

1991~2000年の広島湾海水中における親生物元素の時空間的変動, 特に植物プランクトン態C:N:P比のレッドフィールド比からの乖離*

山本 民次**・橋本 俊也**・辻 けい子**・松田 治**・樽谷 賢治**†

Spatial and Temporal Variations of Biophilic Elements in Hiroshima Bay, Japan, during 1991-2000, with Special Reference to the Deviation of Phytoplanktonic C:N:P Ratio from the Redfield Ratio

Tamiji Yamamoto, Toshiya Hashimoto, Keiko Tsuji,
Osamu Matsuda and Kenji Tarutani

1991~2000年の広島湾海水中の親生物元素(C, N, P, Si)の時空間的変動をまとめた。Chl *a* 濃度は北部海域表層でブルームに相当する高い値がしばしば観測された。表層溶存態無機リン(DIP)濃度は1990年代前半の春季~夏季にしばしば検出限界以下となり、同時にDIN:DIP比およびDSi:DIP比が高い値を示した。広島湾のTN:TP比は太田川水中のTN:TP比に比べて低く、広島湾において脱窒が盛んであることが示唆された。植物プランクトン態のC:N比が10年間横這いであったのに対して、N:P比およびC:P比は1990年代前半に低い値を示し、次第に上昇して1998年にピークとなり、2000年にはレッドフィールド比に戻った。これらの親生物元素の時間的・空間的変動に関し、リン・窒素の負荷削減対策との関連について考察した。

We described the spatial and temporal variations of biophilic elements (C, N, P and Si) in Hiroshima Bay, the Seto Inland Sea, Japan, during 1991-2000. There was no year to year trend in chlorophyll *a* concentration. However, depletion of surface dissolved inorganic phosphorus (DIP) in spring and summer in early 1990s was obvious, often at concentration less than the detection limit, giving extremely high DIN:DIP and DSi:DIP ratios. The TN:TP ratio in seawater of Hiroshima Bay was low compared to that in the Ohta River water which empties into the bay, suggesting denitrification process occurs in Hiroshima Bay. In contrast to stable phytoplanktonic-C:N ratio during this decade, phytoplanktonic-N:P and C:P showed large deviation from the Redfield ratio, low in the early 1990s, high in 1998, and then equivalent to the Redfield ratios in 2000. The spatial and temporal variations in these biophilic elements were discussed in relation to the reduction measure of phosphorus and nitrogen.

キーワード: 親生物元素, 広島湾, 窒素, リン, 植物プランクトン, ケイ素

1. はじめに

経済の高度成長にともない、1970年代には瀬戸内海では富栄養化が進行したため、瀬戸内海環境保全特別措置法(瀬戸内法)が施行され、陸域から負荷される物質の化学的酸素要求量(COD)に関する総量規制が行われるようになった。しかしながら、CODの削減だけでは、窒

素やリンを利用して海域の植物プランクトンが増殖するいわゆる内部生産は減らないため、1980年からはリン化合物の負荷削減指導が行われてきた。環境庁の集計では、瀬戸内海に対するリンの発生負荷量は、第1次削減から第3次削減を経て確実に減少してきている(瀬戸内海環境保全協会, 1999¹⁾)。また、1995年からの第4次削減指導には、瀬戸内法の一部改正という形で窒素負荷の削減が盛り込まれた。淀川水系による陸域からの負荷量が圧倒的に多い大阪湾では、リンの流入負荷量減少にともない、海水中の溶存態無機リン(DIP)濃度が有意に低下してきていることや(城, 1991²⁾)、全リン(TP)の濃度も低下傾向にあることが分かっている(Yamamoto *et al.*, in press³⁾)。

* 2000年10月25日受領, 2001年7月12日受理

** 広島大学生物生産学部

† 現所属: 独立行政法人水産総合研究センター 瀬戸内海区水産研究所

連絡先: 山本民次, 広島大学生物生産学部

〒739-8528 東広島市鏡山1-4-4

E-mail: tamiyama@hiroshima-u.ac.jp

リンの負荷量削減により、リービッヒの最少律から期待されるとおり、瀬戸内海の植物プランクトンのバイオマスは減少した。このことは、赤潮の発生件数が1976年のピーク時の約300件から最近ではその1/3の約100件程度にまで減少したことが証明している(瀬戸内海環境保全協会, 1999¹⁾)。しかしながら、発生種には遷移が見られ、これまでに出現しなかった新しい有害・有毒種の発生が今日の問題となってきており、それに対する対策を我々は指摘してきた(山本, 1999⁴⁾; 山本ほか, 1999⁵⁾)。即ち、リンのみを削減したことによるN:P負荷比の変化が植物プランクトンの種の遷移を引き起こし、ひいては生態系全体が変化してしまうことを見逃せなかったことを警告してきた。

