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

\* 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

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: tamyama@hiroshima-u.ac.jp 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、1999<sup>11</sup>).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、1991<sup>21</sup>)、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 press<sup>31</sup>).

<sup>\*</sup>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

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,1999<sup>1)</sup>).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 生が今日的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,1999<sup>4)</sup>:山本ほか,1999<sup>5</sup>). 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通せなかったこ 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 3 (Redfield, 19346); Fleming, 19407); Redfield et al., 1963\*)、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もなう 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、ポアーサイズ0.45µm)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、1989<sup>9</sup>)後、モリブデンブルー法(Strickland and Parsons, 1972<sup>10</sup>)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、1990<sup>11</sup>)で、アンモニア態窒素(NH<sub>4</sub>-N)をインドフェノール法(Sasaki and Sawada、1980<sup>12</sup>)で、硝酸態+亜硝酸態窒素(NO<sub>3</sub>+NO<sub>2</sub>-N)を銅・カドミウム還元法(Bendschneider and Robinson, 1952<sup>13</sup>)で測定した.ここで、溶存態無機窒素(DIN)=NH<sub>4</sub>-N+NO<sub>3</sub>-N + NO<sub>2</sub>-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, 1988<sup>14</sup>); Maita and Yanada,
 1990<sup>15</sup>) 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℃, 30 min)した後、モリ

ブデンブルー法で測定した(Koroleff, 1983<sup>16)</sup>).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、試水をポアーサイズ0.45  $\mu$ mのメンプランフィルター (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光度計(日立220A)を用いて吸光法 で測定した (Jeffrey and Hamphrey、1975<sup>17)</sup>).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、1999<sup>5)</sup>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、1934<sup>6</sup>)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, 1983<sup>18)</sup>),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  $\mu$ g l<sup>-1</sup>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  $\mu$ g l<sup>-1</sup>) 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 µg



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<sup>-1</sup>) 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).



Fig. 8 Variations of DIN : DSi ratio in northern and southern Hiroshima Bay and outer area during 1991-2000. Surface (0 m), bottom (B-2 m) and water column average.

外洋深層における DIN: DIP 比が16:1 (Redfield, 1934<sup>6</sup>), DIN: DSi 比が16: 15(Raymont, 1980<sup>19)</sup>) ある いはほぼ1:1 (Dugdale and Wilkerson, 1998<sup>20</sup>)) であ ることと比べると、広島湾水中の無機栄養塩類は DIP が 少なく DSi が多いと言える。ただし、レッドフィールド 比と無機態栄養塩の比を比べて内湾・沿岸域の植物プラ ンクトンの増殖制限要因を特定することには次のような 問題がある。外洋域では表層と深層のカップリングが強 く, 定常状態にあるため, 表層の植物プランクトンの元 素比および深層の DIN: DIP ともにほぼ16:1になる. 一方、広島湾のようなエスチュアリーでは河川水による 栄養塩負荷が大きなソースとなっているうえ、その負荷 頻度は非定常である. さらに, 底質との相互関係が強く, 脱窒作用によって窒素不足となりやすいため、沿岸域の 植物プランクトンのN:P比は一般に16:1より小さい (Valiela, 1995<sup>21)</sup>)

植物プランクトンの増殖が栄養塩の取り込みの結果で あると考えると、プランクトン態元素比ではなく、植物 プランクトンによる栄養塩類元素の取り込み比と比べる のも1つの方法である。例えば、多くの沿岸性植物プラ ンクトンの DIN、DIP、DSi 取り込みの半飽和定数(値 が大きいもので、DIN 約10  $\mu$ g at l<sup>-1</sup>、DIP 約3  $\mu$ g at l<sup>-1</sup>、DSi 約5  $\mu$ g at l<sup>-1</sup>:山本、1998<sup>22</sup>)と今回得られた 広島湾水の栄養塩類濃度(Figs. 3-5)を比較すると、や はり広島湾では植物プランクトンによる取り込みに対し て最も制限となりやすいのが DIP であり、最も制限とな りにくいのが DSi であろうと推察される.

## 3.2 各態窒素・リンの存在割合

観測期間中のすべてのデータを用いて,各海域におけ る平均 TN, TP 濃度と,TN 中に占める各態窒素,およ び TP 中に占める各態リンの割合を算出した(Fig.9). TN 濃度,TP 濃度とも北部で最も高く,湾外に向けて低 くなっていた.また,TN:TP 比は北部海域で21.5,南 部で22.8,湾外で24.1であった.山本ほか(1996)<sup>23)</sup>がま とめた太田川河川水中の TN:TP 比は平均27と高いの で,広島湾水中で TN の減少あるいは TP の増加を引き 起こす何らかの作用が働いていることになる.

TN の減少を引き起こす原因の1つとして脱窒作用が 挙げられる.山本ほか(1996)<sup>23)</sup>が河川流量と河川水中の TN 濃度から見積もった広島湾に対する TN 負荷は3.9 g N m<sup>-2</sup> yr<sup>-1</sup> である.一方,Kim *et al.*(1997)<sup>24)</sup>が実測 した広島湾底泥における脱窒速度は、季節変動は大きい ものの、年平均14  $\mu$ g at N m<sup>-2</sup> hr<sup>-1</sup> であり、河川 TN 負





荷量の44%に相当する.世界のさまざまなエスチュアリ ーについてまとめた報告では,脱窒は消費される硝酸の 15-71%に相当し(Law *et al.*, 1991<sup>25)</sup>),NH<sub>4</sub>+ やNO<sub>3</sub><sup>-</sup> など無機栄養塩として底泥から水柱に溶出する量とは同 等であり,沿岸海域に負荷される窒素量の約50%にも相 当するとされている(Seitzinger, 1988<sup>26)</sup>).広島湾に対す る窒素負荷のソースは河川以外にエスチュアリー循環に よるものが相当の大きさを占めると考えられるので(山 本ほか, 2000<sup>27)</sup>),正確な見積もりは今後の課題である.

