

(19) 森林土壌の窒素飽和化による亜酸化窒素発生フラックスの増加

Enhanced emission of nitrous oxide (N_2O) from a nitrogen-saturated watershed

川上 智規*

Tomonori KAWAKAMI*

ABSTRACT; Many streams of Kureha Hill, Toyama, Japan, are believed to suffer from nitrogen saturation because of their extremely high concentration of nitrate. The enhanced nitrification by nitrogen saturation would accelerate an emission of N_2O to the atmosphere. We measured the N_2O flux to the atmosphere both from a nitrogen-saturated forest floor and from a non-nitrogen-saturated forest floor in order to determine the effect of nitrogen saturation on the emission of N_2O .

As a representative of a nitrogen-saturated stream, Hyakumakidani was selected because it contains a high concentration of nitrate as $164\mu\text{mol/l}$. Sannokuma Stream on Imizu Hill, adjacent to Kureha Hill, was selected as a non-nitrogen-saturated stream because it contains no more than $9\mu\text{mol/l}$ of nitrate. Both forested watersheds are covered mainly by hardwood. Their vegetation, soil types, and nitrogen deposition are similar.

The average N_2O flux from the nitrogen-saturated watershed, Hyakumakidani, was $2.42\mu\text{g-N/m}^2/\text{h}$ from October 2004 to May 2005, while it was only $0.21\mu\text{g-N/m}^2/\text{h}$ from the non-nitrogen-saturated watershed. This result clearly shows that nitrogen saturation could accelerate N_2O emission to the atmosphere.

Key Words; nitrogen saturation, greenhouse gas, N_2O flux, nitrate, forested watershed

1. はじめに

近年の肥料製造や、化石燃料の燃焼に伴う NO_x の発生などによる人為的な窒素固定量は全世界で年間約 160 Tg N/yr と推定され、その量は天然の窒素固定量の2倍にも達しており¹⁾²⁾、生態系の窒素循環への影響が懸念されている³⁾⁴⁾。その影響のひとつとして注目されているのが窒素飽和現象である。窒素飽和現象とは、大気から森林への窒素化合物の沈着量が、森林生態系において必要とされる窒素量を上回る状態と定義されている⁵⁾。通常、森林では窒素の供給が成長の制限因子とされているが、窒素飽和状態となると、森林生態系で利用されずに余剰となった窒素が土壌溶液中へ硝酸イオンとして流出し、土壌の酸性化を引き起すと同時に、窒素過多による森林生態系の栄養のアンバランスを引き起す⁶⁾。窒素飽和状態が進行した状態では、森林生態系から土壌溶液中に放出された硝酸イオンが渓流水に流出し、陸水の富栄養化や酸性化を引き起すと考えられている⁷⁾⁸⁾。近年、イギリス⁹⁾を含むヨーロッパ¹⁰⁾¹¹⁾¹²⁾、北米¹³⁾¹⁴⁾、中国¹⁵⁾そして日本¹⁶⁾¹⁷⁾など世界各地の河川水において、硝酸イオン濃度の上昇が報告されるようになり、窒素飽和との関連が議論されている。

Aberらはこのような窒素飽和の進行の程度を Table 1 に示すように、ステージ0からステージ3の4つに区分し次のように定義した⁵⁾。ステージ0は窒素が森林の成長制限因子となっている健全な森林である。ステージ1では窒素沈着量の増加に伴って、バイオマス量の増加が見られる。ステージ2は森林が必要とする以上の窒素が供給される窒素飽和状態で、森林の成長制限因子が窒素ではなくなる。土壌から硝酸イオンの流出が始まり、 N_2O の発生量も増加する。土壌中の硝酸イオンの増加に伴い細根量が減少する。ス

* 富山県立大学短期大学部環境システム工学科
(Department of Environmental Systems Engineering, Toyama Prefectural University)

テージ3では森林の衰退が始まるとしている⁵⁾。ステージ3では森林が衰退することによりバイオマスが減少し、バイオマスに含まれる窒素の流出が生じることによって、さらに土壤中の窒素濃度が上昇する。その結果、降雨などによる森林への窒素沈着量を上回る窒素が森林生態系から流出するとされている¹⁸⁾¹⁹⁾。

