

相異한 林分에서 分割 採取한 降雨의 化學的 組成*

김홍률¹ · 주영특² · 진현오¹

¹경희대학교 생명과학부/생명자원과학연구원, ²강원대학교 산림자원보호학과
(2001년 4월 6일 접수)

Chemical Composition of the Sequentially Sampled Precipitation in the Different Forest Stands*

Hong-Ryul Kim¹, Yeong-Teuk Joo² and Hyun-O Jin¹

¹Dept. of Forestry/Inst. of Life Science & Resources, Kyunghee Univ., Yongin 449-701, Korea

²Dept. of Forest Resources Protection, Kangwon Nat'l Univ., Chunchon 220-701, Korea

(Manuscript received 6 April 2001)

ABSTRACT

This study was conducted to investigate vertical movement properties of water quality or chemical composition in three different forest stands (*Pinus koraiensis*, *Larix leptolepis* and *Quercus* spp. stands) in Gwangju-gun and Gyunggi-do. The results were as follows ; The pH range of precipitation was 4.62 ~ 6.72, and the average pH showed 5.74. The relationship of pH among throughfall, stemflow and precipitation showed difference of buffering capacity in tree species. According tree species, acidified stemflow and alkalinized stemflow had the characteristic value. In three stands, changes of the pH in early rain were larger than those of succeeding rain, except October 1998 and April 1999. Early rain influenced the cation in the acidity and concentration, but succeeding rain influenced the anion such as SO_4^{2-} , NO_3^- , Cl^- etc. And anion components exist with gas type and minute particles, as a result, succeeding rain influenced to chemical properties by the sustaining washout.

Key words : different stands, precipitation, throughfall, stemflow, water quality

I. 서 론

산업사회로의 급속한 발전에 따른 인위적인 환경오염 중에서 산성강우에 의한 자연 환경 및 생태계의 파괴가 심각한 문제로 대두되고 있다. 특히, 산업혁명 이후 급속한 산업발달에 의해 대기오염이 심각해졌을 뿐 아니라 기상조건에 따라 장거리 이동함으로써 그 피해는 지구적 차원의 문제로 확대되었다. 이러한 대기오염물질은 대기 중에 부유하면서 직접적인 피해를 주기도 하지만, 비, 눈 등의 강수현상에 의해 응결·낙하되거나 세탈됨으로써 강수 내 화학성분의 변화를 초래한다고 하였다(박종길과 황용식, 1997). 산성강우는 서유럽과 미국 북동부의 주요 환경오염으로 대두되어 왔고(Environ. Res., 1983; EEC, 1985; Pierson and

Chang, 1986), 산림피해는 물론 토양의 산성화 그리고 대리석 구조물 부식의 원인으로 보고되고 있다 (Hutchinson and Havas, 1980; Schutt and Cowling, 1985; Cheng et al., 1987).

대기 중의 오염물질은 건성침착(dry deposition)과 습성침착(wet deposition)의 과정에 의해 대기 중에서 제거되며(U.S. EPA, 1983), 이러한 과정을 거쳐 강수 속에 포함된 가스상 오염물질과 분진은 용해되어 양이온과 음이온의 화학적인 평형에 의해 강우의 산도를 결정하게 된다(Cooper and Lopez, 1976; Cogbill and Likens, 1974).

이러한 대기오염에 의한 산성강하물의 유입은 산림생태계에도 영향을 주고 있으며(Manion and Lachance, 1992; Georgii, 1986), 우리 나라에서도 대기오염으로

수목 종수의 감소 등 산림 식생의 피해가 나타나기 시작했다(김종갑, 1992). 산성비의 농도와 용존물질의 성분은 발생원에서의 거리나 기후인자 등 조사지역에 따라서 다를 뿐만 아니라 임내와 임외 및 오염원과의 근접 관계 등 많은 요인이 작용하므로, 조사지역과 산림특성에 따른 비교, 조사 연구는 산림내 양료변화의 구명 및 산림의 오염원 흡착능력의 파악에 매우 중요한 기초연구이다(井川, 1994; Nakashima and Tanabe, 1991). 산림생태계에서 물질의 이동은 대부분 수분을 통하여 일어나는데, 이러한 물질의 수직적 이동은 강수에 의해 크게 지배를 받는다. 임외우가 산림생태계 내로 유입되면 여러 층의 임관을 통과하면서 지엽과 수피로 부터의 용출 및 세탈되는 성분에 의하여 임내우(수관통과우, 수간류)의 용존원소가 증감하게 되는데(Hibara and Aiba, 1982; Bellot and Escarre, 1991; Aron and Lund, 1994; Sengoku et al., 1994), 이러한 경향은 수종(Cappellato et al., 1993; 주영특 등 1999), 수령(Binkley et al., 1982), 지위(Tsutsumi and Nishitani, 1984), 지리조건(Macdonald et al., 1992) 및 기후조건(Lovett and Lindberg, 1984) 등의 요인에 따라 다르다. 그리고, 최근에는 강우의 산성화가 진행됨에 따라 산림생태계에서의 물질순환 연구측면에

서 뿐만 아니라 산성강하물의 유입에 의한 산림쇠퇴를 예측하고 있다(Cronan et al., 1978; Berger and Glatzel, 1994; Maynard, 1997; Emmett et al., 1998). 따라서, 산림생태계의 물질순환 규명 뿐만 아니라 산림환경 변화를 예측하기 위해서는 강수 → 식생 → 토양에 이르기까지 각 단계에 있어서 강우에 포함되어 있는 용존원소의 이동특성을 구명할 필요가 있다.

