

課題名 1F-1102 製鋼スラグと浚渫土により造成した干潟・藻場生態系内の物質フローと生態系の評価

課題代表者名 西嶋 渉（広島大学 環境安全センター）

研究実施期間 平成23～25年度

累計予算額 180,437千円（うち25年度55,519千円）  
予算額は、間接経費を含む。

本研究のキーワード アマモ、固化、浚渫土、製鋼スラグ、生態系、生物生息基盤、反応、物質フロー

## 研究体制

- (1) 干潟・藻場生態系における物質フローの解明（（独）産業技術総合研究所）
- (2) 干潟・藻場生態系における基礎生産と構造の解明（広島大学、宇部工業高等専門学校、米子工業高等専門学校）

## 研究概要

### 1. はじめに（研究背景等）

21世紀環境立国戦略では、豊穡の里海の創生をはじめとする自然の恵みを活かした活力溢れる地域づくりが重点的に着手すべき戦略の一つとして挙げられている。しかし現実には、里海の象徴ともいべきアマモ場・干潟は大きく減少している。一方で、平成10年の広島県での海底土砂の採取禁止に始まり、瀬戸内海沿岸11県でほぼ全て禁止となっており、砂利採取に伴って劣化した海洋環境の修復がむしろ課題となっている。そのような状況の中で、大量かつ安定的に発生し、品質がそろい、砂と同等の粒子径を持ち、かつ硫化物含有量の少ない製鋼スラグが海砂代替材料として注目されている。製鋼スラグは、発生量と質の面から干潟・藻場造成のための海砂代替材として大きなポテンシャルを有している一方で、主成分である石灰（CaO）の一部は水と反応するとアルカリ成分である水酸化物イオンを生成するためpHが上昇、アルカリ溶出に伴う付随的な反応、化学物質の溶出、生物生息に及ぼす影響など科学的に未解明な点もある。他方で粒子径が小さすぎてそれ自体では干潟・藻場の造成材とはなりえないが、本来海洋の物質循環において重要な役割を担うデトリタスを大量に含むシルト・クレイが主成分の航路維持浚渫土は、物質循環の役割を担うことなく、土砂処分場や港湾埋立てにより処分されている。

海砂に浚渫土を混合した土壌における干潟造成に関してはある程度研究が進んでいるが、製鋼スラグと浚渫土の組み合わせによる干潟・藻場造成は、我々の限られた基礎研究を除きほとんど研究されていない。本研究では製鋼スラグと浚渫土の組み合わせにおける複雑な反応や物質フローの解明を行った。製鋼スラグと浚渫土の組み合わせによる干潟・藻場造成に関する研究において、サブテーマ1では製鋼スラグと浚渫土の組み合わせにおける複雑な反応や物質フローの解明を行い、サブテーマ2で製鋼スラグと浚渫土の組み合わせにおける複雑な反応や物質フローが結果として、そこで形成される生態系へ及ぼす影響の解析を行った。

### 2. 研究開発目的

干潟・藻場（アマモ場）生態系の再生・創出のために必要とされる造成土壌を製鋼スラグと浚渫土の混合土壌で代替した場合の物質フローを含む生態系の特徴及び優位性を科学的な根拠のもとに明らかにし、生態系の再生・創出が環境劣化を引き起こす自然砂の採取に依存することなく、環境再生と資源再生が Win-Win の関係で成り立つことを示すことを目的としていた。加えて、ここで得られた成果に基づき、様々な立場で干潟・藻場の再生・創出に関与するステークホルダー間の相互理解に貢献することを目的としていた。

具体的には製鋼スラグと浚渫土の化学的相互作用によって駆動される栄養塩、酸化還元物質、アルカリ成分および二酸化炭素などの物質フローを明らかにし、藻場・干潟基盤材としての特性・有効性を評価することを目的としていた。

サブテーマ1では、潮汐を模した干潟試験を行うことで、上記の混合土壌から成る人工干潟が潜砂性生物の生息基盤として適したものとなるかどうかを検討した上で、形成される低次生態系内でのリン循環の違いについてケイ砂を主材料とする人工干潟のものと比較することを目的とした。

またサブテーマ2では、製鋼スラグと浚渫土の混合土壌の干潟・藻場生態系の造成土壌としての特性を基礎生産機能に及ぼす影響と生態系全体の構造に及ぼす影響の両面から評価することを目的とした。さらに生態系の評価結果を物質フロー、土壌環境の視点から解析、またそれらの結果を基に、干潟・藻場の造成に利用され

る製鋼スラグから溶出する物質の時空間的な動態と生態系に及ぼす影響を評価するための数値シミュレーションモデルを構築することを目的とした。

### 3. 研究開発の方法

#### (1) 干潟・藻場生態系における物質フローの解明

化学分析には、アルミナあるいはめう乳鉢で粉碎・均一化した試料を用いた。生産工程や工場の異なる6種の製鋼スラグを粉末にし、蛍光X線分析装置(Rigaku, EDXL300)を用いて主要元素の測定をした。天然砂として、市販されているケイ砂(1号および3号)を用いた。栄養塩濃度はオートアナライザーを用いた比色法により分析し、金属成分についてはより多くの元素の挙動を明らかにするために、分析法として誘導結合プラズマ質量分析法(ICP-MS)またはICP発光分光分析法(ICP-OES)による多元素同時分析法を用いた。製鋼スラグ、浚渫土の各固相は微量元素も含んでいるため、元素の汚染なく可溶化する前処理が必要であったが、硝酸やフッ化水素酸などを含む混酸を用いたマイクロ波酸分解法により実現した。また、ICP-MSによる微量元素の定量では分解試薬および試料由来の主要元素による測定妨害が観測された。そこで、FIによる試料少量化や、反応ガスを用いた反応セル法により干渉を抑制し、微量元素の定量を可能にした。海水についても同様な試料由来の主要元素による測定妨害が観測されたため、上記の手法に加えて、キレート固相抽出法による重金属類の分離前処理を追加して定量を可能にした。

好気的環境下における浚渫土の分解実験において連続抽出法によるリンの形態分析を行った。ここで用いた連続抽出による分別法では、易可動態リン、鉄結合型リン、自生アパタイトリン、破碎屑鉱物、有機態リンに分別、このうち最初の二つの画分に含まれるリンを環境中で容易に溶け出しやすいリン(可動態リン)と定義した。

製鋼スラグと浚渫土の混合土壌を用いて実験的に造成する干潟生態系を評価する上での基礎的な情報を得るために、周辺海域の自然干潟及び人工干潟において土壌環境と底生生物の関係について調査するとともに人工的に造成された干潟生態系の特性も調査した。

カルシウム溶出の加速試験として、スラグを充填させたカラムの通水試験によるカルシウム溶出量を求める試験を行った。本試験は脱リンスラグおよび脱炭スラグについて行ったが、脱リンスラグについては透過流速の影響も確認するため、瀬戸内海低層の流速を参考に数種類の流速で試験を行った。ここでは1 Lのプラスチック容器に700 mlのスラグを充填したカラムに上向流で濾過海水を供給し、流出液のpHを測定した。粒径は0.85~2.0 mmにふるい分けしたものをを用いた。流速は3系列作成し、数値は以下の表に示す通りである。容器には下部に穴を空けそこから上向流で濾過海水を供給した。容器は液面が一定になるよう排出口を空けたコンテナ内に5つ設置し、充填層表面部と液面が一致するように調整した。そのときの空隙体積は脱炭スラグで13.7%であった。容器上部の液だめにpHロガーを設置しpHを随時測定した。容器上部より流出する海水と、充填試料の一部を約1ヶ月にわたり、定期的に採取し分析を行った。固化についてはベーンせん断応力を測定することで評価した。また固化原因と抑制機構を検討するため、固化したスラグを樹脂で脱気しながら固定、スラグごと切断して研磨した後、切断表面上のスラグ間の物質を電子線マイクロアナライザ(JXA-8200, JEOL)で分析した。また、浚渫土の影響を調べるため、代表的な流速では浚渫土を添加しての試験も行った。

この他、土壌および水環境にどのくらいのタイムスケールでどのような影響を与えるのか把握するための疑似堆積物(コア)を用いた掛け流し試験や通水試験、各種バッチの溶出試験や干潟・藻場域の海洋の物理化学環境シミュレーションを行うなどを行ったが、本概要では説明を割愛する。

#### (2) 干潟・藻場生態系における基礎生産と構造の解明

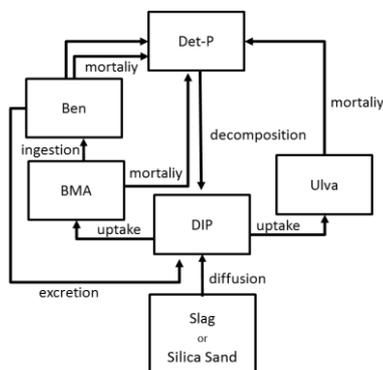
製鋼スラグと浚渫土の混合土壌を用いて実験的に造成する干潟生態系を評価する上での基礎的な情報を得るために、周辺海域の自然干潟及び人工干潟において土壌環境と底生生物の関係について調査するとともに人工的に造成された干潟生態系の特性を調査した。ここでは潮間帯の中央付近を想定し、浚渫土混合比8%の脱リンスラグー浚渫土混合土壌を敷設した、図(2)-1に示すような3/100勾配の干潟マイクロコズムを前述の産総研阿賀臨海実験場に設置し、土壌間隙水中の金属成分濃度の変化を調べた。対照区として浚渫土混合比8%の珪砂混合土壌を敷設したマイクロコズムを用いた。試験区としては製鋼スラグと浚渫土の混合材料を、干潟マイクロコズム内に投入し、阿賀港から自然海水を導入して形成される生態系を観察した。ケイ砂を用いた試験区についても同様に観察した。実験は、2012年7月9日に開始し、2013年6月28日まで行った。これらの干潟に形成される低次生態系を再現する数値生態系モデルを作成し、それぞれの実験区におけるリン循環の違いについて解析するとともに、形成される生物群集構造の違いについて考察した。



図(2)-1 干潟マイクロコズムの外観写真

材料表面には、底生微細珪藻だけでなく、スラグ・浚渫土区では、アオサが全体を濃密に覆ったため、一次生産者として、底生微細珪藻(BMA)とアオサ(Ulva)をコンパートメントとして取り上げた。また、動物性ベントスは、堆積物食者(DEB)とろ過食者(FIB)とし、リンの形態をリン酸(DIP)、溶存有機態リン(DOP)、デトライタス態リン(Det-P)の三態として、生物体も含めた系内でのリン循環を計算した。数値モデルのフレームワークを図(2)-2に示す。BMAやUlvaによるリンの取り込みと増殖、DEBやFIBによる餌の捕食・摂食、DOPやDet-Pの分解などについては文献値を用いた。DIPの溶出フラックスは実験により得られた値(上述)を用いた。

大型水槽を用いた藻場マイクロコズム試験におけるアマモの培養試験で、脱リンスラグとコントロールの天然砂(ケイ砂)を比較した。ここでは内寸90×110cm、深さ67 cmの角形水槽(図(2)-3)に上述の混合土壌をそれぞれ厚さ18 cmで敷き詰め、天然海水を掛け流し、アマモ移植最適時期にあたる12月初旬に呉市安浦町三津口湾の天然藻場から採取したアマモを地下茎5 cm、葉長40 cmに切り揃え、各水槽に80本ずつ移植した。



