

関東平野北西縁部における窒素流出特性

CHARACTERISTIC OF NITROGEN OUTFLOW FROM MOUNTAIN AREA IN THE NORTHWEST OF KANTO PLAIN

長谷川香織¹・小葉竹重機²
HASEGAWA Kaori, KOBATAKE Shigeki

¹ 学生会員 工修 群馬大学大学院 工学研究科 (〒376-8515 群馬県桐生市天神町一丁目5番1号)

² 正会員 工博 群馬大学教授 建設工学科 (〒376-8515 群馬県桐生市天神町一丁目5番1号)

The runoff characteristics of $\text{NO}_3\text{-N}$ in forested mountain areas located in the northwest of Kanto Plain is investigated by field observation from 2001. The observation consists of two components, one is $\text{NO}_3\text{-N}$ concentration in mountain stream water and the other is vertical profile of $\text{NO}_3\text{-N}$ concentration in soil water. It is clarified that the large difference of $\text{NO}_3\text{-N}$ concentration in mountain stream water exists between the west side and the east side of Tone River. Though $\text{NO}_3\text{-N}$ concentration in soil water shows the almost similar tendency, vertical profile shows three types that do not exactly correspond to the areal distribution of concentration. By the correlation analysis, there is positive correlation between rainfall events and increase of $\text{NO}_3\text{-N}$ concentration in mountain stream water in the east side of Tone River, where the concentration is low. On the contrary, no correlation is found out in the west side of Tone River, where the concentration is high. These phenomena correspond to the nitrogen saturation.

Key Words : water quality of mountain stream water, nitrogen deposition, nitrogen saturation, transport of air pollutants

1. 概論

近年、欧米諸国の森林において、おもに都市部に由来する過剰な NO_x 排出による影響が、窒素飽和を示す現象を引き起こし、その多方面への影響が懸念されている。日本においても、おもに大都市近郊の森林において同様の現象が起きつつあることが報告されてきている¹⁾。欧米諸国を対象としたこれまでの報告では、おもに人為的な影響で多量な窒素が、大気や施肥作業によって供給され、それによって森林生態系内で窒素が飽和状態となり、それら森林を流域とする渓流水中の窒素濃度が高くなることを窒素飽和の一現象としている²⁾。特に、大気に由来する窒素の過剰供給は、その直接制御の手段がなく、施肥などの直接的な人為関与の影響がない渓流の上流部分にも影響を与える、下流域への影響が懸念されている。渓流水中の窒素はおもに硝酸態窒素、亜硝酸態窒素、アンモニア態窒素として存在しており、施肥や人為的排水のない場合にはその多くが硝酸態である。硝酸態窒素が多量に人体に摂取されると、体内で亜硝酸態窒素に還元される。これは血液の機能に悪影響を及ぼし、発がん性物質の生成源となるといわれており、水道水の含有制限値は日本では 10 mg/l とされている。

2003年に群馬県で行われた井戸水調査では全県 151 箇所中 36 箇所において飲用制限値を上回る硝酸態窒素が

検出されたことが報告されており³⁾、生活レベルにおいてもその影響が懸念されている。これらには施肥や畜産業などの直接的要因が関わっていることがわかつており、その対応が急がれている。しかし、このような直接的影響がない水域でも、高濃度の無機態窒素が検出される報告⁴⁾が存在している。群馬県は首都圏地域とそれを含む関東平野を囲む形の山岳地形が発達しており、首都圏において発生した窒素酸化物が風によって運ばれ、これら山岳地域に捕捉されている可能性が報告されている⁵⁾。

しかし、その現状の広域的かつ継続的な把握は未だ十分であるとは言えず、渓流水中の硝酸態窒素の溶存状況について情報を蓄積し、これを踏まえたマクロな機構と地域特性の解明が望まれている。

本研究は群馬県内において、関東平野の北西端部という視点から調査地を設定し、県内全域で継続的に渓流水のモニタリングを行った。そしてその地域特性を求めるとともに、窒素の渓流水への流出を予測するために、陸域、大気を含めた、地域の森林における窒素循環モデルを構築することを最終的な目標としている。

2. 調査地点・調査方法

(1) 調査地点

モニタリングは群馬県内 13 の調査地において行った。

これらの調査地は関東平野の北西端部という位置環境を考慮して設定したもので、いずれもその上流に生活排水や施肥などの人為的な直接影響がないことを確認している。調査地の位置を図-1に示す。

