

1992年から1995年までの土壌中の硝酸態窒素濃度の変動 —つくば市近郊の稲敷台地の畑地に隣接する平地林の例—

Variations in Nitrate-Nitrogen Concentrations in Soil Waters from 1992 to 1995 :
A Case on Forested Land adjacent to Farm Land in Inashiki Upland near Tsukuba.

小野寺真一*・加藤 正樹**・篠宮 佳樹**

小林 政広**・田中 優子**

Shinichi ONODERA, Masaki KATO, Yoshiki SHINOMIYA

Masahiro KOBAYASHI and Yuko TANAKA

I. はじめに

農耕地が広く分布する都市近郊地域の多くは、過剰な施肥に伴い、浅層地下水の硝酸汚染が問題となっている(鶴巻, 1992など)。このような地域に部分的に立地する林地では、低濃度の浸透水が硝酸汚染地下水を希釈することが指摘されている(Postma *et al.*, 1991; Onodera *et al.*, 1994など)。そのため、茨城県などの各市町村では、台地上の農耕地に隣接する林地(平地林)を保全している。このような林地における自然浄化機能を評価することは、農業地域の地下水の水質や下流域への流出負荷量を予測するために必要である。

黒田ほか(1991)は、流域出口の河川水の流出量と溶存濃度を測定し、森林地域からの窒素などの流出負荷量を推定した。しかし、土壌中では窒素化合物が、生物活動と密接にかかわりながら水とともに移動するため、負荷量の変動を予測するには、地下水中や不飽和帯における物質変換過程について考慮

することが必要である。Tokuchi *et al.* (1993) や加藤ほか(1995)などは、地形的な位置による地中水の溶存物質の違いや地中水および湧水の溶存物質の季節的な変動を明らかにした。季節的なNO₃⁻濃度の変動に関しては、Vitousek (1977)などが指摘しているように、温度の上昇に伴い生物活性が上昇し、硝化反応の促進に伴い、NO₃⁻濃度が上昇するものである。上述したような従来の研究の多くは、季節変化に着目したもので長期的に比較した例は少ない。

Reynolds *et al.* (1992)は、イギリス西部の土壌水および河川水の10年間におけるNO₃⁻-N濃度の変化を測定し、降雨の少ない年の夏季に土壌水の濃度が上昇し、半年遅れて河川水の濃度が上昇したことを報告した。このように、数年間のスケールにおいても気温の変動に伴うNO₃⁻濃度の変動傾向は明確である。しかし、土壌中のどの部分の物質変換過程がどの程度作用しているのかは明らかではない。また、浸透水が地下水において硝酸汚染地下水と混

*筑波大学・環境科学研究科 **農林水産省森林総合研究所・森林環境部

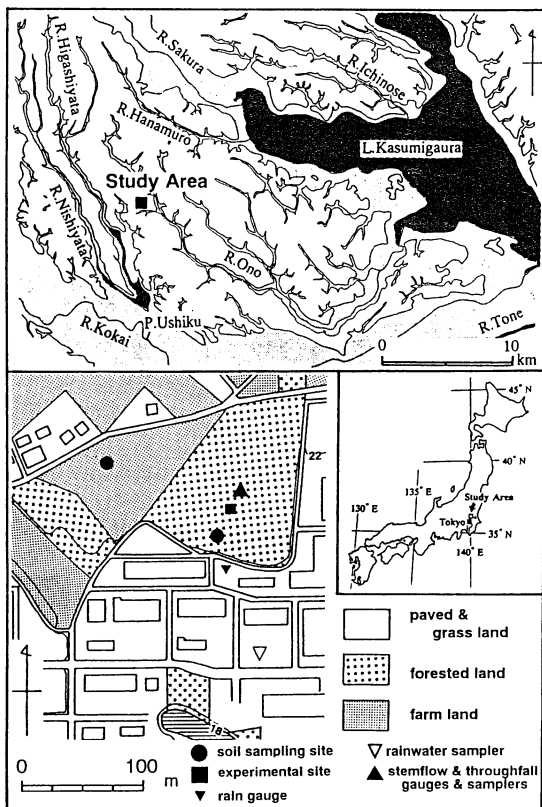
合し、どのような物質変換過程を経ているのかも明確ではない。農耕地に隣接する林地の自然浄化機能の評価や下流域への流出負荷量の変動予測の点から、森林土壌中における地下水を含めた NO_3^- 濃度の変動傾向を明らかにすることは重要である。