図(2)-2 数値モデルのフレームワーク



図(2)-3 大型水槽を用いた藻場マイクロコズム実験

人工的に造成された干潟生態系の特性評価については、太田川放水路に2010年3月に造成された人工干潟と類似土壌組成を持つ同放水路内の自然干潟3か所などにおいて実施した。土壌調査用のサンプルはφ65 mm PVCパイプにより採取し、底生生物用の土壌サンプルは、25×25×25cmのコドラートを用いて同一地点で3か所採取するなどした。

アマモの生育には生息基盤である土壌の安定が重要であると同時に十分に根が土壌に活着し流出しないことが特に人工的にアマモを植種する場合は重要である。そこでスラグに対するアマモの活着を評価した。試験用に用いたアマモ及び天然底泥は広島県湾内で採取し、山口県水産試験場のろ過海水を使用して、室内大型水槽で培養した。スラグへの浚渫土の混合割合を0%(スラグのみ)から8, 20, 30, 40, 50, 100%(浚渫土のみ)とし、施設園芸、牧草などで根の活着力を評価や圧縮試験に用いられるデジタルフォースメーターを用いて引き抜き抵抗試験により根の活着性を評価した。またアマモの高温耐性と土壌の関係を明らかにし、スラグや浚渫土の使用がアマモの高温耐性に及ぼす影響を明らかにする試験も行った。

潮下帯での製鋼スラグの溶出シミュレーションモデルの構築も行った。モデルの作成には土壌の物理環境と製鋼スラグからの溶出物濃度を考慮しなければならない。そのため固気液3相を考慮することが可能かつスラグからの溶出を表現できる粒子法を格子法にハイブリッドした新規の格子粒子ハイブリッド型計算法を構築し、干潟・藻場の物理化学環境シミュレーションを行った。

その他、炭酸化処理した脱炭スラグを用いた干潟マイクロコズム試験や、固気液3相を考慮することが可能な格子法と粒子法のハイブリッド型計算法を新たに構築し、干潟・藻場域の海洋の物理化学環境シミュレーションを行うなどを行ったが、本概要では割愛する。

#### 4. 結果及び考察

##### (1) 干潟・藻場生態系における物質フローの解明

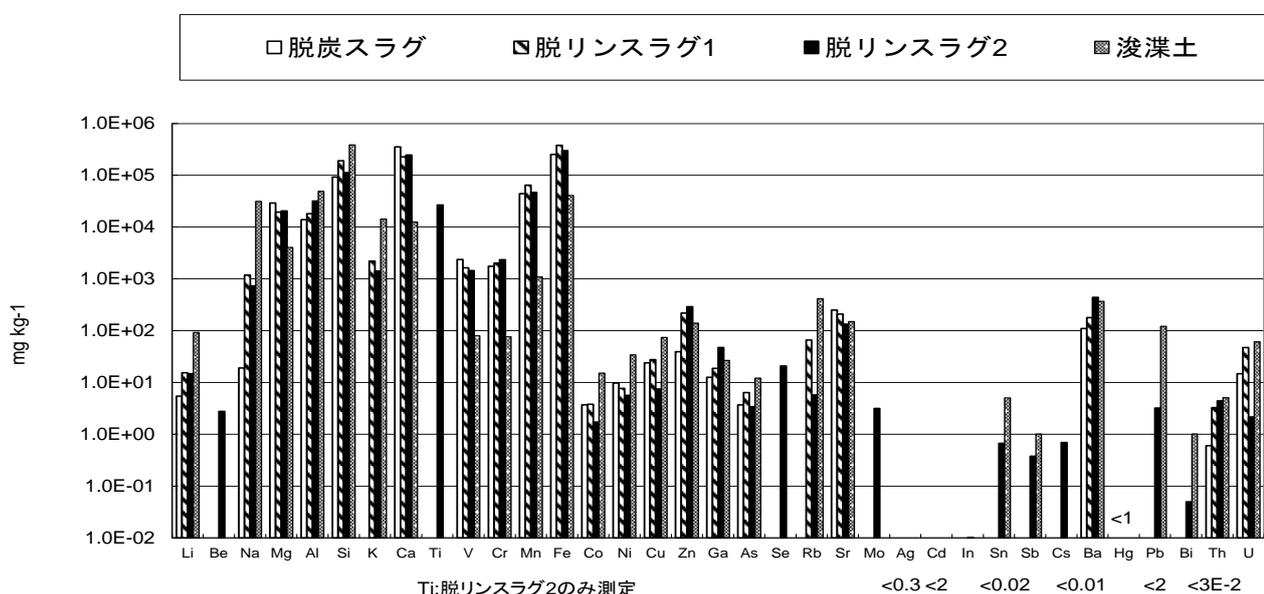
図(1)-1に示すように、29元素分析(Li, Na, Mg, Al, Si, K, Ca, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Ga, As, Rb, Sr, Ag, Cd, Sn, Sb, Ba, Hg, Pb, B, Th, U)によりスラグ成分を正確に把握した上で、生態系に影響を及ぼす可

能性がある製鋼スラグに特有な遊離カルシウムの溶出によるpH上昇やそれに付随する固化等反応、微量化学物質の溶出などの様々な反応と物質フローを混合土壌中で精緻に追跡した。

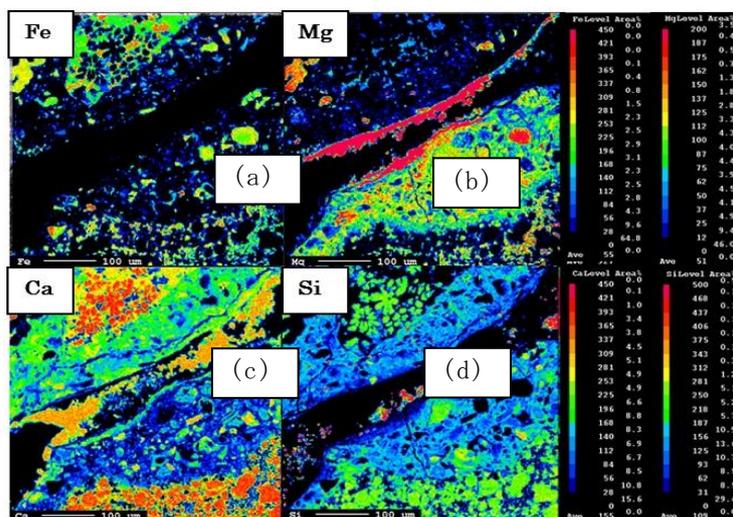
ここでは主要な反応に関与する遊離カルシウムの定量法が過小評価であることを示し、新たな評価法を開発した。その上でカルシウム溶出によるpHの上昇について数値化、主要な製鋼スラグである脱炭スラグと脱リンスラグで溶出挙動が大きく異なることを明らかにした。pH上昇が大きい脱炭スラグにおいて水酸化マグネシウムや炭酸カルシウムの形成(図(1)-2)による顕著な固化が起こったが、脱リンスラグでは酸化鉄の形成(図(1)-3)によって固化が起こっており、両スラグの固化機構は全く異なることを明らかにした。図(1)-4, 5の結果が示すように、固化の進行は浚渫土の混合によって抑制されることと、その抑制メカニズムを明らかにできた。

栄養塩として重要なリンに関して、両スラグで含有量はほとんど変わらないにもかかわらず、容易に海水中に溶出する可動態リン量に大きな違いがあることを明らかにした(図(1)-5)。

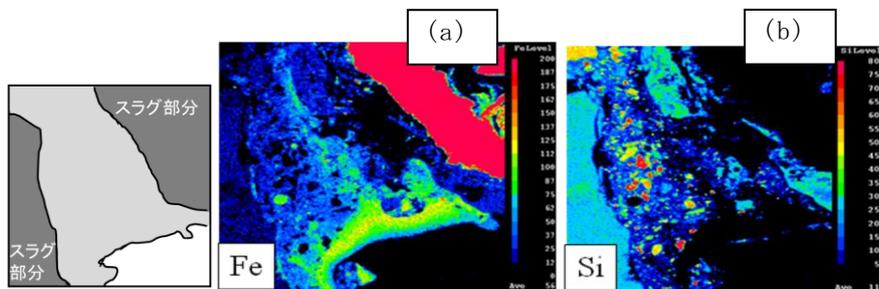
また化学パラメータ解析とメタゲノム解析を組み合わせることにより、混合土壌において栄養塩に関わる物質フローとそれを駆動する細菌叢が大きく変化し、より効果的な栄養塩の供給が起こる可能性を発見した(図(1)-6)。これらを元にケイ砂との比較から造成土壌を製鋼スラグと浚渫土の混合土壌で代替した場合の、製鋼スラグと浚渫土の化学的相互作用によって駆動されるリン循環、栄養塩、酸化還元物質などの物質フローを示し、混合土壌が潜砂性生物の生息基盤として適していることを明らかにした(図(1)-7)。



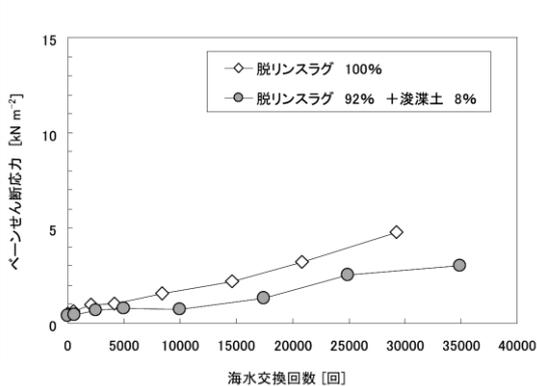
図(1)-1 脱炭スラグ, 脱リンスラグおよび浚渫土の元素含有量



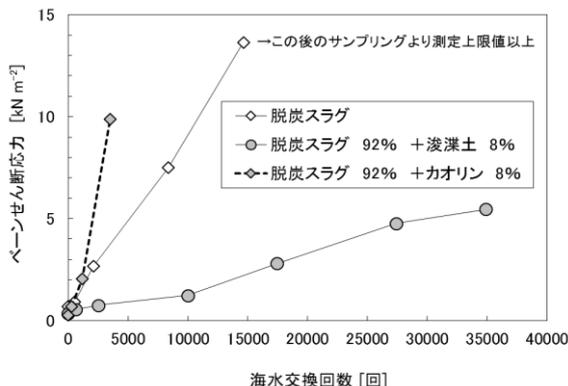
図(1)-2 脱炭スラグ粒子間閉塞物質内のFe(a), Mg(b), Ca(c), Si(d)の分布(Feのマッピング写真で左上および右下の比較的均一な部分がスラグ)



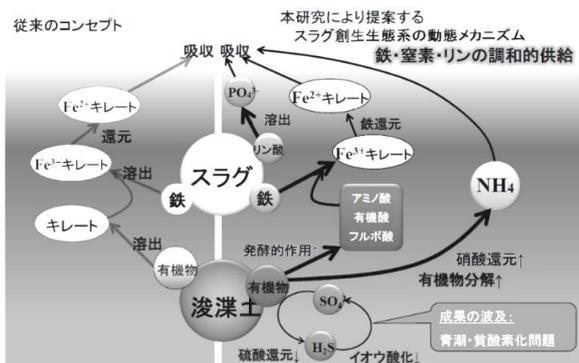
図(1)-3 浚渫土を混合した脱リンスラグ粒子間閉塞物質内のFe(a)と Si(b)の分布



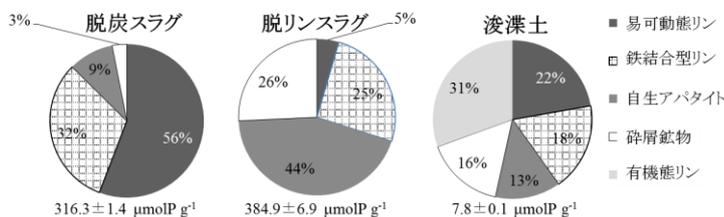
図(1)-4 脱リンスラグで浚渫土添加がせん断応力上昇に及ぼす影響 (3 mm s<sup>-1</sup>)



