

大容量タンクで観察された自然植物プランクトン群集の 製鋼スラグ添加に対する増殖応答： 物理化学環境とクロロフィルの変化

中村 恵江*・佐藤 智希*²・桑田 清輝*²・斎藤 喜久*³・中田 等*⁴・谷口 旭*

Phytoplankton Response to the Enrichment with Steelmaking Slags Observed in Large-volume Outdoor Tanks:
Changes of Physicochemical Conditions and Chlorophyll Increase

Yasue NAKAMURA, Tomoki SATO, Kiyoteru SHITOGIDEN, Yoshihisa SAITO, Hitoshi NAKATA and Akira TANIGUCHI

Synopsis : Responses of phytoplankton to the enrichment with steelmaking slags, de-Si and de-P slags, were determined by culture experiment in large-volume outdoor tanks. In the first series, chlorophyll-*a* concentration attained its maximum on the 11th or 12th day, whereas on the 4th or 5th day in the second series. After the maximum, cultures became nitrogen limiting in every treatment, indicating that both de-Si and de-P slags cannot supply nitrogen while phosphate and silicate can be supplied. Change in size composition was also observed for phytoplankton enriched with slags: larger fraction ($>10 \mu\text{m}$) became dominant over smaller fraction ($<10 \mu\text{m}$). These results indicate that elements such as P, Si and Fe released from the slags are available for phytoplankton.

Key word : de-Si slag; de-P slag; chlorophyll-*a*; nutrients; dissolved Fe; phosphate; silicate.

1. はじめに

我が国において製鋼過程で発生するスラグは膨大な量となる。製鋼スラグには、りん、珪素、鉄など植物プランクトンの増殖に有効な成分が多く含まれている。それ等の成分を利用して海洋植物プランクトンの光合成を促進し、大気中のCO₂を削減固定することが可能である。筆者らはすでに培養海産藻類を用いて製鋼スラグの増殖促進効果について調べ、種によって異なるものの、スラグ起源の栄養塩が植物プランクトンに対して増殖効果があることを明らかにした¹⁾。また、自然植物プランクトン群集に対してもスラグ起源栄養塩が増殖促進効果を発揮することについては、三陸沖合の親潮域および暖水塊で確認した²⁾。さらに原口³⁾は、マクロ栄養塩が余剰にあるものの鉄が不足している、いわゆる高栄養塩-低クロロフィル (HNLC; high nutrient low chlorophyll) 海域では製鋼スラグの添加が、またすべての栄養塩が欠乏している貧栄養海域には製鋼スラグと都市排水の同時添加によって、ともに植物プランクトンの増殖促進を促ることができると明らかにしている。一方、溶銑予備処理スラグから人工海水中への栄養塩および微量金属元素の溶出特性およびそのコントロールの方法については日野等⁴⁾の研究がある。

本研究では脱珪スラグおよび脱りんスラグという2種類の溶銑予備処理スラグを用いて、沿岸性植物プランクトン群集がスラグ起源の栄養塩に対してどのように応答するかを屋外の大型水槽で観察した。この研究は、従来の実験が人工光条件下でフラスコサイズの培養系で行われたのに対

して、一步自然の海洋条件に近づくものである。

2. 実験方法と材料

2.1 共試スラグの組成

本実験で使用した脱珪スラグおよび脱りんスラグの成分組成および環境基準対象元素であるCd, CN, Pb, Cr, As, Hg, Seの溶出挙動については中田等⁵⁾が報告している。

2.2 スラグ添加実験の概要

実験は屋外に設置された長さ6m×幅1.5m×高さ0.6mの大型FRP製水槽3基を用いて、いずれもバッチ培養方式で行った。各水槽には、圧力式砂濾過装置で100 μm 以上の粒子を濾過除去した後の松島湾の海水を水深0.5mまで入れた。このときの海水量は1槽あたり4.5tonとなった。3基の水槽を、スラグ無添加の対照区 (A槽)、脱珪スラグ添加区 (B槽) と脱りんスラグ添加区 (C槽) の3実験区とした。粒径3-10mmに造粒した後のスラグを500g/袋になるよう網袋に入れ、これを3袋上中下に列べて1連とし、それを横に5連吊下して1列とした。この列を各水槽に4列垂下したので、スラグ添加量は30kg/槽となった (Fig. 1)。雨風による大気中からの混入物を防ぐため水槽全体をビニールシートとネットで覆った。また槽内におけるプランクトンの分布を均一にするため、海水をポンプで循環させた。2000年11月7日から22日まで行った第1回実験では、自然海水と火力発電所の温排水とを水温20-18 $^{\circ}\text{C}$ になるように混合した (約50:50)。期間中試水はFig. 1に示した各水槽の5箇所 (A1-A5, B1-B5, C1-C5) より採取した。第2

平成14年8月1日受付 平成15年1月8日受理 (Received on Aug. 1, 2002; Accepted on Jan. 8, 2003)

* 東北大学大学院農学研究科 (Graduate School of Agricultural Science, Tohoku University, 1-1 Tsutsumidori-Amamiyamachi Aoba-ku Sendai 981-8555)

*² 東北大学大学院生 (Graduate Student, Tohoku University)

*³ 元東北電力 (株) (Formerly Tohoku Electric Power Co., Inc.)

*⁴ (株) 神戸製鋼所技術研究センター (Research & Development Lab., Kobe Steel, Ltd.)

