

# 太田川河川水中のリンおよび窒素濃度の長期変動—植物プランクトン種の変化を引き起こす主要因として

山本民次<sup>†1</sup>, 石田愛美<sup>1</sup>, 清木 徹<sup>2</sup>

## Long-term Variation in Phosphorus and Nitrogen Concentrations in the Ohta River Water, Hiroshima, Japan as a Major Factor Causing the Change in Phytoplankton Species Composition

Tamiji YAMAMOTO<sup>1</sup>, Manami ISHIDA<sup>1</sup> and Tohru SEIKI<sup>2</sup>

Long-term variations of nitrogenous and phosphorus compounds were analyzed for their concentrations in the Ohta River water along with the amount of freshwater discharge using 23 years data set during 1976–1998. Both dissolved inorganic phosphorus (DIP) and total phosphorus (TP) showed significant decreasing trend from 1980 to 1998. On the other hand, all nitrogenous compounds such as ammonia (NH<sub>4</sub>), nitrite (NO<sub>2</sub>), nitrate (NO<sub>3</sub>), dissolved inorganic nitrogen (DIN) and total nitrogen (TN) showed significant decrease since 1995. These trends were judged to be the effects of the measures for the reduction of these elemental loads conducted by the Japanese Environment Agency. The DIN : DIP and TN : TP ratios, therefore, increased from 21 to 30 and from 19 to 25 during 1980–1998. While the freshwater discharge did not show any long-term trend, phosphorus and nitrogen loads, which are estimated from multiplication of the concentration by the amount of the freshwater discharge, showed significant decrease: 66% and 55% decreases for DIP and TP in comparison between the averages during 1980–1982 and during 1996–1998, and 31% and 18% decreases for DIN and TN in comparison between the averages during the entire analytical period and during 1995–1998, respectively. On the other hand, DIP/TP and DIN/TN were in the constant levels during the whole investigated period. The red-tide forming species appear to have abilities either to store phosphorus in the cellular pool or to utilize dissolved organic phosphorus (DOP). It is concluded that phosphorus reduction measure could have changed the species composition in the bay to those can be advantageous to survive even in such a low DIP condition.

**Key words:** Hiroshima Bay, nitrogen, Ohta River, phosphorus, phytoplankton, red tide

### はじめに

瀬戸内海では1965年頃から産業活動が活発化したことにより、工場や家庭からの廃水量が増大し、海域の富栄養化が進行した。このような事態に対し、1979年には瀬戸内海環境保全特別措置法が施行された。これにより、富栄養化対策として日平均排水量50 m<sup>3</sup>以上の特定事業場から排出される化学的酸素要求量(COD)の総量規制がかけられるとともにリンの削減指導が始められた。これは1980年からの5カ年を第1次として、5年ごとに見直されながら

現在に至っている。リンの削減指導内容としては、生活系に対する浄化槽の設置助成や洗剤の無リン化、産業系に対する立ち入り調査や自主分析と文書報告、その他系に対する適正指導(例えば畜産業に対しては糞尿の農地還元や堆肥化、魚類養殖業に対しては餌料の適正使用や投餌方法の改善など)などである。また、1995年の第4次削減からは、リンに加えて窒素も同時に削減指導対象となり、さらに2000年の第5次からはリン・窒素ともにCODと同様の総量規制が導入され、特定事業所に対する規制は強くなった(岩城, 2001)。これらリンおよび窒素の削減指導は当然のことながら河川水中のリン・窒素濃度の低下につながると考えられる。

広島湾北部海域に対する太田川(一級河川)の流入の影響は大きい。山本ほか(2000)の集計によると、北部海域に流入する淡水の98%が河川水であり、そのうちの90%

2001年10月30日受付, 2002年2月20日受理

<sup>1</sup> 広島大学生物生産学部

〒739-8528 東広島市鏡山1-4-4

† tamiyama@hiroshima-u.ac.jp

<sup>2</sup> 広島県保健環境センター

〒734 広島県南区皆実町1-6-29

が太田川からの供給によるものである。また、彼らによると、北部海域の湾内水の滞留時間は約27日であり（ただし、分散項は含まず）、単純に北部海域の容積を河川水流入量で割って求められる淡水の平均滞留時間が約290日であるので、実際には広島湾北部海域の海水交換にはエスチュアリー循環の寄与が大きいと結論している。しかし一方で、広島湾北部海域に対する河川経由のリンと窒素の負荷量は、広島湾全体に対して1990~1992年のデータから見積もられた平均値（山本ほか、1996）をもとに概算するとそれぞれ  $2.0 \text{ g P m}^{-2} \text{ yr}^{-1}$  ( $146 \text{ mg P m}^{-3} \text{ yr}^{-1}$ ) と  $29 \text{ g N m}^{-2} \text{ yr}^{-1}$  ( $1800 \text{ mg N m}^{-3} \text{ yr}^{-1}$ ) で、太田川の水質が北部海域の植物プランクトンの種組成、ひいては高次生物も含めた生態系の構造を決める要因として影響が大きいことを示唆している。

そこで、本研究では太田川河川水中の窒素・リン濃度に関する既存のデータを整理し、広島湾北部海域に対するこれらの負荷量の長期変動を明らかにすることを目的とした。これによって、政府環境庁（現環境省、以下環境省）が行ってきたこれまでの対策・指導の効果が太田川河川水中の窒素・リン濃度の変化として明確に現れていることが明らかとなったので報告する。また、これら窒素・リンの負荷量の変化と広島湾における赤潮発生種との関係について議論する。もし栄養塩の人為的負荷量の長期変動がエスチュアリーの自然植物プランクトンの群集構造に変化を与えているとすれば、それは壮大な現場実験そのものである。このような観点から、今回のような長期に渡るモニタリング・データの解析は今後の沿岸海域の管理のあり方を考える上で有用なものとなるであろう。

#### 集計解析方法

太田川の統計値に関して公表データとして取得可能な1976~1998年の23年間を対象に、以下のような集計解析を行った。流量年表（建設省河川局、1978~2000）から矢口第一観測所（Fig. 1）で測定されているデータから毎月の平均流量を引用し、経年変動と季節変動を検討した。

