

施肥量の増加に伴う全球河川の硝酸輸送量変化

CHANGES IN RIVER NITRATE TRANSPORT OF THE WORLD RESULTED FROM INCREASE IN FERTILIZER USE

須賀可人¹・平林由希子²・鼎信次郎³・沖大幹⁴

Yoshito SUGA, Yukiko HIRABAYASHI, Shinjiro KANAE and Taikan OKI

¹学生会員 工修 東京大学生産技術研究所 (〒153-8505 東京都目黒区駒場四丁目6-1)

²正会員 工博 山梨大学大学院 助手 (〒400-8511 山梨県甲府市武田四丁目3-11)

³正会員 工博 総合地球環境学研究所 助教授 (〒602-0878 京都府京都市上京区丸太町通335)

⁴正会員 工博 東京大学生産技術研究所 助教授 (〒153-8505 東京都目黒区駒場四丁目6-1)

Nitrogenous fertilizer use of the world increased rapidly in the second half of 20th century. This change has been the main cause of human-induced disturbance of global nitrogen cycles. In this paper, we focus on river nitrate transport of the world. Much of river nitrate comes from soil layers of terrestrial areas. Thus, we first estimated nitrate leaching from soil layers using a terrestrial nitrogen cycle model using datasets of nitrogen fertilizer use, climate and soil conditions, and subsequently, simulated river nitrate transport. The terrestrial nitrogen cycle model consists of several flux calculations at daily time scale. A global river channel network data was used in the river nitrate transport simulation. These calculations were carried out using datasets of 1955, 1965, 1975, 1985 and 1995. The result of 1995 was compared with mean nitrate concentration data of several large rivers observed by GEMS/Water and agreed with it reasonably. The transported nitrate at river mouth was then aggregated to see its load to oceans. Finally, comparing each year result, significant impact of fertilizer increase was found.

Key Words : global nitrogen cycles, fertilizer, nitrate, river, model

1. はじめに

窒素は全球規模で循環する物質であり、その循環は人間活動により大きな影響を受けていることが知られてきている。特に大きな原因となっているのは工業的に生産される窒素肥料であり、現在(2002年)の世界合計で年間およそ84.7TgN (Tは 10^{12}) が使用されている。図-1は、国連食料農業機関(FAO)による過去の世界の窒素肥料使用量(FAOSTAT, <http://faostat.fao.org/default.jsp>)である。1961年には11.6TgNであったが現在ではおよそ8倍となっており、急速に増加してきたことが分かる。さらに、農作物による生物学的窒素固定や化石燃料の燃焼などを合わせると、循環への反応性窒素のインプットは自然状態での生物学的固定の総量を上回る規模となっているとされる¹⁾。

しかしながら、全球規模の窒素循環にはいまだ不明な点が多く、循環の各過程を対象とした研究が進められつつ、全体像が明らかとなってきた。本研究は、全球

の陸域から硝酸態として河川、そして海洋へ流出する窒素のモデリングを試みたものである。全球河川の窒素輸送に関する既存の研究^{2), 3)}では硝酸溶脱等は経験式や収支式を用いた粗い時間スケールでの計算がなされているが、広域スケールの窒素循環研究においては、反応プロセスに基づいたモデリングが重要である⁴⁾。そこで本研究では窒素循環の各プロセスを扱った既存の研究を利用しモデルの開発を行った。また、反応プロセスを考慮しており、計算は1日という短い時間間隔で行う必要がある(1ヶ月や1週間といった荒い間隔では計算が発散するグリッドが発生してしまう)が、その分より精緻な計算を試みたものと言えるであろう。