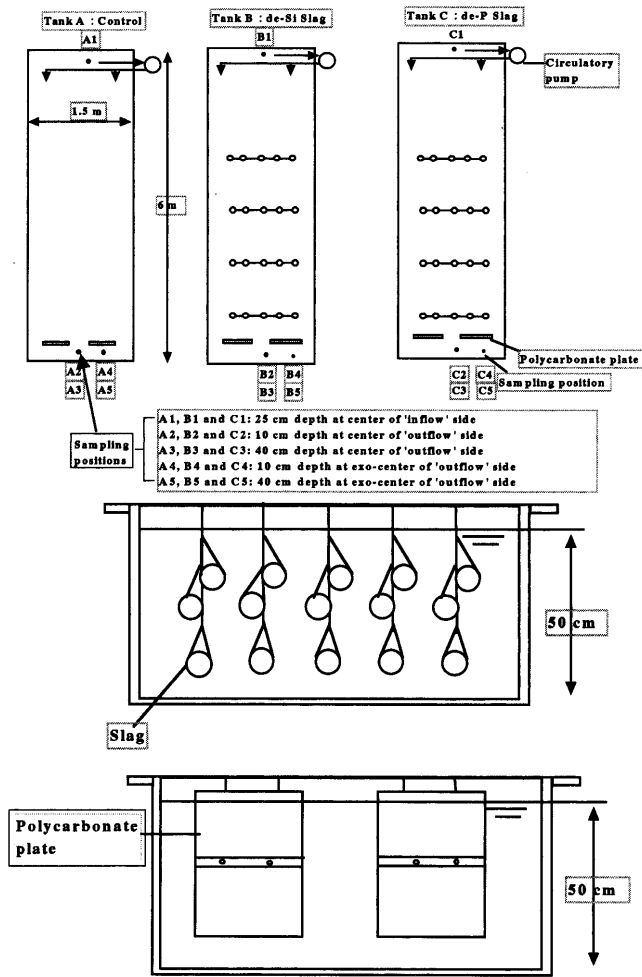


Fig. 1. Schematic diagram of slag enrichment experiment using outdoor tanks.

回実験は11月27日から12月14日まで行った。このときには自然の海水温が低下したため砂濾過装置を経た温排水を用いて初期試水温を約18°Cに設定した。また水温の低下を防ぐために1kWhヒーターによる加温をし、海水の上下混合を確保するため、水平循環に加えてエアレーションによる上下攪拌を行った。試水はFig. 1の①給水口側中心部の水深25 cm, ②排水口側中心部の水深10 cmおよび③排水口側中心部の水深40 cmの3箇所より採取した。これらの採水とともに天候, 気温, 水温, pHを測定した。試水はクロロフィルa, 栄養塩および環境基準水質の測定に供した⁶⁾。

2.3 クロロフィルa量

クロロフィルa (以下Chl-aとする) はあらゆる植物において光合成をつかさどる色素であるため, 種類の差異にかかわらず, 植物の生体量の指標として有効である。とくに本実験のように多様な種からなる植物プランクトン群集の定量的指標としては有効性が高い。Chl-aを10 μm以上の大型画分 (>10 μm) と10 μm以下の小型画分 (<10 μm) に分画して定量し, 分類群組成の指標とした。すなわち, >10 μmでは珪藻類, 渦鞭毛藻類およびユウグレナ藻類が, <10 μmでは小型鞭毛藻類がそれぞれ含まれる。このサイズ分画は, 採取直後の試水200 mlを, 目合10 μmのナイテックス製プランクトンネット地と孔径0.7 μmのガ

ラス繊維フィルター (GF/Fフィルター) とを用いて行った。植物プランクトンを濾過捕集したネット地とフィルターを別々にPPチューブに入れて凍結保存した。定量にあたっては, チューブに90%アセトン水溶液8 mlを注加して再び24時間-20°C以下で保存し, 植物プランクトン色素を抽出した。その中に含まれるChl-aの濃度を蛍光光度計 (Model 10-AU) で測定した⁸⁾。

2.4 栄養塩濃度

採取直後の試水約30 mlを孔径0.45 μmのセルロースアセテート・ディスクフィルターで濾過して懸濁粒子を除去し, その濾液7 mlずつを3本のPPチューブに入れて凍結保存した。定量した栄養塩類は, アンモニア態窒素 (以下NH₄-Nとする), 亜硝酸態窒素 (以下NO₂-Nとする), 硝酸態窒素 (以下NO₃-Nとする), リン酸態りん (以下PO₄-Pとする), 溶存珪素 (以下SiO₄-Siとする) の5種類である。これらのすべてはParsons et al.⁹⁾の方法に準じて, 5チャンネルの海水栄養塩類自動分析機 (The Flow Solution, Model 3590) を用いて測定した。

3. 結果と考察

3.1 スラグ添加に対する植物プランクトン群集の増殖応答

3.1.1 第1回実験

環境条件 (Fig. 2): 実験期間中の天候は晴ないし曇で, とくに前半には雨の日は無かった。タンク内の水深が50 cmであったので, タンク内の植物プランクトンが受けた光条件は, より深い自然海中の光条件に比べて良好であったと判断できる。実験期間中の気温の変化幅は4.5-12°Cで, 平均気温は8.6°Cであった。

対照区 (A水槽) の給水口付近 (採水点A1) における水温の変化は8.6-16.4°C, 平均11.5°C, またpHの変化は7.9-8.7, 平均8.2であった。採水点A2では, 水温の変化は8.9-16.7°Cで平均11.5°C, またpHの変化は7.9-8.8で平均8.2であった。脱珪スラグ添加区 (B水槽) の給水口付近 (採水点B1) における水温の変化は9.2-16.4°C, 平均11.7°C, またpHの変化は8.16-9.2, 平均8.6であった。採水点B2では, 水温変化幅9-16.5°Cで平均11.7°C, またpH変化幅8.15-9.2で平均8.6であった。脱りんスラグ添加区 (C水槽) の給水口付近 (採水点C1) における水温の変化は9.2-16.7°C, 平均11.9°C, またpHの変化は8.44-9.3, 平均8.8であった。採水点C2では, 水温の変化は9.2-16.7°C, 平均12.0°C, またpHの変化は8.47-9.2, 平均8.8であった。

以上の結果は, いずれの実験区においても, 水温環境がほぼ同じであったことを示している (Fig. 2)。また, B水槽およびC水槽のいずれにおいても, スラグ吊下によってpHは上昇したものの, その程度は極めて小さかったこと, およびスラグの種類によってpHに差はなかったことを示している。

屋外タンクは気温の変化を受けやすかったので, 水温の経時変化は不規則で, かつ, 激しかった。すなわち, 実験開始時には17.5°Cであったのが3日目には約11°Cまで急激に低下した。これは, 初期水温が気温よりも高温であったことによる。その後は実験期間中, 気温の変化に応じて水温も8-12°Cの間で変化しながら, 全体に徐々に低下し

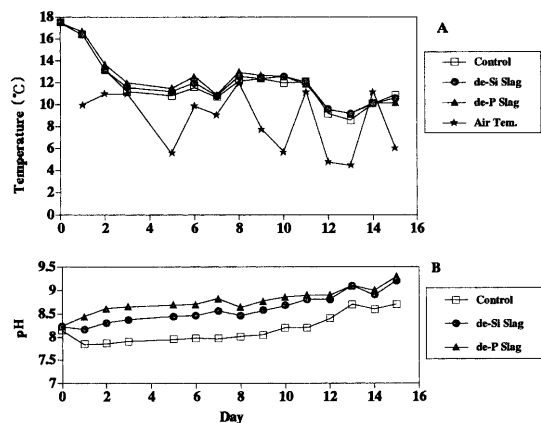


Fig. 2. Changes of (A) air and water temperatures, and (B) pH in three experimental tanks during Experiment 1.