図(1)-5 脱炭スラグの海水交換によるせん断応力の変化 (3 mm s<sup>-1</sup>)



図(1)-6 メタゲノム解析の結果に基づいて考案した物質フロー



図(1)-7 スラグ・浚渫土に含まれるリンの形態別割合

(2) 干潟・藻場生態系における基礎生産と構造の解明

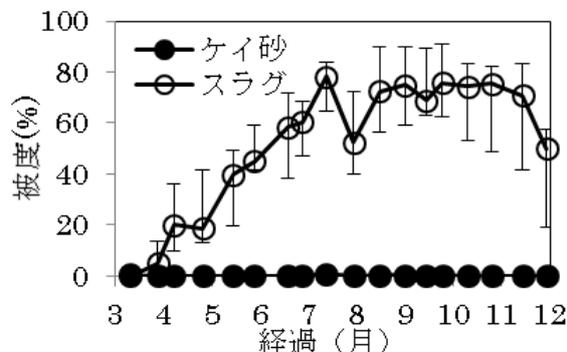
製鋼スラグと浚渫土の混合土壌(スラグ区)を用いて造成した干潟・藻場生態系構造を物質フロー解析を含めて対照区として設定したケイ砂と浚渫土の混合土壌(ケイ砂区)との比較において評価・解析した。潮間帯の中央付近を想定した3/100傾斜の干潟・波のある干潟をマイクロゾム内に再現した。一次生産という視点では、脱リンスラグ区では、ケイ砂区に比べ、造成初期の微細藻の増殖が顕著であったが、その後はケイ砂区と個体数、構成種に顕著な違いはないことが明らかとなる一方で、脱リンスラグ区では大型付着藻類であるアオサ類が顕著に繁茂し(図(2)-4, 5)、土壌硬度の高いスラグ区での土壌の安定性が大型藻類の増殖を促したと推定された。生物については、天然干潟の生物構成(図(2)-6)との比較もおこない、スラグ区の特徴を明らかにすると共に、図(2)-7に示すようにリンのフロー解析も行なった。

一方、栄養株の活着と種子の発芽試験においても、スラグ混合土壌の天然土代替としての有効性が示され、特に浚渫土30~40%の含有率のスラグ混合土壌が効果的であることという結果が得られた(図(2)-8, 9)。さらに潮下帯を再現したマイクロゾムにおけるアマモの生育試験からは、脱リンスラグでは間隙水のpH上昇は起こったものの、スラグ単独および浚渫土を混合した系でも固化は起こらずアマモが生育・成長し、例として図(2)-10に示すアマモ葉の1日あたりの平均成長速度からも分かるように、浚渫土の混合によって成長が促進されることを明らかにできた。

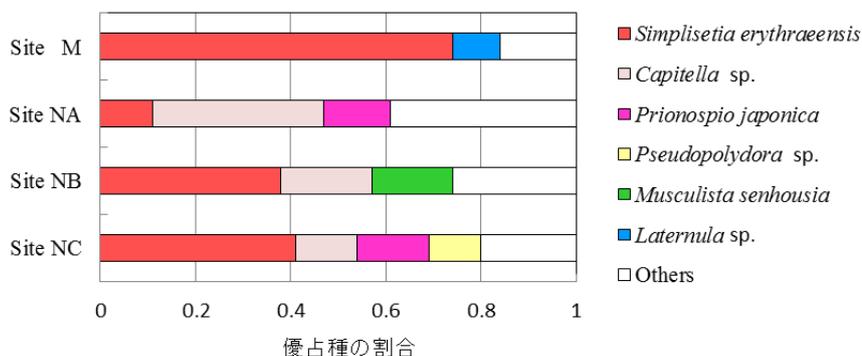
これらの結果を基に、干潟・藻場の造成に利用される製鋼スラグから溶出する物質の時空間的な動態と生態系に及ぼす影響を評価するための数値シミュレーションモデルを構築、生物も含めた物質循環を数値化し(図(2)-11)、干潟・藻場域に投入された製鋼スラグから溶出する各種物質濃度を予想できるツールを開発できた。以上の結果によって、脱リンスラグを砂代替に用いて浚渫土と混合した土壌は、土壌硬度が砂を基盤とした混合土壌より高く土壌の安定性が高まるため干潟造成に利用した場合流動条件によっては大型藻類の増殖が起こり特徴的な生態系が形成される一方で、藻場造成ではアマモの生育基盤として十分砂代替として利用できることを明らかにできた。



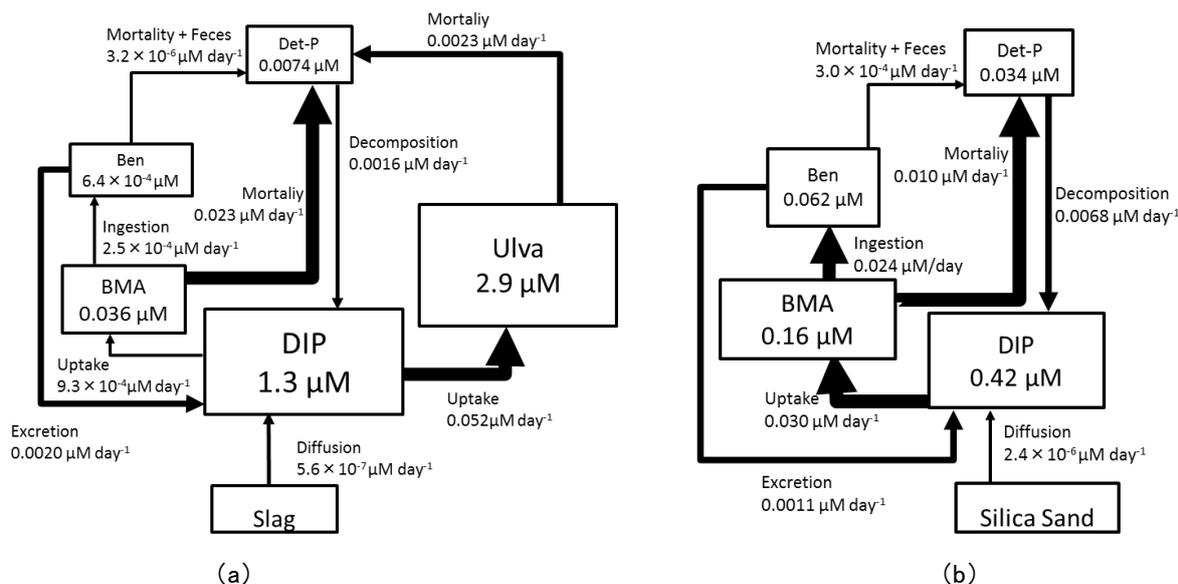
図(2)-4 アオサ類被度の様子(左:ケイ砂区, 右:スラグ区)



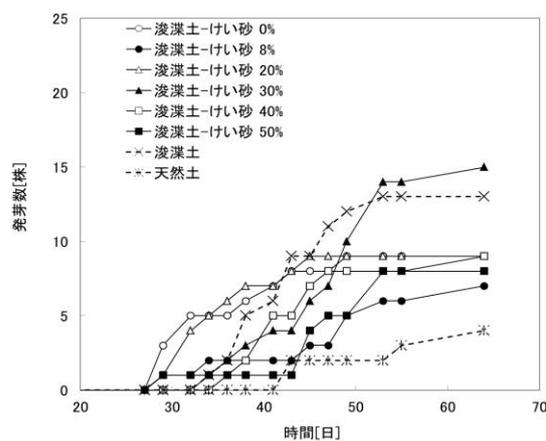
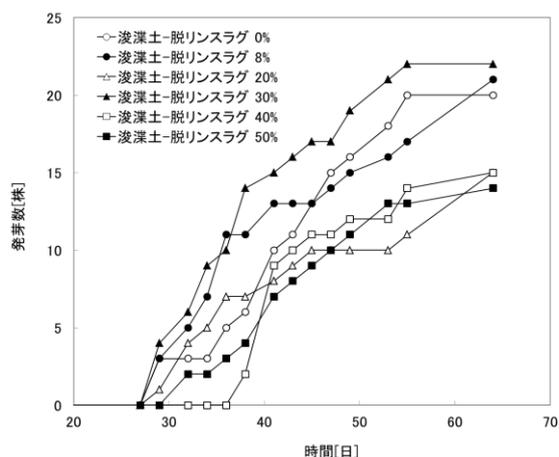
図(2)-5 各区アオサ類被度の経時変化



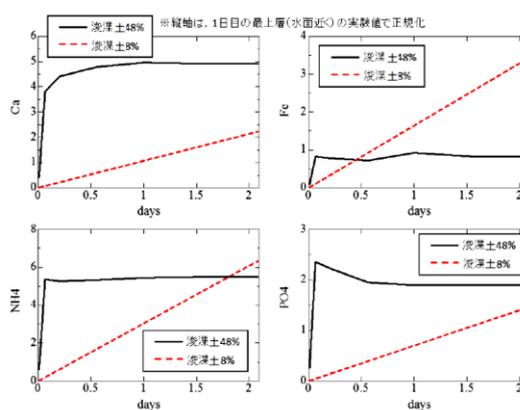
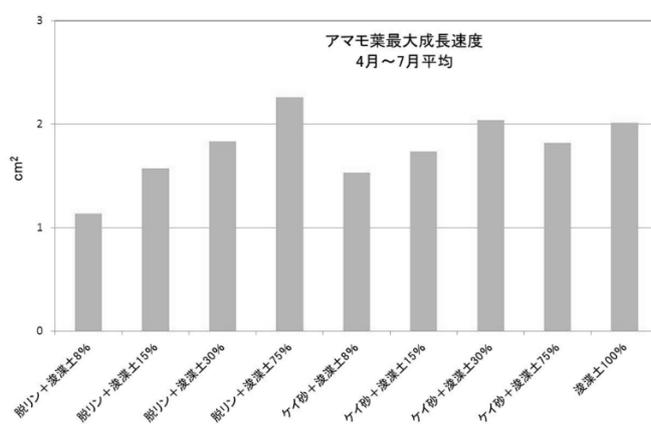
図(2)-6 人工干潟(Site M)及び自然干潟土壌(Site NA~NC)における優占種



図(2)-7 スラグ区(a)およびケイ砂区(b)の試験期間中のストックとフローの計算結果(平均値)



図(2)- 8 スラグ区における発芽数の経日変化 図(2)- 9 ケイ砂区における発芽数の経日変化



図(2)-10 アマモ葉の1日あたりの平均成長速度 図(2)-11 各溶出物濃度の時系列変化の比較

(縦軸は初日の値で正規化)

## 5. 本研究により得られた主な成果

### (1) 科学的意義

スラグ自体の精密な化学分析、浸漬試験や潮汐を模した干満試験などを行い、ケイ砂との比較から造成土壌を製鋼スラグと浚渫土の混合土壌で代替した場合の、製鋼スラグと浚渫土の化学的相互作用によって駆動されるリン循環、栄養塩、酸化還元物質、アルカリ成分および二酸化炭素などの物質フローを明らかにすると共に、それらに起因する固化反応や浚渫土の添加によるその抑制機構などを明らかにできた。これらを元にスラグからのリン溶出が付着藻類やアマモの生育に寄与する可能性が明らかになり、脱リンスラグは栄養塩であるリン酸を長期にわたって少しずつ土壌間隙水へと供給する肥料的な効果が期待できることがわかり、製鋼スラグに浚渫土を混合することで、pHの上昇、固化反応の進行抑制、さらには浚渫土からの有機物や栄養塩の供給を制御できる可能性を示せ、藻場・干潟基盤材としての特性・有効性を評価でき、混合土壌から成る人工干潟が潜砂性生物の生息基盤として適したものとなることを明らかにした。