一方、公共用水域水質データ（広島県保健環境センター、1977~1999）から、大芝水門、御幸橋、仁保橋の3測点（Fig. 1）における全窒素（TN）、全リン（TP）、溶存態無機窒素（DIN）、溶存態無機リン（DIP）濃度の値を引用し、これらの平均値を計算した。大芝水門は太田川上流部に位置し、太田川が支流に分岐する前の測点であるので、河川水の物質濃度を代表させるのに都合が良いが、下流の市街部の影響が反映されていないことを憂慮し、御幸橋と仁保橋の2測点を加えて、それらの平均値をここでは採用した。ただし、これらの観測はいずれも年4回、2、5、8、11月に行われているため、観測月の前後の月についても同じ値を適用した。従って、欠測の場合には3カ月のプランクとなる。これらの濃度に毎月の流量を乗ずることで、海域に対する太田川からの負荷量とみなした。ちなみに、これらの3測点

の平均とすることで、（期間中の平均で）大芝水門のみの平均と比べて、TNは約1.1倍、TPは約1.2倍、 $\text{NH}_4$ は約1.3倍、 $\text{NO}_3$ は約0.66倍、 $\text{NO}_2$ は約1.1倍、 $\text{PO}_4$ は約1.3倍となり、 $\text{NO}_3$ を除いて高めの値となった。これは先に期待したように、下流の市街部の影響が反映されたものと考えられる。 $\text{NO}_3$ のみ値が低くなった原因の解釈は難しいが、川底の酸化・還元境界層での脱窒作用の寄与が大きいものと想像される。

また、それぞれのパラメータの経年変動および長期のトレンドを見るために、毎月のデータの前後6ヶ月ずつ合計13データの移動平均を計算した。さらに、各態窒素：リン比やTPあるいはTN中に占めるDIPあるいはDINの割

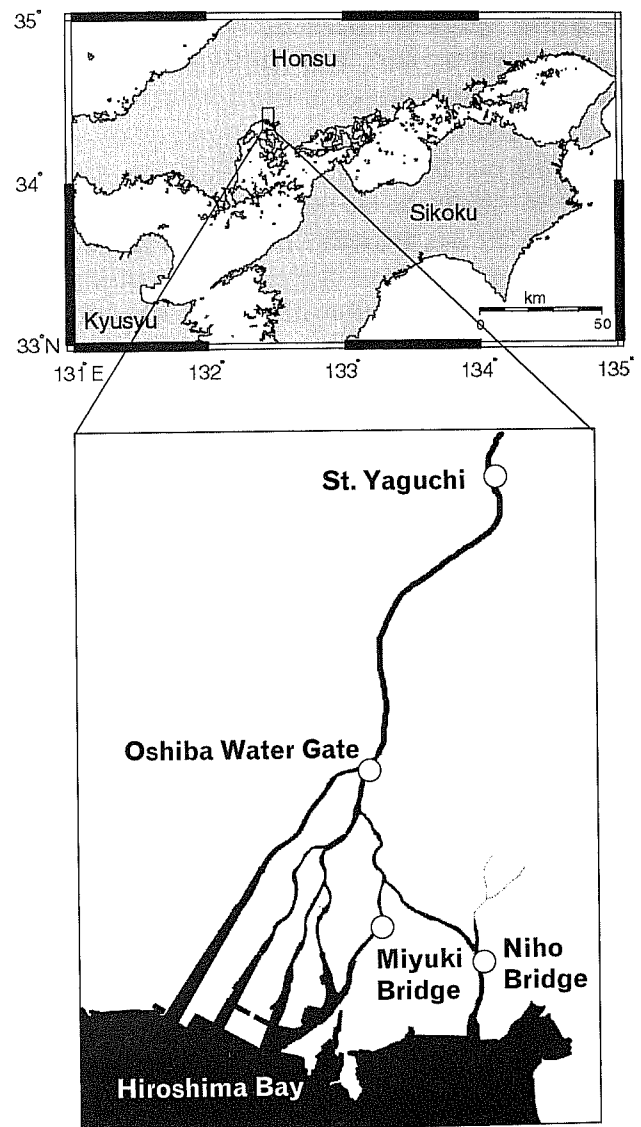


Figure 1. Map showing the sampling stations in the Ohta River. Station Yaguchi for the monitoring of the river discharge, and Oshiba Water Gate, Miyuki Bridge and Niho Bridge for the monitoring of phosphorus and nitrogen compounds.

合などについても計算した。ただし、まれに DIP や DIN 濃度が TP や TN 濃度を上回るようなデータセットが現れるが、この場合は分析誤差によるものとみなし、DIP:TP 比を 1.0 とした。また、公共用水域の観測はいずれも平水時に行われているため、洪水時の掃流として流出するものは含まれていないので（例えば、田中, 1991）、広島湾に流出する窒素・リン量としては過小評価であることは注意を要する。このような問題はあるが、ここでは絶対量を詳しく議論するのではなく、同じ条件でサンプリングされた結果を集計することで、それらの長期変動のトレンドを見ることを目的としている。また、ここでは濃度と負荷量について年 4 回の観測値をそれぞれの季節の代表値とみなし、それぞれの季節について 23 年分を集計して平均値と標準偏差を求め、季節変動を議論した。

流量と負荷量について、流量 ( $Q$ ) と負荷量 ( $L$ ) を経験モデル式 (和田, 1990),

$$L = cQ^n \quad (c, n \text{ は定数}),$$

にあてはめて整理した。  $n > 1$  で流量とともに濃度が増加する洗い出し型、  $n < 1$  で希釈型、  $n = 1$  で濃度一定型と判断される。

先に述べたように太田川から広島湾北部海域に負荷されるリン・窒素量は多く、同海域の植物プランクトン群集構造に影響を与える大きな要因の一つであると考えられる。そこで、「広島県の赤潮」（広島県農政部水産漁港課, 1982-1999）から 1981-1998 年に広島湾（屋代島と倉橋島で囲まれた海域）で発生した赤潮について分類群ごとに集計し直し、太田川から負荷される窒素・リンの長期変動と比較して、それらの発生の動向と原因について議論した。