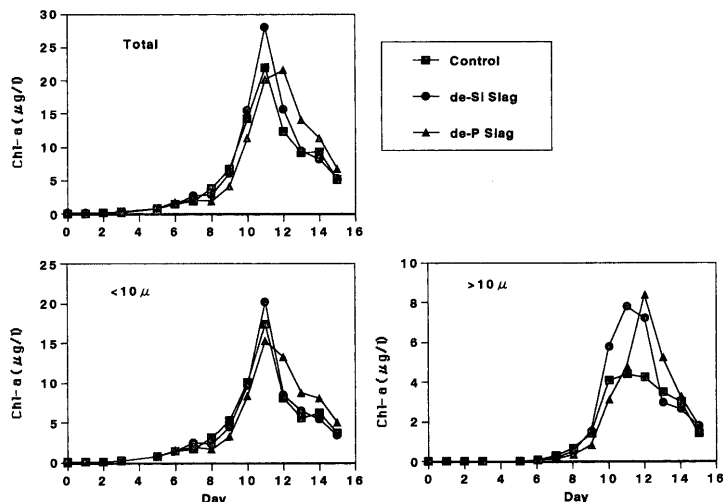


Fig. 3. Temporal changes of (A) total Chl-a, (B) <10 μm and (C) >10 μm fractions of Chl-a during Experiment 1.

た。このことにより植物プランクトンは、本実験の限られた期間中に、最適水温環境（現場海中で適応していた温度）から5°Cも低い環境へと急激に曝されたことになり、したがって、苛酷な環境下にあったものとみなさなければならない。

クロロフィルaの変化 (Fig. 3)：実験開始時におけるトータルのChl-a濃度は、対照区では0.06 μg/l、脱珪スラグ添加区では0.09 μg/l、脱りんスラグ添加区では0.02 μg/lであった。この値はこの海域における自然海水中のChl-a濃度(0.9–2.3 μg/l)⁶⁾に比べて約10分の1程度であった。またHNLC海域として知られているアラスカ湾南部に位置するStation PapaにおけるChl-a濃度(0.2–0.4 μg/l)¹⁰⁾に比べても低い値であった。これは砂濾過装置で100 μm以上の植物プランクトンが除去された結果である。

実験中のChl-a濃度の最大値は、いずれの実験区においても11–12日目にあり、その値は、脱珪スラグ添加区では28.0 μg/l対照区では21.9 μg/l、脱りんスラグ添加区では21.6 μg/lであった。すなわち、対照区と比較して、脱珪スラグ添加区ではやや高く、脱りんスラグ添加区では差が生じなかった。しかしこれらの値を初期値に対する比で示すと、脱りんスラグ添加区>脱珪スラグ添加区>対照区の順となり、脱りんスラグ添加の効果は明瞭になる。

スラグ添加がChl-aの大型画分 (>10 μm画分：主に珪藻類)と小型画分 (<10 μm画分：主に小型鞭毛藻類)に与えた影響は、以下のものであった。まず、実験前には、<10 μm画分の卓越度が極めて高く、実験期間中にもその変化はトータルChl-aの変化を代表していた。<10 μm画分に対するスラグの影響は小さいと判断される。一方、>10 μm画分の場合は、最大値が、対照区では4.4 μg/lに過ぎなかったものが、脱珪スラグ添加区では7.8 μg/lと高く、さらに脱りんスラグ添加区では8.4 μg/lに達した。このことは、珪藻類のような大型植物プランクトンはスラグ添加のメリットを受けやすく、とくに脱りんスラグの添加効果が大きく現れることを示している (Fig. 3)。ただし、いずれも最大値に達した後、Chl-a量は急激に減少した。この急激な減少は、室内で植物プランクトンだけを培養したときにみられる現象とは明らかに異なっていた。すなわ

ち、室内における単種培養では、最大値に達した後もしばらくは高い値が維持される、いわゆる「定常期」が現れるが、本実験では、最大値直後から減少しはじめた。その原因としては、次のようなことがあげられる。

- 1) 浮遊性珪藻優占の系から付着性珪藻優占の系へと急速に遷移した。
- 2) 吊下バッグから漏れ出したスラグ粒子とともに植物プランクトンが共沈した。
- 3) 混在していた植食性動物プランクトンによって摂食された。
- 4) 捕食や沈降によらない植物プランクトンの死亡。

この水域の海水中には、浮遊性（プランクトン性）珪藻だけでなく、付着性珪藻の種（たね）が多く、本実験と同様の操作によってタンク内に大量の付着性珪藻を増殖させることができることは、本実験地で長年確認されており、実際に養殖アワビ種育苗成に応用されている。本実験中にも、水槽内に設置した付着板に付着性珪藻の増殖が観察され、また実験終了時には、タンクの壁面および底面には大量の付着性珪藻が観察された。しかし、培養開始後11–12日目以降に急激な遷移が起こっていたか否かを確認することはできなかった。このような実験では、混在する動物プランクトンの摂食が極めて大きくなることは良く知られている。本実験では、海水はあらかじめ砂濾過されたため、動物プランクトンの混入は少なかったはずであるが、カイアシ類の卵やノープリウス幼生、微小な原生動物プランクトンは混入した可能性がある。したがって、上記4つの可能性のいずれもが可能であったうえに、水温の急激な変化もあったために、後半期にChl-aが急激に減少したものと考えられる。いずれの可能性がどれほど効いていたかは解析できないが、そのことによって、スラグ添加がとくに大型画分の増殖を顕著に促進するという結論は左右されない。

それぞれの実験区における各サイズ画分の増殖曲線を、初期濃度に対する倍率で表すと Fig. 4 のようになる。この値のうち最大値だけを取り出して表現すると、対照区では11日目に、<10 μm画分が300倍以上に、また、>10 μm画分がほぼ900倍に、その結果トータルChl-aは約400倍に増