富山県の呉羽丘陵は富山市西部を北東から南西に約7kmに渡って連なる丘陵である。標高は145mの小さな山塊であるが、多くの溪流が流れている。これらの渓流水は集水域に農耕地が存在しないにもかかわらず、いずれ

も100 $\mu\text{mol/l}$ を超える高濃度の硝酸イオンを含み²⁰⁾、百牧谷など一部の渓流水では酸性化が進行している²¹⁾。この百牧谷集水域における窒素収支は、渓流水への窒素の流出が、集水域への沈着量を上回っていることが確認されており、森林土壌がステージ2から3の窒素飽和状態に陥っているものと考えられる²²⁾。Aberらは前述のように、窒素飽和のステージ2から3の段階において生じる現象として、①土壌中の硝化活性の急激な増加、②沈着量を上回る窒素の流出、③森林の衰退、④亜酸化窒素(N_2O)の発生量の増加を予測している。呉羽丘陵では、①の土壌中の硝化活性に関しては、土壌培養実験の結果高い硝化活性が確認されている²⁵⁾。②の窒素流出に関して、百牧谷集水域における窒素収支を調べた結果、窒素の渓流水への流出量が、大気から集水域への沈着量を上回っていることも判明した²²⁾。ただし、③の森林衰退はこれまでのところ観察されていない。本研究では、④の亜酸化窒素(N_2O)の発生フラックスを測定し、窒素飽和が N_2O の発生に及ぼす影響を明らかにすることを目的とする。 N_2O は地球温暖化ガスとしては二酸化炭素の300倍の効果があるうえ²³⁾、大気中濃度の継続的増加が報告されているガスであり²⁴⁾、窒素循環量の増大による更なる発生量の増加が懸念される。

2. 対象とした流域

N_2O フラックスの測定は、窒素飽和が生じている富山県の呉羽丘陵の百牧谷集水域(36°41'26"N, 137°09'07"E)、ならびに窒素飽和が生じていない射水丘陵の三の熊集水域(36°39'38"N, 137°06'10"E)で実施した。それぞれの集水面積は4haならびに1.9haであり、いずれも集水域内に耕作地などの直接的な人為的汚染は無い。この2ヶ所は直線距離で5km程しか離れておらず、降雨などによる窒素化合物の沈着量はほぼ同じである²⁵⁾。しかしながら、百牧谷の渓流水の硝酸イオン濃度は、窒素飽和化に伴い、1999年8月から2003年8月の平均で164 $\mu\text{mol/L}$ と高くなっており、観測された最大値は470 $\mu\text{mol/L}$ にも達する。一方の三の熊では硝酸イオンの流出がほとんど見られず、平均で9 $\mu\text{mol/L}$ と低濃度である。この結果、集水域の窒素収支は百牧谷では前述のように、渓流水への流出が沈着量を上回っているのに対し、三の熊では沈着量の約10%が渓流水に流出しているに過ぎない²⁵⁾。地質は百牧谷集水域では第四紀の砂泥互層、三の熊集水域では新第三紀の砂泥互層であり、土壌はいずれも褐色森林土壌である。植生はどちらも樹齢40年ほどのコナラ(*Quercus serrata*)主体の広葉樹が約80%を占め、残りは樹齢50年ほどの杉(*Cryptomeria japonica*)の植林であるが、百牧谷には一部竹(*Phyllostachys pubescens*)の侵入も見られる²⁵⁾。土壌の窒素循環に多大な影響を及ぼすとされる土壌の炭素と窒素の比(C/N)は²⁶⁾、百牧谷集水域土壌ならびに三の熊集水域土壌のO層ではそれぞれ15ならびに18であり、大きな差は無い²⁵⁾。一方、土壌を好気条件で培養した実験結果から、百牧谷集水域では硝化速度(net-nitrification rate)が無機化速度(net-mineralization rate)に対して速

Table 1 The definitions of stages in development of N-saturation as the nitrogen deposition increases.