植物プランクトン態の元素組成があまり変化せず一定(レッドフィールド比, C:N:P=106:16:1)に保たれるというのは、生物海洋学における重大な発見である(Redfield, 1934⁶⁾; Fleming, 1940⁷⁾; Redfield *et al.*, 1963⁸⁾)。外洋植物プランクトンの元素組成がレッドフィールド比になるのは、溶存態無機窒素:溶存態無機リン(DIN:DIP)比が16:1の深層水がソースとなっているからであり、他方、深層水に対する有機物ソースのほとんどが表層で生産された(レッドフィールド比を持つ)植物プランクトンによるからである。一方、内湾・沿岸域では、河川水の流入、降雨、隣接海域との海水交換等による栄養塩類の供給は無視できず、これらによる負荷は外洋と違って非定常なので、植物プランクトン群集もそれに呼応してさまざまな時間スケールで遷移する。その際に、植物プランクトン態C:N:P比がレッドフィールド比からどれくらい乖離するかは興味ある研究課題である。

広島湾は多くの島に囲まれ、瀬戸内海の中でも閉鎖性の強い海域であり、太田川などからの人為的汚濁物質の流入により富栄養化しやすい海域である。本研究では広島湾を対象として1991~2000年の10年間に行った観測結果から、窒素、リンおよびケイ素などの親生物元素の季節・年変動を示し、特にこれまでの法的措置にとまなうリンと窒素の負荷削減の影響が植物プランクトンの元素組成にどのように反映したかについて考察する。

2. 方 法

広島湾内外のStn. 1~11において、1991~2000年の10年間にわたり年4回各季節ごと(1, 4, 8, 10月)に観測を行った(Fig. 1)。ただし、1993年夏~1994年春の4回は欠測である。各測点ではバンドン採水器を用いて鉛直的に深度別(0, 5, 10, 20, 海底上2m)採水を行い、以下のように用途に応じたフィルターを用いてそれ

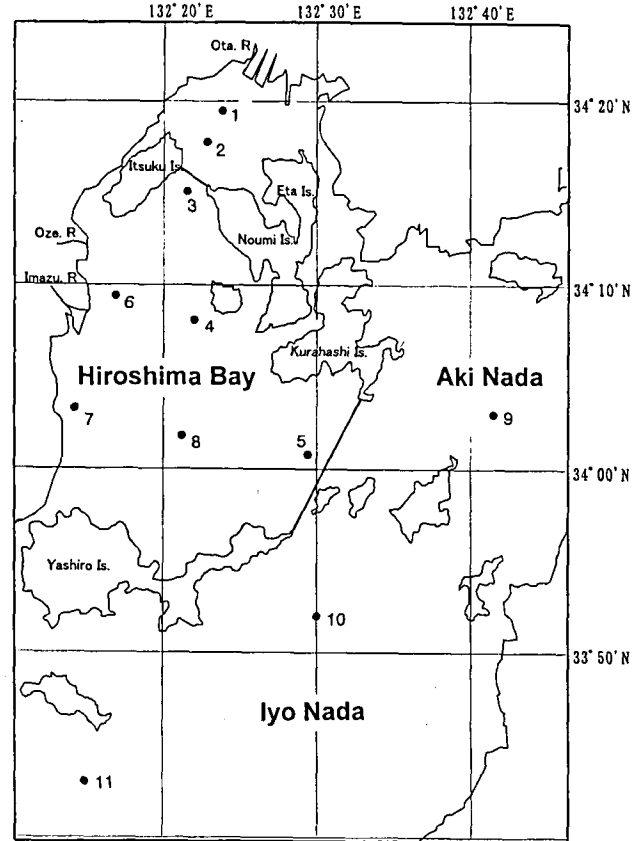


Fig. 1 Map showing sampling stations located in and around Hiroshima Bay, Japan. The bay is divided into northern (Stns. 1 and 2) and southern (Stns. 3-8) areas, in addition to outer area (Stns. 9-11).

