

# 郊外地域における大気沈着及び住宅屋根排水の窒素

横山新紀<sup>1)</sup>

(1:元千葉県環境研究センター)

## 1 はじめに

大気中の沈着過程には大気からの汚染物質の除去と地表面への汚染物質の負荷の両面性があると指摘されている<sup>1)</sup>。このうち、窒素（硝酸及びアンモニア）沈着については生態系への過剰な供給による窒素飽和についても指摘されている<sup>2)</sup>。日本においては、離島等の遠隔地に位置する東アジア酸性雨モニタリングネットワーク（EANET）局の窒素の総沈着量は、窒素飽和の閾値とされる  $10 \text{ kgN/ha}$ <sup>3)</sup>を超える地点が多いことが示されている<sup>4)</sup>。また、窒素の総沈着量の全国平均値は 2014 年前後から減少傾向にあり、2018 年でも  $10.5 \text{ kgN/ha}$  と推定されている<sup>5)</sup>。

一方、印旛沼の全窒素の流入負荷量のうち、面源系は 70.2%を占めている<sup>6)</sup>など、面源負荷の削減は大きな課題であるが、面源負荷に占める大気からの窒素沈着の影響は明らかにされていない。

千葉県の北西部には東京都心から 30km 圏内の都市化が進んだ地域と、その外側に印旛沼流域も含まれる畑地や森林などが混在する郊外地域が存在する。そこで、この郊外地域での窒素沈着の影響を明らかにするため、郊外の住宅地で窒素の湿性及び乾性沈着（以下、「大気沈着」という）の調査並びに住宅屋根から降雨時に流出する排水（以下、「屋根排水」という）の窒素の測定を行い比較検討を行った。また、併せて窒素の大気沈着の経年変化についても検討した。

## 2 調査方法

### 2・1 大気沈着と屋根排水との比較

#### 2・1・1 調査期間

2023 年 6 月～2024 年 5 月とした。

#### 2・1・2 大気沈着の測定及び沈着量の算出方法

大気沈着は県設置の佐倉江原新田大気測定局（以下、佐倉、図 1）における湿性、乾性沈着の  $\text{NO}_3^-$  及び  $\text{NH}_4^+$  の結果<sup>8)</sup>を使用した。なお、2024 年 4 月と 5 月分につ



図 1 調査地点（出典：地理院タイル）<sup>7)</sup>



図 2 屋根排水の採取

表 1 使用した沈着速度

	(cm/s)			
	$\text{NO}_3^-$ (p)	$\text{NO}_3^-$ (g)	$\text{NH}_4^+$ (p)	$\text{NH}_4^+$ (g)
urban area	0.16	4.7	0.16	0.047

いても追加して使用した。湿性沈着については降水時開放型の自動採水機（小笠原計器 US-330）による 2 週間ごとの測定の結果、乾性沈着については全国環境研協議会酸性雨部会で実施している FP 法による 2 週間ごとに採取したガス、粒子成分の結果を用いてイン

表2 大気沈着と屋根排水の測定結果(2023年6月～2024年5月)

	NO <sub>3</sub> -N			NH <sub>4</sub> -N		NO <sub>3</sub> -NとNH <sub>4</sub> -N合計値	
	mm	mg/L	mg/m <sup>2</sup>	mg/L	mg/m <sup>2</sup>	mg/L	mg/m <sup>2</sup>
大気沈着	降水量	濃度	沈着量	濃度	沈着量	濃度	沈着量
	年合計値	1654.1	383.8	250.0	633.8		
	年平均値	0.23	0.15	0.38			
屋根排水	流出高	濃度	流出量	濃度	流出量	濃度	流出量
	年合計値	1497.3	337.9	125.7	463.6		
	年平均値	0.23	0.08	0.31			

ファレンシャル法(沈着量=大気濃度×沈着速度)により算出する方法<sup>9)</sup>によった。なお、使用した沈着速度は表1のとおり、測定を住宅地で実施したことから全国環境研協議会<sup>9)</sup>による市街地の値を用いた。

