

熊本大学平成 15 年度発足「拠点形成研究 B」

平成 17 年度報告書

## 水環境汚染物質の動態評価研究拠点の構築

平成 18 年 4 月

拠点リーダー  
自然科学研究科・教授  
安部眞一

拠点サブリーダー  
自然科学研究科・教授  
古川憲治

## 研究の目的

本拠点形成では、地球規模での省資源・持続・循環社会の実現において中核となる環境科学の分野で画期的な貢献をするために、熊本大学の立地条件に配慮し、緊急性の高い水環境汚染物質の動態評価研究拠点の構築を目指す。特に、環境悪化の原因とメカニズムが不明のまま疲弊状態にある有明・八代海の再生修復への貢献を念頭に置き、環境ホルモンなどの環境汚染物質の生物モニタリング科学創成、沿岸域における栄養塩除去などに有効な環境汚染物質のバイオ・レメディエーションの科学技術研究の展開、陸水と海水に跨る沿岸域水循環の計測・解析・評価手法の高度化と応用、微量で多様な環境汚染物質の高精度定量手法の開発と応用などの先導的研究を推進する。また、これらの研究を通じて総合的な研究能力と高度な洞察力を有する創造性豊かな人材を育成するとともに、環境産業創成に貢献する。

## 共同研究者

### (A) 環境汚染物質の生物モニタリング

安部真一・自然科学研究科・教授

滝尾進・沿岸域センター・教授

逸見泰久・沿岸域センター・教授

内野明德・沿岸域センター所長・自然科学研究科・教授

### (B) 環境汚染物質のバイオ・レメディエーション

古川憲治・自然科学研究科・教授

木田健次・自然科学研究科・教授

川越保徳・自然科学研究科・助教授

### (C) 沿岸域水循環の評価

嶋田純・自然科学研究科・教授

滝川清・沿岸域センター・教授

小池克明・自然科学研究科・教授

### (D) 微量環境汚染物質の定量

城昭典・自然科学研究科・教授

河原正泰・自然科学研究科・教授

\*平成18年4月改組により、旧理学部、工学部所属の教員は大学院自然科学研究科所属になりました。

## 目的に対する進捗状況

下記に示すように、各グループでの進捗状況は顕著であり、事業推進担当者相互の有機的連携も深まりつつあるので、順調に発展していると考えられる。

### (A) 環境汚染物質の生物モニタリング

- ・ これまでに開発した高感度な *in vitro* モニタリングシステムを用いて、有明海などでも今なお検出される *p,p'*-DDE の影響及び作用機構を明らかにすることができたため、予定通りの進捗状況である。
- ・ 従来リモートセンシングの対象となっていた植物は緑色植物であり、スサビノリのような紅藻類についての研究例はなかった。今年度の予備実験により、スサビノリでも通常の緑色植物と類似の反射スペクトルが得られ、また、色素量では識別できない初期の栄養欠乏においても反射スペクトルでは識別が可能であることが示唆された。これらは今後の進展に期待がもてる成果であった。
- ・ 韓国の沿岸域で生物多様性の保全に関する研究を行ったが、日韓の生物多様性保全に対する基礎研究が評価され、逸見が代表を務める「日韓干潟調査団」が、「日韓国際環境賞」（毎日新聞社・朝鮮日報社共催）を受賞した。
- ・ 菊池川流域における『特定外来生物』ブラジルチドメグサの遺伝的変異の分析を通して、繁殖様式と単一起源であることの概略を把握することができた。

### (B) 環境汚染物質のバイオ・レメディエーション

- ・ Anammox 法の実用化を目指して、これまで各種の微生物担体を使った上向流固定床型リアクタと PVA ゲルビーズを流動担体とする流動床リアクタを用いて、Anammox 汚泥の大量培養について検討してきた。その結果、不織布を担体とする上向流固定床型リアクタでは、50 l までのスケールアップに成功し、時間はかかるものの T-N 容積除去速度  $3.0 \text{ kg-N/m}^3/\text{d}$  を達成することができた。また、15 l 容の不織布を使った上向流固定床型リアクタでは、3 ヶ月という短期間に T-N 容積除去速度  $3.0 \text{ kg-N/m}^3/\text{d}$  を達成することができ、Anammox 法実用化の第一関門である短期間での Anammox 汚泥の大量培養に目処をつけることができた。
- ・ サンプルの深度や耕耘前後に関わらず、uncultured クローンに近縁なクローンが主であったが、得られたクローンのうち分類できたものは全て *Proteobacteria* に属することがわかった。また、耕耘直後のクローンには *Thiobacillus denitrificans* の *nirS* に近縁なものが多いという特徴を有していた。したがって、*Thiobacillus* 属細菌は常に干潟底泥中に存在し、嫌気環境では硫黄脱窒を主な代謝経路とし、好気環境になると硫黄酸化を主な代謝経路として増殖速度が大きくなっている可能性が示唆された。
- ・ H16 年度までの研究では生分解性プラスチック PHB 充填カラムリアクターによる硝酸性窒素

処理に関する、リアクター内の窒素の挙動と関与細菌叢に関する基礎的知見収集に留まっていたが、本年度は PHB 資化性脱窒細菌を実際に単離することに成功し、その諸性質についても知見を得ることができた。

### (C) 沿岸域の水環境の評価

- ・火山岩流域の山地から海域にいたる岩盤の広域地下水流動システムを様々な方法を用いて解明した結果、本研究流域では、山地から海域の潮間帯までにかけて数百年の滞留時間を有し現在比較的活発に循環している「循環性地下水」と、潮間帯より沖側の海域下地域にある数千年スケールの滞留時間を有し相対的に地下水の流動の不活発な「停滞性淡水地下水」が存在していること、「循環性地下水」はその物理化学的性質と流動機構によって「源流部局所流動系」「中間流動系」、「広域深層流動系」の3つのタイプに分類することができることが分かった。
- ・有明・八代海の環境再生と防災にかかわる総合研究を推進するに当たって、学術研究はもとより、政策策定への直接指導・提言、地域社会作り等々、積極的に推進・展開を行い多大の実績と貢献を果たした。
- ・水源から有明海までの流域圏における水理構造の全体像を解明するとともに、水域環境を広域的にモニタリングし、データの数理解析によって環境の時間的・空間的变化を詳細に明らかにすることで、水域環境に影響を及ぼす要因を特定することを目標に研究を実施している。この目標達成のために、次の3つのサブテーマを設定している。①リモートセンシングによる広域水域環境の定量化法の確立、②水域環境データの時空間分布のモデリング法の確立、③地磁気-地電流法による浅部から深部に至る水理構造の解析法の確立。3つのサブテーマともに平成16年度の問題点に対処し、新たな手法を提案するとともに、妥当な解析結果や測定データを増やすことができた。海底電気探査という日本では実施例が極限られている新たな計測方法についても適用でき、速報的であるが興味深い結果が得られた。

### (D) 微量環境汚染物質の定量

- ・現実に即した地下水（本学の水道水）にヒ酸塩をスパイクした模擬試料を用いての検討を行った。ヒ素含有量が1ppm程度であり塩化物イオンと硫酸イオンがそれぞれ20倍モル存在する条件下で、有機イオン交換体としてはじめてヒ酸イオンの吸着可能であることを実証した。また、従来のイオン交換樹脂では達成困難な空間速度  $500 \text{ h}^{-1}$  の通液も可能であった。
- ・熔融飛灰を水洗して硫酸浸出することにより有価金属が回収でき、さらにその残渣をチオ硫酸ナトリウム浸出することにより鉛が回収できて、熔融飛灰を無害化できることが判明した。

平成 17 年度博士後期課程学生数

	進学生	留学生	社会人	H18 入学者数
安部眞一	2	4	3	1
瀧尾進	0	2	1	0
逸見泰久	1	0	1	1
内野明德	0	0	2	0
古川憲治	0	6	2	2
木田建次	1	4	4	1
川越保徳	0	0	0	0
嶋田純	1	1	0	0
滝川清	0	0	0	2
小池克明	1	3	2	1
城昭典	0	0	2	2
河原正泰	0	0	1	0
計	6	20	18	10

## 平成17年度の研究経費使用実績報告

### 拠点形成B経費（500万円）

研究経費内訳	金 額（円）	使 用 内 訳
設備備品費	316,402	水質測定装置
人 件 費	0	
事業推進費	489,000	国際シンポジウム要旨集，ポスター印刷費（各 300 部）
	210	グループ間共同研究推進費（スペクトル装置試験利用）
旅 費	1,684,149	ガボンでの研究交流(教員 3 名，学生 1 名)
	120,065	上海フォーラム講演（教員 1 名）
	300,000	大学院生の国際学会参加支援費， 6 名
謝 金	1,546,867	私費留学生補助金， 11 名
そ の 他	543,307	
合 計	5,000,000（円）	

### 国際シンポジウム経費(95万円)

内 訳	金額	使 用 内 訳
旅 費	780,412	講師招へい費（国外 2 名，国内 1 名）
謝 金	94,959	講演謝金（ 3 名）
その他	74,629	
合 計	950,000（円）	

## この拠点研究に関連した外部資金の獲得状況

(科学研究費補助金、他省庁・研究助成法人・民間企業からの研究費等)

### 安部眞一

- ・ 科研費 基盤研究(B)、2002-2005 年、300 万円(平成 17 年度分)  
「精原細胞の減数分裂開始機構」
- ・ 科研費 萌芽研究、2005-2006 年、210 万円(平成 17 年度分)  
「体細胞に対する減数分裂の誘導」
- ・ 科研費 特定領域、2005-2006 年、410 万円(平成 17 年度分)  
「温度依存性性決定の分子メカニズム」(分担)

### 滝尾 進

- ・ 科研費 特定領域研究「葉緑体の増殖制御機構と遺伝子発現調節による植物の高次機能発現」(平成 16～20 年度、分担)

### 逸見泰久

- ・ 河川整備基金助成、2005年、75万円、八代海の塩性湿地生物群集の評価・再生・創出
- ・ 寄付金、2005年、70万円、(株)九州開発エンジニアリング

### 木田建次

- (1) 受託研究(日揮(株))、2005年、2843万円、バイオマスエネルギー高効率転換技術：高温耐性、耐酸性および耐塩性を有する凝集性酵母の育種／高効率発酵プロセスの開発／蒸留廃液処理プロセスの確立
- (2) 受託研究((株)りゅうせき)、2005年、1049万円、沖縄産糖蜜の適用性等に関する研究
- (3) 受託研究(九州沖縄農業研究センター)、2005年、750万円、林産残さ、食品残さ等未利用バイオマスの循環・利用システムの開発
- (4) 受託研究(九州沖縄農業研究センター)、2005年、300万円、南九州畑作地域におけるゼロエミッション型カスケード利用システムの開発
- (5) 受託研究((独)科学技術振興機構)、2005年、130万円、焼酎粕の乳酸発酵による安価でプロバイオティクス効果の高い飼料の製造に関する実用化研究
- (6) 受託研究(九州電技開発(株))、2005年、117万円、廃シロップ液及び規格外農産物からの燃料用エタノール製造に関する研究
- (7) 科学技術振興調整費(熊本大学代表：滝川先生)、2005年、3420万円、底質機能の微生物学的評価と改善技術の検討
- (8) 科研費(基盤研究A、代表：滝川先生)、2005年、90万円、干潟底泥の微生物叢および代謝反応系の解析
- (9) 科研費、2005年、170万円、焼酎蒸留廃液有効利用のための抗腫瘍活性成分の解明

- (10) 科研費, 2005年, 150万円, メタン発酵槽内の微生物共生系における細胞間電子伝達系の解明
- (11) 科研費, 2005年, 90万円, 焼酎粕および焼酎粕から製造した醸造酢が有するマウス固形腫瘍の増殖抑制機序の解明
- (12) 工学部科学研究助成, 2005年, 180万円, 蒸留酒白酒製造工程から排出される発酵廃粕からの燃料用アルコールの生産
- (13) 研究奨励費（インセンティブ）, 2005年, 150万円
- (14) 共同研究（瑞鷹（株））, 2005年, 900万円, ゼロエミッション焼酎・健康酢製造技術の実証と事業化
- (15) 共同研究（霧島酒造（株））, 2005年, 400万円, 焼酎粕からの機能性飲料・食品の開発
- (16) 共同研究（（株）バイファ）, 2005年, 215万円, 酵母廃液処理方法の検討
- (17) 共同研究（東京ガス）, 2005年, 150万円
- (18) 日本酒造組合中央会, 2005年, 100万円, 米焼酎粕および米焼酎粕から製造した醸造酢の機能性／調査研究
- (19) 都市エリア産学官連携促進事業, 2005年, 164万円, バイオマスの効率処理技術の確立
- (20) 委任経理金（南国興産（株））, 2005年, 100万円
- (21) 委任経理金（（株）エル・シー・エー）, 2005年, 200万円

#### 古川憲治

- ・ 科研費 基盤研究（B） 540 万円
- ・ 共同研究：荏原製作所 200 万円
- ・ 奨学寄附金
 

アサヒビール	100 万円
クラレ	100 万円
タクマ	100 万円
オルガノ	100 万円
日立造船	30 万円

#### 川越保徳

- ・ 西田鉄工研究基金, 2005-2006 年, 110 万円, 生分解性プラスチック資化性脱窒細菌の集積・分離と硝酸性窒素除去への利用に関する研究

#### 嶋田 純

##### ① 科研費

- ・ 基盤研究(A)（1）平成14-17年度 山体基盤岩地下水流動の実態解明とその水資源的評価.  
嶋田 純（代表）、田中 正、長谷義隆、谷口真人、登坂博行、徳永朋祥、辻村真貴、恩田裕



一、小野寺真一、宮岡邦任、後藤忠則、松田博貴、46100千円

- ・基盤研究(B)(2) 平成 16-18 年度 廃棄物処分に関わる安全性検討のための沿岸地圏域地下水流動システムの探査技術開発. 徳永朋祥(代表)、六川修一、嶋田 純、大久保泰邦、20000 千円
- ・基盤研究(B)(海外学術調査) 平成17-19年度 東アジア沿岸域における地下水流出に伴う炭素・栄養塩類負荷量の評価. 谷口真人(代表)、蒲生俊敬、徳永朋祥、宮岡邦任、張 勁、嶋田 純、小野寺真一 8900千円
- ・基盤研究(C) 平成17-19年度 マルチ・トレーサー手法による流域水・物質循環プロセスのモデル化に関する研究. 辻村真貴(代表)、嶋田 純 3500 千円
- ・基盤研究(A) 平成17-20年度 異常間隙水圧層の発生・上昇メカニズムと広域地下水流動、自然災害に及ぼす影響 田中和広(代表)、宮田雄一郎、千木良雅弘、徳永朋祥、今岡照喜、中田英二、嶋田 純、金折裕司、石田 毅、馬原保典、38600 千円
- ・萌芽研究 平成17年度 間隙水中の塩素安定同位体比を用いた超長期地質環境安定性評価技術の開発 徳永朋祥(代表)、嶋田 純 4950 千円

## ② その他

- ・都城市受託研究費 2005年度、代表 500千円、『都城盆地の地下水流動・循環機構解析』
- ・総合地球環境学研究所 2005年度共同研究、分担 500千円、『都市の地下環境に残る人間活動の影響』
- ・原子力環境整備促進・資金管理センター 地層処分重要基礎技術研究調査 2004-2006年度 150 00千円 『堆積岩地域における塩淡境界に関する研究』 徳永朋祥(代表)・嶋田 純
- ・資源・素材学会、深部地質環境調査解析技術体系化委員会 受託研究 『地下水の地球化学的調査に関する研究』、分担 1318千円
- ・戦略的基礎研究推進事業経費,2001-2006年度、『北東アジア植生変遷域の水循環と生物・大気圏の相互作用の解明』,杉田倫明(代表)ほか、分担,255017千円
- ・核燃料サイクル機構先端基礎研究助成 平成17-19年度 塩素安定同位体比を用いた水理地質構造モデル評価技術の開発. 徳永朋祥(代表)、嶋田 純、井尻裕二、小野誠、 9000千円
- ・委任経理金 3 件 (2450 千円)

## 小池 克明

- ・寄附金：民間企業より計 3,800 千円
- ・共同研究費：国立極地研・京都大学防災研，計 250 千円
- ・日本原子力研究開発機構先行基礎工学研究：採択（平成 18 年 3 月），3,000 千円
- ・(財)日本鉱業振興会試験研究：採択（平成 18 年 3 月），700 千円

## 滝川清

### ① 科研費

- 1) 滝川清（熊大代表）. 文部科学省科学技術振興調整費：重要課題解決型研究，

「有明海生物生息環境の不俯瞰型再生と実証試験 (17 年度 126,194 千円).

2) 滝川清 (代表) .基盤研究 (A) (2)一般.平成 14～17 年度 53,040 (千円).

「有明海干潟環境の回復・維持方策に関する研究」

3) 滝川清 (分担) . 基盤研究 (B) (1)一般.平成 17 年度 600 (千円).

「津波・高潮・洪水氾濫の複合ハザードマップ」

② 奨学寄付金

4 件 2,000,000 円 (沿岸域環境科学教育研究センター・教授 ; 滝川 清)

③共同研究

1) 滝川清. (アジアプランニング(株)) 平成 8～継続中.420 (千円)/年.「有明海域における自然環境の評価と保全に関する研究」.

2) 滝川清. (開成工業株式会社) .平成 8～継続中.420 (千円)/年.「陸水流入に伴う有明海域の物質流動とその制御」.

城昭典

・民間との共同研究 (三井金属鉱業株式会社)、2004-2005 年、200 万円、フッ化物イオンに高選択性の吸着剤開発

河原正泰

科学研究費補助金 (基盤研究(C)(2)) 代表, 2004-2005, 100万円(平成17年度分),  
酸浸出—沈殿分離法による溶融飛灰からの有価金属の回収

## 平成 18 年度の研究計画概要について

### (A) 環境汚染物質の生物モニタリンググループ

- ・ 精巣におけるアポトーシスの機構について両生類をモデルとして、リガンドがどのようにして受容体を活性化するか、細胞内でどのようにシグナルが伝わるか、死の実行過程はどのようなものか、について調べる。また、環境毒性物質の精子形成に対する影響を両生類精巣培養系を用いて調べる。
- ・ 栄養欠乏によるフィコビリソーム分解に働くプロテアーゼ遺伝子の同定：現時点では、スサビノリからは窒素欠乏により誘導される葉緑体移行型プロテアーゼ遺伝子は分離できていない。H18年度は、葉緑体ゲノムやスサビノリESTにみられる本年度は未解析であったプロテアーゼ遺伝子について検討する。
- ・ 今回は実験室内で培養したスサビノリを使用した。使用した材料が生重量 1 g 以下と少量であったため、測定精度を高めるためにH18年度ではさらに多量の材料を用いて測定を行なう。鉄、亜鉛、マンガン欠乏以外の金属欠乏や金属過重の効果についても検討を行ない、反射スペクトルを用いてスサビノリの重金属応答能を明らかにする。
- ・ 「生物多様性の保全」では、研究対象地を増やし、底生動物生息地としての沿岸域の調査方法・評価方法の検討を行う。また、ナメクジウオやハクセンシオマネキの研究を継続する他、塩性湿地の貝類ならびにカニ類の保全技術の開発を行う。「水産資源の持続的利用」では、ハマグリをモデルに研究を継続し、資源管理に必要な基礎データを収集する。

### (B) 環境汚染物質のバイオ・レメディエーショングループ

- ・ 実廃水を対象とした Anammox 処理試験を行い、Anammox の実用化に目処をつけることを目的に研究を行う。具体的には、高濃度  $\text{NH}_4\text{-N}$  含有廃水として、畜産廃水の嫌気性消化脱離液を対象に、Anammox の前処理としての部分亜硝酸処理と、部分亜硝酸処理液を対象とした Anammox 処理をベンチスケールの処理試験で検討する。
- ・ 環境負荷となる様々な有機系廃棄物のメタン発酵やエタノール発酵を利用した有効利用技術に関して検討する。また、食品や醸造工程から排出される有機系バイオマスから機能性食品を製造し、その生理活性や作用機構を明確にすることで高付加価値化を目指す。これらの技術により、従来の中間処分→埋立処分といった既存の処理技術を利活用技術に変換することで、陸上負荷の軽減や地球温暖化防止につなげたい。
- ・ PHB 資化性脱窒細菌 K2F 株の単離に成功し、その環境水・排水処理への適用可能性が示されたことから、平成 18 年度は、PHB を炭素源とした硝酸脱窒に関する回分実験を実施して基礎データを集積するとともに、K2F 株を高濃度に集積し、PHB を炭素源として供給できるリアクタシステムを構築し、PHB を炭素源および電子供与体として用いる高速で低コストの連続硝酸性窒素除去技術の構築にむけて研究を進める予定である。

### (C)沿岸域の水環境の評価グループ

- ・ 海域においては、停滞性淡水地下水の成立原因の解明を、また源流域においては宙水性地下水の消長と降雨－流出過程の関係を地球物理的な測定手法を用いて解明することを計画している。また、トリチウム測定によって明らかにされた流域内の50年より若い年代の地下水の更に詳細な年齢を把握するための新たな年代測定手法としてCFC（溶存フロン）を用いた研究も、手がけてゆく予定である。
- ・ 環境、防災（減災）、環境と防災の調和、安心・安全で生き活きた地域社会づくり、を目標として17年度に引き続き、積極的な研究展開、政策策定指導などを継続する。特に、17年度に採択された超大型研究プロジェクト（文部科学省の科学技術振興調整費「有明海生物生息環境の俯瞰型再生と実証実験」）研究を中心に「有明海・八代海の再生」をテーマに積極的な研究展開を行う。
- ・ 1）衛星リモートセンシング：海面温度以外に海水や河川水の混濁度、植物プランクトン量という代表的な環境因子に注目し、その時空間分布をLANDSAT画像やTerra/ASTER画像における複数のバンドデータの多変量解析によって抽出できる手法を考案する。干潟試料の反射スペクトル測定から得られた代表的な3つのパターンに対する鉱物組成を明らかにする。2）数理モデル：水温や栄養塩濃度に塩分濃度などの他の水質環境データも加え、3次元的な環境データの時空間モデル作成、および環境変化因子の抽出を進展させる。3）地磁気－地電流計測：MT法により、熊本平野周辺の地下構造推定を進め、涵養域から流出域までの地下水系の全体像を明らかにする。さらに、海底電気探査の測線を追加し、有明海底に湧水する地下水の経路を比抵抗分布から詳細に推定する。

### (D) 微量環境汚染物質の定量

- ・ 金属イオン担持二官能性キレート繊維を用いて、塩化物イオン、硫酸イオンの妨害が格段に少なく吸着速度も迅速なヒ素吸着剤を開発する。
- ・ 最終処分場での管理処分を余儀なくされている、特殊鋼製造時に発生する飛灰の無害化について検討し、一連のダストからの金属回収と無害化に関する研究を行う予定である。

## 平成17年度研究成果報告

研究課題名：環境汚染物質の生物モニタリング

所属・氏名：理学部理学科・北野健・安部眞一

### 1. 研究目的・目標

#### H15年度～21年度における目的・目標

河川や海に存在する環境汚染物質の中で、特に内分泌系に影響を与える化学物質のことを内分泌攪乱物質と呼ぶ。この内分泌攪乱物質が及ぼす生物への作用機構については未だに明らかにされていないため、有効なモニタリングシステムの開発には至っていないのが現状である。そこで本研究では、内分泌攪乱物質が及ぼす生物への影響メカニズムを明らかにすると同時に、河川や海に存在する内分泌攪乱物質を総合的に評価できる生物モニタリングシステムの開発をめざす。まず、内分泌攪乱物質、特に女性ホルモン(エストロゲン)、男性ホルモン(アンドロゲン)様物質が及ぼす生物への影響を調べ、作用機構を明らかにする。次に、環境水にどのような作用を持つ内分泌攪乱物質が多く含まれているかを調べるための高感度な生物モニタリングシステムの開発をめざす。

#### H17年度の目的・目標

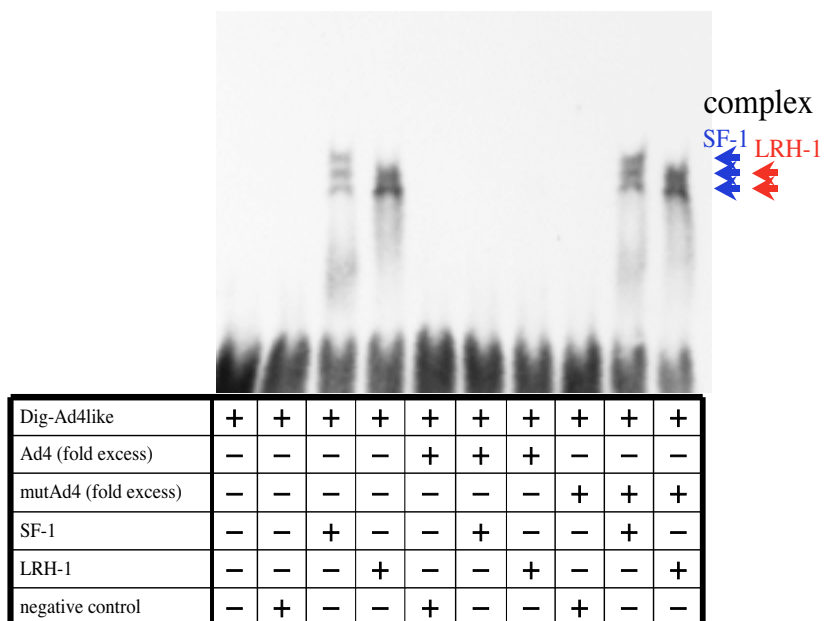
本年度は、内分泌攪乱物質が及ぼす生物への影響を解明するため、有明海などでも今なお検出され、抗アンドロゲン作用が疑われている $p,p'$ -DDEが生物へどのような影響を及ぼすのかを明らかにすることを目的に研究を行った。我々は、環境要因に対して感受性の高い海産魚であるヒラメ (*Paralichthys olivaceus*) において、エストロゲン、エストロゲン様物質、アンドロゲン、抗アンドロゲン剤が及ぼす性分化への影響をすでに解明していることから、このヒラメを用いて $p,p'$ -DDEの影響及び作用機構を調べた。

### 2. 平成17年度の研究成果

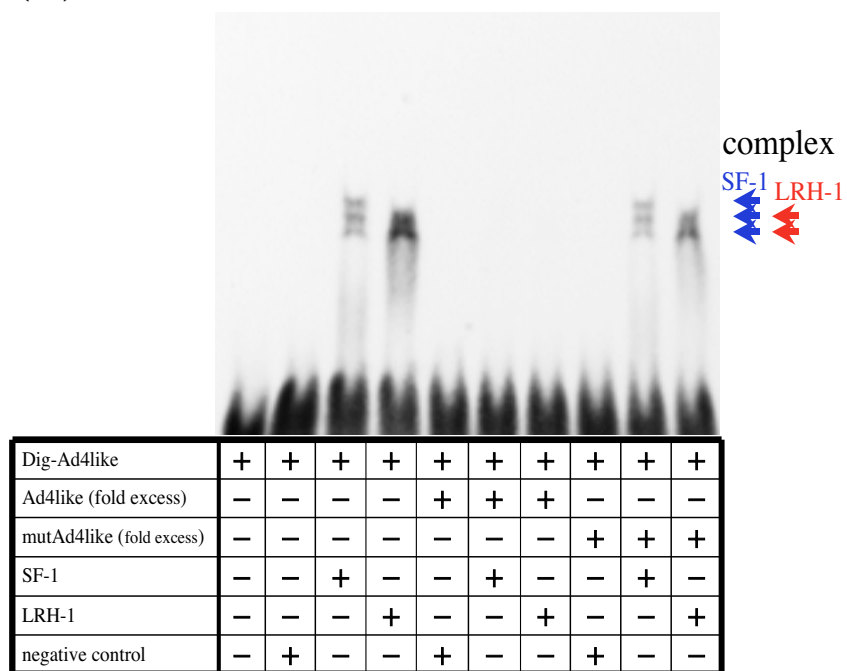
#### ① 魚類の性決定・性分化の分子機構

我々は、XX/XY 型の性決定遺伝子型を持つヒラメにおいて、雌への性分化に伴い発現量が上昇する因子としてアロマターゼ(P450arom)を、雄への性分化に伴って発現量が上昇する因子としてミューラー管抑制因子(MIS)を同定している。本研究では、P450arom 遺伝子と MIS 遺伝子の 5'上流域を単離して解析し、これらの発現制御を行う候補因子を同定することを試みた。両者の 5'上流域の塩基配列を解析した結果、少なくとも P450arom 遺伝子には2ヶ所、MIS 遺伝子には1ヶ所の Ad4 配列(転写因子 SF-1 や LRH-1 が結合する配列)が存在する事が明らかになった。そこで、結合能を持つかどうか調べるため、ヒラメ SF-1 または LRH-1 と Ad4 配列が結合するかどうかゲルシフトアッセイを用いて解析した。その結果、P450arom 遺伝子の2ヶ所、MIS 遺伝子の1ヶ所の Ad4 配列は、ヒラメ SF-1 及び LRH-1 の両方とも結合することが明らかになった(図 1)。これらの事から、転写因子 SF-1 及び LRH-1 は、P450arom 及び MIS の発現制御に関与している可能性が考えられた。

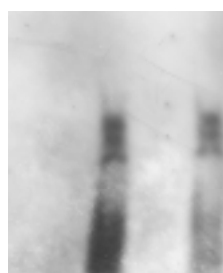
(A)



(B)



(C)



complex  
SF-1 LRH-1

Dig-Ad4	+	+	+	+	+	+	+
Ad4	-	-	+	-	-	+	-
mutAd4	-	-	-	+	-	-	+
SF-1	-	+	+	+	-	-	-
LRH-1	-	-	-	-	+	+	+
negative control	+	-	-	-	-	-	-

図.1 SF-1、LRH-1 と Ad4 配列との結合能の解析（ゲルシフトアッセイ）  
(A): P450arom 遺伝子の 5' 上流域における Ad4 配列の結合能  
(B): P450arom 遺伝子の 5' 上流域における Ad4 類似配列の結合能  
(C): MIS 遺伝子の 5' 上流域における Ad4 配列の結合能

## ②ヒラメ性分化に与える $p,p'$ -DDE の影響

ヒラメ性分化における  $p,p'$ -DDE の影響を明らかにするため、XX ヒラメを高水温処理により雄へと分化誘導し、性分化時期に  $p,p'$ -DDE を投与して雄化が抑制されるかどうか調べた。方法は、日齢 37-100 日間、27 度飼育下で  $p,p'$ -DDE を 0、10、100  $\mu\text{g/g}$  飼料の濃度で経口投与し、日齢 300 日の成魚の性比を調査した。その結果、 $p,p'$ -DDE 濃度 0、10、100  $\mu\text{g/g}$  飼料における雄の割合は、それぞれ 73.3、25.0、16.7%であり、 $p,p'$ -DDE の濃度依存的に雄の割合が減少した(図 2)。このことから、 $p,p'$ -DDE は高水温処理による雄への性転換を抑制させることが分かった。また、日齢 100 日の生殖腺における性分化関連遺伝子の発現を RT-PCR により調べた。その結果、27 度飼育を行った XX ヒラメ(3 個体)の生殖腺においては、すべての個体で P450arom 遺伝子の発現が認められず、MIS 遺伝子の発現が検出されたのに対して、27 度飼育下で  $p,p'$ -DDE 処理を行った XX ヒラメでは、2 個体で P450arom 遺伝子の発現が検出され、その個体では MIS 遺伝子の発現が認められなかった(図 3)。これらのことから、 $p,p'$ -DDE は P450arom 遺伝子の発現を誘導、MIS 遺伝子の発現を抑制することにより、雌化を誘導しているのではないかと考えられた。

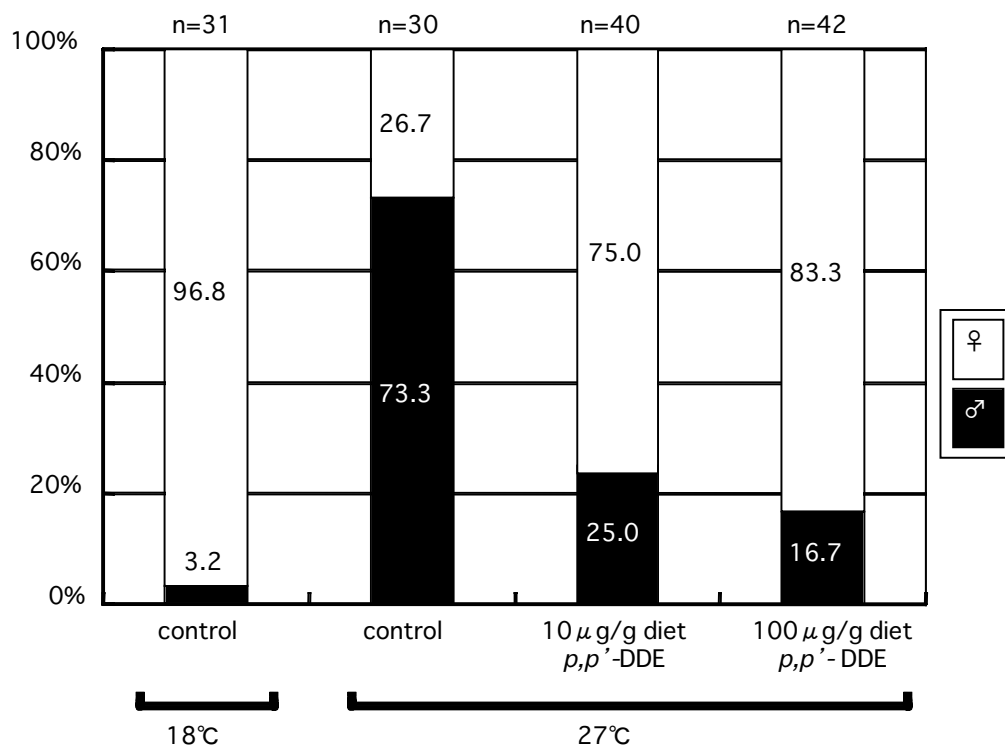


図2  $p,p'$ -DDEの経口投与によるXXヒラメの性比

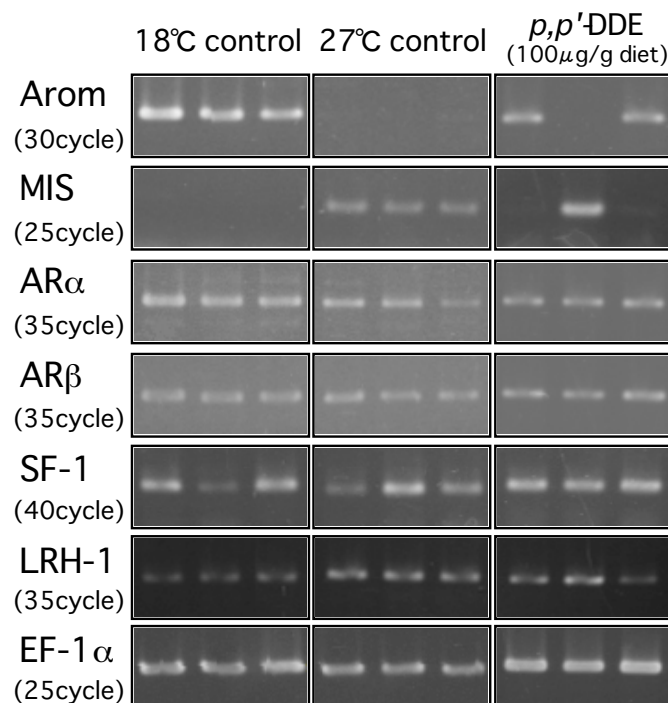


図3 RT-PCRによる性分化関連遺伝子の発現解析



### ③魚類の*in vitro* 評価系を用いた*p,p'*-DDEの作用機構の解析

昨年度までに確立した魚類における内分泌かく乱物質の*in vitro* 評価系を用いて、*p,p'*-DDE の作用機構を解析した。まず、エストロゲン応答レポーターアッセイを行った結果、*p,p'*-DDE の濃度依存的にレポーター活性が上昇した(図 4A)。このことから、*p,p'*-DDE は、魚類に対してエストロゲン活性を持つことが明らかになった。次に、アンドロゲン応答レポーターアッセイを行った結果、 $10^{-5}$ M の *p,p'*-DDE でレポーター活性が有意に減少した(図 4B)。このことから、*p,p'*-DDE は、魚類に対してエストロゲン活性に加えて抗アンドロゲン活性も持つことが明らかになった。これらの事を総合して考えると、*p,p'*-DDE は魚類に対して大変強い雌化作用を持っており、ヒラメに対しても実験レベルでは雌化を誘導することから、有明海などの沿岸域に生息する他の生物への影響も調べる必要があるのではないかと考えられた。

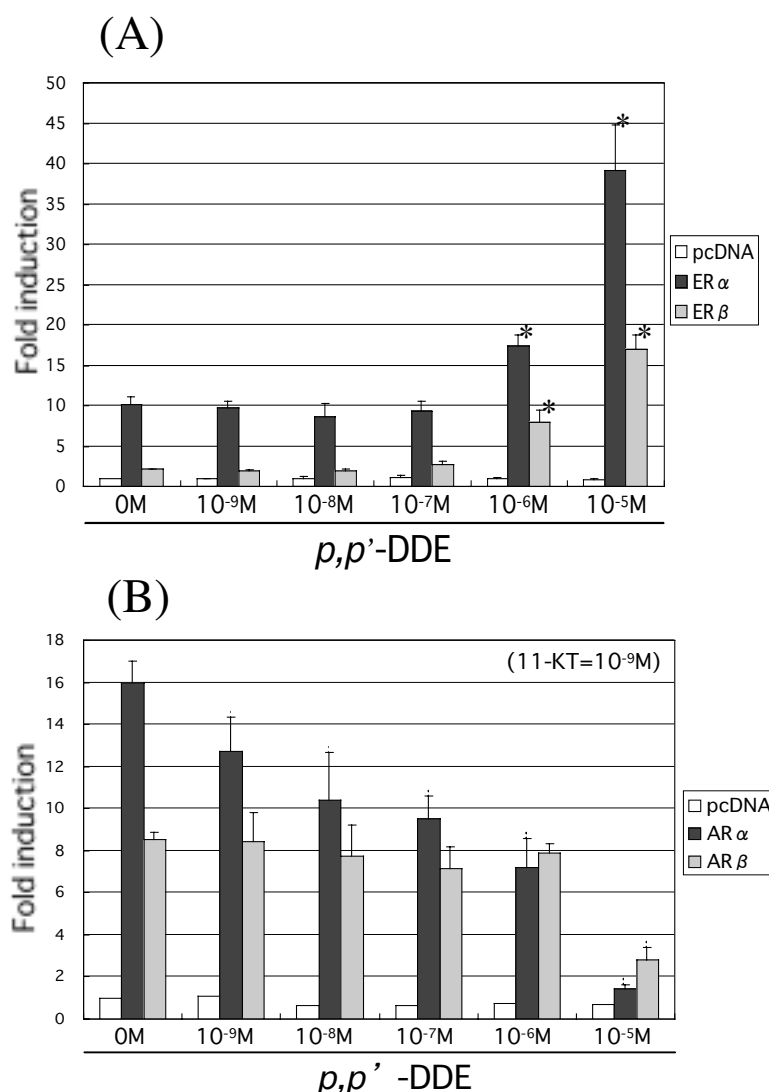


図4 *p,p'*-DDEにおけるエストロゲン(A)及び抗アンドロゲン(B)活性  
(\*:  $P < 0.05$ )

## 2. 成果の達成度

今年度は、有明海などでも今なお検出される $p,p'$ -DDEの影響及び作用機構を明らかにすることができたため、目標は十分達成できたと考えている。

## 3. 今年度の問題など

特になし。

## 4. 来年度の目的・目標

- 1) 精巣におけるアポトーシスの機構について両生類をモデルとして、リガンドがどのようにして受容体を活性化するか、細胞内でどのようにシグナルが伝わるか、死の実行過程はどのようなものか、について調べる。
- 2) 環境毒性物質の精子形成に対する影響を両生類精巣培養系を用いて調べる。

## 5. 平成17年度の研究費取得状況

- (1) 基盤研究(B), 2002-2005 年, 300 万円(平成 17 年度分), 精原細胞の減数分裂開始機構
- (2) 萌芽研究、2005-2006 年、210 万円(平成 17 年度分), 「体細胞に対する減数分裂の誘導」
- (3) 戦略的創造研究推進事業(CREST), 2000-2005年, 400万円(平成17年度分), 魚類における内分泌攪乱物質の作用メカニズムの解明
- (4) 特定領域研究(公募研究), 2005-2007年, 340万円(平成17年度分), 温度依存性性決定の分子メカニズム
- (5) 若手研究B, 2005-2007年, 220万円(平成17年度分), メダカにおける性転換変異体の解析による雌化機構
- (6) 受託研究(アークリソース(株)), 2005-2007年, 130万円(平成17年度分), 魚類始原生殖細胞の増殖および分化誘導に関する研究

## 6. 平成17年度の研究発表、特許状況

- (1) 原著論文による発表

### ① 国内誌 (和文)

なし

### ② 国際誌 (欧文)

1. Kitano, T., Yoshinaga, N., Shiraishi, E., Koyanagi, T. and Abe, S. (2006)  
Tamoxifen induces masculinization of genetic females and regulates P450 aromatase and Müllerian inhibiting substance mRNA expression in Japanese flounder (*Paralichthys olivaceus*). **Molecular Reproduction and Development** (In press).
2. Kitano, T., Koyanagi, T., Adachi, R., Sakimura, N., Takamune, K. and Abe, S. (2006)  
Assessment of estrogenic chemicals using an estrogen receptor (ER)- and ER-mediated reporter gene assay in fish. **Marine Biology** 149, 49-55.
3. Nakata, H., Nasu, T., Abe, S., Kitano, T., Fan, Q., Li W. and Ding, X. (2005)  
Organochlorine contaminants in human adipose tissues from China: mass balance approach for estimating historical exposure to DDTs by Chinese. **Environmental Science and Technology**

39, 4714-4720.

