

# 13. 三河湾上のブイを利用した湿性、乾性沈着による窒素負荷量の観測と数値シミュレーションによる内湾生態系への影響評価

北田 敏廣<sup>1\*</sup>・佐藤 直規<sup>1</sup>・飯田 航<sup>1</sup>・堀尾拓矢<sup>2</sup>・石川 創<sup>2</sup>

<sup>1</sup>豊橋技術科学大学環境・生命工学系(〒441-8580 豊橋市天伯町字雲雀ヶ丘1-1)

<sup>2</sup>愛知県環境調査センター東三河支所(〒441-8064 豊橋市富本町字国隠20-8)

\* E-mail: kitada@earth.ens.tut.ac.jp

三河湾上のブイを利用して湿性および乾性沈着により海面に直接供給される硝酸性窒素およびアンモニウム性窒素の負荷量を観測し、最寄の陸域での観測値と比較した。湿性沈着については海域と陸域で大きな差はなく、乾性沈着については海域の沈着量が陸域の70%程度であった。海域での乾性沈着によるN負荷は、湿性沈着によるそれと同程度かそれ以上と推定された。2009年4月～9月の6ヶ月間の湿性沈着によるN負荷は河川による負荷の約6%、また乾性沈着によるN負荷は河川の6～12%と見積もられた。湿性および乾性沈着による三河湾(渥美湾)への直接N負荷が富栄養化に与え得る影響を、流動/生態系モデルを用いて2009年4月1日～9月30日のシミュレーションにより調べた。その結果、湿性沈着による全窒素(TN)濃度増は最大0.11 mg/L程度、クロロフィルaの濃度増は、湾央で最大2.0 mg/m<sup>3</sup>程度であった。クロロフィルa濃度に対する乾性沈着によるN負荷の影響は、積算負荷量に対する寄与率から想定されるものに比べて小さく、負荷強度(速度)が植物プランクトン増殖に対して重要な条件であることが示唆された。

**Key Words :** eutrophication, Mikawa Bay, wet deposition, dry deposition, nitrogen, chlorophyll-a, CE-Qual-W2

## 1. はじめに

伊勢湾・三河湾では水質汚濁防止のために昭和53年からCOD物質の総量規制がはじまり、平成14年度の第5次からは窒素およびリンについても対策が実施されている。また、赤潮や貧酸素水塊の発生等結果として生じる環境汚染にはっきりとした減少傾向は見られない<sup>1)</sup>ため、平成18年度に示された国の総量削減基本方針を受けて、平成19年度から第6次の総量規制が始まり、さらに栄養塩の流入に規制が課されている。今後の負荷量の動向とそれによる富栄養化への影響が注目される。ところで、栄養塩の負荷については、河川等を通じての陸域からの流入が主たる機構と考えられるが、一方、湿性や乾性の沈着による大気から海域への直接のN負荷も意味ある量に成りうると推測されている<sup>2, 3, 4, 15)</sup>。筆者らは、1998年度～2000年度を対象とした研究<sup>9)</sup>において、三河湾の東側3分の2を占める渥美湾について、降水によるN負荷が河川

経由N負荷量の10%程度になり得ることを示し、それが植物プランクトンの増殖に与える効果を推定した。ただし、このときは、降水に伴うN負荷(いわゆる、湿性沈着)のみを考慮していたが、大気から水面への化学物質の負荷には大気中の気体やエアロゾル相の物質が降下する乾性沈着もあるため、本研究では新たに硝酸ガス、アンモニアガス、エアロゾル粒子(硝酸イオン、アンモニウムイオン)の乾性沈着も考慮して、三河湾(渥美湾)生態系への効果を評価した。

流動/生態系モデルには、CE-QUAL-W2<sup>9)</sup>を用い、2009年4月1日～9月30日を対象としたシミュレーションを行った。また、海域への湿性・乾性沈着によるN負荷量を評価するために、2009年8月20日～10月6日の間、三河湾上のブイ(愛知県水産試験場管理)にサンプラーを設置して湿性・乾性沈着を観測し、もよりの陸域(豊橋市街)での観測値と比較することにより三河湾への沈着の特性を検討した。

なお、Ce-Qual-W2は、筆者らが、底部に堆積した栄養塩類の巻き上げ溶出の影響等の研究<sup>4, 6, 7)</sup>にも用いてきたものである。

## 2. 渥美湾への窒素負荷量の推定

### (1) 大気から海域への窒素負荷量推定

2009年8月20日～10月6日にわたって、三河湾上の1号ブイ（図1参照；ブイは愛知県水産試験場が管理）を利用して湿性、乾性沈着の観測を行った。ブイの床面は、水面から約1.3 mの高さにあり、面積は約9.6 m<sup>2</sup>である。この床面から2.5 mの高さのポールを立て、ポール上に降水を受けるロートと、乾性沈着観測用の吸気口を設置した。降水はタンクに貯蔵、吸気は4段ろ紙<sup>8)</sup>（フィルターパック法）を通してガスおよびエアロゾル成分を捕集した。サンプルは約10日ごとに回収し、液体クロマトグラフで分析した。

同様の降水観測が、豊橋、渥美、幡豆（図1参照）では通年で行われている。また、豊橋では4段ろ紙のフィルターパック法によるガス、エアロゾル粒子成分が、やはり通年で測定されている。

### (2) 海上測定局と陸上局の比較：湿性および乾性沈着

設置場所、電源等の関係で、湿性にしても乾性にしても海上での長期観測は難しく、最寄の陸域での観測値から海上での値を推定する必要がある。本項では、三河湾上と陸上でのN沈着量の関係を見るために、2009年8月20日～10月6日について、海上局と豊橋、渥美での湿性・乾性沈着量の比較を行った。ただし、湿性沈着の観測法について、豊橋局については、降水感知時のみふたが開きサンプルする方式であるのに対して、海上局と渥美局は常時開いたロートで受けるいわゆるバルク方式である。したがって、海上局・渥美局では非降水時にプラスチック製のロート壁面に付着した化学物質が