이에 본 연구는 경기도 광주군 퇴촌면 소재 경희대 연습림 7입면에 위치한 인공조림된 29년생 잣나무와 낙엽송 그리고 27년생 천연활엽수 임분을 선정하여 1998년 8월부터 1999년 6월까지 수행하였다. 조사지 위치와 개황은 Fig. 1과 Table 1로 나타내었다.

II. 재료 및 방법

2.1. 시험지 개황

본 연구는 경기도 광주군 퇴촌면 소재 경희대 연습림 7입면에 위치한 인공조림된 29년생 잣나무와 낙엽송 그리고 27년생 천연활엽수 임분을 선정하여 1998년 8월부터 1999년 6월까지 수행하였다. 조사지 위치와 개황은 Fig. 1과 Table 1로 나타내었다.

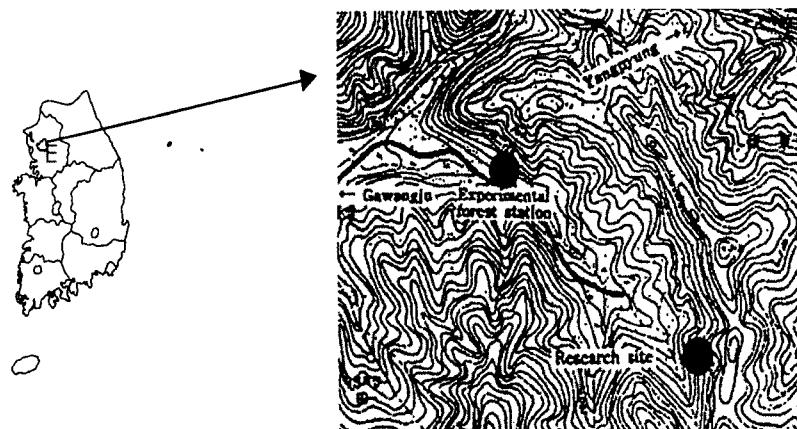


Fig. 1. Location map of research sites.

Table 1. Description of research stands

| Species | (Average) | Age (yrs) | DBH (cm) | Height (m) | Density (trees/ha) | Aspect |
|-------------------------|-----------|------------|------------|------------|--------------------|--------|
| <i>Pinus koraiensis</i> | 29 | 16.6 ± 4.8 | 11.2 ± 1.8 | 1,560 | SW | |
| <i>Larix leptolepis</i> | 29 | 22.1 ± 6.3 | 21.4 ± 5.3 | 1,470 | SW | |
| <i>Quercus</i> spp. | 27 | 19.7 ± 6.6 | 14.5 ± 4.9 | 1,500 | SW | |

2.2. 시료채취

수관통과우의 채취는 지상 1.2 m 높이에 표준목 수관의 줄기쪽, 중간, 인접목 수관과의 경계부분 계 3개소에 배치하여 채취하였다. 수간류는 매목조사 결과를 기초로 각각 우세목, 준우세목, 열세목에 해당하는 조사목을 1본씩 3본을 선정하여 각 조사목의 지상 1.2 m 수간에서 유도, 채취하여 초기 및 후속 강우를 분할 채취하였다. 이 방법은 강우 성분의 변동이나 낮은 pH의 출현상황 등의 파악에 유효한 수단이라 할 수 있으며(酸性雨調査研究會, 1993), 최초의 빗물이 첫 번째 병을 채우면 Y자형 connector의 한쪽으로 over-flow하여 다음의 병으로 유입되는 원리를 이용하였는데 실내에서 분리 채수 된 빗물이 그 다음의 빗물에 의해 희석되지 않은 것을 확인하기 위하여 색소법을 이용하여 확인하였다. 이와 같은 장치를 이용하여 수관통과우, 수간류를 분할 채취하였다. 첫 번째 병은 강우 18 mm에 해당하는 양을 받을 수 있으며 다 채우면 다음 병으로 넘어간다 (Fig. 2).