(2) 調査方法

森林生態系への森林外からの窒素供給源は自然状態では大気の78%を占める窒素ガスであり、鉱物にはほとんど由来しない。また、人為的な直接関与がない溪流水中に存在する無機態窒素はそのほとんどが硝酸態窒素であり、亜硝酸態窒素およびアンモニア態窒素の存在量は少ないとされる。

本研究では、調査初期段階にあたる2000年6月から2001年11月まで桐生市川内（図中kawauchi）、箕郷町唐沢（karasawa）、吉井町東谷の1点（yoshii①）とその近傍流域の溪流水中無機態窒素濃度の状況を調査した。これによると、本調査地でも溪流水中に存在する無機態窒素のほとんどが硝酸態窒素であることがわかった。これらの事前調査の結果を経て、本調査では溪流水と、その流域の土壌抽出水の硝酸態窒素濃度のモニタリングを中心に行った。

a) 溪流水

溪流水中に存在する硝酸態窒素の濃度を調査するため溪流水を採取し、現地および実験室にて分析を行った。調査はyoshii①, yoshii②, karasawa, hishi, kawauchiの計5点を隔週、それ以外の8点を毎月1回、同じ日がある場合はそれに近い条件下で行った。水質分析はHACH社製迅速水質分析計（DR-820）および共立製水質迅速分析計を用い、吸光光度法によって行った。両測定器の検査法は、HACH社製迅速水質分析計がカドミウム還元法、共立製水質迅速分析器が亜硝酸還元法によるものである。なお、両測定器間の誤差は最大でも0.2mg/lであったため、測定器による値の測定毎の補正などは行っていない。

b) 土壤抽出水

溪流水質とその流域の土壤における硝酸態窒素の状況を調査するためにjizo以外の全調査地流域の土壤を採取し、その抽出水の分析を行った。土壤を鉛直方向に地上から10cmと20cm、そしてそれ以下を20cm深まで80cm深まで採取し、その土壤からの抽出水を分析した。採取頻度は各調査地によって異なるが、採取日および年毎の採取時期の統一に配慮して採取を行った。

土壤中の硝酸態窒素は、陰イオンである硝酸イオンとして存在しているため、土壤とは電気的な吸着が起きない。そのため、水中に溶出しやすく、土壤抽出水中に存在するほぼ全量が抽出できるという特性がある⁶⁾。土壤抽出水の調整には風乾させた試料を用い、風乾試料と蒸留水を質量比1:5の割合にてガラス容器内で混合し、振とう機によって1時間振とう後、No6の乾燥ろ紙でろ過し、さらに0.45μmのメンブランフィルターで吸引ろ過したものを試料とした⁷⁾。試料の分析は溪流水の分