Definition	Reactions of forest to an enhanced nitrogen deposition.
Stage-0	Sound N-limiting condition
Stage-1	Increase in foliar biomass
Stage-2	Nitrogen saturation Nitrate leaching from soils Increased emission of nitrous oxide A large reduction in fine roots
Stage-3	N-output > N-input Forest attenuation

く、両者の比 net-nitrification rate/ net-mineralization rate が 1 となり、無機化された有機体窒素は、直ちに硝酸性窒素にまで酸化され、硝化活性が高い。三の熊土壌では、この比が 0.1-0.17 にとどまり、無機化された有機体窒素は、アンモニア性窒素の状態が存在する割合が多い²⁵⁾。百牧谷集水域では 2004 年 9 月から、三の熊集水域では 2004 年 10 月から継続的に N_2O フラックスを測定している。この 2 ヶ所に加えて、富山県内の渓流水で比較的硝酸イオン濃度が検出された²⁷⁾魚津市松倉 (36° 45' 27" N, 137° 26' 16" E) ならびに大沢野町小羽 (36° 33' 40" N, 137° 11' 25" E) の集水域においても 2004 年 11 月に N_2O フラックスを測定した。 N_2O のサンプル回収時にそれぞれの渓流水もサンプリングし、硝酸イオン濃度を測定した。植生は、魚津市松倉の集水域においてはナラ等の広葉樹、大沢野町小羽の集水域もナラ等の広葉樹であるが、一部に杉の植林が見られ、竹の進入も見られる。

3. 調査方法

3.1 サンプルング方法 (クローズドチャンバーとオープンチャンバー)

N_2O フラックスを測定するために、クローズドチャンバーとオープンチャンバーの両者を用い、比較を行った。クローズドチャンバーは、密閉したチャンバーを土壌表面に設置し、一定時間後に内部に蓄積した N_2O ガスの濃度を測定し、その濃度勾配からフラックスを推算する方法である。一方、オープンチャンバーは一定流量の外気をポンプを用いて連続的にチャンバー内に通気し、土壌からの N_2O の発生量とポンプによる排出量を平衡させた上で、チャンバー内外の N_2O 濃度の差からフラックスを求める方法である²⁸⁾。クローズドチャンバーとオープンチャンバーのどちらとしても使用できるように、上部に三方コックを取付けたアクリル製チャンバー (内寸 24.5 (H) × 24.5 (W) × 28.6 (D) cm) を百牧谷ならびに三の熊集水域に設置した。各々の集水域において土壌表面の落ち葉などを取り除き、外気の流入を極力なくすため、チャンバー底部を約 2cm 土壌に埋め込む形で設置した。

クローズドチャンバーの場合にはチャンバー上部の三方コックを閉め、密閉状態とし、一定時間後のサンプリングの際には三方コックを開とし、携帯型の小型ポンプ (柴田科学製 MP-2N 型) を接続して約 500mL (チャンバー容量の約 3%に相当) をテドラーバックに採取し、実験室に持ち帰って分析した。

オープンチャンバーの場合には定流量エアポンプ (柴田科学製 MP-Σ30) を三方コックに接続し、チャンバー内部の空気を吸引し通気を行った。オープンチャンバー設置の状況を Fig. 1 に示す。図中の Control Box 内にはバッテリー、タイマー、ポンプ、電磁弁等を収納しており、吸引流量を制御している。模式図を Fig. 2 に示した。チャンバー内での空気の平均滞留時間が 24 時間になるようにすると²⁸⁾、吸引流量は約 0.01L/min となる。このポンプは最低設定可能流量が 0.05 L/min であるため、流量を調整するため、電磁弁をタイマーを用いて 1 分間 ON、4 分間 OFF を繰り返して、平均流量として 0.01L/min を実現した。

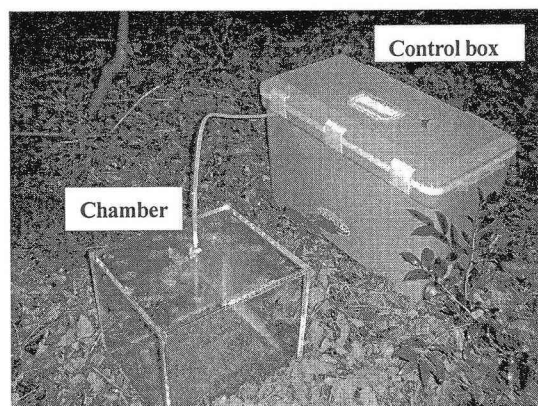


Fig. 1 The open chamber unit installed on the forest floor.