本論では、1992年から1995年までの森林土壌中における表層から地下水に至るまでの硝酸態窒素の動態を明らかにし、硝酸汚染地下水に対する林地の浸透水の混合希釈の影響を解明し、特に、1993年の冷夏の影響について考察する。

II. 研究地域および研究方法

1) 研究地域概要

試験地は、茨城県稲敷郡峯崎町の農林水産省森林総合研究所に隣接する平地ヒノキ林内に設置した(第1図)。本地域は、標高が22mの稲敷台地上に位



第1図 試験地概要

置し、試験地の南側に標高18mの谷頭部が存在する。谷頭で湧出した水流は、小野川に合流し霞ヶ浦に流入する。本台地には、下位から木下層、常総層、関東ローム層が水平に分布し、主に粘土層からなる常総層は難透水層を形成し、関東ローム層中には深度2m付近に地下水が形成されている。試験地での常総粘土層と関東ローム層との境界は、深度300cm付近である。試験地は、平均樹高12m、平均胸高直径14cmの33年生のヒノキ林である。土壌は、適潤性褐色森林土(B₀型)である。本土壌の物理特性は、三浦ほか(1993)に詳しい。

本地域には、農耕地が広く分布し、浅層地下水の硝酸汚染は深刻であり、富栄養化の進んでいる霞ヶ浦の一涵養域として、周辺地域と同様に窒素の負荷量の軽減が求められている。試験地周辺の地下水は、林地の北側や北西側に位置する畑地から林地に向け流動しており(篠宮ほか, 1996)、硝酸汚染地下水は林地に流入している。ただし、林地において NO_3^- 濃度は、地下水の流動に伴う脱窒および低濃度の降雨浸透水による希釈により低下している傾向を示す(石塚・小野寺, 1997; Onodera *et al.*, 1994)。

2) 研究方法

試験地では、土壌溶液の採水及び圧力水頭の測定を行った。また、林外では降水量を測定し、林内では、2ヶ所に20cm四方の漏斗を設置し林内雨の測定、及び2本の樹木にウレタンマットを巻き付けて集水し樹幹流の測定をそれぞれ行った。林外雨は一雨毎に、林内雨、樹幹流は10日毎に採水を行った。土壌溶液の採水は、主に吸引法で、1992年4月~1995年8月までに月4回から3ヶ月に1回の頻度で行った。深度5、10、30、100、150、200cmにポーラスカップを埋設し、500ml吸引ピンを接続し、-50cmHgの吸引圧でほぼ半日かけて採水した。また、詳細な鉛直の水質分布を明らかにするため、地下水位の高い時期(1993年9月20日)及び地下水位の低い時期(1994年7月18日)に、林地及び林地に隣接する畑地で100cc採土円筒により表層から深度300cmまで土壌を採取し、遠心法で1.5MPa(pF4.2)相当までの土壌溶液を採取した。また、採水とともに自記式

テンシオメーターを吸引採水用のポーラスカップと同一深度に設置し、圧力水頭を測定した。なお、冬季（12月～4月）には測定を行わなかった

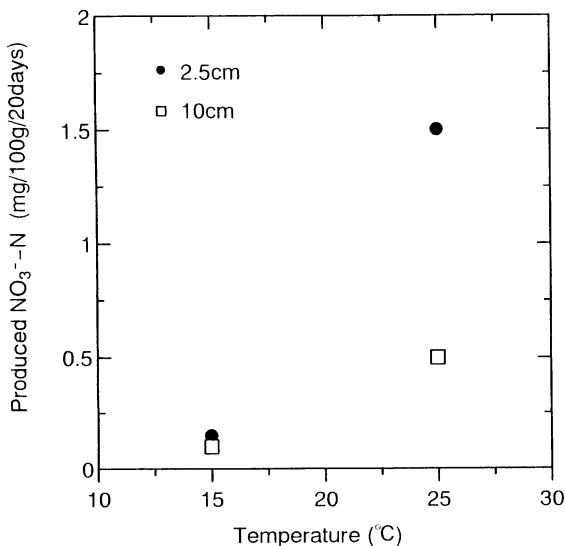
サンプルは、pHをポータブルpHメーターで、 NH_4^+ 、 NO_2^- 、 NO_3^- 、 Cl^- 、 SO_4^{2-} 、 PO_4^{3-} をイオンクロマトグラフィーで、 Na^+ 、 K^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} を原子吸光光度計で、それぞれ分析を行った。