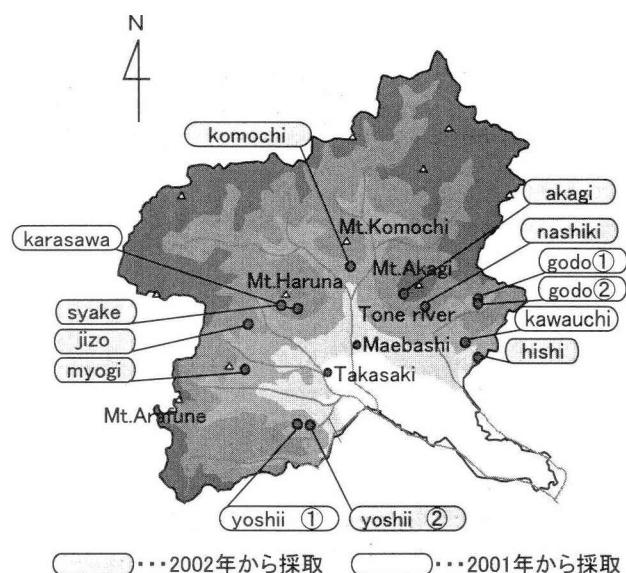


図-1 調査地位置図

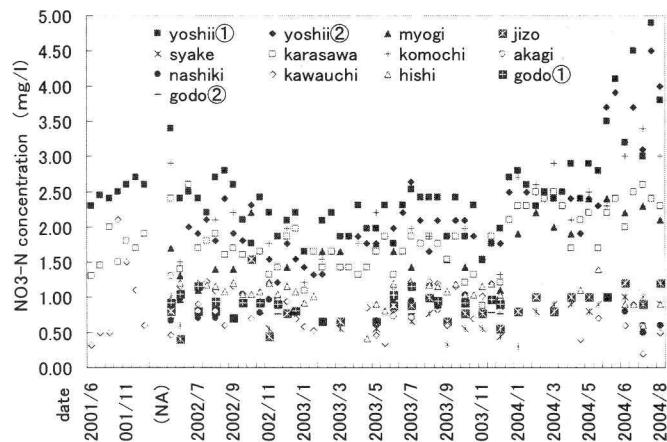


図-2 溪流水中硝酸態窒素濃度の推移

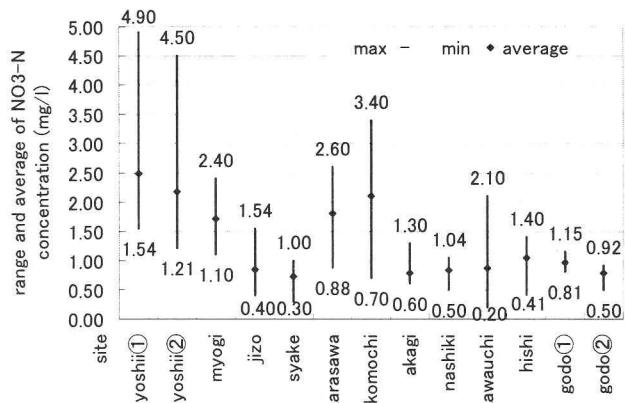


図-3 調査地毎の溪流水中硝酸態窒素濃度範囲
および平均濃度

析と同じカドミウム還元法および亜硝酸還元法によって行った。

3. 観測結果の概要

(1) 溪流水中硝酸態窒素濃度の傾向

yoshii①, kawauchi, karasawa は 2001 年から、それ以外は 2002 年から調査を行った。各調査地における溪流水中硝酸態窒素濃度の推移を図-2 に示す。また、調査地毎の濃度範囲および平均濃度を図-3 に示す。

各調査地のピークの出現状況には、部分的に同様の傾向がうかがえる。全体の濃度範囲は kawauchi の 0.2 mg/l から yoshii① の 4.9 mg/l まで幅が広く、調査地による傾向の相違が見られる。特に調査結果の平均濃度が 2.0 mg/l 以上を示す yoshii①, yoshii②, komochi は最高濃度がいずれも 3.0 mg/l 以上を示しており、他の調査地との相違が顕著である。また myogi, karasawa も最高濃度は 2.4 mg/l, 2.6 mg/l と高く、平均濃度も 1.5 mg/l 以上を示している。これらの 5 調査地以外はいずれも平均濃度 1.0 mg/l 程度以下を示している。

これらの濃度について他の報告^{8~10}による値との比較を行っておく。表-1 に関東地方を主とした他報告による溪流水中硝酸態窒素濃度の状況を示す。表中冒頭に示した全国大学演習林における調査結果⁸によると、群馬県内 6 調査地で 0.4~2.2 mg/l が得られている。また、同報告では長野県東部でも 0.9~1.1 mg/l が得られており、これら以外の全国的な平均値は 0.1 mg/l が示されている。本調査では最高濃度が 2.0 mg/l 以上を示す調査地が 6箇所、4.0 mg/l 以上を示す調査地が 2 箇所見られ、これら 6 調査地の報告の範囲を超えており、全ての調査地の平均濃度は、全国平均 0.1 mg/l を超える値を示している。

a) 季節による傾向

図-4 に yoshii①, yoshii②, komochi における調査月毎の溪流水中硝酸態窒素の推移を示す。これらはいずれも図-3 において濃度平均 2.0 mg/l 以上、最高濃度 3.0 mg/l 以上で、最高濃度と最低濃度の差が 2.5 mg/l 以上を示しているものである。2004 年の推移は 2003 年までのものと異なり、特に、yoshii①, ②では 2004 年 5 月以降、高濃度を示しているが、現在のところその原因是不明である。2003 年までの結果からは、夏季に若干の濃度上昇が見られるものの、ほぼ通年同様の値を示しており、この 3 調査地において顕著な季節変動はうかがえない。また、これら以外の調査地についても季節変動はほとんどうかがえない。なお、各年の 5 月から 8 月の間の降水量に大きな差異はない。

b) 降雨イベントとの相関

降雨イベントと溪流水中硝酸態窒素濃度の関係についての知見は蓄積されており、降雨イベントによる流量の増減とその水中硝酸態窒素濃度の動きは呼応していることが報告されている¹¹。