2.3. 시료분석

수질분석용 시료(수관통과우, 수간류)는 시료채취가 불가능하였던 결빙기를 제외하고 단위 강우량이 5 mm 이상일 때, 강우 종료 후 1~2일내에 채취하였다. 채취한 시료는 곧바로 여과를 거쳐 pH를 측정하고 분석 시까지 냉동고에 보관한 다음 Ca^{2+} , Mg^{2+} , K^+ , Na^+ , Al^{3+} 등의 양이온은 Atomic Absorption Spectrophotometer(Z8230, HITACHI), NO_3^- , SO_4^{2-} , Cl^- 등은 Ion Chromatography(DX-120, DIONEX), 또한 NH_4^+ 는 Auto ion analyzer에 의해 측정하였다.

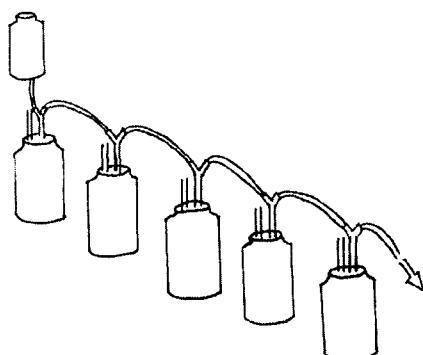


Fig. 2. Sequential rain sampler.

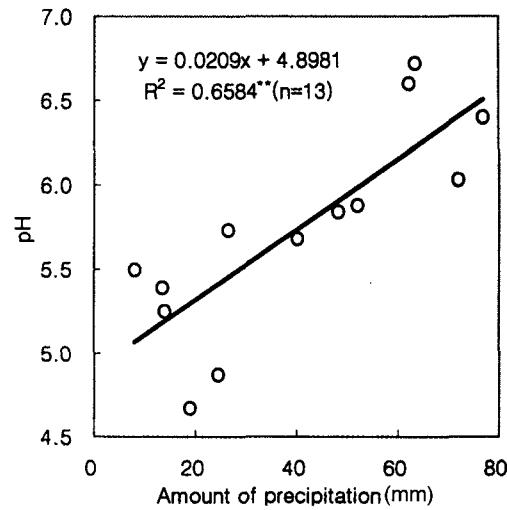


Fig. 3. Relationship between the pH and the amount of precipitation.

III. 결과 및 고찰

3.1. 강우량에 의한 pH의 변화

본 연구에서 측정된 임외우의 pH의 범위는 4.67~6.72였으며, 평균 pH는 5.74 ± 0.62 로 나타났다. 이러한 결과는 우리나라 중부지방의 성남(pH6.27), 인천(pH5.80)과 청원(pH6.06)지역에서 관측한 강우의 평균 pH 보다는 낮은 값이었으나, 강릉(pH4.83)의 경우보다는 높은 pH를 보였다(박국태 등, 1995). 또한 이 기간 중 조사지의 강우량 범위는 8.10 mm~77.00 mm로 평균 40.07 ± 23.99 mm로 측정되었다. Fig. 3은 강우량과 임외우 pH의 관계를 나타낸 것이다. 그 결과를 보면 전체적으로 강우량이 적은 경우 임외우 pH 가 낮은 값을 보였으며, 강우량이 증가함에 따라 pH 역시 높아지는 경향을 알 수 있다. 이는 초기 강우시에 많은 양의 양이온과 음이온이 함께 설정되어 임외우 중에 용해되어 pH에 영향을 주는 것으로 사료된다(최금찬 등, 1998).

임외우의 각 조사 임분의 수간류, 수관통과우에서 나타난 pH의 경시적 변화는 Fig. 4에 나타내었다. 임외우 pH의 계절적인 경시적 변화 특성은 조사기간(98년 7월~99년 6월) 중 98년 10월과 99년 6월에 가장 낮은 pH를 보인 반면 그 외의 시기에 있어서는 pH5.50~6.50의 범위 내에서 추이되고 있었다. 수관통과우 pH는 99년 5월과 6월을 제외하고는 임외우에 비하여 비슷하거나 약간 낮은 값을 나타내고 있었으