(2) 原著論文以外による発表  
なし

(3) 口頭発表

1. Kitano, T., Adachi, R., Yoshinaga, N. and Abe, S.  
Role of androgen in gonadal sex differentiation in Japanese flounder (*Paralichthys olivaceus*).  
The 15<sup>th</sup> International Congress of Comparative Endocrinology (Boston, USA), 27 May 2005.
2. Shiraishi, E., Yoshinaga, N., Miura, T., Wakamatsu, Y., Ozato, K., Abe, S. and Kitano, T.  
Müllerian inhibiting substance is required for sexually dimorphic proliferation of  
germ cells during gonadal sex differentiation in medaka (*Oryzias latipes*).  
The 15<sup>th</sup> International Congress of Comparative Endocrinology (Boston, USA), 27 May 2005.
3. Yang, J., Adachi, R., Yoshinaga, N., Abe, S. and Kitano, T.  
Effects of estrogen and estrogenic chemicals on gonadal sex differentiation in Japanese  
flounder (*Paralichthys olivaceus*). The 15<sup>th</sup> International Congress of Comparative  
Endocrinology (Boston, USA), 27 May 2005.
4. Ohta, K., Sundaray, J.K., Kitano, T., Shibata, Y., Matsuda, M., Yamaguchi, A., Matsuyama,  
M. and Nagahama, Y.  
Involvement of 17 $\beta$ -hydroxysteroid dehydrogenase in the sex change of a protogynous  
wrasse, *Pseudolabrus sieboldi*. The 15<sup>th</sup> International Congress of Comparative  
Endocrinology (Boston, USA), 27 May 2005.
5. 白石絵吏、三浦猛、若松佑子、安部眞一、北野健.  
ミュラー管抑制物質ホモログはメダカ性分化過程における生殖細胞の増殖に必須で  
ある. 日本発生生物学会第 38 回大会(仙台)、2005 年 6 月 4 日.
6. 白石絵吏、三浦猛、若松佑子、安部眞一、北野健.  
メダカ性分化におけるミュラー管抑制物質ホモログの発現及び機能解析. 第 11 回小型  
魚類研究会(岡崎)、2005 年 10 月 1 日.
7. 蛭原智美、白石絵吏、平井俊朗、安部眞一、北野健.  
メダカにおける生殖腺刺激ホルモン受容体の発現及び機能解析. 第 11 回小型魚類研究  
会(岡崎)、2005 年 10 月 1 日.
8. 山口寿哉、吉永憲史、平井俊朗、安部眞一、北野健.  
ヒラメ性分化における *Foxl2* mRNA の発現解析. 第 30 回日本比較内分泌学会大会(熊  
本)、2005 年 11 月 12 日.
9. 蛭原智美、白石絵吏、平井俊朗、安部眞一、北野健.  
メダカにおける生殖腺刺激ホルモン受容体の発現及び機能解析. 第 30 回日本比較内分  
泌学会大会(熊本)、2005 年 11 月 12 日.
10. 白水剛、白石絵吏、吉永憲史、金森章、久保優子、堀寛、安部眞一、北野健.  
魚類におけるミュラー管抑制物質の発現制御機構の解析. 第 30 回日本比較内分泌学  
会大会(熊本)、2005 年 11 月 12 日.

## 平成 17 年度研究成果報告（単年度研究成果）

研究課題名：養殖ノリ色落ちによる環境モニタリング

所属・氏名：沿岸域環境科学教育研究センター・滝尾 進

### 1. 研究目的・目標

#### H15 年度～21 年度における目的・目標

植物は外部環境の変化に対しさまざまな応答を示す。なかでも、エネルギー生産の場である葉緑体では反応中心複合体やアンテナ色素複合体は光条件だけではなく栄養欠乏などの各種ストレスにも応答しダイナミックな変動を示す。しかし、緑色植物ではそれらを構成する主要な色素がクロロフィルであるため、これらの構成成分の構造変化を植物の色調変化としては検出しにくい。

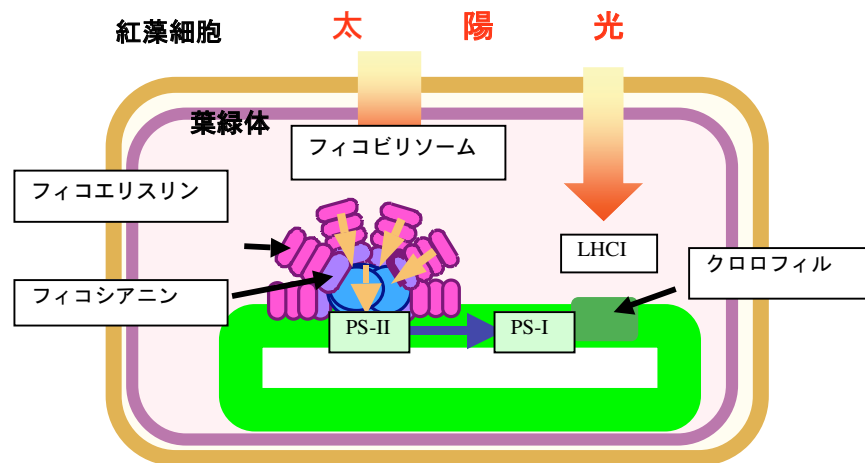


図1 紅藻のアンテナ装置

一方、紅藻やラン藻では、アンテナ色素としてクロロフィルの他に多量の紅色フィコビルン類を含むため〔図1〕、環境変化に対し多様な「色調変化」を示す。

ノリ養殖に利用されている紅藻スサビノリは、我国の海水面養殖産業における重要な資源植物のひとつである。養殖ノリの色調は商品価値を決定する最も重要な形質であり、赤潮などによるいわゆる「ノリの色落ち」は養殖産業において重要な課題の一つであるが、養殖ノリの色調形成の分子機構はまったく研究されていなかった。本研究の目的は、沿岸域水環境モニタリングのための形質転換スサビノリを作出する第一歩として、スサビノリの色調形成に関与する遺伝子を分離し、それらの発現調節機構を明らかにすることである。

## H17 年度の目的・目標

ラン藻の色落ち（フィコビリソーム分解）を制御する遺伝子 *NbIA* とアミノ酸配列において相同性のあるスサビノリ葉緑体遺伝子 *Ycf18* がラン藻と同様に栄養欠乏によるフィコビリソーム分解制御に関与するのではないかと考え、*Ycf18* 遺伝子の各種栄養欠乏における発現パターンを調べてきた。昨年度までの研究により、ノリ養殖において主要な色落ちの原因となる窒素欠乏やリン欠乏にはスサビノリ *Ycf18* が応答しないことから、真核植物であるスサビノリではラン藻とは異なる機構によりフィコビリソームの分解が制御されていると推定された。そこで平成 17 年度は、栄養欠乏によるフィコビリソーム分解の初期反応を明らかにする第一歩として、初期反応で働くプロテアーゼ遺伝子の同定を試みる。また、本年度は、拠点形成 B におけるグループ間の共同研究課題として計画していた「養殖ノリのリモートセンシング技術の開発」の基礎研究も小池教授の協力のもと実施する。

## 2. 研究成果

### （1）前年度までの主な成果

ラン藻では窒素欠乏時にも退色しない変異体が分離され、その原因遺伝子として *NbIA* が同定されている。*NbIA* は通常の栄養状態ではその発現は抑制されているが、窒素欠乏などのさまざまな環境ストレスにより誘導され、退色の誘導に必須であることが明らかになっている。

*NbIA* と相同性のある遺伝子 *Ycf18* が紅藻類の葉緑体ゲノムに存在するが、機能解析は行われていなかった。そこで、スサビノリより *Ycf18* 遺伝子を分離し、その発現パターンを調べ、以下のことを明らかにしてきた。

- ①スサビノリ *Ycf18* 遺伝子は通常条件下でわずかながら発現し、窒素欠乏により発現が低下した。
- ②ラン藻 *NbIA* 遺伝子は近接する遺伝子とは共転写することではなく、単独で発現調節されていたが、スサビノリ *Ycf18* 遺伝子は下流のフィコエリスリン遺伝子と共転写していた。
- ③*Ycf18* は窒素やリン欠乏には応答しないが、鉄欠乏により発現が増大した。

いずれの条件下でもフィコビリニン量およびクロロフィル量は減少したが、窒素欠乏やリン欠乏とは異なり鉄欠乏では葉状体が赤色化した。フィコエリスリンやフィコシアニン遺伝子の発現レベルは窒素欠乏とリン欠乏では培養と共に低下したが、鉄欠乏では高発現を維持していた。

このように、当初は *Ycf18* を色落ち制御遺伝子の候補として研究を開始したが、その発現パターンは *NbIA* とは異なり「色落ち」よりもむしろ「色作り」に関与する可能性が生じた。特に、鉄欠乏では色素量の低下が見られるにも関わらず、フィコビリニン遺伝子が高発現していることから、*ycf18* は鉄欠乏時の赤色化に伴うフィコビリソームの再構築に関与するのではないかと考えられた。

## (2) 当該年度に得られた成果

### 1. 色落ちの分子機構

ラン藻では窒素欠乏で誘導されるフィコビリソーム分解活性をもつプロテアーゼが存在することが報告されている。しかし、スサビノリのプロテアーゼについてはまったく研究例がない。そこで、スサビノリのフィコビリソーム特異的プロテアーゼ遺伝子を同定するための第一歩として、プロテアーゼ遺伝子の各種栄養欠乏に対する応答を調べた (図 2)。

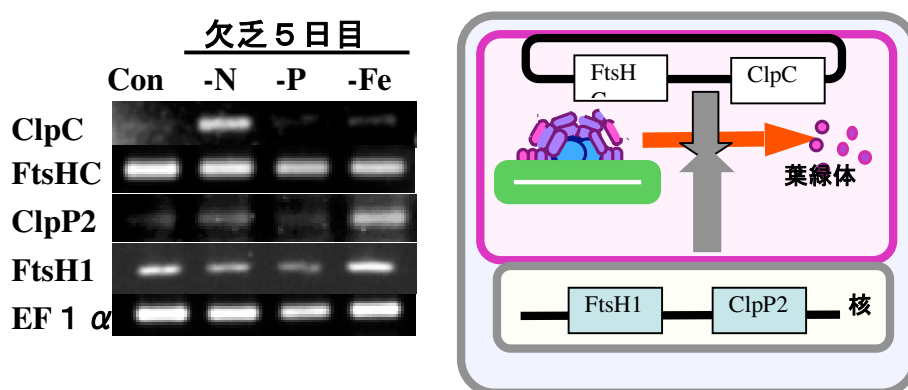


図2 欠乏条件下でのスサビノリプロテアーゼ遺伝子の発現レベル

葉緑体ゲノムにコードされるプロテアーゼ遺伝子 (*FtsHC*, *ClpC* 遺伝子) および、スサビノリ EST データベースに見られるプロテアーゼ遺伝子 (*FtsH1*, *ClpP2* 遺伝子) を分離した。窒素欠乏、リン欠乏、鉄欠乏条件下で培養したノリ葉状体より全 RNA を分離し RT-PCR 法によりこれらの遺伝子の発現量を調べたところ、2 種の *FtsH* 遺伝子は通常状態でも発現し、三種の欠乏条件においても顕著な変化はみられなかった。一方、葉緑体ゲノムにコードされる *ClpC* は窒素欠乏で発現が誘導され、また、核コードの *ClpP2* は鉄欠乏で発現が増大した。*FtsH1* 遺伝子は葉緑体移行シグナル配列をもつことから産物は葉緑体で働くと考えられる。*ClpP2* も EST データでは葉緑体移行シグナル配列をもっていたが、PCR 増幅産物の塩基配列を調べたところ葉緑体移行シグナル配列の部位のみが除去されていた。従って、*ClpP2* は鉄欠乏により発現が増大したが、このプロテアーゼは細胞質でのタンパク分解に関与していると考えられた。

### 2. リモートセンシングを用いた養殖ノリのモニタリング技術の開発

海洋植物を対象としたリモートセンシングとしては、赤潮プランクトンの消長や藻場の探査などが知られている。有明海ではノリ養殖が盛んであり養殖時期にはノリ網は沿岸域海面の多くを占有することから、リモートセンシングの対象として利用できる可能性がある。従来リモートセンシングの対象となっていた植物は緑色植物であり、養殖ノリのような紅藻類についての研究例はない。そこで、スサビノリのリモートセンシング技術の開発の第一歩として、各種栄養欠乏によるノリの反射スペクトルの変化について調べた。完全合成培地で培養したスサビノリ葉状体および培地から窒素、リン、鉄、マンガン、亜鉛

をそれぞれ除去した欠乏培地で培養した葉状体を $-80^{\circ}\text{C}$ で凍結保存し、生重量約 0.5–1 g のノリを使用直前に凍解し、一部を用いてフィコエリスリン、フィコシアニン、クロロフィル量も測定し、乾燥重量あたりの色素量を算出した（図 3）。

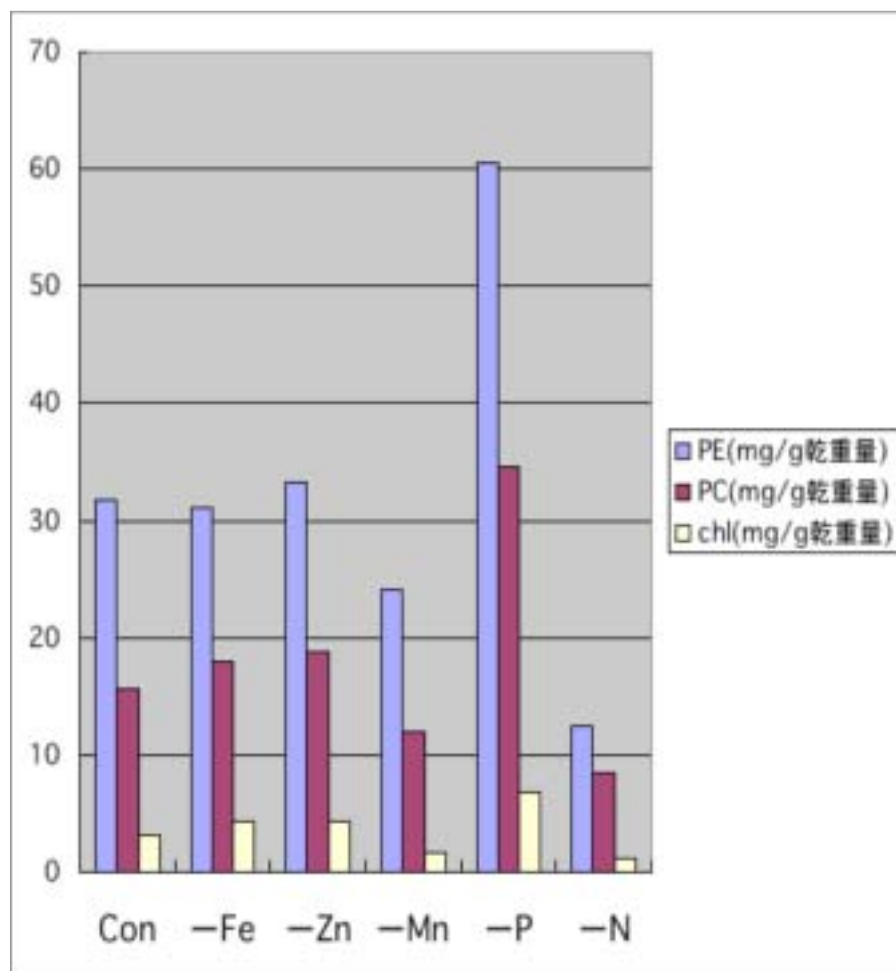


図 3 各種欠乏培地で生育した葉状体の色素量

残りの凍解サンプルは蒸留水を加えてピンセットを用いて小型ガラスシャーレ壁面に薄く広げ、FieldSpec Pro(イメージワン)により  $0.35\sim 2.5\ \mu\text{m}$  の範囲の連続反射スペクトルを測定した（図 4）。

欠乏培地に移植して 5 日間培養した場合、窒素欠乏では顕著な色素量の減少が観察されたが、他の欠乏培地では顕著な減少はみられなかった。

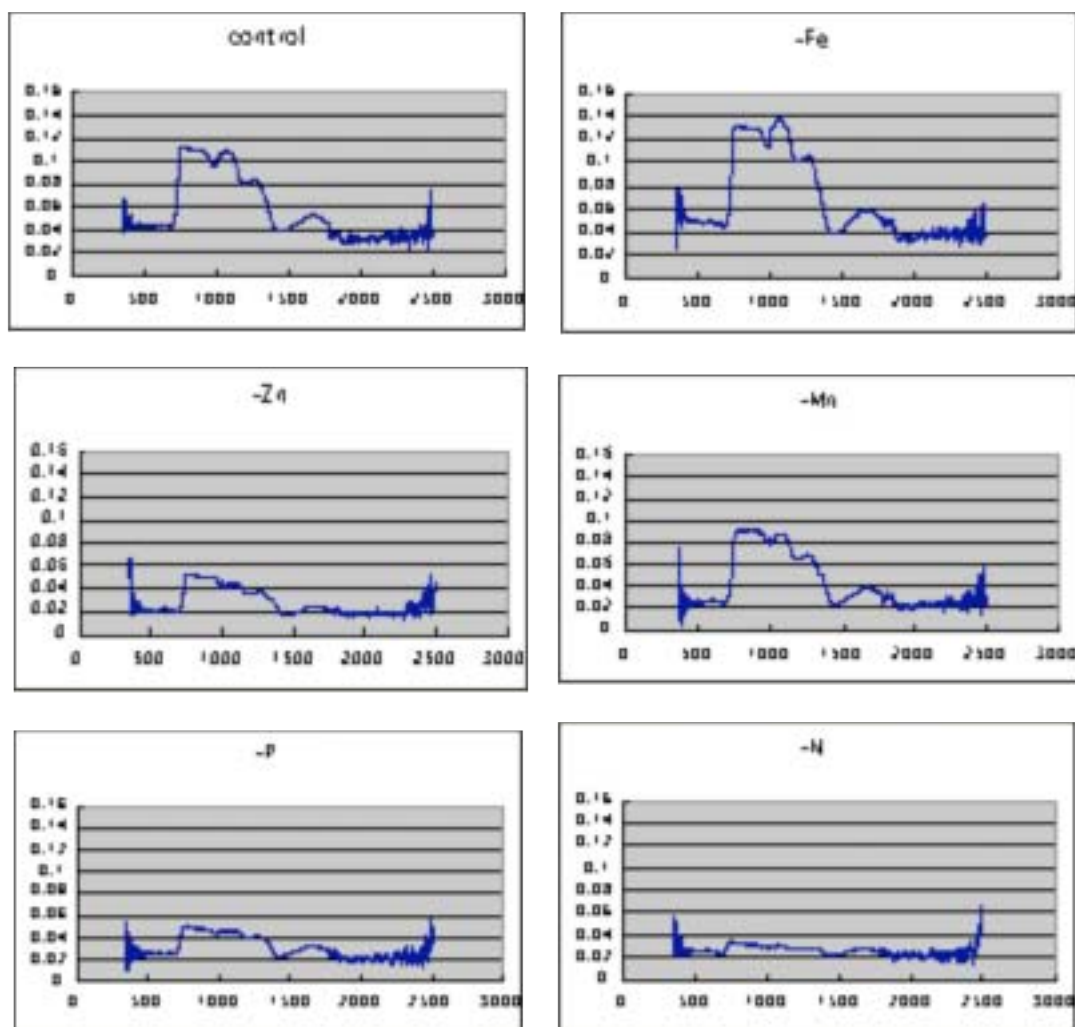


図4 各種欠乏処理葉状体の反射スペクトル

未処理の葉状体では、緑色植物で報告されている反射スペクトルと同様のスペクトルを示した。一方、窒素欠乏，リン欠乏，亜鉛欠乏では1～2  $\mu\text{m}$  域での反射率の顕著な減少がみられた。しかし，マンガン欠乏では反射率の減少はみられず，鉄欠乏では反射率の増大が見られた。これらの結果は欠乏条件の種類と色素量の減少との関係とは異なる結果であった。

### 3. 成果の達成度

#### 1. フィコビリソーム分解に関わるプロテアーゼ遺伝子の同定

窒素欠乏については顕著な応答を示す遺伝子は見出せなかった。しかし，細胞質で働くと考えられる ClpP2 が鉄欠乏に応答することが明らかになり，葉緑体以外の細胞内部位で働くプロテアーゼ遺伝子の挙動についても検討の必要性が考えられた。

#### 2. スサビノリのリモートセンシング



従来リモートセンシングの対象となっていた植物は緑色植物であり、スサビノリのような紅藻類についての研究例はなかった。今年度の予備実験により、スサビノリでも通常の緑色植物と類似の反射スペクトルが得られ、また、色素量では識別できない初期の栄養欠乏においても反射スペクトルでは識別が可能であることが示唆された。これらは今後の進展に期待がもてる成果であった。

#### 4. H18 年度の目的・目標

1. 栄養欠乏によるフィコビリソーム分解に働くプロテアーゼ遺伝子の同定：現時点では、スサビノリからは窒素欠乏により誘導される葉緑体移行型プロテアーゼ遺伝子は分離できていない。H18 年度は、葉緑体ゲノムやスサビノリ EST にみられる本年度は未解析であったプロテアーゼ遺伝子について検討する。

#### 2. スサビノリのリモートセンシング

今回は実験室内で培養したスサビノリを使用した。使用した材料が生重量 1 g 以下と少量であったため、測定精度を高めるために H18 年度ではさらに多量の材料を用いて測定を行なう。鉄、亜鉛、マンガン欠乏以外の金属欠乏や金属過重の効果についても検討を行ない、反射スペクトルを用いてスサビノリの重金属応答能を明らかにする。

#### 5. 研究費取得状況

- ・ 特定領域研究「葉緑体の増殖制御機構と遺伝子発現調節による植物の高度機能発現」（平成 16～20 年度，分担）

#### 6. 研究発表，特許状況

##### （1）原著論文による発表

##### ① 国内誌（和文）なし

##### ② 国際誌（欧文）

- (1) Kimura, T., Tanaka, Y., Hanada, K., Takio, S., and Saito, A. (2005) Cryptic polyadenylation of transcripts of an RNA virus gene introduced into tobacco plants. *Biosci. Biotechnol. Biochem.* 69: 2005-2008.
- (2) Lin, X., Zhang, W., Takechi, K., Takio, S., Ono, K. and Takano, H. (2005) Stable genetic transformation of *Larix gmelinii* L. by particle bombardment of zygotic embryos. *Plant Cell Rep.* 24: 418-425.
- (3) Hayashida, A., Takechi, K., Sugiyama, M., Kubo, M., Takio, S., Hiwatashi, Y., Hasebe, M., Takano, H. (2005) Isolation of mutant lines with decrease number of chloroplasts per cell from tagged mutagenesis library of moss *Physcomitrella patens*. *Plant Biol.* 7: 300-306.

##### （2）原著論文以外による発表（今年度）：なし

##### （3）学会発表

1. Takano, H., Machida, M., Takio, S., Takechi, K., Hasebe, M. Plant homologs of bacterial peptidoglycan biosynthesis genes in moss. XVII International Botanical Congress, June, 17-23, Vienna at Austria

2. Hayashida, A., Takechi, K., Takio, S., Fujita, T., Hiwatashi, Y., Hasebe, M., Takano, H.  
Isolation of mutant lines with decreased numbers of chloroplasts per cell from a tagged mutant library of the moss *Physcomitrella patens*. Moss 2005, June, 23-26, Brno at Czech
3. 丁成鎮, 武智克彰, 滝尾進, 小野莞爾, 高野博嘉, シロイヌナズナ cDNA マクロアレイを用いたコケ植物の遺伝子発現解析, 第 55 回日本植物学会九州支部大会, 沖縄, (2005 年 5 月 14—15 日)
4. 川上智弘, 岩松 望, 武智克彰, 高野博嘉, 滝尾 進, スサビノリ光合成集光装置の鉄欠乏に対する応答, 第 8 回日本マリンバイオテクノロジー学会, 熊本 (2005 年 5 月 28-29 日)
5. 山崎 剛, 滝尾 進, 石田 昭夫, 海洋細菌 *Serratia rubidaea* N-1 株の色素生産に及ぼす塩分ストレスとリン酸の影響について, 第 8 回日本マリンバイオテクノロジー学会, 熊本 (2005 年 5 月 28-29 日)
6. 張文波, 林曉飛, 武智克彰, 高野博嘉, 滝尾 進, スサビノリからのレトロトランスポゾン遺伝子の単離と解析, 第 8 回日本マリンバイオテクノロジー学会, 熊本 (2005 年 5 月 28-29 日)
7. 武智克彰, 山田孝幸, 池上亮太, 佐藤博, 伊藤竜一, 滝尾進, 高野博嘉, ヒメツリガネゴケ葉緑体型ダイナミン及び MinD 遺伝子群の破壊は葉緑体の減少を引き起こす, 第 69 回日本植物学会大会, 富山, (2005 年 9 月 21-23 日)
8. S. Peddigari, 張文波, 武智克彰, 高野博嘉, 滝尾進, Copia like retrotransposon in a red alga *Porphyra yezoensis*, 第 69 回日本植物学会大会, 富山, (2005 年 9 月 21-23 日)
9. 林孝憲, 武智克彰, 高野博嘉, 滝尾進, ヤナギタデのカテキン類合成系遺伝子 ANR と LAR の分離と発現様式, 第 69 回日本植物学会大会, 富山, (2005 年 9 月 21-23 日)
10. 岩松望, 川上智弘, 武智克彰, 高野博嘉, 滝尾進, 養殖ノリの鉄欠乏による赤色化に関する研究, 第 3 回みらい有明・不知火シンポジウム, 熊本 (2005 年 10 月 28—29 日)
11. 滝尾進, 養殖ノリ色落ちの仕組みを探る遺伝子研究, 第 4 回沿岸域環境科学教育研究センター講演会 (2006 年 3 月 17 日)
12. 武智克彰, 池上亮太, 佐藤博, 町田真理子, 滝尾進, 長谷部光泰, 高野博嘉, ヒメツリガネゴケに保存された細菌のペプチドグリカン合成に関わる MurE, Pbp 遺伝子の機能解析, 第 47 回植物生理学会年会, つくば, (2006 年 3 月 19-21 日)
13. 滝尾 進, 栄養欠乏による養殖ノリ色落ちと葉緑体タンパク遺伝子の発現応答, 平成 18 年度日本水産学会大会, 高知 (2006 年 3 月 29 日—4 月 2 日)

(4) 特許：なし

## 平成17年度研究成果報告

研究課題名：沿岸域における生物多様性と生物資源の保全に関する研究

所属・氏名：沿岸域環境科学教育研究センター・逸見泰久

### 1. 研究目的・目標

#### (1) H15年度～21年度における目的・目標

現在、有明海・八代海の水産資源は環境の悪化により衰退の一途にある。また、両海域の生物多様性は減少し、両海域に特徴的で学術的にも貴重な種が急速に失われている。さらに、外来種の侵入による遺伝子汚染の問題も顕在化してきた。本研究は、両海域の生態系の把握を通して、生物多様性の維持機構を解明すること、さらに、水産資源の持続的利用システムを開発することを目的とする。

#### (2) H17年度の目的・目標

本年度は、有明海・八代海の沿岸域を中心に、生物多様性の保全・水産資源の持続的利用・環境に調和した防災と開発という3つのプロジェクトを中心に研究を行った。

「生物多様性の保全」では、熊本県内の干潟で底生生物相の調査を行い、生物生息環境の調査方法ならびに評価方法の開発を行うことを目的とした。また、ハクセンシオマネキやナメクジウオなど、両海域を代表する生物を対象に、生活史や生息状況に関する研究を行うことを目的とした。

「水産資源の持続的利用」では、タイラギとハマグリを研究材料に、生息環境悪化ならびに乱獲が資源量に与える影響を評価し、生息環境の保全ならびに資源管理技術の開発を推進することを目的として研究を行った。

「環境に調和した防災と開発」では、主として八代海北岸の高潮堤防建設を対象として、塩性植物や貝類の移植ならびに生息地創出の技術開発を行った。

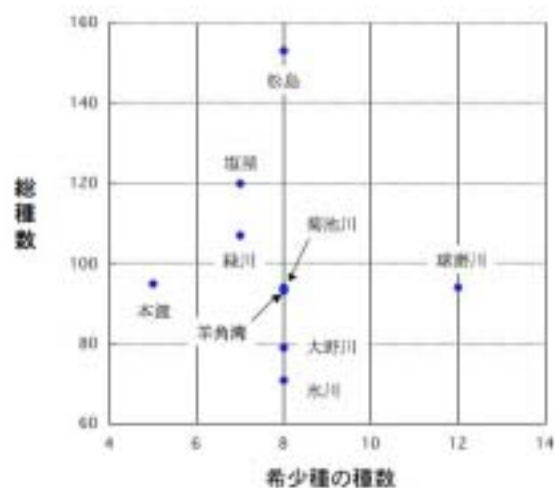
### 2. 平成17年度の研究成果

#### ② 生物多様性の保全

熊本県内の生物多様性の高い9海岸(図1)を対象に、最近実施された底生動物の現地調査を基に、生物棲息環境の評価技術の検討を行った。評価の対象としたのは、出現種数ならびに希少種の種数(熊本県レッドデータリストの絶滅危惧IA・IBの種数)である。その結果、両者の相関は弱く(図2)、多くのアセスメントで行われている「希少種を指標とした評価」には問題が多いことが浮き彫りになった。

ハクセンシオマネキについては、なわばりや繁殖行動を中心に、ナメクジウオについては個体群構造の年変動と成長を中心に研究を進め、成果を学術雑誌や学会で発表した。

なお、韓国の沿岸域でも生物多様性の保全に関する研究を行ったが、日韓の生物多様性保全に対する基礎研究が評価され、逸見が代表を務める「日韓干潟調査団」が、「日韓国際環境賞」(毎日新聞社・朝鮮日報社共催)を受賞した。



### ③ 水産資源の持続的利用

a. タイラギ *Atrina pectinata*

タイラギは、浅海・干潟の砂泥底に生息する羽箒形の二枚貝である。有明海では重要な漁業対象種で、アサリに次いで漁業生産額が大きい二枚貝であった。しかし、近年、有明海では本種の大量死が続き、長崎県では 1993 年より、佐賀・福岡・熊本県では 1999 年より休漁が続いている。大量死の原因については、酸欠、有害物質の流入、底質の泥化、捕食者の増加などいろいろな説が出されているが、現在のところ、特定できていない。有明海におけるタイラギ大量死の原因を明らかにするため、2000 年に開始した資源保全に関する研究を継続して行った。

表 1 1999～2005 年におけるタイラギの着底と大量死の概要

1. 密度（春の稚貝） 1平方メートルあたりの個体数

	浅海	浅海最上部	干潟
1999年（平成11年）	不明	不明	不明
2000年（平成12年）	200～800	-----	12～16
2001年（平成13年）	150～200	-----	6～10
2002年（平成14年）	20以下？	6～7	3～4
2003年（平成15年）	100～200	-----	5～8
2004年（平成16年）	30～40	不明	30～50
2005年（平成17年）	2～3	不明	1以下

## 2. 大量死が始まった時期

	浅海	浅海最上部	干潟
1999年（平成11年）	不明	不明	不明
2000年（平成12年）	7月下旬	-----	健全に生育
2001年（平成13年）	5月下旬	-----	健全に生育
2002年（平成14年）	4月上旬	健全に生育	健全に生育
2003年（平成15年）	6月下旬	-----	健全に生育
2004年（平成16年）	7月中旬	健全に生育	健全に生育
2005年（平成17年）	?	?	?

----- : 適当な生息地が発見できなかったため、調査せず

調査の結果、浅海ではタイラギの定着は多く（最大 800 個体/m<sup>2</sup>）、春までは順調に成長したが（4 月の時点で殻長 10cm 程度）、夏を中心に死滅し、秋までに全滅した（表）。一方、干潟では、定着は少なかったが（3～50 個体/m<sup>2</sup>）、大量死は観察されなかった。大量死が起きた浅海では、夏になると成長が止まり、生殖腺も小さかった。一方、干潟では夏の成長が最もよく、生殖腺も肥大した。以上の結果より、タイラギの大量死は、生息環境の悪化によることが示唆された。具体的には、貧酸素水塊の発生が最も疑わしく、これには温暖化も影響していると思われるが、秋以降に大量死が起きた場所もあることより、それ以外の要因（例えば、有害物質の堆積など）についての検討も必要である。

さらに、表からも明らかなように、稚貝の加入は、浅海域では減少し、干潟域では増加している。有明海西部浅海域（長崎県など）では稚貝加入の激減のため、タイラギがほとんど生息していないが、東部浅海域でも同様に、海底環境の悪化によって、稚貝が減少しつつある可能性が強い。そして、稚貝激減は、海底の泥化が原因であると考えられている。

干潟域では、逆に稚貝が増加しているが（2005 年は激減）、これは浅海域に定着できなかった稚貝が仕方なく干潟に定着したのか、干潟がタイラギの定着に適するように変化したのかは不明である。しかし、博多湾では、「生息地が浅海から干潟に移った後で、タイラギが絶滅した」との漁民証言もあり、楽観はできない。

このように、有明海浅海域では、「稚貝加入量の激減」と「成貝の大量死」というダブルパンチで、タイラギ資源が壊滅に向かっている。

## b. ハマグリ

日本と韓国でハマグリ類の生息状況に関する研究を進めているが、本年度は特に資源管理に重点を置き、熊本市白川河口と福岡県加布里湾で個体群の比較調査を行った。熊本県は、ハマグリ生産量日本一の県であるが、そのことはあまり知られていない。また、いずれの漁場においてもハマグリは乱獲状態で、絶滅が危惧されるほど資源量が減少している。一方、加布里では厳格なハマグリ資源管理が行われている。具体的には、熊本県では殻長3cm未満の漁獲が禁止されているだけであるが、加布里では殻長5cm未満の漁獲の禁止に加えて、漁期（11月～翌年3月）、漁獲量（1人1日10kgまで）、漁場（海域を3漁場に分け毎年そのうちの1つで漁獲、河川内では漁獲禁止）の制限がある。

調査の結果、加布里湾の1 m<sup>2</sup>あたりのハマグリの密度は、河川内は119.4±50.9 /m<sup>2</sup>（平均±標準偏差, N=20）、海域上部は32.2±19.1 /m<sup>2</sup>（N=20）、海域下部は84.8±70.9 /m<sup>2</sup>（N=20）と非常に高密度であった（図3）。また、殻長30mm未満、30～50mm未満、50mm以上の割合は、河川で77%, 22%, 1%, 海域上部で70%, 26%, 4%, 海域下部で59%, 29%, 1%と、海域の方が大型個体の割合が高かった。一方、白川河口では低密度であったため、河川上部と海域ではハマグリ密度は算出できなかったが、ハマグリの密度は比較的高密度の河川下部でさえ7.8±8.8 /m<sup>2</sup>（N=20）と加布里に比べてずっと低かった（図4）。また、殻長30mm未満、30～50mm未満、50mm以上の割合は、河川上部で90%, 10%, 0%, 河川下部で80%, 20%, 0%, 海域で55%, 36%, 9%と、加布里に比べて大型個体の割合は低かった。しかし、海域の方が大型個体の割合が高い傾向は変わりなかった。

このように、厳格な管理漁業と乱獲。この違いは資源量の差として明確に現れている。すなわち、加布里ではハマグリの密度が平均約80個 /m<sup>2</sup>であるのに対して、白川河口では比較的高密度の河川下部でさえ10分の1程度の平均7.8個 /m<sup>2</sup>に過ぎなかった。また、

白川河口では殻長 3 cm 以上のハマグリ割合が低く、特に殻長 5 cm 以上のハマグリはほとんど見つからなかったが、これも大型個体が高い漁獲圧にさらされているためと思われる。

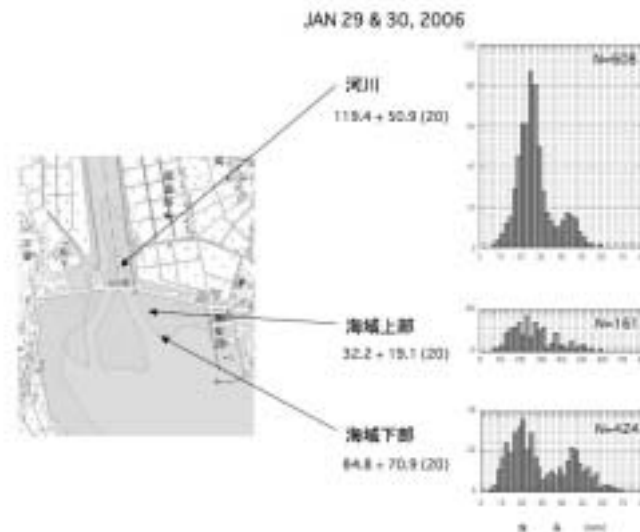


図3 加布里湾におけるハマグリの殻長組成

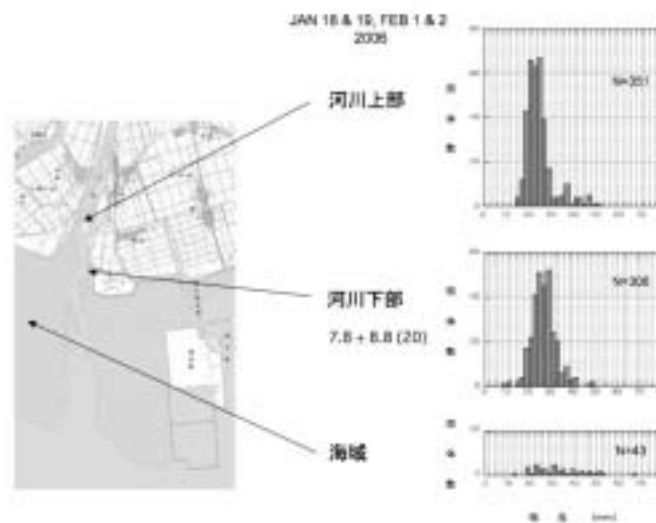


図4 白川河口におけるハマグリの殻長組成

しかし、単に漁獲量だけを比べると、緑川・白川河口は加布里の約 5 倍あり、これはハマグリに限れば全国一の漁獲量である。原因は、漁場の広さの違いによるもので、ハマグリの棲息面積は正確には把握できていないが、棲息密度と漁獲量から単純に計算すると、緑川・白川河口は加布里の50倍程度広い漁場を持つものと推測される。

緑川・白川河口においても厳格なハマグリの漁獲制限が実施されれば、加布里のようにハマグリ資源を回復することも可能かもしれない。しかし、そのためには、棲息状況や成長量・産卵量などの科学的データの蓄積だけでなく、漁業権の設定や漁業者間の合意形成

などとも必要となるであろう。

今後、ハマグリ資源を保全するためには、ブランド化も見据えて、大学・県・漁業者・流通関係者などが頻繁に協議の場を持つことが不可欠である。

#### ④ 環境に調和した防災と開発

護岸改修工事や水門の増設が塩性湿地生物群集へ与える影響を最小限に留めるために、塩性湿地生物群集の現状把握と再生・創出（具体的には、塩性湿地生物群集の移植技術開発と人工シェルターによる貝類群集棲息環境改善）を行った。八代海北部では、近年、護岸改修工事が相継ぎ、棲息環境の消失・悪化が著しい。特に、1999年の台風18号による高潮・高波災害以降、八代海湾奥部では護岸改修工事や水門の増設が盛んに行われるようになり、塩性湿地や周辺の干潟の消失・悪化が続いている。防災の重要性は言うまでもないが、そのために生物多様性が犠牲になることは、可能な限り避けなくてはならない。

調査方法としては、2005年5月末から7月末に行われた堤防増設工事に先立ち、工事予定地のヨシと貝類を、2005年5月28日から6月5日に異なった高度に移植し、その後の成長と生存を観察した。また、堤防建設によって裸地化した地域の貝類を保全するため、2005年9月21日に人工シェルター（瓦・ブロック・木板）を設置し、貝類のすみかを造成した。

調査の結果、高い地点（潮位に換算して338cm）に移植したヨシほど成長がよく、生存率も高かった（図5）。

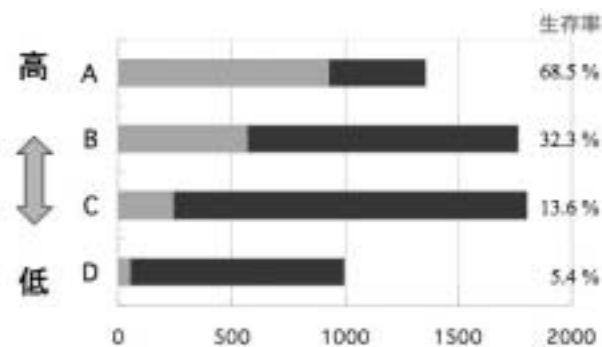


図5 各高度におけるヨシの生存数（灰）・枯死数（黒）ならびに生存率

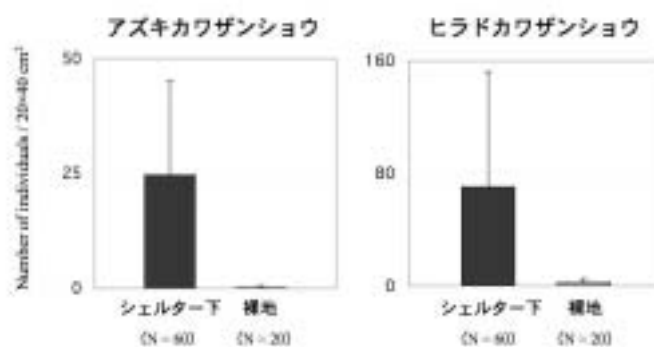


図6 シェルター（3種のシェルターの平均値）と裸地のカワザンショウ類の個体数  
また、瓦・ブロック・木板であっても十分カワザンショウ類の生息場所としての機能を

有した。

## 2. 成果の達成度

各プロジェクトは順調に進展しており，研究目標は十分達成できたと考える。

## 3. 今年度の問題など

新規の研究（特に野外調査）が多く，論文執筆に集中できなかった。

## 4. 来年度の目的・目標

今年度のプロジェクトを継続・進展させる。「生物多様性の保全」では，研究対象地を増やし，底生動物生息地としての沿岸域の調査方法・評価方法の検討を行う。また，ナメクジウオやハクセンシオマネキの研究を継続する他，塩性湿地の貝類ならびにカニ類の保全技術の開発を行う。「水産資源の持続的利用」では，ハマグリをモデルに研究を継続し，資源管理に必要な基礎データを収集する。また，熊本県や漁協と頻繁に協議を行い，合意形成に基づく資源管理の道を探る。「環境に調和した防災と開発」では，八代海において移植した塩性湿地と貝類のモニタリングを継続すると共に，宇土市住吉海岸で浚渫土砂を用いた塩性湿地の再生実験を行い，現在予定されている熊本市塩屋地区（有明海）の海岸埋立に対するミチゲーションの技術開発を進める。

## 5. 平成16年度の研究費取得状況

- (1) 河川整備基金助成, 2006年, 75万円, 八代海の塩性湿地生物群集の評価・再生・創出
- (2) 寄付金, 2006年, 70万円, (株)九州開発エンジニアリング

## 6. 平成17年度の研究発表、特許状況

### (1) 原著論文による発表

#### ① 国内誌（和文）

なし

#### ② 国際誌（欧文）

1. Yamaguchi, T., Henmi, Y. & Tabata, T. (2005) Hood building and territory usage in the fiddler crab, *Uca lactea* (De Haan, 1835). *Crustaceana* 78, 1117-1141.
2. Yamaguchi, T., Henmi, Y. and Ogata, R. (2005) Sexual differences of the feeding claws and mouthparts of the fiddler crab, *Uca arcuata* (De Haan, 1833). *Crustaceana* 78, 1233-1263.

