

## 茨城県霞ヶ浦流域における大気アンモニア濃度の広域観測

堅田 元喜<sup>1</sup>, 久保田 智大<sup>1</sup>, 黒田 久雄<sup>1</sup>, 福島 慶太郎<sup>2</sup>, 中里 亮治<sup>1</sup>, 松本 俊一<sup>3</sup>, 中川 圭太<sup>3</sup>,  
北見 康子<sup>3</sup>, 菊地 哲郎<sup>3</sup>, 渡邊 未来<sup>4</sup>, 今村 直広<sup>5</sup>

<sup>1</sup>茨城大学, <sup>2</sup>京都大学, <sup>3</sup>茨城県霞ヶ浦環境科学センター, <sup>4</sup>国立環境研究所, <sup>5</sup>森林総合研究所

キーワード: 広域的大気環境の影響, 窒素・りん循環, 点源及び面源汚染

## 抄録

農業・畜産系から放出された大気アンモニア(NH<sub>3</sub>)の沈着は、放出源の周辺に窒素負荷をもたらすが、その負荷量を決める NH<sub>3</sub> 濃度の観測データは国内では限定的であり、流域への窒素の負荷量を推計する上で不確実な要因となっている。このことを背景に、2017年6月から茨城県霞ヶ浦流域に分布する13地点を対象に、拡散型パッシブサンプラーとイオンクロマトグラフィーを用いた NH<sub>3</sub> 濃度の観測網の整備を進めている。観測された月平均 NH<sub>3</sub> 濃度の大きさや変動傾向は地点ごとに異なり、特に、観測地点の近傍に畜舎などの放出源が想定される場所では、濃度の変動幅が大きいことが示された。今後、本研究の広域観測を継続することによって、NH<sub>3</sub> の沈着がもたらす霞ヶ浦流域や窒素飽和が起こっている筑波山の森林への窒素負荷量の推計を目指す。

## 1. はじめに

農業活動に伴う施肥や家畜ふん尿などから発生する大気アンモニアガス(NH<sub>3</sub>)は、降雨に取り込まれて落下する湿性沈着や大気乱流により下方へ輸送され樹木の葉などへと直接吸着する乾性沈着を通じて、特に放出源の近傍に大量の窒素を負荷する<sup>[1]</sup>。乾性沈着量の推計には NH<sub>3</sub> 濃度のデータが必要であるが、大気汚染物質ではない NH<sub>3</sub> には環境基準や監視体制が存在せず、データは限定的である。また、NH<sub>3</sub> の発生源は局所的かつ広く分布しているため、その大気中の挙動を把握するためには流域への負荷を意識した広域的な NH<sub>3</sub> 濃度の観測網が必要である。

本研究では、農業・畜産系発生源が広く分布する茨城県霞ヶ浦流域を対象に、NH<sub>3</sub> 濃度の多地点観測を実施する。得られた結果を公表されている NH<sub>3</sub> の排出インベントリーデータと比較し、濃度変動の要因を解析する。

## 2. 方法

Figure 1 は、本研究で実施する対象地域を示す。観測地点は、次の13地点である: Ami(茨城大学阿見キャンパス), Ushiku(牛久自然観察の森), Kakioka(石岡市柿岡), Itako(茨城大学広域水圏環境科学教育研究センター), IKESC(茨城県霞ヶ浦環境科学センター), Tsuchiura(土浦保健所), Nishiura(西浦湖心), Inashiki(稲敷合同庁舎), Hokota(鉾田合同庁舎), Tokusyuku

(鉾田市徳宿), Mt. Tsukuba(国立環境研究所筑波山森林試験地), Chiyoda(森林総合研究所千代田試験地), Omitama(小美玉市倉敷)。観測地点を選定する上では、同図に示した大気汚染物質の総合排出インベントリー EAGrid2000-Japan<sup>[2]</sup>による1 km 解像度の NH<sub>3</sub> の年間排出量分布を参考にした。EAGrid2000-Japan では、国内で最大規模の排出源は農業・畜産系由来であると推計されている。