2. 手法

(1) 陸域窒素循環モデル

陸域における窒素循環のフラックスを統合したモデル

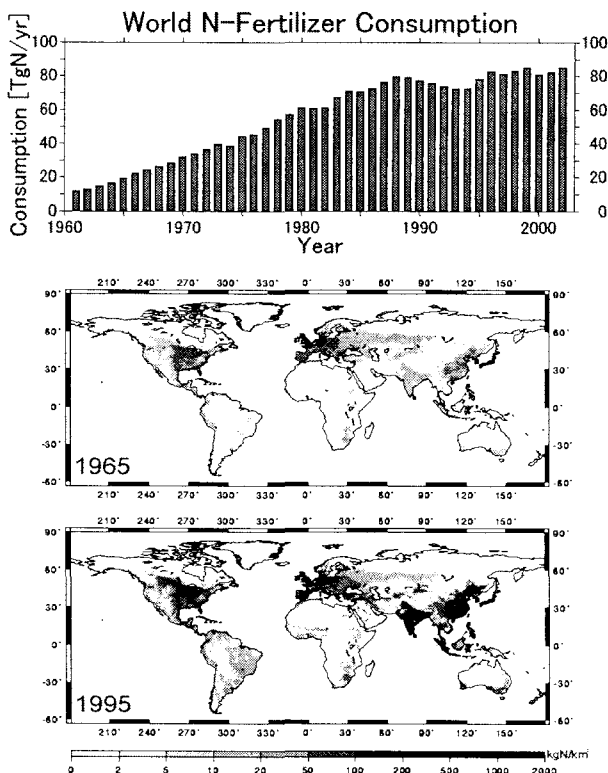


図-1 上図は世界の窒素肥料使用量の推移 (FAOSTATデータからグラフを作成)、中図と下図はそれぞれ1965年と1995年の世界の窒素肥料使用量の分布。

により、土壌層からの硝酸溶脱量を推定した。過去からの変化を見るため、1955年から1995年までの10年ごとのデータを用い、窒素肥料使用量の増加に伴う循環の変化の再現を試みた。

a) モデルのストレージ・フラックス

モデルのストレージやフラックスといった構成はLin et al. (2000)⁵⁾の窒素循環モデルの基本構造と同様としたが、各フラックスの推定方法などにおいては見直しを行った。図-2はモデルのフローを示したものである。以下に、モデルに含まれるストレージ、フラックスと、主な変更点を中心にモデルの概要について述べる。

ストレージは植物内の窒素(N_{veg})、土壌有機窒素(N_{som})、土壌のアンモニア(N_{amm})、土壌の硝酸(N_{nit})の4種類を考える。陸域の窒素循環のモデルにおいては、植物の枯死部分などからなる有機堆積物中の窒素を含める場合もあるが、有機堆積物から土壌有機物への分解過程において含有される窒素はそのまま保持され、また、土壌有機物からの無機化は極めて遅い⁶⁾ことから有機堆積物のストレージによる全体への影響は小さいものと考え、本研究では有機堆積物は土壌有機物と合わせて1つのストレージであると考えて扱う。単位は全て単位面積(1km^2)あたりに換算した量(tN)とする。

フラックス (tN/day) は、生物学的な作用による大気中の N_2 ガスの固定($bfix$)、大気からの窒素の降下($depo$)、植物の枯死した部分であるリターフォール($litf$)、有機態

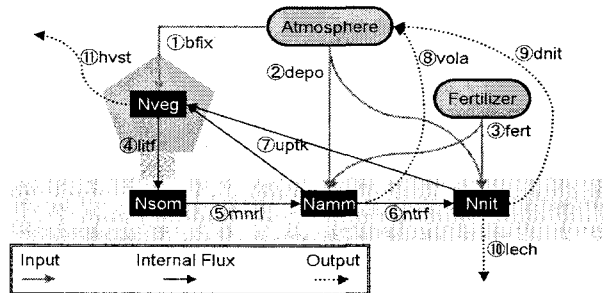


図-2 陸域窒素循環モデルのフロー。グレーの矢印はインプット (①生物学的固定, ②降下, ③施肥) を、黒い矢印は内部循環 (④リターフォール, ⑤無機化, ⑥硝化, ⑦植物による吸収) を、点線の矢印はアウトプット (⑧アンモニア揮散, ⑨脱窒, ⑩溶脱, ⑪収穫) を示す。

表-1 式(1c)に用いられる係数。

	a	b	c	d
Sandy	1.56	12.0	16.0	2.01
Medium	4.82	14.0	16.0	1.39
fine	60.0	18.0	22.0	1.06

窒素の無機化($mnrl$)、アンモニアの硝化($ntrf$)、アンモニアの揮散($vola$)、硝酸の脱窒($dnit$)、硝酸の溶脱($lech$)、植物による無機窒素の吸収($uptk$)、農地においては施肥($fert$)、および、収穫($hvst$)とその残余物($resd$)を考える。

生物学的固定にはCleveland et al. (1999)⁷⁾による植生別の年間の生物学的窒素固定量の推定値を用いた。脱窒は以下の式(1a)-(1c)を用いて求める。(1a)および(1b)より、土壌水分が十分な条件下での脱窒量が計算される⁸⁾。式(1c)は土壌水分の脱窒への影響を関数にしたものである⁹⁾。

$$dnit = f_{dnit,T} f_{dnit,SWI} N_{nit} \quad (1a)$$

$$f_{dnit,T} = 1 - \exp \left[\frac{-0.28 T}{T + \exp(9.93 - 0.312 T)} \right] \quad (1b)$$

$$f_{dnit,SWI} = \frac{a}{b^\alpha}, \quad \alpha = \left(\frac{c}{b(d \cdot SWI)} \right) \quad (1c)$$