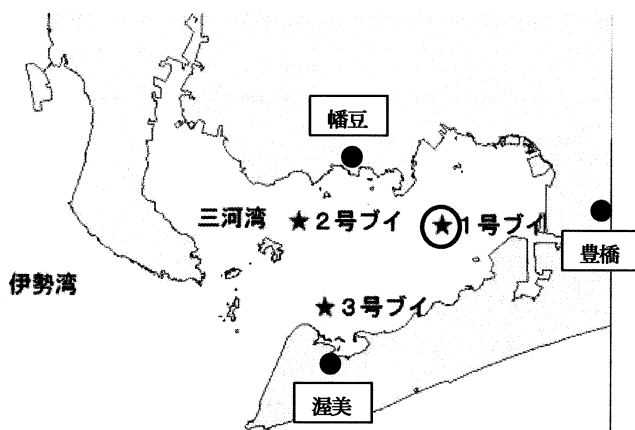


図1. 湿性沈着（1号ブイ、豊橋、渥美）および乾性沈着（1号ブイ、豊橋）観測点。1号ブイ・渥美は臨時観測点

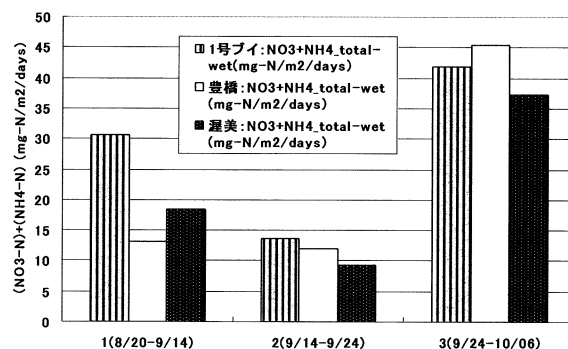


図-2 海上（1号ブイ）と陸上（豊橋、渥美）のN湿性沈着量の比較。1期（8月20日～9月14日）、2期（9月14日～9月24日）、3期（9月24日～10月6日）。

降水時に貯蔵タンクにともに流れ込むという意味で、この両局での湿性沈着は、乾性沈着に該当する部分を一部含むことが考えられる。これらのことを念頭におきつつ、図2に、海上、豊橋、渥美局での硝酸性およびアンモニア性窒素の総湿性沈着量を示す。図は、サンプルの回収時期ごとに、期間1（8月20日～9月14日；ただし、8月20日～9月1日には降水がなかったが、後に示す乾性沈着量との比較の都合上、この期間も期間1に含めた）、期間2（9月14日～9月24日）、期間3（9月24日～10月6日）に分けて示している。全期間の合計沈着量は、1号ブイ（海上）86.1、豊橋70.4、渥美65.1 mg-N/m<sup>2</sup>/48daysと、1号ブイがやや多いが大きな差はなかった。沈着した窒素のうちの硝酸イオンとアンモニウムイオンのモル比では、1号ブイと渥美がいずれも、硝酸性窒素が約70%、アンモニア性窒素が約30%であるのに対して、豊橋はアンモニア性窒素の割合が高く、約53%、硝酸性窒素は約

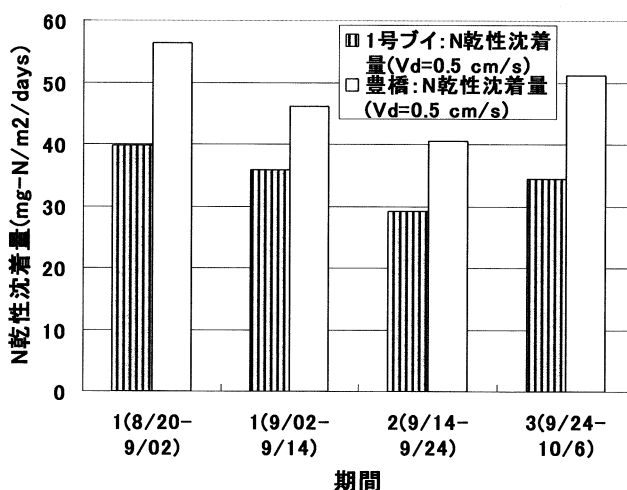


図3. 海上（1号ブイ）と陸上（豊橋局）での硝酸性窒素とアンモニア性窒素の乾性沈着量の比較：2009年8月20日～10月6日を4期に分けて比較。

47%であった。豊橋は農業地帯であり、肥料、家畜糞尿等を起源とするアンモニアの比率が高いと考えられる。

ところで、先に述べた降水のサンプル法の違い（豊橋局：湿性沈着のみ、海上局・渥美局：理論的に一部乾性沈着分を含む）が、豊橋局と海上局・渥美局の“湿性沈着量”の違いにどう影響しているかを、図2の結果から読み取ることは難しい。バルク法による“乾性沈着寄与分”は、注目物質の大気中濃度およびロート壁面への乾性沈着速度（ロート面上の大気乱れ・ロート壁面の汚れ等に依存する）によって異なると考えられるが、それにしても、海上局・渥美局での“湿性沈着量”が、システムティックに豊橋局よりも大きいという傾向は見られない。本論文は、三河湾上での湿性沈着量（ $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{NH}_4^+$ ）をバルク法により観測し、そのレベルを最寄の陸域データと比較した第1ステップであり、詳細な検討は今後の課題と考える。

図3は、図2と同じ期間の窒素分の総乾性沈着量（アンモニアガス、硝酸ガス、アンモニウムイオン、硝酸イオンによる窒素の乾性沈着量）を示す。先述のように4段フィルターパック法により捕集分析して得たガスおよび微粒子成分の気中濃度に推定乾性沈着速度を乗じて求めたものである。

海表面への乾性沈着速度は、大気側の空気力学的抵抗、粘性底層を分子拡散あるいはブラウン運動で通過するときの抵抗、気液界面での移動抵抗の和の逆数としてほぼ表現できる<sup>9, 16, 18)</sup>。最後の気液界面での移動抵抗は、アンモニウムイオン、硝酸イオンを含む微粒子について無しと考えてよい。すなわち、これら親水性イオンを含む微粒子が海表面に達した場合、直ちに海水中に取り込まれる。また、中性ないし弱アルカリ性の海水に対して、硝酸ガスはむしろ、アンモニアガスについても極めて溶解性が高いと考えられ、上記の微粒子と同じく、気液界面での移動抵抗は無視してよいと考えられる。残る抵抗

のうち、空気力学的抵抗は、ガス、微粒子ともに変わらず、粘性底層の移動抵抗については、サブミクロン粒子の（ブラウン運動に基づく）拡散係数が分子拡散係数に比べて桁違いに小さいことから、微粒子に対する抵抗がガスの移動に対する抵抗よりも大きい<sup>9, 16, 18)</sup>。したがって、微粒子の乾性沈着速度がガスのそれよりも小さいと考えられるが、これらは空気力学的抵抗ともども、風速、大気安定度によって時間変化する。ここでは、ガス、微粒子を合わせた物質に対する平均的な乾性沈着速度として  $0.2 \sim 0.5 \text{ cm s}^{-1}$  を仮定した。