ぞれ分析を行った。すべてのろ過は植物プランクトン細胞を破壊しないよう、30 mmHg以下の圧力で吸引した。粒状態リン(PP)は、試水をあらかじめ煮沸処理(80°C, 5 min)をしたメンブランフィルター(Millipore HA, ポアサイズ0.45 μm)で濾過し、フィルターを過塩素酸加圧分解(1 atm, 150°C, 5 hrs; 角皆・乗木, 1989⁹⁾)後、モリブデンブルー法(Strickland and Parsons, 1972¹⁰⁾)で測定した。また、ろ液については、溶存態無機リン(DIP)、溶存態珪素(DSi)をモリブデンブルー法(日本海洋学会, 1990¹¹⁾)で、アンモニア態窒素(NH₄-N)をインドフェノール法(Sasaki and Sawada, 1980¹²⁾)で、硝酸態+亜硝酸態窒素(NO₃+NO₂-N)を銅・カドミウム還元法(Bendschneider and Robinson, 1952¹³⁾)で測定した。ここで、溶存態無機窒素(DIN)=NH₄-N+NO₃-N+NO₂-Nとした。

さらに、溶存態全窒素(DTN)を微量全窒素測定装置(N-200, 住化分析センター)を用いて高温触媒酸化法(Sugimura and Suzuki, 1988¹⁴⁾; Maita and Yanada, 1990¹⁵⁾)で、溶存態全リン(DTP)を過硫酸カリウムを加えて加圧分解(2 atm, 110°C, 30 min)した後、モリ

ブデンプルー法で測定した(Koroleff, 1983¹⁶⁾)。ここで、溶存態有機窒素(DON) = DTN - DINとし、溶存態有機リン(DOP) = DTP - DIPとした。

分析した親生物元素濃度について、各測点毎に表層から底層まで台形計算により積算値を求め、その値を水深で除して水柱の平均濃度を算出した。地理的な観点から、広島湾北部(厳島、江田島と能美島に囲まれた海域でStn. 1と2)、広島湾南部(屋代島と倉橋島に囲まれた海域でStn. 3～8)、および湾外(伊予灘と安芸灘のStn. 9～11)として海域区分し、これらの海域ごとに各物質の平均値(算術平均)を算出した。

粒状態炭素(PC)と粒状態窒素(PN)は、試水300 mlをあらかじめ450°Cで2時間焼いたグラスファイバー・フィルター(Whatman GF/F)でろ過し、ろ過の最後に0.6 N硫酸ナトリウム2 mlで塩素を洗い流し、乾燥後、CHNコーダー(ヤナコ, MT-3型またはMT-5型)で測定した。ここで、全窒素(TN) = DTN + PN, 同様に全リン(TP) = DTP + PPとした。

クロロフィルa (Chl a)は、試水をポアサイズ0.45 μmのメンブランフィルター(Sartorius社製, 硝酸セルロースフィルター)で濾過した後、90%アセトン水溶液で抽出して分光吸光度計(日立220A)を用いて吸光度で測定した(Jeffrey and Humphrey, 1975¹⁷⁾)。また、観測回ごとに広島湾内の測点(北部と南部)のデータを用いてChl aに対してPC, PN, PPをプロットして回帰直線を当てはめ、その傾きを用いて、植物プランクトン態C, N, P量(Phyto-C, N, P)を見積もった(山本ほか, 1999⁹参照)。ただし、得られた直線の傾きが統計的に有意でない場合(Z検定 $p > 0.05$)は採用しなかった。さらに、それぞれの比をとり(Phyto-C: N, N: P, C: P), レッドフィールド比(Redfield, 1934⁶⁾)と比較した。

今回の解析で得られたすべての時間変動についてはKendallの順位相関を施したが(Campbell, 1983¹⁸⁾)、本文中にとくに記載の無い項目については統計的に有意でなかったものである。

3. 結果および考察

3.1 Chl a および栄養塩類濃度の季節・年変動

観測期間を通して、Chl a濃度は夏に高く、冬に低い傾向が見られた(Fig. 2)。北部海域での季節変動は顕著であったが、南部と湾外では常に $5 \mu\text{g l}^{-1}$ 以下であり、変動は小さかった。北部海域の表層では植物プランクトンのブルームを示す高い値($> 20 \mu\text{g l}^{-1}$)が得られた。