### (2) 原著論文以外による発表

1. 逸見泰久・山口隆男 (2005). ナメクジウオの繁殖生態と個体群動態，月刊海洋：境界動物の生物学－脊椎動物への進化の研究最前線－，pp. 136-142, 海洋出版（東京）。
2. 甲斐孝之・逸見泰久・平野光祐・坂本公太郎 (2006). 韓国セマングム，有明海および奄美大島におけるミドリシャミセンガイ *Lingula anatina* の生息状況。日韓共同干潟調査2006年度報告書。トヨタ財団市民社会プロジェクト助成報告書。



(3) 学会発表

1. 山下博由・佐藤慎一・逸見泰久, 日本周辺のハマグリ属 (*Meretrix*) の分布の現状と保全, 東京都, 日本生物地理学会, 2005.4.
2. 逸見泰久, 有明海のタイラギが直面する2つの危機, 日本動物学会・日本植物学会・日本生態学会・沖縄生物学会 合同大会, 那覇市, 2005.5.
3. 山口信雄・坂木佳菜子・上田拓史・逸見泰久・安井金也, 天草と瀬戸内海に生息するヒガシナメクジウオの食性について, 日本動物学会, つくば市, 2005.10.
4. 三宅優子・逸見泰久・安井金也, ヒガシナメクジウオの培養細胞確立に向けて, 日本動物学会, つくば市, 2005.10.
5. 平和樹・逸見泰久, ハクセンシオマネキの雌は巣穴内交尾を望んでいるのか?, 日本甲殻類学会, 東京都, 2004.11.
6. 竹下文雄・逸見泰久, マルエラワレカラの交尾前ガードの多型とその機能, 日本甲殻類学会, 東京都, 2004.11.
7. 渡部哲也・逸見泰久, 付着性二枚貝カリガネエガイに寄生するカクレガニ亜科ヒラピンノの生活史, 日本甲殻類学会, 東京都, 2004.11.
8. Henmi, Y. & Hira, K., Does female *Uca lactea* prefer underground copulation? The Second Scientific Congress of East Asian Federation of Ecological Societies, Niigata, Japan. March, 2006.

(4) 特許

1. 逸見泰久・藤芳義裕. タイラギの海面垂下による養殖 (KTL-078, 申請中) .

(5) 受賞

1. 日韓国際環境賞 (「日韓共同干潟調査団」代表として受賞) , 2005.10.

## 平成17年度研究成果報告

研究課題名：沿岸域および陸水域における生物多様性とその遺伝的変異に関する研究

所属・氏名：理学部理学科・内野明徳

### 1. 研究目的・目標

#### (1) H15年度～21年度における目的・目標

有明海・八代海およびこの海域に注ぎ込む陸水域の環境は悪化の一途にある。その原因は環境汚染物質の存在を初めとして様々であるが、このようなことにもなって、この地域の生物多様性は減少の方向にある。また、最近は外来種などの侵入によって生態系の攪乱や遺伝子汚染の問題も顕在化してきている。本研究は有明海・八代海沿岸域における生物多様性とその遺伝的変異を解明・保全することを目的とするものである。

#### (2) H17年度の目的・目標

##### ①菊池川における外来種ブラジルチドメグサの遺伝的変異と繁殖様式

セリ科のブラジルチドメグサ (*Hydrocotyle ranunculoides* L. f.) は南アメリカ原産の植物で、ヨーロッパやアフリカに分布し、川岸や水湿地に生育する多年草である。日本には分布せず、魚の飼育用や観賞用として輸入され、広く販売されている。しかし、逸出した個体が及ぼす生態系への悪影響が懸念されており、熊本県北部の菊池川ではわずか数年で大繁殖している。そのため、2005年1月に特定外来生物種の候補リストに指定された。その後2005年秋に施行された「外来生物法」によって特定外来生物種として指定され、厳しい取扱いが要求されることとなった。本年度は最も基本的な研究として、菊池川におけるブラジルチドメグサの遺伝的変異を分析して繁殖様式を推定することを目標とした。なお、この実験は「外来生物法」施行前に行った。

##### ②立野ダム建設予定地および周辺地域における生物多様性の把握

立野ダムは、白川水系白川の立野火口瀬に治水専用ダムとして建設が進められているものである。このダムは「阿蘇くじゅう国立公園」内に建設されるダムで、周辺には国の天然記念物に指定されている「阿蘇北向谷原始林」をはじめとして、豊かな自然環境が分布している。このため、国土交通省は「立野ダム環境保全検討委員会」を設けて、調査を実施している。本研究では、ダム建設予定地および周辺地域における生物相を把握し、保護上重要な種を抽出し、生物多様性の保全に役立てることを目標とした。

### 2. H17年度の研究成果

##### ①菊池川における外来種ブラジルチドメグサの遺伝的変異と繁殖様式

熊本県菊池川に生育しているブラジルチドメグサを研究対象とした。材料植物は栄養繁殖で増殖しており、走出茎の切断による繁殖が極めて旺盛である。走出茎の長さは1 m以上にもなり、節から盛んに出根する。一方では開花結実することも確認できた。

菊池川の7ヶ所 (A～J) に生育している7個体群28個体の遺伝的変異をRAPD (Random Amplified Polymorphic DNA) 法を用いて分析した。A個体群からは8個体 (A1～A8)、

B 個体群からは2個体 (B1~B2)、C個体群からは6個体 (C1~C6)、D 個体群からは 6 個体 (D1~D6) を 5 m 間隔で採集した。E~J 個体群からはそれぞれ 1 個体を採集して、分析に供した (図 1)。まず、CTAB法によってDNAを抽出し、DNA濃度 (20~40 ng/μl) を一定に調整した。PCR (Polymerase Chain Reaction) 法によるDNAの増幅では、20種類のランダムプライマー (10塩基) を用いた。増幅後のサンプルは1.5%アガロースゲルで電気泳動を行った。そして、鮮明で安定したバンドが出現した11種類のプライマーに関して、DNAの出現バンドを分析した。

その結果、使用した11種類のプライマーのうちの10種類では、それぞれ4~10本のバンドが出現した。しかし、それらのバンドはすべての個体に共通に出現し、個体間での変異が認められない単型バンドであった (図 2)。このことから、菊池川のブラジルチドメグサは単一起源であり、それが栄養繁殖によって増殖していると考えられる。残り1種類のプライマーでは、11本のバンドが出現したが、そのうちの10本は個体間で出現に変異がある多型バンドであった。この結果を反映して、分析した28個体で22種類のバンドパターンが区別でき、遺伝的変異が認められた。しかし、近傍の個体間では同一のバンドパターンを示す傾向にあった。このことから、一部では自家 (自花) 受精による有性繁殖も行われていることが考えられた。

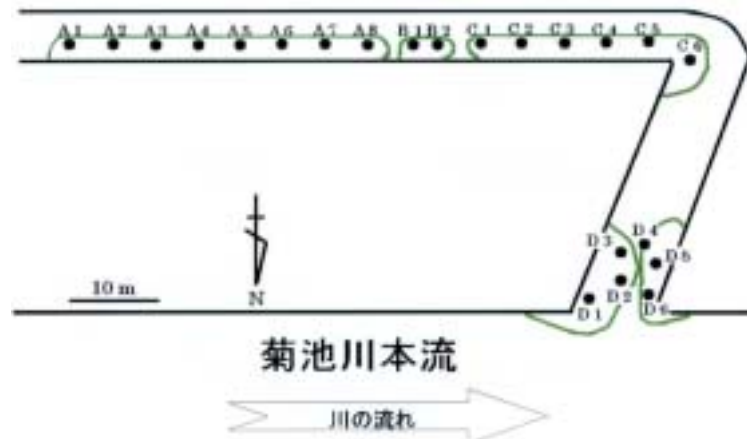


図 1 A~D 個体群の分布 (熊本県七城町)  
番号は、採集個体を示す。

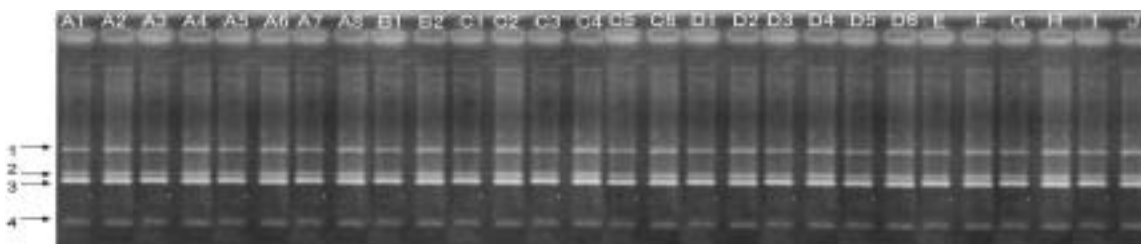


図 2 RAPD 法による電気泳動像 (プライマー : OPA-01)  
確認できた 1~4 のバンドは全個体 (A1~J) に共通に出現した単型バンドである。

## ②立野ダム建設予定地および周辺地域における生物多様性の把握

国土交通省の「立野ダム環境保全検討委員会」の一員として、昭和50年度以降今日までのダム建設予定地および周辺地域における生物相の調査結果を検討した。そして、保護上重要な種を抽出し、これらの生物種の保護および生物多様性の保全について検討した。なお、保護上重要な種とは以下に該当する種である。文化財保護法・県町村条例、種の保存法、熊本県動植物保護条例、環境省レッドデータブック、くまもとレッドデータブックなどに選定されている種である。

- ・哺乳類（確認種数：1綱6目10科18種。重要な種：1綱3目5科7種）
- ・鳥類（確認種数：1綱14目36科125種。重要な種：1綱5目10科18種）
  - (1) 爬虫類（確認種数：1綱2目4科10種。重要な種：1綱2目2科2種）
  - (2) 両生類（確認種数：1綱2目4科10種。重要な種：1綱2目3科3種）
  - (3) 魚類（確認種数：1綱5目8科16種。重要な種：なし）
  - (4) 陸上昆虫類（確認種数：2綱21目352科2661種。重要な種：2綱7目13科18種）
  - (5) 底生動物（確認種数：6門10綱24目75科175種。重要な種：1門1綱1目1科1種）
  - (6) 陸産貝類（確認種数：1綱3目13科35種。重要な種：1綱2目5科6種）
  - (7) シダ・種子植物（確認種数：7綱54目155科1235種。重要な種：5綱27目41科84種）
  - (8) 付着藻類（確認種数：5綱15目31科195種。重要な種：なし）

## 3. 成果の達成度

①菊池川流域におけるブラジルチドメグサの遺伝的変異の分析を通して、繁殖様式と単一起源であることの概略を把握することができた。そのため、今年度の目標は達成できたと考えている。

②生物多様性の把握と保全についての検討が着実に進んでいる。

## 4. 今年度の問題など

①分析対象個体群と使用するランダムプライマーの数を増やして分析精度をあげる必要がある。ブラジルチドメグサが「外来生物法」による特定外来生物種として指定されたために、取扱いに許可を受けるなどが必要となる。

②特になし。

## 5. 18年度の目的・目標

17年度に熊本大学政策創造研究センターのプロジェクト研究（平成17～19年度）に「有明海・八代海の生物棲息環境の評価・保全・再生（代表：内野）」が採択されたために、中心メンバーである逸見泰久教授とともに取り組む予定である。

## 6. 17年度の研究費取得状況

なし。

## 7. 17年度の研究発表、特許状況

### (1) 原著論文による発表

#### ①国内誌（和文）

なし。

#### ②国際誌（欧文）

- 1) Tetsuka T. and Uchino A., "Variation in seed shape and husk color in Japanese native cultivars of common buckwheat (*Fagopyrum esculentum* Moench). Plant Production Science, 8 (1): 60-64. 2005.

### (2) 原著論文以外による発表

#### ①著書

- 1) 内野明德, “植物染色体作成法：低温処理法”。福井希一編「クロモソーム---植物染色体研究法」養賢堂。pp. 20-21 (2005)。
- 2) 内野明德, “植物染色体作成法：特殊な染色体試料”。福井希一編「クロモソーム---植物染色体研究法」養賢堂。pp. 59-60 (2005)。
- 3) 内野明德, “染色体試料：試料植物育成法”。福井希一編「クロモソーム---植物染色体研究法」養賢堂。pp. 227-229 (2005)。

#### ②報告書

- 1) 内野明德 他 6 名（熊本市環境審議会自然環境部会）、“市民と築く新しい「森の都」づくり---熊本市緑の基本計画”。130頁。熊本市環境保全局緑保全課（編）、熊本市、(2005)。
- 2) 内野明德・逸見泰久・柿本竜治・福田靖・上村彰、“有明海・八代海の生物棲息環境の評価・保全・再生(中間報告書)” 平成17年度熊本大学政策創造研究センタープロジェクト報告書。237-259頁。熊本大学制作創造研究センター、熊本市、(2006)。

### (3) 学会発表

#### ①招待講演

なし

#### ②一般講演

- 1) 坂本真理子（熊大・自然科学）・富永篤・松井正文（京大・人間・環境）・阪田和弘（九大・生物資源）・内野明德（熊大・理）：ミトコンドリアDNA解析に基づく九州産小型ブチサンショウウオの系統地理。日本爬虫両棲類学会第44回大会（2005. 11. 12-13, 東北大学）。

### (4) 特許状況

なし。

## 平成 17 年度研究成果報告

研究課題名：環境汚染物質のバイオ・レメディエーション

所属・氏名：自然科学研究科環境共生科学専攻広域環境保全工学講座・古川 憲治

### 1. 研究目的・目標

#### (1) H15 年度～21 年度における目的・目標

閉鎖性度が著しく高い有明・八代海の富栄養化の進行が大きな社会問題となっている。窒素、リンの栄養塩が水域富栄養化の原因物質であるが、その汚染源としては工場排水とか下水処理場等のポイントソースと農地等からのノンポイントソースが挙げられる。ポイントソースには、水域環境基準を達成するために、厳しい排水基準 (T-N 10mg/l、T-P 1mg/l) が水質汚濁防止法に基づいてかけられるものと予想されている。

排水からの窒素除去法に関しては、これまで生物学的な硝化、脱窒反応を組み合わせた処理方法が適用されてきたが、その実施には巨大な処理システムが必要となるばかりか、処理コストも従来の BOD、SS 除去を目的とした 2 次処理の約 1.5 倍にもなることから、効率的、経済的な栄養塩除去方法の開発が望まれている。

1995 年にオランダのデルフト工科大学の研究グループから報告された新しい窒素の代謝経路である嫌気性アンモニア酸化(Anaerobic ammonium oxidation: Anammox)は、これまでの窒素除去の概念を大きく変えるものであることから多くの研究者の注目を集め、その追試が行われたが、Anammox 細菌が生育速度の著しく遅い嫌気性の自栄養性細菌であることから、その殆どが失敗に終わっている。

工学部環境システム工学科の古川研究室では、1996 年からこの Anammox 細菌の集積に関する研究を開始し、ポリエステル製不織布を微生物の付着担体として活用した上向流カラムリアクタを用いて日本で始めて、世界でも 3 番目に Anammox 汚泥の集積培養に成功した。現在 Anammox を活用した排水処理システムの確立に向け、50 l の容積の大型リアクタを活用して Anammox 汚泥の大量培養に関する研究を実施している。

平成 15 年度～21 年度の研究期間中では、この集積に成功した Anammox 汚泥を活用して、これまでに全く報告されていない新規な窒素除去法を開発することを目的として研究を行う予定である。

#### (2) H17 年度における目的・目標

1) 50 l リアクタのチャンピオンデータの確立を目指して、これまでの試験で得られた知見をもとに、短期間での高い窒素除去速度の達成を可能とする培養技術を確認する。

2) PVA ゲルビーズを担体とする Anammox 流動床で、高い窒素除去速度が達成できるかどうかを検討するとともに、その運転特性を生かした高濃度アンモニア含有排水への適用の可能性について検討する。

3) 新規担体としてモルトセラミックスを使った Anammox リアクタを構築する。

4) SNAP 法の処理特性を明らかにするとともに、SNAP 法の迅速立ち上げ法の確立、それに実排水への適用で問題となる、有機物濃度の影響について実験的に検討する。

## 2. 研究方法

1) 50 l 容の不織布を微生物付着固定化担体として活用した大型上向流カラムリアクタで、 $\text{NH}_4\text{-N}$  と  $\text{NO}_2\text{-N}$  からなる合成無機培地を使って、昨年度に得られた結果をもとにして、担体の充填方法、基質の供給方法、負荷量のかけ方等を工夫し、短期間に T-N 容積除去速度  $1.0\text{kg-N/m}^3/\text{d}$  を達成する。更に、これまでに 50 l リアクタで得られた最大窒素除去速度  $2.5\text{kg-N/m}^3/\text{d}$  を上回る除去速度を達成することを目指して連続処理試験を行う。

2) PVA ゲルビーズを担体とする Anammox 流動床で、どの程度の高い窒素除去速度が達成できるか、 $\text{NH}_4\text{-N}$  と  $\text{NO}_2\text{-N}$  からなる合成無機培地を流入基質とした連続処理試験で検討する。

3) 新規担体としてモルトセラミックスを取り上げ、これを微生物担体とする上向流固定床 Anammox リアクタを作製し、その立ち上げ挙動と、最大到達可能な T-N 容積除去速度を明らかにする。

4) 研究室で新規に開発した単一槽での  $\text{NH}_4\text{-N}$  除去方法である Single Stage Nitrogen Removal Using Anammox and Partial Nitritation(SNAP)法の処理特性を  $\text{NH}_4\text{-N}$  を基質とする合成排水を用いた連続処理試験で明らかにする。網目状のアクリル繊維性担体（バイオフィックス：BX）を活用する SNAP 法の迅速立ち上げ法の確立、有機物濃度の影響について、容量 10 l のリアクタを用いて実験的に検討する。

## 3. 研究成果

### 1) 前年度までの主な研究成果

#### ① 50 l の容積の大型上向流カラムリアクタの迅速立ち上げ

50 l の容積の大型上向流カラムリアクタの下段と上段に充填する不織布の充填割合を下段に密に、上段に粗に変更するとともに、リアクタ中段からも流入負荷量の 1/3 程度を分注供給する方法を採用し Anammox リアクタの迅速立ち上げ試験を行った。その結果、Anammox 反応が顕著となる T-N 容積除去速度  $0.6\text{kg-N/m}^3/\text{d}$  程度を 2 ヶ月で達成できたが、その後は昨年までの 15 l 容のカラムリアクタの試験結果と比べて T-N 容積除去速度の伸びが遅れた。この理由として、中間部からの基質の注入を行う注入管が Anammox 汚泥により閉塞し、基質がリアクタ内に均一に供給されなかったこと、不織布の充填密度を下部で高めたことが基質のリアクタ全体への迅速なる拡散を律速したことが原因と推察された。

#### ② PVA ゲルビーズを担体とする Anammox 流動床の構築

比重が 1.03 と小さな PVA ゲルビーズを担体とする容量 2.15 l の流動床リアクタを、処理温度  $35^\circ\text{C}$ 、上向流線速度を約  $100\text{m/h}$  に維持した条件で、負荷量を段階的に高める方法で T-N 容積除去速度  $0.7\text{kg-N/m}^3/\text{d}$  を達成することができた。

#### ③ 新規担体による Anammox 汚泥の集積

ビール製造の際の搾りかすを固化・炭化处理したモルトセラミックス（粒径：3–5mm、比重：1.96、平均孔径： $21.7\text{\AA}$ ）を担体として 0.65 l 充填した容量 1.62 l の上向流固定床カラムリアクタを構築し、Anammox 汚泥の集積試験を行った。その結果、最初の 2 ヶ月は他の担体と同程度の立ち上がりを示したものの、使用したモルトセラミックスの粒径が 3–5mm と小さすぎたことから  $0.2\text{kg-N/m}^3/\text{d}$  程度の T-N 容積除去速度で頭打ちとなった。

#### ④ SNAP 法の処理特性の検討

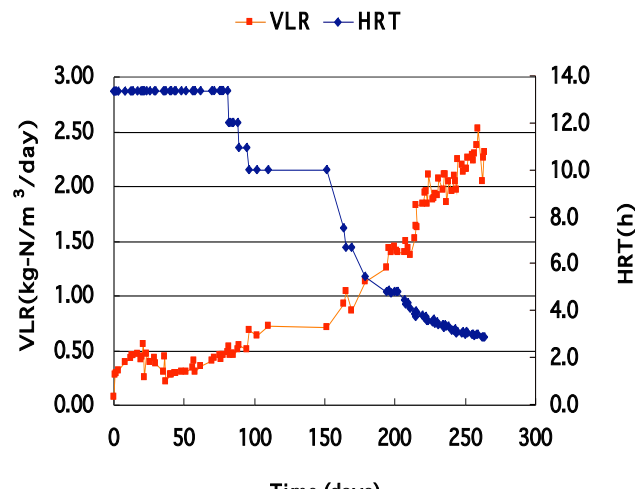
網目状のアクリル繊維性担体（バイオフィックス：BX）を活用する SNAP 法について、

その処理特性を  $\text{NH}_4\text{-N}$  を主成分とする合成無機排水を流入基質とする連続処理試験で明らかにした。その結果、処理温度を  $35^\circ\text{C}$ 、 $\text{pH}$  を 7.5、槽内  $\text{DO}$  濃度を 2-3  $\text{mg/l}$  に維持した条件で、 $\text{NH}_4\text{-N}$  容積負荷量を  $0.5\text{kg-N/m}^3/\text{d}$  に設定することで、70–80%の窒素除去率を達成することができた。

## 2) 当該年度で得られた成果

### ① 不織布を活用した上向流カラムリアクタによる Anammox 汚泥の大量培養試験

これまでの 50 l 容の不織布を充填した大型上向流カラムリアクタによる Anammox の迅速立ち上げでは、 $\text{T-N}$  容積除去速度が  $0.5\text{--}0.6\text{ kg-N/m}^3/\text{d}$  に達した段階で 50 日程度のラグタイムが常に見られ、この期間をいかに短縮するかが問題であった。今年度の培養試験では、負荷量のかけ方をこれまで蓄積してきた Anammox 汚泥の培養ノウハウに基づいて、流入  $\text{NH}_4\text{-N}$  と  $\text{NO}_2\text{-N}$  濃度が 150 $\text{mg/L}$  までは濃度を高めることで容積負荷量を高め、それ以降は流入水量を高める方法で容積負荷量を高める方法に変更するとともに、カラム中央部から供給する基質の割合を除去速度の高まりとともに高める方策をとった。その試験結果を図一 1 に示した。



図一 1 窒素除去速度の経日変化

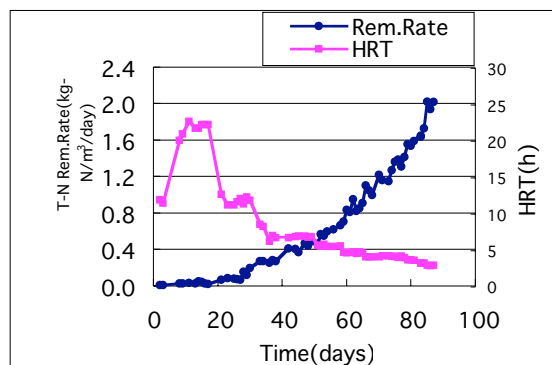
この結果、培養 5 ヶ月で  $\text{T-N}$  容積除去速度  $1.0\text{ kg-N/m}^3/\text{d}$  を達成することができた。その後、 $\text{T-N}$  除去速度は順調に高まり、250 日後には  $2.6\text{ kg-N/m}^3/\text{d}$  の  $\text{T-N}$  容積除去速度を達成することができた。

これとは別に、15 l の上向流カラムリアクタによる同様の Anammox の迅速立ち上げ試験を行った。この試験では、50 l 容のカラムリアクタのように、不織布担体を 2 分割しないで充填した。この試験では、50 l 容のカラムリアクタと同様の培養プロトコルに加えて、特に処理水の  $\text{NO}_2\text{-N}$  濃度が 20 $\text{mg/l}$  を決して越えないように負荷量のかけ方に留意した。その培養結果を、図一 2 に示した。

図一 2 に示したように、ラグ期なしに順調に  $\text{T-N}$  容積除去速度が高まり、運転開始 3 ヶ月で  $\text{T-N}$  容積除去速度  $3.0\text{ kg-N/m}^3/\text{d}$  を達成できた。その後も  $\text{T-N}$  容積除去速度が順調に高まり、培養 5 ヶ月後にこれまで研究室で達成したことのない  $5.0\text{kg-N/m}^3/\text{d}$  という高い  $\text{T-N}$  容積除去速度を達成することができた。この結果、カラム下部から上部まで連続した不織布担体を用いることで、Anammox 汚泥がカラム下部から上部へスムーズに増殖すること、それに基質濃度を上げないで流入量を上げることで流入負荷量を高めることで、高い



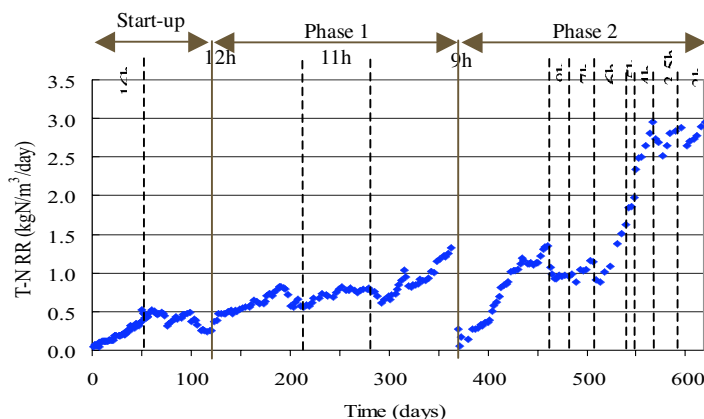
T-N 容積除去速度を達成することが明らかとなった。



図－2 窒素除去速度および HRT の経時変化

## ② PVA ゲルビーズを用いた Anammox 流動床に関する研究

比重が 1.03 の PVA ゲルビーズを担体として 20% の見かけ容量で使用した容量 2.15 l の流動床リアクタを、処理温度 35℃、上向流線速度を約 100m/h に維持した条件で、負荷量を段階的に高める方法で  $\text{NH}_4\text{-N}$  と  $\text{NO}_2\text{-N}$  からなる合成無機培地を使って、連続運転した。(図－3)



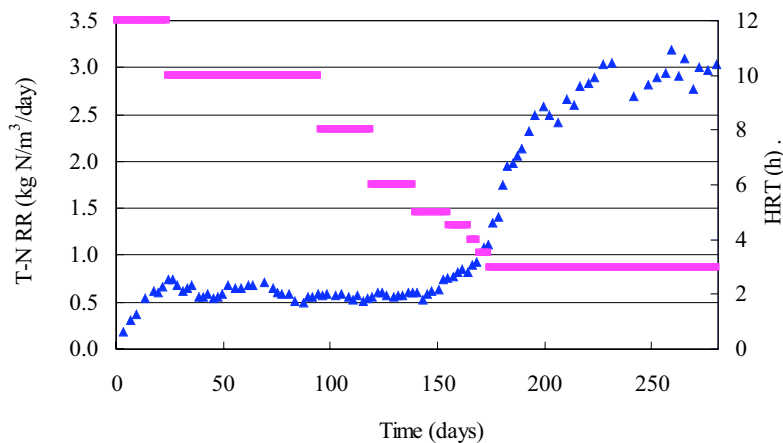
図－3 PVA ゲルビーズを用いた Anammox 流動床の T-N 除去速度の経時変化

現在までに T-N 容積除去速度  $3.5\text{kg-N/m}^3/\text{d}$  を達成でき、流動床による Anammox 処理が可能であることが明らかになった。このような高い T-N 容積除去速度を、不織布を使った上向流カラムリアクタのように担体の閉塞といった問題なしに、安定して維持できることが明らかとなった。

## ③ モルトセラミックスを微生物担体とする上向流固定床 Anammox リアクタの処理特性の検討

ビール製造プロセスから発生する搾りかすを脱水、成型、炭化处理することにより得られる粒径 10–15mm のモルトセラミックスを Anammox 汚泥の培養担体として活用できるかどうか、 $\text{NH}_4\text{-N}$  と  $\text{NO}_2\text{-N}$  からなる合成無機培地を使って 1.62 l の固定床リアクタを使った連続処理試験によって検討した。その結果、粒径の大きなモルトセラミックスを使うことにより、前年度見られた、生成 Anammox 汚泥による目詰まりもなく短期間で Anammox

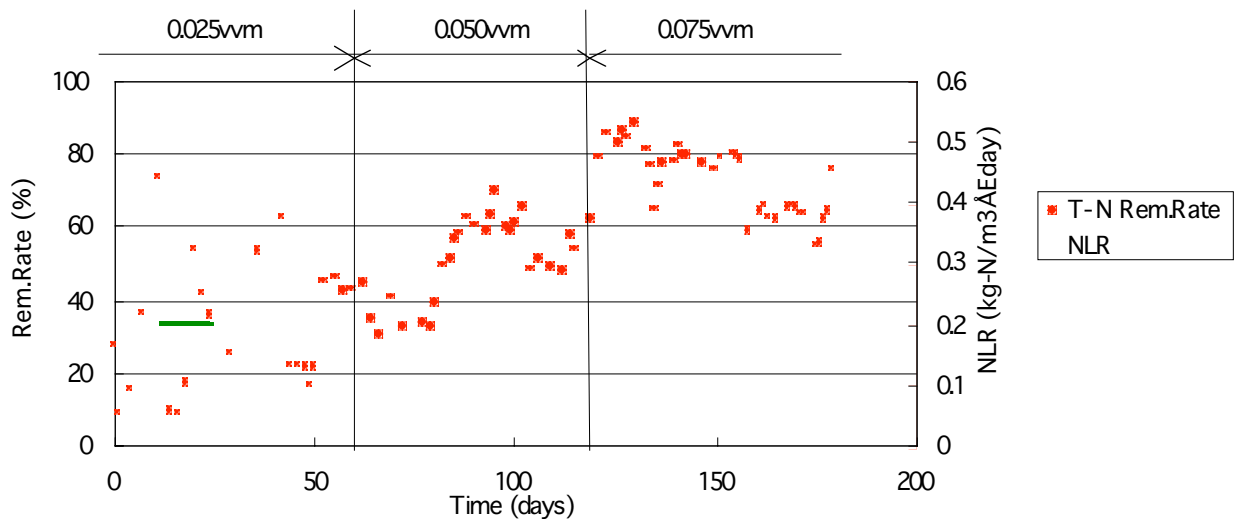
プロセスを立ち上げることができ、3ヶ月の培養で、T-N 容積除去速度  $3.0 \text{ kg-N/m}^3/\text{d}$  を達成できた。(図—4) モルトセラミックスには、有機物の吸着能力もあることから、Anammox 法を有機物が含有される実排水処理に適用する際に有利となることから、Anammox の担体として有望であることが判明した。



図—4 MC を活用する Anammox 固定床の T-N 除去速度の経時変化

#### ④ SNAP 法の早期立ち上げ法に関する研究

網目状のアクリル繊維性担体（バイオフィックス：BX）に、Anammox 汚泥を最初に着固定化した後、硝化活性汚泥をその上から付着固定化することで SNAP 法を1ヶ月以内に立ち上げることに成功した。(図—5 参照)



図—5 SNAP 早期立ち上げにおける窒素除去率の経日変化

SNAP 法を実排水の処理に適用する際に問題となる、有機物濃度の影響について実験的に検討した結果、グルコースや酢酸のような易分解性の有機物が流入水中に存在する場合には、SNAP 法が有機物によって阻害を受けるが、埋め立て地浸出水のように腐植物質のような難分解性の有機物の場合には、Anammox 反応が有機物によって程大きな影響を受

けないことが明らかとなった。

#### 4. 成果の達成度

Anammox 法の実用化を目指して、これまで各種の微生物担体を使った上向流固定床型リアクタと PVA ゲルビーズを流動担体とする流動床リアクタを用いて、Anammox 汚泥の大量培養について検討してきた。その結果、不織布を担体とする上向流固定床型リアクタでは、50 l までのスケールアップに成功し、時間はかかるものの T-N 容積除去速度  $3.0 \text{ kg-N/m}^3/\text{d}$  を達成することができた。また、15 l 容の不織布を使った上向流固定床型リアクタでは、3 ヶ月という短期間に T-N 容積除去速度  $3.0 \text{ kg-N/m}^3/\text{d}$  を達成することができ、Anammox 法実用化の第一関門である短期間での Anammox 汚泥の大量培養に目処をつけることができた。

PVA ゲルビーズを流動担体とする流動床リアクタでは、これまでに T-N 容積除去速度  $3.0 \text{ kg-N/m}^3/\text{d}$  を達成でき、安定して流動床リアクタを運転できていることから、SS 成分の多く、高濃度の  $\text{NH}_4\text{-N}$  を含有する排水が処理対象排水となるような場合には PVA ゲルビーズを流動担体とする流動床リアクタが有利となることが明らかとなった。

SNAP 法については、Anammox 汚泥を最初に付着固定化した後に硝化活性汚泥汚泥を付着固定化する方法で SNAP 法を 1 ヶ月以内に立ち上げることに成功した。また、何らかの生物処理経た後の処理水であれば、残存する有機物によって SNAP 法が大きな影響を受けないこと、高濃度の  $\text{NH}_4\text{-N}$  を含有する排水であれば、 $1.0 \text{ kg-N/m}^3/\text{d}$  の T-N 除去速度を達成することができ、SNAP 実用化に目処をつけることができた。

#### 5. H18 年度の目的・目標

今年度は、実廃水を対象とした Anammox 処理試験を行い、Anammox の実用化に目処をつけることを目的に研究を行う。具体的には、高濃度  $\text{NH}_4\text{-N}$  含有廃水として、畜産廃水の嫌気性消化脱離液を対象に、Anammox の前処理としての部分亜硝酸処理と、部分亜硝酸処理液を対象とした Anammox 処理をベンチスケールの処理試験で検討する。

不織布以外の担体である PVA ゲルビーズ、モルトセラミックスについても、その特性を生かすべく、これら担体を活用した Anammox リアクタを用いて実排水を用いた連続処理試験を行う。

SNAP 法については、そのスケールアップが問題として残ることから、新規に矩形リアクタのみでなく、スケールアップが容易で、バイオフィックスを同心円状に配置することのできるカラム型の大型リアクタを組み立て、合成無機排水を使った処理試験を行い、SNAP 法のスケールアップについて検討する。

#### 6. H17 年度の研究費取得状況

平成 17 年度は、Anammox と SNAP に関して以下の研究費を獲得し、これらの研究資金を使って研究を実施した。

- ・ 科研費 基盤研究 (B) 540 万円
- ・ 共同研究：荏原製作所 200 万円
- ・ 奨学寄附金  
アサヒビール 100 万円

クラレ	100 万円
タクマ	100 万円
オルガノ	100 万円
日立造船	30 万円

## 7. H17 年度の研究発表、特許状況

### (1) 原著論文による発表

#### —国内誌（和文）—

- ・ 今城麗、徳富孝明、古川憲治：Anammox プロセスに適したリアクターの検討、水環境学会誌、Vol.28, No.3, pp.185-190(2005)
- ・ 今城麗、河野洋平、古川憲治：Anammox グラニュールを活用する単一槽窒素除去リアクタの立上げとその影響因子、日本水処理生物学会誌、Vol.42, No.1, pp.17-25(2006)

#### —国際誌（欧文）—

- ・ Pham Khac Lieu, Ritusuko Hatozaki, Hayato Homan and Kenji Furukawa: Single-Stage Nitrogen Removal Using Anammox and Partial Nitritation(SNAP) for The Treatment of Synthetic Landfill Leachate, Japanese J. of Water Treatment Biology, Vol.41, No.2, pp.103-112(2005)
- ・ 古川憲治、使用 Anammox と部分亜硝酸化の単相脱窒、北京市政工程設計研究総院建院 50 周年記念科学論文集、pp.809-817(2005)
- ・ Pham Khac Lieu, Tran Hien Hoa, Le Cong Nhat Phuong, Luong Ngoc Khanh, Tran Hieu Nhue and Kenji Furukawa: Nitrogen Treatment in Wastewater in Viet Nam, Review of Construction, No.452, pp.41-45(2005)

### (2) 原著論文以外による発表

#### —博士論文—

- ・ Pham Khac Lieu : Nitrogen removal from landfill leachate using single-stage process combining anammox and partial nitritation

（Anammox と部分亜硝酸化を組み合わせた単一槽による埋立地浸出水の窒素除去）

熊本大学大学院自然科学研究科博士論文、2006.3.24

- ・ 今城麗：無酸素アンモニア酸化（Anammox）微生物を用いた高負荷型窒素除去システムの開発

（Development of high loading nitrogen removal system using Anammox microorganisms）、熊本大学大学院自然科学研究科博士論文、2006.3.24

#### —修士論文—

- ・ 宅和正治：ポリエステル製不織布を充填した上向流カラムリアクタによる Anammox 汚泥の大量培養、熊本大学大学院自然科学研究科修士論文、2006. 3

- ・ 波戸崎律子：Anammox と部分亜硝酸化を活用する単一槽窒素除去（SNAP）法の立上げと処理の安定性、熊本大学大学院自然科学研究科修士論文、2006. 3

## 拠点 B との共催講演会

1. 2005.5.9 : Dr. Matias Vanotti(米国農務省沿岸平原研究センター主任研究員、USDA)、  
“Development of Environmentally Superior Technology for Treatment of Swine Wastewater in USA”
2. 2005.7.4 : 金川貴博、独立行政法人産業技術総合研究所 生物機能工学研究部門生物資源情報基盤研究グループ長、“廃水処理などに活躍する微生物の動態解析方法とその応用”
3. 2005.12.20 : Dr. Jung Jin Young (韓国 KIST, 主任研究員), “Role of Powdered Zeolite in the Biological Nitrogen Removal Process”
4. 2006.1.10: Prof. Cao The Ha、ハノイ科学大学教授 “ハノイ市の  $\text{NH}_4\text{-N}$  汚染状況とその除去技術の開発”
5. 2006.1.10: Dr. Le Van Chieu、ハノイ科学大学講師 “Oxidation of As(III) to As(V) by aqueous ozone, chlorine, and monochloramine, Reaction Kinetics and Application to drinking water treatment”

## 平成 17 年度研究成果報告書

### 研究科題名：

- (A) 水環境汚染物質の生物モニタリング (重松 亨)
- (B) 水環境汚染物質のバイオ・レミディエーション (木田建次、森村 茂)