図3は、この乾性沈着速度を  $0.5 \text{ cm s}^{-1}$  とした場合の結果である。図より、海上（1号ブイ、図1参照）の乾性沈着量（観測濃度に基づく推定値）は、豊橋局の70～80%であることが示されている。図の各期（4期）の捕集日数の若干の違いを考慮すると、Nの乾性沈着について、少なくともこの時期（8月20日～10月6日）には、10日間程度の積算沈着量について期間変動が極めて小さいことがわかる。すなわち、10日間単位で見ると、いつもほぼ一定の乾性沈着量のあることが示唆されている。また、このNの乾性沈着について、どのような物質としての沈着が多いのかを示したものが表1である。表1は、海上局と陸上局での大気中のN成分濃度のモル濃度比を示す。アンモニア性と硝酸性のガスおよび微粒子成分濃度の総和を100%として、それぞれの化学物質の割合を示したものである。陸上（豊橋局）、海上ともに、アンモニアガスの寄与が大きい。特に、陸上では70%強を占め、微粒子としてのアンモニウムイオンを含めるとN乾性沈着の約85%がアンモニア起源となる。一方、海上では、硝酸性ガス・微粒子の割合が、あわせて29%、残りがアンモニアガス（53%）、アンモニウムイオン（19%）である。また、ガス成分濃度の割合が、陸上で79%、海上で63%を占め、ガス体としての乾性沈着の寄与が大きいことを示している。モル濃度比にして、ガス/粒子比が、陸上で3.8倍、海上でも1.7倍である。

なお、このガス/粒子比は、フィルターパック法の性格上、（特に、夏季に）日夜の気温差が大きい地点ほどガス成分としてカウントされる割合が高くなる可能性があると推測される。三河湾上の気温は、夏季であっても、日較差3～4℃と小さいことが知られており、表1の1号ブイのガス比率が豊橋に比べて相対的に低いことは、海上大気の相対湿度の高さとともに、ろ紙に捕集された粒子成分のガス化率が低いことも影響しているかも知れない。ただし、これらは推測にとどまる。

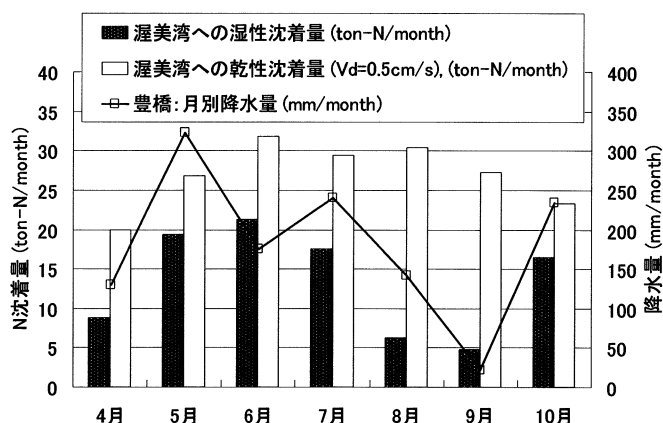


図 4. 渥美湾 (243 km<sup>2</sup>) に対する窒素の湿性および乾性沈着量の推定値；2009 年。実線は降水量。

表1. 海上(1号ブイ)、陸上(豊橋)観測点でのアンモニア、硝酸の大気中モル濃度比の比較：ガス、粒子

|      | NH <sub>3</sub> | HNO <sub>3</sub> | NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> | NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> |       |
|------|-----------------|------------------|------------------------------|------------------------------|-------|
| 1号ブイ | 53 %            | 10 %             | 18 %                         | 19 %                         | 100 % |
| 豊橋局  | 72 %            | 7 %              | 13 %                         | 8 %                          | 100 % |

### (3) 大気経由負荷も含めた三河湾（渥美湾）への総窒素負荷量推定

先述のように、Nの湿性・乾性沈着量について、陸上（豊橋）と海上（1号ブイ）で大きな開きのないことがわかった。そこで、2009年4月～10月の豊橋局でのデータを用いて渥美湾（三河湾の東部3分の2、面積約243 km<sup>2</sup>）への湿性および乾性沈着によるN負荷量を推定した（図4）。沈着量の推定に当たって、渥美湾全域で同じ雨が降り、海上大気中の硝酸およびアンモニアのガス、微粒子濃度は豊橋局と同じと仮定した。また、先述のように乾性沈着の速度は一律 $V_d=0.5 \text{ cm s}^{-1}$ と仮定した。乾性沈着速度が半分であれば、図中の乾性沈着量も半分になる。8、9月の降水量が少ないため湿性沈着量も少ないのに対して、乾性沈着量の場合は、これらの月も大気中の関連ガス、微粒子濃度に大差がないため、大きな値を保つことが示唆されている。

大気経由のN負荷量と河川、下水処理場経由N負荷量を比較した（図5）。河川からの負荷量推定に用いたデータは、いずれも速報値であるが、豊川当古橋での時間流量推定値（国土交通省中部地方整備局豊橋河川事務所<sup>10)</sup>）および月1回の豊川水質観測値<sup>11)</sup>、他の河川については、公共用水域調査結果速報値<sup>12)</sup>による月1回の観測値である。また下水道については、愛知県資料<sup>13)</sup>等より推定した。図5の結果は、河川、湿性・乾性沈着量等に多くの不確定要因を含むため、粗い推定である。特に、河川については、最大の河川である豊川の流量について

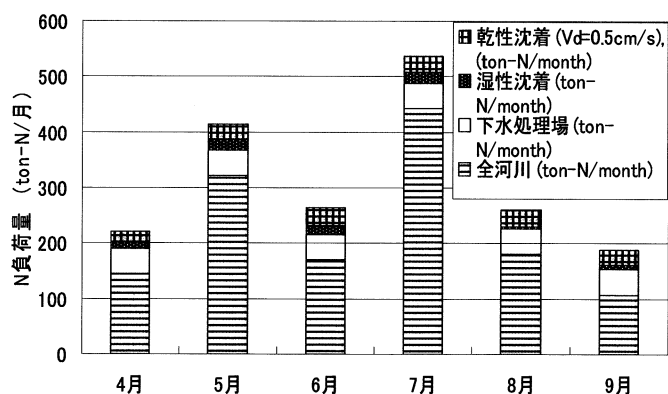


図5. 渥美湾へのN負荷量の経月変化：2009年4～9月

は時間値が利用できるものの、その他の河川の濃度、流量測定が頻度が少ないことから、河川からの負荷量の推定には不確定性を伴う。

以上の不確定性を考慮したうえで、図5より2009年4～9月の半年間で見た場合、河川からのN負荷量を1とすると、下水処理場の直接放流が0.2、湿性沈着が0.06、乾性沈着が0.12（ただし、一定の沈着速度 $0.5 \text{ cm s}^{-1}$ を仮定）と読み取れる。乾性沈着の速度を仮に半分と見なし、湿性と乾性沈着を合わせたN負荷は、寄与率最大の月で20%弱とかなりの小ささになりうることを示されている。