式中の、 T は地温($^{\circ}\text{C}$)、 SWI は土壌水分指数である。また、土壌のタイプにより異なる式(1c)中の係数 a , b , c , d は表-1に示す通りである。

植物による吸収は、Michaelis-Mentenの酵素反応の速度論を用いた式(2a)-(2c)によって計算する¹⁰⁾。式(2a)中の N は硝酸およびアンモニアである。 N_{max} は最適条件下での窒素吸収量で $30(\text{tN}/\text{km}^2/\text{yr})$ ¹¹⁾とした。 k はMichaelis-Menten定数である。式(2b)は温度の、式(2c)は土壌水分の関数である。

$$uptk = f_{uptk,T} \frac{N_{max} f_{uptk,SWI} N}{k + f_{uptk,SWI} N} \quad (2a)$$

$$f_{uptk,T} = 2^m, \quad m = \left(\frac{T}{10} \right) \quad (2b)$$

$$f_{uprk,SWI} = 0.90SWI^3 + 0.10 \quad (2c)$$

また、農地のプロセスも新たに導入し、収穫時に農作物中の窒素の80%が持ち出され、残りの20%は農地の土壌有機物のストレージに再び加えられるものとする¹²⁾。耕作期間には農事暦データ¹³⁾を用い、5ヶ月の期間の最終月の最終日に収穫を行うものとした。なお、農事暦では二期作の情報も含まれ、二期作可能とされるグリッドにおいてはそれぞれの期間において同様の計算を行っている。

これらのフラックスをタイムステップごとに計算し、ストレージの変化量を式(3a)-(3d)により求める。

$$\frac{\partial N_{veg}}{\partial t} = bfix + uprk - litf - hvst - resd \quad (3a)$$

$$\frac{\partial N_{som}}{\partial t} = litf - mnrl \quad (3b)$$

$$\frac{\partial N_{amm}}{\partial t} = mnrl + depo_{amm} + fert_{amm} - uprk_{amm} - vola - ntrf \quad (3c)$$

$$\frac{\partial N_{nit}}{\partial t} = ntrf + depo_{nit} + fert_{nit} - dnit - lech - uprk_{nit} \quad (3d)$$

b) 使用したデータ

地温、土壌水分の入力データには、平林ら(2004)¹⁴⁾による陸面モデルMATSIROの20世紀の100年間を対象としたシミュレーションの出力結果を利用している。また、これに合わせ、土壌タイプ、および、植生の分布にはGSWP2(The second GEWEX Global Soil Wetness Project)のデータ¹⁵⁾を用いた。

年間施肥量はFAOSTATデータ(国別値)を用い、国ごとに単位面積あたりの施肥量を一定と仮定し、窒素肥料使用量をグリッドの農地面積に応じて均等に配分した。ただし、農事暦データ¹³⁾にて二期作地帯と判別されるグリッドには2倍の重み付けを施した。1950年代の施肥量データは1960年頃の増加率が10年間で約2倍であることから1965年の使用量の50%と仮定した。また、各年において、各グリッドに占める農地の割合は、Ramankutty and Foley (1999)¹⁶⁾の農地分布の推定値を利用し変化させた。

c) 計算の設定

以上のモデルを全球陸域1°×1°のグリッドに対して適用し、タイムステップを1日に設定して計算を行った。計算は同年のデータを反復して与え、1月から12月を100年分繰り返す、各ストレージが定常状態であることを確認して終了した。