所属・氏名：工学部物質生命化学科 木田建次、  
大学院自然科学研究科 森村 茂、重松 亨

### 1. 研究目的・目標

[平成 15 年度～21 年度における目的・目標]

水環境汚染物質のバイオ・レミディエーション領域では、食品や醸造もしくは畜産産業等から排出される有機物濃度の高い廃水・廃棄物をメタン発酵によるサーマルリサイクルやバイオテクノロジーを駆使してリサイクル・有効利用するプロセスを確立することにより、内陸部の環境負荷削減を図る。また水環境汚染物質の生物モニタリングでは、疲弊した干潟の菌叢を解析し、干潟の浄化能を再生する技術を確認することを目標とする。

[平成 17 年度の目的・目標]

水環境汚染物質のバイオ・レミディエーション領域においては、①家畜糞尿のメタン発酵によるサーマルリサイクルを含む生物学的処理と天然ホルモン様物質完全分解のための物理化学的処理プロセスの検討、および②焼酎蒸留廃液からの健康酢製造技術の開発を目指した。また、水環境汚染物質の生物モニタリング領域においては、③干潟の浄化能再生技術の開発を目指した。

### 2. 研究成果

#### 2.1 家畜排せつ物の生物学的および物理化学的処理

##### (1) 緒言

熊本県では畜産業が盛んであり、中でも菊池管内は最も畜産農家の多いところである。牛糞尿は有機物濃度が高く大きな環境負荷となり、そのまま河川に放流できない。家畜糞尿は、平成 16 年 11 月から完全施行された「家畜排せつ物の管理の適正および利用の促進に関する法律（家畜排せつ物法）」により適正に処理もしくは利活用するように規制されている。

昨年度は、家畜排せつ物のメタン発酵によるサーマルリサイクルについて検討した。牛糞尿などの家畜排せつ物には、天然ホルモン物質と呼ばれる動物の正常なホルモン作用に影響を与える物質が含まれていることがわかったので、本年度は、天然ホルモン物質の完全分解を考慮した、生物学的処理と物理化学的処理を組み合わせた処理プロセスについて

検討を行った。

## (2) 実験材料および方法

a) 使用家畜排せつ物：熊本県の畜産農家から提供された牛糞尿を用いた。牛糞尿は畜舎から地下の貯蔵庫に集められたものを採取し、研究室においてザル(目：2.5 mm×2.5 mm)とヘラを用いてメッシュろ過し牛糞尿搾汁液として実験に使用した。

b) 処理プロセス：嫌気性処理(高温メタン発酵)→希釈→好気性処理(活性汚泥法)の順に生物学的処理を行い、次にオゾンを用いた物理化学的処理を行う処理プロセスを構築した。各処理段階で、水質汚濁度の指標となる  $\text{COD}_{\text{Cr}}$ ・ $\text{BOD}_5$ などを測定し、有機物の除去率を確認した。

高温メタン発酵には実容積 8 l の機械攪拌型発酵槽を使用し、温度を 56℃に制御した。また槽内液の pH は pH コントローラーにより 7.5 に制御できるようにした。一日に一回の draw-and-fill 方式で処理試験を行った。活性汚泥槽には実容積 1.1 l のアクリル製リアクターを使用し、温度 30℃、通気量 110 ml/min の条件で好気処理した。物理化学的処理としてはオゾン酸化による検討を行った。

c) 環境ホルモン様活性の測定：牛糞尿中には天然ホルモン物質のなかでも、エストロンや 17β-エストラジオールといった天然エストロゲン物質の影響が大きいと推測されたので、エストロゲン活性の検出に酵母 two-hybrid 法を用いて 17β-エストラジオール換算値として示した。

## (3) 実験結果および考察

### a) 牛糞尿搾汁液の組成

実験に用いた牛糞尿搾汁液の  $\text{BOD}_5$  が 27600 mg/l、TOC が 9470 mg/l、固形分(SS)が 58.6 g/l もあり、高濃度有機系廃棄物であることが確認された。また、エストロゲン活性も 800 - 900 μg/l 検出された。

### b) 牛糞尿搾汁液の生物学的処理

牛糞尿搾汁液を最初に高温メタン発酵により処理し、処理液を水道水で 4 倍希釈後、活性汚泥法により好氣的に処理した。有機系固形分(VSS)や全有機物(TVS)の分解率はトータルで約 60%であったが、 $\text{BOD}_5$  が 90.0%、全有機酸は 99.7%が除去されていた。エストロゲン活性も 99%以上除去されたが、17β-エストラジオール換算値で約 1 μg/l 残存しており、このままでは放流できない濃度であった。

### c) 好気性処理水のオゾン酸化処理

難分解性の有機物が存在するためか、 $\text{COD}_{\text{Cr}}$  と TOC は 90 分間のオゾン処理後も完全には除去できなかったが、エストロゲン活性は two-hybrid 法では検出限界以下になった。また、色度も 500 以下に低下し、オゾン処理を組み合わせることの有効性が確認できた。

## 2.2 焼酎蒸留廃液からの健康酢の製造と機能性評価

### (1) 緒言

南九州における焼酎蒸留廃液（以後、焼酎粕とする）の発生量は平成 15 年酒造年度で約 60 万 kl にも達している。焼酎粕は有機物を高濃度に含んでおり、環境への負荷は非常に大きい。われわれは、焼酎粕の排出量を削減するために、設備投資することなく焼酎粕量を半減させる新規焼酎製造法である返し仕込み法を開発し、さらに焼酎粕から機能性を有する醸造酢を製造する技術と組み合わせたゼロエミッション焼酎製造プロセスを開発してきた。

本研究では、焼酎粕からの醸造酢の製造とその生理活性（特に、抗腫瘍活性）について、米焼酎粕から製造した醸造酢について検討した結果を報告する。醸造酢の生理活性を明らかにしその付加価値を高めることができれば、醸造酢製造量が増加し焼酎粕の環境負荷削減を達成することが可能となる。

### (2) 実験方法

#### a) 焼酎粕からの醸造酢の製造

滅菌や固液分離を行っていない米焼酎粕を使用し、クエン酸耐性を有する酢酸菌 *Acetobacter aceti* NBRC3283 を用いて酢酸発酵を行うことにより醸造酢を製造した。酢酸発酵は総容積 70 l の発酵槽を用いた回分培養により行った。得られた醸造酢および原料として用いた米焼酎粕の凍結乾燥物を免疫増強作用の評価に用いた。

#### b) 抗腫瘍活性評価

Colon 38 (C38) / C57BL/6 マウスの系を用いて検討した。C38 腫瘍細胞を C57BL/6 マウスの背部に接種し、固形腫瘍の形成を確認後、標準飼料（対照群）、1.0%(w/w)米焼酎粕凍結乾燥物添加飼料（焼酎粕群）、1.0%(w/w)醸造酢凍結乾燥物添加飼料（醸造酢群）を自由摂取させる 3 群（8 匹／群）に分けて実験を行った。飼育期間中の体重、飼料摂取量、腫瘍重量、生存率の変化を調べることで評価した。

#### c) 免疫増強作用の評価

抗腫瘍活性評価と同様に、遺伝的に同一である Colon 38 (C38) / C57BL/6 マウスの系を用いて検討した。抗腫瘍活性と同様の操作を行って 21 日間各飼料を自由摂取させた後、マウスの腫瘍重量等を測定して再現性を確認するとともに、血中のサイトカイン濃度や脾臓中の NK 細胞の殺細胞活性を測定することにより免疫増強作用について検討した。

### (3) 実験結果

#### a) 米焼酎粕からの醸造酢の製造

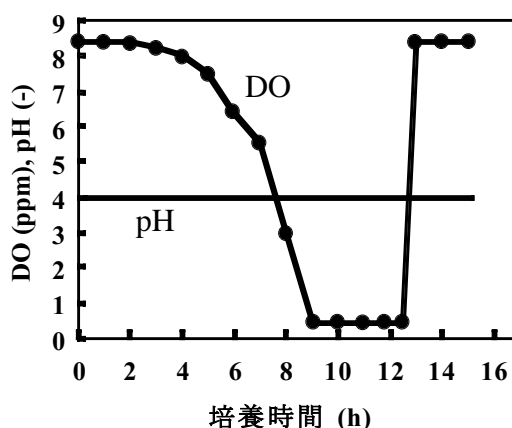


Fig. 1 醸造酢製造における DO の経時変化



Fig. 1 に示したように、酢酸発酵が盛んになると酸素消費速度が大きくなるために溶存酸素(DO)濃度が減少し、その後、基質であるエタノールがなくなって酢酸の生成が起これなくなると、再び DO 濃度が急激に上昇した。DO 濃度が培養開始時の値にまで上昇したところで酢酸発酵は終了し、実際にその時点のエタノール濃度を測定したところ、検出限界以下であった。そのときの培養時間は 13 時間、生成酢酸濃度は 42.7 g/l であった。醸造酢には約 3 g/l のクエン酸が含まれており、焼酎粕から製造した醸造酢は酢酸だけでなくクエン酸も含有する酢であることがわかった。発酵槽を用いて製造した醸造酢を試飲した結果、酢の酸味が抑制されて若干の甘味を感じるほどであり、飲み易いものであった。

#### b) C38 を用いた抗腫瘍試験

C38/C57BL/6 の系を用いて *in vivo* 抗腫瘍試験を行った。最初に C38 の継代培養により形成した固形腫瘍を摘出し、*in vivo* 抗腫瘍試験のための移植を行った。腫瘍移植後 14 日を経過したところで平均腫瘍径が 5-7 mm に達したため、適切な大きさの腫瘍を有する担がんマウスを選択し、群分けした。試験群は、対照群、1.0% (w/w)米焼酎粕凍結乾燥物添加群、1.0% (w/w)米焼酎粕醸造酢凍結乾燥物添加群の 3 群を設けた。

Fig. 2 に示したように、1.0%米焼酎粕添加飼料の投与により腫瘍体積の増加を対照群と比較して有意に抑制することが確認できた。また、1.0%醸造酢添加飼料の投与においても明らかに腫瘍体積の増加を抑制していることが確認できた。C38 の異物認識による免疫作用の影響が全くない C57BL/6 マウスに対して、1.0%米焼酎粕および 1.0%醸造酢添加飼料を自由摂取させることにより、有意にマウスの背部に形成させた固形腫瘍の体積増加が抑制されることが確認できた。

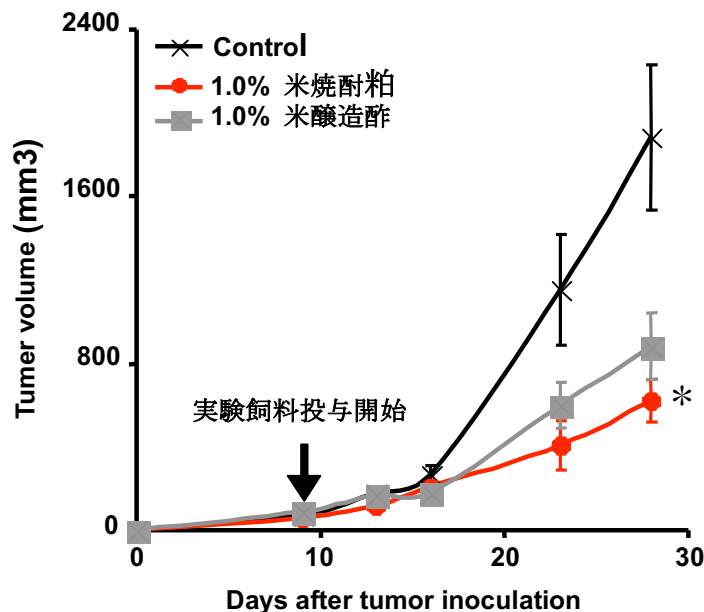


Fig. 2 C38 / C57BL/6 評価系における腫瘍体積の経日変化  
Values are means  $\pm$  S.E, \*:  $P < 0.05$ ,  $n = 8$ .

### c) C-38 を用いた抗腫瘍試験におけるマウス血清中のサイトカイン濃度の測定

マウスに米焼酎粕あるいは米焼酎粕醸造酢を投与すると NK 細胞が活性化することが明らかになったので、マウス血清中の各サイトカインの量を ELISA kit を用いて測定した。サイトカインは、抗腫瘍に関わるとされている Th1 型サイトカインである IFN- $\gamma$ 、IL-2 および IL-12 の濃度を測定した。対照として、同週令の normal (腫瘍なしマウス)の血清中のサイトカイン量もあわせて測定した。

血清中の IL-2 濃度は、米焼酎および醸造酢群では control 群に比較して傾向的に増加していた。また、血清中の IL-12 濃度についても、米焼酎および醸造酢群では control 群と比較して有意に増加していたので、腫瘍細胞を傷害する NK 細胞の活性化や細胞傷害 T 細胞の分化誘導が control 群よりも有意になされていると考えられた。血清中の IFN- $\gamma$ 濃度は、control 群と比較して米焼酎群は有意に醸造酢群は傾向的に増加していたので、NK 細胞の活性化がなされていると考えられた。

以上の結果から、米焼酎粕や醸造酢は、腸管免疫系でマクロファージなどの抗原提示細胞を活性化することにより、それらから産出されるサイトカイン量を増加させ、その結果 NK 細胞を活性化することが考えられた。しかし、米焼酎粕および醸造酢中のどの物質 ( $\beta$ -グルカンなどの多糖類なのかペプチドなのかそれ以外の物質なのか) が関与しているのか断定できない。今後は、免疫機能を向上させ抗腫瘍活性を発揮する物質の精製・同定を行う予定である。

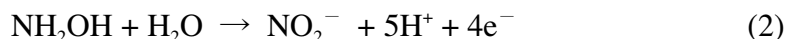
## 2.3 有明海干潟底泥微生物群集における窒素代謝経路の解析

### (1) 緒言

閉鎖性海域である有明・八代海域は、わが国の干潟の約 57%にも達する広大な干潟を有している。この干潟の持つ高い浄化能力により、海域環境が保たれてきたと考えられている。しかし昨今、干潟環境の悪化が顕著になり、海域環境も悪化の一途を辿っている。干潟環境の改善方法の一つとして干潟耕耘が実施され始めている。干潟を耕耘することで底質環境を好気環境にし、好気性微生物の働きを高めて、有機物量を減少させる方法である。しかし、干潟耕耘の微生物に及ぼす効果を調査した例はない。そこで、われわれは干潟耕耘試験による底質微生物群集に対する影響を解析した。

代謝反応における key enzyme をコードする遺伝子だけを解析することで、干潟底質の代謝反応系が変化するかどうか、代謝に関与する微生物の種類が変化するかどうかを知ることができる。硫黄代謝に関しては、嫌気的環境下で硫酸塩を硫化物に還元する硫酸塩還元細菌と好気的環境下で硫化物を硫酸塩に酸化する硫酸酸化細菌による硫黄サイクルが考えられるので、両反応で可逆的かつ特異的に作用する酵素 adenosine-5'-phosphosulfate reductase をコードする遺伝子(*apsA*)に着目した。一方、窒素代謝に関しては、干潟に流れ込んだ有機物の窒素分がアンモニアに分解され、アンモニア酸化細菌によりアンモニウム

イオンが亜硝酸や硝酸に酸化された後、脱窒細菌により亜硝酸や硝酸が窒素ガスに変換されて大気中に戻る経路が考えられる。アンモニアから亜硝酸への生物学的酸化反応は次の2段階反応であることが知られている。



反応(1)を触媒する酵素としてはたらく AMO (ammonia monooxygenase)はマルチコンポーネントであり、その活性サイトを有する $\alpha$ -subunit ammonia monooxygenase をコードする *amoA* 遺伝子は、アンモニア酸化細菌だけがもつ遺伝子であり、同細菌特有の分子マーカーとして用いた。一方、亜硝酸や硝酸を窒素に変換する脱窒菌の分布は広く、脱窒反応のキー酵素として nitrite reductase が知られている。Nitrite reductase には銅を含むものと cytochrome  $\text{cd}_1$  型の2種類が知られており、両酵素をコードする遺伝子がそれぞれ *nirK* と *nirS* である。そこで窒素代謝に関しては、*amoA*, *nirK*, *nirS* の3種類の遺伝子に着目した。

昨年度は、硫黄代謝について検討した結果を報告した。本年度は、窒素代謝について検討した結果を報告する。

## (2) 実験方法

### a) 耕耘試験試料

耕耘試験試料として、2004年7月27日（耕耘前）、8月27日（耕耘14日後）、9月13日（耕耘1ヵ月後）に耕耘区(K)と比較対照区(H)のそれぞれ4箇所において、また、8月16日（耕耘直後）に耕耘区(K)の4箇所において、ステンレスコアサンプラーを用いて採泥し、上層（表層～-1.0 cm）、中層（-3.0～-7.0 cm）、下層（-18.0～-22.0 cm）に分画したものを、分析用試料とした。底質試料は8000×g 4℃で10分間遠心分離し、上澄液を間隙水として分析用試料とした。沈殿はPBSで洗浄して再度遠心分離し、沈殿物をDNA抽出用の試料とした。

### b) 耕耘試験試料からのDNAの抽出

試料からのDNAの抽出は、Fast DNA SPIN Kit for soil を用いて一部改良した方法で行った。

### c) 抽出DNAからの窒素代謝関連遺伝子 *amoA*, *nirS*, *nirK* のPCR増幅およびクローン解析

それぞれの遺伝子に特異的なプライマーを設計し、PCR増幅を行った。

## (3) 結果と考察

### a) *amoA* 遺伝子領域を標的としたクローン解析

増幅した491 bpのDNA断片に対してクローン解析を行った結果、得られた最近縁種はすべてUnculturedであった。また、耕耘後の下層を除いて、すべての層においてUncultured ammonia-oxidizing beta proteobacterium clone CB3-14が最も多く得られた。これらのクローンは、*Nitrosospora* 属様の海域由来の細菌であった。

以上の結果から、干潟底質中では層の深さや耕耘前後に関わらず、絶えずAOB (Ammonia

oxidizing bacteria) によって  $\text{NH}_4^+$  から  $\text{NO}_2^-$  への変換が行われていると考えられた。

b) *nirS*, *nirK* 遺伝子領域を標的としたクローン解析

*nirS* および *nirK* 領域を標的としてクローン解析を行ったところ、*nirS* 領域については DNA 断片の増幅が見られたが *nirK* 領域については増幅が見られなかった。ワシントン周辺の沿岸域底質サンプルにおいても、*nirS* は増幅したが *nirK* は増幅しなかったとの報告があることから、干潟等の海域底質における脱窒細菌は *nirS* 型の nitrite reductase を有するものが優占していることが考えられた。

*nirS* 遺伝子領域を標的としたクローン解析の結果、硝化細菌と比較して脱窒細菌は分類上広い範囲にわたって菌株が単離されているにもかかわらず、得られたクローンの最近縁種のほとんどが **uncultured bacterium clone** であった。

上述したように、サンプルの深度や耕耘前後に関わらず、**uncultured** クローンに近縁なクローンが主であったが、得られたクローンのうち分類できたものは全て *Proteobacteria* に属することがわかった。また、耕耘直後のクローンには *Thiobacillus denitrificans* の *nirS* に近縁なものが多いという特徴を有していた。したがって、*Thiobacillus* 属細菌は常に干潟底泥中に存在し、嫌気環境では硫黄脱窒を主な代謝経路とし、好気環境になると硫黄酸化を主な代謝経路として増殖速度が大きくなっている可能性が示唆された。

### 3. 成果の達成度

領域 (A) および (B) において十分なる成果を得ることができた。

### 4. 平成 18 年度の目的・目標

領域 (A) では、酸素状態と硫黄および窒素サイクルの関係を明らかにし、微生物生態系と底生・水生生物の生態系の相互作用に言及したい。領域 (B) では、環境負荷となる様々な有機系廃棄物のメタン発酵やエタノール発酵を利用した有効利用技術に関して検討する。また、食品や醸造工程から排出される有機系バイオマスから機能性食品を製造し、その生理活性や作用機構を明確にすることで高付加価値化を目指す。これらの技術により、従来の中間処分→埋立処分といった既存の処理技術を利活用技術に変換することで、陸上負荷の軽減や地球温暖化防止につなげたい。

### 5. 平成 17 年度の研究費取得状況

(22) 受託研究 (日揮 (株)) , 2005年, 2843万円, バイオマスエネルギー高効率転換技術 : 高温耐性、耐酸性および耐塩性を有する凝集性酵母の育種 / 高効率発酵プロセスの開発 / 蒸留廃液処理プロセスの確立

(23) 受託研究 ((株) りゅうせき) , 2005年, 1049万円, 沖縄産糖蜜の適用性等に関する研究

- (24) 受託研究（九州沖縄農業研究センター），2005年，750万円，林産残さ、食品残さ等未利用バイオマスの循環・利用システムの開発
- (25) 受託研究（九州沖縄農業研究センター），2005年，300万円，南九州畑作地域におけるゼロエミッション型カスケード利用システムの開発
- (26) 受託研究（（独）科学技術振興機構），2005年，130万円，焼酎粕の乳酸発酵による安価でプロバイオティクス効果の高い飼料の製造に関する実用化研究
- (27) 受託研究（九州電技開発（株）），2005年，117万円，廃シロップ液及び規格外農産物からの燃料用エタノール製造に関する研究
- (28) 科学技術振興調整費（熊本大学代表：滝川先生），2005年，3420万円，底質機能の微生物学的評価と改善技術の検討
- (29) 科研費（基盤研究A，代表：滝川先生），2005年，90万円，干潟底泥の微生物叢および代謝反応系の解析
- (30) 科研費，2005年，170万円，焼酎蒸留廃液有効利用のための抗腫瘍活性成分の解明
- (31) 科研費，2005年，150万円，メタン発酵槽内の微生物共生系における細胞間電子伝達系の解明
- (32) 科研費，2005年，90万円，焼酎粕および焼酎粕から製造した醸造酢が有するマウス固形腫瘍の増殖抑制機序の解明
- (33) 工学部科学研究助成，2005年，180万円，蒸留酒白酒製造工程から排出される発酵廃粕からの燃料用アルコールの生産
- (34) 研究奨励費（インセンティブ），2005年，150万円
- (35) 共同研究（瑞鷹（株）），2005年，900万円，ゼロエミッション焼酎・健康酢製造技術の実証と事業化
- (36) 共同研究（霧島酒造（株）），2005年，400万円，焼酎粕からの機能性飲料・食品の開発
- (37) 共同研究（（株）バイファ），2005年，215万円，酵母廃液処理方法の検討
- (38) 共同研究（東京ガス），2005年，150万円
- (39) 日本酒造組合中央会，2005年，100万円，米焼酎粕および米焼酎粕から製造した醸造酢の機能性／調査研究
- (40) 都市エリア産学官連携促進事業，2005年，164万円，バイオマスの効率処理技術の確立
- (41) 委任経理金（南国興産（株）），2005年，100万円
- (42) 委任経理金（（株）エル・シー・エー），2005年，200万円

## 7. 平成 17 年度の研究発表、特許状況

### (1) 原著論文による発表 計 8 件

#### a) 和文誌

- 1) 森村 茂、稲垣秀一郎、梅崎宗規、重松 亨、木田建次  
大豆煮汁からの醸造酢の製造とその機能性.  
日本食品科学工学会誌. **52**, 578-583 (2005).

#### b) 英文誌

- 1) Tang, Y.Q., Shigematsu, T., Morimura, S., Kida, K.  
Microbial community analysis of mesophilic anaerobic protein degradation process using bovine serum albumin(BSA)-fed continuous cultivation,  
J. Biosci. Bioeng., **99**, 150-164 (2005).
- 2) Shigematsu, T., Takamine, K., Kitazato, M., Morita, T., Naritomi, T., Morimura, S., Kida, K.  
Cellulose production from glucose using a glucose dehydrogenase gene (*gdh*)-deficient mutant of *Gluconacetobacter xylinus* and its use for bioconversion of sweet potato pulp,  
J. Biosci. Bioeng., **99**, 415-422 (2005).
- 3) Wakamatsu, D., Morimura, S., Sawa, T., Kida, K., Nakai, C., Maeda, H.  
Isolation, Identification, and Structure of a Potent Alkyl-Peroxyl Radical Scavenger in Crude Canola Oil, Canolol,  
Biosci. Biotechnol. Biochem., **69**, 1568-1574 (2005).
- 4) Zhang, W.X., Qiao, Z.W., Shigematsu, T., Tang, Y.Q., Hu, C., Morimura, S., Kida, K.  
Analysis of the bacterial community in *zaopei* during production of Chinese luzhou-flavor liquor.  
J. Inst. Brew., **111**, 215-222 (2005).
- 5) Sumi, A., Morimura, S., Shigematsu, T., Takenouchi, H., Kida, K.  
Anaerobic digestion of wastewater including high concentration of yeast, *Pichia pastoris*,  
Japanese J.Treat.Biol., **41**, 213-218 (2005).
- 6) Sakata, M., Nakayama, M., Fujisaki, T., Morimura, S., Kunitake, M., Hirayama, C.  
Chromatographic removal of host cell DNA from cellular products using columns packed with cationic copolymer beads.  
Chromatographia, **62**, 465-470 (2005).
- 7) Inagaki, S., Morimura, S., Shigematsu, T., Kida, K., Akutagawa, H.  
Apoptosis induction by vinegar produced from boiled extract of black soybeans in human monoblastic leukemia U937 cells: Difference in sensitivity to cell toxicity compared to normal lymphocytes.

Food Sci. Technol. Res., 11, 311-317 (2005).

(2) 原著論文以外による発表

a) 総説 計 2 件

1) 木田建次, 森村 茂, 重松 亨

廃棄物系バイオマスの利活用による地球温暖化防止と資源循環型まちづくり  
月刊廃棄物, **31**, 154-165 (2005).

2) 森村 茂, 関 孝弘, 重松 亨, 木田建次

焼酎粕からの醸造酢の製造とその機能性  
日本醸造協会誌, **100**, 607-617 (2005).

b) 書籍 計 3 件

1) 植田充美、近藤昭彦監修 (株) シーエムシー出版 (2005 年 9 月)

・ 森村 茂 著

「セルロース系バイオマスからのエタノール生産用酵母の改良育種」 (第 1 章 エコバイオエネルギーの最前線—ゼロエミッション型社会を目指して—)

・ 劉 凱、木田建次 著

「バイオマスのメタン発酵によるサーマルリサイクル」 (第 3 章 エコメタン)

・ 重松 亨 著

「高効率メタン発酵のための分子生態学的手法による微生物の迅速モニタリング」 (第 3 章 エコメタン)

2) 木田建次, 重松 亨 「II 編 生物学技術の実際 4.1.2 節 メタン発酵」 生物学ハンドブック, 日本生物工学会編, pp. 719-724, コロナ社, 東京 (2005 年)

3) 木田建次, 森村 茂, 重松 亨 「第 3 章 産業 環境・エネルギー分野 4. 固形物含有廃棄物系バイオマスのメタン発酵によるサーマルリサイクル」 バイオテクノロジー総覧, 日本能率協会総合研究所編集 pp. 448-457 通産資料出版会, 東京 (2005 年)

(3) 学会発表 計 21 件

1) Takahiro, Seki; Sachiko, Tabata; Shigeru, Morimura; Toru, Shigematu; Kenji, Kida 「Evaluation of antioxidant activity of vinegar produced from rice-*shochu* post-distillation slurry *in vivo* and identification of antioxidant compound in the vinegar」 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies, p.32, Honolulu, Hawaii (2005 年 12 月 17 日).

2) 岡崎克美、劉 凱、岡本昭宏、重松 亨、森村 茂、木田建次 「耐塩性凝集性酵母による沖縄産糖蜜からの燃料用アルコールの生産」 第 12 回日本生物工学会九州支部大会講演要旨集 p.18, 佐賀大学理工学部 (2005 年 12 月 10 日).

3) 劉 凱、上田華奈子、重松 亨、森村 茂、木田建次 「生ごみの糖化酵素の選択とア

- ルコール生産の試み」第 12 回日本生物工学会九州支部大会講演要旨集 p.18, 佐賀大学理工学部 (2005 年 12 月 10 日).
- 4) 横尾栄満、重松 享、森村 茂、木田建次「糖質を基質としたメタン発酵プロセスの構築と微生物群集解析」第 12 回日本生物工学会九州支部大会講演要旨集 p.19, 佐賀大学理工学部 (2005 年 12 月 10 日).
- 5) 鷺見昭典、畑田晋吾、佐藤恭一、重松 享、森村 茂、木田建次「高濃度酵母・アミノグアニジン含有廃液のメタン発酵処理」第 12 回日本生物工学会九州支部大会講演要旨集 p.22, 佐賀大学理工学部 (2005 年 12 月 10 日).
- 6) 亀川由紀子、重松 享、森村 茂、木田建次「肉骨粉の嫌気性処理プロセスの構築と微生物群集解析」第 12 回日本生物工学会九州支部大会講演要旨集 p.23, 佐賀大学理工学部 (2005 年 12 月 10 日).
- 7) Rahyani Ermawati, Masaaki Hiroike, Toru Shigematsu, Shigeru Morimura, Kenji Kida「Degradation behavior of natural hormones in cow manures waste during biological treatment」第 12 回日本生物工学会九州支部大会講演要旨集 p.24, 佐賀大学理工学部 (2005 年 12 月 10 日).
- 8) 早川亮司、重松 享、森村 茂、木田建次「有明海干潟耕耘試験における底質中微生物群集の 16S rRNA 遺伝子に基づく解析」第 12 回日本生物工学会九州支部大会講演要旨集 p.24, 佐賀大学理工学部 (2005 年 12 月 10 日).
- 9) 亀割陽博、早川亮司、重松 享、森村 茂、木田建次「有明海干潟耕耘試験における底質中微生物群集の代謝関連遺伝子に基づく解析」第 12 回日本生物工学会九州支部大会講演要旨集 p.25, 佐賀大学理工学部 (2005 年 12 月 10 日).
- 10) 鈴木一徹、森村 茂、重松 享、木田建次「*In vitro* 評価系における抗ラジカル活性と構造の相関」第 12 回日本生物工学会九州支部大会講演要旨集 p.44, 佐賀大学理工学部 (2005 年 12 月 10 日).
- 11) 稲垣秀一郎、森村 茂、重松 享、木田建次、芥川浩志「黒豆納豆製造工程で副生する大豆煮汁を用いた醸造酢の製造とそのアポトーシス誘導効果」第 10 回日本フードファクター学会 (JSoff) 講演要旨集 p.91, 岡山大学農学部 (2005 年 11 月 24 日).
- 12) 水野優子、重松 享、森村 茂、木田建次「Acetate kinase 遺伝子を標的としたプロピオン酸を分解するメタン発酵槽内部生物群の解析」平成 17 年度日本生物工学会大会講演要旨集 p. 80, つくば国際会議場 (2005 年 11 月 15 日).
- 13) 劉 凱、佐藤恭一、重松 享、森村 茂、木田建次「生し尿、浄化槽汚泥、生ごみの効率的嫌気性消化プロセスの構築と微生物叢の解析」平成 17 年度日本生物工学会大会講演要旨集 p. 81, つくば国際会議場 (2005 年 11 月 15 日).
- 14) 権藤和修、稲垣秀一郎、森村 茂、重松 享、木田建次、芥川浩志「黒豆納豆大豆煮汁から製造した醸造酢のアポトーシス誘導」平成 17 年度日本生物工学会大会講演要旨



集 p. 171, つくば国際会議場 (2005 年 11 月 15 日).

15) 湯 岳琴、安 明哲、重松 亨、森村 茂、赤田倫治、近藤昭彦、木田建次「セルロース系バイオマスからの燃料用エタノール生産および耐熱性耐酸性キシロース資化性酵母の育種」平成 17 年度日本生物工学会大会講演要旨集 p. 197, つくば国際会議場 (2005 年 11 月 16 日).

16) 信龍亮志、重松 亨、森村 茂、木田建次「*Delftia tsuruhatensis* のテレフタル酸ジオキシゲナーゼ遺伝子クラスターと転写解析」平成 17 年度日本生物工学会大会講演要旨集 p. 94, つくば国際会議場 (2005 年 11 月 17 日).

17) 安 明哲、重松 亨、森村 茂、木田建次「木質系バイオマスのエタノール発酵から排出される蒸留廃液の処理」平成 17 年度日本生物工学会大会講演要旨集 p. 184, つくば国際会議場 (2005 年 11 月 17 日).

18) 森村 茂、関 孝弘、重松 亨、木田建次「米焼酎粕から製造した醸造酢の免疫増強作用」平成 17 年度日本醸造学会大会講演要旨集 p. 12, 北トピア(2005 年 10 月 6 日).

19) 宮川博士、河野邦晃、奥野博紀、高瀬良和、柏田雅徳、山本英樹、森村 茂、重松 亨、木田建次「長期差しもとを伴う従来法および返し仕込みによる焼酎製造の実証試験」平成 17 年度日本醸造学会大会講演要旨集 p. 13, 北トピア(2005 年 10 月 6 日).

20) 河野邦晃、宮川博士、奥野博紀、高瀬良和、柏田雅徳、森村 茂、重松 亨、木田建次「焼酎粕からの繰返し回分発酵による醸造酢製造の実証試験」平成 17 年度日本醸造学会大会講演要旨集 p. 13, 北トピア(2005 年 10 月 6 日).

21) 湯 岳琴、安 明哲、重松 亨、森村 茂、木田建次「セルロース系バイオマスからの燃料用エタノールの生産」第 42 回化学関連支部合同九州大会講演予稿集 p.254, 北九州国際会議場(2005 年 7 月 2 日).

(4) 特許 (平成 17 年度出願または公開) 計 3 件

1) 特許公開 2005-261390 (特願 2004-82813)「発酵飼料の製造方法」(2004 年 3 月 22 日出願, 2005 年 9 月 29 日公開)

発明者: 木田建次、森村 茂、重松 亨、イクバル

出願人: 財団法人くまもとテクノ産業財団

2) 特許公開 2005-154503 (特願 2003-392375)「バイオガス中の硫化水素を除去する方法」(2003 年 11 月 21 日出願, 2005 年 6 月 16 日公開)

発明者: 木田建次、森村 茂、重松 亨

出願人: 財団法人くまもとテクノ産業財団

3) 特許公開 2005-058243 (特願 2004-347544)「焼酎の製造方法」(2004 年 11 月 30 日出願, 2005 年 3 月 10 日公開)

発明者: 木田建次、森村 茂、下田 猛, 中川 優

出願人: 日本酒造組合中央会

## 平成 17 年度研究成果報告

研究課題名：環境微生物を活用する水・土壌環境修復

所属・氏名：工学部環境システム工学科 川越保徳

### 1. 研究目的・目標

#### (1) H15 年度～21 年度における目的・目標

高度成長期における水環境に関する公害問題は、高度に汚濁したあるいは有害な化学物質に汚染された産業廃水によって引き起こされ、その対策についてはいかに排出源でそれをくい止めるかが最重要課題であった。すなわち排水処理技術を推進、徹底するとともに、排水水質モニタリング技術の向上が図られた。今日では、このような長年に渡る排出源対策が功を奏し、かつての公害問題が再び繰り返されることはないと考えられる。しかしながら一方で、既に汚染された水・土壌環境への対策は今なお不十分な状況にある。特に地下水中の窒素やリンなどの栄養塩類や内分泌攪乱物質に代表される微量化学物質による水環境汚染は、これまでの排出源対策では対処できず、将来に大きな影響を及ぼす恐れもある。これに対して、生物学的環境修復技術がその対策の一つとして期待されている。本研究では、有用な環境微生物を活用し、できるだけ現場に即応した実用的な環境修復技術の開発を目的とする。具体的には、我が国だけでなくアジアおよび全世界的に問題となっている窒素をはじめ種々の有害化学物質に汚染された環境水を、低コストで高速に除去するための基礎技術の確立を目指す。

#### (2) H17 年度における目的・目標

川越は H15 年に熊本大学に赴任し、地下水中の硝酸・亜硝酸性窒素の除去に関する研究に携わっている。窒素による健康影響としては、亜硝酸窒素が血液中のヘモグロビンと結合することで酸欠状態を引き起こす「メトヘモグロビン血症」が知られ、米国では乳児の死亡例もある。また、窒素はリンとともに「栄養塩類」として富栄養化現象の原因物質であることはよく知られているところである。

環境水、あるいは廃水からの窒素除去については、生物学的処理技術が知られており、これは主にアンモニアや有機態窒素を硝酸あるいは亜硝酸にまで酸化（硝化）する硝化細菌と、その逆反応、すなわち硝酸や亜硝酸を窒素ガスに還元（脱窒）する脱窒細菌の働きを利用したものである。生物学的窒素除去は、自然界に存在する微生物を反応を利用し、加えて窒素を大気成分である窒素ガスにまで処理できることから、処理水をアルカリ性にして強制曝気することでアンモニアを揮散するアンモニアストリッピング法などの物理化学的処理に比べて、いわゆる“地球に優しい”技術といえる。しかしながら、脱窒過程では、その反応を担う脱窒細菌が一般には従属栄養細菌であることから炭素源が必要となり、処理水の性状によっては、炭素源の投入によるコストの増大や二次汚染の問題が懸念される。

そこで、川越の研究グループでは、脱窒細菌の炭素源として固体状の生分解性プラスチックを活用する硝酸・亜硝酸性窒素除去技術の確立を目的として検討を行ってきた。一昨年度（H15 年度）の研究では、生分解性プラスチックを充填した土壌カラムによる硝酸性

窒素の還元脱窒除去に関する研究、生分解性プラスチックとして、ポリヒドロキシブチレート(以下、PHB とする)、ポリ乳酸、酢酸セルロース、ポリブチレンコハク酸の 4 種類を用いて連続実験を実施し、窒素の除去能を比較検討した。その結果、PHB を充填した土壌カラムにおいて、実験開始直後から硝酸の急激な減少がみられ、その後も他の生分解性プラスチックに比べて、安定・良好な窒素除去が認められた。また、昨年度 (H16 年度) には、PHB 充填土壌カラムによる硝酸性窒素除去メカニズムを明らかにするために、硝酸性窒素濃度と土壌細菌数や細菌叢との関係について MPN 法、PCR-DGGE 法等の分子生物学的手法を用いて解析、検討し、カラム内部での脱窒細菌数および脱窒活性が PHB 充填部位にて最も高く、その下流部においても同細菌数・活性が経時的に増大することでリアクター全体としての窒素除去能が向上することが明らかとなった。また、細菌叢解析の結果から、PHB 加水分解酵素を有し、かつ硝酸還元能が知られる *Ralstonia pickettii* の近縁細菌が、本リアクターの窒素除去に大きく寄与していることが推定された。

現在、これら研究成果を踏まえ、PHB 土壌カラムリアクターからの PHB 資化性脱窒細菌の単離とその諸性質を明らかにするとともに、単離された細菌を活用した高窒素負荷条件下での脱窒処理方法の確立を目的として検討を進めている。今年度は、PHB 資化性脱窒細菌の単離に成功し、その同定とおおよび生育条件等について知見が得られた。

## 2. H17 年度の研究成果

### (1) PHB 資化性脱窒細菌の単離

上記 PHB 充填土壌カラム中部の PHB 充填部近傍土壌を滅菌生理食塩水に採取し、超音波による土壌粒子からの脱着・分散処理、および孔径 1mm のスクリーンでのろ過を施したろ液を分離源とした。単離については、脱窒細菌培養用の Giltay 液体培地に上記分離源を接種して嫌気培養した培養液を同寒天平板培地に塗抹し、得られたコロニーの分離・純化を繰り返すことで行った。肉眼観察で、色・形態が異なると判断された 20 個のコロニーについて、PHB 粉末を単一炭素源とする Giltay 培地での生育、および硝酸還元能を有するものを選択し、最終的に最も良好な生育を示したものを、PHB 資化性脱窒細菌 K2F 株として以降の実験に供した。Fig.1 に、PHB 粉末を炭素源とする Giltay 液体培地での生育、培地色の青変、およびダーラム管内に発生した窒素ガス生成を示す写真を、Fig.2 に Giltay 寒天平板培地における K2F 株のコロニーを示す。なお、本培地は硝酸塩と pH 指示薬の Bromothymol Blue (BTB) を含んでおり、K2F 株の増殖により硝酸が還元されて pH が上昇することで培地色が青変していることが分かる。

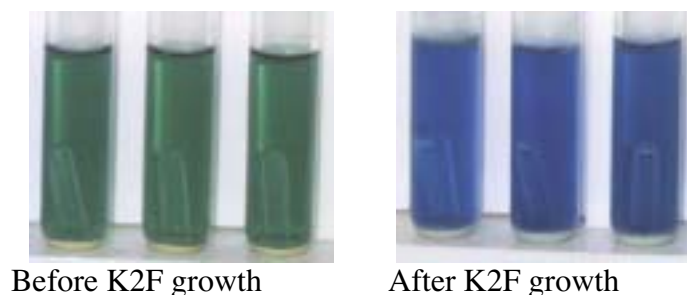


Fig.1 Growth of strain K2F and denitrification in Giltay liquid medium with PHB as a sole carbon source

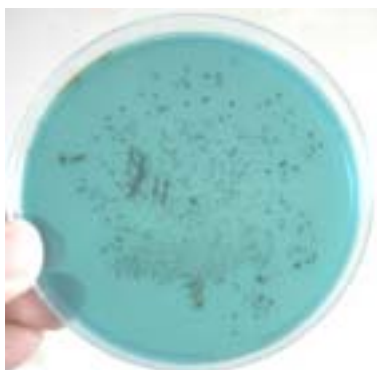


Fig.2 Colony of isolated PHB-assimilating denitrifier strain K2F

## (2) PHB 資化性脱窒細菌 K2F 株の同定

K2F 株は、グラム陰性の桿菌で鞭毛の存在が示唆された。Fig.2 に走査型電子顕微鏡写真を示す。16S rRNA のほぼ全長 (1495 bps) の DNA 配列に基づく相同性検索の結果、K2F 株の 16S rRNA 配列は *Ralstonia mannitolytica* に 100% し、*Ralstonia pickettii* に 99% 以上一致した。また、Table 1 に示す生物学的諸性質について、関連文献及び Bergey's Manual (Ninth Edition) を参照・検討した結果、K2F 株は *Ralstonia* 属の細菌に帰属された。そこで、*Ralstonia* 属細菌についてさらに詳細な 16S rRNA 相同性および諸性質を比較した結果、硝酸還元能を最終的な判定基準として、K2F 株を *Ralstonia pickettii* と判定した。Fig. 3 に 16S rRNA による系統樹を示す。

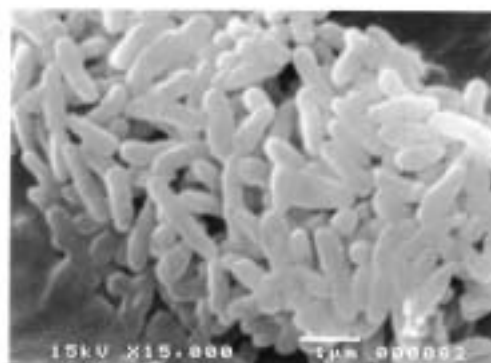


Fig.2 Scanning electron micrograph of PHB-assimilating denitrifier strain K2F

Table 1 Biochemical properties of strain K2F

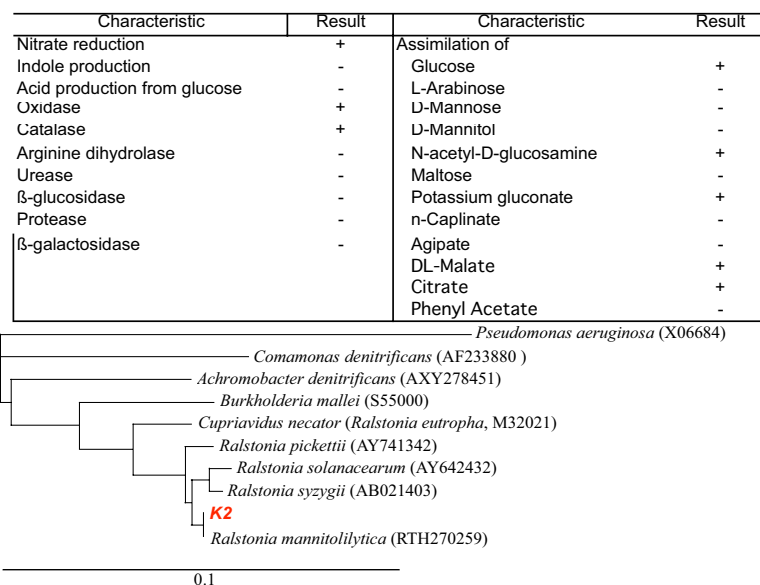


Fig.3 16S rRNA-based phylogenetic tree of stain K2F by neighbor-joining analysis. Number at nodes represent bootstrap values (100 replicates) and the scale indicates 0.1 nucleotide substitution per nucleotide position.