人為による直接的な負荷が排除された森林環境下では、

表-1 関東地方における溪流水中硝酸態窒素濃度

| | | | |
|------------------------|----------------|--|---|
| 6 sites, Gunma | 0.4~2.2 (mg/l) | (J.Jpn.For.Soc.82 2000) ⁸ | 3 |
| Another sites(average) | 0.1 (mg/l) | | |
| Hakuchi,Tokyo | 2.3 (mg/l) | Ogura et al.(1986) ⁹ | |
| Tsukubaibaraki | 1.8 (mg/l) | Hirata and Muraoka(1988) ¹⁰ | |

※ 値は各報告より抜粋し実際の報告値を換算したものである。

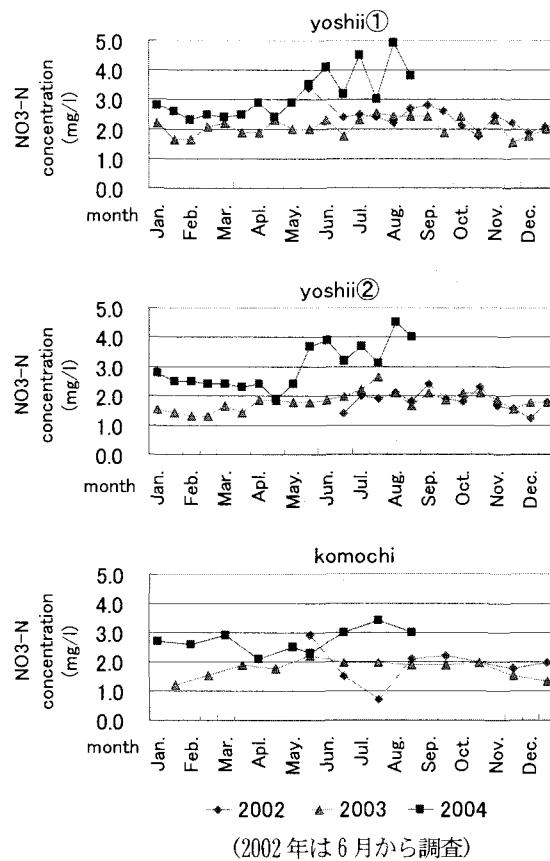


図-4 溪流水中硝酸態窒素濃度の年推移

窒素集積量の 90% は土壤に存在しており、そのほとんどが上部に存在している¹²。土壤表層部では落葉枝や動物の残渣などの有機態窒素と共に、それらが分解されて生成された無機態窒素が存在している。無機態窒素はアンモニア態、亜硝酸態、硝酸態の 3 様で存在しているが、好気的な条件下では硝化菌による硝化が進み、そのほとんどが植物の吸収に適した硝酸態窒素の状態で存在している。また、硝酸態窒素は鉱物に吸着にくく、水によって溶脱されやすい性質を持つ。日本の森林域では土壤表層部は浸透能力が高く、飽和地表流はほとんど見られない¹³。このような状況から、森林での降雨イベント時に硝酸態窒素濃度の高い土壤浅部の層内に飽和側方流が発生することで、溪流水に硝酸態窒素が溶脱するといわれている。

降雨イベントと溪流水中硝酸態窒素濃度の相関を求めるために調査日以前 5 日間の降雨情報を求め、検討を行った。降雨情報は県内気象台によるものから各調査地近傍のものを抽出した。調査日以前 5 日間の降雨情報に限

表-2 溪流水中硝酸態窒素濃度と降雨イベントの相関

| site | correlation coefficients | site | correlation coefficients |
|----------|--------------------------|----------|--------------------------|
| yoshii① | 0.089 | akagi | -0.128 |
| yoshii② | 0.094 | nashiki | 0.383 |
| myogi | -0.178 | kawauchi | 0.156 |
| jizo | 0.030 | hishi | 0.255 |
| syake | 0.095 | godo① | 0.772 |
| karasawa | -0.177 | godo② | 0.511 |
| komochi | -0.229 | | |

定したのは、前述のように溪流水中硝酸態窒素が地下水よりもむしろ中間流に依存していると考えられ¹¹⁾、中間流の発生する時間範囲を考慮したことによる。また、林外雨量と林内雨および樹幹流の発生に関して、ヒノキ林地において林外雨1mm以上で林内雨が、5mm以上で樹幹流が発生することが報告されている¹⁴⁾。以上を考慮して1mm以上の降雨のみを対象とし、それ以下は0mmとして扱った。