(1) 河川流下シミュレーション

a) 全球河川モデル

土壌層から溶脱した硝酸は全球の河道に流入し、河川を流下するとし、硝酸流下のシミュレーションを行った。ただし、全球の河川流出に対する基底流出の割合が

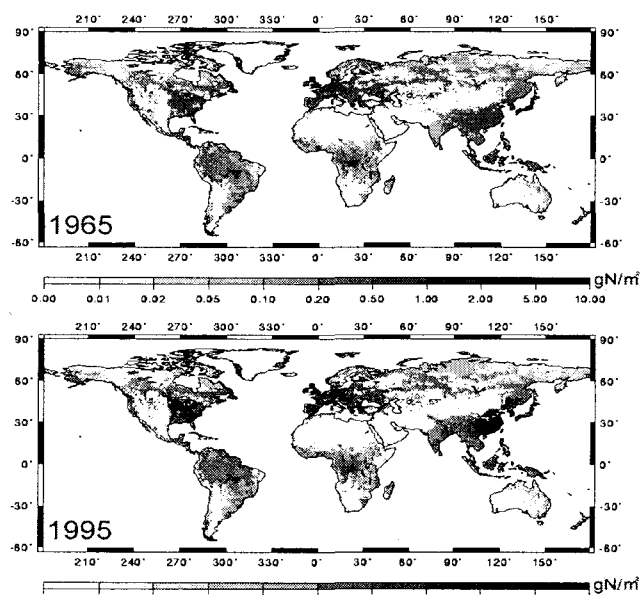


図-3 全球の土壌層からの硝酸溶脱量推定値。上図(1965年)から下図(1995年)で、農業活動の盛んな地域を中心として大幅に増加している。

表-2 各年の硝酸溶脱量(TgN/yr)。

	1955	1965	1975	1985	1995
溶脱量(自然)	21.2	21.3	21.7	21.8	21.0
溶脱量(農地)	7.9	11.2	17.9	23.9	23.3
溶脱量(合計)	29.1	32.5	39.6	45.7	44.3

30%程度あるものとし¹⁷⁾、溶脱量の70%を河道にインプットとして与える。

全球の河川における窒素除去率は地域スケールの研究を参考にして、流域全体のインプットの総量に対して0.3³⁾や0.5¹⁸⁾といった値に設定されているが、この方法では流下途中の河道における窒素フラックスが推定できないため、本研究では0.0025hr⁻¹(≒0.06day⁻¹)を用い、流下に従い逐次的に窒素除去を計算した。これは、大河川においては1日あたりの除去率が数%から10%程度となる¹⁷⁾ことを利用した。

流下には、Oki and Sud, (1998)²⁰⁾による全球河川流路網TRIP(Total Runoff Integrated Pathways)のデータを用いた。これは、全球の1°×1°の各グリッドにおいて河川流下方向が近接する8グリッドの中からひとつ決定されたデータセットであり、流下方向に沿って河口グリッドまで流下するものとする。

b) 計算の設定

シミュレーションの設定は、TRIPを用いた河川流量の計算²¹⁾と同様に流速は0.5m/sで全球一定、時間ステップは1時間とする。また、グリッド内では完全混合を仮定する。計算は次式(4a)、(4b)により表現される。Mは硝酸量(tN)、vは流速(km/h)、lは流下方向のグリッドまでの距離(km)、D_{in}は上流からの流入量(tN/h)、D_{leach}は同一グリッド内の溶脱からのインプット(tN/h)である。