また、製鋼スラグと浚渫土の混合土壌の干潟・藻場生態系の造成土壌としての特性を、基礎生産機能に及ぼす影響と生態系全体の構造に及ぼす影響の両面から評価し、生態系の評価結果を物質フロー、土壌環境の視点から解析した。ここでは潮間帯の中央付近を想定した3/100傾斜の干満・波のある干潟をマイクロコズム内に再現した評価を行い、一次生産という視点では、脱リンスラグ区では、ケイ砂区に比べ、造成初期の微細藻の増殖が顕著であり、その後はケイ砂区と個体数、構成種に顕著な違いはないことが明らかとなる一方で、脱リンスラグ区では大型付着藻類であるアオサ類が顕著に繁茂することなどを明らかにした。潮下帯を再現したマイクロコズムにおけるアマモの生育試験からは、間隙水のpH上昇は起こったものの、脱リンスラグではスラグ単独でも固化は起こらずアマモが生育・成長し、さらに栄養塩を豊富に含む浚渫土の適度な混合によって好適な造成材料となることなどを示した。これらを元に、脱リンスラグを砂代替に用いて浚渫土と混合した土壌における生態系構造とその構造をもたらした要因が明らかとなり、特に土壌が安定しやすいこと

がスラグを用いた場合に特徴的な生態系が形成される要因になることが示され、藻場造成ではアマモの生育基盤として十分砂代替となり得ることが示され、特に浚渫土との適度な混合がアマモにとって成長、種子の発芽、高温耐性の面から好適な環境を準備することが明らかにできた。ここではさらに干潟・藻場の造成に利用される製鋼スラグから溶出する物質の時空間的な動態と生態系に及ぼす影響を評価するための数値シミュレーションモデルを構築、干潟・藻場域に投入された製鋼スラグから溶出する各種物質濃度を予想できるツールを開発できた。

## (2) 環境政策への貢献

### <行政が既に活用した成果>

特になし

### <行政が活用することが見込まれる成果>

21世紀環境立国戦略では、豊穡の里海の創生をはじめとする自然の恵みを活かした活力溢れる地域づくりが重点的に着手すべき戦略の一つとして挙げられており、環境省の基本施策として干潟・藻場等の重要な生態系の保全と再生が掲げられている。しかし、平成10年の広島県での海底土砂の採取禁止に始まり、海底土砂の採取は瀬戸内海沿岸11県でほぼ全て禁止という状態であり、自然砂の採取に依存しない干潟・藻場等造成材料の開発が求められてきた。重要な選択肢として鉄鋼スラグ等リサイクル材の活用はこれまでも検討されてきたが科学的に不明な点も多く代替材と成り得ていなかった。本課題の成果により生態系の再生・創出が環境劣化を引き起こす自然砂の採取に依存することなく、環境再生と資源再生が Win-Win の関係で成り立つことを示した。

本成果は様々な立場で干潟・藻場の再生・創出に関与するステークホルダー間の相互理解に貢献できることが見込まれる。具体的には国土交通省および水産庁は瀬戸内海において、失われた干潟を取り戻すため、人工干潟の造成を構想しており、航路浚渫で出る浚渫土とスラグの二者の混合利用の検討時に利用できる科学的根拠となりうる。特にアマモ場造成において、海砂などの天然資源を投入せずに、産業副生成物を活用して自然再生すべき案件の根拠となり得、安全な活用方法を科学的データに基づいて実施することができ、造成対象となる自治体、漁業者、周辺住民に対しての資料としても活用可能である。加えて鉄鋼スラグの中でも有望な製鋼スラグを干潟・藻場の造成に用いる際に必要とされる科学的な知見を蓄積できたとともに浚渫土の混合利用の有用性を合わせて証明できたことは行政に対して有用な選択肢を提示できたと考えられる。特にスラグの化学成分を徹底的に評価し、スラグ使用における安心・安全に寄与し、高pHや固化といったスラグ特有の反応機構を明らかにし、制御する知見を示したうえで脱リンスラグと浚渫土の組み合わせで良好なアマモの生育・成長を確認するなど実用的な知見も得られ、沿岸再生において環境再生と資源再生が Win-Win の関係で進みうることを示したことは今後の環境行政に一つの方向性を提示できたと考えられる。

## 6. 研究成果の主な発表状況(別添.作成要領参照)

### (1) 主な誌上発表

#### <査読付き論文>

- 1) Satoshi Asaoka, Tetsuji Okuda, Satoshi Nakai, Wataru Nishijima : ISIJ International, 53, 10, 1888-1893 (2013)  
"Determination method for maximum calcium releasing potential from steel slags, marine sands alternatives in seawater"
- 2) 陸田秀実, 鎌田正也, 奥田哲士, 土井康明: 土木学会論文集, B2, 69, 2, I\_1276-I\_1280 (2013)  
「鉄鋼スラグからの溶出物によるCO<sub>2</sub>海洋固定化能に関する研究」
- 3) Wataru Nishijima, Yoichi Nakano, Satoshi Nakai, Tetsuji Okuda, Tsuyoshi Imai, Mitsumasa Okada: Marine Pollution Bulletin, 82, 1-2, 101-108 (2014)  
"Macrobenthic succession and characteristics of a man-made intertidal sandflat constructed in the diversion channel of the Ohta River Estuary"
- 4) Tetsuji Okuda, Satoshi Asaoka, Hitomi Yano, Kouji Yoshitsugu, Satoshi Nakai, Wataru Nishijima, Kenji Sugimoto, Daijirou Matsunami, Yorihide Asaoka, Mitsumasa Okada: Chemosphere, 111, 164-168 (2014)  
"Chemical Behavior of Sand Alternatives in the Marine Environment"

### (2) 主な口頭発表(学会等)

- 1) 西嶋渉, 中井智司, 奥田哲士: 平成23年度水産環境保全委員会シンポジウム: リサイクル材による海域

- 環境修復の最前線, 広島県東広島市, 広島大学 (2011)  
「製鋼スラグと半水石膏を組み合わせた浚渫土固化材の開発と海砂利採取跡地の環境修復への応用」
- 2) Satoshi Nakai, Esteban R. Mino, Tomohiro Kose, Tetsuji Okuda, Wataru Nishijima and Mitsumasa Okada :  
Dioxins 2011, Brussels - Belgium (2011)  
“PHOTODEGRADATION OF PERFLUOROCTANOIC ACID USING Fe(II/III) IN COMBINATION WITH  
CHELATING AGENTS“
  - 3) 矢野ひとみ, 中井智司, 奥田哲士, 西嶋渉, 杉本憲司, 浅岡賢英, 岡田光正: 第22回廃棄物資源循環学  
会, 東京都, 東洋大学(2011)  
「海砂代替材として検討される産業副産物の海水中における挙動」
  - 4) 塚崎あゆみ, 鶴島修夫, 鈴村昌弘: 海洋理工学会平成24年度春季大会 (2012)  
「製鋼スラグと浚渫土により造成した干潟・藻場生態系内の物質フローの解明 —無機栄養塩の挙動および  
pH変動に関する基礎的実験—」
  - 5) Tetsuji Okuda, Satoshi Asaoka, Koji Yoshitsugu, Satoshi Nakai, Wataru Nishijima: The 10th Expert  
Meeting on Solid Waste Management in Asia and Pacific Islands, Tottori, Japan (2012)  
“Evaluation of leaching potential of Ca in steel slag for its reuse in marine environment“
  - 6) Wataru Nishijima, Hitomi Yano, Satoshi Asaoka, Tetsuji Okuda, Satoshi Nakai and Mitsumasa Okada :  
The 27th International Conference on Solid Waste Technology and Management, Philadelphia, USA(2012)  
“Solidification behavior and control of steel slag in marine environment“
  - 7) Satoshi ASAOKA, Hitomi YANO, Tetsuji OKUDA, Satoshi NAKAI, Wataru NISHIJIMA, Mitsumasa  
OKADA: The 27th International Conference on Solid Waste Technology and Management, Philadelphia,  
USA(2012)  
“Long term physical and chemical behaviors of steel slags in sea water and sediment“
  - 8) 矢野ひとみ, 中井智司, 奥田哲士, 西嶋渉: 第46回日本水環境学会年会, 東京都, 東洋大学 (2012)  
「製鋼スラグと浚渫土を混合した海砂代替材の固化および生物付着特性」
  - 9) S. Nakai, Tetsuji Okuda, Wataru NISHIJIMA, Mitsumasa Okada: 50th ECSA (Estuarine Coastal and  
Shelf Science) Conference, #O11. 2, June 3-7, Venice, Italy (2012)  
“Settlement of clam larvae onto slags derived from steel manufacturing“
  - 10) Satoshi Asaoka, Hitomi Yano, Tetsuji Okuda, Satoshi Nakai, Wataru NISHIJIMA, Mitsumasa  
Okada: 50th ECSA (Estuarine Coastal and Shelf Science) Conference, #O11. 2, June 3-7, Venice,  
Italy (2012)  
“Determination method for maximum calcium dissolving potential of steel slags“
  - 11) YANO Hitomi, Satoshi ASAOKA, Tetsuji Okuda, Satoshi Nakai, Wataru Nishijima: Water and  
Environment Technology Conference 2012 (WET2012), June, 29-2B-12, Tokyo (2012)  
“Physicochemical and biological properties of steel slag bed mixed with dredged material“
  - 12) Wataru Nishijima, Hitomi Yano, Satoshi Asaoka, Tetsuji Okuda, Satoshi Nakai and Mitsumasa  
Okada: 2012 ISWA World Solid Waste, P.8, September, Florence Italy (2012)  
“Evaluation of Steel Slag as an Alternative Material of Sand for Coastal Ecosystem Creation“
  - 13) 西嶋渉, 矢野ひとみ, 奥田哲士, 中井智司: 第15回日本水環境学会シンポジウム 基調講演: 2012年  
9月, 佐賀(2012) < 基調講演 >
  - 14) Hitomi Yano, Y. Akiyama, Satoshi Asaoka, Tetsuji Okuda, Satoshi Nakai, Wataru Nishijima :  
SETAC Asia Pacific, Kumamoto, Japan(2012)  
“The use of dredged soil as additives to leverage steel slags for restoring sea grass beds and tidal flats,  
September“
  - 15) Y. Akiyama, T. Katayama, H. Yano, T. Okuda, S. Nakai, W. Nishijima: International  
Symposium including Field Workshops -Biodiversity in Changing Coastal Waters of Tropical and  
Subtropical Asia- (BCCWTSA), Amakusa, Japan(2012)  
“Distribution of benthic fauna decided in association with sediment environments on tidal flat in  
Hiroshima, Japan“
  - 16) 西嶋渉: 第40回水環境フォーラム山口, 山口県(2012)  
「沿岸生態系の造成材料としての製鋼スラグの評価」
  - 17) 塚崎あゆみ, 鶴島修夫, 鈴村昌弘: 日本海洋学会春季大会(2013)  
「製鋼スラグと浚渫土による干潟・藻場生態系の創生 —栄養塩類の挙動—」
  - 18) 塚崎あゆみ, 鶴島修夫, 鈴村昌弘, 中里哲也, 谷本照己, 田尾博明, 西嶋渉: 第16回日本水環境学会シ