TNとTPの構成要素の割合はそれぞれで異なった (Fig.9). TN 中ではDON が半分以上を占め,次に DIN, PN の順であった.一方, TP 中ではPP, DIP, DOP はおよそ1:1:1であった.さらに構成割合の特 徴として,北部海域から湾外に向けて PN や PP が減少 し,反対に DON や DOP の割合が増加する傾向が見ら れた(ただし,DON,DOP の絶対濃度には海域間の有意 差は無い).このことは北部海域では流入負荷が大きいこ とに対応して植物プランクトンの増殖による粒状化が活 発であり,湾外に向かうにつれて分解による溶存化が相 対的に盛んであることを示唆している.

## 3.3 植物プランクトン態C:N:P比の変動

Chl a に対して PC, PN, PP をプロットして得られた 回帰直線の傾きから見積もられた植物プランクトン態 C:N:P比 (Phyto-C:N:P)から,それぞれの比を 計算した (Fig. 10). Phyto-C:N (平均7.8) はレッドフ ィールド比 (6.6) と有意な差が無く (t-検定, p<0.05), 経年変化は見られずほぼ一定であった。一方, Phyto-N: P, Phyto-C:Pは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。しかしそ の後上昇し,1997~1998年のピークではそれぞれ32およ び240にもなった。さらに,1999~2000年には再びレッド フィールド比に戻る傾向が見られた。このように,外洋 の比較的定常な系とは異なり,広島湾のように栄養塩負 荷のソースがさまざまで非定常な内湾沿岸域では植物プ ランクトン態の元素比はレッドフィールド比から乖離す ることが明らかとなった。

単種植物プランクトンを用いて、細胞に対するリン酸 制限の影響を検討したいずれの実験結果も細胞内N:P 比が大きくなることを示している(Harrison *et al.*, 1977<sup>28)</sup>; Rhee, 1978<sup>29)</sup>; Cembella *et al.*, 1984<sup>30)</sup>; Lewitus and Caron, 1990<sup>31)</sup>; 山口, 1993<sup>32)</sup>; Yamamoto and Tsuchiya, 1995<sup>33)</sup>. このような結果か らは,陸域からのリンの負荷が減少すると,植物プラン クトン態のN:P比は大きくなることが予想される.し かしながら,今回の現場観測においては1997-1999年には そのような傾向にあるものの,すでにリン制限であった



Fig. 10 Variations of phytoplanktonic C: N, N: P and C: P ratios estimated from the relashionship between these elements and chlorophyll *a* concentration in suspended particulate matter from Hiroshima Bay (Northern + Southern). The numbers with dotted lines are the Redfield ratios (Redfield, 1934<sup>6</sup>).

はずの1991~1993年では Phyto-N: P は小さかった. こ のことは,現場海域では室内実験とは異なり,同一種が 細胞内元素比を変えるのではなく, Schindler (1977)<sup>34)</sup> が湖沼で実験的に示したように,親生物元素の負荷量あ るいは比を変えることによって群集組成が変化すると考 えるのが妥当である.

広島県による赤潮モニタリング調査によると、広島湾 における近年の赤潮形成種は、1980年代では珪藻主体で あったが1990年代になってから鞭毛藻へ変化してきてい る(広島県農政部水産漁港課、1982-1998<sup>35)</sup>).とくに1992 年からは有毒渦鞭毛藻のAlexandrium tamarense が、 1995年からは Heterocapsa circularisquama が発生して カキ養殖に大きな被害を与えていることは憂慮すべきこ とである。海域に対して流入する親生物元素の比が種の 遷移を引き起こすことは世界各地の沿岸域における富栄 養化現象と関連して、すでに指摘されていることである が(Smayda、1990<sup>36)</sup>)、今回明らかとなったように、元素 負荷比の変化は種の遷移とともに植物プランクトン態元 素比にも反映する。エスチュリーの生態系を健全に保つ ためには、有毒・有害プランクトンが発生しないような 元素負荷比を探る必要があり、負荷の削減対策において もそのような配慮が必要であろう。

## 参考文献

- 瀬戸内海環境保全協会(1999):平成10年度瀬戸内海の環境保 全,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.
- 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一 窒素とリンの同時制御の重要性一. 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.
- 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.
- Redfield, A. C., B. H. Ketchum and F. A. Richard (1963): The influence of organisms on the composition of seawater. p. 26 - 77, In, The Sea, vol. 2, ed. M. N. Hill, Inter Science, 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.
- 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.
- Sasaki, K. and Y. Sawada (1980): Determination of ammonia in estuary. Bull. Jap. Soc. Sci. Fish., 46, 319-321.
- 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.
- 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. Ehrhandts and K. Kremling, Verlag Chemie, Weiheim.
- 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.
- 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.
- Raymont, J. E. G. (1980): Plankton and Productivity in the Oceans. Pergamon Press, Oxford, 489 pp.

- Dugdale, R. C. and F. P. Wilkerson (1998): Silicate regulation of new production in the equatorial Pacific upwelling. Nature, 391, 270-273.
- Valiela, I. (1995): Marine Ecological Processes. Springer, New York, 686 pp.
- 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・北村智顕・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.
- 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.
- 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.
- 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): Phisiological responses of Si-limited *Skeletonema costatum* to silicate supply with salinity decrease. Bull. Plankton Soc. Japan, 42, 1-17.
- Schindler, D. W. (1977): Evolution of phosphorus limitation in lakes. Science, 195, 260-262.
- 35) 広島県農政部水産漁港課(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.