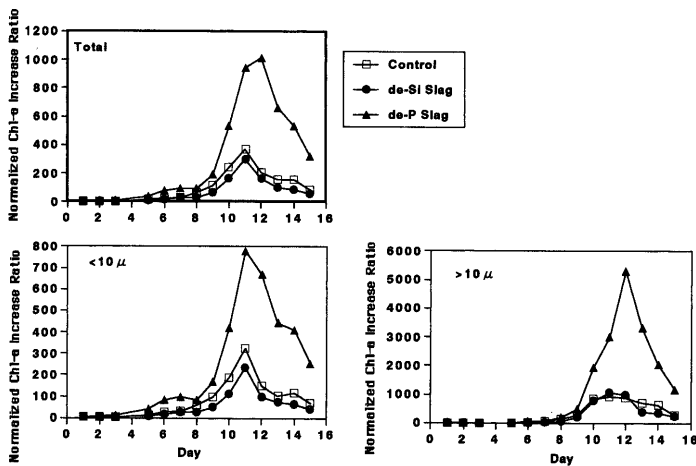


Fig. 4. Temporal changes of normalized chlorophyll *a* in ratio to the initial value during Experiment 1 (A) total Chl-*a*, (B) <10 μm and (C) >10 μm.

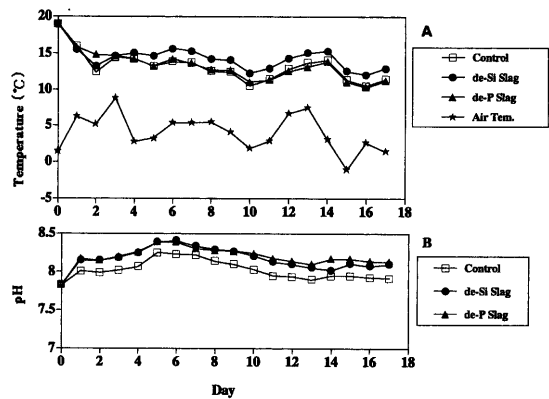


Fig. 5. Changes of (A) air and water temperatures, and (B) pH in three experimental tanks during Experiment 2.

加した。これに対して、脱りんスラグ添加区では、<10 μm画分は約800倍の増加であったが、>10 μm画分は実に5000倍以上に増加し、珪藻類に対する脱りんスラグ添加効果が極めて顕著であることが証明された。また、脱珪スラグ添加区では、<10 μm画分が約250倍に増加し、>10 μm画分は、約1000倍となった。すなわち、脱珪スラグ添加は珪藻類の増殖には効果があったものの、その程度は極めて顕著というわけではなく、小型鞭毛藻類に対しても効果が少なかったと考えられる。

以上のChl-*a*量の変化過程で観察された栄養塩類の経時変化はFig. 7に示した通りであった。

3.1.2 第2回実験

環境条件 (Fig. 5)：すでに述べたように、第2回実験では温排水を用いたうえにヒーターを投入して温度維持を試みた。そのため、第1回実験と同様に最初の2日間のうちに水温は19°Cからおよそ12°Cまで急激に低下したものの、その後の水温は約14–10°Cの間で比較的安定していた。その変化傾向はすべての実験区で同様であったが、脱珪スラグ添加区では一貫して1.5°Cほど高かった。この期間の気温は最高8.8°Cから最低−1.0°Cの範囲にあり、水温は気温に比較すると常にかなり高く、ヒーター使用の効果は明らかであった。またスラグ添加区のpHの変化は、第1回の実験よりも変動が小さかった。これはエアレーションが無機炭酸塩の平衡に作用したためと推測される。

クロロフィルの変化 (Fig. 6)：第2回実験では、ヒーターによって水温を維持したためと思われるが、Chl-*a*の最大値が早期に現れた。しかし、いずれの実験区においても、第1回実験と比較するとChl-*a*の初期濃度が高いにもかかわらず、その増加率は第1回実験におけるよりも小さかった。ただし、最大値が現れた後に急速に減少したことは、第1回実験と同様であった (Fig. 6)。

実験開始時のトータルChl-*a*濃度は0.16 μg/lであった。対照区ではトータルChl-*a*濃度の最大値は5日目に表れた18.7 μg/lであり、これが第2回実験中にみられた最高値であった。脱珪スラグ添加区での最大値は4日目に表れた17.5 μg/l、脱りんスラグ添加区での最大値は4日目の15.4 μg/lであり、ともに対照区よりもやや低い値であった。<10 μmと>10 μmの両画分の変化にもトータルChl-*a*

と同様な傾向が観察された (Fig. 6)。

3.2 栄養塩並びに微量元素元素の経時変化

第1回実験：実験期間を通して、いずれの実験区においてもNH₄-NおよびNO₂-Nの濃度は常に検出限界程度の値であった (Fig. 7)。PO₄-Pの濃度は、対照区では2日目に最大値1.33 μg-at/lとなり、11日目にはほとんどゼロになった。脱珪スラグ添加区では、5日目に最大値1.73 μg-at/l、13日目にほとんどゼロになった。脱りんスラグ添加区では、10日目に6.96 μg-at/lという最大値になり、15日目にもまだ3.87 μg-at/lという高い値であった。この結果は、スラグからPO₄-Pが溶出すること、とくに脱りんスラグからの溶出が多いことを示している。SiO₄-Siは、対照区での最大値は2日目の52.7 μg-at/l、脱珪スラグ添加区では9日目に82.2 μg-at/l、脱りんスラグ添加区では9日目に110.4 μg-at/lであった。脱りんスラグからは、PだけでなくSiもまたより多く溶出することが判った。NO₃-Nは、対照区では2日目の17.7 μg-at/lから減少して、11日目にほぼゼロとなった。脱珪スラグ添加区では0日目に18.1 μg-at/lであったのが、やはり11日目にほぼゼロとなった。脱りんスラグ添加区でも0日目に最大値17.8 μg-at/lであったのが、12日目にはほぼゼロとなった。これらのことは、製鋼スラグはN補給源にはならないことを確認するものである。また、これらの結果から、実験期間中に外部からの栄養塩類の混入 (コンタミネーション) は起こらなかったものと判断できる。