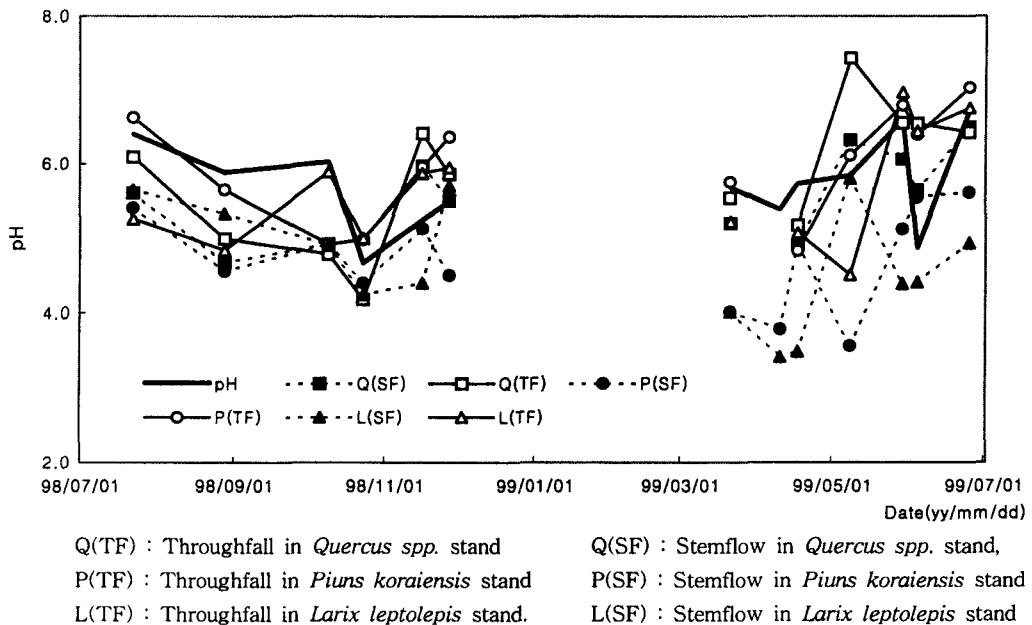


Fig. 4. Seasonal changes of the pH variation to precipitation, stemflow and throughfall in each study stands.

나, 수간류 pH에 있어서는 임외우와 수관통과우 농도와 비슷한 값을 보이는 활엽수림을 제외하고는 낙엽송림, 잣나무림에서 임외우에 비하여 pH1.00~2.00 낮은 값을 보이고 있었다. 따라서 수관통과우 pH에 있어서는 수종간 차이는 뚜렷하지 않았으나, 수간류 pH의 값에 있어서는 수종간 차이(활엽수림>낙엽송림=잣나무림)를 나타내고 있었다. 수관통과우, 수간류 pH의 계절적인 경시적 변화는 일부 예외는 있으나 3개 수종 모두 임외우 pH의 변화와 유사한 경향을 보이고 있었다.

임외우의 pH와 수관통과우 및 수간류 pH와의 관계를 보면, 임외우 pH가 증가하면 수관통과우 pH도 증가하는 경향을 보이고 있는데, 특히 활엽수림 수관통과우의 pH는 타 임분에 비하여 즉, 침엽수림 임외우 pH 값의 크기에 관계없이 pH5.50~6.50의 일정한 범위였으며, 그 분포의 폭이 작게 나타나서 임외우 pH에 대한 수종차이 즉, 침엽수에 비하여 임외우의 산성화에 대한 완충능의 수종 특성이 존재하고 있음이 확인되었다. 이는 지금까지 연구 보고된 활엽수가 침엽수에 비하여 산성우에 대한 완충성이 크게 기여한다는 결과(Parker, 1990; Waki et al., 1990; Sassa et al., 1991)와 일치하였다.

또한, 수간류 pH는 임외우 pH와 거의 비슷한 값을

나타내고 있는 활엽수림을 제외하고는 잣나무림, 낙엽송림에 있어서 임외우 pH 보다 pH1.00~2.00 정도 낮은 값을 보이고 있었다. 이와 같이 수관, 가지 및 줄기를 따라 유하한 수간류 pH는 수관만을 통과한 수관통과우 pH에 비하여 낮았는데, 활엽수림에 비하여 잣나무림, 낙엽송림에서 그 경향이 뚜렷하였다. 이러한 결과는 수종에 따라서 산성화 경향의 수간류와 알칼리화 경향의 수간류가 있어 수간류 pH가 수종 고유의 값을 나타내고 있다는 다른 연구 결과(Sassa et al., 1991; Sanada et al., 1992; 野呂와 佐々, 1992)와 유사한 경향을 보였다.

3.2. 초기 및 후속강우의 월별 pH 변화

잣나무림, 낙엽송림 그리고 활엽수림에서 채취한 임내우(수관통과우, 수간류)를 초기강우(early rain)와 후속강우(succeeding rain)로 구분하여 그 pH를 측정한 결과를 Table 2에 나타내었다. 대체로 강우량이 적은 때에 pH는 큰 폭을 나타내어 pH4.00~6.60의 범위를 보였으며, 또한 강우량이 많아지면 pH5.00정도에서 거의 일정한 값을 나타내고 있어 강우량에 따른 pH의 변화 경향은 강우량이 증가할수록 낮아지다가 강우량이 일정량 이상이 되면 거의 변화가 없는 것으로 확인되었다. 이와 같은 현상은 초기강우 시에 많은 양의