### (3) PHB 資化性脱窒細菌 K2F 株の生育条件に関する基礎検討

単離、同定された K2F 株を、PHB ペレットを単一炭素源として、硝酸を電子受容体として添加した Giltay 液体培地にて嫌気培養し、硝酸・亜硝酸の消費を確認した後に、新たに硝酸を添加するといった形で回分培養を繰り返し、細菌量と硝酸還元能の維持を確認した。Fig. 4 に、2 回目の回分培養における硝酸および亜硝酸の経時変化を示す。Fig. 4 から明らかなように、約 100mg-N/l の硝酸は添加後 30 時間以内に消失し、亜硝酸の蓄積もみられなかったことから、PHB ペレットで生育した K2F 株による脱窒が確認された。回分培養はその後、計 5 回繰り返したが、同様の結果が得られた。

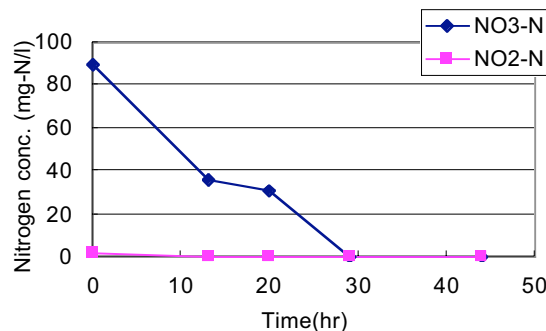


Fig. 4 PHB を炭素源とした K2F 株培養時の硝酸・亜硝酸濃度経時変化

次に、K2F 株の生育および硝酸脱窒能に関して、基礎生育条件である温度と pH の影響を調べた。実験はクエン酸ナトリウムを炭素源として、硝酸を電子受容体として添加した培地を用い、所定の温度、pH を設定して行った。Fig. 5 に各設定温度での K2F 株の生育曲線および Fig. 6 に硝酸脱窒能の経時変化を示す。ここで生育については、菌体濃度を OD<sub>600</sub> 値の変化として、また、硝酸脱窒能は残存硝酸濃度の変化として表した。K2F 株は、Fig. 5 に示すように 55℃では生育しなかったが、8～40℃の範囲内では生育可能であった。ただ

し、40℃と 8℃では生育開始までにラグが見られ、特に8℃では培養後約 80 時間を要した。一方最大菌体濃度は、40℃では 20℃と 30℃での結果よりも低かったのに対し、8℃ではほぼ同程度の値が得られた。20℃と 30℃での生育は速度、最大菌体濃度ともほぼ同等の結果となり、K2F 株の生育至適温度は 20～30℃と判断した。硝酸還元能については、Fig. 6 から明らかなように 30℃において硝酸還元速度が最も高いという結果が得られた。30℃と同程度の生育が見られた 20℃では、培養後 25 日以降に硝酸濃度の減少が停止し、40℃では減少速度は低いものの 99%以上の減少がみられた。また、30℃と 40℃では、亜硝酸の蓄積がみられ (data not shown) 30℃では速やかに減少したのに対し、40℃では 20mg/l 濃度が残存した。これらの結果については、K2F 株の有する硝酸還元酵素および亜硝酸還元酵素の特性による影響が推定される。

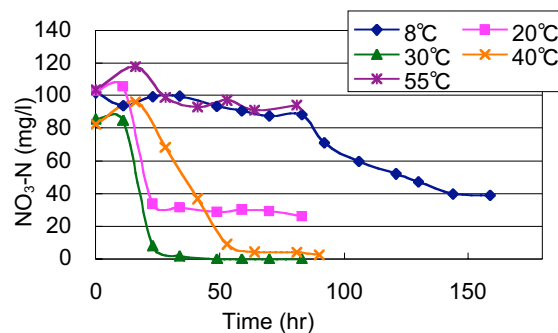
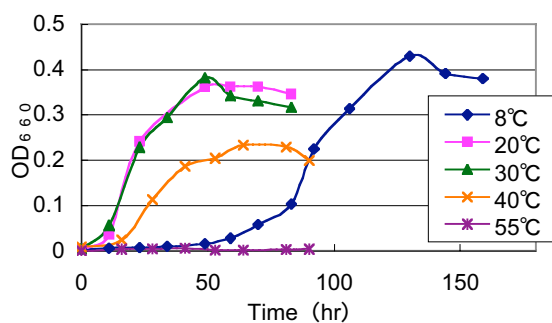


Fig. 5 K2F 株の生育に及ぼす温度の影響

Fig. 6 硝酸還元能に及ぼす温度の影響

Fig. 7 に各設定 pH での K2F 株の生育曲線と Fig. 8 に硝酸脱窒能の経時変化を示す。K2F 株は pH5.0～7.0 の間で生育可能で、pH6.0 において最も良好な生育を示した。また、Fig. 8 から明らかなように、硝酸脱窒能は K2F 株の生育の見られた pH 条件において認められ、特に pH6.0 の条件下にて最も高い減少速度が得られた。

これらの結果から、K2F 株は比較的広い温度範囲において生育可能で硝酸脱窒能を維持できることが明らかとなり、水温の変動しやすい環境水・廃水処理への適用にも有用であると考えられる。

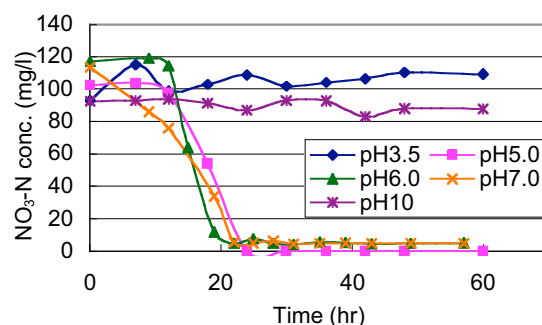
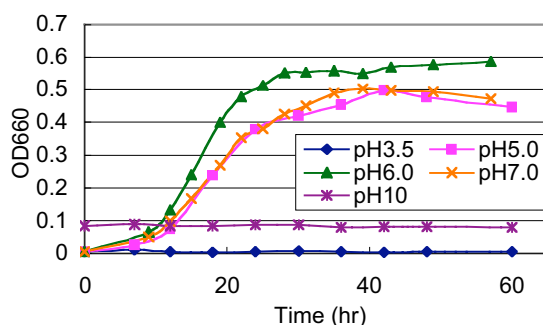


Fig. 7 K2F 株の生育に及ぼす pH の影響

Fig. 8 硝酸還元能に及ぼす pH の影響

### 3. 成果の達成度

H16 年度までの研究では生分解性プラスチック PHB 充填カラムリアクターによる硝酸性窒素処理に関する、リアクター内の窒素の挙動と関与細菌叢に関する基礎的知見収集に留まっていたが、本年度は PHB 資化性脱窒細菌を実際に単離することに成功し、その諸性質についても知見を得ることができた。現在、K2F 株の単離と同定については再現性等を確認中で、結果が揃い次第、英文論文にまとめ投稿する予定である。

### 4. H18 年度の目的・目標

PHB 資化性脱窒細菌 K2F 株の単離に成功し、その環境水・排水処理への適用可能性が示されたことから、平成 18 年度は、PHB を炭素源とした硝酸脱窒に関する回分実験を実施して基礎データを集積するとともに、K2F 株を高濃度に集積し、PHB を炭素源として供給できるリアクタシステムを構築し、PHB を炭素源および電子供与体として用いる高速で低コストの連続硝酸性窒素除去技術の構築にむけて研究を進める予定である。

### 5. 本研究に関連する H17 年度の研究費取得状況

#### (1) H17 年度取得状況

- 1) 西田鉄工研究基金, 2005-2006 年, 110 万円, 生分解性プラスチック資化性脱窒細菌の集積・分離と硝酸性窒素除去への利用に関する研究

#### (2) H18 年度申請状況

- 1) 学術振興会基盤研究 C, 2006-2008 年, 495 万円, 水素発酵生物膜による安定・高効率な水素生成技術の確立と関与微生物叢の解明
- 2) 高橋研究財団研究助成, 2006 年, 100 万円, 太陽光集光システムと発光ダイオード光源による光合成細菌を活用した低級脂肪酸の分解除去・水素生成技術に関する研究
- 3) (財)住友財団環境研究助成, 2006 年, 130 万円, アクティブバブル (AB) を活用する新規畜産廃水処理法の構築と処理関与微生物叢の解析

### 6. H17 年度の研究発表、特許状況

#### (1) 原著論文による発表

##### ① 国内誌 (和文)

- 1) 川越保徳, Robert Nerenberg, Bruce E. Rittmann, 中空糸膜バイオフィルムリアクターを活用した硝酸・過塩素酸同時還元除去と PCR-DGGE 法による生物膜の細菌叢解析, 用水と廃水, 47 (5), 45-53 (2005)

##### ② 国際誌 (欧文)

- 1) Hu Jin, Yasunori Kawagoshi, Aya Fujimoto, Shigeru Maruyama, Teiji Urakami, and Kenji Furukawa, Denitrification Activity of a Poly-Hydroxybutirate (PHB) Embedded Soil-Column Reactor and Genomic Study of the Bacterial Community, 41 (3), 113-119 (2005)
- 2) Yasunori Kawagoshi, Naoe Hino, Aya Fujimoto, Masaharu Nakao, Yukiko Fujita, Seiji



Sugimura and Kenji Furukawa, Effect of inoculum conditioning on hydrogen fermentation and pH effect on bacterial community relevant to hydrogen production, Journal of Bioscience and Bioengineering, 100 (5), 524-530, (2005)

- 3) Yasunori Kawagoshi, Hirokazu Takahashi, Yuko Okazaki, Hitoshi Hasegawa, and Kenji Furukawa, Hydrogen production with volatile fatty acids by enrichment culture of halotolerant photosynthetic bacteria from tideland sediment, Japanese Journal of Water Treatment Biology, 42 (1), 9-16 (March, 2006)

## (2) 原著論文以外による発表

### ① 学会発表

(国際学会)

該当無し

(国内学会)

- 1) 川越保徳, 日野なおえ, 藤田由季子, 嫌気性水素発酵における水素生成能とその細菌叢に及ぼす発酵条件の影響, 第 16 回廃棄物学会研究発表会, (2005 年 10 月 31 日～11 月 2 日), 第 16 回廃棄物学会研究発表会講演論文集, p535-537,
- 2) 高橋弘和, 川越保徳, 長谷川仁, 藤本綾, 古川憲治, 酢酸・酪酸・乳酸を炭素源とする干潟からの光合成水素生成細菌の集積と分離, 第 42 回日本水処理生物学会, (2005 年 11 月 23 日～25 日), 日本水処理生物学会誌, 別巻, 25, p15
- 3) 日野なおえ, 川越保徳, 岩佐知典, 古川憲治, 藤田由季子, 杉村誠司, 付着固定化担体を活用する有機性廃水からの嫌気性水素発酵に関する研究, 第 42 回日本水処理生物学会, (2005 年 11 月 23 日～25 日), 日本水処理生物学会誌, 別巻, 25, p61
- 4) 川越保徳, 日野なおえ, 古川憲治, 藤田由季子, 杉村誠司, 嫌気性水素発酵生成と関与細菌叢に及ぼす pH の影響, 第 42 回日本水処理生物学会, (2005 年 11 月 23 日～25 日), 日本水処理生物学会誌, 別巻, 25, p93
- 5) 高橋弘和, 長谷川仁, 藤本綾, 川越保徳, 種々の人工光源を用いた光合成水素生成菌の集積と水素回収, 第 40 回日本水環境学会年会, (2006 年 3 月 15 日～17 日), 第 40 回日本水環境学会年会講演集, p73
- 6) 藤田由季子, 杉村誠司, 川越保徳, 古川憲治, 回分および連続実験による生ごみの中温水素発酵, 第 40 回日本水環境学会年会, (2006 年 3 月 15 日～17 日), 第 40 回日本水環境学会年会講演集, p76
- 7) 杉村誠司, 藤田由季子, 川越保徳, 生ごみの可溶化・メタン発酵と水素・メタン発酵の処理性能比較, 第 40 回日本水環境学会年会, (2006 年 3 月 15 日～17 日), 第 40 回日本水環境学会年会講演集, p77
- 8) 日野なおえ, 岩佐知典, 中尾雅治, 川越保徳, 有機性排水からの嫌気性水素発酵における付着固定化担体の活用に関する研究, 第 40 回日本水環境学会年会, (2006 年 3 月 15 日～17 日), 第 40 回日本水環境学会年会講演集, p79
- 9) 川越保徳, 福田淳, 南直哉, 古川憲治, PVA ゲルビーズ流動床によるパラニトロフェノールの連続処理, 第 40 回日本水環境学会年会, (2006 年 3 月 15 日～17 日), 第 40



回日本水環境学会年会講演集，p81

- 10) 楠本良一，中村安宏，手柴一郎，川越保徳，負圧曝気循環水路型ろ床による新規畜産排水処理法に関する基礎的研究，第 40 回日本水環境学会年会，（2006 年 3 月 15 日～17 日），第 40 回日本水環境学会年会講演集，p88

その他 7 編（計 17 編）

## ② 特許状況

特に無し

## 平成17年度研究成果報告

### 研究課題名：様々なスケールの水循環プロセスの実態把握に関する研究

所属・氏名：理学部理学科・嶋田 純

#### 1. 研究目的・目標

##### (1) H15年度～21年度における目的・目標

水循環の中で淡水の占める割合は僅か 2.5%程度に過ぎないが、我々人間の生活に極めて密接に係わる重要な要素であり、その循環の実態把握を行う学問分野を水文学と言う。この地球上の水循環に係わるプロセスを物理的・化学的に究明するために、水の中に自然に存在する環境同位体を利用することでその流動の時空間特性を把握することを研究の目的としている。

湿潤温帯域にある九州地域の水循環プロセスに関して、この環境同位体手法と物理的な観測およびシミュレーション等を適宜併用することにより、降水・蒸発散・土壌浸透・地下水流動・海底地下水湧出等のプロセスの実態把握とその要因の解明、及びそれらに基づく地域の水循環・水賦存特性の評価を行うことで地域の水循環・水利用のあり方に関しての基礎的な情報提供を図ってゆくことを研究の目標としている。

##### (2) H17年度における目的・目標

九州は、我が国の中でも相対的に地下水涵養量が多い地域であり、活発な地下水流動が予測されると共に、半島山系の岩盤地下水は直接有明海・八代海に接しており、海底湧水として地下水流出している可能性が極めて高い。宇土半島周辺地域一帯の第三紀の火山岩（安山岩および角礫凝灰岩系の亀裂岩帯水層）地域を研究対象地域として、これまで科学的データの少ない岩盤地下水の広域地下水流動の実態を把握することを目的として H14 から 17 年度に渡り科研費基盤研究（A）を実施してきた。今年度はその最終年度にあたり、総括的な成果を取りまとめることをその目標とした。

#### 2. H17年度の研究成果

科学研究体制の枠組みにおいて、①源流域での水文観測による地下水涵養機構の究明、②陸域山体部で行うボーリング調査に基づく地下水ポテンシャル分布の把握、これに加えた比抵抗トモグラフィ調査結果を踏まえた岩盤帯水層の連続状況の確認、水質・環境同位体を用いた地下水流動調査、③海域における湧出点確認調査、海底コア採取、海底地下水湧水モニタリングおよび環境同位体調査、④地下水3次元シミュレーション、の4つの手法を平行して実施し、各々の成果をフィードバックさせることで最終的に沿岸域を含む研究地域全体の3次元地下水流動状況を把握することねらいとした一連の研究を行った。

今年度の研究においては、陸域山体部および沿岸部で行われた3地点における複数深度のボーリング調査に基づく地下水ポテンシャル分布の把握、岩盤帯水層の連続状況を確認すると共に、流域内の降水、河川水、湧水、ボーリング地下水等の水質・環境同位体を用いた地下水流動調査等を行い、現地での実測データとそれに対応した3次元地下水流動シミュレーションにより第三紀の火山岩（安山岩および角礫凝灰岩系の亀裂岩帯水層）地域

に於ける地下水流動系の実態が解明された。

### (1) 地下水ポテンシャル分布

流域中央部古屋敷集落付近の観測井 SB-1 における地下水頭モニタリング結果によれば、最も浅い SB-1-3 孔（深度 20m）は降雨に対して約 1 日で応答し水位ピークを形成しており、深度の深い SB1-2 孔の地下水面よりも基底時で 15m 程度高い位置に水面を持っていることから他の 3 井の地下水とは独立した帯水層、つまり宙水として存在していることが示唆される。一方、SB1-4（深度 200m）は降雨に対する応答は見られず、SB-1-1（深度 100m）、SB-1-2 孔（深度 50m）と相互比較すると、SB1 地点では深度の深い観測井のほうがより大きい地下水ポテンシャル値を有することから、地下水の上昇フラックスの存在が考えられる。この結果は古屋敷集落に恒常的な湧水点が存在することによく整合する。

海岸部の観測井 B-2 の MP パッカーシステムによる区間水圧測定において、地表面を基準とする水頭値は区間 B で 1.70m、区間 C は 2.0m、区間 D は 2.0m であり、海岸部においても地下水流動の上昇フラックスが存在することが確認された。これは、潮間帯に自噴井が存在している事実と整合するものであり、自噴井以外でも海域全体で地下水が湧出している可能性が示唆された。

西浦川上流域のマムシ谷にある観測井 SB-3 は、SB3-3（深度 120m）のみ標高約 230m に恒常的に水面が存在するが、他の観測井は年間の内最も降雨の多い夏場にかけてのみ地下水面が形成される。この水面出現の時期と S-12 湧水流出が盛んになる時期が一致しており、地表面下-120m の恒常的な地下水面の上位に形成された宙水構造に関連した湧水や地下水であるものと推察される。

これら地下水ポテンシャルの測定結果と湧水点の空間分布に基づき、流域分水嶺-海岸の断面二次元の地下水ポテンシャル分布模式図を図 1 に示す。この図から、源流部で涵養された地下水は古屋敷付近で上昇し湧出するものより深部を通り流域末端の海岸部へ流動する大きな二つの流れの存在が明らかに示された。

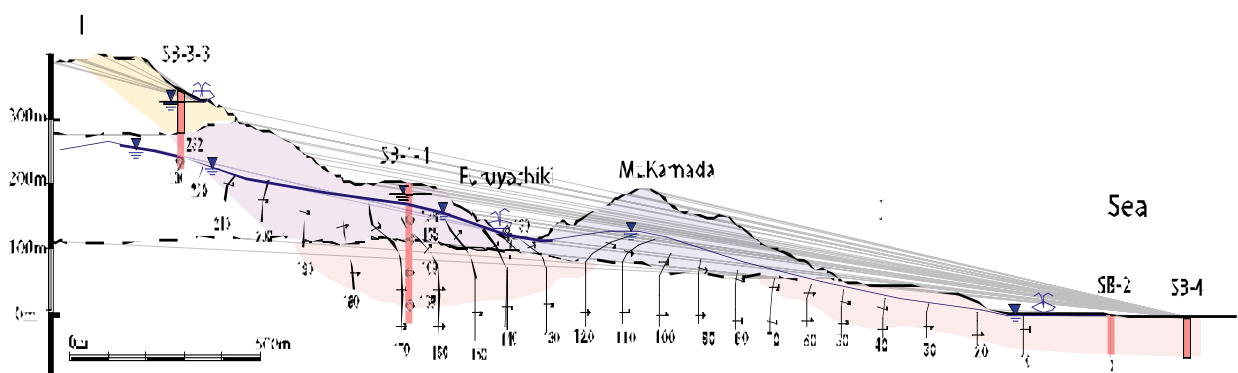


図 1 研究流域における断面 2 次元地下水ポテンシャル分布

## (2) 環境同位体

### a) 安定同位体

流域内の恒常的な主要湧水の地下水は湧出地点から 100m ほど標高の高い場所を涵養源としており、下流域の地下水にあたっては高標高部である上流域を涵養源とする地下水を起源としていることが地下水中の安定同位体比から明らかにされた。総体的に地下水ポテンシャル観測からもたらされた地下水流動経路と安定同位体比を基にした推定涵養標高から予察される流動経路との非常に良い整合がみられた。

### b) トリチウム

流域内の地下水のトリチウム分析結果は最大で  $3.1 \pm 0.6 \text{ T.U.}$ 、最小で検出限界を下回る。日本における降水中のトリチウムの経年変化とトリチウムの半減期 12.43 年の放射壊変による減衰を考慮すると、現時点で地下水のトリチウム濃度が約 1T.U. 以下であれば滞留時間はおおよそ 50 年以上であり、1T.U. 以上であれば 50 年以下の滞留時間であると考えることができる。流域内の地下水は 50 年以上の滞留時間を有するものと、それ以下の若いものに大別することができ、その分布傾向は、これまで述べてきた地下水ポテンシャル、安定同位体、水質等の結果から導かれる地下水流動の概念と非常によく整合している。

### b) $^{14}\text{C}$

$^{14}\text{C}$  分析をトリチウムで滞留時間を 50 年以上有すると判断された地下水に対して適応した結果、SB2 や SB4 観測井は 200~300 年程度の  $^{14}\text{C}$  年代を示すが、海底観測井 SB4 の B 区間以深は 2000 年以上の  $^{14}\text{C}$  年代を示す傾向が認められた。これは潮間帯より陸側の地下水とそれより沖側の地下水とが異なる流動過程にあることを示唆している。これは、無機溶存成分の水質タイプがこれらの地下水の間で異なることに調和的である。図 2 に源流部から海域までの地下水の滞留時間分布を模式二次元断面として示す。

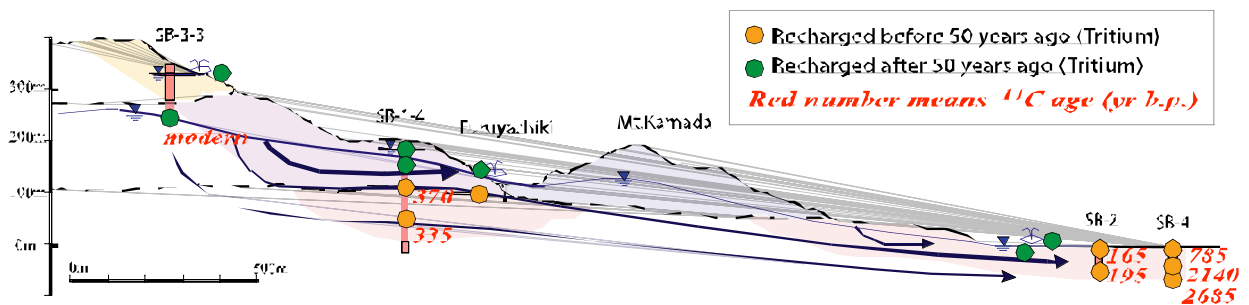


図 2 トリチウム濃度及び炭素 14 濃度を基にした研究地域地下水の年齢分布概念図

## 3. 成果の達成度

火山岩流域の山地から海域にいたる岩盤の広域地下水流動システムを様々な方法を用いて解明した結果以下の様な特性が把握された。

- ・本研究流域では、山地から海域の潮間帯までにかけて数百年の滞留時間を有し現在比較

的活発に循環している「循環性地下水」と、潮間帯より沖側の海域下地域にある数千年スケールの滞留時間を有し相対的に地下水の流動の不活発な「停滞性淡水地下水」が存在していること。

- ・ 前者の「循環性地下水」はその物理化学的性質と流動機構によって「源流部局所流動系」、「中間流動系」、「広域深層流動系」の3つのタイプに分類することができる（図3）

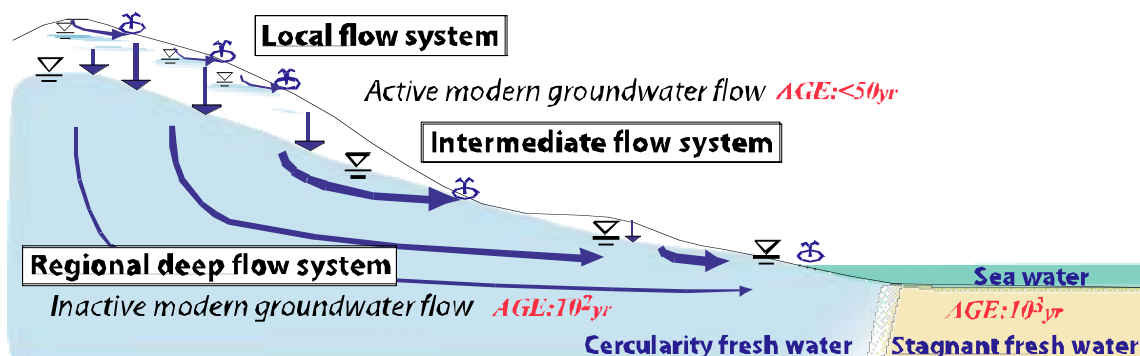


図3 研究地域の地下水流動概念模式図

これらの成果は、これまで情報の殆ど無かった源流域から沿岸部流出域に至る広域の岩盤内地下水流動状況を示す極めて有益な成果で、関連する学会や講演会等で公表し高い評価を得ている。

#### 4. H18年度の目的・目標

本科研は H17 年度で終了するが、同じ研究地域の海域および源流域で数年遅れの科研研究が継続して実施されており、海域においては、停滞性淡水地下水の成立原因の解明を、また源流域においては宙水性地下水の消長と降雨一流出過程の関係を地球物理的な測定手法を用いて解明することを計画している。また、トリチウム測定によって明らかにされた流域内の50年より若い年代の地下水の更に詳細な年齢を把握するための新たな年代測定手法としてCFC（溶存フロン）を用いた研究も、手がけてゆく予定である。

#### 5. H17年度の研究費取得状況

##### ・科学研究費

科研費基盤(A)(1) 平成14-17年度 山体基盤岩地下水流動の実態解明とその水資源的評価. 嶋田 純(代表)、田中 正、長谷義隆、谷口真人、登坂博行、徳永朋祥、辻村真貴、恩田裕一、小野寺真一、宮岡邦任、後藤忠則、松田博貴、46100千円

科研費基盤(B)(2) 平成 16-18 年度 廃棄物処分に関わる安全性検討のための沿岸地圏域地下水流動システムの探査技術開発. 徳永朋祥(代表)、六川修一、嶋田 純、大久保泰邦、20000 千円

科研費 基盤研究(B)(海外学術調査) 平成17-19年度 東アジア沿岸域における地下水流出に伴う炭素・栄養塩類負荷量の評価. 谷口真人(代表)、蒲生俊敬、徳永朋祥、宮岡邦任、張 勁、嶋田 純、小野寺真一 8900千円

科研費 基盤研究 (C) 平成17-19年度 マルチ・トレーサー手法による流域水・物質循環プロセスのモデル化に関する研究. 辻村真貴 (代表)、嶋田 純 3500 千円

科研費 基盤研究 (A) 平成17-20年度 異常間隙水圧層の発生・上昇メカニズムと広域地下水流動、自然災害に及ぼす影響 田中和広 (代表)、宮田雄一郎、千木良雅弘、徳永朋祥、今岡照喜、中田英二、嶋田 純、金折裕司、石田 毅、馬原保典、38600 千円

科研費 萌芽研究 平成17年度 間隙水中の塩素安定同位体比を用いた超長期地質環境安定性評価技術の開発 徳永朋祥(代表)、嶋田 純 4950 千円

#### ・その他の研究費

都城市受託研究費 2005年度、代表 500千円、『都城盆地の地下水流動・循環機構解析』総合地球環境学研究所 2005年度共同研究、分担 500千円、『都市の地下環境に残る人間活動の影響』

原子力環境整備促進・資金管理センター 地層処分重要基礎技術研究調査 2004-2006年度 15000千円 『堆積岩地域における塩淡水境界に関する研究』 徳永朋祥(代表)・嶋田 純(分担)

資源・素材学会、深部地質環境調査解析技術体系化委員会 受託研究 『地下水の地球化学的調査に関する研究』、分担 1318千円

戦略的基礎研究推進事業経費, 2001-2006年度, 『北東アジア植生変遷域の水循環と生物・大気圏の相互作用の解明』, 杉田倫明(代表)ほか、分担, 255017千円

核燃料サイクル機構先端基礎研究助成 平成17-19年度 塩素安定同位体比を用いた水理地質構造モデル評価技術の開発. 徳永朋祥(代表)、嶋田 純、井尻裕二、小野誠、9000千円

#### ・委任経理金 3 件 (2450 千円)

### 6. H17年度の研究発表、特許状況

#### (1) 原著論文による発表

##### ・ 国内誌 (和文)

(1) 小坂寛・嶋田 純・花室孝広・濱克宏 (2005) : 第三紀堆積岩における空洞掘削に伴う間隙水の挙動. 応用地質45 (6) , 216-323.

(2) 井川玲欧・嶋田 純・佐伯憲一・谷口真人 (2005) : 静岡平野における地下水流動系. 地球化学. 39, 107-118.

(3) 末田智也、嶋田 純、大場和彦、丸山篤志 (2005) : 宇土半島の小流域における水収支の季節変化. 九州の農業気象. 第Ⅱ集. 14号、37-40.

##### ・ 国際誌 (欧文)

(1) Taniguchi, M., T. Ishitobi, and J. Shimada (2006), Dynamics of submarine groundwater discharge and freshwater-seawater interface, J. Geophys. Res., 111, C01008, doi:10.1029/2005JC002924.

## (2) 原著論文以外による発表

### ・ 著書

- (1) 陸水の事典（項目執筆、5項目）、日本陸水学会編集．講談社サイエンティフィック、2006.03

### ・ その他

- (1) Onodera S, Saito M, Takei T, Hayashi M, and Shimada J (2004): Effects of rainfall and land use on nitrate transport of coastal groundwater in western Japan, Proc. 33th Cong. Int. Ass. Hydrogeology, 1-4.
- (2) 嶋田 純(2005)：同位体を利用した古水文情報の抽出．日本水文科学会誌、No.35, 103-110.
- (3) 嶋田 純(2005)：瀬戸内海海底下の水．瀬戸内海、No.43, 22-27. (社)瀬戸内海環境保全協会.
- (4) 嶋田 純(2005)：地下水の地球化学的調査に関する研究．深部地質環境の調査・解析技術の体系化に関する研究(平成16年度)報告書．〈社〉資源・素材学会.269-301.

## (3) 学会発表

- (1) 流域規模での山体基盤岩地下水流動の実態解明 地球惑星科学関連学会 2005 年合同大会 2005 年 5 月
- (2) 火成岩からなる山地源流域の降雨流出過程における基盤岩地下水の役割 地球惑星科学関連学会 2005 年合同大会 2005 年 5 月（岩上・辻村・増渕・川上・嶋田・恩田・田中による共著）
- (3) 湧水の降雨流出プロセス 地球惑星科学関連学会 2005 年合同大会 2005 年 5 月（辻村・川上・恩田・増渕・岩上・嶋田・田中による共著）
- (4) 火成岩からなる山体基盤岩中における間隙空気の挙動 地球惑星科学関連学会 2005 年合同大会 2005 年 5 月（恩田・増渕・辻村・嶋田による共著）
- (5) 火成岩流域における流域水収支及び降雨流出過程の定量的検討 地球惑星科学関連学会 2005 年合同大会 2005 年 5 月（高本・嶋田による共著）
- (6) 環境同位体・地下水ポテンシャル分布に基づく火成岩流域の地下水流動 地球惑星科学関連学会 2005 年合同大会 2005 年 5 月（井上・嶋田・長谷・宮岡による共著）
- (7) 自然電位法（SP）を用いた広域地下水流動把握に関する研究 地球惑星科学関連学会 2005 年合同大会 2005 年 5 月(佐藤・嶋田・後藤による共著)
- (8) 地下水流動にともなう窒素流出過程 地球惑星科学関連学会 2005 年合同大会 2005 年 5 月（小野寺・斉藤・林・嶋田による共著）
- (9) 海底地下水湧出 地球惑星科学関連学会 2005 年合同大会 2005 年 5 月（谷口・石飛・嶋田による共著）
- (10) 沿岸海底地下水湧出と塩淡水境界の変動 地球惑星科学関連学会 2005 年合同大会 2005 年 5 月（石飛・谷口・嶋田による共著）
- (11) 熊本県八代湾における塩素安定同位体分析と塩水拡散モデル 地球惑星科学関連学会 2005 年合同大会 2005 年 5 月（木村・徳永・井上・嶋田による共著）
- (12) 宇土半島の小流域における各種蒸発散モデルによる評価 地球惑星科学関連学会 2005 年合同大会 2005 年 5 月 大場・嶋田による共著）

- (13) 宇土半島源流域における水循環モデルの構築 地球惑星科学関連学会 2005 年合同大会 2005 年 5 月 (登坂・嶋田・長谷による共著)
- (14) 熊本県宇土半島鮮新世火山岩類分布域の地下水に関わる地質特性 地球惑星科学関連学会 2005 年合同大会 2005 年 5 月 (長谷・嶋田・井上による共著)
- (15) 八代海湧水地域における電磁気観測 地球惑星科学関連学会 2005 年合同大会 2005 年 5 月 (後藤・笠谷・佐藤・嶋田による共著)
- (16) 比抵抗探査法を用いた広葉樹林床土壌における樹幹流の影響域に関する研究。地球惑星科学関連学会 2005 年合同大会 2005 年 5 月 (大角京子・嶋田 純・大場和彦による共著)
- (17) The evaluation of the infiltration through stemflow in a warm-humid forested catchments. Proc. on International conference on Head water control VI, Bergen, Norway 2005 年 6 月 20-23 日 (井川・嶋田・清水・小林による共著)
- (18) 沿岸地域の地下水特性に関する研究 日本応用地質学会平成 17 年度研究発表会要旨集 P.53、2005 年 10 月 (塩手、小野、田中、嶋田、中田、飯島による共著)
- (19) 堆積岩中の地下水の地球化学特性調査手法について一幌延の新第三紀堆積岩を例として一日本地下水学会 2005 年度秋季大会講演要旨、2005 年 10 月 (濱、国丸、嶋田による共著)
- (20) 都城盆地における不圧地下水の地下水流動と硝酸性窒素汚染の実態把握、日本水文科学会 2005 年度学術大会予稿集、2005 年 10 月 (三上、軸園と共著)
- (21) 降雨イベント時の林内雨と樹幹流における降水量・電気伝導度および同位体比の変化特性、日本水文科学会 2005 年度学術大会予稿集、2005 年 10 月 (井川、梁井、清水と共著)
- (22) The behavior of entrapped air in the bedrock fracture and the implication of storm runoff mechanism (Onda, Masuguchi, Tsujimura, Furuya, Shimada) H23C-1435, AGU fall meeting 2005.
- (23) Role of Groundwater Originated from Volcanic Rock in Rainfall-Runoff Process of Spring in a Forested Headwater Catchment (Iwagami, Tsujimura, Onda, Shimada, Tanaka) H23C-1442, AGU fall meeting 2005.
- (24) Use of self-potential (SP) method to understand the regional groundwater flow system (Sato, Shimada, Gotoh) H23E-1482, AGU fall meeting 2005.
- (25) Analysis of stable chlorine isotopic ratios and saline water diffusion model in sedimentary formation, Yatsushiro Bay, Japan (Kimura, Tokunaga, Inoue, Shimada, Hase) H51A-0342, AGU fall meeting 2005.
- (26) Groundwater flow system study in volcanic low permeability bedrock basin (Inoue, Shimada, Hase, Miyaoka) H23E-1478, AGU fall meeting 2005.