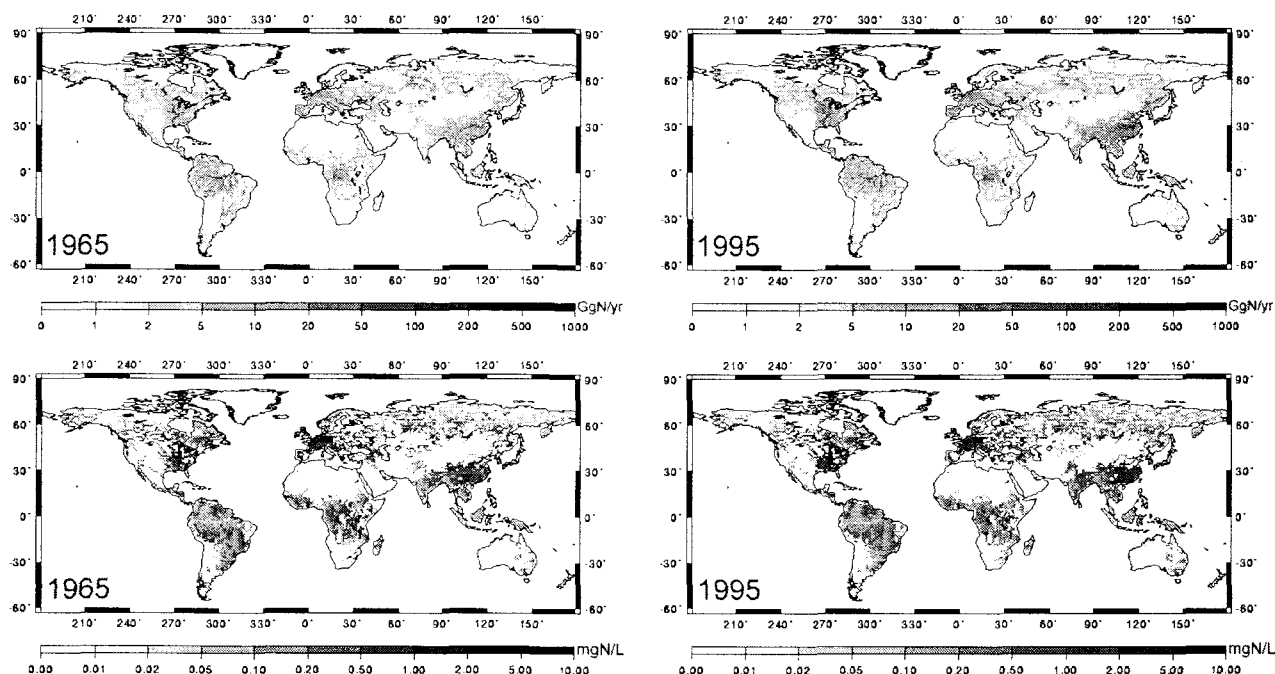


図-4 全球の河川の硝酸輸送量(上)と河川中硝酸濃度の推定値(下)．硝酸輸送量，硝酸濃度も農業活動の盛んな地域に見られ，また，それらの地域の値が左図(1965年)から右図(1995年)にかけて高くなっている．

表-3 河川の硝酸濃度の流域ごとの年間平均値，および，GEMS/Waterによる公表値．

River	Model	GEMS	River	Model	GEMS
Amazon	0.073	0.17	Columbia	0.471	0.11
Mississippi	1.409	1.06	Bramaputra	0.182	0.82
Ob	0.062	0.09	Kolyma	0.078	0.05
Parana	0.232	0.30	Colorado	0.280	0.30
Nile	0.048	0.80	Rio Grande	0.184	0.29
Yenisey	0.102	0.10	Dniepr	1.190	0.20
Lena	0.117	0.09	Xi	1.652	0.60
Amur	0.910	0.12	Godavari	0.313	0.19
Changjiang	0.863	0.77	Pechora	0.120	0.007
Mackenzie	0.139	0.14	Magdalena	0.141	0.25
Volga	0.196	0.62	Neva	0.228	0.29
Zambeze	0.112	0.13	Krishna	0.335	0.16
St. Lawrence	1.953	0.22	Rhein	1.395	3.88
Murrey	0.571	0.03	Elbe	2.635	3.00
Nelson	0.200	0.03	Loire	1.926	1.70
Ganges	0.549	0.86	Narmada	0.140	0.12
Orange	0.052	0.72	Rone	1.028	0.10
Indus	0.203	0.40	Balsas	1.017	0.19
Orinoco	0.106	0.08	Ebro	0.001	1.50
Tocantis	0.090	0.015	Garonne	0.137	1.50
Yukon	0.068	0.12	Tagus Tejo	0.002	0.66
Huanghe	1.697	0.17	Seine	0.003	4.30
			Po	0.279	1.40

$$\frac{\partial M}{\partial t} = -\frac{v}{l}M - k_{riv}M + D_{in} + D_{leach} \quad (4a)$$

$$k_{riv} = 0.0025 \quad [\text{hr}^{-1}] \quad (4b)$$

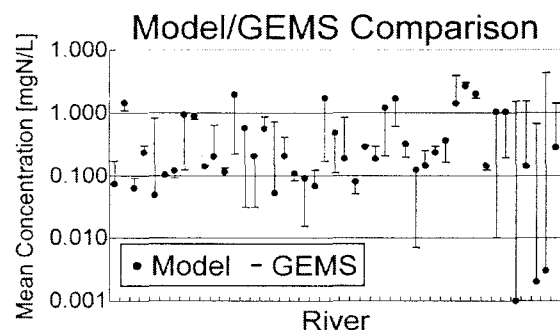


図-5 モデルとGEMS/Waterのデータの流域平均硝酸濃度の比較図．左から右へ河川の流域面積が小さくなっている．

3. 結果および考察

(1) 硝酸溶脱量

2の陸域窒素循環モデルにより推定された硝酸溶脱量の全球分布を，1965年と1995年の分について，図-3に示す．窒素肥料使用量の増加と合わせて硝酸の溶脱量が増加していることが分かる．表-2に各時期における硝酸溶脱量を示す．また，表-2は各年の推定された硝酸溶脱量の変遷を示す．自然植生からの溶脱量は小さな変化があるだけだが，農地からの溶脱量は図-1に示した窒素肥料使用量の増加に合わせて増加していることが分かる．また，図-3からは東アジア，ヨーロッパ，北米などで溶脱量が大幅に増加していることが分かるが，これらの地域は肥料の使用量が大きく増加した地域でもある．