土壌中での窒素無機化量は、最表層（深度2cm）で高く、それ以深ではほとんどない傾向を示す（加藤ほか、1993）。表層土壌の窒素無機化量の温度依存性を見るために、深度2.5cmと10cmの土壌を用い15℃と25℃で培養実験を行った。実験用の土壌は、総量40mm（降雨強度が220mm/h）の蒸留水を散水した区画で、翌日100cc円筒で採取した。採取した直後に各深度の土壌試料2個ずつを水抽出した。また、各深度の試料1個ずつを15℃および25℃の恒温槽で定温状態で含水率を一定に保ちながら、20日後に水抽出を行い、各抽出液の溶存 NO_3^- 濃度を測定した。

なお、気温データは、筑波大学水理実験センターの圃場で観測されたものを使用した。

III. 結果

1) 土壌の窒素無機化特性

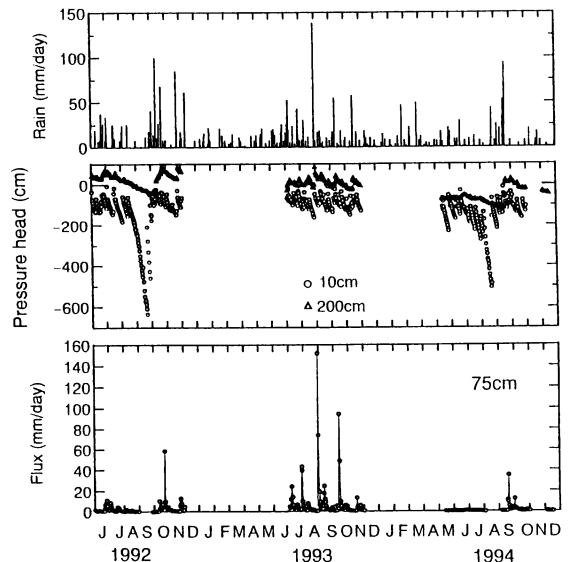


第2図 深度2.5cmおよび10cmの土壌の窒素の無機化量（20日間の培養実験結果）

温度15℃および25℃で培養実験を行った結果を第2図に示す。ここでは、 NO_3^- -Nの生成量を示す。深度2.5cmの土壌では、25℃での NO_3^- -Nの生成量が1.5mg/100g/20daysで、15℃（0.1mg/100g/20days）に比べ15倍、深度10cmの土壌では、25℃の生成量が0.5mg/100g/20daysと15℃（0.1mg/100g/20days）に比べ5倍に増加した。また、15℃では、深度2.5cmにおける土壌の窒素無機化量は、深度10cmとほぼ同程度であったが、25℃では、深度10cmの3倍の生成量が認められた。