第2回実験：第2回実験においても、NO₂-Nはほとんど常に検出限界前後の濃度であった (Fig. 8)。NH₄-Nは培養前期には検出限界前後の濃度であったが、培養中期の7日目から11日目にどの実験区でも1日置きにパルス的に増加した。その濃度は脱珪スラグ添加区>脱りんスラグ添加区>対照区の順であった。その時期は、Chl-*a*が減少した時期にあたり、植物プランクトンの分解によることも推測されるが、パルスの検出が理解できない。NH₄-Nの分析精度は不安定な場合が多いので、測定時の取った検量線を吟味した結果、測定誤差でなく何らかの生物的作用があったものと思われる。PO₄-Pの濃度は、対照区では0日目に1.24 μg-at/lという最大値に示し、5日目にはゼロになった。脱珪スラグ添加区では、2日目に1.48 μg-at/lの最大値がみられた後、変動はあるものの、最後までゼロにな

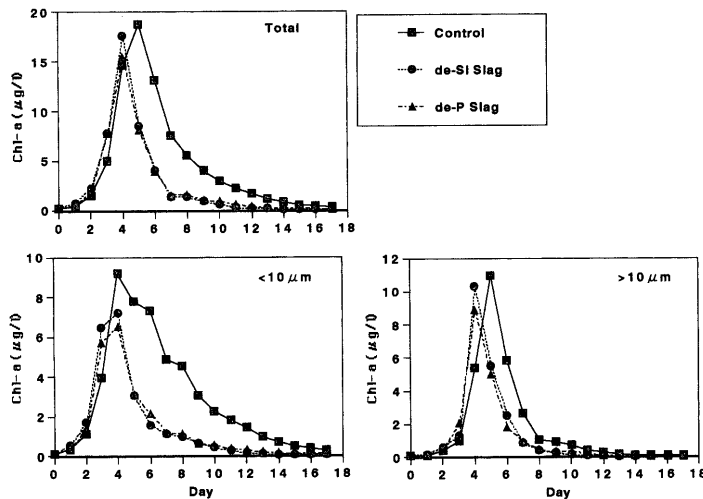


Fig. 6. Temporal changes of (A) total Chl-a, (B) <10 µm and (C) >10 µm fractions of Chl-a during Experiment 2.

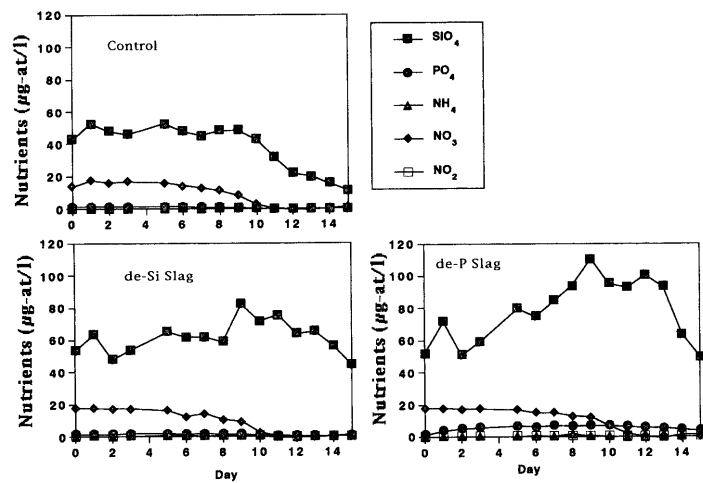


Fig. 7. Temporal variations in concentration of ammonium, nitrate, nitrite, phosphate and dissolved silica in the tanks (A) without, (B) with de-Si slag and (C) with de-P slag during Experiment 1.

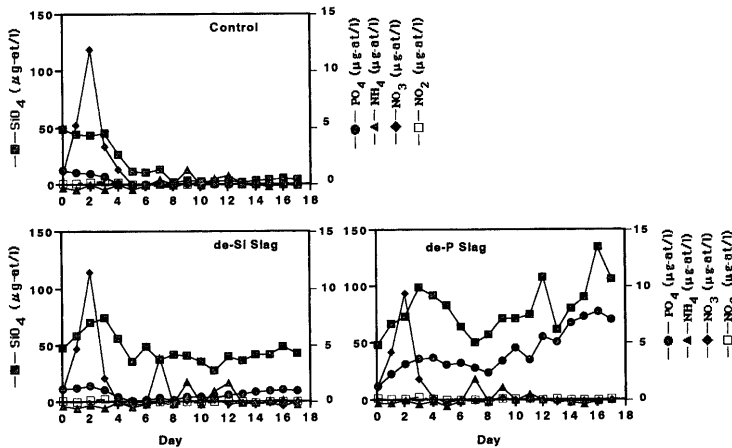


Fig. 8. Temporal variation in concentration of ammonium, nitrate, nitrite, phosphate and dissolved silica in the tanks (A) without slag, (B) with de-Si slag and (C) with de-P slag during Experiment 2.

ることはなかった。脱りんスラグ添加区では、 $PO_4\text{-P}$ は時間とともに増加し、初期濃度 $1.24\ \mu\text{g-at/l}$ から16日目には $7.77\ \mu\text{g-at/l}$ という最大値に達した。 $SiO_4\text{-Si}$ は、対照区での最大値は0日目に $48.7\ \mu\text{g-at/l}$ で、時間経過とともに減少する傾向がみられた。脱珪スラグ添加区では、3日目に最大値 $74.8\ \mu\text{g-at/l}$ に達したが、その後も培養期間を通して $30\text{--}50\ \mu\text{g-at/l}$ 程度の高い濃度が維持された。脱りんスラグ添加区では、16日目に $134.5\ \mu\text{g-at/l}$ という最大値を示し、総体的に時間とともに増加する傾向がみられた。これらの結果から、第1回実験で2週間にわたって水中に吊下浸漬して使用したスラグを、水で洗浄しただけで次の実験に引き続き利用しても、なお栄養塩類は十分に溶出可能である

ことが明らかになった。

また $NO_3\text{-N}$ は脱珪スラグ添加区では、2日目に最大値 $11.7\ \mu\text{g-at/l}$ となったのが、4日目にはほぼゼロとなった。脱りんスラグ添加区でも、2日目には最大値 $17.8\ \mu\text{g-at/l}$ となったが、5日目にはほぼゼロとなった。以上の結果は、第1回実験の結果と同様に、松島湾における自然海水中では、スラグを添加した場合には、植物プランクトンの生産がNによって律速されやすいことを示している。