Table 2. Monthly pH variation of precipitation, throughfall and stemflow in each forest stands

| Species | Division | Jul-'98 | Aug-'98 | Oct.'98 | Nov.'98 | Mar.'99 | Apr.'99 | May.'99 | Jun.'99 |
|---------|-----------------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|
| QSF | Precipitation | 5.47 | 4.83 | 5.35 | 5.51 | 5.68 | 5.72 | 6.60 | 6.04 |
| | Early rain | 5.88 | 4.67 | 5.35 | 5.98 | 5.54 | 5.53 | 6.56 | 5.93 |
| | Succeeding rain | 6.02 | 5.43 | 4.92 | 5.74 | 5.20 | 4.91 | 6.19 | 6.12 |
| | S.D. | 0.22 | 0.40 | 0.23 | 0.20 | 0.21 | 0.29 | 0.20 | 0.14 |
| QTF | Early rain | 6.07 | 4.99 | 5.85 | 6.00 | 5.97 | 5.61 | 7.29 | 6.64 |
| | Succeeding rain | 6.09 | 4.85 | 6.30 | 6.14 | 5.54 | 5.58 | 6.96 | 5.77 |
| | S.D. | 0.35 | 0.09 | 0.72 | 0.33 | 0.18 | 0.24 | 0.27 | 0.44 |
| | Early rain | 5.41 | 4.56 | 5.09 | 5.80 | 4.54 | 4.60 | 5.12 | 4.62 |
| PSF | Succeeding rain | 6.26 | 5.77 | 6.26 | 5.06 | 4.92 | 4.05 | 5.95 | 6.17 |
| | S.D. | 0.47 | 0.64 | 0.52 | 0.43 | 0.70 | 0.70 | 0.80 | 0.63 |
| | Early rain | 5.92 | 5.65 | 6.02 | 6.13 | 5.91 | 5.37 | 5.10 | 7.36 |
| | Succeeding rain | 6.62 | 5.54 | 6.35 | 6.16 | 5.77 | 5.03 | 6.17 | 6.26 |
| PTF | S.D. | 0.52 | 0.45 | 0.58 | 0.37 | 0.10 | 0.39 | 0.90 | 0.58 |
| | Early rain | 5.96 | 5.32 | 5.48 | 5.53 | 4.01 | 3.74 | 4.90 | 4.17 |
| | Succeeding rain | 5.65 | 5.33 | 5.41 | 5.05 | 4.86 | 3.57 | 5.41 | 4.28 |
| | S.D. | 0.20 | 0.34 | 0.40 | 0.27 | 0.67 | 0.84 | 0.65 | 0.88 |
| LSF | Early rain | 5.41 | 4.84 | 5.81 | 5.96 | 6.21 | 5.25 | 6.28 | 6.24 |
| | Succeeding rain | 5.26 | 5.45 | 4.04 | 6.63 | 6.13 | 5.44 | 6.60 | 6.60 |
| | S.D. | 0.11 | 0.36 | 0.69 | 0.52 | 0.40 | 0.28 | 0.34 | 0.33 |

QTF : Throughfall in *Quercus spp.* standQSF : Stemflow in *Quercus spp.* standPTF : Throughfall in *Pinus koraiensis* standPSF : Stemflow in *Pinus koraiensis* standLTF : Throughfall in *Larix leptolepis* standLSF : Stemflow in *Larix leptolepis* stand

양이온과 음이온이 함께 세밀되어 우수 중에 용해되어 pH의 변화를 가져오기 때문이다(최금찬 등, 1998). 일반적으로 강우량이 증가함에 따라 pH가 일정 수준(4.20~4.70)에 수렴하는 경향이 보고되었으며, 이와 같은 현상이 일어나는 것은 강우 초기에 대기 중에서 산성물질과 함께 $\text{NH}_3\text{와 CaCO}_3\text{와 같은 성분들이 함께 녹아들어 산성물질을 중화시키기 때문으로 추측하고 있다}$. 본 연구에서도 황사 전후인 1999년 4월에 내린 임외우의 경우에서 pH가 봄철 평균 pH4.92(최금찬 등, 1998)보다 높은 값을 나타내고 있어 초기 강우시 산성물질이 중화됨을 뒷받침하고 있다.

각 수종별 초기강우와 후속강우의 변화를 보면, 활엽수림은 수간류에서 1998년 10월과 1999년 4월, 수관통과우에서는 1998년 8월을 제외하고는 초기강우의 pH 변화 폭이 크게 나타났으나, 후속강우의 pH는 5.20~6.90의 일정한 범위 내에서 변화하였다. 그러나, 잣나무림과 낙엽송림에서는 초기강우와 후속강우의 변화에 대하여 뚜렷한 특성을 찾을 수 없었다. 이와 같은 경향은 활엽수림이 침엽수림에 비해 임외우의 pH에

대한 완충의 성질을 가지고 있다는 다른 연구 결과(주영특 등, 1999)와 관계가 깊은 것으로 판단하였다.