2) 土壌中の水分と NO_3^- -N濃度の変動

第3図に深度10cm及び200cmの圧力水頭値と深度

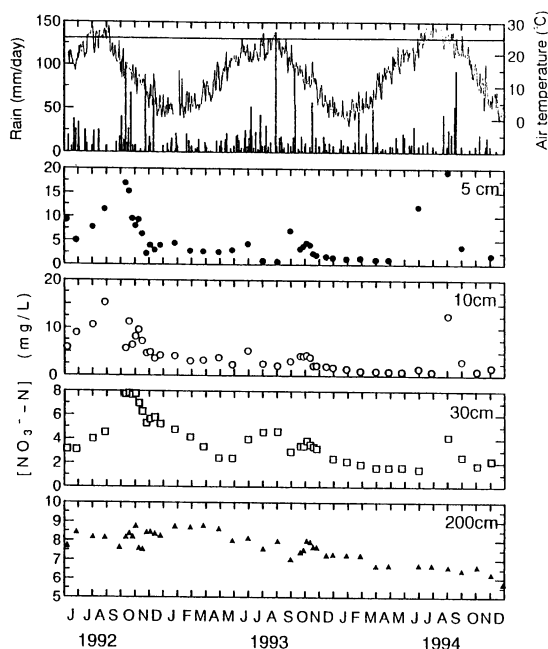


第3図 1992年から1994年までの深度10cmと200cmの圧力水頭および深度75cmのフラックスの変化

75cmを通過するフラックスの変化を示す。フラックスは、深度50cmと100cmで測定した圧力水頭値から動水勾配を算出し、2点間の平均圧力水頭値に相当する不飽和透水係数を実験値（Onodera and Kobayashi, 1995）から求め、各値の積により求めた。なお、深度50cm以深では根系密度は明瞭に低下することから、この面を通過した水の多くは地下水まで到達するものと考えられる。深度10cmの圧力水頭の変化は、1992年および1994年の夏季にかなり乾燥し、

1993年は湿潤であったことを示した。また、深度200 cmの地下水面付近の値は、特に1994年の夏季に地下水が低下したことを示した。各年の6月～11月までの5ヶ月間のフラックスは、圧力水頭から推定される土壤水分状態の変化と同様に、降水量の多かった1993年（期間降水量が835mm）が640mmとかなり大きい傾向を示し、1994年（期間降水量が425mm）が110mmと小さい傾向を示した。

第4図に、1992年から1994年までの降水量および



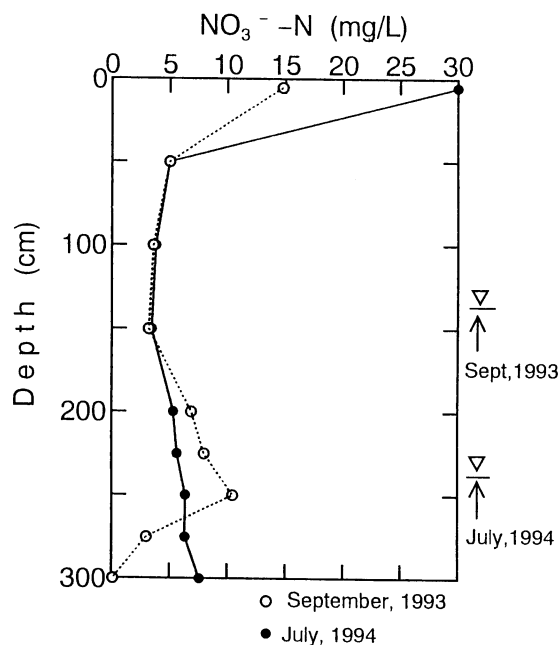
第4図 1992年から1994年までの深度5 cm, 10 cm, 30 cm, 200 cmでのNO₃⁻-N濃度の鉛直プロファイル

気温と深度5 cm, 10 cm, 30 cm, 200 cmのNO₃⁻-N濃度の変化を示す。表層の深度5 cmでは、夏季の気温の上昇とともにNO₃⁻-N濃度が20 mg/L程度まで上昇する傾向を示した。ただし、1993年の夏季には、濃度が7 mg/L程度で、大きな濃度上昇は認められなかった。深度10 cmおよび30 cmは、深度5 cmの濃度ピークに比べ、低い値で、しかも時期が遅れる傾向を示した。また、深度5 cmでは1992年および1994年のピーク時の濃度がほぼ20 mg/Lと同程度であったが、深度30 cmでは、1992年のピークに比べ、1994年は半分程度の濃度を示した。

また、地下水面付近の深度200 cmのNO₃⁻-N濃度の変化は、表層付近のような濃度のピークは明瞭ではなく、1992年以降徐々に低下する傾向を示した。この傾向は、1995年8月まで継続した。ただし、地下水周辺の濃度は、深度30 cmより高い値を示し、周辺からの硝酸汚染地下水の流入の影響が示唆された。