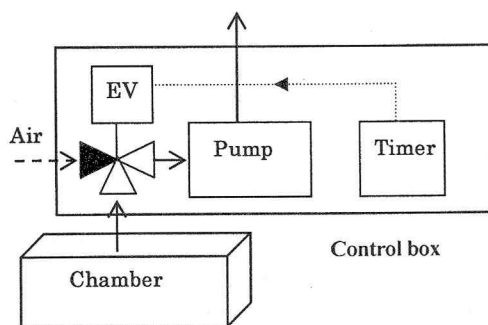


Fig. 2 Schematic diagram of the chamber unit. A 3-way electric valve (EV) controls the air flow according to the signal from the timer in the control box.

チャンバー内の空気のサンプリングは原則ポンプ始動後 2~4 日目とし、チャンバー上部の三方コックを切り換え、クローズドチャンバーの時と同様にチャンバー内部の空気を小型ポンプを用いて約 500mL をテドラーバックに採取し、実験室に持ち帰って分析した。またクローズドチャンバーとオープンチャンバーのいずれの場合にも、チャンバー内部のガスサンプリング時には、外気も小型ポンプを用いてテドラーバックに採取し持ち帰り、分析した結果をバックグラウンド濃度として解析に用いた。

百牧谷集水域土壌では 2004 年 9 月から 2005 年 5 月まで、また、三の熊集水域土壌では 2004 年 10 月から 2005 年 5 月までサンプリングを実施した。ただし、11 月 11 日~15 日にはチャンバーを三の熊から魚津市松倉に、また、11 月 25 日~29 日には大沢野町小羽に移動し N_2O フラックスを測定したため、三の熊は欠測となっている。

N_2O フラックスと土壌温度ならびに土壌含水率との関係を調べるために、百牧谷では 10cm 深の土壌温度を連続して測定しており、また、20cm 深の土壌含水率も、Time Domain Reflectometry 法 (TDR 法)を用いて連続的に測定している。TDR 法では体積含水率を得ることができる²⁹⁾。有機物含量による校正は特に行っていない。サンプリングのインターバルは土壌温度ならびに土壌含水率どちらも 1 時間である。

3.2 分析方法

テドラーバックに採取したサンプルを実験室に持ち帰り、ジェイ・サイエンス・ラボ社製の非放射線源式 ECD 検出器付きガスクロマトグラフ、GC7000EN を用い N_2O 濃度を定量した。分析条件は Table 2 の通りである。感度不足を補うため、サンプルをモレキュラーシーブ MS-13X に吸脱着させることにより、 N_2O を約 100 倍に濃縮した後分析した。吸脱着の条件を Table 3 に示す。

Table 2 Analytical conditions of N_2O by the gas chromatograph with a Nr-ECD

Column	MS-13X 1m
Oven Temperature (°C)	140
Detector	Nr-ECD (250°C)
Carrier Gas	He
Discharge Gas	He

Table 3 Operating conditions for the concentrator of N_2O .

Column	Porapak Q / MS-13X
Carrier Gas	He
Absorption Temperature (°C)	0
Desorption Temperature (°C)	100

4. 結果と考察

百牧谷においてクローズドチャンバーを用いた際の N_2O 濃度の経時変化の一例を Fig. 3 に示す。測定は百牧谷と三の熊それぞれにおいて 3 回ずつ繰り返したが、いずれの場合も本来直線になるべき濃度勾配が Fig. 3 のように一定とならず、フラックスの推算が困難であった。濃度勾配が時間経過と共に小さくなる原因について Hutchinson らは、気圧変化に伴い土壌内部から N_2O が吸引される“pumping action”が、チャンバーの設置により妨げられることなどをあげている²⁸⁾が今回のケースにあてはまるかどうかは不明である。

そこで本研究では、オープンチャンバーを用いて N_2O フラックスの経時的データを得ることとした。 N_2O フラックスの経時変化を Fig. 4 に示す。

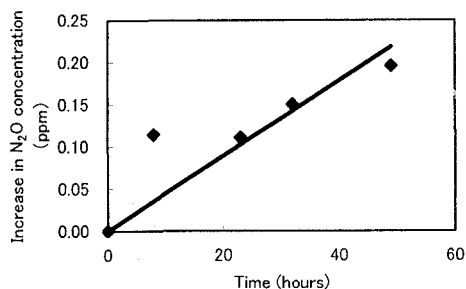


Fig. 3 Time series of increase in N_2O concentration in a closed chamber on the Hyakumakidani watershed.