### 2・1・3 屋根排水の採取及び測定方法

屋根排水の窒素の測定は佐倉から約7km離れた住宅で行った(図1)。調査は2023年6月～2024年5月の1年間、69回の降雨のうち64回の降雨で実施した。この屋根は南向きのスレート葺で、水平投影面積は0.86m<sup>2</sup>である。屋根としては小さいが、排水全量を採取するため水量が多すぎないようにしたことによるものである。排水は屋根面から塩化ビニール製の横樋を経由して1本の縦樋を流下して道路側溝に流出する構造となっており、図2のとおり縦樋を切断して別の配管に導き、採取容器に送水して1降雨全量を採取した。採取した試料はイオンクロマトグラフ法によりNO<sub>3</sub>-N及びNH<sub>4</sub>-Nの分析を行った。

### 2・1・4 大気沈着と屋根排水の評価方法

大気沈着のNO<sub>3</sub>-N、NH<sub>4</sub>-N濃度は、湿性、乾性沈着量の合計値を降水量で除したもので、屋根排水の流出濃度に対応させたものである。大気沈着、屋根排水とも、NO<sub>3</sub>-N、NH<sub>4</sub>-Nの濃度を合計したものを合計濃度として評価した。また、NO<sub>3</sub>-N、NH<sub>4</sub>-Nの沈着量を合計したものを合計沈着量、流出量を合計したものを合計流出量として評価した。

### 2・2 大気沈着の経年変化

佐倉における2011～2023年度における大気沈着の調査結果(NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、降水量)<sup>8)</sup>及びNO<sub>2</sub>の常時監視測定結果<sup>10)</sup>を用いて解析した。