3) NO₃⁻-N濃度の鉛直分布

第5図に、冷夏であった時期（1993年9月）と猛



第5図 1993年9月および1994年7月のNO₃⁻-N濃度の鉛直プロファイル

暑であった時期（1994年7月）の表層から深度300 cmまでのNO₃⁻-N濃度の鉛直分布を示す。なお、この濃度は、土壌から1.5 MPa (pF4.2) 相当で脱水された土壌溶液中のものである。それぞれの時期の地下水位は、1993年9月が深度140 cm, 1994年7月が深度240 cmであった。各時期の濃度は、表層を除いて吸引法（水柱高で-680 cmの減圧）によって採水されたNO₃⁻-N濃度とほぼ一致した。表層では、1.5 MPa相当で脱水された土壌溶液の濃度は、1993年9月が15 mg/L, 1994年7月が30 mg/Lであり、吸引法で採水した溶液濃度（それぞれ7 mg/L, 20 mg

／L) に比べ高い値を示した。また、NO₃⁻-N濃度のプロファイルは、両時期ともに表層で高く、表層から深度150cmまで低下し、深度200cmから上昇する傾向を示した。ただし、表層では、第4図で示したように、1993年の9月の方が1994年7月より低い濃度を示した。また、地下水面が高かった1993年9月は、深度250cm以下で低下し、深度300cmではほぼ0 mg/Lであった。

IV. 考 察

1) 森林土壌中のNO₃⁻-N濃度の変化過程

観測の結果、土壌中のNO₃⁻-N濃度は10cmや30cmでは、深度5cmに比べピーク時の値が低下し、時期的にも遅れを生じたことが示された。また、表層土壌では、土壌溶液中のNO₃⁻-N濃度がより高いサクシオン領域で高い値を示した。これらは、土壌中でのNO₃⁻-Nの生成が、主に表層数cmであることを示し培養実験の結果と一致した。また、深度30cmでは、1994年のピーク時の濃度が1992年に比べ半分程度の値であり、1992年に比べ植物による吸収量が多かったことが示唆され、1994年も地下へのNO₃⁻-Nの浸透量が多くはななかったことが示唆される。

表層土壌中のNO₃⁻-N濃度は、夏季の高温時期に上昇し、冬季の低温時期には低下する傾向(第4図)を示し、第2図の培養実験の結果と一致する傾向を示した。しかし、1993年の夏季には濃度のピークは認められなかった。第1表に、1992年から1994年までの夏季の気温特性を示す。1994年と1993年の夏季の平均気温の差は、4℃程度であった。ただし、20℃、25℃、30℃の条件下で比較した過去の土壌の培養実験の結果(戸田・生原、1994など)では、20℃と25℃の生成量の差に比べ、25℃と30℃の生成量の差の方が明らかに大きいことが示されている。この点から推察すれば、25℃を越えるとそれ以下の場合に比べ濃度の差はより大きくなるものと考えられる。ここで、各年の日平均気温が25℃を越えた日数(第1表)で比較すると、1992年が38日、1994年が49日であったのに対し、1993年は10日程度と明らかに少なかった。土壌中の微生物活性に対し、このような冷夏の傾向が影響していたものと推察される。ただ

第1表 1992年から1994年の夏季の気温特性

	AT(7~8) ^{*1} (℃)	AT(8) ^{*2} (℃)	N(25↑) ^{*3}
1992	24.1	25.1	38
1993	21.8	23.0	11
1994	25.9	26.8	49

*1; average air temperature from July to August (℃)

*2; average air temperature during August (℃)

*3; the number of days over 25℃ (days)

し、1993年は、他の年に比べ夏季の3ヶ月間の降水量が200mm以上多く、降水の希釈によって濃度が低下したことも考察する必要がある。

2) 林地における硝酸汚染地下水の浄化機能

地下水付近のNO₃⁻-N濃度は、1993年以降1995年まで低下傾向を示した。これは、1993年の夏季にNO₃⁻-Nが生成されなかったため、土壌中の濃度が低下したことによるものと考えられる。つまり、1993年の冷夏の影響は、少なくとも1994年まで継続したことが明らかである。林地の低濃度の浸透水が、周辺の硝酸汚染地下水を希釈していることから、冷夏にもなって希釈効果が増大したことが示された。また、1994年の夏季も深度30cm以深では植物による吸収にともないNO₃⁻-N濃度が上昇しなかった。同時に1994年は、平年並みの1992年に比べてかなりの猛暑で降水量が少なく、地下への涵養量が少なかったため、下方へ移動するNO₃⁻-N含量は少なかったことが予想される。つまり、地下水中のNO₃⁻-N濃度の低下傾向が、1995年8月まで継続した一因としては、1994年の影響もあったことが推察される。