窒素飽和に陥っている百牧谷では、三の熊に比較して常に大きなフラックスが観測された。 N_2O フラックスの測定値の単純平均は、百牧谷と三の熊でそれぞれ $2.42\mu\text{g-N/m}^2/\text{hour}$ 、 $0.21\mu\text{g-N/m}^2/\text{hour}$ となった。気候や植生や地質が同じであっても、土壌が窒素飽和となると N_2O の生成は約 11 倍にも増加するという結果となり、Aber らの仮説を支持する結果となった。一方、百牧谷の N_2O フラックスには大きな変動が伴うことも明らかとなった。 N_2O フラックスの変動は多くの畑地に関する文献に見られるが³⁰⁾³¹⁾、林地においても同様な結果となった。この変動の原因が土壌温度や土壌含水率にあるのではないかという観点から、それらと N_2O フラックスとの関係を調べた結果を Fig. 5 ならびに Fig. 6 に示した。土壌温度や土壌含水率は N_2O サンプル前 48 時間の平均で示した。しかしながら、いずれも明瞭な関係は見られなかった。特に、1 月から 3 月下旬にかけてチャンパーは積雪に埋もれており、土壌表面の温度はほぼ 0°C 、含水率は最大容水量に保たれていたと推定されるにもかかわらず、 $1.18\sim 3.88\mu\text{g-N/m}^2/\text{hour}$ と変動していることから、土壌温度や土壌含水率以外に変動する要因があることが推定できる。

Table 4 には温帯に属する広葉樹の森林土壌の N_2O フラックスの文献値³²⁾を示す。これらの森林においては窒素飽和が生じているという報告はないが、その値は窒素飽和が生じている百牧谷のものと同程度か、もしくは百牧谷より高い値を示している。また、楊らは窒素飽和状態にあると考えられる多摩丘陵の波丘地における N_2O フラックスを測定し、温帯の森林土壌の中では $6.4\mu\text{g-N/m}^2/\text{hour}$ という高い値を得たとしている³³⁾。これらの結果から、土壌が窒素飽和状態となると N_2O フラックスの急上昇を招くが、地域による差異も大きいことがわかる。

一方、魚津市松倉と大沢野町小羽における渓流水の硝酸イオン濃度は 2004 年 11 月の N_2O のサンプリング時においてそれぞれ、 $71\mu\text{mol/l}$ 、 $68\mu\text{mol/l}$ であった。こららも含めて 2004 年 11 月における富山県の渓流水中の硝酸イオン濃度と N_2O フラックスの関係を Fig. 7 に示した。ただし、三の熊は 11 月のデータが欠測であるため、12 月の値を用いた。サンプル数が少ないものの、渓流水中の硝酸イオン濃度が上昇すると N_2O フラックスも上昇する傾向があることがわかる。楊も渓流水の硝酸イオン濃度と N_2O フラックスに関

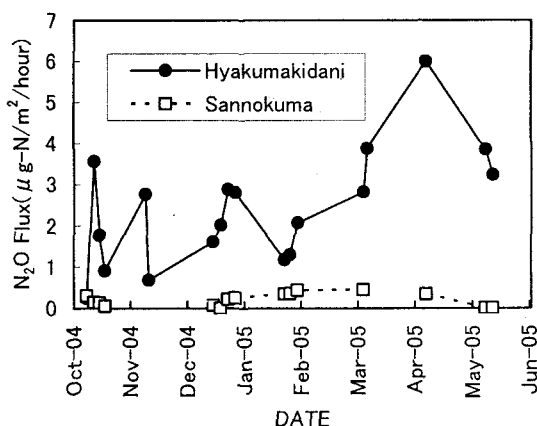


Fig. 4 N_2O flux both from a nitrogen-saturated watershed (Hyakumakidani) and a non-nitrogen-saturated watershed (Sannokuma).