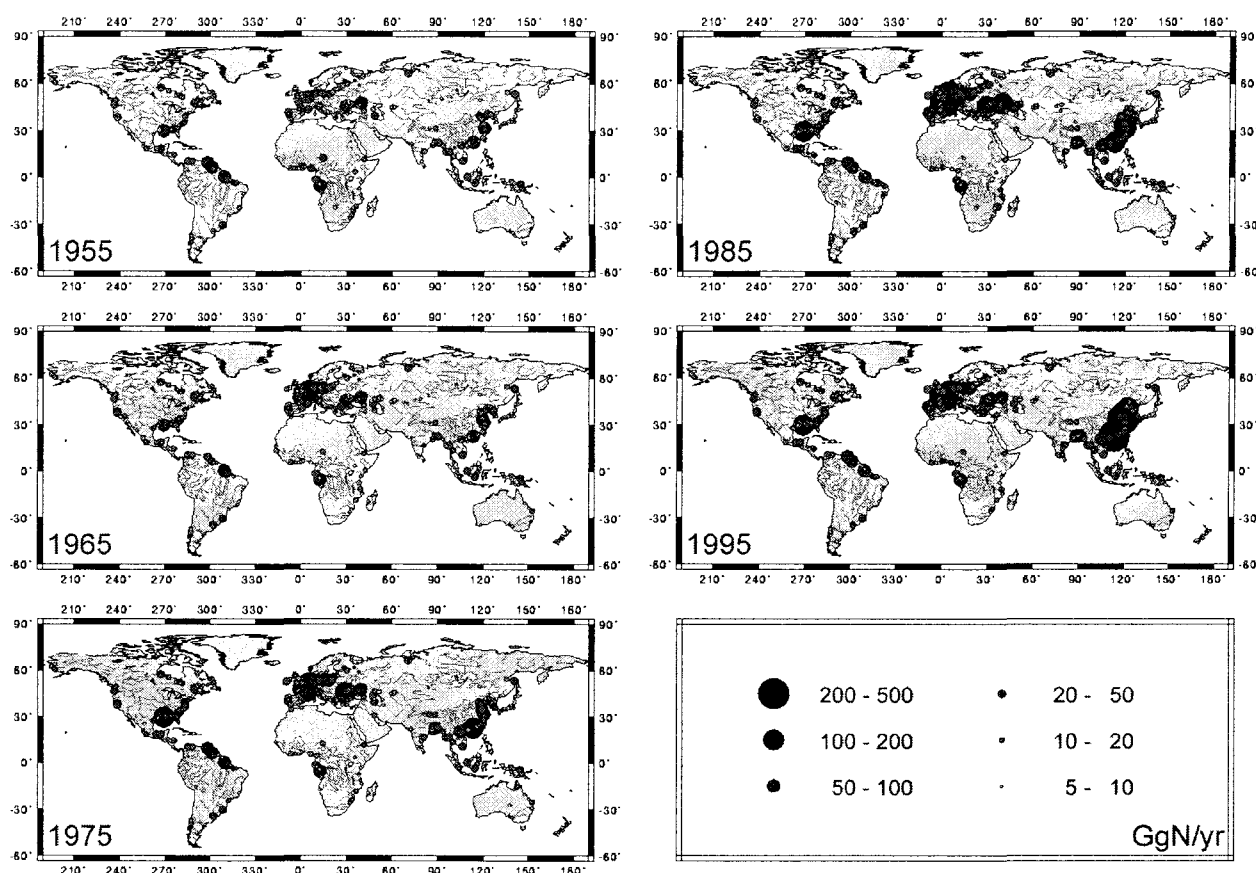


図-6 全球の河川から海洋への硝酸到達量。●で示した位置の河口における到達量を●の大きさで示した。中国東岸やヨーロッパを中心に、その量が過去に比べて増加していることが分かる。