## 結果

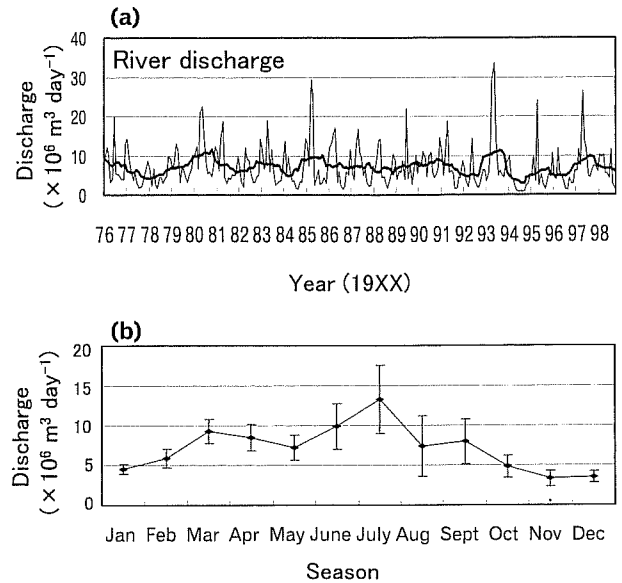
### 1. 太田川河川水の流量およびリン・窒素の変動

以下には、太田川河川水の流量およびリン・窒素濃度について、それらの長期変動を中心に述べるとともに、季節変動についても付加情報として与える。

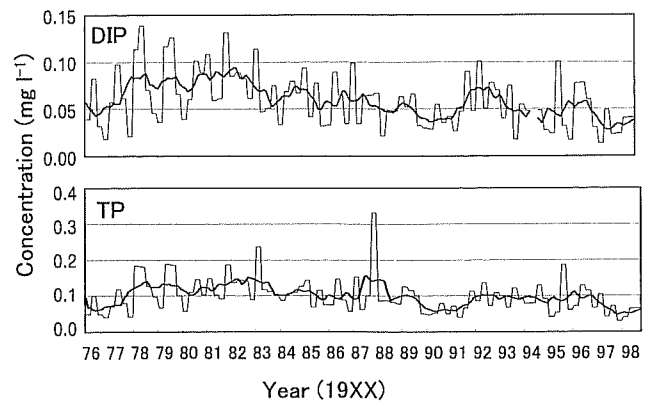
#### 1-1. 流量

解析期間中（1976-1998 年）の毎月の平均流量は  $0.79 \sim 33.5 \times 10^6 \text{ m}^3 \text{ day}^{-1}$  の範囲で変動し、平均  $7.14 \times 10^6 \text{ m}^3 \text{ day}^{-1}$  であった (Fig. 2a)。1993 年 7, 8 月の大雨による一時的な増加や ( $29.7 \times 10^6 \text{ m}^3 \text{ day}^{-1}$  と  $33.5 \times 10^6 \text{ m}^3 \text{ day}^{-1}$ )、1994 年 8-11 月の特異的な渇水（この間の平均約  $0.85 \times 10^6 \text{ m}^3 \text{ day}^{-1}$ ）を除くと、経年変動には一定の傾向は見られなかった。

太田川河川水の流量のピークは 3, 7, 9 月の 3 回見られ、それぞれ、春の雪解け、梅雨、秋雨に相当すると思われ、梅雨時が  $13.2 \times 10^6 \text{ m}^3 \text{ day}^{-1}$  で最高である (Fig. 2b)。ただし、標準偏差の幅から分かるように、実際には 3-9 月の間は年ごとのバラツキが大きく、有意な差とは言えない。一方、とくに 11-1 月の間は標準偏差が小さく、流量は比較的少



**Figure 2.** (a) Long-term and (b) seasonal variations in the Ohta River discharge observed at Station Yaguchi for 23 years from 1976 to 1998 (cited from Japan River Association, 1978-2000). The smooth connected curve shows the running average of 13 months.

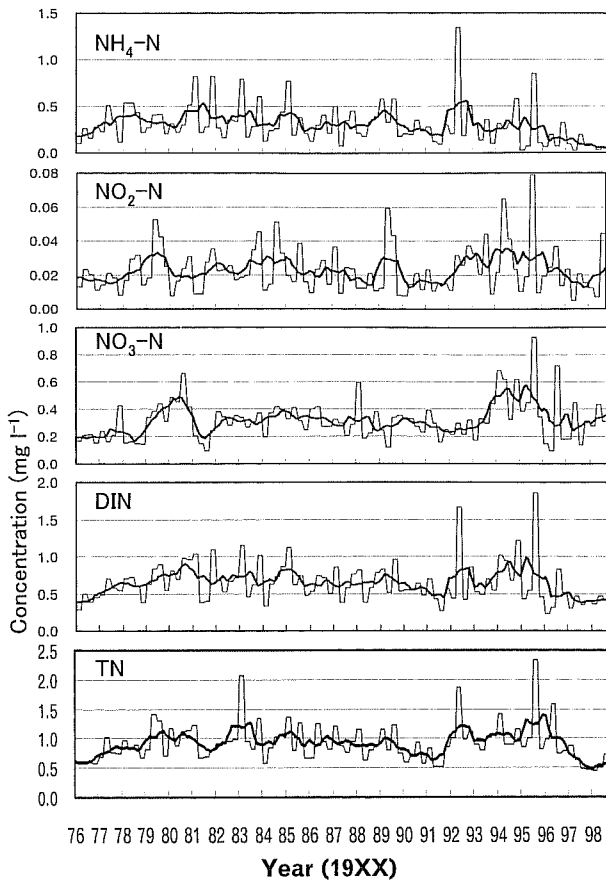


**Figure 3.** Long-term variations in dissolved inorganic phosphorus (DIP) and total phosphorus (TP) concentrations in the Ohta River water for 23 years from 1976 to 1998 (cited from Hiroshima Prefecture, 1977-1999). Average of the three stations (see Fig. 1). The smooth connected curve shows the running average of 13 months.

なく安定していることが分かる。

#### 1-2. リン及び窒素濃度

DIP 濃度は 1970 年代後半に増加傾向が見られるものの、1982 年から 1998 年にかけて有意な減少傾向がみられた（移動平均に対する Kendall の順位相関、 $\tau = -0.569$ ,  $p < 0.0001$ ) (Fig. 3)。仮に 1980-1982 年（減少前の 3 年間）と 1996-1998 年（最近の 3 年間）の DIP 濃度の平均値を比較すると、それぞれ  $0.083 \text{ mg P l}^{-1}$  および  $0.043 \text{ mg P l}^{-1}$  であ



**Figure 4.** Long-term variations in ammonia ( $\text{NH}_4$ ), nitrite ( $\text{NO}_2$ ), nitrate ( $\text{NO}_3$ ), dissolved inorganic nitrogen (DIN) and total nitrogen (TN) concentrations in the Ohta River water for 23 years from 1976 to 1998 (cited from Hiroshima Prefecture, 1977–1999). Average of the three stations (see Fig. 1). The smooth connected curve shows the running average of 13 months.