水柱内平均DIP濃度は春季に低く、秋季または冬季に高くなる傾向を示した(Fig. 3)。特に、春季～夏季には湾内の多くの観測点の表層において検出限界($0.01 \mu\text{g}$

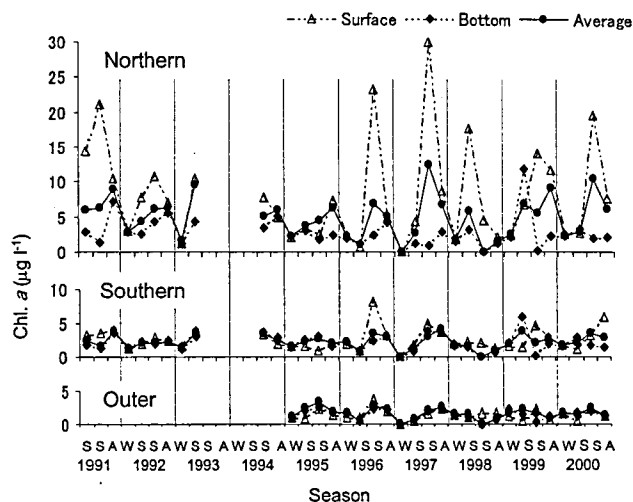


Fig. 2 Variations of chlorophyll a concentration in northern and southern Hiroshima Bay and outer area during 1991-2000. Surface (0 m), bottom (B-2 m) and water column average.

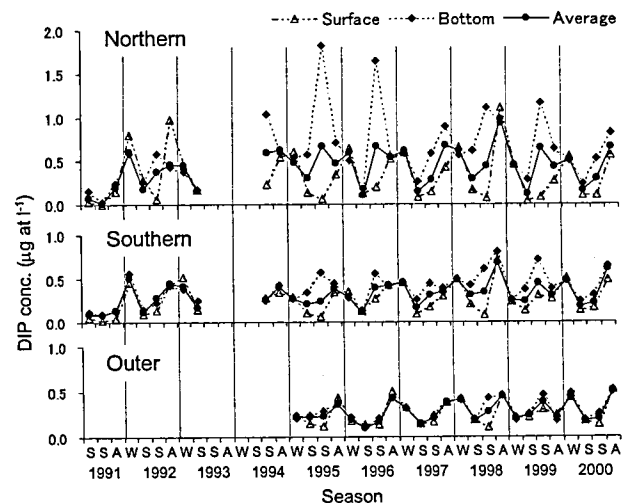


Fig. 3 Variations of dissolved inorganic phosphorus (DIP) concentration in northern and southern Hiroshima Bay and outer area during 1991-2000. Surface (0 m), bottom (B-2 m) and water column average.

at l^{-1}) 以下になることが多かった。また、解析期間全体を通して、水柱あたり平均値は北部と南部において有意な増加傾向を示した(Kendall's rank correlation test, $p < 0.05$)。湾外では、同様の統計処理を行ったが、有意差は認められなかった。

DINもDIPと同様に春季に低く、その後冬季に向けて次第に高くなる傾向が見られた(Fig. 4)。また、DINもDIPと同様に水柱あたり平均値は解析期間を通して有意な増加傾向が見られた(Kendall's rank correlation test, $p < 0.05$)。北部海域表層における1996～1998年のブルーム時(Fig. 2)には、DIN濃度は高いままであった(Fig. 4)。これは植物プランクトンのブルーム時にDIP

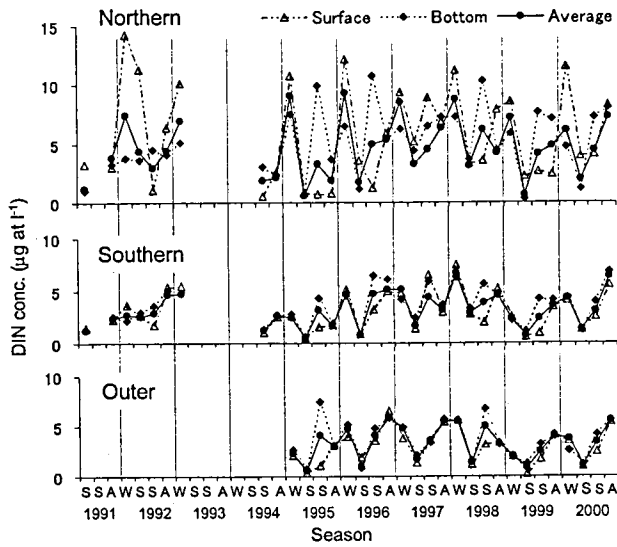


Fig. 4 Variations of dissolved inorganic nitrogen (DIN) concentration in northern and southern Hiroshima Bay and outer area during 1991-2000. Surface (0 m), bottom (B-2 m) and water column average.