それぞれのタンク中での栄養塩環境とChl-a濃度との変化過程をより詳細に読み取ることが必要になると思われるので、植物プランクトンの増減過程で、それぞれの栄養塩成分がどのように変化したかを、各栄養塩種ごとに分けて

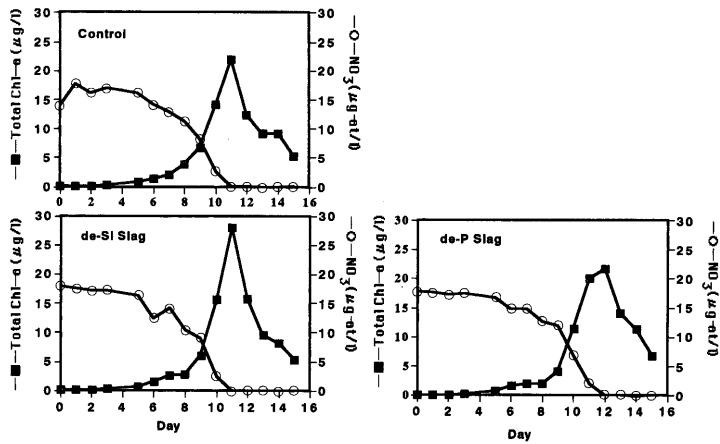


Fig. 9. Temporal variation in concentration of total Chl-*a* and nitrate in the tanks (A) without slag, (B) with de-Si slag and (C) with de-P slag during Experiment 1.

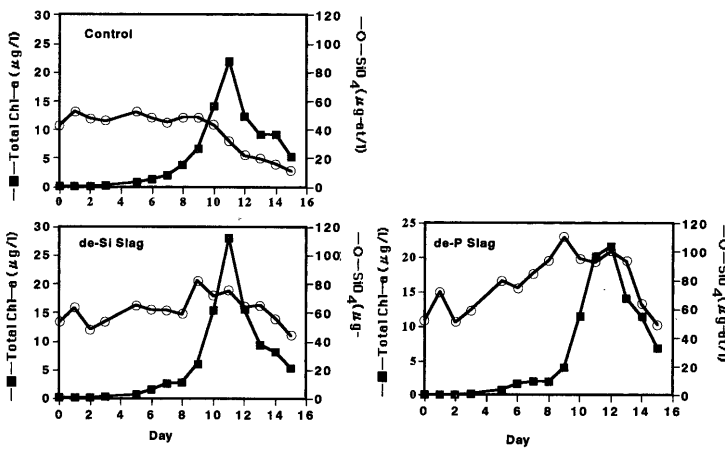


Fig. 10. Temporal variation in concentration of total Chl-*a* and dissolved silica in the tanks (A) without slag, (B) with de-Si slag and (C) with de-P slag during Experiment 1.

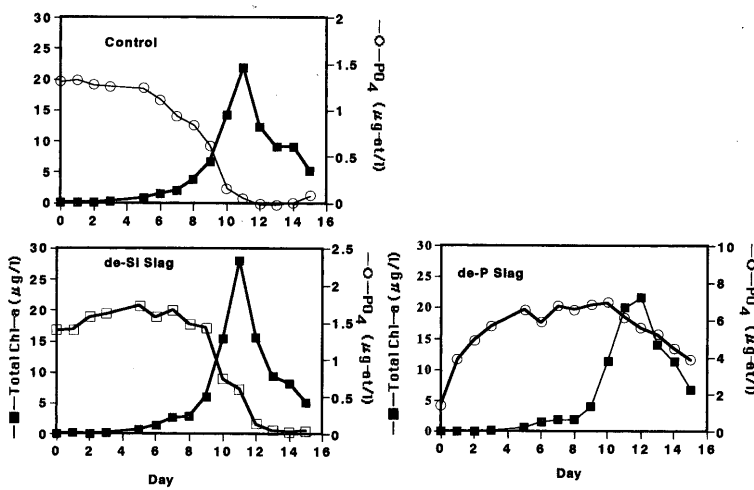


Fig. 11. Temporal variation in concentration of total Chl-*a* and phosphate in the tanks (A) without slag, (B) with de-Si slag and (C) with de-P slag during Experiment 1.

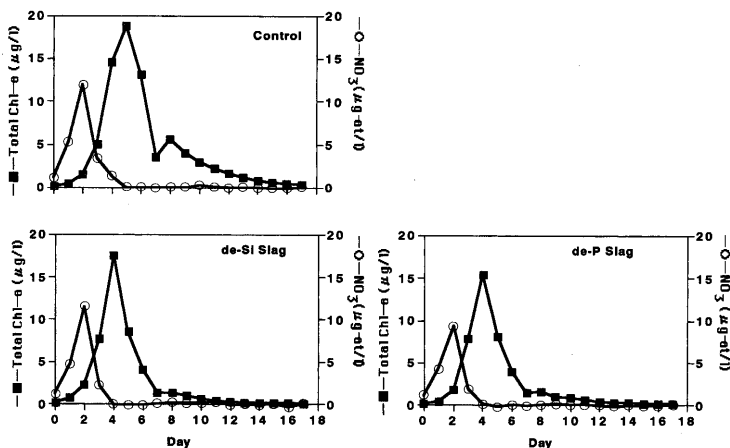


Fig. 12. Temporal variation in concentration of total Chl-*a* and nitrate in the tanks (A) without slag, (B) with de-Si slag and (C) with de-P slag during Experiment 2.