り、48%の低下となる。TP濃度もDIP濃度と同様に有意な減少傾向が見られ（移動平均に対する Kendall の順位相関、 $\tau = -0.505$ ,  $p < 0.0001$ ）、同様に1980~1982年と1996~1998年の平均値では、 $0.12 \text{ mg P l}^{-1}$  と  $0.072 \text{ mg P l}^{-1}$  の違いが見られた (Fig. 3)。また、全解析期間中の平均値はDIPが  $0.061 \text{ mg P l}^{-1}$ 、TPが  $0.10 \text{ mg P l}^{-1}$  であった。

各態窒素は1970年代後半にやや増加した後、1991年まで横這い状態であったが、1992年から1995年に一旦増加し、1995年からは明らかに減少に転じている (Fig. 4)。1995年以降の値の移動平均に対する Kendall の順位相関をとると、 $\text{NH}_4$  では  $\tau = -0.817$  ( $p < 0.0001$ )、 $\text{NO}_2$  では  $\tau = -0.426$  ( $p < 0.0001$ )、 $\text{NO}_3$  では  $\tau = -0.547$  ( $p < 0.0001$ )、DIN と TN では  $\tau = -0.635$  ( $p < 0.0001$ ) である。また、とくに近年の濃度低下が顕著であった  $\text{NH}_4$ 、DIN、TN について全解析期間中の平均値と1995~1998年の平均値をくらべると、 $\text{NH}_4$  で0.31に対して  $0.18 \text{ mg N l}^{-1}$ 、DINで0.65に対し  $0.57 \text{ mg N l}^{-1}$ 、TN

で0.93に対して  $0.90 \text{ mg N l}^{-1}$  の違いがある。

「方法」で述べたように、リンと窒素の測定は年間4回5、8、11、2月に行われているので、これらのデータを集計して季節変動を検討した。DIP、TP濃度は年間を通してそれぞれ平均  $0.065 \pm 0.039$ 、 $0.10 \pm 0.04 \text{ mg P l}^{-1}$  と一定で有意な季節変動は見られなかった (Table 1)。各態窒素のうち、 $\text{NH}_4$ 、 $\text{NO}_3$ 、DIN、TNについても年間を通じてほぼ一定で季節変動は見られず、平均値と標準偏差はそれぞれ  $0.31 \pm 0.23$ 、 $0.32 \pm 0.16$ 、 $0.65 \pm 0.29$ 、 $0.93 \pm 0.32 \text{ mg N l}^{-1}$  であった (平均値は前出)。ただし、 $\text{NO}_2$  では11月に  $0.033 \pm 0.014 \text{ mg N l}^{-1}$  と高く、5月に  $0.017 \pm 0.008 \text{ mg N l}^{-1}$  と低い傾向がみられた (Table 1)。

### 1-3. リン及び窒素負荷量

濃度に河川水流量を乗じて求めたDIPおよびTP負荷量においても、濃度と同様に1980年以降、有意な減少傾向が見られた（移動平均に対する Kendall の順位相関、それぞれ、 $\tau = -0.591$ ,  $p < 0.0001$ ,  $\tau = -0.581$ ,  $p < 0.0001$ ) (Fig. 5)。また1980~1982年の平均値と1996~1998年の平均値では、DIPで0.64から  $0.22 \text{ ton P day}^{-1}$  へ66%の減少、TPで0.98から  $0.44 \text{ ton P day}^{-1}$  へ55%の減少が見られた。ちなみに全解析期間中の平均はそれぞれ  $0.40$  および  $0.68 \text{ ton P day}^{-1}$  であった。

$\text{NH}_4$  負荷量は、その濃度と同様に、有意な減少傾向が見られた ( $\tau = -0.638$ ,  $p < 0.0001$ )。解析期間中の平均値と1995~1998年の平均値を比べると  $2.1$  と  $0.78 \text{ ton N day}^{-1}$  で63%の減少である (図には示していない)。一方、 $\text{NO}_2$ 、DIN、TN負荷量は1995~1998年において有意な減少傾向は見られなかったが、解析期間中の平均値とそれら4年間の平均値を比べてみると、それぞれ  $0.15$  と  $0.12 \text{ ton N day}^{-1}$  (20%減)、 $4.5$  と  $3.1 \text{ ton N day}^{-1}$  (31%減)、 $6.5$  と  $5.3 \text{ ton N day}^{-1}$  (18%減) であり、減少割合は  $\text{NH}_4$  と同程度であった (DINとTNについてのみ Fig. 5 に示した)。  $\text{NO}_3$  負荷量については一定の変動傾向は見られず、解析期間中の平均値は  $2.3 \text{ ton N day}^{-1}$  であった (図には示していない)。

DIP、TP負荷量は流量に影響を受け、2、5、8月はそれぞれ  $0.27 \sim 0.34$ 、 $0.49 \sim 0.55 \text{ ton P day}^{-1}$  で一定しているが、11月にはそれぞれ  $0.19 \pm 0.10$ 、 $0.28 \pm 0.15 \text{ ton P day}^{-1}$  と低かった (Table 1)。各態窒素 ( $\text{NH}_4$ 、 $\text{NO}_3$ 、DIN、TN) 負荷量はリン負荷量と同様に流量に依存した変動傾向がみられ、2、5、8月はそれぞれ  $1.2 \sim 1.8$ 、 $1.7 \sim 2.1$ 、 $3.3 \sim 3.9$ 、 $4.6 \sim 5.9 \text{ ton N day}^{-1}$  と比較的一定であるが、11月にはそれぞれ  $0.86 \pm 0.57$ 、 $0.83 \pm 0.53$ 、 $1.8 \pm 0.96$ 、 $2.5 \pm 1.3 \text{ ton N day}^{-1}$  と低い。  $\text{NO}_2$  負荷量は2、5、8、11月で有意な差が無く  $0.096 \pm 0.062$  と一定で季節変動は見られなかった。これは他の項目と異なり、11月に濃度が高いことが ( $0.033 \pm 0.014 \text{ mg N l}^{-1}$ ) 流量が小さいことと相殺した結果である。

### 1-4. 窒素・リン元素比と溶存無機物の存在割合

DIN:DIP比、TN:TP比は  $8.9 \sim 77$ 、 $6.3 \sim 46$  と変動幅は大き

**Table 1.** Seasonal average and standard deviation of various forms of phosphorus and nitrogen in the Ohta River water.