これによる降水量と溪流水中硝酸態窒素の相関係数を求めた。表-2はこの結果を示したもので、表の左半分は利根川以西、右半分は以東に位置する調査地を示している。この表から、利根川以東はakagiを除いて全ての地点が比較的高い正の相関を示している。この傾向は利根川以西の調査地に比べてきわめて特徴的な点である。これは次項で述べる濃度の地域分布の傾向と完全に一致し、平均濃度の低い利根川以東では降雨に濃度が応答するのに対して、平均濃度の高い利根川以西では降雨に対する濃度の応答がほとんどないことを示している。このことは、地域の窒素循環モデルを考える上で非常に重要な示唆を与えている。なお、利根川以東のうちakagiの傾向が異なる理由は、後述の首都圏からの大気移動の観点によれば、その移動経路に近いという点で、利根川以東の他の調査地とは異なることによるものと考えられる。

c) 地域的な分布

溪流水中硝酸態窒素濃度の地域分布について検討した結果を示したものが図-5である。この図から、利根川を挟んで西部と東部とで、その分布傾向に相違が見られ、利根川以西の溪流水の硝酸態窒素濃度は利根川以東と比較して高いことが示された。地域分布については、関東および中部地方での報告があり、平水時における1回採取によって、溪流水中硝酸態窒素濃度が高い地域が伊豆半島から茨城県にかけて関東平野を取り囲むように広範囲に分布する傾向が示されている⁴⁾。本調査による傾向もこの報告におおむね一致する。この理由については後述する。

(2) 土壤抽出水中硝酸態窒素濃度の傾向

溪流水中に溶存し、流域から流出する窒素はそのほとんどが硝酸態窒素であるが、この流出には流域の土壤が

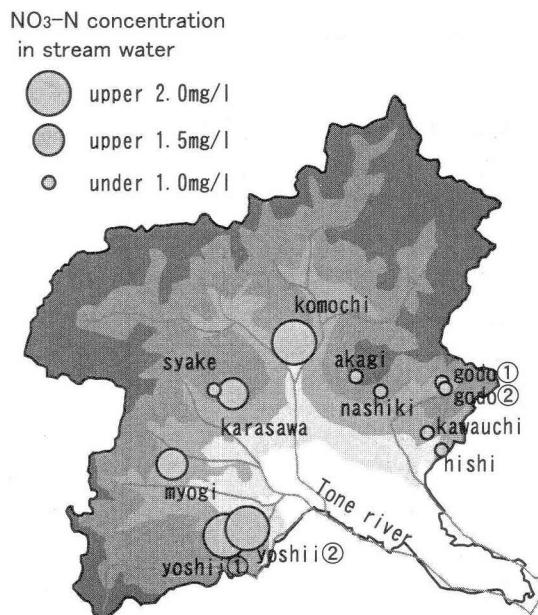


図-5 溪流水中硝酸態窒素濃度の地域分布（平均濃度）

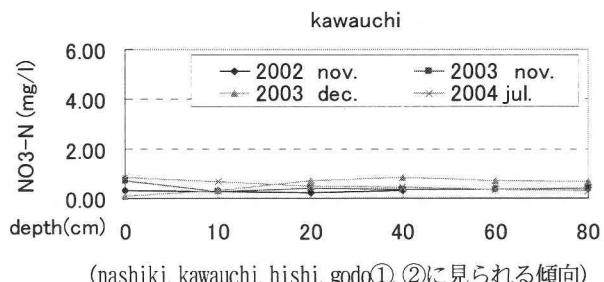
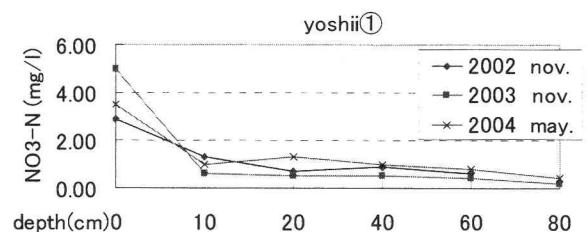


図-6 土壤抽出水の硝酸態窒素濃度－土壤深度分布①
(nashiki, kawauchi, hishi, godo①, ②に見られる傾向)