ところで、河川からの負荷量について、行政の環境部局による月1回の通常の河川観測は、必ずしも陸地での降雨による増水時に行われるわけではないため、時間流量が利用できる豊川以外は、流量および（流量によって濃度が大きく変動しない<sup>17)</sup>とすれば）N負荷量を過小評価している可能性がある。ただ、後に図8に示すTN（総窒素）の海域での観測値とモデルシミュレーション値とはかなり良い一致にあり、さらに、このTN計算値を主として決めているのが河川からの負荷量であると考えられるので、逆に、本研究で用いた河川からのN負荷量が大きく実態から離れているとすると、その負荷量を正したとき観測値と計算値の大きな乖離が生じることになる。むしろ、モデルが絶対というわけではないため、現時点では、これ以上の推測はできない。

### 3. 大気経由N負荷のクロロフィルa濃度に与える効果：流動-生態系モデルによる評価

#### (1) モデルの概要

第2章で述べた各種のN負荷量を入力として、2009年4月～9月について三河湾（渥美湾）の流動-生態系シミュレーションを行い、湿性沈着、乾性沈着によるN負荷がクロロフィルa等の濃度に及ぼす影響を見積もった。用いた流動-生態系モデル（CE-QUAL-W2）<sup>9)</sup>は、著者らがこれまでの研究<sup>6, 7)</sup>で用いたものであり、概略はそれらの論文を参照されたい。図6は生態系モデルを構成する変数間の関係をブロックダイアグラムで表したものであるが、大気からの降水に伴う窒素負荷を図6の破線矢印によって表している。なお、変数間を結ぶ実線矢印が生態系反応の各過程に相当する。

流動モデルは、運動量、熱、塩分輸送の非定常偏微分方程式系、連続の式および海表面水位の予測方程式からなり、これに大気-海面間の運動量、熱の移動過程、海底面-海水間の運動量移動過程の定式化が加えられている。さらに、溶存酸素(DO)、栄養塩類、その他の有機物、

植物プランクトン等の輸送・反応式からなる生態系モデルと併せて全体のモデルが構成されている<sup>4,5,6,7)</sup>。

各変数について、湾を幅広の水路と見立てたときの主軸 (x軸) に直角な方向 (y方向) に積分平均化することにより、偏微分方程式はすべて空間2次元 (x-z) の方程式として表現している。

## (2) シミュレーション条件

### a) 計算領域および計算期間

2009年4月1日～2009年10月31日の7ヶ月間について、図7の領域を対象に計算を行った。先述のように、流動/輸送方程式を、渥美湾を通る主軸 (図7左パネル) に直角な水平方向に積分平均化することにより、3次元流動の影響を除いて渥美湾を鉛直面内の2次元的に

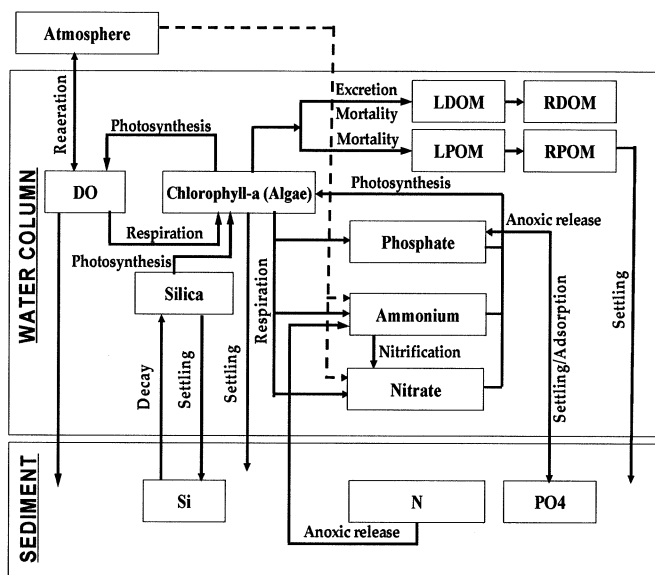


図-6 CE-QUAL-W2<sup>9)</sup>の水質/生態系モジュール。図中、破線矢印が降水による海域への窒素負荷を示す。

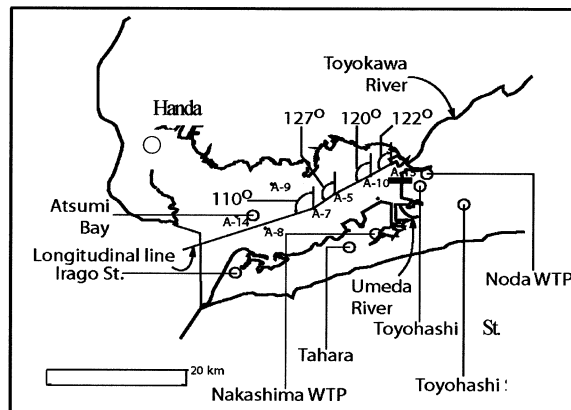


図-7 渥美湾計算領域。左パネル：平面図 (モデルシミュレーションの主軸方向を細実線で示す)。A5, A7, A8, A10, A13等は国、県、市が月1回行いう水質等の観測点。太い下線は観測点A13 (最湾奥)。図中、Handa, Toyohashiは常設の湿性沈着観測点。Toyohashi St., Irigo Stは気象観測点。Noda WTP, Nakashima WTPは、それぞれ、野田、中島の下水処理場を表す。Toyokawa River, Umeda Riverはそれぞれ豊川、梅田川を表す。右パネル：シミュレーション用の二次元格子点網 (水平格子長、すなわち Segment 長：850 m, 鉛直格子長：1.1 m)。