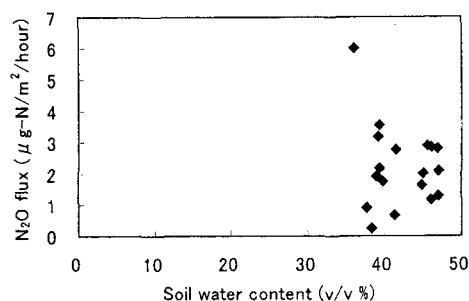
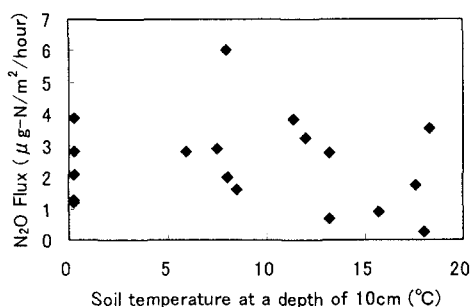


Fig. 5 N_2O flux versus soil temperature at a depth of 10 cm. Fig. 6 N_2O flux versus soil water content at a depth of 10 cm.

して同様の関係を報告している³⁴⁾。ただし、楊の結果は富山県の例と比較して、渓流水の硝酸イオン濃度が同じであっても約3倍の N_2O フラックスがあることを示しており、やはり地域差が大きいことを示している。また、Aberらは窒素飽和に伴う N_2O フラックスの増加の要因として、硝化反応と脱窒反応の活性化の両者の可能性について触れているが⁵⁾、 N_2O フラックスが渓流水の硝酸イオン濃度との関係が深いと見られることから、硝化反応に起因する部分が大きいものと考えられる。

Table 4 N_2O emission rates from uncultivated lands and natural ecosystems.

Soil/texture	Ecosystem	Flux($\mu\text{g-N/m}^2/\text{hour}$)
Sand, 1-3cm humus layer	Temperate deciduous forest	4.5~10.5
Grey-brown podzol, 1-5cm humus layer	Temperate deciduous forest	3.5~9.5
Pseudogley soil, 1-3cm humus layer	Temperate deciduous forest	5.5~75.0
Grey-brown podzol, 1-2cm humus layer	Temperate deciduous forest	5.5~7.5
Typic Dystrichrepts, (old tropical Acrisols)	Temperate deciduous forest	1.5~3.5
Typic / Dystric Eutrichrepts, (Vertic Cambisols)	Temperate deciduous forest	2.5~4.5
Loess over glacial till	Deciduous forest	5.0~15.0

5. 結論

窒素飽和となっている森林土壌と、そうでない森林土壌からの N_2O フラックスを測定した。クローズドチャンバーとオープンチャンバーの両者で比較を行ったところ、クローズドチャンバーでは濃度勾配が直線とならなかったため、オープンチャンバーを用いることとした。その結果、窒素飽和となっている森林土壌からは、そうでない森林土壌からの約11倍もの N_2O フラックスが観測され、窒素飽和の影響としてAberらが予測した N_2O の発生量の増加を実証する形となった。しかしながら、この N_2O フラックスは他の文献値と比較すると特に大きい値ではなく、地域差が大きいものと思われる。富山県内の4ヶ所の溪流について、渓流水の硝酸イオン濃度と N_2O フラックスを調べたところ、渓流水の硝酸イオン濃度が上昇すると N_2O フラックスも上昇する傾向が見られた。

謝辞

本研究の一部は科学研究費補助金(基盤研究(C)(2) 課題番号16510013)の助成を受けて行われたものである。

参考文献

- 1) Galloway, J. N., Cowling, E. B., Seitzinger, S. P., and Socolow, R. H.; Reactive nitrogen: Too much of a good thing?, *AMBIO*, 31(2), 60-63 (2002).