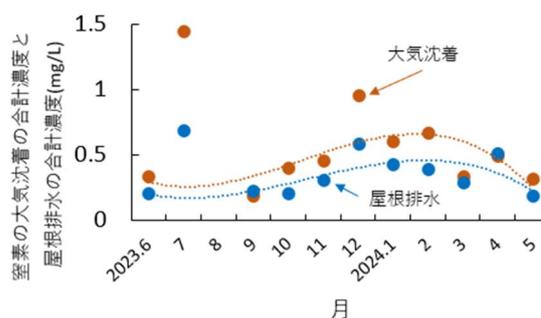


図3 大気沈着の合計濃度、屋根排水の合計濃度

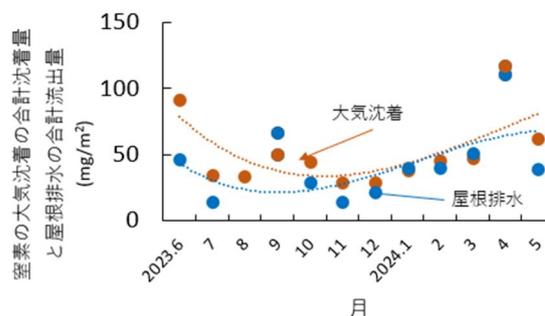


図4 大気沈着の合計沈着量、屋根排水の合計流出量の推移

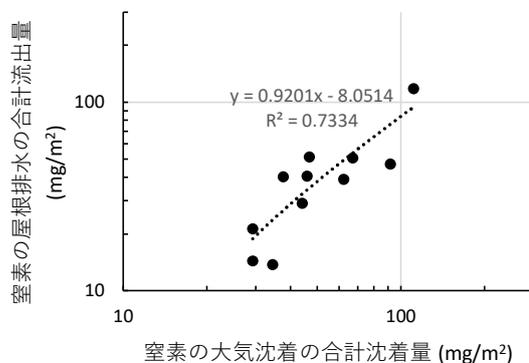


図5 大気沈着の合計沈着量、屋根排水の合計流出量の関係

### 3 結果及び考察

#### 3・1 大気沈着と屋根排水との比較

##### 3・1・1 全期間の測定結果

表2に窒素の大気沈着と屋根排水の測定結果を示した。大気沈着の $\text{NO}_3\text{-N}$ 、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度はそれぞれ0.23、0.15 mg/L、合計濃度は0.38 mg/Lであった。 $\text{NO}_3\text{-N}$ 、 $\text{NH}_4\text{-N}$ の沈着量はそれぞれ383.8、250.0 mg/m<sup>2</sup>、合計沈着量は633.8 mg/m<sup>2</sup>であり、窒素飽和の閾値とされる1000 mg/m<sup>2</sup>（10 kgN/ha）を下回っていた。また、期間中の降水量の合計値は1654.1mmであった。

屋根排水の $\text{NO}_3\text{-N}$ 、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度はそれぞれ0.23、0.08 mg/L、合計濃度は0.31 mg/Lであった。 $\text{NO}_3\text{-N}$ 、 $\text{NH}_4\text{-N}$ の流出量はそれぞれ337.9、125.7 mg/m<sup>2</sup>で、合計流出量は463.6 mg/m<sup>2</sup>であった。また、流出高は1497.3mmであった。なお、8月分はサンプリング不調により欠測とした。

大気沈着と屋根排水を比較すると、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度は同程度、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度は屋根排水が大気沈着の半分程度であった。また $\text{NH}_4\text{-N}$ の屋根排水の流出量は大気沈着の沈着量の半分程度であった。 $\text{NO}_3\text{-N}$ 、 $\text{NH}_4\text{-N}$ の屋根からの合計流出量は大気沈着の合計沈着量の70%程度であった。

##### 3・1・2 経月変化

図3に2023年6月～2024年5月の月ごとの大気沈着と屋根排水それぞれの合計濃度の推移を示した。両者は6～9月の暖候期に低く11～2月の寒候期に高いという傾向が見られた。また概ね各月の屋根排水の窒素濃度は大気沈着より低かった。

図4に同様に大気沈着の合計沈着量、屋根排水の合計流出量の推移を示した。両者は11月頃に最も少なく、その後4月にかけて増加し、5～10月にかけては低下する傾向を示した。また屋根排水の合計流出量は寒候期以外では大気沈着の合計沈着量より少なかった。

図5に月ごとの大気沈着の合計沈着量、屋根排水の合計流出量の関係を示した。概ね両者に正の相関が見られるが、合計沈着量に比べて合計流出量の方が小さかった。この要因として期間全体の降水量は1654.1mm、屋根排水の流出高は1497.3mmと屋根排水の流出高は降水量の90%程度とやや小さかったこ