取り扱った。近似的な取り扱いであるが、代わりに、6

表-2 湿性・乾性沈着による N 負荷影響に関する計算シナリオ。

| 計算ケース  | 降水による直接 N 負荷の有無                                  |
|--------|--------------------------------------------------|
| Case 1 | 湿性沈着による N 負荷なし                                   |
| Case 2 | 湿性沈着による N 負荷あり (実測負荷量)                           |
| Case 3 | 湿性および乾性沈着による N 負荷あり (Vd=0.2 cm s <sup>-1</sup> ) |
| Case 4 | 湿性および乾性沈着による N 負荷あり (Vd=0.5 cm s <sup>-1</sup> ) |

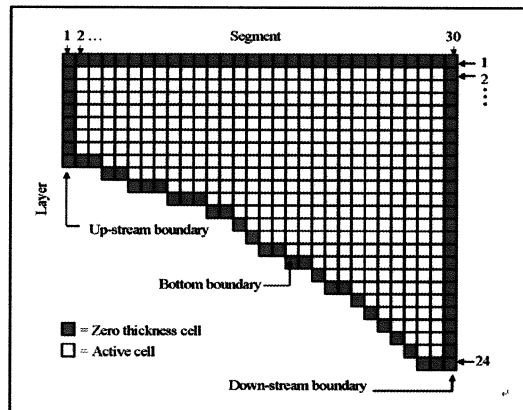
注) Vdは仮定した乾性沈着速度<sup>9, 16, 18)</sup>。

ヶ月間という長期間の連続的な計算が可能で、N, P 等の排出削減の政策的な効果等が見やすい。図7左パネルのA-5, A-7等は愛知県や国の機関が月1回のペースで行っている物理的、化学的、生物学的な調査の地点を表す。これらの地点で取得されたデータを初期分布、境界条件、シミュレーション結果の検証等に用いた。

図7右パネルは、二次元計算領域の格子点網を示す。格子長は、深さ方向に1.1 m, 水平方向に850 mである。ただし、領域の境界にあたる部分 (網掛け) は、外部との諸量の交換に使われる厚味を持たない格子である。

### b) 気象および潮汐の入力情報

第2章で述べた陸域からの負荷量および降水による負荷量 (これらについては次項以降で述べる) を除いて、シミュレーションを実行する上で用いたデータの概略を以下に述べる。気象要素 (気温、風向、風速、露点温度、雲量) の各格子点での時間値データを、豊橋および伊良湖のアメダスデータの重み付き平均 (距離の二乗の逆数を重み) により求めた。湾の出口側の



境界条件として必要な、潮汐により変動する海面水位は、気象庁の潮位時間値<sup>14)</sup>（舞阪、鳥羽、名古屋の重み付き平均）を用いて推定した。また、湾口境界での水温、塩分の鉛直方向分布は、愛知県とりまとめのデータ<sup>12)</sup>を用いて推定した。

#### 4. 計算結果および考察

湿性沈着および乾性沈着によるN負荷が渥美湾のクロロフィル a (chl-a) 濃度、全窒素(T-N)濃度にどの程度影響し得るかを見るために表2の4ケースについて計算を行った。Case 1は、すべての大気経路N負荷を考慮しない場合であり、基本ケースにあたる。以下、Case 2～4はすべて基本ケースに湿性、乾性の沈着によるN負荷を加えたケースを表す。特に、Case 3, 4は湿性沈着のみならず乾性沈着をも加えたケースを表すが、それぞれ乾性沈着速度を  $V_d=0.2, 0.5 \text{ cm s}^{-1}$  と仮定した場合に該当する。N成分については、先述のようにガス体 ( $\text{HNO}_3, \text{NH}_3$ ) としての割合が高いことから、 $V_d=0.2 \text{ cm s}^{-1}$  は、下限値と見なしても良いと考えられる。考察のために、渥

美湾の各種観測値が利用できて、湾奥と湾中央を代表する Seg 2, 16 での計算値を用いた。Seg 2 が豊橋港の観測点 A13 (図7左側パネル参照)、Seg 16 が湾中央の A7 に対応する。

##### (1) 全窒素(TN)濃度

図-8a, b に Seg 2 (湾奥), 16 (湾中央) の表層(深さ 50 cm)での TN(全窒素)の 2009 年 4 月 1 日～10 月 31 日までの変化を示す。図中、観測値 (○) は月 1 回の定期観測の結果<sup>12)</sup>であり、計算値は 1 日ごとのサンプル値を示す。図より、地点により差はあるが、計算は観測値の時間変化にほぼ追従している。また、湾奥の Seg 2 では、豊川等の増水に伴う負荷量変化の影響を受けて変動幅が大きく、一方、湾中央の Seg 16 では濃度レベルも相対的に低く、かつ変化が小さいことが示唆されている。Case 1(基本ケース)と Case 2～4 との比較から見える湿性および乾性沈着による TN 濃度の増加は、最大で  $0.11 \text{ mg/l}$  程度である。大きな値ではないが、TN 濃度が相対的に低い湾中央 (図 8b) では、場合によって、30%程度の寄与率を持つ可能性がある。

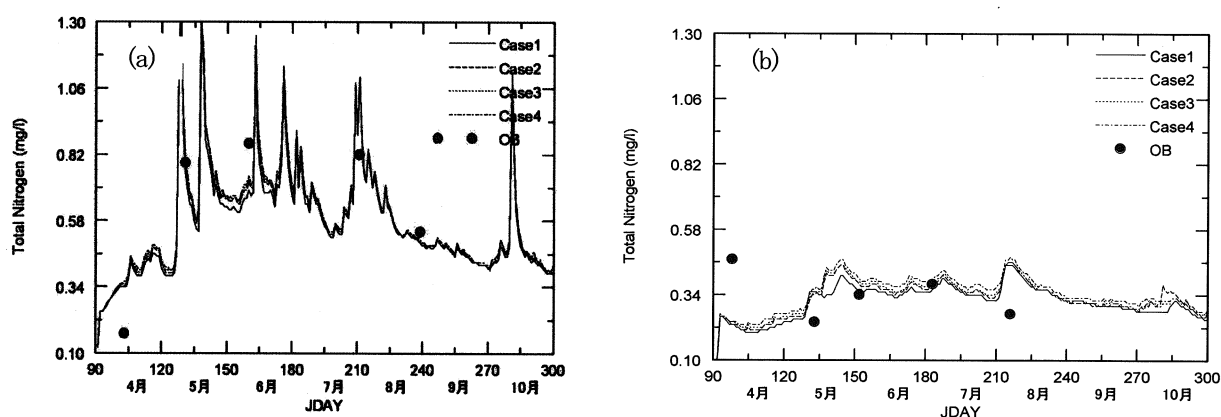


図8. 表層 TN 濃度の時間変化; (a) 湾奥 Seg 2, 観測点 A13 (図7), (b) 湾中央 Seg 16, 観測点 A7 (図7). Case 1～4 (表2)、○観測値. JDY はジュリアン日を表し、1 月 1 日を 1 日目として数えた通しの日数.