(4) 特許状況 : なし

#### 7. その他 H17 年度における特筆すべき活動

H17 年度における活動として追加すべき項目は、科研基盤研究 (山体基盤岩地下水流動の実態解明とその水資源的評価) で得られた調査結果に基づく成果情報公開と関連研究者間の情報交換のための集会として、2005.05 に地球惑星科学関連学会合同大会 (千



葉幕張)で岩盤内地下水流動に関する特別セッションを主催した。さらに 2005.12 に開催されたアメリカ地球物理学連合 (AGU) において、本科研関係の研究成果報告 (5 件) の発表を行い国外の水文関係研究者から高い評価を得た。

2005.08 ソウル大学 (国際 SGD サマースクール招待講演)、2005.09 ハノイ土木大学講演、2005.12、筑波大国際ワークショップ<sup>o</sup> 講演、2006.02 名古屋大 HyARC 計画研究研究集会招待講演等を行った。

また、H17 年 5 月の日本地下水学会 2005 年度総会において 1998-2004 年日本地下水学会賞 (同位体水文学研究における学術的貢献) を受賞した。

8. H17 年度在籍する博士後期課程学生数 (進学者、留学生、社会人の内訳) と 18 年度入学予定学生数 (内訳)

H17 年度: 2 名 (内留学生 1 名)

H18 年度: なし

9. H18 年度外部資金申請状況

- ・ 基盤研究 (A) 地球温暖化に伴う森林植生の変化が水源涵養機能に及ぼす影響  
H18~H21 H18: 14,404 千円、総額: 49,929 千円、代表: 田中 正、分担者
- ・ 基盤研究 (B) (海外学術調査) 長江下流平原における地下水資源の評価に関する研究  
H18~H21、H18: 8,514 千円、総額: 19,971 千円、代表: 田中 正、分担者
- ・ 基盤 (B) 我が国における新たな若い地下水年代測定法の確立 H18-19、  
総額: 19,800 千円 嶋田 (代表)
- ・ 基盤 (C) 企画調査 ベトナム紅河流域における近年の地下水動態の変化 H18、総額: 400 千円、嶋田 (代表)
- ・ 特定研究 地下水ダイナミックスとその多面的評価 H18~22、総額: 770,264 千円、総括 G 嶋田 (代表)

## 平成 17 年度研究成果報告（単年度研究成果）

研究課題名：「有明海・八代海の環境再生と防災との調和」

所属・氏名：沿岸域環境科学教育研究センター・滝川 清

### 1. 研究目的・目標

#### （1）H15 年度～21 年度における目的・目標

代表的な閉鎖的内湾であり、広大な干潟と大潮位差など独特の自然環境にある有明海・八代海では、近年の生物相の変化とその種の激減、赤潮の多発、水質・底質の悪化など、急激な環境悪化の悪循環（負のスパイラル）に陥っているものと懸念され、海域環境の回復と再生に関する科学研究の実施とともに、その再生維持対策が緊急を要する国家的課題である。

また、この海域は台風・高潮等の常襲地帯でもあり、海象災害に対する安心・安全性確保のための対策が不可欠な地域でもあり、二律相反した“環境と防災”の調和に関する早急な学術的・技術的対応を、緊急かつ積極的に行わねばならない。

このような、閉鎖性の高い有明・八代海の環境は、気象・海象・地象の環境構成要素に生態系が加わり、さらに内陸からの人為的影響を大きく受ける複雑な因子に支配される環境系にある。従って、この海域における環境変動のメカニズムの解明に際しては、広範な分野からの学際的・総合的研究体制とともに、環境の再生維持にあたって、その方策の策定・実施・管理の上からも、省庁・行政の枠を超えた、産官学による総合的な推進体制が不可欠である。

本研究は、緊急性の高い地域環境の修復と維持に焦点を絞り、従来の個別的なプロセス研究から総体的・総合的な研究への機動的展開を可能とする学際研究開発のグランドデザインの作成を目指す。すなわち、環境悪化の原因とメカニズムが不明のまま疲弊状態にある有明・八代海をモデルとし、海域環境の複雑なメカニズムを物理的、化学的、生物的に多側面から研究し、環境変化の評価・予測システムの構築を行うとともに、海域環境の改善策や内陸からの人為的負荷の削減技術開発など、海域環境保全と維持方策についての現地実証実験・開発研究とともに、海象災害の評価・予測システムの構築を行い、環境と防災とが調和した環境保全の理想像を創出することを目的とする。これにより 21 世紀における持続可能な地域社会形成のための科学的展開を図る。

#### （2）H17 年度における目的・目標

・有明海・八代海の環境問題に関して、科学研究費研究基盤(A)の最終年度に当り、下記の各項目について研究の進展と取りまとめを行う。

- (1)有明海域における物理環境・生態環境との相互関係の解析に基づく環境変化の要因分析
- (2)海域の流動環境評価・予測システムの構築
- (3)有明海沿岸域における大気-海面-陸面相互作用の観測による熱環境評価と予測
- (4)底質特性に基づく干潟環境の評価システムの構築と干潟底質の改善策
- (5)水質環境評価と干潟浄化機能評価の構築及び干潟浄化機能の強化
- (6)干潟底泥の微生物叢解析に基づく干潟機能改善

(7)陸域側汚濁防止システムの確立と沿岸域活性化戦略の構築

(8)リモートセンシングによる環境情報モニタリング技術の確立

- ・海域環境の再生に関する現地実証実験・調査及び再生方策について、共同研究の実施を行う。具体的には、海域環境調査船「海輝」による海域環境調査と「耕耘」による干潟改善効果についての国土交通省との共同研究の実施。「なぎさ線（押え盛砂工法）」創生による“防災と環境との調和した”新しい海岸保全事業開発についての農林水産省との共同研究の実施。熊本県土木部および NPO 法人との共同研究による「人工干潟（野鳥の池）創生」による環境変動のメカニズム調査、および熊本県環境政策課との共同による沿岸域環境実態調査及び海域環境再生策のマスタープラン作成に取り組む。また、京都大学防災研究所と科学研究基盤(B)の研究等を通じて、複合型災害のハザードマップ作成に向けた共同研究を実施する。

## 2. H17 年度の研究成果

わが国海域の環境・防災に関する学術研究の権威者として、40 数年に及ぶ各省庁・県等の委員会の委員長・委員を務め、有明・八代海環境の保全・再生と防災に向けて行政への指導・提言を行い大いに社会に貢献中である。

環境問題では、特に有明・八代海再生のために環境省に設置された「有明・八代海総合調査評価委員会委員（再生法に基づく国の諮問委員会）」を通じて大いに技術指導を行うとともに、農林水産省、水産庁、国土交通省の有明・八代海再生のためのほとんどの委員会の委員長・委員として、技術指導・提言を行っている。また、熊本県においては、有明海・八代海再生のためのマスタープラン作成の委員会を設置し、委員長として先駆的な海域環境再生の方策を提言・取りまとめた。また、国土交通省や農林水産省などと共同研究をも数多く実施中で、農林水産省九州農政局玉名横島海岸では、高潮防災堤防の前面に環境保全策を施し、環境と防災の調和を目指した現地実証試験を行い大きな成果を挙げた。熊本新港では人工干潟の創成、なぎさ線の回復事業を国土交通省、熊本県および NPO と共同で調査研究し、有明海・八代海再生に精力的に取り組んでいる。

防災問題に関しては、「熊本県高潮対策検討会（委員長）」で想定最大高潮を基準とした新たな“減災”対策の基本指針を策定した。我が国初の海岸災害の減災対策の理念を提言し、熊本県および国の高潮減災対策の基本方針として策定した。これを受けて「熊本県海岸保全基本計画検討会（委員長）」では防護・環境・利用の調和を目指した基本計画を策定した。さらに複合災害を想定したハザードマップ作成の共同研究を京都大学防災研究所とともに実施するとともに、熊本県に「熊本県河川・海岸減災対策プロジェクトチーム会議」を設置して、複合型災害を想定した減災政策の基本指針策定の直接指導等を精力的に行った。さらに「八代海北部沿岸都市地域連携創造会議」では、“災害につよく環境と調和した地域づくり”を提言・指導し、関連の3市1町での講演会等開催を通じて、市民による地域づくりの活動を展開している。

今この海域が直面する“環境と防災”の二律相反する問題を大きな課題として、積極的に取り組んでいる。また、「熊本県公共事業再評価監視委員会（委員長）」を平成16年度より勤め、地域の公共の利に資する政策のあり方等についても指導・提言してい

る。

また、地域においては、文部科学省の熊本大学地域貢献特別支援事業の代表として事業を推進し、“地域社会の防災と環境の調和”，“生き活きて地域社会づくり”に多大の実績をあげている。また、「有明・八代海沿岸域環境研究会（H9～）：主宰」，「NPO：みらい有明・不知火（H13.6～）：理事長」，「熊本県建設コンサルタンツ協会：技術顧問」，その他、環境・建設・調査関連企業の数社の技術指導実施、また「干潟フェスタ」実行委員長など環境教育も実施中で、地域の環境・防災産業の活性化とともに、研究・教育のリーダーとして奮闘中である。

大学での教育・研究活動も非常に活発に行っており、特に、近年の競争的研究資金の獲得（5年以内）は、日本学術振興会の科学研究費基盤研究(A)の3課題を含む10課題（総額161,400千円）、その他の外部資金も多数獲得（約40件、40,000千円（5年間））し多大の研究実績がある。特に、17年度から超大型研究プロジェクトである文部科学省の科学技術振興調整費（平成17年度～21年度の5ヵ年間：約4億円）を獲得し、九州大学、佐賀大学と連携して有明海再生のための調査研究ならびに現地実証試験を開始したところである。

### 3. 成果の達成度

有明・八代海の環境再生と防災にかかわる総合研究を推進するに当たって、学術研究はもとより、政策策定への直接指導・提言、地域社会作り等々、積極的に推進・展開を行い多大の実績と貢献を果たしている。

### 4. 18年度の目的・目標

環境、防災（減災）、環境と防災の調和、安心・安全で生き活きた地域社会づくり、を目標として17年度に引き続き、積極的な研究展開、政策策定指導などを継続する。特に、17年度に採択された超大型研究プロジェクト（文部科学省の科学技術振興調整費「有明海生物生息環境の俯瞰型再生と実証実験」）研究を中心に「有明海・八代海の再生」をテーマに積極的な研究展開を行う。

### 5. 17年度の研究費取得状況

#### ① 日本学術振興会科学研究費補助金

- 1) 滝川清（熊大代表）. 文部科学省科学技術振興調整費：重要課題解決型研究，「有明海生物生息環境の俯瞰型再生と実証試験（17年度126,194千円）.
- 2) 滝川清（代表）. 基盤研究（A）(2)一般. 平成14～17年度 53,040（千円）. 「有明海干潟環境の回復・維持方策に関する研究」
- 3) 滝川清（分担）. 基盤研究（B）(1)一般. 平成17年度 600（千円）. 「津波・高潮・洪水氾濫の複合ハザードマップ」

3)

#### ③ 奨学寄付金

4件 2,000,000円（沿岸域環境科学教育研究センター・教授；滝川 清）

### ③共同研究

- 1) 滝川清. (アジアプランニング(株)) 平成 8～継続中.420 (千円)/年.「有明海域における自然環境の評価と保全に関する研究」.
- 2) 滝川清. (開成工業株式会社) .平成 8～継続中.420 (千円)/年.「陸水流入に伴う有明海域の物質流動とその制御」.

### ④平成 17 年度申請状況

- 1)滝川清 (代表) .基盤研究 (A).平成 18～21 年度 49,574 (千円).  
「八代海海域環境の俯瞰的評価と回復・維持方策」

## 6. H17 年度の研究発表、特許状況

### (1)原著論文による発表

#### ①国内誌 (和文)

- (1)梶原義範・中野拓治・富田友幸・竹内一浩・細田昌広・滝川清,”3 次元数値モデルによる有明海の流況解析と気象条件等に対する応答特性について“,土木学会論文集 No789/II -71,pp.83-92,(2005.05)
- (2)後藤雅之・滝川清:”高潮災害の危機管理”,西日本技術士研究・業績発表年次大会講演会社,) 日本技術士九州支部,第 11 回,佐賀,pp,10 (2005,6,3)
- (3)森本剣太郎・滝川 清・田中健路・増田龍哉・三迫陽介(2005):”熊本港野鳥の池における干潟造成後の環境の短期的な遷移過程に関する研究”, 海洋開発論文集,vol 21,第 30 回海洋開発シンポジウム, 北海道・小樽市 pp665-670.(2005.7.13-15)
- (4)滝川清・秋元和實・平城兼寿・田中正和・,西村啓介・島崎英行・渡邊枢:” 有明海熊本沖の水塊構造と表層堆積物分布特性”,海岸工学論文集,土木学会,第 52 巻, pp. 956-960.(2005.11.9)
- (5)成松明・田中健治・森本剣太郎・滝川清: “乱流渦相関法に基づく有明海干潟上の地表面フラックス直接観測”,海岸工学論文集,土木学会,第 52 巻, pp.1081-1085.(2005.11.9)
- (6)滝川清・秋元和實・吉武弘之・渡邊枢: “有明海大浦沖の海域特性と海底攪拌の効果”, 海岸工学論文集,土木学会,第 52 巻, pp.1141-1145 (2005.11.9)
- (7)森本剣太郎・滝川清・古川恵太・増田龍哉・田中健治・三迫陽介: “創生された潟湖干潟の特性と環境変動メカニズムの解明に関する研究”, 海岸工学論文集,土木学会,第 52 巻, pp.1171-1175 (2005.11.9)
- (8)滝川清・増田龍哉・森本剣太郎・田中健治・大久保貴仁・西原孝美・吉田秀樹: “有明海干潟海域環境改善へ向けた泥質干潟耕耘の効果に関する研究”,海岸工学論文集,土木学会,第 52 巻, pp.1201-1205(2005.11.9)

#### ②国際誌 (欧文)

- (1)Kentarō Morimoto, Kiyoshi Takikawa, Kenji Tanaka, Tatsuya Masuda (2005): Study on Environmental Change in Initial Stage in Artificial Tidal Flat, Asian and Pacific Coasts , pp559-562. (2005.9.4-8)
- (2)Kenji Tanaka, Akira Narimatsu, Kentarō Morimoto and Kiyoshi Takikawa (2005): Turbulent

- Characteristics of the Atmospheric Surface Layer in the Inter-tidal Zone of the Ariake Sea, , Asian and Pacific Coasts , pp.679-682 (2005.09.4-8)
- (3)Kiyoshi Takikawa, Chiharu Aoyama, Kenji Tanaka, Kentaro Morimoto (2005): Characteristic Environment in Yatsushiro Sea , Asian and Pacific Coasts pp.555-558(2005.09.4-8)
- (4)Kenji Tanaka, Akira Narimatsu, Kentaro Morimoto and Kiyoshi Takikawa (2005): Surface Energy on the Tidal Flat of Ariake Sea, the 8<sup>th</sup> International Conference on Cohesive Sediment Transport (INTERCOH2005), pp42-43(.2005.09.20-23)
- (5)Kenji Tanaka, Akira Narimatsu, Kentaro Morimoto and Kiyoshi Takikawa (2005): Turbulent Characteristics of the Atmospheric Surface Layer on the Tidal Flat of Ariake Sea, the 8<sup>th</sup> International Conference on Cohesive Sediment Transport (INTERCOH2005), pp. (.2005.09.20-23)
- (6)Harada Hiroyuki, Takikawa Kyoshi, and Hayashi Yasuhiro(2004):”The Effects of Salinity on Water Purification Ability of ARIAKE Sediment,” The Asian Pacific Confederation of Chemical Engineering October 17(sun,)-21(Thu,),2004 Kitakyushu, Japan (2004.10.17-21)
- (8)Tanaka, K., and K. Takikawa, 2006: Atmospheric turbulent flux observation on the tidal zone over the Ariake Sea, Japan, 14<sup>th</sup> Conference of Sea Atmosphere Interaction, 86<sup>th</sup> American Meteorological Society Annual Meeting, 29 Jan. - 2 Feb. 2006, Atlanta, GA, USA.

## (2)原著論文以外による発表

### ①著書

- 1)田中正和・秋元和實・滝川 清 “有機物付加の指標としての底生有孔虫” 月間海洋・vol,37, No11.97-104 (2005)
- 2)委員長監修滝川清国土交通省九州地方整備局・熊本港湾・空港整備事務所”平成 16 年度環境整備船「海輝」年次報告書—有明海・八代海の海域環境調査結果—(2005.09)
- 3) 秋元和實・滝川 清・島崎英行・山下隆之・松永智也・西村啓介・田中正和・平城兼寿 “八代海北部の底質分布の特性” 月間海洋・vol,38, No2.pp97-104 (2006.2.1)
- 4)中田晴彦・島田秀昭・安武章・秋元和實・滝川 清 “八代海における化学汚染の現状解析” ～八代海北部の底質中重金属について～月間海洋・vol,38, No2.pp131-136 (2006.2.1)

### ②学協会誌

- 1)滝川清：“海域の流動と底質環境の変動” 有明海・八代海研究者会議,50p,(2005,4,23)
- 2) 滝川清：“複合型災害とは”第 3 回 みらい有明・不知火シンポジウム有明海・八代海の再生をめざして—複合型災害と温暖化に伴う海域環境の変化について—熊本大学工学部百周年記念館,pp,1-6 , (2005.4.28)
- 3)後藤雅之・滝川清：“高潮災害の危機管理”,西日本技術士研究・第 11 回業績発表年次大会講演会 ,pp1-10, (2005,6,3)
- 4)滝川清：“気象・海象災害 (3)：有明・八代海域の環境異変と再生策”,学際科目 7-1：「災害～君ならどう対応する～」,pp94,(2005.6.10)
- 5)滝川清：“有明海・八代海の底質環境について”第 14 回環境省有明海・八代海総合評価委員会 WG 発表 pp126,(2005,6,16)
- 6)滝川清：“内湾域の環境改善”平成 17 年度 WAVE 地域交流会 in 熊本パネラー,pp32,(2005,7,7)

- 7) 滝川清：“有明・八代海の高潮特性と海岸環境の現状”学際科目 4-2 有明海・八代海を科学する：防災と環境を考える～不知火海高潮災害と有明海異変～,pp66,(2005,7,13)
- 8) 滝川清：“有明海の物理環境の現状と改善の処方箋”学際科目 4-2 有明海・八代海を科学する～,pp94,(2004,7,20)
- 9) 滝川清：“複合災害にどう取り組むか～国として・地域として・技術者として～”,(社)熊本県,測量設計建設コンサルタンツ協会第3回業務報告会基調講演,論文集 pp1-8,(2005.09.14)
- 10) 滝川清：“有明海の底質環境と再生策の実施試験”文部科学省 地域貢献特別支援事業「環・阿蘇／有明海の環境保全・修復とブルー・グリーンツーリズム活性化のためのネットワーク構築」平成17年度熊本大学市民公開講座「有明海・八代海を科学する」pp22,(2005,10,12)
- 11) 滝川清：“有明海の再生へ向けた現地試験見学会”文部科学省科学技術振興調整費 重要課題解決型研究 熊本新港：環境整備船海輝：熊本新港親水緑地公園「干潟なぎさ線現地実証試験地」、野鳥の池」（見学と記念植栽）玉名横島海岸「押さえ盛砂試験地」見学,pp15,(2005. 10.22)
- 12) 滝川清：“有明・八代海の再生をめざして”熊本・佐賀・長崎 3大学合同 第3回 みらい有明・不知火シンポジウム,pp42,(2005,10,28-29)
- 13) 滝川清：“有明海生物生息環境の俯瞰型再生と実証試験,”有明海生物生息環境の俯瞰型再生と実証試験にかかるシンポジウム,文部科学省科学技術振興調整費 重要課題解決型研究有明海の再生に向けて～国・県・大学の試み～,pp46,(2005.11.18)
- 14) 滝川清：“環境と防災に関する対策とその方向”(社)熊本県測量設計・建設コンサルタンツ協会技術講演会,(社)熊本県測量設計・建設コンサルタンツ協会,熊本テルサ,熊本市,pp,(2006.1.27)
- 15) 滝川清：“有明海・八代海再生と防災との調和”第6回熊本大学東京レエゾンオフィス・イブニングセミナー地域の自然と環境 ～有明海・八代海の再生と維持～,国立大学法人熊本大学 ,キャンパス・イノベーションセンター,東京都,pp24 ,(2006.3.8)
- 16) 滝川清：“有明・八代海環境再生と防災との調和”第4回熊本大学沿岸域環境科学教育研究センター講演会,沿岸域環境科学教育研究センター ,熊本大学百周年記念館, 熊本市,pp24 ,(2006.3.17)
- 17) 滝川清：“八代海の環境特性と地域づくり”八代海北部沿岸都市地域連携創造会議八代地域研修会,八代海北部沿岸都市地域連携創造会議,八代市千丁公民館,八代市, pp45 ,(2006.3.18)
- 18) 滝川清：“八代海の環境特性と地域づくり”八代海北部沿岸都市地域連携創造会議上天草研修会,八代海北部沿岸都市地域連携創造会議,上天草市総合センター,上天草市,pp46 ,(2006.3.26)

### (3)学会発表等

#### ① 招待講演

- 1) 滝川清：“複合型災害とは”第3回 みらい有明・不知火シンポジウム有明海・八代海の再生をめざして～複合型災害と温暖化に伴う海域環境の変化について～,NPO み

- らい有明・不知火,熊本大学工学部百周年記念館,熊本市,pp,1-6, 175 名(2005.4.28)
- 2) 滝川清:”有明海・八代海の底質環境について”第 14 回環境省有明海・八代海総合評価委員会 WG 発表,環境省,東京,126 pp,(2005,6,16)
  - 3) 滝川清:”内湾域の環境改善”平成 17 年度 WAVE 地域交流会 in 熊本パネラー,WAVE,熊本交通センター,熊本市, 32p,(2005.7.7)
  - 4) 滝川清:”有明・八代海の高潮特性と海岸環境の現状”学際科目 4-2 有明海・八代海を科学する,防災と環境を考える～不知火海高潮災害と有明海異変～,熊本大学, 9 名, 66 p (2005,7,13)
  - 5) 滝川清:”有明海の物理環境の現状と改善の処方箋”学際科目 4-2 有明海・八代海を科学する～,熊本大学,9 名,94p, (2004,7,2)
  - 6) 滝川清:“複合型災害とは”,(社)熊本県,測量設計建設コンサルタント協会第 3 回業務報告会基調講演,(社)熊本県,測量設計建設コンサルタント協会,熊本市,論文集 1p-8p,(2005.09.14)
  - 7) 滝川清:“有明海の底質環境と再生策の実施試験”文部科学省 地域貢献特別支援事業「環・阿蘇／有明海の環境保全・修復とブルー・グリーンツーリズム活性化のためのネットワーク構築」平成 17 年度熊本大学市民公開講座「有明海・八代海を科学する」,熊本市パレア,熊本市,22p, 40 名,(2005,10,12)
  - 8) 滝川清:“有明海の再生へ向けた現地試験見学会”文部科学省科学技術振興調整費 重要課題解決型研究 熊本新港:環境整備船海輝:熊本新港親水緑地公園「干潟なぎさ線現地実証試験地」、「野鳥の池」(見学と記念植栽) 玉名横島海岸「押さえ盛砂試験地」見学,熊本大学滝川研究班,熊本市,15p,105 名(2005. 10.22)
  - 9) 滝川清:“有明・八代海の再生をめざして”熊本・佐賀・長崎 3 大学合同 第 3 回 みらい有明・不知火シンポジウム,熊本市熊本大学百周年記念館,沿岸域環境科学教育研究センター,熊本市,42p,175 名(2005,10,28-29)
  - 10) 滝川清:“熊本大学の有明海再生の実証試験”有明海生物生息環境の俯瞰型再生と実証試験にかかるシンポジウム,文部科学技術振興調整費 重要課題解決型研究有明海の再生に向けて～国・県・大学の試み～,熊本大学滝川研究班,熊本大学百周年記念館,熊本市,291名,46p, (2005.11.18)
  - 11) 滝川清:“環境と防災に関する対策とその方向”(社)熊本県測量設計・建設コンサルタント協会技術講演会,(社)熊本県測量設計・建設コンサルタント協会,熊本テルサ,熊本市,(2006.1.27)
  - 12) 滝川清:“有明海・八代海再生と防災との調和”第 6 回熊本大学東京レエゾンオフィス・イブニングセミナー地域の自然と環境 ～有明海・八代海の再生と維持～,国立大学法人熊本大学,キャンパス・イノベーションセンター,東京都, 24p,(2006.3.8)
  - 13) 滝川清:“有明・八代海環境再生と防災との調和”第 4 回熊本大学沿岸域環境科学教育研究センター講演会,沿岸域環境科学教育研究センター,熊本大学百周年記念館,熊本市,24p, (2006.3.17)
  - 14) 滝川清:“八代海の環境特性と地域づくり”八代海北部沿岸都市地域連携創造会議八代地域研修会,八代海北部沿岸都市地域連携創造会議,八代市千丁公民館,八代市,45p, (2006.3.18)
  - 15) 滝川清:“八代海の環境特性と地域づくり”八代海北部沿岸都市地域連携創造会議上



天草研修会, 八代海北部沿岸都市地域連携創造会議, 上天草市総合センター, 上天草市,  
(2006.3.26)

## ②一般講演

- 1) 和田彩美, 滝川 清, 田中健路, 森本剣太郎, 渡辺 枢: “数値シミュレーションによる有明・八代海の流動場特性に関する研究”, 平成 17 年度土木学会西部支部研究発表会講演概要集, II-2, (2006.3)
- 2) 幸田明子, 滝川 清, 森本剣太郎, 増田龍哉: ”熊本港「野鳥の池」の物質循環に関する研究“, 平成 17 年度土木学会西部支部研究発表会講演概要集, VII-46, (2006.3)
- 3) 山下絵里子, 滝川 清, 森本剣太郎, 増田龍哉: ”熊本港「野鳥の池」の生態系発達機構に関する研究“, 平成 17 年度土木学会西部支部研究発表会講演概要集, VII-47, (2006.3)
- 4) 蝶野雅敏, 滝川 清, 森本剣太郎, 増田龍哉: ”なぎさ線の創成による海域環境の改善・回復効果にかんする研究“, 平成 17 年度土木学会西部支部研究発表会講演概要集, VII-54, (2006.3)

## ・特許状況

- 1) 平成 7 年, 特願平 7-346713, 「アーチ式浮き防波堤」, 滝川清, 東洋建設株, 日本, ; 特開平 9-158152
- 2) 平成 17 年, 特許願第 202395, 「海域底泥層の装置及びその方法」, 滝川清他 3 名

## 平成 17 年度研究成果報告（単年度研究成果）

研究課題名： 水域モニタリングのための環境データの数理解析と電磁波を用いた計測

所属・氏名： 工学部環境システム工学科・小池克明

### 1. 研究目的・目標

#### (1) H15 年度～21 年度における目的・目標

水源から有明海までの流域圏における水理構造の全体像を解明するとともに、水域環境を広域的にモニタリングし、データの数理解析によって環境の時間的・空間的变化を詳細に明らかにすることで、水域環境に影響を及ぼす要因を特定する。この目的のために、電磁波を用いた計測技術であるリモートセンシングと地磁気－地電流法、および時空間領域でのデータの相関構造を考慮できる地球統計学を適用する。本研究は次の 3 つの内容から構成される。

- ①リモートセンシングによる広域水域環境の定量化法の確立
- ②水域環境データの時空間分布のモデリング法の確立
- ③地磁気－地電流法による浅部から深部に至る水理構造の解析法の確立

#### (2) H17 年度の目的・目標

- ・海面温度以外に海水や河川水の混濁度、植物プランクトン量という代表的な環境因子に注目し、その時空間分布を LANDSAT 画像や Terra/ASTER 画像における複数のバンドデータの多変量解析によって抽出できる手法を考案する。
- ・複数の箇所から干潟堆積物をサンプリングし、分光反射率と粒径分布の測定を継続する。これによって分光反射率から粒径分布を推定するのに有効な手法を考案する。また、この手法を衛星画像に適用し、画像から粒径の広域分布、およびその時間的变化を推定できるようにする。
- ・水温や栄養塩濃度に塩分濃度などの他の水質環境データも加えて解析を進める。
- ・時空間データの実験セミバリオグラムからセミバリオグラムモデルを作成するための手法について検討を加える。
- ・成分間の相関性を考慮した多変量時空間地球統計学を定式化し、データへの適用によって有効性を検証する。
- ・AMT と MT 法によるこれまでの測定データを詳細に解析することで、涵養域から流出域までの地下水系の全体像を明らかにする。これに海底電気探査を組み合わせ、有明海底に湧水する地下水の経路も比抵抗分布から推定する。

### 2. H17 年度の研究成果

#### 2.1. リモートセンシングによる有明海干潟の地質的分類

リモートセンシングによって有明海の地質的分類を行い、区分域の時間的変動を明らかにするために、干潟堆積物の反射スペクトルに注目し、干潟堆積物に対して分光反射率測定、粒度測定、成分分析を行った。このデータに基づいて衛星画像データから干潟堆積物

の粒度分布，成分分布を推定し，干潟堆積物の分類を試みた。本研究では，白川河口の右岸側・左岸側・御輿来海岸の3箇所で，海岸線から沖に向かって50～200 m 間隔で5～8 箇所から採取された計166 個の試料を用いた。得られた主な成果を以下にまとめる。

- (1)干潟試料の粒径の減少に伴って反射率が増加することが明らかとなった。これは，試料の全表面で散乱強度が増加することに起因する。
- (2)試料の湿潤状態と乾燥状態の反射率の測定結果から，湿潤状態の試料で1.9  $\mu\text{m}$  に吸収が見られた。これは，水の分子振動によって電磁波が吸収されることによる。反射率は乾燥状態で増加し，0.83，1.145，および2.25 $\mu\text{m}$  に明瞭な吸収帯が現れた。これらの吸収帯は，それぞれ近赤外と短波長赤外域に含まれ，鉄イオンと水酸基の存在に関連付けられる。さらに，乾燥状態の試料に20，40，60 %と含水させるにつれて，乾燥状態の試料から水分子に起因する1.9  $\mu\text{m}$  の吸収が現れ，0.83，1.145 と2.25  $\mu\text{m}$  の吸収が浅くなり，反射率も減少した。
- (3)0.83，1.145，2.215 $\mu\text{m}$  の吸収帯が多くの試料の測定結果に見られたので，鉄イオンや水酸基を含む鉱物が多く含まれていると推定できた。また，反射率パターンは3つのタイプに分類でき，これから干潟は白川，緑川から運搬された堆積物によって構成されていること，白川と緑川では運搬される物質が異なることが明らかとなった。
- (4)可視域データのみを用いて，海岸から沖に向かう画像上で選択したROI（輝度値が同じ領域）をトレーニングデータとし，最尤法による教師付き分類を行った。1995 年6月6日と2000 年9月7日の画像データに対する分類結果をFig. 1に示すが，これらの共通の特徴は，白川右岸，左岸，緑川河口と御輿来にそれぞれに異なったグループが現れた点である。これは，干潟の堆積物やその状態が，グループ間で異なることを意味している。2つの分類画像で同じ色の部分は，ほぼ同じ平均反射率を示す。(a)の画像からは沿岸で干潟の分布が大きく広がり，沖に向かって変化していることが確認できる。これは，白川と緑川からの流入よりも海流の効果が強いことが考えられる。一方，(b)の画像からは河口で堆積物が拡散している傾向が見出せる。さらに，干潟試料の反射スペクトルのタイプと衛星画像データの分類から得られたスペクトルの特徴が類似することが確かめられた。これより衛星画像データからも，地質と粒度分布の類似性に基づく干潟域の区分が可能であることが明らかになった。

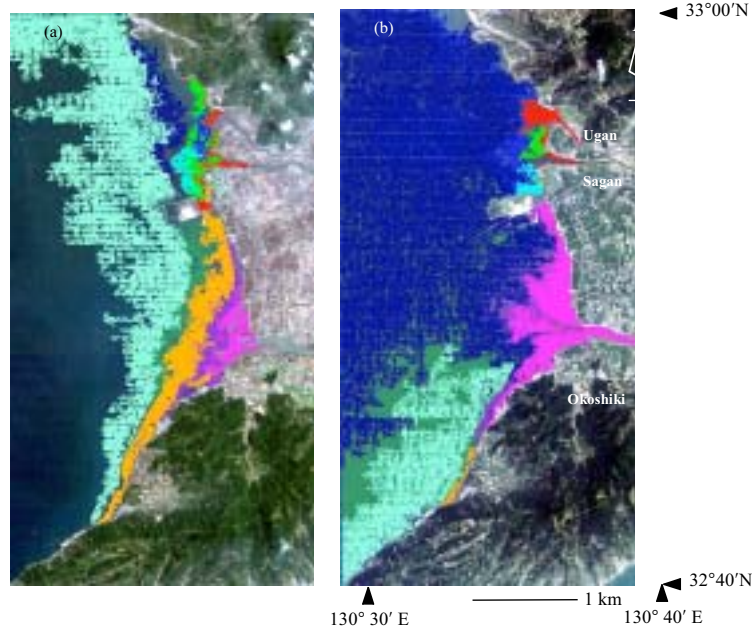


Fig. 1. Classified images based on the tideland sediments using the LANDSAT TM data on (a) June 6, 1995 and (b) September 7, 2000.

## 2. 2. 数理モデル

### I. 閉鎖性海域環境の経年変化抽出への多変量一時空間地球統計学の適用

平成 16 年度に引き続き、環境データに地球統計学を適用することで、環境に関連する因子の空間分布と経年変化に関する特徴の抽出を試みた。有明海の 43 浅海定線調査地点において、1975～2000 年の間に月 1 回の割合で得られた海面温度と 4 つの栄養塩濃度のデータを解析対象とした。前年度は単変量に対する時空間構造の抽出法と時空間分布モデリング法を定式化した。本年度はこれらを多変量に拡張した。

変数 $'$  ( $' = 1, L, p$ ) の位置 $\mathbf{u}'$  でのクリギング推定値を $\hat{z}'(\mathbf{u}')$  とおくと、これは

$$\hat{z}^{\alpha}(\mathbf{u}^{\alpha}) = \sum_{\beta=1}^p \sum_{w=1}^{N_{\beta}} \lambda_w^{\beta} z^{\beta}(\mathbf{u}_w^{\beta}) \quad (' = 1, 2, L, p) \quad (1)$$

と表せる。ここで $z'(\mathbf{u}_w')$ ,  $\alpha_w'$ ,  $N'$  はそれぞれ変数 $'$  の位置 $\mathbf{u}_w'$  でのデータ値、クリギング重み係数、およびデータ数を表す。 $p$  は変量の種類である。重み係数は、不偏条件 (unbiased condition) と最小推定分散条件 (the least estimation variance condition) という 2 つの条件を満足させることで、次の連立方程式より求められる。

$$\begin{cases} \sum_{\theta=1}^p \sum_{v=1}^{N_{\theta}} \lambda_v^{\theta} C(\mathbf{u}_w^{\lambda}, \mathbf{u}_v^{\theta}) \alpha \mu = C(\mathbf{u}_w^{\lambda}, \mathbf{u}^{\beta}) \\ \sum_{\lambda=1}^p \sum_{w=1}^{N_{\lambda}} \lambda_w^{\lambda} = 1 \end{cases} \quad (2)$$

ここで、 $C$  は時空間領域での共分散、 $\mu$  はラグランジュの未定定数を表す。

多変量推定法の精度に対して全データに対するクロス確認を行ったところ、実測値と推定値との相関係数は  $\text{NO}_2\text{-N}$  : 0.79,  $\text{NO}_3\text{-N}$  : 0.80,  $\text{NH}_4\text{-N}$  : 0.70,  $\text{PO}_4\text{-P}$  : 0.77 であり、妥当に推定できることが確かめられた。Fig. 2 に  $\text{NO}_2\text{-N}$  と  $\text{NO}_3\text{-N}$  の 9 月での単変量（図中の *SK*）と多変量（*MCK*）の時空間分布を比較する。図上の 1978~2000 は観測年を表す。単変量では欠測により推定不可能の領域（図中の白抜き）が、変量間の相関構造を考慮して多変量では推定されていることがわかる。また、多変量の方が、栄養塩濃度の分布が複雑であり、平滑化効果を軽減しながら局所的な濃度変化が現れている。

さらに、多変量推定法の妥当性を検証するために、代表的な地球観測衛星である Landsat-5 TM の可視域データの合成処理による海色と単変量・多変量解析による  $\text{NH}_4\text{-N}$  濃度分布とを比較した (Fig. 3)。対象は 2000 年 11 月である。海色は海水の透明度、言い換えれば混濁度に関連し、定期観測点での  $\text{NH}_4\text{-N}$  濃度と関連性が強いことがわかった。湾奥に注目すると、西部の方が透明度が高い。単変量による推定分布では東部と西部はいずれも高濃度であるが、多変量によると海色の特徴と同様に高濃度は東部に限られる。よって、多変量推定法の方が濃度分布を適切にモデル化できるといえる。

## II. ハードとソフトデータのジョイント解析による対象物性の空間分布推定法の改良－衛星画像を用いた海域水温分布モデリングへの適用例－

平成 16 年度に引き続き、ハードとソフトデータの組み合わせによる環境に関する広域変数の

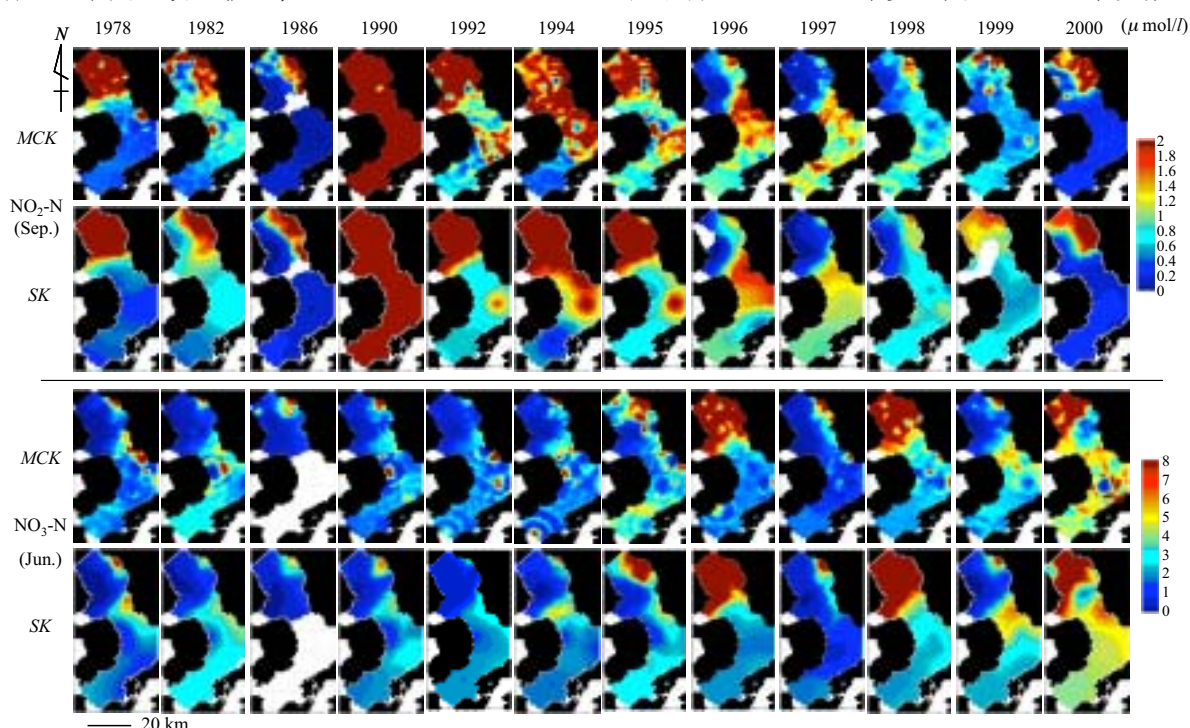


Fig. 2. Estimated distributions of the concentrations of four nutritive salts over the Ariake Sea. *MCK* and *SK* denote space-time models by multivariate standardized ordinary cokriging and single variable ordinary kriging.



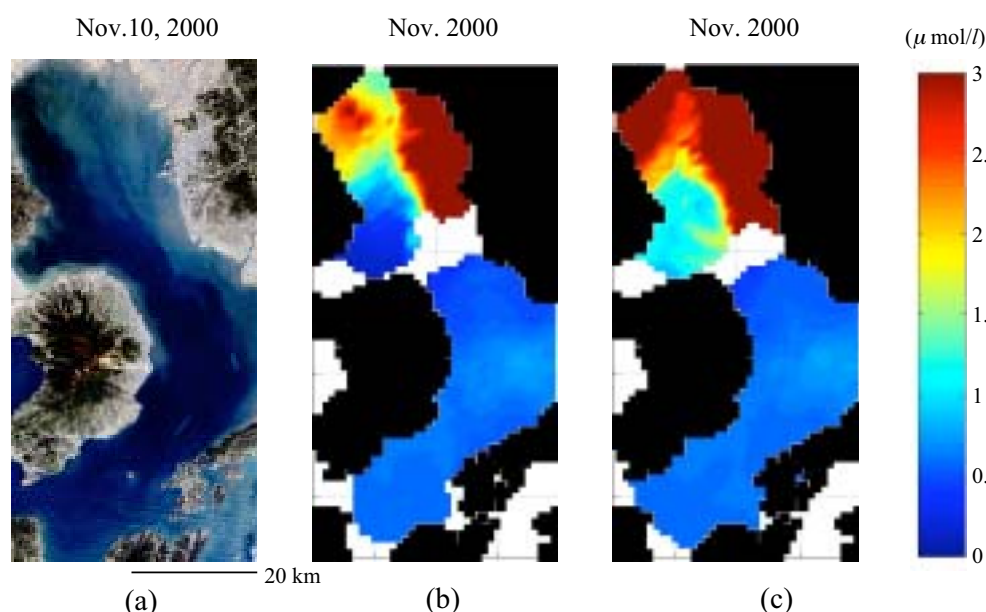


Fig. 3. Comparison of (a) true color composite image of band 1 (blue), 2 (green), and 3 (red) data of the Landsat-5 TM on November 10, 2000, with two estimation maps of the concentration of  $\text{NH}_4\text{-N}$  by (b) multivariate standardized ordinary cokriging and (c) single variable ordinary kriging in November 2000. The turbidity of the sea water, shown by the unclearness of the blue color, was found to have a correlation with the  $\text{NH}_4\text{-N}$  concentration at the station.