- ンポジウム(2013),  
 「製鋼スラグと浚渫土の混合土壌における物質フローの解明 I : 栄養塩の動態」  
 19) 中里 哲也, 黄昱, 藤田愛, 塚崎あゆみ, 鶴島修夫, 鈴木昌弘, 谷本照己, 田尾博明, 西嶋 涉: 第16回日本水環境学会シンポジウム (2013),  
 「製鋼スラグと浚渫土の混合土壌における物質フローの解明II: 金属成分の動態」  
 20) 山田奈海葉, 堀知行, 木村真人, 谷本照己, 塚崎あゆみ, 鈴木昌弘, 鶴島修夫, 田尾博明, 西嶋 涉: 第16回日本水環境学会シンポジウム (2013),  
 「製鋼スラグと浚渫土で造成したアマモ場土壌中の細菌叢について」  
 21) 西嶋 涉: 第7回海の再生全国会議, 東京(2013)(招待講演)  
 「海の再生におけるリサイクル材の活用」  
 22) 奥田哲士, 秋山吉寛, 西嶋 涉, 片山貴博, 矢野ひとみ, 中井智司: 瀬戸内海研究フォーラムin山口, 山口県宇部市(2013)  
 「鉄鋼スラグによる干潟再生」  
 23) Akiyama Y., Yano H., Katayama T., Koba K., Nagao M., Okuda T., Nakai S., Tanimoto T., Yamamoto T., Nishijima W.: ISWA World Congress Vienna 2013, Vienna, Austria (2013)  
 “Impact of steel slag on benthic community under semi-artificial environment”  
 24) Kenji SUGIMOTO, Yoichi NAKANO, Tetsuji OKUDA, Satoshi NAKAI, Wataru NISHIJIMA, Mitsumasa OKADA: EMECS10-MEDCOAST2013 Joint Conference, Marmaris, Turkey(2013)  
 “Changes in dominant species of seagrass bed on eastern Yamaguchi, Seto Inland Sea, Japan”  
 25) Akiyama Y., Yano H., Katayama T., Okuda T., Nakai S., Nishijima W.: EMECS10-MEDCOAST2013 Joint Conference, Marmaris, Turkey (2013)  
 “Effect of steelmaking slag on marine benthos”  
 26) 片山 貴博, 竹田 優志, 矢野 ひとみ, 秋山 吉寛, 奥田 哲士, 中井 智司, 西嶋 涉: 廃棄物資源循環学会, 第24回研究発表会(2013)  
 「浚渫土による海水中での製鋼スラグの固化制御」  
 27) 中井智司: The 11th Japan-China Symposium on Water Environment (第11回日中水環境シンポジウム), Xiamen, China(2014) (招待講演)  
 “Benthic community emerging on the artificial tidal flat constructed using a steelmaking slag”  
 28) Tetsuji OKUDA: First China-Japan (CAS-JST) Workshop on “New Environmentally Sustainable Systems for Japan and China “ (第1回日中環境ワークショップ), Xiamen, China(2014) (招待講演)  
 “Scientific understanding and approach to the management of the Seto Inland Sea”

## 7. 研究者略歴

課題代表者: 西嶋 涉

筑波大学大学院環境科学研究科修士課程修了, 広島大学工学部助手, 広島大学工学研究科助教授, 博士(工学), 現在, 広島大学環境安全センター・教授

研究分担者:

### 1) 田尾 博明

東京大学大学院理学系研究科化学専門(修士)修了, 東京大学より理学博士授与, 通商産業省工業技術院公害資源研究所 研究員, (独)産業技術総合研究所 環境管理技術研究部門長, 現在, (独)産業技術総合研究所 環境管理技術研究部門・研究部門長

鈴木 昌弘

東京水産大学水産学研究科博士学位取得の上修了, 通商産業省 工業技術院 資源環境技術総合研究所 特別研究員, (独)産業技術総合研究所 環境管理研究部門 研究員, 現在: (独)産業技術総合研究所 環境管理技術研究部門 研究グループ長

### 2) 中井 智司

東京農工大学工学研究科卒業, 東京農工大学工学部助手, 東京農工大学大学院共生科学技術研究部講師, 現在, 広島大学大学院工学研究院・准教授

山本 民次

東北大学大学院農学研究科修了, 愛知県水産試験場技師, 広島大学講師, 広島大学助教授現在, 広島大学生物圏科学研究科・教授

## 1F-1102 製鋼スラグと浚渫土により造成した干潟・藻場生態系内の物質フローと生態系の評価

### (1) 干潟・藻場生態系における物質フローの解明

#### (独) 産業技術総合研究所

環境管理技術研究部門・研究部門長	田尾 博明
環境管理技術研究部門・地球環境評価研究グループ	鈴木 昌弘
環境管理技術研究部門・地球環境評価研究グループ	左山 幹雄
環境管理技術研究部門・地球環境評価研究グループ	鶴島 修夫
環境管理技術研究部門・計測技術研究グループ	中里 哲也
地質情報研究部門・物質循環研究グループ	長尾 正之
地質情報研究部門・沿岸海洋研究グループ	谷本 照己
地質情報研究部門・沿岸海洋研究グループ	高橋 暁

#### <研究協力者>

#### (独) 産業技術総合研究所

環境管理技術研究部門 海洋環境評価研究グループ 塚崎 あゆみ (平成23～25年度)

平成23～25年度累計予算額：110,600千円 (うち、平成25年度予算額：34,300千円)

予算額は、間接経費を含む。

#### [要旨]

干潟・藻場（アマモ場）は全国的に大きく減少しており、その再生が望まれているが、再生・創出に必要な海砂・川砂の採取が生態系を破壊することが懸念されている。本研究では、安定的に発生、品質がそろい、砂と同等の粒子径を持つ製鋼スラグと海洋の物質循環を担うデトリタスを豊富に含む浚渫土の混合土壌を用いて干潟・藻場を再生・創出することの優位性を示すことを目的としていた。まず29元素分析によりスラグ成分を正確に把握した上で、生態系に影響を及ぼす可能性がある製鋼スラグに特有な遊離カルシウムの溶出によるpH上昇やそれに付随する固化等反応、微量化学物質の溶出などの様々な反応と物質フローを混合土壌中で精緻に追跡した。主要な反応に関与する遊離カルシウムの定量法が過小評価であることを示し、新たな評価法を開発した。その上でカルシウム溶出によるpHの上昇について数値化、主要な製鋼スラグである脱炭スラグと脱リンスラグで溶出挙動が大きく異なることを明らかにした。pH上昇が大きい脱炭スラグにおいて水酸化マグネシウムや炭酸カルシウムの形成による顕著な固化が起こったが、脱リンスラグでは酸化鉄の形成によって固化が起こっており、両スラグの固化機構は全く異なることを明らかにした。固化の進行は浚渫土の混合によって抑制されることと、その抑制メカニズムを明らかにできた。栄養塩として重要なリンに関して、両スラグで含有量はほとんど変わらないにもかかわらず、容易に海水中に溶出する可動態リン量に大きな違いがあることを明らかにした。また化学パラメータ解析とメタゲノム解析を組み合わせることにより、混合土壌において栄養塩に関わる物質フローとそれを駆動する細菌叢が大きく変化し、より効果的な栄養塩の供給が起こる可能性

を発見した。これらを元にケイ砂との比較から造成土壌を製鋼スラグと浚渫土の混合土壌で代替した場合の、製鋼スラグと浚渫土の化学的相互作用によって駆動されるリン循環、栄養塩、酸化還元物質などの物質フローを示し、混合土壌が潜砂性生物の生息基盤として適していることを明らかにした。

#### [キーワード]

製鋼スラグ、浚渫土、物質フロー、反応、固化

### 1. はじめに

21世紀環境立国戦略では、豊穡の里海の創生をはじめとする自然の恵みを活かした活力溢れる地域づくりが重点的に着手すべき戦略の一つとして挙げられている。しかし現実には、里海の象徴ともいべきアマモ場・干潟は大きく減少している。一方で、平成10年の広島県での海底土砂の採取禁止に始まり、瀬戸内海沿岸11県でほぼ全て禁止となっており、砂利採取に伴って劣化した海洋環境の修復がむしろ課題となっている。そのような状況の中で、大量かつ安定的に発生し、品質がそろい、砂と同等の粒子径を持ち、かつ硫化物含有量の少ない製鋼スラグが海砂代替材料として注目されている<sup>1)、2)</sup>。製鋼スラグは、発生量と質の面から干潟・藻場造成のための海砂代替材として大きなポテンシャルを有している一方で、主成分である石灰(CaO)の一部は水と反応するとアルカリ成分である水酸化物イオンを生成するためpHが上昇、アルカリ溶出に伴う付随的な反応、化学物質の溶出、生物生息に及ぼす影響など科学的に未解明な点もある<sup>3)</sup>。他方で粒子径が小さすぎてそれ自体では干潟・藻場の造成材とはなりえないが、本来海洋の物質循環において重要な役割を担うデトリタスを大量に含むシルト・クレイが主成分の航路維持浚渫土は、物質循環の役割を担うことなく、土砂処分場や港湾埋立てにより処分されている。

海砂に浚渫土を混合した土壌における干潟造成に関してはある程度研究が進んでいるが、製鋼スラグと浚渫土の組み合わせによる干潟・藻場造成は、我々の限られた基礎研究を除きほとんど研究されていない。本研究では製鋼スラグと浚渫土の組み合わせにおける複雑な反応や物質フローの解明を行った。

### 2. 研究開発目的

干潟・藻場(アマモ場)生態系の再生・創出のために必要とされる造成土壌を製鋼スラグと浚渫土の混合土壌で代替した場合の物質フローを含む生態系の特徴及び優位性を科学的な根拠のもとに明らかにし、生態系の再生・創出が環境劣化を引き起こす自然砂の採取に依存することなく、環境再生と資源再生がWin-Winの関係で成り立つことを示すことを目的としていた。加えて、ここで得られた成果に基づき、様々な立場で干潟・藻場の再生・創出に関与するステークホルダー間の相互理解に貢献することを目的としていた。

具体的には製鋼スラグと浚渫土の化学的相互作用によって駆動される栄養塩、酸化還元物質、アルカリ成分および二酸化炭素などの物質フローを明らかにし、藻場・干潟基盤材としての特性・有効性を評価することを目的とした。

潮汐を模した干満試験を行うことで、上記の混合土壌から成る人工干潟が潜砂性生物の生息基盤として適したものとなるかどうかを検討した上で、形成される低次生態系内でのリン循環の違いについてケイ砂を主材料とする人工干潟のものと比較した。

### 3. 研究開発方法

#### (1) 干潟・藻場生態系における物質フローの解明

##### 1) スラグ・浚渫土の特性把握のための小規模基礎実験

###### a. 土壌環境の解析

###### i. 物理・化学組成

スラグと浚渫土を混合した系のpH環境の調査の前に、スラグや浚渫土自体の物理、化学的性質の調査を行った。

化学分析には、アルミナあるいはめう乳鉢で粉碎・均一化した試料を用いた。生産工程や工場の異なる6種の製鋼スラグを粉末にし、蛍光X線分析装置（Rigaku、EDXL300）を用いて主要元素の測定をした。天然砂として、市販されているケイ砂（1号および3号）を用いた。2011年9月8日、産総研阿賀臨海実験場においてポンプにより常時汲みあげている沿岸海水（（2）章で詳細記述）を孔径0.2  $\mu\text{m}$ のメンブレンフィルターを用いた濾過により微生物を除去し、実験時まで4℃で冷蔵保存した。スラグおよび浚渫土（および海水試料）に含まれる栄養塩類および金属元素の定量分析を実施した。栄養塩濃度はオートアナライザーを用いた比色法により分析し、金属成分についてはより多くの元素の挙動を明らかにするために、分析法として誘導結合プラズマ質量分析法（ICP-MS）またはICP発光分光分析法（ICP-OES）による多元素同時分析法を用いた。