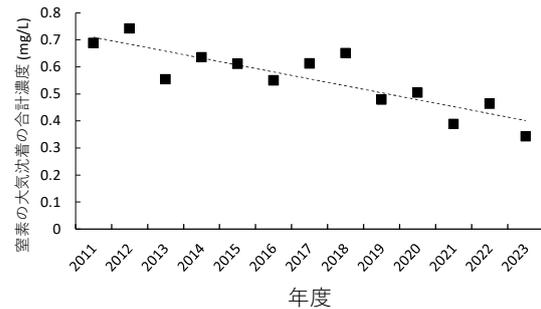


図6 大気沈着の合計濃度の年平均値推移（佐倉）

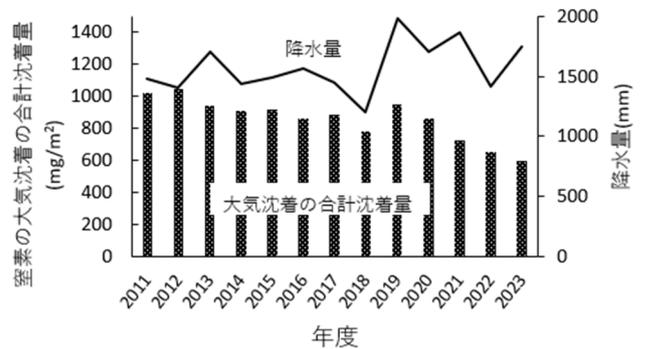


図7 大気沈着の合計沈着量、降水量の年平均値推移（佐倉）

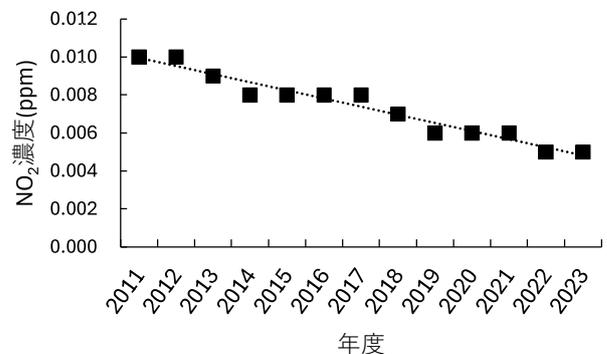


図8 大気中 $\text{NO}_2$ 濃度の年平均値推移（佐倉）

とや、屋根排水の $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度が大気沈着の半分程度であったこと、屋根表面での降雨時の雨滴の飛散、晴天時の乾性沈着物の吸着や再飛散などの可能性が考えられる。

#### 3・2 大気沈着の経年変化

図5から月ごとの大気沈着の合計沈着量と屋根排水の合計流出量は相関が見られたため、このうち長期の観測結果がある大気沈着について、図6に合計濃度の

年平均値の推移、図7に大気沈着の合計沈着量と降水量の年平均値の推移を示した。図6から合計濃度は低下する傾向を示しており、2011年度の0.7 mg/L程度から2023年度には0.4 mg/L程度へとほぼ半減した。

また、図7から合計沈着量は2011年度の1000 mg/m<sup>2</sup>程度から2023年度には600 mg/m<sup>2</sup>程度まで低下した。この間、降水量は年々変動が大きいものの低下傾向は見られないことから、合計沈着量の低下は合計濃度の低下を受けたものと考えられる。徳地ら<sup>11)</sup>は1990年代には全国の窒素の総沈着量は12.2kg/ha(1220mg/m<sup>2</sup>)としており、2000年代より大きな総沈着量であったと推定している。佐倉でも窒素の総沈着量は2000年代以前には1000 mg/m<sup>2</sup>を超える値だった可能性もある。

また、大気中のNO<sub>3</sub>-Nの前駆体はNO<sub>2</sub>であることから、図8に佐倉で常時監視している大気中のNO<sub>2</sub>濃度の年平均値の推移(2011～2023年度)<sup>10)</sup>も示した。NO<sub>2</sub>濃度はこの期間低下する傾向を示しており、図6の窒素の合計濃度の推移と良く整合している。NO<sub>2</sub>は地域の発生源の影響を受けることから、大気沈着の濃度推移の要因としては地域の窒素発生源もその一つであると考えられる。

### 3・3 まとめ

今回、千葉県北西部の郊外地域において窒素の大気沈着の調査及び屋根排水の窒素の測定を行い比較検討を行った。また、併せて窒素の大気沈着の経年変化についても検討した。月毎の値では大気沈着の濃度及び合計沈着量、屋根排水の濃度及び合計流出量は大気沈着と屋根排水でばらつきが見られたが、大気沈着量の増加に対して屋根排出量の増加の関係が見られ、大気沈着の窒素の屋根排水への影響が示唆された。また、過去の窒素の大気沈着の測定結果から、長期的に濃度、沈着量とも低下してきており、今後も屋根排水等への窒素の大気沈着については推移を注視していく必要がある。