これまでの結果から、林地の地下水は、林地の浸透水と林地に流入する畑地の地下水との混合によって形成されているものと考えられる。地下水中の混合過程については、物質変換過程が生じない場合、貯留量変化が無視できるとすれば次式のような物質収支式が成立する。

$$C_g V_g = C_s V_s + C_i V_i \quad (1)$$

ここで、Cは濃度、Vは水量である。また、添え字のg, s, iは、それぞれ、林地の地下水、林地の浸透水、畑地から流入する地下水を表す。一般にC

lは、土壤中では比較的安定な成分であることから、(1)式が成り立つものと考えられる。ここで、 V_g を1とすると、林地の浸透水の地下水への寄与率(R_s)は、

$$R_s = (C_i - C_g) / (C_i - C_s) \quad (2)$$

と表される。一方、 NO_3^- -Nは、地下水中の還元環境下において、脱窒反応により N_2 および N_2O ガスになる可能性がある。その場合、次式のように物質の出入りの項(D)を考慮する必要がある。

$$C_{Ng} V_g = C_{Ns} V_s + C_{Ni} V_i - D \quad (3)$$

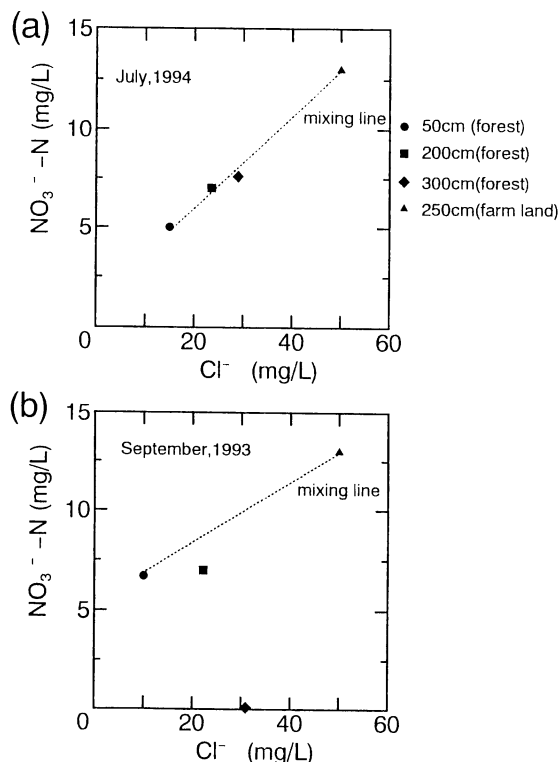
C_N は NO_3^- -N濃度である。物質の出入りの量は V_g を1とすると次式のように表される。

$$D_u = C_{Ns} R_s + C_{Ni} (1 - R_s) - C_{Ng} \quad (4)$$

D_u は、 V_g を1としたときの D である。ここで、 V_s が既知であれば、 D は次式のようになる。

$$D = D_u V_s / R_s \quad (5)$$

第6図に、地下水位の低かった1994年7月と地下水位が高かった1993年9月における、林地の土壤水(深度50cm)、林地の地下水(深度200cm、300cm)および畑地の地下水の Cl^- と NO_3^- -N濃度の関係を示す。畑地の地下水は、1993年9月と1994年7月の深度200cmから深度300cmまでの平均値で示した。ここで、林地では、深度50cm以深で根系密度が低下することから、この深度の土壤水の濃度が林地における浸透水の濃度とほぼ等しいものと仮定し、林地に流入した畑地の地下水との混合を考慮する。(1)式に示すような混合の結果形成される林地の地下水の成分は、図中では、林地の土壤水(深度50cm)と畑地の地下水の点を結んだ直線(混合線)上にプロットされる。しかし、 NO_3^- -Nに関して、(3)式のように物質変換過程が生じた場合には、線上から外れると考えられる。林地の地下水は、1994年には図中の混合線上にプロットされ、一方、1993年には混合線よりはるかに下方にプロットされた。これは、1993年には、混合過程において NO_3^- -Nが消費されたことを示す。第5図に示した濃度プロファイルでは、