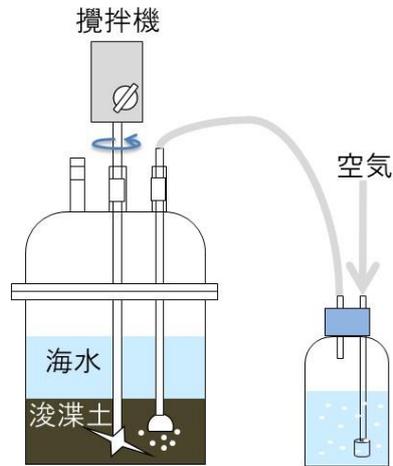
製鋼スラグ、浚渫土の各固相は微量元素も含んでいるため、元素の汚染なく可溶化する前処理の必要があったが、硝酸やフッ化水素酸などを含む混酸を用いたマイクロ波酸分解法により実現した。また、ICP-MSによる微量元素の定量では分解試薬および試料由来の主要元素による測定妨害が観測された。そこで、FI（フローインジェクション）による試料少量化や、反応ガスを用いた反応セル法により干渉を抑制し、微量元素の定量を可能にした。海水についても同様な試料由来の主要元素による測定妨害が観測されたため、上記の手法に加えて、キレート固相抽出法による重金属類の分離前処理を追加して定量を可能にした。

自然環境においてスラグや浚渫土が使用される際に、これらに含まれる各種成分の総量の把握に加えて、実際に環境中の各種条件下で放出される画分（可動態画分）の定量が重要となる。スラグおよび浚渫土が海水と混合した際に放出されるpH変動に関連する成分（全炭酸、アルカリ度）に関して、特に短期（急性）的なプロセスを評価するために簡易的な混合実験を行った。スラグおよび浚渫土を海水に懸濁させた状態でインキュベートし、24時間後と7日後の海水中のpH、全炭酸、アルカリ度の変化量を見積もった。全炭酸については電量滴定法、アルカリ度については塩酸を用いた滴定法（オープンセル二段階滴定法）により測定を行った。また、土壌溶出試験に用いられる希酸（1 M塩酸）による溶出試験（固相試料0.25 g/希塩酸25 mLの条件で24時間振とうし、1～数時間間隔で上澄液を採取、遠心分離した溶液を分析）を実施し、試料からの各種成分の最大溶出量を見積もった。さらにスラグに特に多量に含まれると思われるリンについては、連続抽出法による化学形態分別定量を行った。

###### ii. pH環境

長期的な室内シミュレーション実験において酸化還元環境をコントロールした系を構築するためには、浚渫土では有機物分解に伴う炭酸化学種（あるいは酸性物質）の放出と酸素消費（酸化還元状態の変化）を事前に把握しておくことが求められる。そこで好氣的環境下における浚渫土の分

解実験を実施した。浚渫土512 g（湿重量）に阿賀臨海実験場の濾過海水2.50 Lを加え、実験室内の空気で曝気して攪拌を続けた（図(1)-1）。海水と浚渫土の懸濁液を適宜一部サンプリングし、海水中のpHの変化を観察した。



図(1)-1 浚渫土好氣的分解実験の概略図

## b. 栄養塩フロー

### i. リンの形態分析

好氣的環境下における浚渫土の分解実験において連続抽出法によるリンの形態分析を行った。ここで用いた連続抽出による分別法では、

- 1) 易可動態リン：炭酸カルシウムに結合したリンなど、粒子に緩やかに結合・吸着したリン
- 2) 鉄結合型リン：鉄の酸化物などに吸着しており、還元環境になると速やかに溶出するリン
- 3) 自生アパタイトリン：続成過程を経てカルシウムと反応して生成したアパタイト中のリン
- 4) 碎屑鉱物：岩石や鉱物中に含まれるリン
- 5) 有機態リン：有機物を構成するリン

に分別される。このうち1)と2)の画分に含まれるリンを環境中で容易に溶け出しやすいリン（可動態リン）と定義する。

### ii. 混合土壌内の栄養塩フロー

好氣的環境下での浚渫土の分解実験における、液相（海水）の栄養塩濃度の変化を観察した。ここでは主に浚渫土のケイ酸、リン酸、亜硝酸、硝酸の経日変化を調査した。本研究では短期的（数日）な時間スケールにおける成分放出に関わるものだけでなく、環境中での混合土壌の使用を考えた数年～数10年スケールでの様々な環境変遷に晒された場合を考慮する必要がある。そこで、土壌の溶出試験にも用いられる希酸による溶出実験手法を用いて、環境中での成分放出ポテンシャル（可動成分の最大値）の見積もりを試みた。これは1 M塩酸中でのスラグおよび浚渫土試料からのリン酸とケイ酸の溶出量の経時変化を調査することで行った。

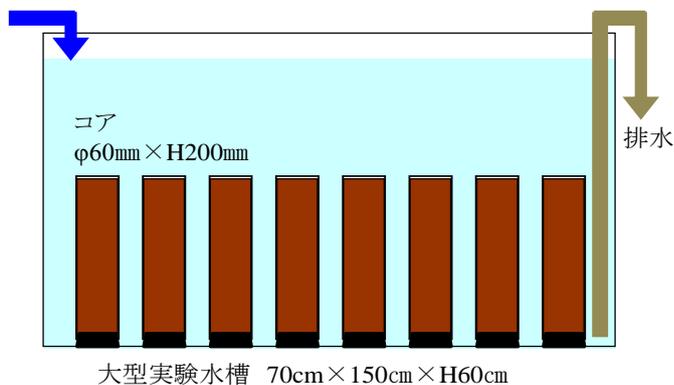
## c. 有機物質の挙動

有機物質の挙動を検討するためなどを目的に、好氣的環境下における浚渫土の分解実験における酸化還元状態の変化を観察した。バッチ型の懸濁培養実験系と、より現場環境に近いコア培養実験系の2種類の実験系を簡易的に構築し、試料の前処理、経時的な試料（間隙水）の採取方法、培養

方法について検討を行った。

## 2) スラグ・浚渫土の特性把握のための中規模疑似現場実験（疑似堆積物（コア）試験）

スラグー浚渫土混合土壌が海水にさらされた場合、土壌および水環境にどのくらいのタイムスケールでどのような影響を与えるのか把握するため、疑似堆積物（コア）を用いて土壌および水環境の中・長期的なモニタリングを行った。産総研阿賀臨海実験場にて、混合土壌を詰めたコアを作製して大型水槽（70×150×60 cm）に沈め、現場海水を常時供給した（図(1)-2、3）。実験は夏季開始（2012年8月21日～）と冬季開始（2012年11月6日～）の2度おこなった。混合土壌には、脱リンスラグと水島港の浚渫土を用い、脱リンスラグー浚渫土の混合比の異なる4種類の土壌（浚渫土の乾燥重量比で夏季開始は8, 15, 25, 48%, 冬季開始は8, 15, 30, 75%。浚渫土の混合率の表記は以後すべて乾燥重量ベース）をそれぞれ塩ビチューブ（内径56 mm、高さ21 cm）に充填して水槽に沈め、海水汲み上げ施設を利用して海水を常時かけ流した。また、コア試料は底質環境を模すために海水との接触面はコア上部のみとした。また対照実験として、製鋼スラグと粒度分布を合わせたケイ砂を利用して調整した混合土壌によるコア実験を並行して実施した。適時コア試料を採取し、混合土壌をコアの底から徐々に押し上げ、1、5、10 cmの深さで酸化還元電位の測定を行った後、表面から深さ5 cmまでは1 cmの厚さ、5 cm以深は2.5 cmの厚さでスライスし、層毎に遠心沈殿管に回収した。遠心分離により上清（間隙水）を回収後、残った混合土壌は凍結乾燥し保存した。水槽の水温は水槽内に水温計を設置し継続してモニタリングを行った。間隙水はpH測定後シリンジフィルターでろ過し、全炭酸、アルカリ度、栄養塩類、金属元素の測定用に分注し保存した。栄養塩類はオートアナライザーによる吸光光度法、金属成分は誘導結合プラズマ（ICP）発光分析法およびICP質量分析法を用いて定量した。



図(1)-2 現場海水かけ流しコア実験水槽概略図



図(1)-3 コア実験水槽の写真

## 3) スラグ・浚渫土の特性把握のための大規模疑似現場実験

### a. 製鋼スラグと浚渫土の混合土壌を用いた干潟マイクロコズム条件下で金属成分の動態

潮間帯の中央付近を想定し、浚渫土混合比8%の脱リンスラグー浚渫土混合土壌を敷設した、3/100勾配の干潟マイクロコズムを前述の産総研阿賀臨海実験場に設置し（(2)章で詳細記述：2012年6月25日から稼働開始）、土壌間隙水中の金属成分濃度の変化を調べた。対照区として浚渫

土混合比8%の珪砂混合土壌を敷設したマイクロコズムを用いた。間隙水は土壌敷設時に埋設したフィルタ付きチューブから採取し、遠心分離およびろ過して間隙水を分離した。この水試料中の金属成分をICP-MSおよびICP-OES分析法を用いて定量した。

#### b. アマモ大型水槽実験における細菌叢の16S rRNAメタゲノム解析

製鋼スラグー浚渫土混合土壌中の細菌叢と細菌が駆動する物質フローを推定するため、前述の産総研阿賀臨海実験場でアマモ大型水槽実験を実施した。ここでは4種類の土壌（脱リンスラグのみ、脱リンスラグー浚渫土混合土壌（浚渫土14.3%）、ケイ砂のみ、ケイ砂ー浚渫土混合土壌（浚渫土14.3%））を用意し、2012年3月1日に、大型水槽（70×150×60 cm）に投入した。この際、土壌には、間隙水採取用のライゾンフィルターを埋積した。ここにアマモを移植し、阿賀湾からくみ上げたポンプ海水をかけ流して生育させた。約1か月後の2012年4月9日に、各大型水槽の表面土壌およびアマモの根を滅菌済み容器へ採取した。この際、pHおよび栄養塩の計測用に、土壌表面から1 cm下に埋積したライゾンフィルターを通じ、間隙水を採取した。間隙水は、孔径0.2  $\mu\text{m}$ の再生セルロースフィルターでろ過した。なお、試料採取時の水温は16°Cであった。試料は室温におき、翌日、茨城県つくば市の実験室に持ち帰った。間隙水は持ち帰り後、分析に供するまで-20°Cで保管した。間隙水のpHは、米国標準局の緩衝液で校正したpHメーターを用いて測定した。また、間隙水中の栄養塩として、硝酸、亜硝酸、アンモニア、リン酸およびケイ酸について、オートアナライザー（QuAAtro 2-HR、BLTEC）を用いて分析した。

土壌およびアマモ根試料中の細菌叢の16S rRNAメタゲノム解析は、核酸中のDNAとRNAを対象として調べた。核酸中のDNAは、細菌が活動状態であっても休眠状態であっても、存在さえすれば検出することができる。一方、RNAは、タンパク質合成の過程でDNAから転写されるもので、分解されやすく寿命が短いことから、活動状態にある細菌のものを検出することができる。持ち帰った土壌試料は約0.5 gずつ、アマモ根は超純水で洗った後に約0.2 gずつ、2 mL 滅菌チューブに分注し、次の処理を行うまで、DNA分析用試料は-20°Cで、RNA分析用試料は-80°Cで保存した。