### 引用文献

- 1) 松田和秀: ガス・粒子状物質の乾性沈着および大気-地表面交換に関する研究. 大気環境学会誌, 59(2), 23-29(2024).
- 2) Aber, J., McDowell, William, Nadelhoffer, K., Alison, M., Bernston, G., Kamakea, M., McNulty, S., Currie, W., Rustad, L., Fernandez, I.: Nitrogen saturation in temperate forest ecosystems. *Bioscience*, 48, 921-934 (1998).
- 3) Bleeker, A., Hicks, W. K., Dentener, F., Galloway, J.N., Erisman, J. W.: N deposition as a threat to the world's protected areas under the convention on biological diversity. *Environ. Pollut.*, 159, 2280-2288(2011).
- 4) Ban, S., Matsuda, K., Sato, K., Ohizumi, T.: Long-term assessment of nitrogen deposition at remote EANET sites in Japan. *Atmos. Environ.*, 146, 70-78(2016).
- 5) 徳地直子, 岩崎 綾, 山口高志, 久恒邦裕, 中川 光, 家合浩明, 牧野奏佳香, 村野健太郎: 日本の窒素沈着量の長期変動(1977～2018年). *日林誌*, 105, 199-208(2023).
- 6) 千葉県: 印旛沼に係る湖沼水質保全計画(第8期)の策定について. <https://www.pref.chiba.lg.jp/suiho/8ki/innba/8ki-sakutei-innba.html> (2025年11月時点).
- 7) 国土地理院: 地理院タイル. <https://maps.gsi.go.jp/development/ichiran.html>
- 8) 千葉県: 環境研究センター年報. <https://www.pref.chiba.lg.jp/wit/nenpou/index.html> (2024年11月時点).
- 9) 全国環境研協議会: 第6次酸性雨全国調査報告書(2022). *全国環境研会誌*, 49(3), 116-158(2024).
- 10) 千葉県: 大気環境常時測定結果. <https://www.pref.chiba.lg.jp/taiki/toukeidata/air-monitoring/index.html> (2024年11月時点).
- 11) 徳地直子, 岩崎 綾, 山口高志, 久恒邦裕, 中川 光, 村野健太郎: 我が国における窒素沈着量の長期変動-都道府県の調査を中心に-. *環境技術*, 50, 236-240(2021).

# Nitrogen deposition and nitrogen in residential roof drainage in suburban area

YOKOYAMA Shinki

To study nitrogen deposition in suburban area, we measured atmospheric nitrogen deposition in the northwestern part of Chiba Prefecture, in less urbanized eastern residential area (Sakura) in the suburbs. We also measured nitrogen in drainage water from residential roofs during rainfall. As a result, the average total concentration and total deposition amount of atmospheric deposition from 2023 to 2024 were 0.38 mg/L, 633.8 mg/m<sup>2</sup>, the total deposition amount was below the nitrogen saturation threshold of 1000 mg/m<sup>2</sup> (10 kgN/ha). Nitrogen measurements were performed in residential roof drainage, with the average total concentration being 0.31 mg/L and the total discharge being 463.6 mg/m<sup>2</sup>. In terms of monthly changes in atmospheric nitrogen deposition, the total concentration and total deposition tended to be low in the warm season from May to September and high in the cold season from November to February, and the change in total deposition followed the change in total concentration. In addition, the total deposition was roughly correlated with the total discharge of nitrogen from residential roof drainage, but the total discharge was smaller than the total deposition. In terms of long-term trends, the total deposition was about the nitrogen saturation threshold of 1000 mg/m<sup>2</sup> (10 kgN/ha) in 2011, but decreased to about 600 mg/m<sup>2</sup> in 2023, and both the total concentration and total deposition in the atmosphere decreased over time. The concentration of NO<sub>2</sub>, the precursor of HNO<sub>3</sub> gas, has been decreasing during this period, which is consistent with the trend in the total nitrogen concentration. Since the concentration of NO<sub>2</sub> is affected by local sources, it is speculated that the trend in the concentration of atmospheric nitrogen deposition is one of the factors by the trend in local nitrogen concentration.

Key words: nitrogen deposition, nitrogen in residential roof drainage, suburban area, long-term trends