第6図 林地の土壤水(深度50cm)、林地の地下水(深度200cm、300cm)および畑地の地下水の Cl^- 濃度と NO_3^- -N濃度の関係。(a)地下水位(深度240cm)の低い時期(1994年7月)と(b)地下水位(深度140cm)の高い時期(1993年9月)

深度300cmにおいて濃度がほぼゼロであったことから、水位が高い時期には、地下水の深部で一時的に還元環境が形成され脱窒反応が生じたものと考えられる。

第2表 地下水への林地の浸透水の寄与率(R_s)と林地地下水の窒素の消失量(D)

	R_{s200}^{*1}	R_{s300}^{*2}	D_{200}^{*3}	D_{300}^{*4}
September, 1993	0.70	0.45	1.1	3.6
July, 1994	0.75	0.60	0.0	0.2

*1: contributing ratio of recharge water to groundwater around 200cm deep on forested land.

*2: contributing ratio of recharge water to groundwater around 300cm deep on forested land.

*3: reduced nitrate content around 200cm deep. ($\text{g}/\text{m}^2/\text{5months}$)

*4: reduced nitrate content around 300cm deep. ($\text{g}/\text{m}^2/\text{5months}$)

れる。

第2表に、(2)式および(5)式から試算した林地の浸透水の地下水への寄与率(R_s)と窒素の消失量(D)を示す。なお、林地の地下水の濃度は、

深度200cmおよび300cmの値でそれぞれ求めた。また、窒素の消失量については、地下水を上部と下部に別けて、各深度の値をそれぞれに与え、浸透量として第3図に示したフラックスの5ヶ月間の積算値(Ⅲ-2章で記載)を与え算出した。林地の浸透水の地下水への寄与率は、1994年には深度200cmが75%、深度300cmが60%と、周辺からの地下水流入量より高く、畑地で汚染された地下水は、林地における低濃度の浸透水により半分以下の濃度になっていることが示された。また、深度200cmと300cmの差も小さく、混合が比較的地下水全体に及んでいたことが示唆された。しかし、1993年には深度200cmが70%であったのに対し、深度300cmが45%と地下水への浸透水の寄与は小さく、混合は地下水の深部まで及んでいなかったことが示唆された。つまり、地下水の深部においては、周辺地下水からの流入成分が相対的に増加し、浸透水の影響が比較的及ばなくなり、還元環境が形成しやすくなったものと考えられる。窒素の消失量は、1994年にはほとんど0であったのに対し、1993年は深度200cm周辺で $1.1 \text{ g} / \text{m}^2 / 5 \text{ months}$ 、深度300cm周辺で $3.6 \text{ g} / \text{m}^2 / 5 \text{ months}$ とかなりの量が消失した。林内雨と樹幹流によって林床に供給される年間の窒素量が約 $3.0 \text{ g} / \text{m}^2 / \text{year}$ であることから、1993年の地下水位が高い時期の窒素の消費量は、ほぼ年間の降水による流入量を上回るものであった。以上、1993年は降水量が多かった影響で地下水面上昇し、地下水中の深部では一時的に還元環境が形成され、脱窒が生じ、硝酸汚染地下水の浄化が進んだことが示された。

V. まとめ

本研究では、農耕地の硝酸汚染地下水が流入している林地において、1992年から1995年までの土壤溶液中の溶存物質の変動をモニターし、その結果、以下のことが明らかになった。

1) 1992年および1994年に比べ、冷夏と呼ばれた1993年の夏季には、表層の NO_3^- -N濃度が上昇しなかった。1993年の冷夏の傾向としては、日平均気温が 25°C を越えた日数が10日程度で、1992年の38日、1994年の49日に比べ明らかに少なかった。これらの