(2) 河川流下シミュレーション

a) 計算の設定

河川による硝酸流下シミュレーションより、全球の各 $1^\circ \times 1^\circ$ グリッドを通過する硝酸の量が計算された。同じくTRIPを用いて計算された河川流量推定値を用い硝酸流下量を濃度に変換し、年平均値の全球分布を示したものが図-4である。ここでも1965年と1995年の間に施肥量の増加した地域における濃度が増加したことが見られる。

推定した硝酸濃度の検証として、代表的な河川における流域平均の硝酸濃度について、観測値との比較を行った。観測値として、国連環境計画(UNEP)による地球環境監視システムの水質監視計画GEMS/Water (Global Environment Monitoring System, Water Programme)のデータを利用した(<http://www.gemswater.org/>において入手可能)。世界の代表的な河川における複数の観測値から各河川の代表的な値を求めたデータである。計算値は、硝酸流下のシミュレーションにより推定された各グリッドにおける年平均濃度に河川流量による重みづけを施した上で河川流域ごとに平均をとった。

表-3は計算値と観測値、および、比較に用いた河川の一覧である。観測値が公表され、TRIPにおいて流域を定義されている河川を全て用いている。これを見ると、いくつかの河川においては値のずれが大きくなっているが、多くの河川ではそれほど大きな誤差はないことが分

かる。なお、表-3中の河川は、左列の上から下、右列の上から下と流域面積順に並んでいる。また、図-5はこれらの河川を流域面積順に横軸にとり、縦軸に濃度を取り計算および観測の差を見たグラフである。流域の大きな河川では両者の差が小さく、流域面積の狭い河川では大きな差が目立っている。この原因は、流域順位下位の河川については $1^\circ \times 1^\circ$ のTRIPでは数グリッドで表現されるため、誤差が大きくなりやすいことが考えられる。例えば、Seine川では9グリッド、Po川では7グリッドである。

今回の推定では全球に対して様な手法を用い、流域ごとのパラメータのチューニング等を行っていないことを考慮すれば、過去からの変化や全球的な分布の推定には十分な精度を持つと考えられる。

b) 硝酸の河口への到達量

1年間で河口に到達した量を合計し、その量ごとに分類してプロットしたものが図-6である。1955年には大河川の河口において50-100GgNの到達量が認められる程度であるが、1960年代、1970年代に北米やヨーロッパの河川で到達量が大きく増加し、さらに、1980年代、1990年代には東アジアにおいて到達量が急増している。全体の傾向としては、北米、ヨーロッパ、東アジアといった農業の盛んな地域における到達量が、施肥量の少なかった1950年代に比べて飛躍的に増加している。また、北米やヨーロッパでは早い時期から窒素肥料の影響が見られる

が、東アジアでは1980年代から影響が大きくなっている。

4. 結論

20世紀後半に急増した窒素肥料の影響が河川の硝酸輸送に及ぼす影響を、窒素循環モデルと河川流下シミュレーションにより推定した。また、観測値との比較からモデルの妥当性を検証し、全球の大河川、あるいは過去からの変化を示すために必要な精度を十分に持つことが確認できた。そして、1955年から1995年までの計算を行うことで、窒素循環の変化と肥料影響の程度や空間的な広がりが示され、また、プロセスを組み込み、時間スケールを細かくしたモデルが有用であることが示された。

今後は、観測値とのずれが大きな地域について詳しく検証を行い、また河川流下中の脱窒と温度の関係など、現在は含まれていないものの影響が大きいと考えられる要素を加えるなどしてゆくとともに、プロセスを組み込んだモデルであることの利点を活用して、温度や土壌水分などのフォーシングデータの設定を変えることや、施肥量等に関するシナリオを用いることで、気候変動に対する応答を調べる、あるいは将来の河川の窒素輸送量を推定するなどといった応用を考えてゆきたい。

謝辞：本研究はJST/CREST「人間活動を考慮した世界水循環水資源モデル」、総合地球環境学研究所5-1プロジェクトおよび科学技術進行調整費「世界の水問題解決に資する水循環科学の先導」の成果の一部である。ここに記して謝意を表します。