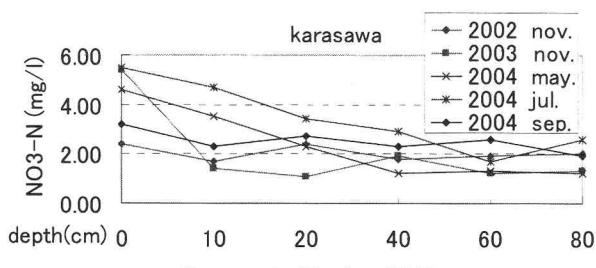
大きく関わっていると考えられる。土壤と溪流水中硝酸態窒素濃度の関係に関しては窒素安定同位体比の測定による先の研究が存在する¹⁵⁾。これによると、溪流水中硝酸イオンは大気から供給された窒素がダイレクトに流達したのではなく、土壤中の窒素プールとの相互作用を経たものであることが示されている。

本研究では、調査地流域の土壤を採取し、この抽出水を得て土壤抽出水中の硝酸態窒素濃度を分析した。土壤採取は2002年から2004年まで主として夏季から冬季にかけて調査地流域で行った。採取にあたっては、あらかじめ落葉枝などを多く含むA0層を除去しておき、無機質土層最上部であるA層以深で地上から10cmと20cm、以下20cm深毎に80cm深まで採取した。森林土壤において硝酸態窒素の存在量は、通常地上に近い部分が多く、深度が増すにつれて少なくなるのが一般的である。

本調査地での濃度の傾向は大きく3つのタイプに分けられる。第1のタイプは図-6に示すnashiki, kawauchi, hishi, godo①, ②(図ではkawauchiのみを示した)のように地表から80cm深までほとんど変化なく、1.0mg/l程度以下の低濃度を示すものである。これらを流域に含む溪流水の硝酸態窒素濃度はいずれも1.0mg/l程度を示しており、土壤中に含まれる硝酸態窒素濃度は、それらか



(yoshii①, ②, syake に見られる傾向)



(karasawa に見られる傾向)

図-7 土壤抽出水の硝酸態窒素濃度－土壤深度分布②

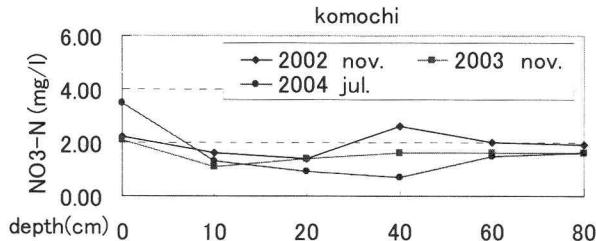


図-8 土壤抽出水の硝酸態窒素濃度－土壤深度分布③

ら流出する渓流水中の濃度と同程度であるといえる。これらの調査地では地表部分から窒素濃度が低いことから、リターによって供給された窒素に由来する硝酸態窒素のほとんどが植物によって吸収され、森林生態系の内部で窒素が循環していることがうかがえる。

第2のタイプは図-7に示すように地表に近いほど高濃度を示すものである。日本の森林土壤における一般的な傾向を示していると言える。この中で、karasawaは深度方向の濃度低下が比較的緩やかであり、40cm以深の濃度が2.0mg/l程度で変化が少ない傾向を示している。

第3のタイプは図-8に示すkomochiのように土壤深部において濃度の上昇が見られるものである。地上から10cm深で濃度が低下するものの、40cmもしくは60cm以深で上昇が見られる。また、60cm以深で2.0mg/l程度の濃度を示すのはkomochiとkarasawaのみである。

これらの土壤抽出水中濃度の地域分布(図-9)と前述の渓流水中濃度の地域分布との関係は、大まかに言えば、渓流水と同様に利根川以東で低く、以西で高い傾向が認められる。しかし、渓流水の濃度が高い傾向を示したyoshii①、②、myogiの土壤抽出水の濃度は低く、必ずしもその傾向は一致しているとはいえない。この原因を求めるためには、それぞれの地域で窒素循環を考慮したモデルを用いた検討を行う必要があるが、これにはそれぞれの流域の土壤性質も関わっていると考えている。ま

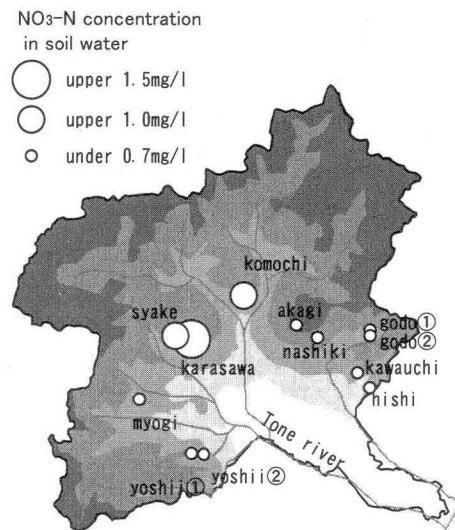


図-9 土壤抽出水中硝酸態窒素濃度の地域分布
(60, 80 cm深の平均濃度)