3.3. 임외우, 수관통과우 및 수간류의 화학적 조성

5단계로 구분하여 채수한 임외우와 수관통과우, 수간류의 이온농도의 변화를 나타내면 Fig. 5와 같다. 그 결과 1단계(< 18.0 mm)에서는 양이온과 음이온 모두 급격한 농도 감소의 변화를 보이고 있으며, 이것은 강우초기의 세정작용에 기인하는 것으로 판단하였다. 2단계 이상에서는 농도변화가 1단계에 비해 크게 나타나지 않았으나, NO_3^- 를 제외한 음이온의 양이 양이온의 양보다 적게 변화함을 알 수 있다. 이러한 경향은 강우량이 적은 초기 강우에서 많은 양의 양이온이 제거되어 임내우 중에 포함됨을 의미하며, 강우량이 많은 2단계 이상에서는 양이온이 제거되어 적게 존재하게 됨을 의미한다. 초기 강우에 Na^+ 등의 양이온 양이 많이 포함되어 있어 초기 강우시 이들 성분들이 많이 제거됨을 알 수 있으며, pH의 변화에 영향을 주는 요소임을 확인할 수 있다. 동시에 SO_4^{2-} , NO_3^-

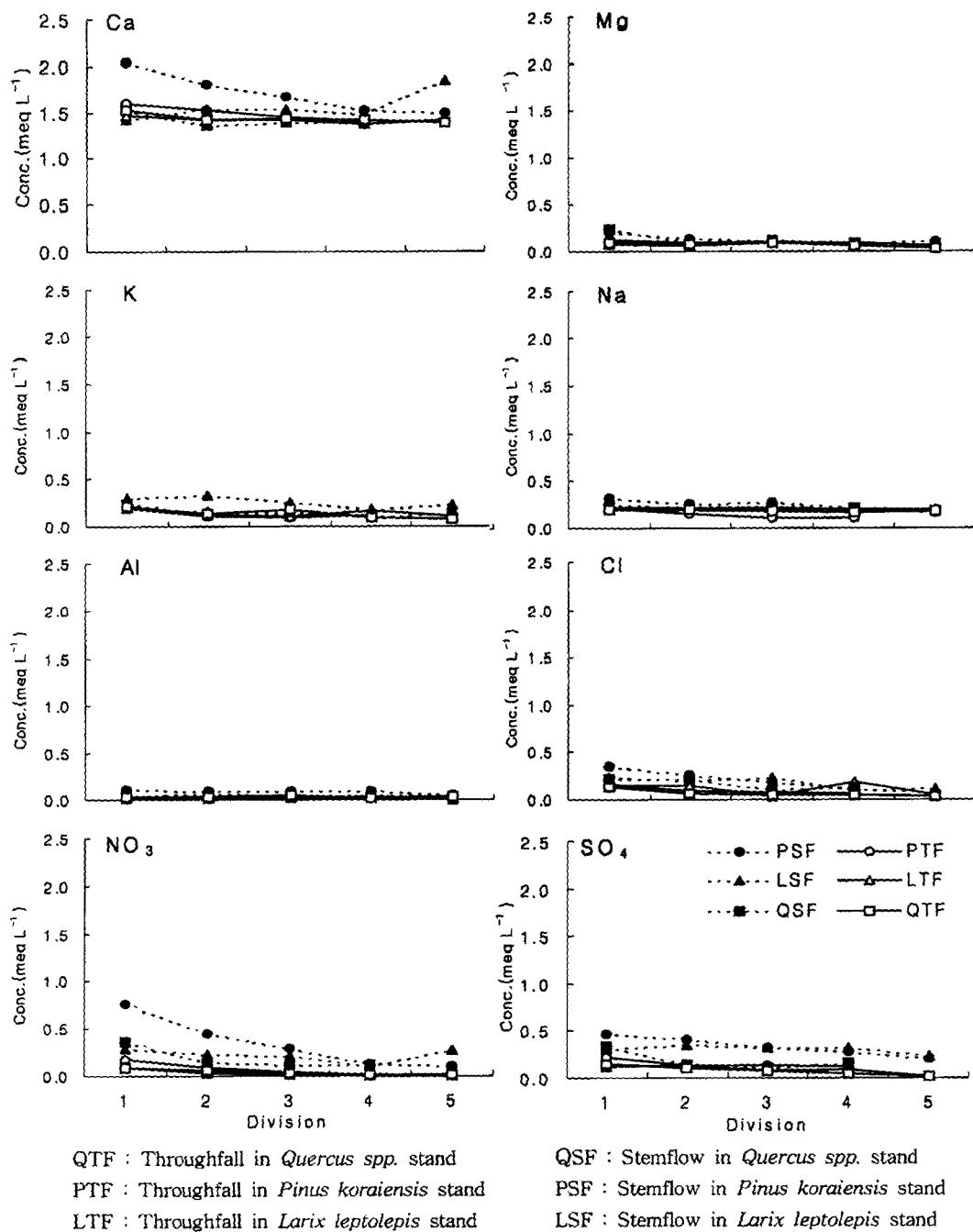


Fig. 5. Change of Ion concentrations in throughfall and stemflow of forest stands with sequential rain sampler.