空間分布推定精度の向上法について検討した。代表的なソフトデータであるリモートセンシング画像を用い、有明海での海面温度と水深方向の温度分布の推定問題をケーススタディに選んだ。

観測日のずれや推定モデルの精度不足に起因して、各測点では海面温度の推定値と実測値とは異なる。この相違を補正し、空間モデルが実測値を通るという条件付き推定に変換するために、LANDSAT TM バンド 6 データを取り入れた多変量解析による海面温度推定分布、および各測点での推定値や実測データを用いたオーディナリ・クリギングによる分布の 3 つを組み合わせた。また、海面温度の実測データ、画像データを用いた 120 m 間隔の推定値に対する 2 種類のセミバリオグラムには、入れ子状構造での 2 つのモデル境界に相当するデータ間距離、1 つの球モデルで近似できる場合のレンジ、およびデータ間距離が大きい範囲でのセミバリオグラムの非収束性に類似点が見られた。しかし、データ間距離が小さい範囲では大きく特徴が異なり、測点配置によりハードデータからは抽出できない空間的相関構造が、ソフトデータには含まれることが確かめられた。

解析結果の一例として、各画像取得日を対象とし、各測点での実測データを用いたオーディナリ・クリギング (OK) による海面温度の推定分布(a)、衛星画像データの多変量解析に基づく推定分布(b)、各測点での(b)による推定値の OK 分布(c)、およびこれら 3 つの分布を用いた条件付き推定分布(d)を Fig. 4 で比較する。これから(d)によれば温度の分布範囲と空間的変化が増加し、図中の丸で囲った部分のように、局所的に高温域や低温域が現れることがわかる。

Fig. 4(d)に基づき、まず海面温度の季節変化の特徴を抽出する。冬季の 2 月は有明海南

西端の湾口の方が温度が高く、湾奥に向けて漸次低下する。春季の4月中旬までは2月と同様の傾向が続くが、湾奥の高温域以外の広い範囲で温度差は小さくなる。これ以降、4月下旬から6月にかけては、高温域が湾口から湾中央東側（熊本平野側）に移動し、有明海の中心線をほぼ境界として東側の高温域と西側の低温域と明瞭に2つに分かれる傾向にある。7月から9月は2月と逆のパターンで湾奥の方が温度が高くなり、湾奥東側とともに西側沿岸域にも高温域が現れる。7月は湾奥と湾口との温度差が特に大きく、 $10^{\circ}\text{C}$  近くにもなる。11月になると2月と類似した温度分布傾向になり、湾口に高温域が広く存在する。

次に、海面で、実測データのクリギング値と上記の条件付き推定値との差が大きい地点は、水深方向でも大きいという仮定に基づき、この差を用いて各水深での実測値に基づくクリギング推定分布を補正した。これを修正 OK と称し、擬似3次元水温構造モデルが得られるようになった。このモデルに基づく全対象日の垂直断面図を Fig. 5 に表し、有明海全体の季節変化解明の手掛かりとしたい。画像取得日は限られているので、本解析のみから季節変化の一般化はできないが、概ね次の特徴が見出される。

2月は、有明海の長軸方向には全体的に深度が増すほど温度が高くなり、特に湾口（南側）が高温である。Fig. 4 の海面温度に表される湾奥（北側）での低温域は、水深0~10 m の範囲に限定されるのがわかる。東西方向には湾中央ほど温度が高く、やや西側に傾斜しながら水深方向に連続性する。4月中旬までは相対的な高温域は湾口にあり、その位置は変わらない。しかし、高温域以北で水深方向の温度変化が小さくなる点が2月と異なる。東西方向には、2月と同様に水深方向に連続性が存在する。しかし、2月は低温域であった熊本平野側が逆に高温域に変わる。それから4月下旬~5月までの短期間に水温構造は大きく変化する。すなわち、高温域が水平方向に薄く繋がるようになり、表層付近の温度が相対的に高くなる。5・6月には、水深5 m 付近が最も高いという興味深い分布パターンになる。

気温が特に高い時期に注目すると、7・9月のパターンは類似しており、高温域は海面近くに集中する。前述のように7月は海面温度の地域差が大きい、表層と水深30 m の温度差も  $7^{\circ}\text{C}$  と特に大きい。8月のパターンは7月と概ね調和しているが、温度が特に高い領域が湾奥と熊本平野側で陸域に近い表層へと移動する。7~9月にわたって表層以外の温度変化は小さく、概ね水深の増加とともに温度が低下する。1997と2000年での11月の特徴は、海面温度に関しては同様であるにもかかわらず、水深方向では逆転していることが明らかである。有明海にもエルニーニョの影響が及んだ1997年は9月の傾向に近い。しかし、海苔不作が大きな社会問題となった2000年では水深5 m 以内の表層はほぼ一様の低温域であり、これが湾全体に広がっている。

以上の海面と水深方向の結果をまとめると、水温構造の季節変化の概略は次のようになる。気温が低い時期は湾口に深部まで高温域が分布するとともに、水深方向に温度の連続性が存在する。気温の増加につれて、高温域が水平方向に連続するようになり、表層方向に移動する。気温が最も高い時期には高温域は主に湾奥沿岸域の表層に集中し、それ例外の温度はほぼ一定になる。気温の低下方向のデータは少ないが、上記とは逆の経路を辿ると推察できる。このような季節変化を支配する要因は気温や降水量のみではなく、東シナ海から有明海に入り込むグローバルな海流、河川水温など複数であろう。これらと有明海の潮流や温度対流の相互作用が水温構造を作ると考えられる。

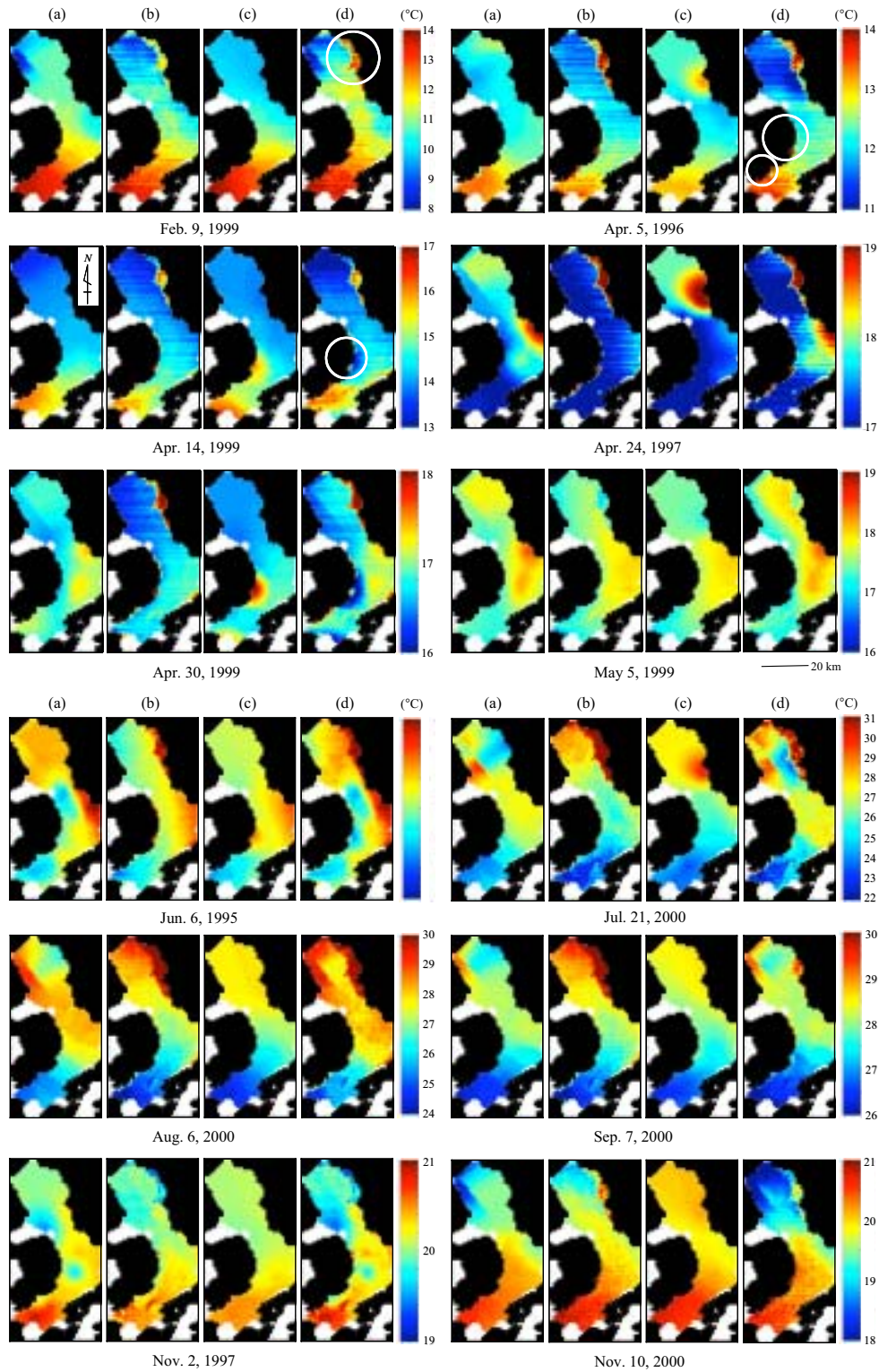


Fig. 4. Comparison of four sea surface temperature distributions constructed by (a) ordinary kriging of the measurement data, (b) multivariate regression analysis using LANDSAT TM thermal band data, (c) ordinary kriging of the estimated temperatures at the 43 stations in (b), and (d)



combination of (a), (b), and (c). Circles denote the local high or low temperature zones of which appearance demonstrates a merit of applying the satellite data to the spatial modeling.

## 2.3. 物理探査

### I. 地磁気—地電流法による熊本平野の水理地質構造解析

阿蘇外輪山西麓で涵養された地下水は、熊本市の北東に位置する菊池台地下の地下水盆と、熊本平野のほぼ中央に位置する江津湖に向けて2方向に流れることが推定されている。この地下水に対しての浅部から深部に至る水理地質構造を明らかにするために、平成14～16年度にかけて阿蘇外輪山西麓から有明海沿岸部までを対象範囲とし、AMT法とMT法の併用による地磁気—地電流探査を実施した。本年度は測定データの解析を進展させた。

まず、AMT法とMT法により得られた見かけ比抵抗より真の比抵抗分布を求めるために、各測点で水平多層構造を仮定した1次元インバージョン解析を行った。これを3次元最適化原理によって補間することで、3次元的な比抵抗分布を推定した。その結果、Fig. 6に示すように、1 km位浅に2系統の地下水流れが推定でき、これは地表面近くでの地下水系と同じ傾向であることが明らかになった。また、標高-2000～-4000 mに深層地下水系が存在し、布田川断層の延長部で大きく変化する特徴が見出された。すなわち、断層が深層地下水系に影響を及ぼしていると考えられる。

次に、MT探査はノイズ等の関連から測点間隔が1 km以上となるのが通常であるが、このような疎な分布データから局所的な地質構造を抽出するために、地球統計学的シミュレーション法を検討した。本手法は、見掛け比抵抗データの空間的な相関構造を表すセミバリオグラムに従うように、モデル値の修正を焼き鈍し法によって行う。その際、周波数の変化に対するモデルの連続性が向上させるために拘束条件を加えた。Fig. 7に、地球統計学的シミュレーションによって見掛け比抵抗分布を周波数ごとに作成し、このインバージョンによる比抵抗分布(a)、および上記と同様に各測点での1次元インバージョンとその補間による比抵抗分布(b)を同一の東西断面で比較する。布田川断層や白川の下部に見られるように、比抵抗モデル(a)は局所的な比抵抗異常を表しており、断層破碎帯の幅の過剰な見積を防いでいる。菊池台地下部での低比抵抗帯の分布がモデル(a)においてはより顕著であるので、この台地が地下水貯留のために重要であることが確かめられる。さらに、この台地の2 km深度から布田川断層に向けて、100  $\Omega \cdot m$ 以下の狭くて値が低い比抵抗帯の連続性が見出せる。これは泥質、あるいは多孔質の岩石の分布を表していると考えられる。以上より本研究で提案した地球統計学的シミュレーション法は有効であるといえる。

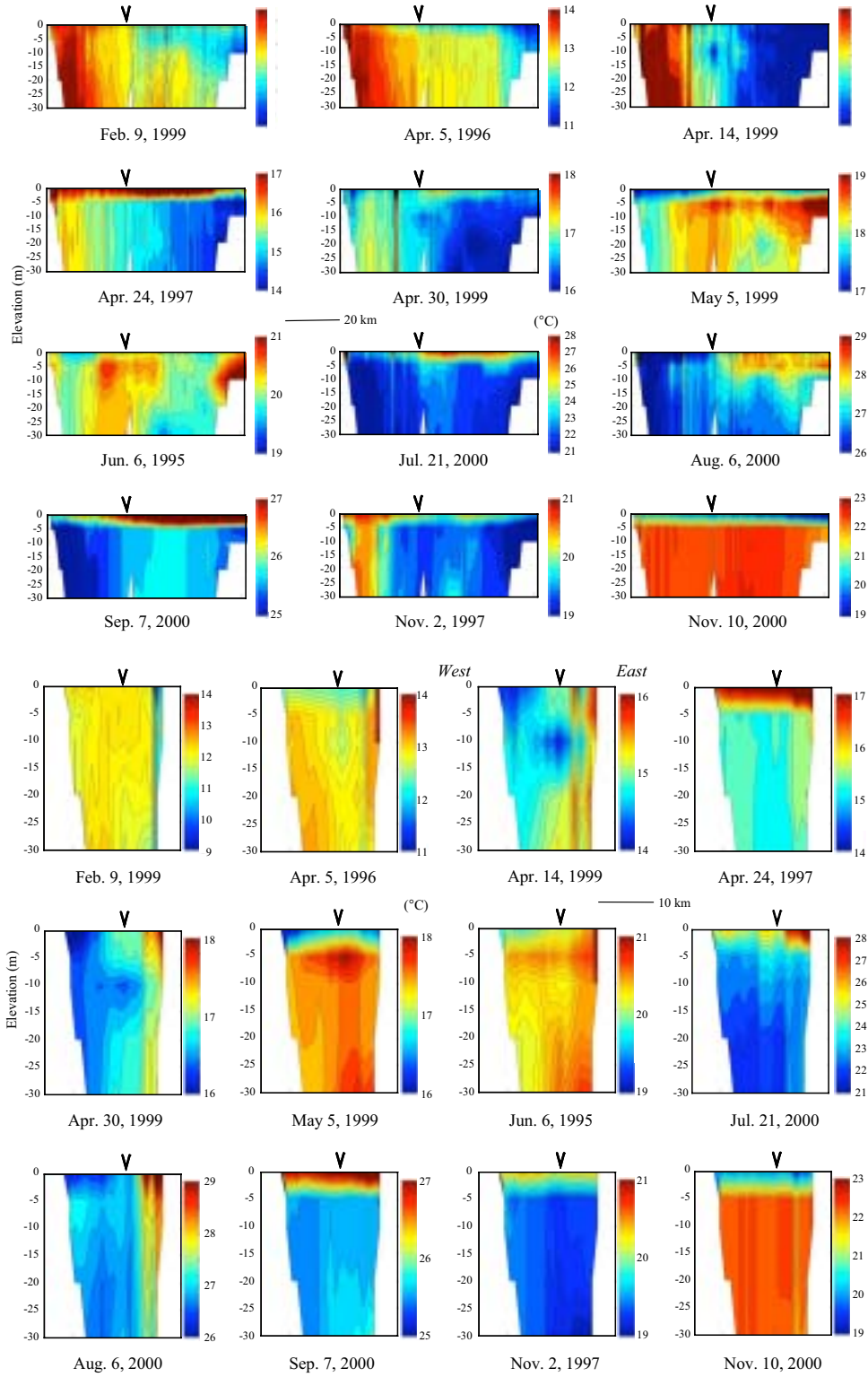


Fig. 5. Vertical cross-sections of pseudo-3D water temperature model along the center line of the Ariake Sea and E-W. Downward arrows denote the intersection points of the two cross-sections.

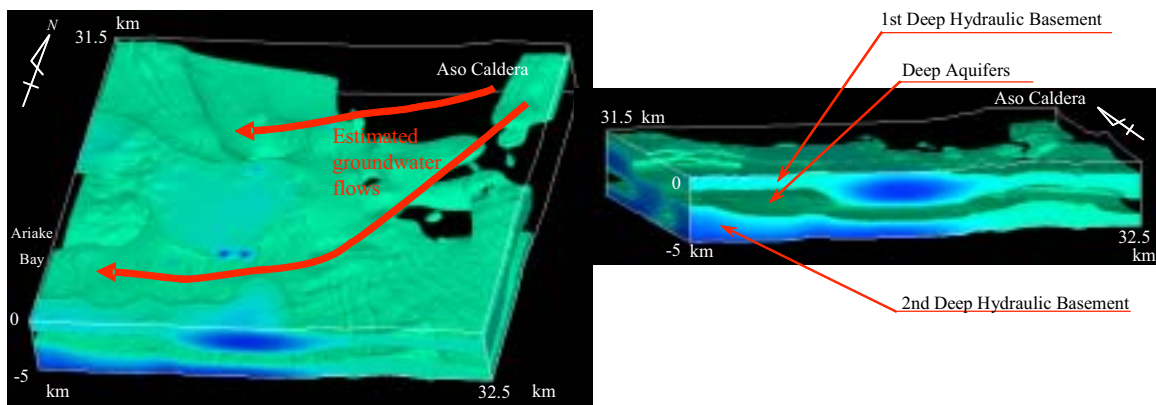


Fig. 6. Iso-planes of 1000  $\Omega \cdot m$  and estimated two main shallow groundwater flows.

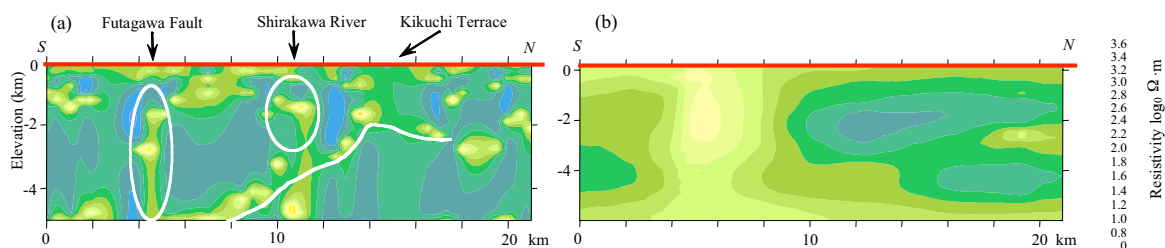


Fig. 7. Comparison of vertical cross-sections along N-S by (a) 1D inversion of simulated apparent resistivity at grid points and by (b) 1D inversion at each site and 3D interpolation.

## II. 曳航型比抵抗法による有明海の海底地質調査

熊本平野の地下水の一部は有明海の海底から湧出しているが、湧出経路やそれと地質分布・構造の関係は不明である。そこで、有明海の海底浅部の地質の種類と構造を把握するために、曳航型海底電気探査法により深度 50 m までの比抵抗分布を明らかにした。これは、人工的に電流を流し、地下の比抵抗分布を求める電気探査比抵抗法の 1 つである。測線は 4 本設け、総延長は 14 km である。

全ての測線で、表層約 2, 3 m の深度範囲で同様の比抵抗値の変化が現れた。この低比抵抗値を示す部分はシルト質、その上部の比抵抗値が少し高くなる部分は砂質の干潟であると考えられる。宇土半島近くの測線では正断層の特徴を示す比抵抗の変位が現れた。これは上網田断層の延長線上にあるため、関連が推測できる。また、熊本平野との連続性から、有明粘土層の分布形態と埋没谷の存在が比抵抗分布に現れた。この埋没谷が地下水の湧水経路となっている可能性が高いことがわかった。

### 3. 成果の達成度

3 つのサブテーマともに平成 16 年度の問題点に対処し、新たな手法を提案するとともに、妥当な解析結果や測定データを増やすことができた。海底電気探査という日本では実施例が極限られている新たな計測方法についても適用でき、速報的であるが興味深い結果が得られた。これらの観点からは、前述の平成 17 年度の目的・目標に関してほぼ達成で

きたと考える。しかしながら、海面温度以外の環境因子に注目した衛星画像解析、干潟試料の反射スペクトルの特徴を生じさせた鉱物組成に関しては不十分であり、次年度への継続課題となった。

#### 4. H18 年度の目的・目標

##### 4.1. 衛星リモートセンシング

- ・海面温度以外に海水や河川水の混濁度、植物プランクトン量という代表的な環境因子に注目し、その時空間分布を LANDSAT 画像や Terra/ASTER 画像における複数のバンドデータの多変量解析によって抽出できる手法を考案する。
- ・干潟試料の反射スペクトル測定から得られた代表的な 3 つのパターンに対する鉱物組成を明らかにする。

##### 4.2. 数理モデル

- ・水温や栄養塩濃度に塩分濃度などの他の水質環境データも加え、3 次元的な環境データの時空間モデル作成、および環境変化因子の抽出を進展させる。

##### 4.3. 地磁気―地電流計測

- ・MT 法により、熊本平野周辺の地下構造推定を進め、涵養域から流出域までの地下水系の全体像を明らかにする。さらに、海底電気探査の測線を追加し、有明海底に湧水する地下水の経路を比抵抗分布から詳細に推定する。

#### 5. H17 年度の研究費取得状況

- ・寄附金：民間企業より計 3,800 千円
- ・共同研究費：国立極地研・京都大学防災研、計 250 千円
- ・日本原子力研究開発機構先行基礎工学研究：採択（平成 18 年 3 月）、3,000 千円
- ・(財)日本鉱業振興会試験研究：採択（平成 18 年 3 月）、700 千円
- ・科学研究費 基盤研究 B(2)：申請中

#### 6. H17 年度の研究発表、特許状況

##### (1) 原著論文による発表

- ・国内誌（和文）

麻植久史・小池克明・吉永 徹・高倉伸一 (2005) MT 法による阿蘇山火口西側域の地熱貯留層モデリング, 日本地熱学会誌, vol. 27, no. 2, pp. 131-148.

田村綾子・小池克明・劉 春学 (2006) ハードとソフトデータのジョイント解析による対象物性の空間分布推定法の改良―衛星画像を用いた海域水温分布モデリングへの適用例―, 情報地質, vol. 17, no. 1, pp. 27-40.

- ・国際誌（欧文）

Asaue, H., Koike, K., Yoshinaga, T., and Takakura, S. (2006) Magnetotelluric Resistivity Modeling for 3D characterizing the Geothermal Reservoirs in the Western Side of Mt. Aso, SW Japan, *Journal of Applied Geophysics*, vol. 58, no. 4, pp. 296-312 (doi:10.1016/j.jappgeo.

2005.05.006).

- Koike, K. and Ichikawa, Y. (2006) Spatial Correlation Structures of Fracture Systems for Identifying a Scaling Law and Modeling Fracture Distributions, *Computers & Geosciences*, vol. 32 (in press) (doi:10.1016/j.cageo.2006.02.013).
- Koike, K. and Matsuda, S. (2006) New Indices for Characterizing Spatial Models of Ore Deposits by the Use of a Sensitivity Vector and Influence Factor, *Mathematical Geology*, vol. 38, no. 5 (in press).
- Maoud, A. and Koike, K. (2006) Arid Land Salinization Detected by Remotely Sensed Land-Cover Change: A Case Study in Siwa Region, NW Egypt, *Journal of Arid Environments*, vol. 66, no. 1, pp. 151-167 (doi:10.1016/j.jaridenv.2005.10.011).
- Maoud, A. and Koike, K. (2006) Tectonic Architecture through LANDSAT-7 ETM+/SRTM DEM-Derived Lineaments and Relationship to the Hydrogeologic Setting in Siwa Region, NW Egypt, *Journal of African Earth Sciences* (in press).
- Nara, Y., Koike, K., Yoneda, T. and Kaneko, K. (2006) Relation between subcritical crack growth behavior and crack paths in granite, *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences* (in press).
- Koike, K., Yoshinaga, T., and Kurihara, Y. (2005) Volcanic Gas Chemistry for Estimating Temporal Changes of Temperature and Pressure in Geothermal Reservoir, *Proc. World Geothermal Congress 2005*, Antalya, Turkey, CD-ROM press.
- Teng, Y. and Koike, K. (2005) Synthetic 3D Imaging of Geothermal System Using Well-Logging Data Set, *Proc. World Geothermal Congress 2005*, Antalya, Turkey, CD-ROM press.
- Moukana, J. A., Masoud, A., and Koike, K. (2005) Geostatistical Analysis of Fluctuations in the Groundwater Levels by Considering Land-cover Changes, *Proc. IAMG'05: GIS and Spatial Analysis*, Toronto, Canada, vol. 1, pp. 111-116.
- Koike, K. and Asaue, H. (2005) Spatial Modeling of Magnetotelluric Resistivity for Detecting Deep Hydrogeologic Structures, *Proc. IAMG'05: GIS and Spatial Analysis*, Toronto, Canada, vol. 1, p. 171-176.
- Masoud, A. and Koike, K. (2005) Remote Sensing and GIS Integration for Groundwater Potential Mapping in Sinai Peninsula, Egypt, *Proc. IAMG'05: GIS and Spatial Analysis*, Toronto, Canada, vol. 1, pp. 440-445.
- Liu, C. and Koike, K. (2005) Multivariate Space-time Geostatistical Modeling of Nutritive Salts in a Closed Sea Environment, *Proc. IAMG'05: GIS and Spatial Analysis*, Toronto, Canada, vol. 2, pp. 710-715.
- Heriawan, M. N. and Koike, K. (2005) Multivariate Geostatistical Estimation of Coal Quality in a Multilayered Deposit, *Proc. IAMG'05: GIS and Spatial Analysis*, Toronto, Canada, vol. 2, pp. 1052-1058.
- Sanga, T. and Koike, K. (2005) A New Lineament Extraction Method by Considering Topographic Features and Spatial Correlations, *Proc. 3rd International Workshop on Earth Science and Technology*, Fukuoka, Japan, pp. 495-502.
- Heriawan, M. N. and Koike, K. (2005) Geostatistical Estimation and Simulation for Uncertainty Assessment of Coal Resources, *Proc. 3rd International Workshop on Earth Science and Technology*, Fukuoka, Japan, pp. 267-274.
- Tamura, A., Nakatsuru, T., Koike, K., and Yamada, F. (2005) Remotely Sensed Space-Time Changes of Sea Environments Using Reflectance Spectra of Surface Materials, *Proc. 3rd International Workshop on Earth Science and Technology*, Fukuoka, Japan, pp. 425-432.

## (2) 原著論文以外による発表

- 麻植久史・小池克明 (2005) 地球統計学による比抵抗分布モデルの空間分解能向上, 情報地質, vol. 16, no. 2, pp. 70-71.
- Heriawan, M. N. and Koike, K. (2005) Ordinary and factorial cokriging for multivariable analysis in coal exploration data, 情報地質, vol. 16, no. 2, pp. 78-79.
- 小池克明・麻植久史・吉永 徹・高倉伸一 (2005) 火山ガス・MT 比抵抗・地質データの統合による地熱貯留層キャラクタリゼーション, 情報地質, vol. 16, no. 2, pp. 92-93.
- 古宇田亮一・小池克明・植木俊明・井口 隆・川畑大作 (2005) 新潟中越地震に伴う地回り地域の衛星画像による地質構造解析, 情報地質, vol. 16, no. 2, pp. 94-95.
- Liu, C. and Koike, K. (2005) Multivariate space-time geostatistical modeling with a case study of environmental data in Ariake Sea, 情報地質, vol. 16, no. 2, pp. 98-99.
- Masoud, A. and Koike, K. (2005) Integrated Analysis of LANDSAT-7 Imagery, SRTM DEM, and Precipitation Information for Groundwater Potential Mapping in Sinai Peninsula, Egypt, 情報地質, vol. 16, no. 2, pp. 100-101.
- Moukana, J. A., Masoud, A., and Koike, K. (2005) Time series analysis of groundwater decreases in urban area using vegetation indexes and geostatistics, 情報地質, vol. 16, no. 2, pp. 106-107.

## (3) 学会発表

- 麻植久史・吉永 徹・小池克明・高倉伸一 (2005) 地磁気ー地電流法による熊本平野の水理地質構造モデリング, 資源・素材学会九州支部平成 17 年春季例会講演要旨集, pp. 23-25.
- 一ノ瀬陽介・吉永 徹・小池克明 (2005) 断層帯表層での放射性核種分布とラドンガス濃度との関係, 資源・素材学会九州支部平成 17 年春季例会講演要旨集, pp. 26-28.
- 小林茂樹・大倉 博・小池克明・大村 誠・橋本 学 (2005) 衛星搭載合成開口レーダーと光学センサを用いた九州地域の活火山周辺の地殻変動検出, 日本火山学会秋季大会.
- 大村 誠・小池克明・澁谷和雄・土井浩一郎・山之口 勤 (2005) 衛星搭載 SAR データによる南極コーツランドの地形の解析, 第 25 回極域地学シンポジウム講演要旨, pp. 54-55.
- 小林茂樹・大倉 博・小池克明・大村 誠・橋本 学・大久保修平 (2005) ENVISAT 衛星の HH 偏波 ASAR データによる干渉処理ー九重・阿蘇ー霧島・桜島地域の干渉性と地殻変動検出ー, 測地学会秋季大会.
- 小池克明・劉 春学・三箇智二 (2006) 方位要素を考慮した地球統計学ー石油貯留槽間の亀裂分布シミュレーションへの応用ー, 資源・素材学会春季大会講演集(I)資源編, 企画ー45-46.
- Heriawan, M. N. and Koike, K. (2006) Uncertainty Assessment of Coal Quality by Geostatistics in a Multilayered Deposit, 資源・素材学会春季大会講演集(I)資源編, 企画ー47-48.
- 劉 春学・小池克明 (2006) 時空間-多変量クリギングの定式化と海域環境データへの応用, 資源・素材学会春季大会講演集(I)資源編, 企画ー59-60.

## 平成17年度研究成果報告

研究課題名： 希薄有害イオンで汚染された水の高速浄化を目的とした繊維状吸着剤の開発に関する研究

所属・氏名：工学部・城 昭典

### 1. 研究目的・目標

#### H15年度～21年度における目的・目標

人間の活動は地表水（河川、湖沼、地下水ならびに海水）の重金属イオンによる汚染問題を起こしてきた。また、最近、天然由来のホウ素ならびにヒ素の酸素酸イオンによる水質汚染も注目されるようになった。たとえば、ガンジスデルタ地域では、地下水のヒ素汚染による史上最大規模の慢性ヒ素中毒が懸念されている。また、20世紀後半から主に開発途上国において人口が指数関数的に増加しているが、この人口増加に伴う農工鉱業生産の拡大により、2030年頃には地球規模での水不足が起こるものと予測されている。従って、水中の希薄有害イオンを高選択的かつ高速度で除去する吸着剤の開発は極めて重要な課題である。現在、希薄な有害イオンで汚染された水の浄化において粒状のイオン交換樹脂ならびにキレート樹脂が使用されているが、これらの粒状吸着剤の最大の短所は吸着速度が遅いことである。本研究は、吸着速度が従来の樹脂より格段に迅速なイオン吸着性繊維を開発することを目的としている。

#### H17年度の目的・目標

H16年度に、交換体バルク相が高親水性で第一アミノ基を有する陰イオン交換繊維（構造は左図参照、略称FVA）を合成し、プロトン化したFVAのリン酸ならびにヒ酸の陰イオン種に対する選択性ならびにカラム法における基礎的吸着特性を評価して、プロトン化FVAが塩化物イオンや硫酸イオンの共存下でもヒ酸とリン酸の陰イオン種を吸着可能であることを示した。

H17年度はカラム法における吸着特性をさらに詳細に検討することを目的とし、カラム法におけるヒ酸イオンの吸着量に及ぼすヒ酸イオン濃度、通液速度ならびに共存イオンなどの影響を検討した。

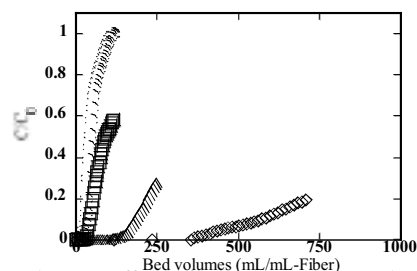


Fig. 1 Effect of arsenate concentration in feed on columnar adsorption of arsenate. ○ 10 mM, □ 2.5 mM, △ 0.63 mM, ◇ 0.15 mM.

Conditions : Column 1.7 mL of wet FVA (0.4 g in dry). Feed 10 mM - 0.15 mM As(V), pH 7. Flow rate 30 h<sup>-1</sup> in sSV.

### 2. 平成17年度の研究成果

#### ① ヒ酸イオン種吸着における供給液中のヒ酸塩濃度の影響

FVA のカラム法におけるヒ酸塩吸着量の供給液中のヒ酸塩濃度依存性を検討した。結果を Fig. 1 および Table 1 に示す。ここで、SV (空間速度、Space velocity)とは



Table 1 Effect of concentration of arsenate in feed on the adsorption of As (V) by FVA

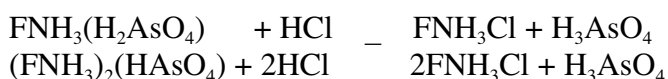
Concentration of As(V) in feed	9.9 mM 743 ppm	2.5 M 190 ppm	0.7 mM 52.2 ppm	0.17 mM 13.0 ppm
pH of feed	7.0	7.0	7.0	7.0
pH of effluents after washing	5.2	4.1	4.2	4.2
Recovery [%]	95.6	98.9	102	109
5 % Breakthrough point [mL/mL-F]*	22.8	38.2	165	448
5 % Breakthrough capacity [mmol/g-F]	0.949	0.407	0.483	0.326

\* 5% breakthrough point is defined as the feed volume corresponding to  $C/C_0 = 0.05$ . Flow rate of feed was  $30 \text{ h}^{-1}$  in SV.

1 時間あたりにカラム内の吸着剤体積の何倍の溶液を通液したかを示す。 $C/C_0$  は、カラム流出液中の金属イオン濃度(C)を供給液中のヒ素濃度( $C_0$ )で除した値を示す。本研究では  $C/C_0=0.05$  となる点、すなわち 5 %漏出点(5 % Breakthrough point)と、この点までの吸着量すなわち 5 % 漏出容量(5 % Breakthrough capacity)を求めた。

Fig. 1 ならびに Table 1 の結果より、供給液の濃度が希薄になるほど漏出点が大きくなる。一方、漏出容量は減少した。これは供給液濃度が濃厚になるほど 5%漏出点の絶対濃度が高くなるためである。つまり、 $C = 0.05C_0$  の関係より供給液濃度が高くなるとともに、漏出点における流出液中の標的イオン濃度がより高濃度となる。たとえば、 $C_0 = 0.01 \text{ M}$  のときは漏出点は  $C = 0.0005 \text{ M}$  に対応する点までの供給液体積となる。一方、 $C_0 = 0.001 \text{ M}$  のとき漏出点は  $C = 0.00005 \text{ M}$  に対応する体積となる。したがって、漏出点を決定する絶対濃度は  $C_0$  が低いほど低くなり、漏出点がより小さく判定される。したがって、漏出容量は  $C_0$  が低いほど低くなる。

吸着されたヒ酸イオンの溶離は、ヒ酸の  $\text{pKa}_1 \sim 2$  であるのでヒ酸の陰イオン種が pH 0 (1 M の強酸水溶液)で電気的中性種になりイオン交換体から離脱することに着目して溶離は再生をもかねて 1 M 塩酸で行った。



期待した通り、吸着されたヒ酸の陰イオン種が 1 M 塩酸により定量的に溶離できた。さらに、この繊維は繰り返し利用しても吸着能が減少しないことから、耐久性にも優れていることが確認された。

## ② FVAによるヒ酸陰イオン吸着における供給液の通液速度の影響

第一アミン型陰イオン交換繊維FVAのヒ酸陰イオン種の吸着速度に関する知見を得るため、カラム法により通液速度依存性を比較した。供給液の通液速度を30, 100, 200  $\text{h}^{-1}$ と変化させてヒ酸イオン種の吸着挙動を検討した。結果をFig. 2および

Table 2に示す。Fig. 2の漏出曲線を比較すると、ヒ酸陰イオン種の漏出曲線においては、通液速度をSV 30  $\text{h}^{-1}$ からSV 200  $\text{h}^{-1}$ まで増大させていくと漏出点が減少しているが、SV 200  $\text{h}^{-1}$ でも漏出点は十分大きくFVAはヒ素の吸着に良好に機能しているといえる。

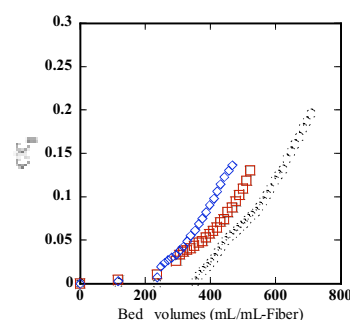


Fig. 2 Effect of flow rate on the adsorption of arsenate species. ○ SV 30  $\text{h}^{-1}$  □ SV 100  $\text{h}^{-1}$ , ◇ SV 200  $\text{h}^{-1}$ .  
Conditions  
Column : 1.7 mL of wet FVA (0.4 g in dry)  
Feeding solution : 0.15 mM As(V) (pH 7)



Table 2 Effect of flow rate of feed on adsorption of As (V) by FVA

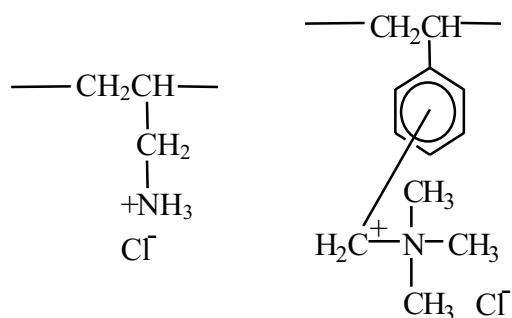
Flow rate in space velocity	30 h <sup>-1</sup>	100 h <sup>-1</sup>	200 h <sup>-1</sup>
Concentration of arsenate in feed [ppm]	13.0	12.3	12.2
pH of feeding solution	7.0	7.0	7.0
Recovery [%]	110	109	106
5% Breakthrough point [mL/mL-F]*	448	377	332
5% Breakthrough capacity [mmol/g-F]	0.326	0.259	0.226

\* 5% breakthrough point is defined as the feed volume corresponding to  $C/C_0 = 0.05$ .

### ③FVA、PAA-B 及び Diaion SA10A を用いたカラム法によるヒ酸イオンの吸着

FVA と市販の陰イオン交換樹脂 Diaion SA10A ならびに PAA-B の三者について、カラム法におけるヒ酸イオン種の吸着特性を比較した。これらの構造式を右図に示す。

PAA-B は芳香環を持たない親水性が高い樹脂である。一方、Diaion SA10A は疎水性の高いトリメチルベンジルアンモニウム基を陰イオン交換基とする代表的強塩基性の陰イオン交換樹脂である。Table 3 にこれらの



PAA-B 日東紡

Diaion SA10A 三菱化学

元素分析の結果を示す。PAA-B の官能基導入量は極めて大きいことがわかる。これは、PAA-B においては窒素 1 原子あたりの当量が小さいためである。

3 種の陰イオン交換体のそれぞれを充填した各カラムを用いてヒ素の漏出挙動を検討した結果を Fig. 3 に示し、数値データを Table 4 に要約した。ここでカラムへの供給液は水道水(地下水)にヒ酸塩をスパイクして調製した。ヒ酸塩濃度はヒ素濃度で 0.81ppm - 0.88ppm(0.011 - 0.012mM)とした。pH は 7 であり、塩化

Table 3 Elemental analysis of PAA-B and Diaion SA10A

	H %	C %	N %	N (mmol/g)
PAA-B	11.2	58.74	19.75	14.1
Diaion SA10A	8.82	64.37	5.11	3.65

物イオン、硝酸イオン、硫酸イオンの濃度はそれぞれ、8.1ppm(0.23mM), 2.9ppm(0.047mM) ならびに 20ppm(0.21mM)であった。従って、塩化物イオンと硫酸イオンはそれぞれヒ酸イオンの約 20 倍モル存在している。

Fig. 3 と Table 4 から判るように、5%漏出点は、FVA > PAA-B > Diaion CR10 の順に減少している。各樹脂の陰イオン選択性の相違と拡散現象の重畳効果によって、このような順序になったものと推定できる。すなわち、ここでは 500 h<sup>-1</sup>という大きな空間速度を実現するために 32 - 60 mesh のと比較的粒度の大きい樹脂を用いたために、樹脂内部まで拡散するには十分の時間を要し、ヒ酸イオンの漏出が早く起こる。樹脂は三次元橋架け構造であり、官能基は樹脂内部にも多く存在しているため、ヒ酸陰イオン種が樹脂内の中心部まで拡散する

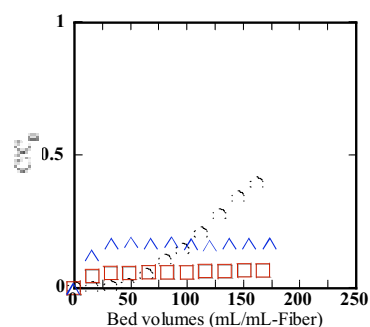


Fig. 3 Adsorption of 1 ppm arsenate species by FVA, PAA-B and Diaion SA10A. ○FVA, □PAA-B, △Diaion SA10A. Conditions Column : FVA (0.3 g), PAA-B (0.57 g), SA10A (0.6 g). Wet volume of each resin was 1.0 mL. Feeding solution : 1 ppm As(V) in tap water (pH 7). Flow rate : 500 h<sup>-1</sup> in SV

Table 4 Adsorption 1 ppm As ( ) in tap water by FVA, PAA-B and Diaion SA10A

Adsorbent	FVA	PAA-B	Diaion SA10A
Flow rate of feed in space velocity	500 h <sup>-1</sup>	500 h <sup>-1</sup>	500 h <sup>-1</sup>
Concentration of feeding solution [ppm]	0.81	0.88	0.84
pH of feed	7.0	7.0	7.0
Recovery [%]	104	105	109
5% Breakthrough point [mL/mL-F]*	64.8	19.8	5.7
5% Breakthrough [mmol/g-F]	0.0023	0.0008	0.0002

\* 5% breakthrough point is defined as the feed volume corresponding to  $C/C_0 = 0.05$ .