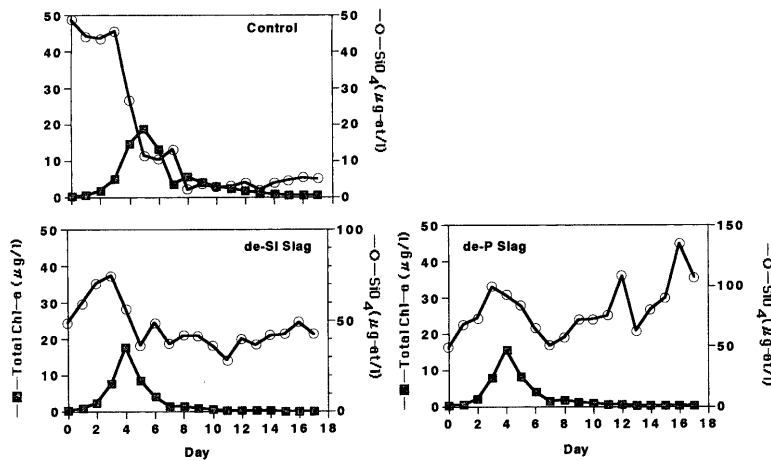


Fig. 13. Temporal variation in concentration of total Chl-a, dissolved silica in the tanks (A) without slag, (B) with de-Si slag and (C) with de-P slag during Experiment 2.

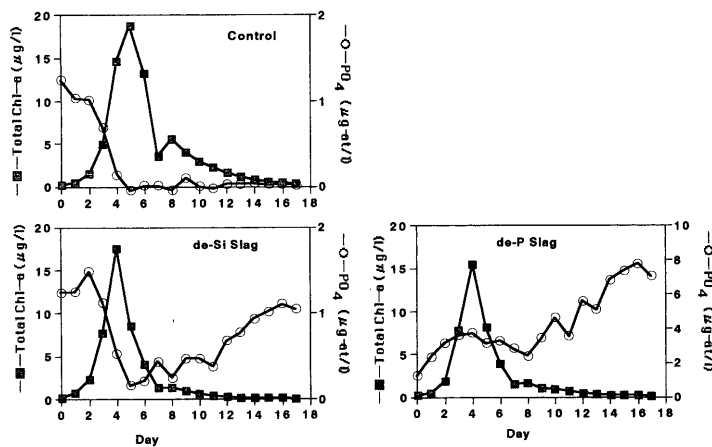


Fig. 14. Temporal variation in concentration of total Chl-a, phosphate in the tanks (A) without slag, (B) with de-Si slag and (C) with de-P slag during Experiment 2.

Table 1. Temporal change in concentration of Fe²⁺ and Fe³⁺ without (control) and with slag (de-Si and de-P Slags) during Experiment 1.

Incubation time (day)	Fe ³⁺ (mg/l)			Fe ²⁺ (mg/l)		
	Control	de-Si Slag	de-P Slag	Control	de-Si Slag	de-P Slag
0	<0.001	<0.001	<0.001	0.001	0.001	0.001
1	0.001	0.003	0.014	<0.001	<0.001	0.002
7	<0.001	<0.001	<0.001	<0.001	<0.001	<0.001
11	<0.001	<0.001	<0.001	<0.001	<0.001	<0.001
15	<0.001	<0.001	0.047	<0.001	<0.001	0.031
20	<0.001	<0.001	0.001	<0.001	<0.001	<0.001

Table 2. Temporal change in concentration of Fe²⁺ and Fe³⁺ without (control) and with slag (de-Si and de-P Slags) during Experiment 2.

Incubation time (day)	Fe ³⁺ (mg/l)			Fe ²⁺ (mg/l)		
	Control	de-Si Slag	de-P Slag	Control	de-Si Slag	de-P Slag
0	<0.001	<0.001	<0.001	<0.001	<0.001	<0.001
1	0.001	<0.001	0.001	<0.001	<0.001	<0.001
7	<0.001	<0.001	<0.001	<0.001	<0.001	<0.001
14	<0.001	0.001	0.001	<0.001	<0.001	<0.001

解析した。無機態窒素とChl-a濃度の変化過程から、この実験期間中には無機態窒素のリサイクルはほとんどなかったものと思われる (Fig. 9, 12)。対照区と脱珪スラグ添加区ではChl-aのピーク時とNO₃-N, SiO₄-Siが枯渇または減少する時期が一致した。またSiO₄-SiはChl-aがピークに達した後も減少し続けた (Fig. 10, 13)。Chl-aの減少は主に珪藻類の減少によると考えられるので、なぜこのようになるか理解することは困難である。第2回実験では、Chl-aがほぼゼロになった頃からSiO₄-Siは増加し、とくに脱りんスラグ添加区の増加が大きかった。PO₄-Pは第1回実験においてはChl-aが最大になった後も減少したのに対し、第2回実験においては脱珪スラグ添加区、脱りんスラグ添加区でもChl-aピーク後もPO₄-Pが増加した (Fig. 11, 14)。第2回実験のPO₄-Pの増加はエアレーションによる攪拌とヒーターによる水温維持によるとも推測されるが、はっきりしたことは分からない。このChl-aピーク後のPO₄-Pの増加およびpHが実験期間中ほぼ一定であったことから、

スラグからの栄養塩の溶出が緩慢に持続していたことが理解される。

3.3 溶存鉄の濃度変化 (Table 1, 2)

本実験では、微量元素のうちとくに鉄 (Fe) に注目して、その濃度を測定した。環境基準の観点から重視されるその他の微量元素と異なって、Feは植物プランクトンの栄養塩として重要視されるからである。

本研究で採用した溶存Fe濃度測定法による検出限界は0.001 mg/l (1 ppb)であったが、多くの試水のFe濃度はそれ以下であった。第1回実験では、15日目に脱りんスラグ添加区で、Fe³⁺が0.047 mg/l、またFe²⁺が0.031 mg/lという高い値が観測されたが、それらの前後の測定値をみると、この2測定値がエラーによってもたらされた可能性が大きいといわなければならない。しかしこれを除いても、スラグ添加区におけるFeの濃度が、0.001 mg/l (1 ppb) から0.014 mg/l (14 ppb)まで上昇したことは、スラグからFeが溶出したことを示している。また、第2回実験においてクロロフィル分析用GF/Fフィルターが初期には植物色素以外の

原因で褐色を呈した。それを走査型電子顕微鏡・X線分析装置で分析した結果、Feが高い割合で検出された。人工海水を用いたビーカー実験では、スラグからFeが10-300 ppbの濃度まで溶出することが報告されている⁴⁾。

本実験中のFeの濃度はともに1-10 ppbのオーダーであり、スラグ、とくに脱りんスラグ添加区で高い傾向がみられた。Feの場合、55.85 ppbが1 μM に相当するから、これらの値は μM オーダーに近い値である。一方、植物プランクトンが必要とする栄養塩の濃度は、マクロ栄養塩N, P, Siの場合、前節に述べたように μM ($\mu\text{g-at/l}$)のオーダーであり、微量金属の場合にはpMからnMのオーダーといわれている¹¹⁾。