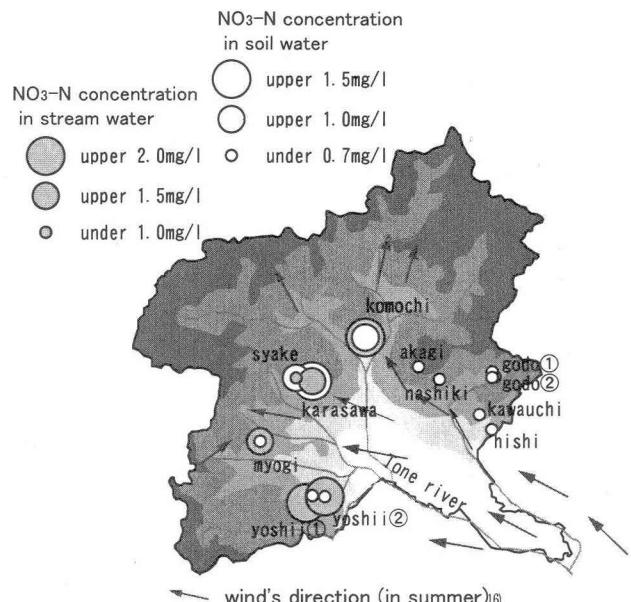


図-10 気塊移動と渓流水および土壤抽出水の
硝酸態窒素濃度傾向

た、ここでは土壤中の硝酸態窒素を渓流水中硝酸態窒素濃度に直接的に関わるものとして扱うこととしたが、土壤中窒素のほとんどを占める有機態窒素についても今後検討をする必要があると考えている。

(3) 首都圏からの大気移動との関係

図-10に本調査による渓流水中および土壤抽出水中硝酸態窒素濃度の地域分布と、栗田らによる気塊移動の経路¹⁰を示す。

高濃度の硝酸態窒素濃度を示す調査地はこの移動経路に接している。これについて青井ら⁹は群馬県西部における河川水中窒素の濃度特性について首都地域由来の窒素酸化物の関与を指摘している。本調査においても、その関与が明らかと思われる。

表-3 群馬県近県の大気中 NO₂ 濃度の年間平均値推移¹⁷⁾

| pref. | 2002 (ppm) | pref. | 2002 (ppm) |
|---------|------------|-----------|------------|
| Gunma | 0.0197 | Saitama | 0.0251 |
| Ibaraki | 0.0130 | Nagano | 0.0150 |
| Tochigi | 0.0183 | Yamanashi | 0.0160 |

大気中の窒素酸化物はオキシダントとともに光化学スモッグの原因物質であり、全国でその観測が行われている。国立環境研究所環境情報センター環境数値データベース¹⁷⁾による2002年県別平均の大気中二酸化窒素濃度を表-3に示す。近県の状況と比較してみると埼玉県を除けば、群馬県における観測値が高い。これらにはそれぞれの観測地域で発生した二酸化窒素が関わっているため、気塊移動による影響だけを示しているとは言えない。しかしながら、これまでに得られた結果から、これらには首都地域由来の窒素酸化物が大きく関わっていることが考えられる。

4. 結論

関東平野北西縁部において、溪流水と土壤抽出水中の硝酸態窒素が高濃度を示す地域分布には同様の傾向が認められた。高濃度域は利根川以西に見られ、利根川以東では比較的濃度が低いことが示された。また、溪流水濃度は全国的な値と比較して高いことが示され、高濃度を示す利根川以西の溪流水からは、これまでの報告による濃度範囲を超える傾向を示すものが見られた。

これに関して、首都圏からの大気移動との関連性が考えられ、首都圏由来の窒素酸化物が大気によって輸送され、その移動経路が関東平野北西縁部における硝酸態窒素の流出動態に関わっていることが示唆された。

さらに、降雨イベント時の溪流水濃度の応答性について、溪流水硝酸態窒素が高濃度を示す調査地では降雨イベントとの正の相関はほとんど認められず、低濃度を示す調査地では正の相関が認められた。このことは、地域森林の窒素循環モデルを検討する上で大変重要な示唆を与えている。