	May	Aug	Nov	Feb
Concentration (mg l <sup>-1</sup> )				
DIP	0.058±0.031	0.061±0.033	0.067±0.022	0.053±0.028
TP	0.098±0.049	0.10±0.042	0.11±0.036	0.093±0.063
DIN	0.64±0.28	0.61±0.28	0.68±0.32	0.67±0.24
TN	0.98±0.35	0.92±0.34	0.95±0.37	0.86±0.22
NH <sub>4</sub>	0.32±0.24	0.27±0.27	0.32±0.17	0.33±0.19
NO <sub>3</sub>	0.31±0.14	0.31±0.13	0.33±0.20	0.32±0.11
NO <sub>2</sub>	0.017±0.008	0.023±0.016	0.033±0.014	0.019±0.011
Load (ton day <sup>-1</sup> )				
DIP	0.34±0.21	0.31±0.26	0.19±0.099	0.27±0.18
TP	0.55±0.32	0.54±0.44	0.28±0.15	0.49±0.32
DIN	3.9±2.5	3.4±3.2	1.8±0.96	3.3±1.5
TN	5.9±3.5	5.2±4.8	2.5±1.3	4.6±2.7
NH <sub>4</sub>	1.8±1.4	1.2±1.0	0.86±0.57	1.5±0.77
NO <sub>3</sub>	2.1±1.6	2.1±2.6	0.83±0.53	1.7±1.1
NO <sub>2</sub>	0.094±0.050	0.11±0.11	0.084±0.040	0.093±0.049
Molar ratio				
DIN:DIP	27±9.3	28±16	22±6.3	33±14
TN:TP	25±9.0	22±7.8	20±5.0	24±8.1
Proportion				
DIP/TP	0.59±0.15	0.58±0.14	0.65±0.072	0.60±0.19
DIN/TN	0.66±0.17	0.68±0.19	0.71±0.13	0.77±0.18

いものの、両者とも1982年以降、有意な上昇傾向が見られた（リンの削減指導が行われるようになった1980年以降の移動平均に対する Kendall の順位相関では、それぞれ  $\tau=0.375$ ,  $p<0.0001$ ,  $\tau=0.473$ ,  $p<0.0001$ ) (Fig. 6a). 1980~1982年と1996~1998年の DIN:DIP 比の平均値は21から30へ、TN:TP 比の平均値は19から25へとそれぞれ上昇している。ちなみに、全解析期間中の平均値はそれぞれ27と23であった。

河川水中の全リンおよび全窒素に対する無機態リンおよび無機態窒素の存在割合、すなわち DIP/TP および DIN/TN は、それぞれ0.19~0.89 (平均0.61), 0.20~1.0 (平均0.70) であり、とくに一定の経年変動は見られなかった (Fig. 6b).

DIN:DIP 比, TN:TP 比とも11月にやや低くなる傾向が伺えるが、統計的に有意な低下ではなく、それぞれの年間平均値と標準偏差は (平均値は前出) 27±7.5, 23±5.1 で、前者の方がやや高かった (Table 1). DIP/TP, DIN/TN も年間を通して比較的一定で、年間平均値と標準偏差はそれぞれ0.61±0.065, 0.70±0.16で (平均値は前出); 季節変動は見られなかった (Table 1).

#### 1-5. 流量と濃度, 負荷量との相関

流量と DIP および TP 負荷量の関係にモデル式を近似させたときの相関はそれぞれ  $r^2=0.510$  ( $F=315.1$ ,  $p<0.00001$ ),

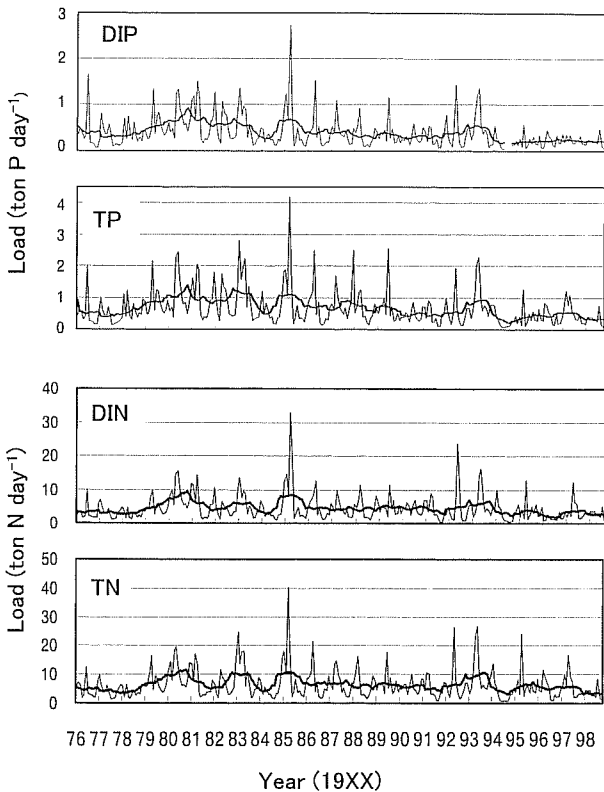
0.591 ( $F=517.8$ ,  $p<0.00001$ ) であり、両者とも  $n<1$  となり希釈型と判断された (Fig. 7). 窒素では DIN, TN, NO<sub>3</sub> において相関が高く ( $r^2=0.664$ , 0.756, 0.765;  $F=728.7$ , 1192.6, 650.9; いずれも  $p<0.00001$ ), すべて  $n$  が1に近いことから濃度一定型と判断された。NH<sub>4</sub>, NO<sub>2</sub> は相関が低かったが有意であり ( $r^2=0.271$ , 0.427;  $F=147.7$ , 216.8; いずれも  $p<0.00001$ ),  $n<1$  となり希釈型と判断された。