までにはかなりの時間を要する。また、Diaion CR10 の陰イオン選択性はヒ酸イオン < 塩化物イオン < 硫酸イオンの順に増大する。一方、FVA と PAA-B は塩化物イオン < 硫酸イオン < ヒ酸イオンの順に増大する。繊維では、官能基が固定化された繊維の直径が 10 $\mu$ m 程度と小さいため迅速な吸着が可能となる。以上により、FVA は市販の樹脂よりも効率よくヒ酸陰イオン種を吸着することが可能となる。

#### ④ FVA と PAA-B によるヒ酸イオン種吸着における供給液濃度の影響

前節で述べた方法で水道水(地下水)に種々の量のヒ酸塩をスパイクして、濃度の異なるヒ酸塩水溶液を調製して、これらの溶液を FVA 充填カラムに一定の速度で通液してヒ酸塩の吸着特性を検討した。Table 5 にカラムへの供給液の組成、通液条件、5%漏出点、5%漏出容量、回収率などを要約した。

**Table 5 Effect of concentration of feeding solution on the adsorption As ( ) in tap water by FVA**

Flow rate of feed	500 h <sup>-1</sup>	500 h <sup>-1</sup>	500 h <sup>-1</sup>	500 h <sup>-1</sup>	500 h <sup>-1</sup>	500 h <sup>-1</sup>
Concentration of As in feed [ppm]	0.81	2.4	4.8	9.2	51.7	105.1
pH of feed	7.0	7.0	7.0	7.0	7.0	7.0
Recovery [%]	104.2	95.6	105.2	95.6	104.5	102.5
5% Breakthrough point [mL/mL-F]*	64.8	51.8	75.6	58.1	20.6	14
5% Breakthrough [mmol/g-F]	0.0023	0.0055	0.0161	0.0237	0.0472	0.0652

\* 5% breakthrough point is defined as the feed volume corresponding to  $C/C_0 = 0.05$ .

Fig.4 には各濃度における漏出曲線を示す。通常、供給液中の吸着標的イオンの濃度が減少するとともに、漏出点がほぼ増大していく。しかし興味深いことに、ここでは漏出点はヒ素濃度が ppm 程度までは増大しているが、さらに供給液中のヒ素濃度が減少すると逆に漏出点は小さくなっている。供給液中のヒ素濃度の低下とともに共存陰イオンの妨害が相対的に大きくなり漏出点を小さくする。すなわち、ヒ素濃度の低下とともに、漏出点を大きくする因子と小さくする因子が拮抗するために、5ppm 以下になると漏出点がほぼ一定になったものと推察される。しかしながら、漏出点までに吸着されるヒ素の量は、単

調に減少していく結果となる。

次に PAA-B についても同様の検討を行った。Table 6 に実験条件と結果を要約した。漏出曲線を Fig. 5 に示す。この樹脂の場合には、供給液中のヒ素濃度と漏出点はほとんど相関しておらず、ほぼ一定である。このことは、供給液中のヒ素濃度とは無関係に通液速度が  $500 \text{ h}^{-1}$  と極めて迅速である

ので溶液中のヒ素が樹脂内に拡散侵入して吸着されることなく 8 割程度のヒ素がカラム内の粒子間隙を溶液とともに通過することを示唆している。PAA-B は交換容量は極めて大きい吸着速度が遅くが、これと異なり筆者らが開発した繊維では  $500 \text{ h}^{-1}$  でもヒ素を迅速に吸着可能であることが判った。

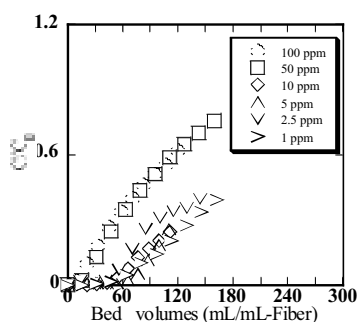


Fig. 4 Effect of concentration of feeding solution on uptake of As(V) by FVA  
Column : 1.0 mL of wet FVA (0.3 g in dry)  
Feed: As(V) (pH 7.0) Flow rate of feed  $500 \text{ h}^{-1}$  in space velocity

Table 6 Effect of concentration of feeding solution on the adsorption As ( ) in tap water by PAA-B

Flow rate of feed	$500 \text{ h}^{-1}$	$500 \text{ h}^{-1}$	$500 \text{ h}^{-1}$	$500 \text{ h}^{-1}$	$500 \text{ h}^{-1}$	$500 \text{ h}^{-1}$
Concentration of As in feed [ppm]	0.88	2.4	4.8	9.19	50.97	100.2
pH of feed	7.0	7.0	7.0	7.0	7.0	7.0
Recovery [%]	105	98.4	91.2	93.4	101	105
5% Breakthrough point [mL/mL]*	19.8	12.3	6.7	9.9	10.1	8.6
5% Breakthrough [mmol/g-F]	0.0008	0.0013	0.0014	0.0040	0.0228	0.0382

\* 5% breakthrough point is defined as the feed volume corresponding to  $C/C_0 = 0.05$ .

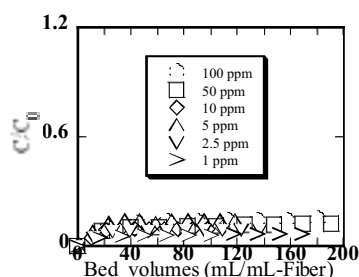


Fig. 5 Effect of concentration of feeding solution on the adsorption As(V) by PAA-B  
Conditions  
Column : 1 mL of PAA-B (0.58 g)  
Feeding solution: As(V) (pH 7.0).  
Flow rate :  $500 \text{ h}^{-1}$  in SV.

### 3. 成果の達成度

本年度は、現実在即した地下水（本学の水道水）にヒ酸塩をスパイクした模擬試料を用いての検討を行った。ヒ素含有量が1ppm程度であり塩化物イオンと硫酸イオンがそれぞれ20倍モル存在する条件下で、有機イオン交換体としてはじめてヒ酸イオンの吸着可能で

あることを実証した。また、従来のイオン交換樹脂では達成困難な空間速度 $500\text{ h}^{-1}$ での通液も可能であった。

#### 4. 今年度の問題など

塩化物イオン、硫酸イオンが20倍モル存在してもヒ酸塩を吸着可能であったが漏出容量が減少するので、陰イオン相互間の選択性がさらに優れた配位子交換型吸着剤も検討する必要がある。

#### 5. 来年度の目的・目標

金属イオン担持二官能性キレート繊維を用いて、塩化物イオン、硫酸イオンの妨害が格段に少なく吸着速度も迅速なヒ素吸着剤を開発する。

#### 6. 平成17年度研究費取得状況

(1) 民間との共同研究（三井金属鉱業株式会社）、2005/3-2006/3、200万円、フッ化物イオンに高選択性を示す粒状吸着剤開発

#### 7. 平成17年度の研究発表、特許状況

##### ① 原著論文による発表

###### 1) 国内誌（和文）

なし

###### 2) 国際誌（欧文）

Xiaoping Zhu, Akinori Jyo, “Column-mode Phosphate Removal by a Novel Highly Selective Adsorbent”, *Water Research*, **39**(2005) 2302-2308.

##### ② 特許

なし

##### ③ 口頭発表

###### 1) Akinori Jyo, Miho Akino,.

“Iminodiacetate Chelating Resin of Bifunctional Type”

231<sup>st</sup> American Chemical Society National Meeting, Atlanta, GA, United States, March 26-30, 2006.

###### 2) (八代高専) 浜辺裕子、(熊本大・工) 杉本 学、城 昭典

カチオン交換樹脂のイオン選択性に関する理論モデルと電子状態計算による解析

第21回日本イオン交換研究発表会講演要旨集、p58、2005年11月12-13日

###### 3) (熊本大・工) 富安 敬、池田茂樹、城 昭典、(原研高崎) 吉田 勝、八巻徹也

ホスホン酸を交換基とする陽イオン交換膜の合成とその性質

第21回日本イオン交換研究発表会講演要旨集、p60、2005年11月12-13日

###### 4) (熊本大・工) 秋野美穂、城 昭典

スルホン酸-イミノ二酢酸型二官能性樹脂の金属イオン吸着特性

第21回日本イオン交換研究発表会講演要旨集、p66、2005年11月12-13日

- 5) (原研高崎) 岡田健治、玉田正男、(熊本大・工) 城 昭典  
ジルコニウム(IV)担持ホスホン酸-スルホン酸型二官能性繊維によるフッ化物イオン吸着挙動  
第21回日本イオン交換研究発表会講演要旨集、p77、2005年11月12-13日
- 6) (熊本大・工) 黒木裕加、城 昭典)  
ジルコニウム(IV)を担持した市販二官能性陽イオン交換樹脂のフッ化物イオン吸着挙動  
第21回日本イオン交換研究発表会講演要旨集、p70、2005年11月12-13日
- 7) (熊本大・工) 浦田信也、Md. Rabiul Awual、城 昭典、(原研高崎) 玉田正男、片貝秋雄  
ヒ酸ならびにリン酸に高選択性と高速吸着性を示す有機吸着剤の開発  
第21回日本イオン交換研究発表会講演要旨集、p79、2005年11月12-13日
- 8) (熊本大・工) 森岡佑介、富安 敬、城 昭典、(原研高崎) 玉田正男、片貝秋雄  
クロロメチルスチレンとスチレンを共グラフトしたポリオレフィンからの二官能性イミノ二酢酸型繊維の合成  
第21回日本イオン交換研究発表会講演要旨集、p80、2005年11月12-13日
- 9) (熊本大・工) 柴田良和、城昭典、(原研高崎) 玉田正男、片貝秋雄  
クロロメチルスチレンをグラフトしたポリオレフィンを基体とするスルホン酸-アミノメチルホスホン酸型二官能性繊維の合成  
第21回日本イオン交換研究発表会講演要旨集、p81、2005年11月12-13日
- 10) (熊本大・工) 池上 文、城 昭典、(原研高崎) 玉田正男、片貝秋雄  
ビニルベンジルグリシジルエーテルグラフトポリオレフィンを基体とするイミノ二酢酸型繊維の金属イオン吸着特性  
第21回日本イオン交換研究発表会講演要旨集、p82、2005年11月12-13日
- 11) 城 昭典<sup>1)</sup>、青柳真一郎<sup>1)</sup>、池上 文<sup>1)</sup>玉田正男<sup>2)</sup>、片貝秋雄<sup>2)</sup>  
(<sup>1)</sup>熊本大工,<sup>2)</sup>原研高崎)  
ビニルベンジルグリシジルエーテルをグラフト重合したポリオレフィン繊維を基体とし、イミノ二酢酸を官能基とするキレート繊維の金属イオン吸着特性  
第 11 回放射線プロセスシンポジウム、2005 年 12 月 1-2 日

## 平成17年度研究成果報告

研究課題名：重金属系環境汚染物質の無害化と資源リサイクル

所属・氏名：大学院自然科学研究科・河原正泰

### 1. 研究目的・目標

#### H15年度～21年度における目的・目標

水環境汚染物質の動態評価研究の一環として、微量環境汚染物質の定量、主として重金属の挙動に関する研究を行う。すなわち、水中の有害金属元素および有害無機陰イオンの定量と固定ならびに除去、廃棄物からの有害金属元素の水への溶出防止、廃棄物に含まれる金属元素の分離・回収を目的として研究を行う。

#### H17年度の目的・目標

環境汚染物質である重金属が河川や海に流入すると深刻な環境問題を引き起こすため、重金属を含む廃棄物は厳重に管理されている。また最近では、最終処分場の逼迫と循環型社会構築の観点から、廃棄物の有効利用が求められている。本研究では、一般廃棄物を焼却した時に発生する飛灰ならびに焼却灰を熔融処理した際に発生する熔融飛灰を無害化し、同時に有価金属を回収するための酸による浸出プロセスについて検討を加えている。前年度は、焼却飛灰ならびに熔融飛灰を酸浸出して無害化し、同時に金属元素を回収する第1段階としての浸出工程について検討を加えた。本年度は、熔融飛灰からの金属元素の回収と熔融飛灰の無害化を目的として、浸出の前段階としての洗浄および浸出貴液からの沈殿分離法による金属回収に関する研究を行った。

### 2. 平成17年度の研究成果

#### ① 熔融飛灰の水洗および硫酸浸出

表1に実験に用いた熔融飛灰の組成を示す。図1には、この熔融飛灰を硫酸で浸出したときの硫酸濃度と各元素の浸出率との関係を示す。鉛は硫酸には溶解しないはずであるが、硫酸濃度が0.2 mol/l以上になると、熔融飛灰中の鉛が約10%浸出され、他の金属との選択浸出性が悪くなった。これは熔融飛灰に含まれる塩素が鉛の溶解に寄与しているためと考えられる。そこで、熔融飛灰を酸で浸出する前に水洗して、塩素を除去することを試みた。

表2に水洗を施した熔融飛灰の組成を示す。塩素は水洗前の32%から5.5%に減少し、金属元素の濃度は、いずれも3倍程度に濃縮した。これは、熔融飛灰中のナトリウムやカリウムの塩化物が水に溶解し、除去されたためである。図2には、水洗後の熔融飛灰を硫酸で浸出したときの硫酸濃度と各元素の浸出率との関係を示す。水洗を施していないもの（図1）とは異なり、硫酸濃度が高い溶液でも、鉛はほとんど浸出されなかった。硫酸濃度1.25 mol/l以上で、銅、亜鉛、カドミウムの浸出率は95%以上になり、鉛に対する選択浸出性が向上した。すなわち、熔融飛灰を水洗することにより、浸出段階で鉛と他の金

属を分離することができた。これは、塩素イオンによる鉛の溶解が抑えられたためである。溶融飛灰を酸浸出前に水洗して塩素を除去する処理は、金属元素の濃縮ばかりではなく、金属元素の選択浸出性の向上に寄与することが判明した。

表 1 水洗前の溶融飛灰の組成(mass%)

Zn	Pb	Fe	Cu	Cd	Cl
6	1.6	0.94	0.25	0.04	32

表 2 水洗後の溶融飛灰の組成(mass%)

Zn	Pb	Fe	Cu	Cd	Cl
17.4	4.96	2.64	0.76	0.11	5.5

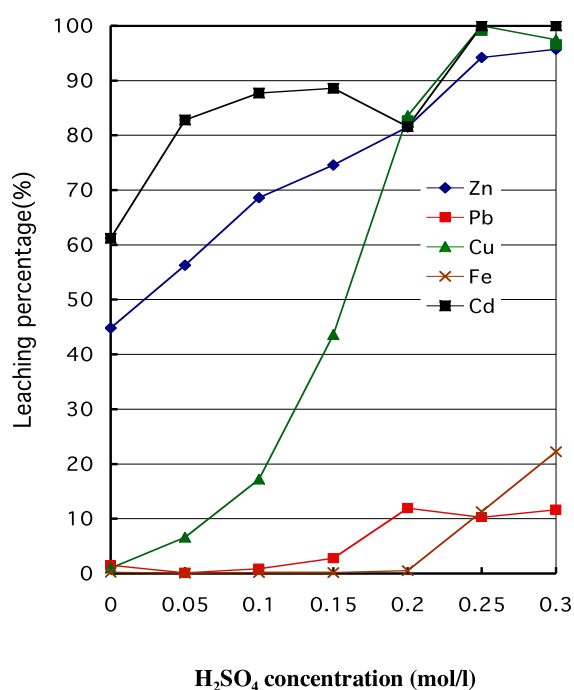


図 1 未水洗の溶融飛灰を硫酸浸出したときの硫酸濃度と各元素の浸出率との関係

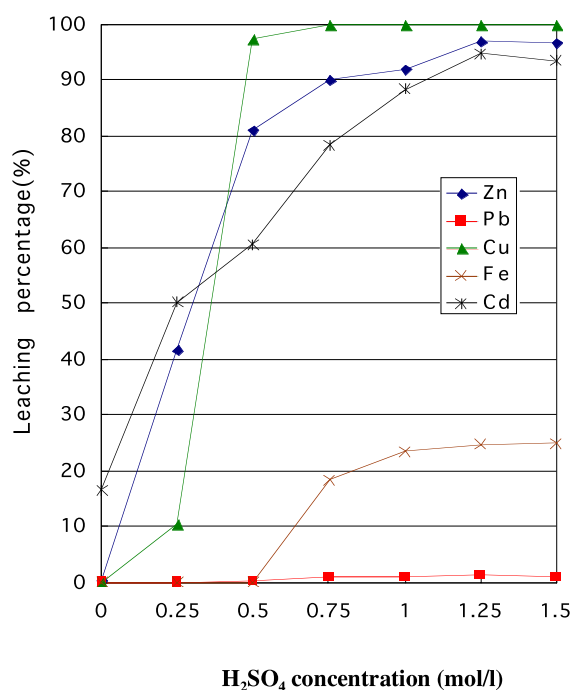


図 2 水洗した溶融飛灰を硫酸浸出したときの硫酸濃度と各元素の浸出率との関係

## ② 溶融飛灰浸出溶液からの金属回収

表 3 に溶融飛灰を水洗後硫酸で浸出して得られた貴液の組成を示す。この溶液から、先ず銅を分離するために、鉄粉によるセメンテーションによって、銅を沈殿させた。その結果を図 3 に示す。鉄添加濃度 1.48 g/l 以上で、銅を

表 3 溶融飛灰浸出貴液の組成 (g/l)

Zn	Pb	Fe	Cu	Cd	Cl
17	0.06	0.27	0.76	0.1	6.4

ほぼ完全に置換沈殿させることができた。  
このときに得られた溶液の組成を表4に示す。溶液中の鉛量は若干減少するものの、銅以外の金属元素を溶液中に残したまま、銅を沈殿分離できることが分かる。

表4 セメンテーション後の溶液組成(g/l)

Zn	Pb	Fe	Cu	Cd	Cl
17	0.005	0.82	0	0.1	6.4

こうして銅を除去した溶液を苛性ソーダで pH=4 に調整して、鉄を水酸化物として沈殿させたときの溶液組成を表5に示す。

表5 pH=4 に調整後の溶液組成(g/l)

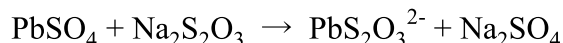
Zn	Pb	Fe	Cu	Cd	Cl
17	0	0	0	0.1	6.3

表から明らかなように、鉛と鉄が完全に除去され、溶液中には亜鉛と若干のカドミウムだけが残った。この溶液をさらに苛性ソーダで pH=10 に調整することにより、溶液中から亜鉛とカドミウムを水酸化物として沈殿させることができた。なお、この処理によって得られた水酸化物中の金属品位は、亜鉛が約44%、カドミウム1.8%であった。

以上のように、溶融飛灰浸出溶液からは沈殿分離法によって、有価金属をそれぞれ分離・回収できることが判明した。

### ③ 浸出残渣からの鉛の回収と残渣の無害化

溶融飛灰浸出溶液からは有価金属を分離・回収できたが、浸出残渣には鉛が残存している。そこで次に、浸出残渣からの鉛の回収と残渣の無害化について検討を加えた。溶融飛灰を硫酸で浸出したときの残渣は硫酸鉛になっていると思われるが、硫酸鉛はチオ硫酸ナトリウム水溶液に次式の反応に従って溶解する。



そこで硫酸浸出残渣からの鉛の回収として、チオ硫酸ナトリウム水溶液による浸出を行った。

図4に、チオ硫酸ナトリウムの1 mol/l 水溶液で硫酸浸出残渣を浸出したときの各元素の浸出率を示す。なお、浸出温度は

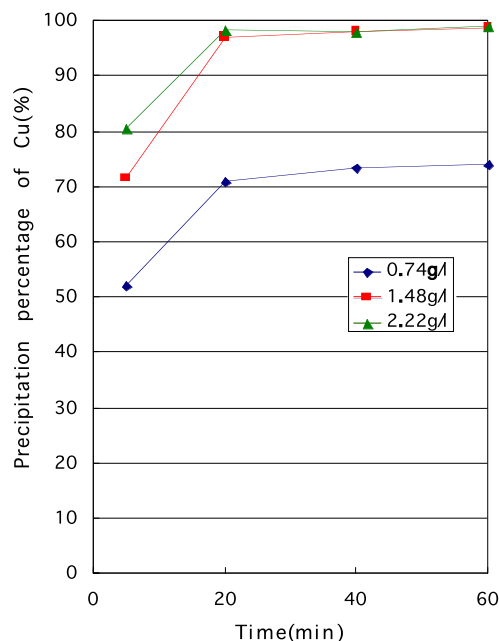


図3 鉄添加量を変えたときの銅の沈殿率と反応時間との関係



20℃である。図から明らかなように、残渣中の鉛の95%以上が短時間でチオ硫酸ナトリウム水溶液に溶解した。これにより、溶融飛灰の硫酸浸出残渣から鉛を除くことができた。

鉛が溶解したチオ硫酸ナトリウム水溶液からは、水硫化ソーダを添加することにより、鉛等の金属元素を硫化物として沈殿、回収することができる。表6に硫化法によって得られた沈殿の組成を示す。鉛の品位が74%程度の硫化物になっていることが分かる。これらのプロセスにより、溶融飛灰の硫酸浸出残渣から鉛を回収できた。

表6 得られた硫化物の組成(mass%)

Zn	Pb	Fe	Cu	Cd	Cl
0.9	74.2	0	0	<0.01	<0.01

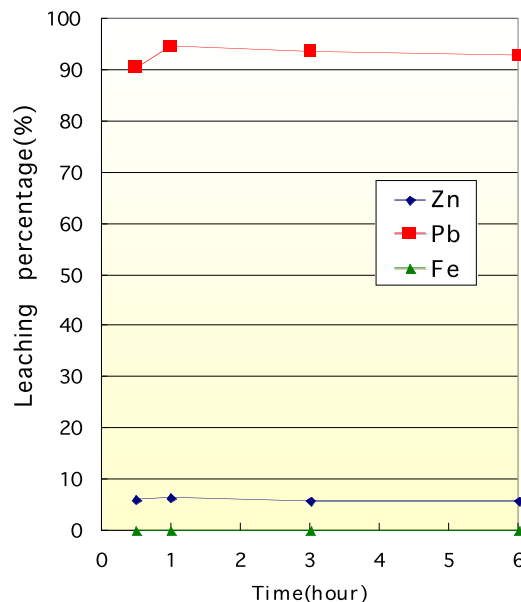


図4 溶融飛灰の硫酸浸出残渣のチオ硫酸ナトリウム浸出結果

図5には、それぞれの処理を行ったときの残渣からの鉛と塩素の溶出濃度を示した。ここで Sample C は水洗をしていない溶融飛灰の硫酸浸出残渣、Sample D は水洗した溶融飛灰を硫酸浸出した残渣で、Sample E は Sample C をチオ硫酸ナトリウム浸出したときの残渣、Sample F は Sample D をチオ硫酸ナトリウム浸出したときの残渣である。

溶融飛灰の硫酸浸出残渣は硫酸鉛になっているので、前処理の水洗をしたものでも3 ppm以上の鉛が溶出した。これらの硫酸浸出残渣は、チオ硫酸ナトリウム浸出することにより鉛がほとんど除去されるため、鉛の溶出濃度は極端に低下した。特に前もって水洗した溶融飛灰を硫酸浸出した残渣をさらにチオ硫酸ナトリウム

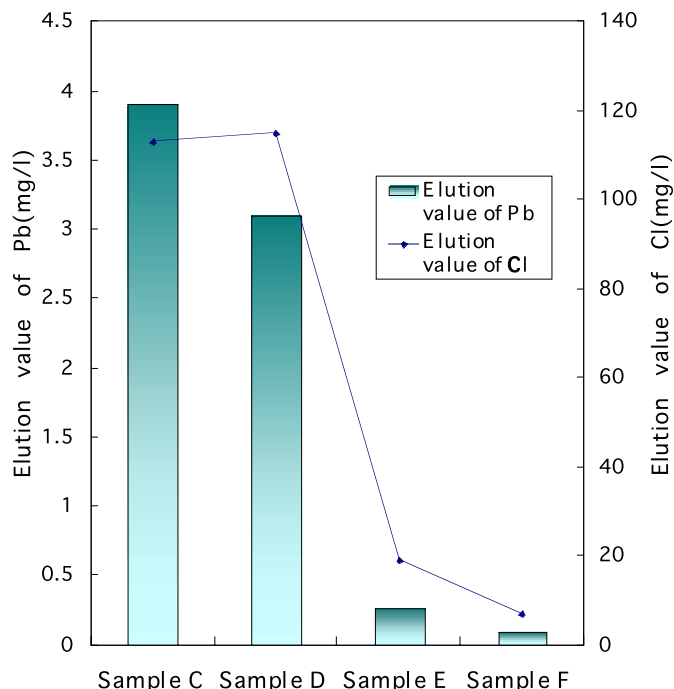


図5 各種残渣からの鉛と塩素の溶出濃度

浸出したもの（Sample F）では、鉛の溶出濃度が 0.1 ppm 未満となり、埋め立て基準をクリアするものとなった。

以上述べたように、溶融飛灰を水洗して硫酸浸出することにより有価金属が回収でき、さらにその残渣をチオ硫酸ナトリウム浸出することにより鉛が回収できて、溶融飛灰を無害化できることが判明した。

## 2. 成果の達成度

今年度は、溶融飛灰からの金属回収と溶融飛灰の無害化に成功したため、目標は十分達成できたと考えている。

## 3. 今年度の問題など

特になし。

## 4. 来年度の目的・目標

来年度は、最終処分場での管理処分を余儀なくされている、特殊鋼製造時に発生する飛灰の無害化について検討し、一連のダストからの金属回収と無害化に関する研究を行う予定である。

## 5. 平成17年度の研究費取得状況

(3) 科学研究費補助金（基盤研究(C)(2)）代表，2004-2005，100万円(平成17年度分)，「酸浸出一沈殿分離法による溶融飛灰からの有価金属の回収」

## 6. 平成17年度の研究発表、特許状況

(1) 原著論文による発表

① 国内誌（和文）

なし

② 国際誌（欧文）

1. Masayasu KAWAHARA, The Extraction and Separation of Nickel, Cobalt and Copper using Solvent Impregnated Resin made from LIX 84-I and XAD-4, **Metallurgical Review of MMIJ**, Vol.18, No.1, pp.29-38, 2005.

(2) 原著論文以外による発表

なし

(3) 口頭発表

1. 笠村啓司、佐藤健征、河原正泰：溶融飛灰からの金属回収、資源・素材学会九州支部平成17年度春季例会講演要旨集、47-49頁、2005年5月27日
2. 下川証史、河原正泰、井上 誠：Mg-Zn-Y合金の真空蒸留によるリサイクル、資源・素材学会九州支部平成17年度春季例会講演要旨集、50-52頁、2005年5月27日
3. 隅田育伸、小塚敏之、河原正泰：CdTeの結晶配向に及ぼす強磁場印加の影響、日本金属学会九州支部・日本鉄鋼協会九州支部平成17年度合同学術講演大会講演概要集、C-17、2005年6月10日
4. 井上 誠、附田之欣、下川証史、河原正泰：Mg-Zn-Y合金の真空蒸留によるリサイクル、資源・素材2005（室蘭）、平成17年度資源・素材関係学協会合同秋季大会プログラム要旨集、54頁、2005年9月25日
5. 池信省爾、田原浩志、河原正泰：ジンクシリケートの生成に関する基礎的研究、資源・素材 2005（室蘭）、平成 17 年度資源・素材関係学協会合同秋季大会プログラム要旨集、73 頁、2005 年 9 月 25 日
6. 笠村啓司、佐藤健征、河原正泰：溶融飛灰からの金属回収、資源・素材 2005（室蘭）、平成 17 年度資源・素材関係学協会合同秋季大会プログラム要旨集、74 頁、2005 年 9 月 25 日
7. 河原正泰：スラグとダストの処理に関する非鉄製錬産学会の取り組み、日本鉄鋼協会第 150 回秋季講演大会、材料とプロセス、Vol.18(2005), No.4、720-723 頁、2005 年 9 月 29 日
8. 河原正泰：スラグとダストの処理に関する非鉄製錬産学会の取り組み、インプロセステクノロジー第 4 回研究会、2006 年 3 月 9 日

## ガボン出張報告書

平成 18 年 1 月

出張者

工学部・教授 小池 克明

自然科学研究科・教授 河原 正泰

工学部・助教授 川越 保徳

自然科学研究科博士後期課程環境科学専攻 2 年 ムカナ オレリアン

### 1. 出張の目的

研究拠点 B の国際的交流活動の一環として、中央アフリカ ガボン共和国の主要な研究者と環境問題に関するワークショップを開催し、論文発表や情報交換を行う。さらに、環境問題に関する資料収集や環境問題が生じている場所へのフィールドトリップを行う。これにより、当研究グループの環境問題に関する見識を広げ、アフリカと熊大との人的交流や共同研究の礎を築くことを目的とする。

### 2. ワークショップスケジュール

1 月 11 日(水) 熊本ー福岡、福岡ー仁川 (韓国) : 韓国航空, 仁川ーパリ (フランス) : 韓国航空

パリーリーブルビル (ガボン) : フランス航空

1 月 12 日(木)

●6:30 : リーブルビル空港着

●15:00 : Centre National de la Recherche Scientifique et Technologique (CENAREST : 国立科学技術研究センター) 訪問

- ・センター長 Samuel MBADINGA 氏とコーディネータ Lucien OBAME 博士らと自己紹介、今回の訪問の目的、スケジュール、CENAREST の活動内容について会談する [右の写真]。OBAME 氏はムカナ君の出身大学 (マスク理工大学) の教授で、ムカナ君の元指導教員でもある。

・CENAREST 内の生物工学研究室とコンピュータ室を見学。

- ・見学の後歓談・土産物贈呈 (日本酒美少年)。CENAREST から石の伝統彫刻をいただ



く。

●17:00：在ガボン日本大使館表敬訪問

- ・特命全権大使 岡本博美氏と訪問の目的，ガボンや周辺国の事情などについて会談。

1 月 13 日(金) ワークショップ第一日目

●8:30：CENAREST 大会議室にて開演・参加者 85 名

- ・ 8:40-9:10 センター長 Samuel MBADINGA 氏による歓迎の挨拶  
小池教授による訪問の目的と拠点 B の研究活動内容紹介  
コーディネータ Lucien OBAME 博士による CENAREST の活動内容紹介
- ・ 9:10 - 11:00 セッション 1：リモートセンシング，空間解析，地球物理学  
発表者 小池教授（リモートセンシングと地球統計学の環境解析への応用）  
MOUKANA Jean-Aurelien（リモートセンシングによる土地利用形態の変化抽出と地下水位低下との関係）  
Dr NZIENGUI Marcelin（ガボン環境マッピングへのリモートセンシングの応用）  
Madame NYARE Nathalie（リモートセンシングによる森林地図作成）  
BOUROBOU Francis（環境保護のための GIS とリモートセンシング）  
OBIANG EBANEGA Medard（JERS-1 レーダ画像を用いた精密森林地図作製）
- ・ 11:15 - 12:50 セッション 2：生物工学，生物化学，水質浄化  
発表者 Etienne Massard MAKAGA KABINDA  
Dr NDONG BIYO'O mesmin（植物に関する in vitro での遺伝子バンクの構築）  
Dr BOUPANA Gilles Aurelien（リーブルビル市内レストランで使われているジビエ（野生肉食材）に関する微生物（細菌）調査）  
Monsieur EYI NDONG Huges Calixtes（ガボン国内の食用キノコに関する研究：インベントリー及び栽培に関する研究）  
Dr LAMIDI MAROUFATH  
Dr Patrick MIKALA（中央アフリカに生息する有頭類の分子生物学的分類）  
Dr Guy Anicet RERAMBYAT（ガボン近海における水産資源の現状）  
川越助教授（環境水質保全のための微生物工学の応用）
- ・ 12:50 - 14:00 セッション 3：湿式製錬，環境保護，生物多様性  
発表者 河原教授（環境保護のための金属工学の応用）  
Mme NGOUA Rosalie（ガボンのエコシステム構築のための組織についての提案）  
Dr Magloir-Desire MOUNANGA（ガボンの沿岸域における汚染について）  
Dr BOURBOU BOURBOU（ガボンに生息する植物の薬用効果の調査）  
Dr MBEGA（魚の発生期に及ぼす環境ホルモンの影響に関する基礎研究）  
Dr NGOK BANAK（ガボン東方地域の岩石年代に関する研究）



●14:15 : CENAREST 上級メンバーと昼食  
ワークショップの様子の一部を上 6 枚の  
写真で示す。なお、この日のワークショッ  
プは、ガボン国営テレビの午後 8 時代のニ  
ュースで紹介された、とのことである。

●15:15 : 教育省訪問・大臣と会談（地球物  
理学を専門とする大学教授） [右の写真は各  
省庁が集中する地区の一画を表す]





- 16:15：環境省訪問・副大臣と会談（経済学を専門とする大学教授）
- 19:00：日本大使館訪問：岡本大使，海外漁業協力財団・日本海洋調査会の方々，在ガボン JICA 技術者 小木曾氏らと会食

1月14日(土) ワークショップ第二日目： 午前は植生環境に関するフィールドトリップ，  
午後には CENAREST でワークショップの続き・ディスカッションセッション

- 9:00：オマール ボンゴ大学着 [左下の写真]
- ・植物研究室訪問 （ガボンの全植物種の標本・データベース作成のプロジェクト紹介）
- ・演習林訪問 （熱帯雨林地帯の代表的な樹木の育成） [右下の写真]
- 11:00：Owendo 港 （木材の積出港）
- 11:15-12:00 Lunch time



- 15:00 - 17:30：CENAREST でディスカッション，情報交換会 [下2枚の写真]
- ・参加者 24 名
- ・ガボンの沿岸域での海水汚染状況が報告される。海の汚染を止めるにはどうすれば良いか？について意見交換。



- ・熊大側への質問事項
  - ーガボンへの技術的援助・財政的援助をどのように考えているのか？
  - ←アジア・アフリカ学術基盤形成事業に採択されることが第一のステップである。
  - 今回の訪問は，そのための実績作りに貢献できる。

- ー以前の日本と類似した環境問題がガボンで生じているが、日本はどのように解決したのか？←一度汚染された環境は元に修復できないので、汚染源を絶つことが重要である。
- ー地下水汚染をどのように止められるのか？ また、汚染されていることを住民にどのように←地下水の水質のモニタリングが重要。観測井戸を多く設けて欲しい。後半は政治家の責任ではないか？
- ーガボンは環境問題解決のスタート地点に絶っている。環境問題の意識を高めていただきことに感謝したい。(環境・自然保護室長より)  
←これを機に人的交流ができれば本望である。

1月15日(土) ワークショップ第三日目

●Pointe Denis へのフィールドトリップ

・20名参加 [下2枚の写真]



- ・ガボンを流れる全ての支流を集めた川の大河口であり、侵食速度が非常に速く、5年で海岸線が大幅に後退した。堆積速度も速い。右の写真は堆積サイクルを表し、1つの縞が1サイクルに対応し、1ヶ月で形成されとのことである。
- ・大西洋との境界は、世界第二の海亀の産卵場所らしい。
- ・トリップのポイント
  - ー侵食を止めるにはどうしたら良いか？
    - ←人工堤防による侵食ではなく自然の作用なので、流速分布や堆積物濃度・種類などの総合的な解析が必要である。
  - ーこの半島を開発するには水が必要である。地下水を見付け出すのに有効な方法は？
    - ←地形が平坦であり、表層部の地質も均質なので、電気探査が最も適用しやすい。





1月16日(月)リーブルビル発、往きと逆の経路で1月17日(火)福岡着・午後9時半熊本着。出発前に撮影したホテルからの街の様子を右の写真に示す。



### 3. 今後の共同研究の可能性

研究者との情報交換により、ガボンでは「森林管理」、「廃水处理」、「海岸侵食」の3つが最も重要な環境問題であることがわかった。ガボンは鉱物資源や石油に恵まれているが、このような天然資源に国家収入の多くを依存し、国内に工業が発達していない。自前の製品が少なく、殆どが輸入品とのことである。特に車の殆どは日本製である。また、下水道や水浄化に関しての社会整備が進んでいない。衛生状態が悪いために平均寿命も短いそうである。このような社会状況が上記の環境問題を生じさせている。

今回のワークショップには計109名もの参加をいただき、本研究グループと環境問題への関心の高さが確かめられた。「森林管理」ではGISやリモートセンシングが有効に活用できる。また、「廃水处理」は当研究グループが大いに貢献できるテーマである。「海岸侵食」についても滝川教授グループらが精力的に研究を進めている。いずれも当拠点グループの研究内容に関連が深いので、人的交流を通して、研究の新しい展開が図れることが期待できる。

最後にSamuel MBADINGA氏をはじめとするCENARESTのスタッフの方々にはワークショップとフィールドトリップの成功に向けて綿密にスケジュールを立てていただき、細部にわたって御配慮いただいた。特命全権大使 岡本博美氏には温かくおもてなしいたいただき、円滑にガボンで行動できるようにお取り計らいいただいた。JICA 小木曾盾春氏には通訳いただき、ワークショップでの議論の深化にお手伝いいただいた。お世話になった多くの方々に、ここに記して深甚の謝意を表したい。

## 1. 報告者（開催責任者）

氏名	所属部局・職名
安 部 真 一	理学部・教 授
連絡先 電話（内線 3437 ） FAX（342-3437） e-mail：abeshin@gpo.kumamoto-u.ac.jp	

## 2. 実施した国際研究集会等について

名称 国際シンポジウム「微量環境汚染物質の動態評価とその修復」
実施した日程 平成 17 年 12 月 9 日 （ 1 日間）
<p>成果及び成果の公表について（国際共同研究推進にどのような効果があったか等）</p> <p>微量環境汚染物質に関連した研究分野でグローバルに活躍している国内外の研究者を招聘して「水環境汚染物質の動態評価とその修復」に関する国際シンポを平成 17 年 12 月 9 日に工学部 100 周年記念館にて開催した。人工湿地を活用した環境修復に関してアメリカ農務省沿岸平原研究センター所長の P. Hunt 所長から、農薬等の微量環境汚染部分物質の自然生態系汚染に関して愛媛大学沿岸環境科学研究センター田辺信介教授から、わが国における環境ホルモン研究の現状について岡崎統合バイオサイエンスセンター井口泰泉教授から、ワニを始めとする両性類における環境ホルモン汚染について米国フロリダ大学 Louis J. Guillette Jr.教授から、東南アジアでの砒素を始めとする微量環境汚染物質による水環境汚染についてベトナム国立大学ハノイ校環境工学研究センターPham Hung Viet 教授からそれぞれ講演があった。これら招待講演以外に、拠点研究グループから、工学部の古川教授が嫌気性アンモニア酸化（Anammox）に関する研究成果を、沿岸域環境教育研究センターの逸見教授から、有明海における 2 枚貝の生態に関する研究成果の発表があった。</p> <p>国際シンポへの出席者は、熊本大学工学部、理学部の教官、学生が主であったが、これ以外に県内の大学教官、地方公共団体の関係者が延べ 300 人参加した。</p> <p>この国際シンポを通じて、シンポの出席者に水環境汚染物質の動態評価に関する国際的な研究動向を認知して頂くことができたばかりか、我々拠点形成グループの研究活動に関する理解を深めて頂くことができた。シンポ後の情報交換を通じて、我々拠点形成グループのメンバーと招聘した国内外の著名な研究者と人脈が構築され、これらが今後の拠点形成メンバーの研究・教育のレベルアップに繋がると確信している。</p> <p>国際シンポの概要集は、講演内容のみならず講演に関連する論文を合わせたもので出席者全員に配布した。この概要集は、それ自体微量環境汚染物質の最新の情報を取りまとめた貴重な資料集となり、好評であった。</p>

## ○この拠点Bの活動に関連した学会、シンポジウム等

名 称：第3回 みらい有明・不知火シンポジウム“複合災害とは”複合型災害と温暖化に伴う海域環境の変化について：(有明海・八代海の再生をめざして)

主 催 者：沿岸域環境科学教育研究センター・NPOみらい有明・不知火

時 期：平成17年4月28日

場 所：熊本大学工学部百周年記念館

参加者数：175名

名 称：第6回「干潟フェスタ」「干潟で遊ぼうわくわく探検隊」

主 催 者：干潟フェスタ実行委員会、熊本大学

時 期：平成17年6月4日

場 所：熊本新港親水緑地公園

参加者数：950名

名 称：文部科学省科学技術振興調整費 重要課題解決型研究  
「有明海の再生へ向けた現地試験」見学会

主 催 者：文部科学省科学技術振興調整費研究 熊本大学研究班

時 期：平成17年10月22日

場 所：熊本大学、熊本新港親水緑地公園、玉名横島海岸

参加者数：105名

名 称：“有明・八代海の再生をめざして”熊本・佐賀・長崎 3大学合同  
第3回 みらい有明・不知火シンポジウム

主 催 者：NPO みらい有明・不知火 沿岸域環境科学教育研究センター

時 期：平成17年10月28日

場 所：熊本市熊本大学百周年記念館

参加者数：175名

名 称：第30回日本比較内分泌学会大会およびシンポジウム

主 催 者：日本比較内分泌学会 実行委員長 安部 眞一

時 期：平成17年11月12～13日

場 所：熊本大学 大学教育研究センター

参加者数：147名

名 称：文部科学省科学技術振興調整費重要課題解決型研  
「有明海生物生息環境の俯瞰型再生と実証試験」にかかるシンポジウム、  
有明海の再生に向けて～国・県・大学の試み～  
主 催 者：文部科学省科学技術振興調整費研究 熊本大学研究班  
時 期：平成17年11月18日  
場 所：熊本大学  
参 加 者 数：291名

名 称：第21回日本イオン交換研究発表会  
主 催 者：日本イオン交換学会 実行委員長 城 昭典  
時 期：平成17年11月12～13日  
場 所：熊本大学 工学部百周年記念館  
参 加 者 数：114名