参考文献

- 1) Galloway J. N., Schlesinger W. H., Levy II H., Michaels A. and Schnoor J. L.: Nitrogen fixation: Anthropogenic enhancement-environmental response. *Global Biogeochemical Cycles*, Vol.9 (2), pp.235-252, 1995.
- 2) Green P. A., Vorosmarty C. J., Meybeck M., Galloway J. N., Peterson B. J. and Boyer E. W.: Pre-industrial and contemporary fluxes of nitrogen through rivers: a global assessment based on typology. *Biogeochemistry*, Vol.68, pp.71-105, 2004.
- 3) Van Drecht G., Bouwman A. F., Knoop J. M., Beusen A. H. W. and Meinardi C. R.: Global modeling of the fate of nitrogen from point and nonpoint sources in soils, groundwater, and surface water. *Global Biogeochemical Cycles*, Vol. 17 (4), 1115, doi:10.1029/2003GB002060, 2003.
- 4) Donner S. D., Kucharik C. J. and Foley J. A.: Impact of changing land use practices on nitrate export by the Mississippi River. *Global Biogeochemical Cycles*, Vol. 18, GB1028, doi:10.1029/2003GB002093, 2004.
- 5) Lin B.L., Sakoda A., Shibasaki R., Goto N. and Suzuki M.: Modelling a global biogeochemical nitrogen cycle in terrestrial ecosystems, *Ecological Modelling*, Vol.135, no.1, pp.89-110, 2000.
- 6) Knops J. M. H., Bradley K. L. and Wedin D. A.: Mechanisms of plant species impacts on ecosystem nitrogen cycling. *Ecology Letters*, Vol.5, pp.454-466, 2002.
- 7) Cleveland C. C., Townsend A. R., Schimel D. S., Fisher H., Howarth R. W., Hedin L. O., Perakis S. S., Latty E. F., Von Fischer J. C., Elseroad A. and Wasson M. F.: Global patterns of terrestrial biological nitrogen (N_2) fixation in natural ecosystems. *Global Biogeochemical Cycles*, Vol.13 (2), pp.623-645, 1999.
- 8) Mitchell G., Griggs R. H., Benson V. and Williams J.: EPIC Documentation., <http://brcsun0.tamu.edu/epic/index.html>, 1998.
- 9) Parton W. J., Mosier A. R., Ojima D. S., Valentine D. W., Schimel D. S., Weier K. and Kulmala A. E.: Generalized model for N_2 and N_2O production from nitrification and denitrification. *Global Biogeochemical Cycles*, Vol.10 (3), pp.401-412, 1996.
- 10) Raich J. M., Rastetter E. B., Melillo J. M., Kicklighter D. W., Steudler P. A., Peterson B. J., Grace A. L., Moore B. and Vorosmarty C. J.: Potential net primary productivity in South America : application of a global model. *Ecological Applications*, Vol.1 (4), pp.399-429, 1991.
- 11) 堤利夫編: 森林生態学, 朝倉書店, 1989.
- 12) Smil V.: Nitrogen in crop production: An account of global flows. *Global Biogeochemical Cycles*, Vol.13 (2), pp.647-662, 1999.
- 13) 花崎直太, 鼎信次郎, 沖大幹: 貯水池操作が全球の河川流量に与える影響の評価. 水工学論文集, Vol.48, pp.463-468, 2004.
- 14) 平林由紀子, 鼎信次郎, 沖大幹, 竹内邦良: 20世紀の世界陸域水文量の長期変動. 水工学論文集, 投稿中.
- 15) Dirmeyer P. A., Gao X. and Oki T.: The Second Global Soil Wetness Project science and implementation plan. *IGPO Publication Series, GEWEX News*, No.37, pp.65, 2002.
- 16) Ramankutty N. and Foley J. A.: Estimating historical changes in global land cover: Croplands from 1700 to 1992. *Global Biogeochemical Cycles*, Vol.13 (4), pp.997-1027, 1999.
- 17) Zektser I. S., and Loaiciga H. A.: Groundwater fluxes in the global hydrologic cycle: past, present and future. *Journal of Hydrology*, Vol. 144, pp.405-427, 1993.
- 18) Seitzinger S. P. and Kroeze C.: Global distribution of nitrous oxide production and N inputs in freshwater and coastal marine ecosystems. *Global Biogeochemical Cycles*, Vol.12 (1), pp.93-113, 1998.
- 19) Alexander R. B., Smith R. A. and Schwarz G. E.: Effect of stream channels size on the delivery of nitrogen to the Gulf of Mexico. *Nature*, Vol.403, pp.758-761, 2000.
- 20) Oki T. and Sud Y. C.: Design of total runoff integrating pathways (TRIP) - A global river channel network. *Earth Interactions*, 2, 1998.
- 21) Oki T., Nishimura T. and Dirmeyer P.: Assessment of annual runoff from land surface models using Total Runoff Integrating Pathways (TRIP). *Journal of Meteorological Society of Japan*, Vol.77 (1B), pp.235-255, 1999.

(2004. 9. 30 受付)