#### 2. 広島湾における赤潮発生種の変化

広島湾において発生した赤潮を分類群ごとに集計した結果を Fig. 8 に示す。この図から、赤潮発生件数自体は減少傾向にあるが、優占する赤潮構成分類群は1980年代前半には珪藻主体であったものが、1985年から1994年あたりまでは、珪藻, ラフィド藻, 渦鞭毛藻の3分類群が同程度の頻度で発生し、1995年からは渦鞭毛藻優占+珪藻の群集へと移ってきていることが分かる。主な構成種は珪藻では *Skeletonema costatum*, *Chaetoceros* spp., ラフィド藻では *Heterosigma akashiwo*, *Chattonella antiqua*, 渦鞭毛藻では *Gymnodinium mikimotoi* であった。ただし、1995年からは *Heterocapsa circularisquama* の発生が特徴的であった。

#### 考 察

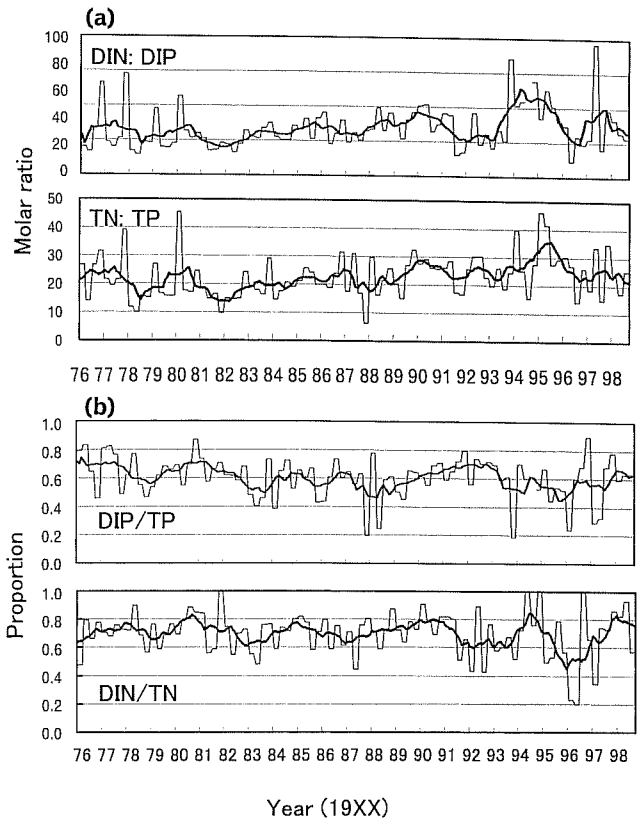
河川水中の DIP/TP, DIN/TN はそれぞれ平均0.61, 0.70 であり、季節変動, 長期変動ともほとんど見られなかった。こ



**Figure 5.** Long-term variations in estimated loads of dissolved inorganic phosphorus (DIP), total phosphorus (TP), dissolved inorganic nitrogen (DIN) and total nitrogen (TN) from the Ohta River for 23 years from 1976 to 1998. The smooth connected curve shows the running average of 13 months.

れに対して、広島湾北部海域の水柱内 DIP/TP, DIN/TN は、それぞれ年間平均 0.39 および 0.26 であることを山本ほか (2002) は報告している。広島湾北部海域内での DIP, DIN の急激な低下は、一つには太田川エスチュアリーでの植物プランクトンによって取り込まれ、粒状化されているためであると解釈できる。中でも DIN/TN の割合の低下が著しい理由の一つとして、他に脱窒作用が考えられることが指摘されている (山本ほか, 2002)。

リン濃度の減少傾向は DIP, TP とも 1982 年から見られ、広島湾に対する TP 発生負荷量が 1979 年の  $3.1 \text{ ton P day}^{-1}$  から 1994 年の  $2.43 \text{ ton P day}^{-1}$  に減少していることを示した清水ほか (1998) の報告からも、この減少傾向が瀬戸内海環境保全特別措置法にともなってリンの削減指導によるものであることが理解できる (Fig. 3)。一方、 $\text{NH}_4$ , DIN, TN については 1980 年代から 1990 年代の前半までほとんど変化せず、1995 年頃から減少が見られた。これもまた、窒素の削減が導入された第四次削減指導と時を同じくしており、環境省による対策の効果の現れであると結論できる (Fig. 4)。特に  $\text{NH}_4$  において減少傾向が顕著であったことは、下水道、し尿処理施設などの設備が整えられてきたこ



**Figure 6.** Long-term variations in (a) estimated DIN: DIP and TN: TP molar ratios and (b) estimated proportion of DIP/TP and DIN/TN of the Ohta River water for 23 years from 1976 to 1998. The smooth connected curve shows the running average of 13 months.

とが大きく影響していると考えられる (瀬戸内海環境保全協会, 2001)。

DIN:DIP 比, TN:TP 比などもこれらに呼応して、1980 年頃から上昇傾向が見られた (Fig. 6a)。これらの比は、長期トレンドを検討するために 13 カ月の移動平均をかけた値で見ると、植物プランクトン態の平均 N:P 比である Redfield 比 16 (Redfield *et al.*, 1963) と比べるといずれも高く推移してきており、窒素の削減が始められるまで上昇し続けている。例えば、移動平均した DIN:DIP 比は 1994 年に約 50, TN:TP 比は 1995 年に約 35 のピークを示している (Fig. 6a)。このことは、リン負荷の削減によって広島湾 (とくに北部海域) の植物プランクトンの増殖は 1995 年までは次第にリン制限が強化されていったことを示唆している。山本ほか (1996) は、各県の環境部が発行する「公共用水域の水質調査結果」(今回と同様の資料) から、瀬戸内海の各灘に流入するすべての河川について 1991~1993 年の水質をまとめている。それによると、河川経由の TN:TP 比は大阪湾で最も小さく (24)、燧灘では最も大きく (92)、瀬戸内海全域においてリン制限の傾向にあると想像される。