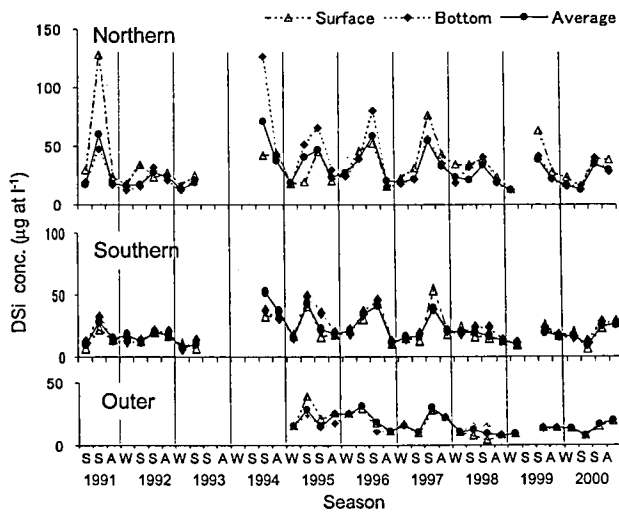


Fig. 5 Variations of dissolved silicon (DSi) concentration in northern and southern Hiroshima Bay and outer area during 1991-2000. Surface (0 m), bottom (B-2 m) and water column average.

が枯渇することと比べると対照的である。

DSi 濃度は DIP や DIN とは異なり、秋季から冬季にかけて低く、夏季に高い傾向が見られた (Fig. 5)。広島湾に注ぐ太田川河川水中の DSi 濃度の季節変動は小さいことから (山本, 未発表), 冬季には流量が少なくなって負荷量が減少し, ケイ藻類の取り込みによって DSi の濃度が低下するものと推察される。

これらの無機栄養塩類のモル比を取ると, 1990年代前半には DIN : DIP 比, DSi : DIP 比が北部や時に南部の表層で極端に高い値を示すことがある (Figs. 6, 7)。これは Fig. 3 から分かるように, 表層水中で DIP の枯渇が

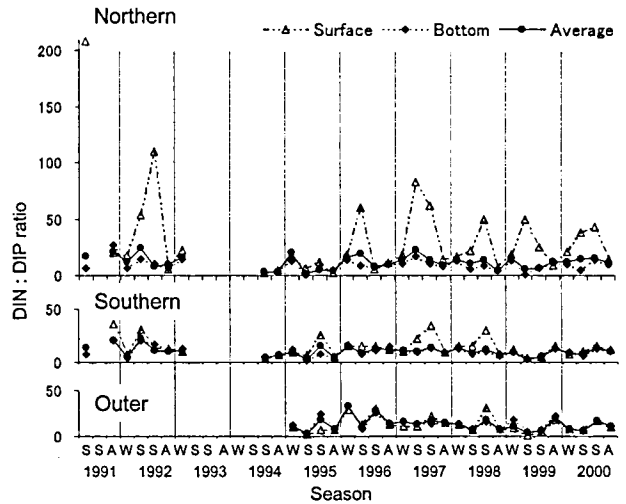


Fig. 6 Variations of DIN : DIP ratio in northern and southern Hiroshima Bay and outer area during 1991-2000. Surface (0 m), bottom (B-2 m) and water column average.