これらのこととは、関東平野の北西縁部の一地域において、窒素飽和の現象が生じていることを示唆しているものとも考えられる。今後その機構の更なる解明と、下流域への影響を含めた、地域性に着目した窒素循環モデルを構築する必要がある。

謝辞：本研究を進めるにあたり、その調査に多大なるご協力をいただいた群馬大学工学部松本健作助手、特定非営利活動法人NPOぐんま飯島弘幸主任研究員に深く感謝申し上げます。また、ともに研究に励み情報の蓄積に努力していただいた長谷部知広氏、加部 誠氏、朝倉裕介氏、武藤吉春氏、太田 烈氏に深く感謝申し上げます。本研究の一部は文部科学省科学研究費(基盤C)および財

団法人河川環境管理財団ならびに財団法人住友財団の研究助成を受けました。ここに感謝を申し上げます。

参考文献

- 1) K.Ohrui , M.J.Mitchell : Nitrogen saturation in Japanese forested watersheds, Ecol. Appl. 7, pp391~401, 1997a.
- 2) Aber, JD., Nadelhoffer, K.J., Steudler, P., Melillo, J.M. : Nitrogen saturation in northern forest ecosystems. Bioscience, 39, 1989.
- 3) 平成15年度地下水質概況調査結果, 群馬県森林局環境保全課水質保全グループ, 2004.
- 4) 伊藤優子, 三浦覚, 加藤正樹, 吉永秀一郎:関東・中部地方の森林流域における溪流水中のNO₃⁻濃度の分布, 日本林学会誌, Vol.86, pp.275-278, 2004.
- 5) 青井透:利根川支流鍋川水系の高い窒素濃度と降雨中窒素との関係, 第53回全国水道研究発表会論文集, 2002. 他
- 6) 土壌環境分析法, 土壌環境分析法編集委員会編, 博友社, 1997.
- 7) 山崎晴民, 六木本和夫:土壌中硝酸態窒素の簡易測定法, 埼玉園試報告, 19, pp31~36, 1992.
- 8) 戸田浩人, 笹賀一郎, 佐藤冬樹, 柴田英昭, 野村睦, 市川一, 藤戸永志, 鷹西俊和, 清和研二, 塚原初男, 飯田俊彰, 谷口憲男, 中田誠, 桑原繁, 内田武次, 春田泰次, 井上淳, 八木久義, 塚越剛史, 蔡治光一郎, 二田美穂, 小野裕, 鈴木道代, 今泉保二, 山口法雄, 竹中千里, 万木豊, 川那辺三郎, 安藤信, 中西麻美, 西村和雄, 山崎理正, 長山泰秀, 土肥奈都子, 片桐成夫, 小藤隆一, 新村義昭, 井上章二, 江崎次夫, 河野修一, 藤久正文, 岩松功, 今安清光, 中村誠司, 塚本次郎, 野上寛五郎, 榎木勉:全国大学演習林における溪流水質(短報), 日本林学会誌, Vol.82, pp308~312, 2000.
- 9) Ogura, N., Ishino, A., Nagai, K., Tange, I., : Behavior of nitrogen compounds in surface runoff water at small watersheds of Tama Hill., JpnJ Limnol. 47.
- 10) 平田建正, 村岡浩爾: 溪流水質から見た森林の浄化機能に関する研究(第4報)水収支と物質収支, 国立公害研究所研究報告R-116-, 88, pp75~97, 1988.
- 11) 平田建正, 村岡浩爾: 溪流水質から見た森林の浄化機能に関する研究(第3報)溶存物質の流出機構, 国立公害研究所研究報告R-116-, 88, pp53~74, 1988.
- 12) 森林の物質循環, 堤利夫, 東京大学出版会, 1987.
- 13) 森林水文学, 塚本良則編, 文永堂出版, 1998.
- 14) 小林政広, 小野寺真一, 加藤正樹:樹木の存在が林地土壤中の水分動態に与える影響, 日本林学会誌, Vol.80, pp287~294, 2000.
- 15) 楊宗興: 森林の窒素飽和と化学分析, (財)とうきゅう環境浄化財団研究助成報告書, pp73~86, 1996.
- 16) 栗田秀實, 植田洋匡:沿岸地域から内陸の山岳地域への大気汚染物質の輸送および変質過程, 大気汚染学会誌, 21 (5), pp428~439, 1986.
- 17) 国立環境研究所環境情報センター, 環境数値データベース.

(2004.9.30受付)