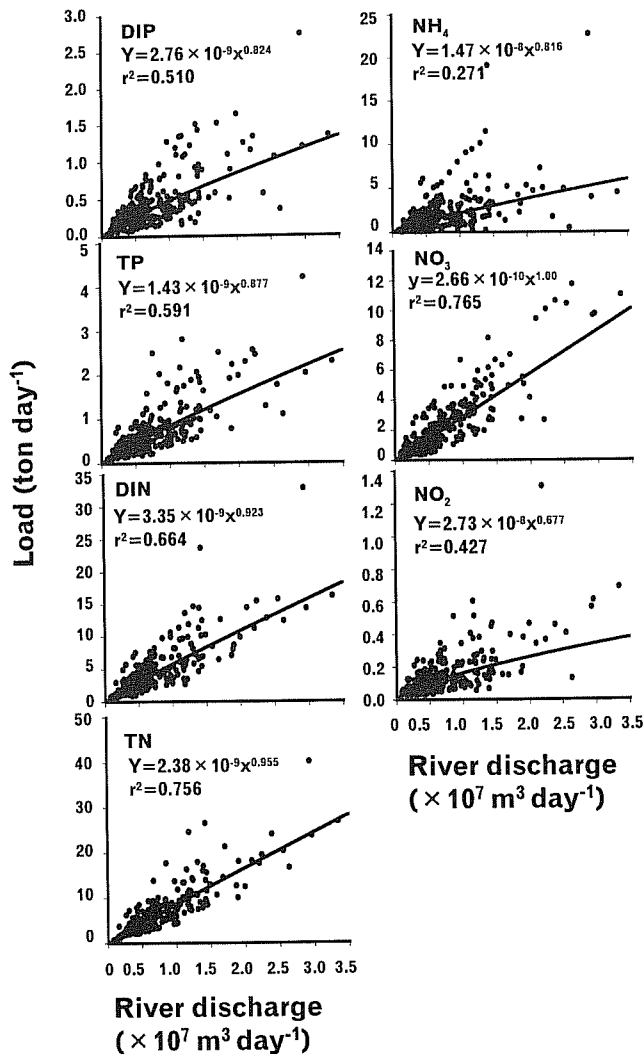


Figure 7. Relationships between the Ohta River discharge and the loads of respective phosphorus and nitrogen compounds. Data are for 23 years from 1976 to 1998.

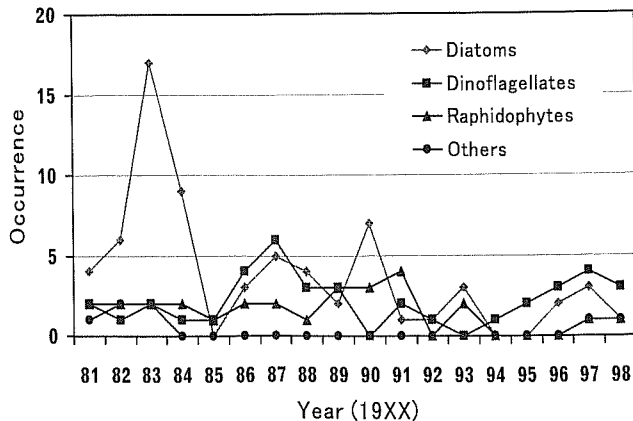


Figure 8. Yearly variations in respective taxonomic phytoplankton groups which formed red tides from 1981 to 1998 in Hiroshima Bay (Hiroshima Prefecture, 1982–1999).

栄養塩負荷比の変化が植物プランクトンの種組成を変化させることは以前から指摘されている (例えば, Schindler, 1977; Smayda, 1990). 広島湾表層海水では春季から夏季の成層期に DIP は検出限界 ( $0.01 \mu\text{g at l}^{-1}$ ) 以下となる. これに対し, DIN も春季から夏季にかけて濃度の低下が見られるが, DIN:DIP 比が例えば 50 程度の極端に高い値を示すことから, 広島湾表層海水では DIP が植物プランクトンの増殖にとって制限要因であることを山本ほか (2002) は指摘している. このように DIP 制限傾向にあるエスチュアリーで植物プランクトンが優占するための戦略の一つとして, 細胞内リン・プールが大きいことが挙げられる. すなわち, DIP 濃度が常に低い環境下に生息する植物プランクトンにとっては, 河川水流入によってパルス的に負荷されるリンを貯め込むことが種の生存にとって有利であると考えられるからである. 山本ほか (2002) は植物プランクトン態の C:N:P 比をクロロフィル量との関係から見積もり, 広島湾においては N:P 比, C:P 比とも, 1990 年代前半ではレッドフィールド比を下回り, それぞれ 2~10, 20~60 であったことを報告している. 彼らは 1980 年から続けられてきたリン削減の効果が, リン・プールの大きい種群を優占させた結果であろうと推測している. リン・プールの大きさの尺度として  $(Q_{\max} - Q_0)/Q_0$  (ここで  $Q_0$  と  $Q_{\max}$  はそれぞれ最小および最大細胞内リン含量) を近年広島湾で赤潮を形成してきた主要な種のうち, データが揃うのものについて計算したところ, *Chattonella antiqua* で 1.5 (Nakamura and Watanabe, 1983), *Gymnodinium mikimotoi* で 2.8 (Yamaguchi and Itakura, 1999), *Heterocapsa circularisquama* で 5.0 (Yamaguchi et al., 2001) である (ただし,  $Q_{\max}$  については Morel (1987) の式により計算した理論値である). これらのうち, 前二種は 1980 年代中頃から, *H. circularisquama* は 1995 年から発生し始めた種であり, これらのリン・プールが次第に大きくなってきていることは興味深い.

DIP 制限傾向にあるエスチュアリーで有利となるためのもう一つの戦略として, DOP の利用が考えられる. 上に挙げた種のうち, フォスホモノエステラーゼを持たないと思われる *C. antiqua* を除くと (Nakamura and Watanabe, 1983; 山口・松山, 1994), *G. mikimotoi* (Yamaguchi and Itakura, 1999), *H. circularisquama* (Yamaguchi et al., 2001) はさまざまな形態の DOP を DIP と同程度利用して増殖することが知られている. 山本ほか (2002) によると, 広島湾北部海域の水柱では TN に占める DON の割合は 54% (平均濃度  $12 \mu\text{g at l}^{-1}$ ) あるのに対して, TP に占める DOP の割合は 29% (平均濃度  $0.30 \mu\text{g at l}^{-1}$ ) 程度しかない. また, 上で述べたように, 近年広島湾で発生している植物プランクトン種のリン含量はレッドフィールド比に照らして見ると炭素や窒素に比べて相対的に大きい. このことは DOP から粒状態リン (PP) への流れがあることを示唆している. 以上, リン負荷の削減にとまない, 優占種がリン・プール