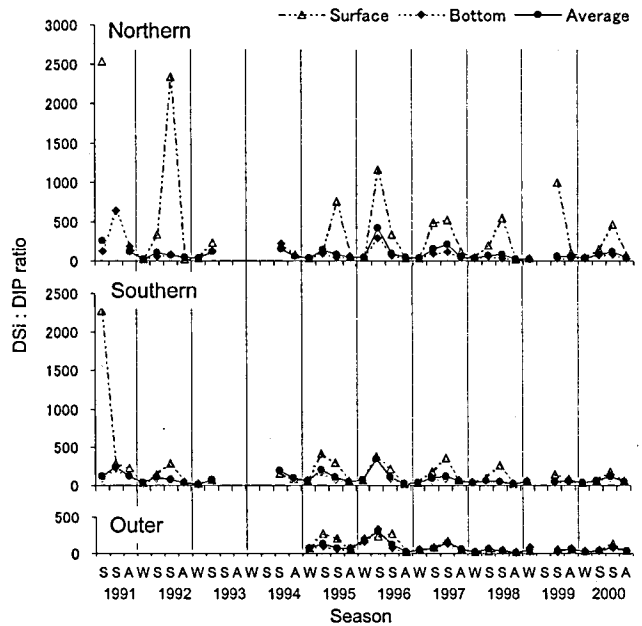


Fig. 7 Variations of DSi : DIP ratio in northern and southern Hiroshima Bay and outer area during 1991-2000. Surface (0 m), bottom (B-2 m) and water column average.

顕著であったことによるものである。しかしながら, 1990年代後半には DIP 濃度の上昇により (Fig. 3), DIN : DIP 比, DSi : DIP 比の極端に高い値は見られなくなった。ここで, リンの削減指導が行われたことによって海域の DIP 濃度の低下が期待されたが, 観測結果は逆であり, 海域におけるリン循環の複雑さを示すとともに, 今回の現場観測だけからそれらのメカニズムを解釈することは困難である。一方, DIN : DSi 比は水柱平均で 0 ~ 0.6 程度の範囲で変動し, その増減はそれぞれの要素の季節変動を反映して, 春~夏に小さく, 秋~冬に大きくなる傾向を示した (Fig. 8)。

