム園の酸性雨測定Ⅴ-森林内降雨の特徴-. 岡山理科大学自然植物園. *Naturalistae* 13: 27-35.
- 山下栄次・江國真幸・渡邊恵三・松尾太郎・正木智美(2011). 岡山におけるろ過式採取法による降水の観測(Ⅲ)-2007年1月～2009年12月-. 岡山理科大学自然植物園. *Naturalistae* 15: 65-77.
- (2011年11月18日受理)