の大きい種あるいは DOP を利用できる種へと群集構造が変化したと考えられ、外部負荷の変化に対する植物プランクトン群集の応答として興味深い現象である。

一方、1995年から導入された窒素の削減の効果についても、太田川河川水の DIN:DIP 比および TN:TP 比の低下として現れていることが今回分かった (Fig. 6a)。先の山本ほか (2002) が見積もった植物プランクトン態 N:P 比は、1997~1998 年には 32 にまで上昇しており、一転して細胞内リン含量の小さい種が優先したことを示唆している。1995 年以降、*H. circularisquama* が発生するようになったが、1996 年からは珪藻類の増加も見られている (Fig. 8)。窒素の削減が加えられたことで、今後はこれまでのリンのみの削減とは違う方向へ種を交替させる力が働くかもしれない。いずれにせよ、窒素削減は近年始められたばかりであり、このことが湾内の植物プランクトンにどのような影響を与えるかという点については興味深いものがあり、これを現場実験ととらえるならば、さらに今後のデータの蓄積が必要である。

以上、リンと窒素に関してのみ考察してきたが、ケイ酸塩はケイ藻類の増殖にとって必須な主要な栄養塩であり、検討を要する。1999年12月、2000年11月の一年間、毎月、大芝水門において測定したケイ酸塩濃度は 220~290  $\mu\text{g at Si l}^{-1}$  で比較的安定して十分量存在している (山本、未発表)。さらに、1991~2000年の10年間の測定結果では、広島湾海水中では約 10~70  $\mu\text{g at Si l}^{-1}$  の範囲で存在し、ケイ藻類による取り込みの半飽和定数との比較から、山本ほか (2002) は、ケイ素が制限となることはまずあり得ず、リンがやはり最初に増殖制限になると結論している。

今回示されたことは太田川河川水中のリン濃度の明らかな減少であり、このような元素負荷比の変化は植物プランクトン種の変化を通してエスチュアリー生態系の構造を変化させる大きな要因である。エスチュアリーに対する栄養塩負荷ソースは河川水流入だけでなく、河川以外の陸域負荷、底泥からの溶出、エスチュアリー循環による外部下層からの流入、降雨、など挙げられる。これらのうち、例えば DIP についてみると、広島湾北部海域では降雨の寄与は無視できるほどであるが、今回得られた河川負荷 (平均約 0.3 ton P day<sup>-1</sup>) に対して河川以外の陸域負荷も同等程度あり、底泥からの溶出、エスチュアリー循環にともなう南部下層からの流入、なども同じオーダーである (山本、未発表)。このように、広島湾北部海域の場合、河川が最大の負荷源とは言えないが、これらのさまざまなソースのうち、制御しやすいのは河川を含めた陸域からの負荷であり、例えば Yamamoto (2002) はダムや廃水処理施設からの放流水の放出時期やタイミング、それらの元素比の調整などを行うことでエスチュアリー生態系の低次生物群集構造をコントロールすることを提案している。今回の長期モニタリングデータの解析は、元素負荷比の変化に対する植物プラ

ンクトン群集の応答を示唆するものとなった。今後、エスチュアリー生態系の環境管理においては、富栄養化対策のための単なる負荷削減ではなく、生態系の食物網の中で起こる生物群集構造の応答や変化に関するデータの蓄積や予測が不可欠であり、この領域の実験的研究あるいは数値モデル解析などの進展が望まれる。

## 引用文献

- 広島県 (1977-1999) 公共用水域の水質測定結果。  
 広島県農林水産部水産漁港課 (1982-1999) 広島県の赤潮。  
 岩城英樹 (2001) 第5次総量規制について。瀬戸内海, 28, 31-34。  
 建設省河川局編 (1978-2000) 流量年表。  
 Morel, F.M.M. (1987) Kinetics of nutrient uptake and growth in phytoplankton. *J. Phycol.*, 23, 137-150。  
 Nakamura, Y. and M.M. Watanabe (1983) Growth characteristics of *Chattonella antiqua* (Rhaphidophyceae) Part 2. Effects of nutrients on growth. *J. Oceanogr. Soc. Japan*, 39, 151-155。  
 Redfield, A.C., B.H. Ketchum and F.A. Richards (1963) The influence of organisms on the composition of sea-water. In: *The Sea* ed. M.N. Hill, vol. 2, Inter Science, New York, 26-77。  
 Schindler, D. W. (1977) Evolution of phosphorus limitation in lakes. *Science*, 195, 260-262。  
 清木 徹・駒井幸雄・小山武信・永淵 修・日野康良・村上和仁 (1998) 瀬戸内海における汚濁負荷量と水質の変遷。水環境学会誌, 21, 780-788。  
 瀬戸内海環境保全協会 (2001) 平成12年度瀬戸内海的环境保全、資料集, 91 pp。  
 Smayda, T.J. (1990) Novel and Nuisance phytoplankton blooms in the sea: Evidence for a global epidemic. In: *Toxic Marine Phytoplankton*, eds. Graneli, E., B. Sundstrom, L. Edler and D. M. Anderson, Elsevier, New York, 29-40。  
 田中勝久 (1991) 河川増水時の懸濁物による沿岸海域への吸着態 PO<sub>4</sub>-P 負荷。水産海洋研究, 16, 323-328。  
 和田安彦 (1990) ノンポイント汚染源のモデル解析。技報堂出版, 東京, 214 pp。  
 Yamaguchi, M. and S. Itakura (1999) Nutrition and growth kinetics in nitrogen- or phosphorus-limited cultures of the noxious red tide dinoflagellate *Gymnodinium mikimotoi*. *Fish. Sci.*, 65, 367-373。  
 山口峰生・松山幸彦 (1994) 珪藻類における栄養塩の利用特性及び *Chattonella* との栄養塩競合。有毒赤潮の生態学的制御による被害防除技術の開発に関する研究。南西海区水産研究所, 77-91。  
 Yamaguchi, M., S. Itakura and T. Uchida (2001) Nutrition and growth kinetics in nitrogen- or phosphorus-limited cultures of the 'novel red tide' dinoflagellate *Heterocapsa circularisquama* (Dinophyceae). *Phycologia*, 40, 313-318。  
 山本民次・松田 治・北村智顕 (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。  
 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。  
 Yamamoto, T. (2002) Proposal of mesotrophication through nutrient discharge control for sustainable estuarine fisheries. *Fish. Sci.*, (2001.10, accepted)  
 山本民次・橋本俊也・辻けい子・松田 治・樽谷賢治 (2002) 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。沿岸海洋研究, 39, 163-169。