試料中のDNAは、以下のように抽出・精製した。DNA抽出の前に、試料は700  $\mu\text{L}$ のリン酸緩衝液（PBS: 8.1 mM  $\text{Na}_2\text{HPO}_4$ 、1.47 mM  $\text{KH}_2\text{PO}_4$ 、137 mM  $\text{NaCl}$  および 2.68 mM  $\text{KCl}$ ）を添加して洗浄し、16、100 G、4 °Cで5分間、遠心分離して上澄みを除去した。この後、土壌へのDNAの吸着を避けるため、1 mLの8%(w/v)スキムミルク/PBS溶液を添加し、良く混ぜた後、16、100 G、4 °Cで5分間、遠心分離して上澄みを除去した。DNAの抽出は、ビーズ破碎を含む直接溶菌法を用いて行った。ジルコニアシリカビーズ（直径0.1  $\mu\text{m}$ 、BioSpec Product、Bartlesville）は、使用前に乾熱滅菌した。遠心分離後の沈殿物に、等容量のジルコニアシリカビーズと700  $\mu\text{L}$ のTMP緩衝液（0.5 M Tris-HCl（pH 8.0）、1.7%(w/v)ポリビニルピロリドンK 25 および 20 mM  $\text{MgCl}_2$ ）を添加し、ビーズ破碎機で2、000 rpm、2分間の破碎を行った。これを16、100 G、4 °Cで5分間、遠心分離した。続いて上澄みを新しい2 mL 滅菌チューブに移した。沈殿物に700  $\mu\text{L}$ の6%(v/v)フェノール（pH 8.0）/溶菌緩衝液（5 mM Tris-HCl（pH 8.0）、5 mM EDTA（pH 8.0）および0.1%（w/v）ドデシル硫酸ナトリウム）溶液を添加し、再度ビーズ破碎機で2、000 rpm、2分間の破碎を行い、16、100 G、4 °Cで5分間、遠心分離した。水層を先程の2 mL 滅菌チューブに移して合一し、500  $\mu\text{L}$ のフェノール（pH 8.0）を添加して良く混合した後、16、100 G、4 °Cで5分間、遠心分離した。この水層を新しい2 mL 滅菌チューブに移し、500  $\mu\text{L}$ のフェノール：クロロホルム：イソアミル

アルコール（25:24:1）を添加し、良く混合した後、16、100 G、4 °Cで5分間、遠心分離した。さらにこの水層を新しい2 mL 滅菌チューブに移し、500  $\mu$ Lのクロロホルム：イソアミルアルコール（24:1）を添加し、良く混合した後、16、100 G、4 °Cで5分間、遠心分離した。水層中に抽出された核酸を精製するため、水層を新しい2 mL 滅菌チューブに移し、100  $\mu$ Lの3M 酢酸ナトリウムと900  $\mu$ Lのイソプロパノールを添加し -80°Cに20分間静置した後、16、100 G、4 °Cで30分間、遠心分離を行った。上澄みをデカントで除去した後、沈殿物を500  $\mu$ Lの氷冷した70%(v/v) エタノールで2回洗い、50  $\mu$ LのTE緩衝液（10 mM Tris-HCl (pH 8.0) および 1 mM EDTA (pH 8.0)）に懸濁させた。続いて核酸中のRNAを除去するため、試料溶液にRNase (Ribonuclease A from bovine pancreas、Type II-A、Sigma-Aldrich) を最終濃度125  $\mu$ L/mLになるように添加し、37°Cで1時間インキュベートした。試料中のDNAを精製するため、200  $\mu$ Lの2 $\times$ PEG (20%(v/v) polyethylene glycol、0.6 M NaCl)を添加し、4°Cで1時間インキュベートした後、16、100 G、4 °Cで15分間、遠心分離した。沈殿物に氷冷した70%(v/v) エタノールを加え、6、100 G、4 °Cで10分間、遠心分離した。上澄みをデカントで廃棄し、DNAペレットを真空乾固した後、50  $\mu$ LのTE緩衝液(pH 8.0)に溶解させ、次の処理に供するまで-20°Cで保存した。

RNAは、ISOIL for RNA（ニッポンジーン）を用い、取扱説明書に従って抽出・精製した後、次の処理に供するまで-80°Cで保存した。抽出したRNAは、SuperScript III First-Strand Synthesis System for RT-PCR (Invitrogen)を用いて逆転写反応を行い、cDNAを合成した。精製したDNAとcDNA化したRNAは、Phusion<sup>®</sup> High-Fidelity DNA Polymerase (New England Biolabs、Ipswich)と細菌のユニバーサルプライマーを用いて16S rRNA遺伝子のV4領域を増幅するPCRを行った。フォワードプライマーには、515F（5' GTG CCA GCM GCC GCG GTA A 3'）を、リバープライマーには、試料ごとに特有のバーコード配列を付加した806R（5' GGA CTA CVS GGG TAT CTA AT 3'）を用いた。PCR条件は、[98°C、30秒間の初期変性]を1サイクル、[98°C、10秒の変性、52°C、30秒のアニーリング、および72°C、15秒の伸長]を25サイクル、[72°C、5分間の最終伸長]を1サイクルで行った。PCR産物は、磁性ビーズ (Agencourt AMPure XP、Beckman Coulter) を用いて精製後、アガロースゲル電気泳動に供し、目的バンドの切出しとゲル抽出 (QIAquick Gel Extraction Kit、QIAGEN) により精製した。精製したPCR産物のモル濃度を調べるために、Quant-iT<sup>™</sup> PicoGreen<sup>®</sup> dsDNA Reagent and Kits (Molecular Probe) と蛍光光度計 (VersaFluor Fluorometer、Bio-Rad) を用いた濃度測定およびGoTaq<sup>®</sup> qPCR Master Mix (Promega)とRT-PCR MyIQ2 (Bio-Rad)を用いたqPCRを行った。qPCRのプライマーには、P5（5' AAT GAT ACG GCG ACC ACC GAG AT 3'）および P7（5' CAA GCA GAA GAC GGC ATA CGA 3'）を用いた。各試料が2 nMになるように試料混液を調整し、次世代シーケンサー (Miseq、Illumina) を用いて16S rRNA遺伝子のV4領域を対象としたブリッジPCRを行い、得られた配列データを分類、コンタミ配列の除外、キメラ配列の除去後、QIIMEにより公共データベースGreen Genesとの相溶性検索を行った。

#### 4) カルシウムの溶出

##### a. 溶出ポテンシャル

スラグからのCaの溶出<sup>4)、5)</sup>、はpHの上昇や固化<sup>6)、7)</sup>、に強い関係があり、その正確な定量は重要である。Ca溶出可能量の定量には、従来セメント中のf-Caの定量法 (J-CAS「I-01:1997 遊離酸化カルシウムの定量方法」<sup>8)</sup>) が使用されているが、1%程度のf-Caを含むセメントに比べて

1オーダー高い含有量を持つスラグの場合、J-CAS法で正確な定量ができるのかについて疑問がある。そこでJ-CAS法とともに、J-CAS法の固液比（1/40から1/400）及び溶出時間（5分から最大120分）を変え、f-Ca量が大きいことによって引き起こされるpHを抑えるために、Tris-HClを添加（100 mM）した検討を行なった。また、遊離酸化カルシウム以外の海水中で溶出しない形態のカルシウムが定量時に溶出する可能性も考えられるので、下表の主要なカルシウム鉱物資源を用いて、本方法で溶出の有無の確認も行った。得られたサンプルのカルシウム濃度はICP-AESで測定した。

表(1)-1 使用した鉱物

鉱物名	分子式	Ca [wt%]
ヘデンベルグ輝石：Hedenbergite	$\text{CaFeSi}_2\text{O}_6$ 、 mon	16.15
ゾノトラ石：Xonotlite	$\text{Ca}_6[(\text{OH})_2 \text{Si}_6\text{O}_{17}]$ 、 mon	33.63
珪灰石：Wollastonite	$\text{CaSiO}_3$ 、 tric	34.50
ゲーレン石：Gehlenite	$\text{Ca}_2\text{Al}(\text{AlSi})_7$ 、 正方	16.27
緑簾石：Epidote	$\text{Ca}_2(\text{Al}, \text{Fe}^{3+})_3(\text{SiO})_3(\text{OH})$ 、 mon	16.77

## b. カラム試験

カルシウム溶出の加速試験として、スラグを充填させたカラムの通水試験によるカルシウム溶出量を求める試験を行った。本試験は脱リンスラグおよび脱炭スラグについて行ったが、脱リンスラグについては透過流速の影響も確認するため、瀬戸内海低層の流速を参考に<sup>9)</sup>表(1)-2に示す数種類の流速で試験を行った。ここでは1000 mlのプラスチック容器に700 mlのスラグを充填したカラムに上向流で濾過海水を供給し、流出液のpHを測定した。粒径は0.85～2.0 mmにふるい分けしたものをを用いた。流速は3系列作成し、数値は以下の表に示す通りである。容器には下部に穴を空けそこから上向流で濾過海水を供給した。容器は液面が一定になるよう排出口を空けたコンテナ内に5つ設置し、充填層表面部と液面が一致するように調整した。そのときの空隙体積は脱炭スラグで13.7%であった。実験の様子を図(1)-4に示す。容器上部の液だめにpHロガーを設置しpHを随時測定した。容器上部より流出する海水と、充填試料の一部を約1ヶ月にわたり、定期的に採取し分析を行った。固化についてはベーンセン断応力を測定することで評価した。また固化原因と抑制機構を検討するため、試料乾燥後にXRFで表面組成を測定した他、固化したスラグを樹脂で脱気しながら固定、スラグごと切断して研磨した後、切断表面上のスラグ間の物質を電子線マイクロアナライザ（JXA-8200、JEOL）で分析した。また、浚渫土の影響を調べるため、代表的な流速では浚渫土を添加しての試験も行った。



図(1)-4 カラムかけ流し装置図

表(1)-2 かけ流し試験の流速

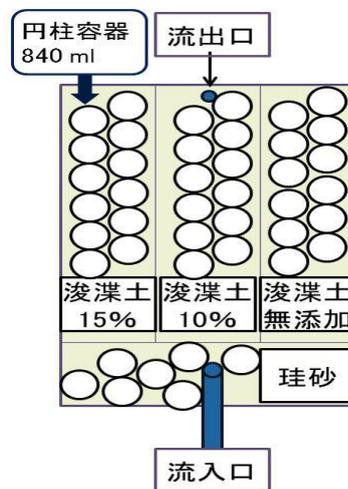
流量[ml s <sup>-1</sup> ]	空隙速度[mm s <sup>-1</sup> ]	交換速度[min <sup>-1</sup> ]
0.2	0.08	0.09
1.1	0.54	0.63
2.4	1.2	1.36
7.0	3.5	4.2

## 5) 混合土壌における固化反応

### a. 短期浸漬固化調査

製鋼スラグと浚渫土を混合した土壌に一次生産者である微細藻類などが付着すれば、ベントス、高次消費者の移入によって生態系が形成されてゆくと考えられる。ベントスの移入において重要なファクターは混合土壌のpHと硬さである。そこでここでは、製鋼スラグに浚渫土を混合することで、pH上昇や固化反応を緩和し、ベントスが棲みやすい環境を作るための基礎データ、すなわち混合土壌のpHと固化特性および、生物の親和性試験として生物の付着特性さらには、アマモ場シミュレーション（マイクロコズム）実験に向けた予備試験を実施した。

ここでは粒径0.85～4.75 mmの脱リンスラグ、または脱炭スラグに含水率を100±2%に調整した浚渫土（岡山県水島港採取）を湿潤ベースで0～30%混合した。それらの混合土壌を840 mLの円柱型容器に入れ、砂ろ過海水を満した24 Lのコンテナ中に静置し（図(1)-5）、ベーンせん断応力を測定（ハンドベーンにて測定）した。実験は一年近く行い、長期の影響を調べた。