Feは微量元素の中でも大量に必要とされる元素であるが、それでも植物プランクトンの生産に対して律速的に働く制限濃度は、外洋性の植物プランクトンに対しては1 nM程度であるといわれている。この知見を基にしてマクロ栄養塩N, Si, Pに対するFe要求比を示すとN:Si:P:Fe=16:15:1:0.001 (レッドフィールド比)となる¹²⁾。したがって、本実験のために採用可能であった分析方法の感度では、本実験中にFeの制限が起こったか否かを明らかにすることはできない。しかし、自然海水区やスラグ吊下区で、時として μM のオーダーに近い値が観察されたことは、他の沿岸水と同様に、松島湾の自然海水中のFe濃度はすでに十分に高いこと、そこへスラグを吊下してもFe添加効果はとくに顕著にはならないことを示している。ただし、この結果をもって、スラグにはFe補給源としての価値がないと判断するのは、誤りである。

3.4 スラグ研究の意義

Feは地球を構成する元素の中でも、最も多量に存在する元素、すなわち最もありふれた元素である。したがって、Feがあらゆる生物にとって必須の元素であり、ほかの微量元素元素の必要量に比べて、かなり大量に必要であることは良く知られている。海水中に生活する植物プランクトンにとってもFeは必須元素の1つであり、N, P, Siとならんで重要な栄養塩であることは、いうまでもない。しかし、 Fe^{2+} は植物プランクトンにとって摂取可能であるが、植物プランクトンは Fe^{3+} あるいは粒状のFeを利用することはできない。河川水が流入する沿岸水域では、陸域から運ばれたコロイド状Feとともに溶存の Fe^{2+} が μM オーダーという高い濃度で存在するので、沿岸性植物プランクトンの生産が鉄不足によって律速されることは事実上ないといえる。しかし、外洋域では、陸域からのFeの補給が届きにくいように、酸化環境にあり Fe^{2+} が速やかに水酸化物になって沈殿除去されるために、Feの溶存濃度は一般的に低く、nMオーダーまたはそれ以下である。そのため、外洋域の植物プランクトンの増殖がFe欠乏によって律速されていることは、今日では広く知られた事実である。とりわけ、深層水の湧昇や冬季の鉛直混合によって下層からN, P, Siが大量に補給される海域では、Feだけが不足している。そのような海域にFeを添加すれば、植物プランクトンは大增殖し、表層水中の、ひいては大気中の CO_2 を光合成で有機物に固定することができるはずだという注目すべき主張がある¹³⁾。この主張は一般に「鉄仮説」と呼ばれており、地球温暖化を防止するための、有力かつ現実的な方

法とみなされている。そのための基礎研究が、今日まで各国で競争的に行われてきた。

2001年からは、外洋域におけるFeと植物プランクトン生産との関連に関する研究は、IGBP (国際地球圏生物圏研究計画)の中のコア研究プロジェクトの1つであるSOLAS (海洋表層下層大気相互関係研究計画)として国際協調の下で行われることになった。しかし、そこで扱われるFeは純粋のFeであり、製鋼スラグを研究材料にする実海域実験は当然実施される見通しが無い。しかしこのことは、スラグの有効利用を目指す本研究には現実性がないということの意味するのではなく、むしろ本研究の独創性を保証するものであるといえる。

4. 結言

以上に述べてきたような本実験の結果は、大容量の自然水塊においても、スラグ添加が植物プランクトンの増殖促進に正の効果を発揮することを示した。さらに、スラグだけの添加はN律速を招きやすいので、沿岸海水であってもN源を同時に補給することで効果を高めることが有利であることが示唆された。換言すれば、Nが過剰に負荷された沿岸環境においては、スラグを添加することによってNを消費し尽くす(植物プランクトン・バイオマスに転換し尽くす)ことができるといえる。これによって、過剰栄養化環境を修復すると同時に、植物プランクトンから出発する食物連鎖の中にある資源生物の生産を増強することも可能になり、将来の波及効果は大変大きいといえる。とくにこれらの添加が、魚類生産まで食物連鎖が延長しやすい珪藻類プランクトンの増殖増進に有効であることは、資源生物生産増強の将来性をより大きなものにする。

この研究を行うにあたり、施設の利用と試料の採取にご協力下さった東北電力仙台火力発電所並びに東北発電工業(株)アワビ養殖施設の職員の方に厚く御礼申し上げます。

文 献

- 1) Y.Nakamura, A.Taniguchi, S.Okada and M.Tokuda: *ISIJ Int.*, **38** (1998), 390.
- 2) Y.Nakamura, Y.Suzuki and A.Taniguchi: In *Ecosystem Dynamics of the Kuroshio-Oyashio Transition Region*, Proc. Int. Mar. Sci. Symp. CIC ORI, Univ. Tokyo, Tokyo, (1999), 94.
- 3) 原口浩一: 東北大学大学院農学研究科博士論文 (2001).
- 4) 日野光元: 廃棄物の高度再資源化処理技術等の調査・検討事業報告書, クリーン・ジャパン・センター, 東京, (2001), 17.
- 5) 中田 等: 廃棄物の高度再資源化処理技術等の調査・検討事業報告書, クリーン・ジャパン・センター, 東京, (2001), 73.
- 6) 斎藤喜久: 廃棄物の高度再資源化処理技術等の調査・検討事業報告書, クリーン・ジャパン・センター, 東京, (2001), 38.
- 7) 一宮陸雄: 東北大学大学院農学研究科修士学位論文, (2001).
- 8) C.S.Yentsch and D.W.Menzel: *Deep-Sea Res.*, **10** (1963), 221.
- 9) T.R.Parsons, Y.Maita and C.Lalli: *A Manual of Chemical and Biological Methods for Seawater Analysis*, Pergamon Press, Oxford, (1984), 173.
- 10) P.J.Harrison: *J. Oceanogr.*, **38** (2002), 259.
- 11) A.Taniguchi: *Aquabiology*, **11** (1989), 2.
- 12) H.J.W. de Baar: *Prog. Oceanogr.*, **33** (1994), 347.
- 13) J.H.Martine and S.E.Fitzwater: *Nature*, **331** (1988), 341.