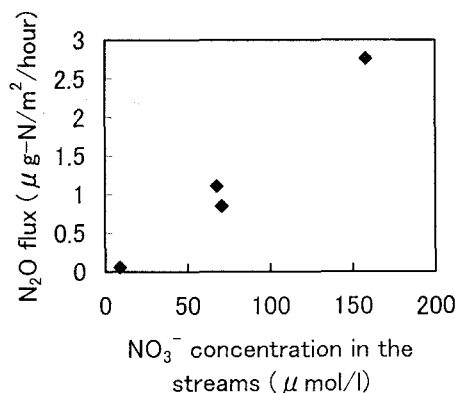


Fig. 7 Relation between N_2O flux and nitrate concentration of the stream water.

- 2) Zheng, X., Fu, C., Xu, X., Yan, X., Huang, Y., Shenghui, S., Hu, F., and Chen, G.; The Asian Nitrogen Cycle Case Study, *AMBIO*, 31(2), 79-87 (2002).
- 3) Vitousek, P. M., Aber, J. D., Howarth, R. W., Linkens, G. E., Matoson, P. A., Schindler, D. W., Schlesinger, W. H. and Tilman, D.G.; Human alteration of the global nitrogen cycle: Sources and consequences. *Ecol. Appl.* 7, 737-750 (1997).
- 4) Galloway, J. N., and E. B. Cowling; Reactive nitrogen: and the world: 200years of change, *AMBIO*, 31(2), 64-71 (2002) .
- 5) Aber, J. D., et al.; Nitrogen Saturation in Northern Forest Ecosystems. *BioScience*, 39(6), 378-386 (1989).
- 6) Matson, p., K. A. Lohse and Sharon J. Hall; The Globalization of Nitrogen Deposition: Consequences for Terrestrial Ecosystems. *AMBIO*, 31(2), 113-119 (2002) .
- 7) Smith, V. H., Tilman, G. D. and Nekola, J. C.; Eutrophication: impacts of excess nutrient inputs on freshwater, marine, and terrestrial ecosystems. *Environmental Pollution*. 100, 179-196 (1999).
- 8) Church, M. R. and J. V. Sickie; Potential relative future effects of sulfur and nitrogen deposition on lake chemistry in the Adirondack Mountains, United states., *WATER RESOURCES RESEARCH*, Vol. 35, No.7, 2199-2211 (1999).
- 9) Evans, C. D., A. Jenkins; Surface water acidification in the South Pennines II. Temporal trends, *Environmental Pollution*, 109, 21-34 (2000).
- 10) Henriksen, A., and Brakke, D. F.; Increasing contributions of nitrogen to the Acidity of surface waters in Norway. *Water, Air, and soil Pollution*, 42, 183-201. (1988).
- 11) Stein, A., van Breemen, N. ; Time series analysis of changes in the soil solution: Evidence for approach to nitrogen saturation in Dutch forest soils. *Agriculture, Ecosystems and Environment*, 47, 147-158 (1993).
- 12) Tietema, A., Boxman, A. W., Bredemeier, M., Emmett, B. A., Moldan, F., Gundersen, P., Schleppi, P., and Wright, R. F.; Nitrogen saturation experiments (NITREX) in coniferous forest ecosystems in Europe: a summary of results. *Environmental Pollution*, 102(S1), 433-437 (1998).
- 13) Peterjohn W. T., Adams, M. B., and Gilliam, F. S.; Symptoms of nitrogen saturation in two central Appalachian hardwood forest ecosystem, *Biogeochemistry*, 35, 507-522 (1996).
- 14) Gilliam, F. S., Adams, M. B., and Yurish, B.M.; Ecosystem nutrient responses to chronic nitrogen inputs at Fernow Experimental Forest, West Virginia, *Can. J. For. Res.*, 26, 196-205 (1996).
- 15) Larssen, T., Mulder, J., Wang, Y., Chen, X., Xiao, J., and Zhao, D.; Nitrogen Deposition and Leaching from Two Forested Catchments in Southwest China – Preliminary Data and Research Needs. *TheScientificWorld*, 1(S2), 520-526 (2001).
- 16) Ohnishi, K., and Mitchell, M. J.; Nitrogen Saturation in Japanese Forested Watersheds, *Ecological Applications*, 7(2), 391-401 (1997).
- 17) Yoh M., Konohira, E., and Yagi, K.; Regional Distribution of Natural Stream Nitrate in Central Japan. *Water, Air, and Soil Pollution* 130, 655-660 (2001).
- 18) McNulty, S. G., Aber J. D., and Newman, S. D.; Nitrogen Saturation in a high elevation New England spruce-fir stand, *Forest Ecology and Management*, 84, 109-121 (1996).
- 19) Aber, J., McDowell, W., Nadelhoffer, K., Magill, A., Bernston, G., Kamakea, M., McNulty, S., Currie, W., Rustad, L., and Fernandez, I.; Nitrogen Saturation in Temperate Forest Ecosystems Hypotheses revised, *BioScience*, 48 (11), 921-934 (1998).
- 20) 朴木英治; 呉羽丘陵の水質, 富山市呉羽丘陵自然環境調査報告, 245-253 (1994).
- 21) 川上智規, 朴木英治; 富山県の呉羽丘陵に見られる硝酸イオンの流出による溪流水の酸性化, 環境科学会 1999 年会講演要旨集, 56-57 (1999).
- 22) Kawakami, T., Honoki, H. and Yasuda, H.; Acidification of a small stream on Kureha Hill caused by nitrate leached from a forested watershed. *Water, Air, and Soil Pollution*, 130, 1097-1102 (2001).