등의 음이온도 역시 초기 강우에 많이 제거되지만 강우량이 증가함에 따라 양이온의 제거량 만큼 급격한 감소는 보이지 않는다. 이 사실은 후속 강우가 초기 강우시 양이온의 영향을 많이 받는 것과는 달리

SO_4^{2-} , NO_3^- , Cl^- 등 음이온의 영향을 많이 받으며, 음이온 성분 등은 가스상이나 미세입자로 존재함으로 강우량이 증가함에도 지속적으로 세정되어 후속 강우에 영향을 주는 것으로 사료된다.

IV. 적  요

경기도 광주지역의 잣나무, 낙엽송, 활엽수 임분에 있어서 pH 및 용존 원소의 수직적인 이동특성을 구명하기 위하여 강우의 지속에 따른 임외우와 임내우 pH 와 강우 중 화학적 조성을 각 단계별로 분할 채취하여 조사, 분석한 결과를 요약하면 다음과 같다.

임외우의 pH의 범위는 4.67~6.72였으며, 평균 pH 는 5.74 ± 0.62 로 나타났다. 임외우의 pH와 수관통과우 및 수간류 pH와의 관계를 보면, 임외우 pH에 대한 수종차이 즉, 침엽수에 비하여 임외우의 산성화에 대한 완충능의 수종 특성이 존재하고 있음을 알 수 있었다. 또한, 수종에 따라서 산성화 경향의 수간류와 알칼리화 경향의 수간류가 있어 수종에 따라서 수간류의 pH 변화에 대한 특성을 보였다.

각 수종별 초기강우와 후속강우의 변화를 보면, 활엽수림은 수간류에서 1998년 10월과 1999년 4월, 수관통과우에서는 1998년 8월을 제외하고는 초기강우의 pH 변화 폭이 크게 나타났으나, 후속강우의 pH는 5.20~6.90의 일정한 범위 내에서 변화하였다.

후속 강우가 초기 강우시 양이온의 영향을 많이 받는 것과는 달리 SO_4^{2-} , NO_3^- , Cl^- 등 음이온의 영향을 많이 받으며, 음이온 성분 등은 가스상이나 미세입자로 존재함으로 강우량이 증가함에도 지속적으로 세정되어 후속 강우에 영향을 주는 것으로 볼 수 있다.

감사의 글

본 연구는 1996~1999년도 한국과학재단 특정연구 과제(과제번호 96-0402-07-01)에 의하여 수행된 연구 결과의 일부임.

인용문헌

- 김종갑. 1992: 온산공단주변의 대기오염이 산림식생에 미치는 영향. 경상대학교 박사학위논문, pp.1-59.
- 박국태, 문경언, 허정구, 홍현복, 1995: 경기도 성남시, 이천시, 강원도 강릉시, 충북 청원군 강수의 화학적 성분에 관한 비교 연구. 한국대기보전학회지, 4(3), 285-294.
- 박종길, 황용식, 1997: 김해지방의 강수의 산도 및 화학적 성분 특성. 한국환경과학회지, 6(5), 461-472.
- 주영특, 진현오, 손요환, 오종민, 정덕영, 1999: 강우와 식생의 상호작용이 수관통과우 및 수간류의 화학적 성질변화에 미치는 영향. 한국임학회지, 88(2), 149-156.
- 최금찬, 김창환, 조정구, 박정호, 1998: 부산시 일부지역에 대한 초기 및 후속강우의 이온성분 특성. 한국대기보전학회지, 14(4), 361-368.
- 酸性雨調査研究會, 1993: 酸性雨調査法. ぎようせい, 401pp.
- 井川學, 1994: 日本氣象學會春季大會シンポジウム「酸性雨-地球環境問題として-」の報告. pp.271-275.
- 野呂忠幸, 佐々朋幸, 1992: 主な落葉廣葉樹樹幹流の酸性度比較. 日林東北支誌, 44, 137-140.
- Aron, D. B. and L. J. Lund, 1994: Factors controlling throughfall characteristics of a high elevation Sierra Nevada site, California. *Journal of Environmental Quality*, 23, 844-850.
- Bellot, J. and A. Escarre, 1991: Chemical characteristics and temporal variations of nutrients in throughfall and stemflow of three species in Mediterranean holm oak forest. *Forest Ecology and Management*, 41, 125-135.
- Berger, T. W. and G. Glatzel, 1994: Deposition of atmospheric constituents and its impact on nutrient budgets of oak forests (*Quercus petraea* and *Quercus robur*) in lower Austria. *Forest Ecology and Management*, 70, 183-193.
- Binkley, D., J. P. Kimmins and M. C. Feller, 1982: Water chemistry profiles in an early-and mid successional forest in coastal British Columbia. *Canadian Journal of Forest Research*, 12, 240-248.
- Cappellato, R., N. E. Peters and H. L. Ragsdale, 1993: Acidic atmospheric deposition and canopy interactions of adjacent deciduous and coniferous forests in the Georgia Piemont. *Canadian Journal of Forest Research*, 23, 1114-1124.
- Cheng, R. J., J. R. Hwu, J. T. Kim and S. M. Leu, 1987: Deterioration of marble structures, The role of acid rain. *Analytical Chemistry*, 59, 104A-106A.
- Cogbill, C. V. and G. E. Likens, 1974: Acid precipitation in the northern United States. *Water Resource Research*, 10(6).
- Cooper, H. H. and J. A. Lopez, 1976: Chemical composition of acid precipitation in central Texas. WASP., p.6.
- Cronan, C. S., R. C. Reynolds, Jr. and F. E. Lang, 1978: Forest floor leaching: contribution from mineral, organic, and carbonic acids in New Hampshire subalpine forests. *Science*, 200, 309-311.
- EEC, 1985: Report on the actions of the Commision of the EEC on acid deposition. EUR 9985EN, 1-57.
- Emmett, B. A., B. Reynolds, M. Silgram, T. H. Sparks and C. Woods, 1998: The consequences of chronic nitrogen additions on N cycling and soil water chemistry in a sitka spruce stand, north Wales. *Forest Ecology and Management*, 101, 165-175.
- Environmental Resources, 1983: Acid Rain, A review of the phenomenon in the EEC and Europe. Graham and Trotman, London.
- Georgii, H. W., 1986: Atmospheric pollutants in forest areas. Reidel Publishing Co., Dordrecht. Holland. 287p.