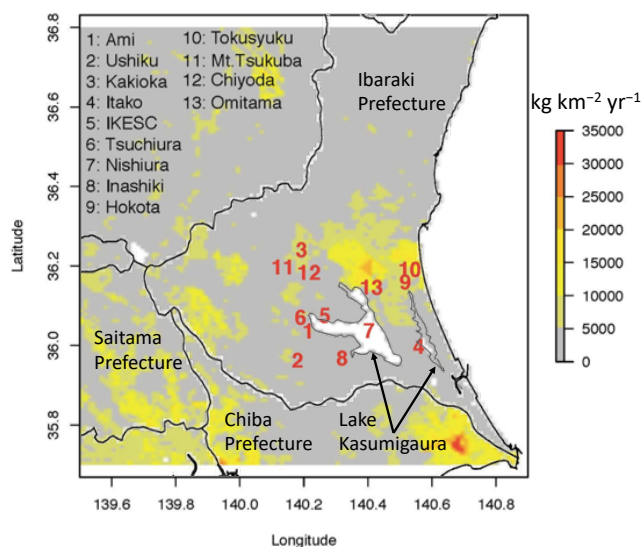


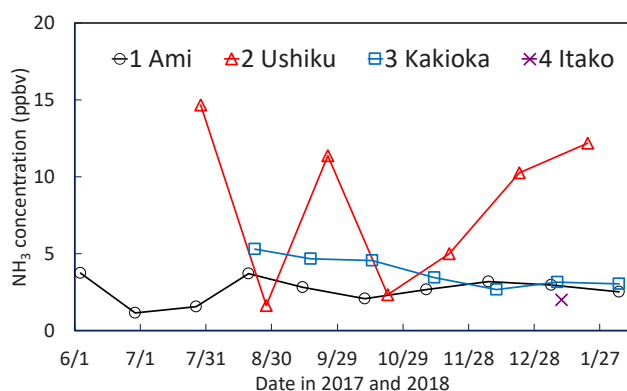
Fig. 1 Sampling locations of NH<sub>3</sub> concentration in Kasumigaura basin in Ibaraki Prefecture, Japan. Shaded areas show the 1-km resolution emission inventory of NH<sub>3</sub> from revised EAGrid2000-Japan<sup>[2]</sup>.

NH<sub>3</sub> 濃度の観測には、大気汚染物質の観測に広く利用されている拡散型パッシブサンプラー(小川商会製)を用いた。このサンプラーを4週間おきに回収した後、ろ紙に吸着したアンモニウム(NH<sub>4</sub><sup>+</sup>)成分をイオンクロマトグラフィー(ThermoFisher Scientific 製 Integrion, CS16)で分析し、暴露時間とその期間の平均気温を用いて NH<sub>3</sub> 濃度に換算した。暴露時間中の平均気温は、観測点に近い気象庁アメダス(つくば館野, 土浦, 鉾田, 鹿島)の1時間値を用いて計算した。

本稿では、Fig. 1のNos. 1-4にそれぞれ位置するAmi(2017年6月以降), Ushiku(2017年7月以降), Kakioka(2017年8月以降)およびItako(2018年1月以降)の観測結果を解析した。その他の地点(Nos. 5-13, Fig.1)には、2018年4月から5月にかけて順次サンプラーの設置作業を行い、観測を進めている。

### 3. 結果と考察

Figure 2は、Ami, Ushiku, Kakioka および Itako の4地点で観測した NH<sub>3</sub> 濃度の経時変化である。すべての地点でデータが利用可能な2018年1月における濃度の大小関係は、下記のものであった: Ushiku (12 ppb) > Kakioka = Ami (3 ppb) > Itako (2 ppb)。



**Fig. 2 Temporal changes in measured monthly NH<sub>3</sub> concentration at Nos. 1-4 in Fig. 1 from 1 June 2017 to 4 February 2018.**

Itakoを除く上記3地点のうち、Ushikuでは、月ごとのNH<sub>3</sub>濃度が他の地点より広い範囲(1-15 ppb)で変化していた。その原因として、Ushikuの観測地点から南東方向130 m離れた場所にある養豚・堆肥製造工場を発生

源としたNH<sub>3</sub>の風下方向への揮散が考えられる。実際に、土浦アメダスの風向データから観測地点が工場の風下になった割合を計算すると、風下割合と濃度との間には弱い正の相関がみられた(図略)。また Ushiku の近傍では比較的大きい年間 NH<sub>3</sub> 排出量(5000-10000 kg km<sup>-2</sup>)も推計されており(No. 2, Fig. 1), 観測地点を含む130 m範囲での NH<sub>3</sub> の大気拡散過程が濃度の経時変動を決めていた可能性がある。

2017年8月から10月の夏から秋にかけて、KakiokaのNH<sub>3</sub>濃度はAmiに比べて常に高い値を示した。Kakiokaでは、この周辺に分布するNH<sub>3</sub>の排出源(No. 3, Fig. 1)から揮散したNH<sub>3</sub>の影響により濃度が増加した可能性がある。Kakiokaの近くには、2018年4月から観測を開始したMt. Tsukuba(No. 11)があり、この森林では高い窒素負荷により河川水の硝酸イオンが増加した状態が続く「窒素飽和現象」が古くから観測されている<sup>[3]</sup>。今後、霞ヶ浦流域やMt. TsukubaでのNH<sub>3</sub>濃度の観測とその結果に基づく乾性沈着量の推計を進める必要がある。

### 謝辞

EAGrid2000-Japanのデジタルデータは、計量計画研究所の福井 哲央氏に提供いただいた。牛久自然観察森への機材設置の際には、職員の補助を本研究の一部は、日本学術振興会科学技術人材育成費補助金(卓越研究員事業)ならびに科研費補助金基盤研究(B)(一般)(課題番号17H01868)の助成を受けて実施した。

### 引用文献

- [1] J. Shen, D. Chen, M. Bai, J. Sun, T. Coates, S.K. Lam, Y. Li: Ammonia deposition in the neighbourhood of an intensive cattle feedlot in Victoria, Australia, *Scientific Reports*, Vol. 6, pp. 32793, 2016.
- [2] 福井哲央, 國領和夫, 馬場剛, 神成陽容: 大気汚染物質排出インベントリーEAGrid2000-Japanの年次更新, *大気環境学会誌* Vol. 49, pp. 117-125, 2014.
- [3] M. Watanabe, S. Miura, S. Hasegawa, M.K. Koshikawa, T. Takamatsu, A. Kohzu, A. Imai, S. Hayashi: Coniferous coverage as well as catchment steepness influences local stream nitrate concentrations within a nitrogen-saturated forest in central Japan, *Science of The Total Environment*, Vol. 636, pp. 539-546, 2018.