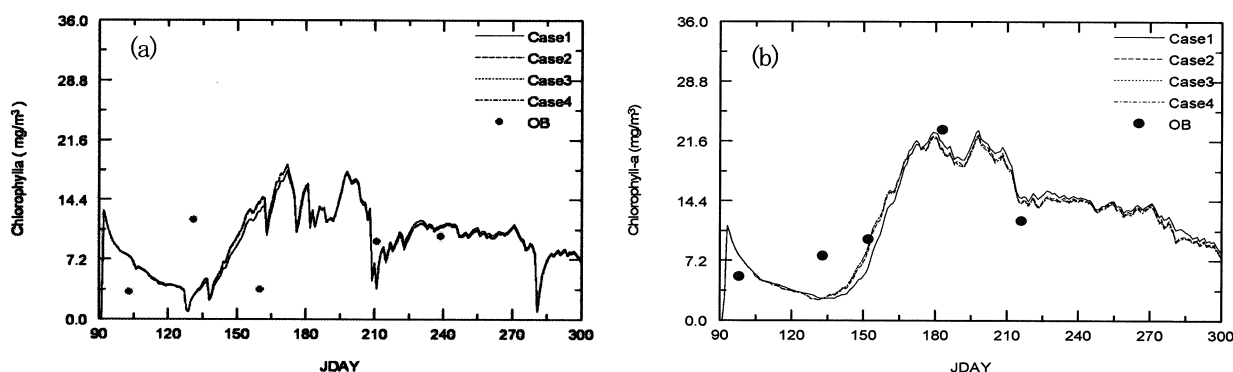


図9. 表層 Chl-a 濃度の時間変化; (a) 湾奥 Seg 2, 観測点 A13, (b) 湾中央 Seg 16, 観測点 A7. Case 1～4 (表2参照)、○観測値.

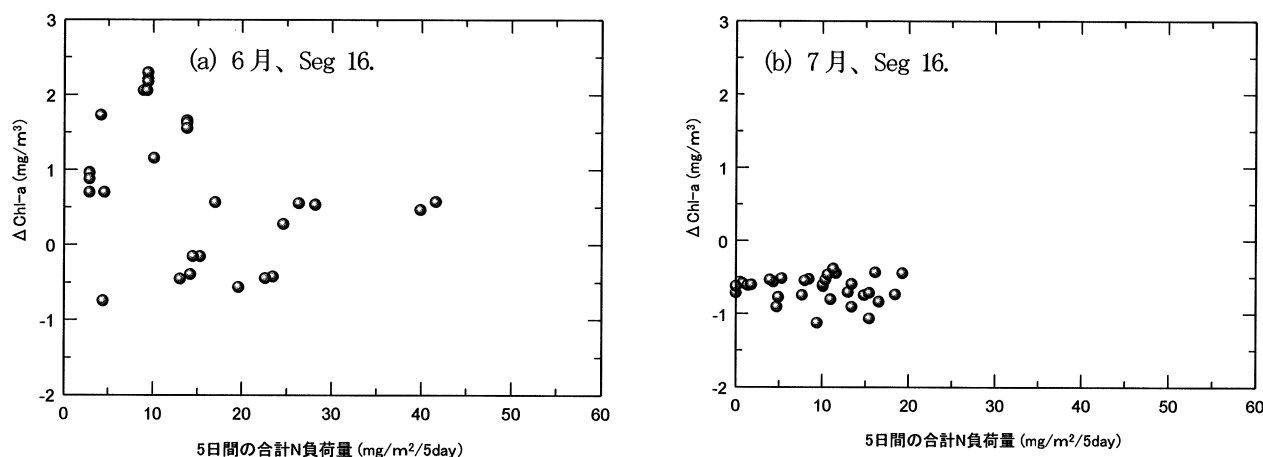


図 10. 過去 5 日間の降水による積算 N 負荷量 (湿性沈着量) による Chl-a 濃度の増分  $\Delta = \text{Case 2} - \text{Case 1}$ . 表 2 にケースの説明. (a) 2009 年 6 月、(b) 2009 年 7 月.

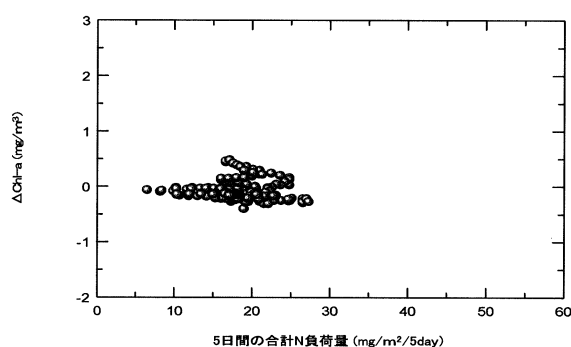


図 11. 過去 5 日間の乾性沈着 N 負荷量と Chl-a 濃度の増分 ( $\Delta = \text{Case 4} - \text{Case 2}$ ) の関係. 4~9 月, Seg 16.