- Haibara, K. and Y. Aiba. 1982: The nutrient circulation and budget for a small catchment basin of an established Sugi (*Cryptomeria japonica* D.DON) and Hinoki (*Chamaecyparis obtusa* S et. Z.) stand. *Journal of Japanese Forestry Society*, **64**, 8-14.
- Hutchinson, T. C. and M. Havas, 1980: Effects of acid precipitation on terrestrial ecosystems, in proceedings of the NATO Conference on effects of acid precipitation on vegetation and soils, Toronto, Ontario, Canada, May 21-27, 1978. *Plenum Press*, New York.
- Lovett, G. M. and S. E. Lindberg, 1984: Dry deposition and canopy exchange in a mixed oak forest as determined by analysis of throughfall. *Journal of Applied Ecology*, **21**, 1013-1027.
- Manion, P. D. and D. Lachance, 1992: Forest decline concepts. *APS Press*. St. Paul. MN. 249p.
- Maynard, D. G., 1997: Soil nutrient dynamics in a boreal mixedwood cutover following the application of hexazine. *Ecological Applications*, **7**, 416-430.
- McDonald, N. W., A. J. Burton, H. O. Liechty, J. A. Witter, K. S. Pregitzer, G. D. Mroz and D. D. Richter, 1992: Ion leaching in forests ecosystem along a Great Lakes air pollution gradient. *Journal of Environmental Quality*, **21**, 614-623.
- Nakashima, Y. and K. Tanabe, 1991. Studies on the effect of forest system by acid rain (I)-Chemical compositions of rain water and fog water at Miyosi area. *Bulletin of Hiroshima Prefectural Forest Experiment Station*, **26**, 63-74.
- Parker, G. G., 1990: Evaluation of dry deposition pollutant damage, and forest health withthroughfall studies. In mechanism of forest responses to acidic deposition. Lui-
ser, A. A. and S. G. Haines (eds). 245pp. *Springer-Ver-*
lag. New York, 10-61.
- Pierson, W. R. and T. Y. Chang, 1986: Acid rain in western Europe and northeastern United States-a technical appraisal, *CRC Critical Reviews in Environmental Control*, **16**, 167-192.
- Sanada, M., R. Ootomo, E. Sanada and S. Ohta. 1992: Characteristics of throughfall and stemflow of some different man-made forests. *Transaction of Japanese Forestry Society*, **103**, 257-258 (in Japanese).
- Sassa, T., K. Gotoo, K. Hasegawa and S. Ikeda. 1991. Acidity and nutrient elements of the rain fall, throughfall and stem flow in the typical forests around Morioka City, Iwate Pref., Japan. -Characteristic pH value of the stem flow in several tree species- *Japanese Journal of Forest Environment*, **32**(2), 43-58.
- Schutt, P. and E. B. Cowling, 1985: A general decline of forests in central Europe : symptoms, development and possible cause. *Atmospheric Environment*, **19**, p.637.
- Sengoku, T., M. Hara, T. Morisawa and K. Ishizuka. 1994: Observation of acid rain at subalpine coniferous forest on Mt. Ontake. *Japanese Journal of Forest Environment*, **36**, 8-15.
- Tsutsumi, T. and Y. Nishitani, 1984: On the effects of soil fertility on the throughfall chemicals in a forest. *Japanese Journal of Ecology*, **34**, 321-330.
- U.S. EPA., 1983: Acidity nutrient and minerals in atmospheric precipitation over Florida deposition patterns, mechanisms and ecological effects. *EPA-600/3-83-004*.
- Waki, K., K. Kurumado and T. Matsuhashi. 1990: On the acidifying conditions of precipitation in the mountainous area. *Transaction of Japanese Forestry Society*, **101**, 253-254 (in Japanese).