気温特性が、土壤中の NO_3^- -Nの生成量を低下させた一因と考えられる。

2) 1993年は夏季の降水量が例年より200mm以上多く、地下水面上昇も例年に比べ50cm以上も上昇(1994年に比べると100cmも高い)した。そのため、地下水の深部には還元環境が形成され、脱窒による NO_3^- -Nの消費が行われていたことが推定された。

以上のように、冷夏で降水量が多かった1993年には、表層での NO_3^- -Nの生成が抑制され希釈効果が増大し、地下では脱窒の促進による NO_3^- -Nの消費が進み、林地における浄化機能が増大したことが明らかになった。

謝辞：本研究は、環境庁公害防止研究プロジェクト「農林生態系利用による浅層地下水の水質浄化技術の開発に関する研究」のもとで行ったものであり、研究分担者の方々には、調査に対する御協力、研究に対する御助言をいただきました。また、気象データは筑波大学水理実験センターのものを使用した。以上、記して感謝いたします。

文献

- 石塚成宏・小野寺真一(1997)： $\delta^{15}\text{N}$ 値による平地林浅層地下水における脱窒の検証：茨城県南西部常総台地の例。土壤肥科学会誌、(投稿中)
- 加藤正樹・小林政広・小野寺真一・吉永秀一郎・河室公康・山家富美子・石塚成宏・松浦陽次郎・三浦覚(1993)：平地ヒノキ林における水分および物質の動態。日本林学会論文集，104，393-398。
- 加藤正樹・小野寺真一・小林政広(1995)：源頭部森林小流域における土壤溶液と湧水の硝酸態窒素の動態。日本林学会誌，77，516-526。
- 黒田久雄・田淵俊雄・菊池英樹・鈴木正道(1991)：森林小集水域における流出水の濃度と流出負荷。農業土木学会論文集，154，25-35。
- 篠宮佳樹・小野寺真一・川室公康・加藤正樹(1995)：畑地・林地・市街化域からなる筑波台地の浅層地下水の流動方向への水質変化。水文水資源学会要旨集，118-119。

- 鶴巻道二 (1992) : 浅層地下水の硝酸態窒素. 地下水学会誌, **34**, 153-162.
- 戸田浩人・生原喜久雄 (1994) : 森林土壤中における窒素無機化の反応速度論的解析 (1) : 林齢・斜面位置・深さ別の窒素無機化特性. 日本林学会誌, **76**, 144-151.
- 三浦 寛・吉永秀一郎・山家富美子・河室公康 (1993) : 筑波台地の平地林における浅層地下水的特性. 日本林学会論文集, **104**, 389-390.
- Onodera, S., Kato, M. and Kobayashi, M. (1994) : Hydrochemical study on forested land adjacent to farm land on the Tsukuba Upland, Japan. *Proceedings of 25th Congress of the International Association of Hydrogeologists*, Adelaide, 2 - B, 719-722.
- Onodera, S. and Kobayashi, M. (1995) : Evaluation of seasonal variation in bypass flow and matrix flow in a forest soil layer using Br^- . Leibundgut, C. ed. : *Comparison of tracer technologies for hydrological systems*. IAHS Publ. No. 229, 99-107.
- Postma, D., Boesen, C., Kristiansen, H. and Larsen, F. (1991) : Nitrate reduction in an unconfined sandy aquifer : water chemistry, reduction processes, and geochemical modeling. *Water Resour. Res.*, **27**, 2027-2045.
- Reynolds, B., Emmett, B. A. and Woods, C. (1992) : Variations in streamwater nitrate concentrations and nitrogen budgets over 10 years in a headwater catchment in mid-Wales. *J. Hydrol.*, **136**, 155-175.
- Tokuchi, N., Takeda, H. and Iwatsubo, G. (1993) : Vertical changes in soil solution chemistry in soil profiles under coniferous forest. *Geoderma*, **59**, 57-73.
- Vitousek, P. M. (1977) : The regulation of element concentrations in mountain streams in the northeastern United States. *Ecol. Monogr.*, **47**, 65-87.