- 23) IPCC Third assessment report (2001); Climate Change 2001: The Scientific Basis.
- 24) Houghton, J. T., Meiro Filho, L. G. Brice, J., Hoesung, Lee, Callander, B. A., Haites, E., Harris, N., Maskell, K. (Eds.); Climate change 1994, Radiative Forcing of Climate Change and An Evaluation of the IPCC IS92 Emission Scenarios. Report of Working Groups I and II of the International Panel on Climate Change, Published for the Intergovernmental Panel on Climate Change, Cambridge University Press. (1995).
- 25) Honoki, H., Kawakami, T., Yasuda, H., and Maehara, I.; Nitrate Leakage from Deciduous Forest Soils into Streams on Kureha Hill, Japan. *TheScientificWorld*, 1(S2), 548-555 (2001).
- 26) Gundersen, P., I. Callesen and W. de Vries; Nitrate leaching in forest ecosystems is related to forest floor C/N ratios, In *Proceedings of the First International Nitrogen Conference*, Elsevier Science, Noordwijkerhout, The Netherlands, 403-407 (2001).
- 27) 川上智規, 守内友香, 北野梓沙: 渓流水中の硝酸イオン濃度の地域的分布 窒素飽和の観点から, 富山県立大学紀要, 第14巻, 135-140 (2004).
- 28) Hutchinson, G. L. and Mosier, A. R.; Improved soil cover method for field measurement of nitrous oxide fluxes, *Soil Science Society of America Journal* 45, 311-316 (1981).
- 29) Stein, J. and Kane, D. L.; Monitoring the unfrozen water content of soil and snow using time domain reflectometry, *WATER RESOURCES RESEARCH*, Vol.19 No.6, 1573-1584 (1983).
- 30) Khalil, M. I., Rosenani, A. B., Van Cleemput, O., and Shamshuddin, J.; Nitrogen Management in a Maize-Groundnut Crop Rotation of Humid Tropics: Effect on N₂O Emission, *TheScientificWorld* 1(S2), 320-327 (2001).
- 31) Suratono, W., Murdiyarso, D., Suratmo, F. G., Anas, I., Saeni, M.S., and Rambe, A.; Nitrous oxide flux from irrigated rice fields in West Java, T, In *Proceedings of the First International Nitrogen Conference*, Elsevier Science, Noordwijkerhout, The Netherlands, 159-166 (1998).
- 32) Bounman, A. F. (eds.); Soils and the Greenhouse Effect, John Wiley & Sons Ltd. (1990).
- 33) 土器屋由紀子, 小倉紀雄, 安富六郎, 内川武編著; 多摩丘陵の自然と研究—フィールドサイエンスへの招待—けやき出版
- 34) 楊宗興; 窒素飽和: 大気沈着により生じつつある森林の環境変化, 日本化学会酸性雨問題研究会, 第22回酸性雨問題研究会シンポジウム, 12-17 (2005).