## (2) クロロフィル a (Chl-a) 濃度

図 9 は、Chl-a 濃度についての、図 8 と同様の図である。全般に 2009 年暖候期は Chl-a 濃度が低い年であったと言えるが、モデルによる計算結果と観測値の対応は、主軸に直角な水平方向に積分した 2 次元モデル ( $x-z$  面内) であることを考慮すれば、良好と言える。湿性および乾性沈着による N 負荷の影響は、湾奥 (図 9a) で最大  $1.5 \text{ mg m}^{-3}$ 、湾中央 (図 9b) で同じく  $2 \text{ mg m}^{-3}$  程度であった。図 9 が示す Chl-a 濃度の最大値が  $21 \text{ mg m}^{-3}$  程度であるから、湿性および乾性沈着による大気からの N 負荷による Chl-a 濃度への影響は状況により異なるが、10%程度に成りうると言える。

図 9 が示すもう一つの特徴は、乾性沈着による N 負荷の影響が湿性沈着のそれに比べて小さいことである。次項で、この点について述べる。

## (3) クロロフィル a 濃度と過去 5 日間積算の湿性および乾性 N 沈着量の関係

N 負荷と植物プランクトン増殖に時間遅れがあると考えられることから、モデル計算値について、過去 5 日間に降った降雨によって直接水面に供給された N 量を横軸に、それによる Chl-a 濃度の増加分 (すなわち、Case 2 の Chl-a 濃度から Case 1 の Chl-a 濃度を差し引いた濃度) を縦軸にとったときの関係を図 10a (6 月分)、図 10b (7 月分) に示す。図 10a の 6 月については、降水による Chl-a 濃度の増加が認められること、積算の N 負荷量が多いと逆に目立った濃度増が認められないことなど、著者らの前報<sup>4)</sup>と定性的には同じ結果が示されている。特に、積算の N 負荷量が大きくても Chl-a に目立った濃度増が見えないことは、“過去 5 日間の積算 N 負荷量がある程度以上に大きいことは、同時に晴天日数がなかった、あるいは少なかった”ことを意味し、植物プランクトン増殖のための時間的余裕がなかったことを意味すると解釈できる (この場合、むしろ 5 日間積算 N 負荷量が、見かけ上小さなところで Chl-a 濃度増が現れる可能性がある。すなわち、5 日以前に降った雨による負荷の一部分を、少量の 5 日間積算量として捕らえる可能性がある)<sup>4)</sup>。

図 10b の 7 月は、6 月とまったく異なり、5 日間積算の N 負荷は  $20 \text{ mg m}^{-2}(\text{5day})^{-1}$  を越えず、Chl-a の濃度増もまったく見られない。図 4 に示されているように、6 月と 7 月では湿性沈着の総量に大きな差はなく、違いは、6 月には 5 日間単位でまとまった量の沈着があったのに対して、7 月では、それがなかったことである (図 10b)。このことに対する詳細な検討は、今後に譲るとして、定性的には、「降水による N 負荷が Chl-a 濃度の増加に寄与するためには、短期間にある程度以上のまとまった負荷量が必要である」ことを示唆するものと推測できる。



乾性沈着による N 負荷量と Chl-a 濃度増についても同様の整理を行った。図 11 は、横軸に過去 5 日間の積算乾性沈着 N 量を取り、縦軸に Case 4 と Case 2 の Chl-a 濃度の差をプロットしたものである。図は、4 月～9 月のシミュレーション期間の結果を表している。図 11 より、Chl-a 濃度増が最大で  $0.5 \text{ mg m}^{-3}$  とわずかであること、最大積算負荷量も  $30 \text{ mg m}^{-2}(\text{5day})^{-1}$  以下と少ないことである。乾性沈着は、降雨に伴う湿性沈着とは違って、強くはないが、常にほぼ一定の大きさを持って、常時海面に負荷するものと考えられる。図 10b の結果とあわせて考えると、乾性沈着の持つこの特性が、N 成分の沈着総量としては、湿性沈着を上回る大きさが想定される（図 4）ものの、Chl-a 濃度の目だった増加につながらないという結果をもたらすと推測される。

## 5. 結論

三河湾（渥美湾）上のブイを利用して、海上での湿性沈着（ $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ ）および乾性沈着（ $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 、 $\text{NH}_3\text{-N}$ 、 $\text{HNO}_3\text{-N}$ ）の観測を行い、陸上でのそれと比較した。さらに、これらの湿性・乾性沈着による海域への直接の N 負荷を考慮して、三河湾の流動-生態系シミュレーション（2009 年 4 月～9 月）を行い、TN（全窒素）、Chl-a（クロロフィル a）濃度に及ぼす影響を定量的に調べた。得られた結果を以下にまとめる。

- (1) 三河湾上（1 号ブイ）での N 成分の湿性沈着量（ $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ ）はモルベースで三河湾沿岸の豊橋、渥美（田原市）とほぼ同じであった。ただし、組成に違いがあり、豊橋は  $\text{NH}_4^+\text{-N}$  が約 50%強（ $\text{NO}_3^-\text{-N}$  が 50%弱）と大きく、三河湾上では、逆に  $\text{NO}_3^-\text{-N}$  が約 70%を占めた。
- (2) 乾性沈着量は、1 号ブイでの値が豊橋よりもやや小さく、モルベースで豊橋の約 70%であった。アンモニアガスとしての沈着が、相対的に大きく、豊橋では 70%強、1 号ブイでも 50%強を占めた（表 1）。陸上、海上いずれでも、乾性沈着速度が同じとしても、ガス（ $\text{NH}_3$ 、 $\text{HNO}_3$ ）としての沈着が粒子（ $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ ）としての沈着にまさった。モルベースで、ガス/粒子比が、豊橋では 3.7 程度、1 号ブイで 1.7 程度であった。
- (3) 渥美湾への N 負荷量は、2009 年 4 月～9 月の半年で、河川経由を 1 とすると、下水処理場処理水の海域放流が 0.2、湿性沈着が 0.06、乾性沈着が 0.06（ガスおよび粒子の混合物の、種々の気象状態下での平均値として、乾性沈着速度を  $V_d=0.2 \text{ cm s}^{-1}$  と仮定した場合）～0.12（同じく  $V_d=0.5 \text{ cm s}^{-1}$  と仮定した場合）であった。
- (4) 流動-生態系モデルによって、TN 濃度、Chl-a 濃度に対する湿性および乾性沈着による海域への N 負荷の効

果を調べた結果、TN 濃度に対する効果は、最大で  $0.11 \text{ mg l}^{-1}$ （湾中央では、状況により、20%程度の寄与）、Chl-a 濃度に対しては、最大  $2 \text{ mg m}^{-3}$  程度（湾中央で、同じく 10%程度の寄与）と見積もられた。

(5) 湿性沈着による N 負荷が Chl-a 濃度増に対して効果を持つためには、5 日間積算負荷量（負荷強度）がある値を超えることが必要と示唆された。例えば、負荷強度が、常に  $20 \text{ mg m}^{-2}(\text{5day})^{-1}$  以下であった 7 月には Chl-a 濃度の増は見られず、 $40 \text{ mg m}^{-2}(\text{5day})^{-1}$  を超えた 6 月には、湿性沈着による Chl-a 濃度増があった。