もそのような配慮が必要であろう。

参 考 文 献

- 1) 瀬戸内海環境保全協会 (1999): 平成10年度瀬戸内海の実態調査報告書, 資料集. 環境庁水質保全局 (監修), 163 pp.
- 2) 城 久 (1991): 大阪湾の開発と海洋環境の変遷. 沿岸海洋研究ノート, 29, 3-12.
- 3) Yamamoto, T., O. Matsuda and T. Hashimoto (in press): Chemical environment of the Seto Inland Sea, Japan. In, Red Tides, ed. T. Okaichi, Kluwer, Amsterdam.
- 4) 山本民次 (1999): 渦鞭毛藻赤潮発生の抑制に関する一考察—窒素とリンの同時制御の重要性—. 瀬戸内海, 17, 44-45.
- 5) 山本民次・橋本俊也・松田 治・多田邦尚 (1999): 瀬戸内海における植物プランクトン態N:P比とその変動要因. 水産海洋研究, 63, 6-13.
- 6) Redfield, A. C. (1934): On the proportions of organic derivatives in sea water and their relation to the composition of plankton. p. 177-192, James Johnstone Mem. Vol., Liverpool.
- 7) Fleming, R. H. (1940): The composition of plankton and units for reporting population and production. Proc. Sixth Pacific Sci. Cong. California 1939, 3, 535-540.
- 8) Redfield, A. C., B. H. Ketchum and F. A. Richard (1963): The influence of organisms on the composition of sea-water. p. 26-77, In, The Sea, vol. 2, ed. M. N. Hill, Interscience, New York.
- 9) 角皆静男・乗木新一郎 (1989): 海洋化学. pp. 252-256, 西村雅吉 (編), 産業図書出版, 東京.
- 10) Strickland, J. D. H. and T. R. Parsons (1972): A Practical Handbook of Sea Water Analysis, 2nd ed. Fish. Res. Bd. Canada, p. 167-311.
- 11) 日本海洋学会 (1990): 海洋観測指針. 気象庁 (編), 東京. 428 pp.
- 12) Sasaki, K. and Y. Sawada (1980): Determination of ammonia in estuary. Bull. Jap. Soc. Sci. Fish., 46, 319-321.
- 13) Bendschneider, K. and R. J. Robinson (1952): A new spectrophotometric method for the determination of nitrite in sea water. J. Mar. Res., 11, 87-96.
- 14) Sugimura, Y. and Y. Suzuki (1988): A high temperature catalytic oxidation method of non-volatile dissolved organic carbon in seawater by direct injection of liquid samples. Mar. Chem., 24, 105-131.
- 15) Maita, Y. and M. Yanada (1990): Vertical distribution of total dissolved nitrogen and dissolved organic nitrogen in seawater. Geochem. J., 24, 245-254.
- 16) Koroleff, F. (1983): Total organic nitrogen. p. 162-173, In, Methods of Seawater Analysis, eds. Grasshoff, K., M. Ehrhardt and K. Kremling, Verlag Chemie, Weinheim.
- 17) Jeffrey, S. W. and G. F. Humphrey (1975): New spectrophotometric equations for determining chlorophylls *a*, *b*, *c*₁ and *c*₂ in higher plants, algae and natural phytoplankton. Biochem. Physiol. Pflanzen, 167, 191-194.
- 18) Campbell, R. C. (1983): Statistics for Biologists, 2nd ed. 生物系のための統計学入門. 石居 進 (訳), 培風館, 東京. 346 pp.
- 19) Raymont, J. E. G. (1980): Plankton and Productivity in the Oceans. Pergamon Press, Oxford, 489 pp.
- 20) Dugdale, R. C. and F. P. Wilkerson (1998): Silicate regulation of new production in the equatorial Pacific upwelling. Nature, 391, 270-273.
- 21) Valiela, I. (1995): Marine Ecological Processes. Springer, New York, 686 pp.
- 22) 山本民次 (1998): 植物プランクトン. p. 144-174. 沿岸の環境圏, 平野敏行 (編), フジ・テクノシステム, 東京.
- 23) 山本民次・北村智頭・松田 治 (1996): 瀬戸内海に対する河川流入による淡水, 全窒素および全リンの負荷. 広島大学生物生産学部紀要, 35, 81-104.
- 24) Kim, D.-H., O. Matsuda and T. Yamamoto (1997): Nitrification, denitrification and nitrate reduction rates in the sediment of Hiroshima Bay, Japan. J. Oceanogr., 53, 317-324.
- 25) Law, C. S., A. P. Rees and N. J. P. Owens (1991): Temporal variability of denitrification in estuarine sediments. Estuar. Coast. Shelf Sci., 33, 37-56.
- 26) Seitzinger, S. P. (1988): Denitrification in freshwater and coastal marine ecosystems: Ecological and geochemical significance. Limnol. Oceanogr., 33, 702-724.
- 27) 山本民次・芳川 忍・橋本俊也・高杉由夫・松田 治 (2000): 広島湾北部海域におけるエスチュアリー循環過程. 沿岸海洋研究, 37, 111-118.
- 28) Harrison, P. J., H. L. Conway, R. W. Holmes and C. O. Davis (1977): Marine diatoms grown in chemostats under silicate or ammonium limitation. III. Cellular chemical composition and morphology of *Chaetoceros debilis*, *Skeletonema costatum*, and *Thalassiosira gravida*. Mar. Biol., 43, 19-31.
- 29) Rhee, G.-Y. (1978): Effects of N:P atomic ratios and nitrate limitation on algal growth, cell composition, and nitrate uptake. Limnol. Oceanogr., 23, 10-25.
- 30) Cembella, A. D., N. J. Antia and P. J. Harrison (1984): The utilization of inorganic and organic phosphorus compounds as nutrients by eukaryotic microalgae: A multidisciplinary perspective: Part 2. CRC critical Rev. Microbiol., 11, 13-81.
- 31) Lewitus, A. J. and D. A. Caron (1990): Relative effects of nitrogen or phosphorus depletion and light intensity on the pigmentation, chemical composition, and volume of *Pyrenomonas salina* (Cryptophyceae). Mar. Ecol. Prog. Ser., 61, 171-181.
- 32) 山口峰生 (1993): 植物プランクトンの増殖に及ぼすN:P比の影響, 1. 渦鞭毛藻類. p. 11-19, 吉田陽一 (編), 水域の窒素:リン比と水産生物, 恒星社厚生閣, 東京.
- 33) Yamamoto, T. and H. Tsuchiya (1995): Physiological responses of Si-limited *Skeletonema costatum* to silicate supply with salinity decrease. Bull. Plankton Soc. Japan, 42, 1-17.
- 34) Schindler, D. W. (1977): Evolution of phosphorus limitation in lakes. Science, 195, 260-262.
- 35) 広島県農政課水産漁港課 (1982-1998): 広島県の赤潮.
- 36) Smayda, T. J. (1990): Novel and nuisance phytoplankton blooms in the sea: Evidence for a global epidemic. p. 29-40, In, Toxic Marine Phytoplankton, eds. Graneli, E., B. Sundström, L. Edler and D. M. Anderson, Elsevier, New York.