(6) 湿性沈着の場合、N の負荷強度が問題であるように、乾性沈着についても、同様の傾向が見られた。すなわち、乾性沈着は、その性格上、負荷強度が  $30 \text{ mg m}^{-2}(\text{5day})^{-1}$  を超えず（図 11）、総負荷量はかなりの規模（図 4 および結論(3)）になるものの、Chl-a 濃度に対する影響は微々たるものであった（図 11）。

以上、湿性および乾性沈着による N 負荷が三河湾（渥美湾）の生態系に及ぼす影響を検討した。月単位で積算した総量でなく、例えば 5 日間の N 負荷量（負荷強度）が問題であることが示唆されたが、バックグラウンドとしての大気経由の N 負荷の存在が、その他の負荷源の影響の現れ方を変える意味があり、生態系モデルの詳細な検討を含めて、今後の課題と考える。

謝辞：貴重な環境データの所在や情報を教えて頂いた愛知県環境調査センター片岩憲成、井上広史の各氏に感謝します。なお、この研究の一部は、2008 年度の三井物産環境基金研究助成（代表、豊橋技術科学大学 井上隆信）を受けました。記して謝意を表します。

## 参考文献

- 1) 愛知県：環境白書，平成 20 年版，pp.76, 2008.
- 2) 西田修三，中谷裕介，嶋田恭佑，入江政安：大阪湾の水質と一次生産に及ぼす降雨の影響，水工学論文集，52 巻，1345-1350, 2007.
- 3) 西田修三，中谷裕介，嶋田恭佑，入江政安：降水の水質特性と大阪湾への栄養塩負荷の影響解析，海岸工学論文集，55 巻，1061-1065, 2008.
- 4) 北田敏廣，佐藤直規，Anggara Kasih, G.A., 齊藤宏： $\text{NO}_3^-$ ・ $\text{NH}_4^+$ の湿性沈着が三河湾の富栄養化に及ぼす影響：流動生態系モデルを用いた評価，地球環境研究論文集，17 巻，133-143, 2009.
- 5) Cole, T.M. and Wells, S.A.: *CE-QUAL-W2: A two-Dimensional Laterally Averaged, Hydrodynamic and Water Quality Model*, Ver. 3.2, U.S. Army Corps of Engineers, 2003.



- 6) Anggara Kasih, G.A. and Kitada, T.: Numerical simulation of water quality response to nutrient loading and sediment resuspension in Mikawa Bay, central Japan: quantitative evaluation of the effects of nutrient-reduction measures on algal blooms, *Hydrological Processes*, Vol. 18, pp. 3037-3059, 2004.
- 7) Anggara Kasih, G.A. and Kitada, T.: Modeling of the role of tideland in eutrophication -reduction in Mikawa Bay, Japan, *Global Environment Engineering Research*, Vol. 16, pp. 41-50, 2008.
- 8) 原 浩子、鈴木 全: 4 段ろ紙法による乾性沈着調査結果および測定法の評価について、愛知県環境調査センター所報、第 30 号、19-26, 2002.
- 9) 大喜多敏一、北田敏廣: 乾性沈着、気象研究ノート、日本気象学会、第 158 号、119-138, 1987.
- 10) 国土交通省中部地方整備局豊橋河川事務所: 豊川時刻水位月表 4 月～9 月 (速報値), 2009.
- 11) 国土交通省中部地方整備局豊橋河川事務所: 豊川水質結果 (速報値), 2009.
- 12) 愛知県環境部 (とりまとめ): 公共用水域調査結果速報値、2009. (2010. 3. 26 受付)
- 13) 愛知県建設部下水道課: 平成 20 年度 愛知の下水道 (資料編), 2008. (2010. 6. 1 受理)
- 14) 気象庁ホームページ、気象統計情報: <http://www.data.kishou.go.jp/kaiyou/db/tide/suisan/>, 2009.
- 15) 喜岡 渉, 堀 孝博, 堀部扶美, 北野利一: 伊勢湾・三河湾における降雨後の物質輸送について, 海岸工学論文集, 55 巻, 1036-1040, 2008.
- 16) 松田和秀: 大気中硫黄および窒素化合物の乾性沈着推計 - 沈着速度推計法の更新 -, 大気環境学会誌, 43 巻, 332-339, 2008.
- 17) 遠藤忠嗣: 中小河川からの水質汚濁負荷量推計手法の開発、平成 21 年愛知県環境調査センター特別枠研究中間報告書、愛知県環境調査センター東三河支所、5-19, 2010.
- 18) Kitada, T., Carmichael, G.R. and Peters, L.K.: Effects of dry deposition on the concentration distribution of atmospheric pollutants within land- and sea-breeze circulations, *Atmospheric Environment*, 20, 1999-2010, 1986.

## Estimation of Wet and Dry Deposition of Gaseous and Particulate Ammonia and Nitric Acid using Buoy in Mikawa Bay, Japan and Evaluation of its Effect on Eutrophication by Fluid Dynamic-Ecological Model

Toshihiro KITADA<sup>1</sup>, Naoki SATO<sup>1</sup>, Wataru IIDA<sup>1</sup>, Takuya HORIO<sup>2</sup> and Hajime ISHIKAWA<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Dept. of Environmental and Life Sciences, Toyohashi University of Technology

<sup>2</sup>Higashi-Mikawa Branch, Aichi Prefectural Environmental Research Center.

Wet and dry deposition of ammonia-N and nitrate-N were directly observed on a buoy in Mikawa Bay, Japan, and were compared with those at nearby coastal monitoring site. No significant difference of wet deposition between the buoy and the coastal site was found. However, dry deposition on the buoy was by about 30% smaller in molar base than that on the land site. Ratio of concentration of gaseous species such as  $\text{NH}_3$  and  $\text{HNO}_3$  to that of particulates of  $\text{NH}_4^+$  and  $\text{NO}_3^-$  was 3.7 at the coastal site and 1.7 on the buoy also in molar base, indicating importance of gaseous species in dry deposition. Based on the 6 months observation from April to September, 2009, N-loading by wet and dry depositions were estimated as about 6% and 6~12% of the loading through river, respectively. Hydrodynamic-ecological model (CE-QUAL-W2) simulations showed the wet and dry deposition can increase Chl-a (chlorophyll-a) by about  $2 \text{ mg m}^{-3}$  which is 10% of the maximum Chl-a concentration during the simulation period. By the simulations, importance of strength of the N-loading rate was demonstrated. In that sense, steady but not strong loading rate of dry deposition may not lead to rapid algae blooming.