図(1)-5 野外水槽における海水かけ流し実験の配置図

### b. 長期掛け流し調査および干満・冠水の影響調査

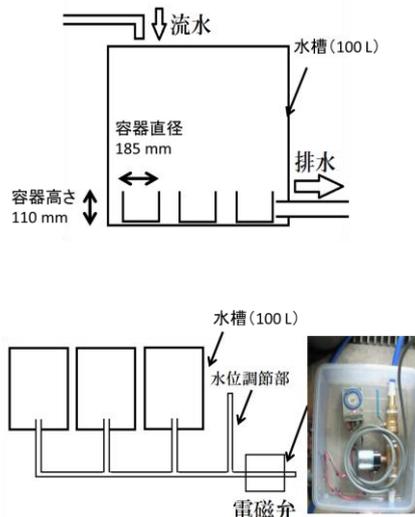
干潟は潮汐の干満による干潟表面の干出と冠水が繰り返されるという重要な特性がある。干出と冠水の繰り返しが固化に与える影響を見るため、以下の実験を行った。同上脱リンスラグと同上浚渫土を用い、かけ流し式で、電磁弁とタイマーを用いて、1日2回の干満を与えた（干満試験）。また、比較のため、常に冠水状態の試験（冠水試験）も行った。実験装置概略図を図(1)-6に示す。

泥質の違いが結果に及ぼす影響を把握するため、異なる3地点から得た泥（水島港、大河入り江、瀬野川河口干潟）を脱リンスラグに混合した。それぞれの泥の含有成分を表(1)-3に示す。

表(1)-3 実験に用いた3ヶ所の泥の成分組成

	単位	水島港	瀬野川	大河入り江
Si	%	30.06	27.18	32.82
T-Fe	%	2.89	2.33	1.90
M-Fe	%	0.44	0.27	0.51
C	%	0.80	2.98	3.10
P	%	0.02	0.05	0.07
Mn	%	0.05	0.04	0.03
S	%	0.68	0.60	0.49
Al	%	7.96	8.43	5.75
F	%	0.03	0.03	0.03
Mg	%	0.84	0.54	0.43

※数値は無水ベース



図(1)-6 実験水槽概略図（上）と干満装置全体図（下）

冠水試験では、製鋼スラグを浚渫土に対して乾重量換算で50、70、90%添加し、対照として浚渫土のみ（スラグ0%）の試験区も設定した。使用した海水は竹原ステーション前面からポンプでくみ上げた砂ろ過海水であり、海水交換率10回/dayに設定し（流量6.7 L/hr）、39日間行った。干満試験では、電磁弁の閉じている期間は海水が水位調節パイプから排水されることですべての水槽で水位が一定に保たれ、流量は26.7 L/hrとした。電磁弁は10:30～12:30、22:30～24:30の間開くように設定した。実験は50日間行った。先に行った冠水試験においてスラグ混合率70%付近が最も固化し易いことが分かったので、干満試験では製鋼スラグの混合割合を0、50、60、70、80、90%に設定した。

それぞれの実験では、混合物中のpH（pHメーターPRN-41、FUJIWARA）、ORP（ORPメーターRM-20P、DKK・TOA）、ベーンせん断力（ハンドベーンD01018、誠研舎）を経時的に測定した。ORPは測定に使用した白金電極の値を次の式により水素電極のEhに換算した。

$$Eh = E + 206 - 0.7(t - 25)$$

ここで、Eh：水素電極電位、E：測定値、t：水温（℃）、である。

#### 4. 結果及び考察

##### (1) 干潟・藻場生態系における物質フローの解明

##### 1) スラグ・浚渫土の特性把握のための小規模基礎実験

##### a. 土壌環境の解析

##### i. 物理・化学組成

目的であったスラグと浚渫土を混合した系のpH環境の調査の前に、スラグや浚渫土自体の物理、化学的性質の調査を行った。生産工程や工場の異なる6種の製鋼スラグ粉末試料に含まれる主要構成元素について蛍光X線分析を行った結果を表(1)-4に示す。どのスラグもカルシウム・ケイ素・鉄含量が高く、これらが質量の70%以上を占めていた。

表(1)-4 様々な製鋼スラグに含まれる主要元素の化学組成

Total	脱リン スラグA	脱リン スラグB	脱リン スラグC	脱炭 スラグA	脱炭 スラグB	脱炭 スラグC
SiO <sub>2</sub>	20.00	35.20	28.10	17.90	13.00	19.60
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	3.67	4.85	3.03	4.47	2.41	1.80
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	20.40	16.70	31.50	24.50	27.40	25.10
CaO	41.60	34.50	27.20	38.20	49.40	43.60
MgO	1.53	1.37	1.36	4.63	2.66	1.70
TiO <sub>2</sub>	1.00	1.30	0.97	1.23	0.28	0.57
MnO	7.23	4.15	5.47	5.53	1.77	3.17
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	4.14	1.23	2.08	2.56	1.58	2.13
LOI	0.11	0.46	n.d.	0.93	1.50	2.16
S	0.18	0.15	0.07	0.08	0.03	0.12

mass%

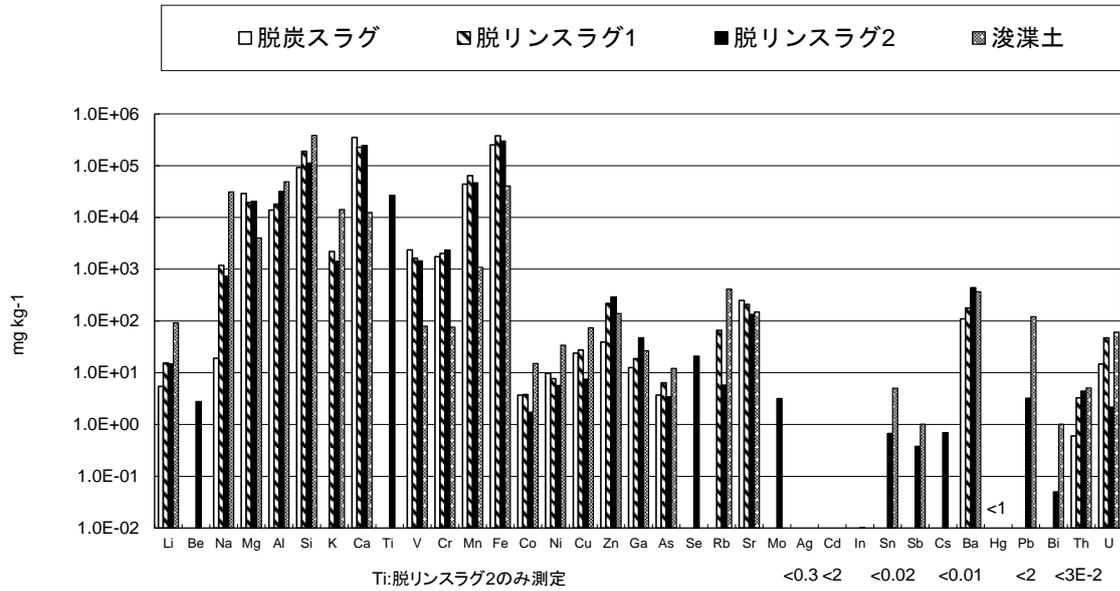
LOI: loss on ignition

n.d.: not detected

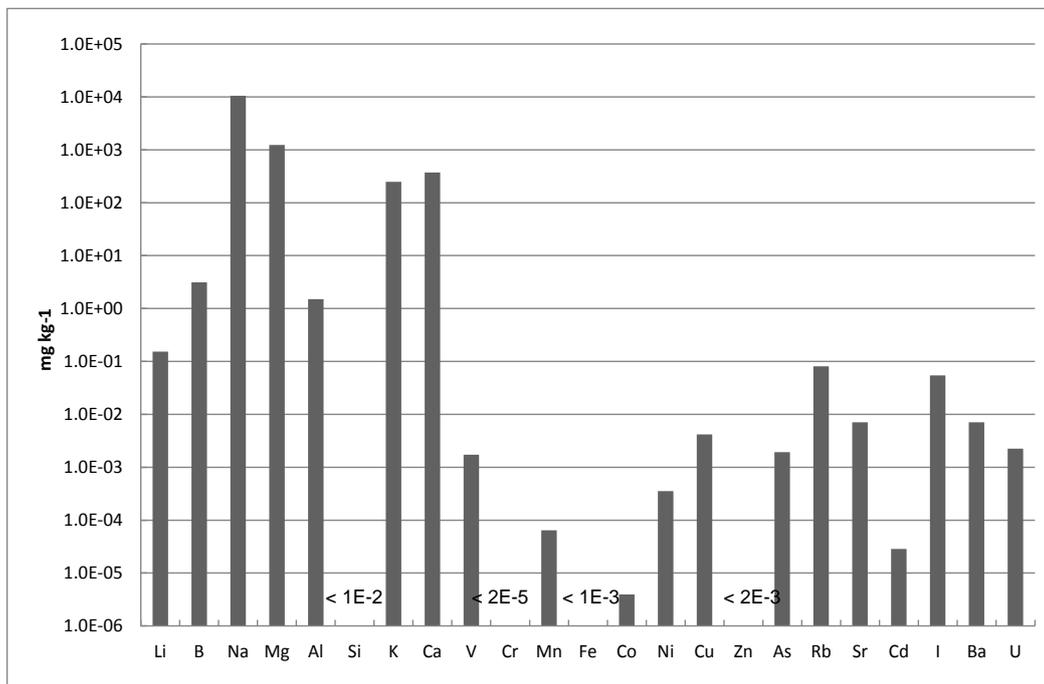
スラグ試料の粒径分布を調べたところ、脱リンスラグ、脱炭スラグともに0.85 ~2.00 mmの粒径の画分が、総重量のそれぞれ68%と48%を占めていた。試料の含水率(110℃乾燥)は、浚渫土が50.4%、脱リンスラグが0.4%、脱炭スラグが2.5%であった。また、製鋼スラグおよび浚渫土試料の29元素の分析を行った(Li、Na、Mg、Al、Si、K、Ca、V、Cr、Mn、Fe、Co、Ni、Cu、Zn、Ga、As、Rb、Sr、Ag、Cd、Sn、Sb、Ba、Hg、Pb、B、Th、U)。図(1)-7に脱炭スラグ、脱リンスラグおよび浚渫土中の各種元素含有濃度を示す。脱炭および脱リンスラグは主要元素(>1% (w/w))としてMg、Al、Si、Ca、Ti、Mn、Feが存在した。微量元素は、VおよびCrのみが1,000 mg kg<sup>-1</sup>レベルと比較的高濃度だったのに対して、それ以外の微量元素は概ね100 mg kg<sup>-1</sup>レベル以下であった。浚渫土はNa、Al、Si、K、Mgが主要元素であり、Mn、Rb、Ba以外の微量元素は概ね100 mg kg<sup>-1</sup>レベル以下であった。また、製鋼スラグは製鋼過程から生じる生成物のため、金属成分含有濃度の不均一性が予想された。実際、乳鉢で粉碎した脱リンスラグ試料を二回分析したところ、含有濃度1%以上の主要元素の濃度比(1回目/2回目)は90%~170%の範囲で、それ以下の少量および微量元素では40%~2、200%の範囲であり、ある程度の不均一性があることがわかった。

海水は23元素測定した(Li、B、Na、Mg、Al、Si、K、Ca、V、Cr、Mn、Fe、Co、Ni、Cu、Zn、As、Rb、Sr、Cd、I、Ba、U)。結果を図(1)-8に示す。重金属類が0.01 mg kg<sup>-1</sup>以下であり、深刻な汚染がない海水であり、製鋼スラグ混合土壌環境試験用に海水試料として利用で

きると判断した。



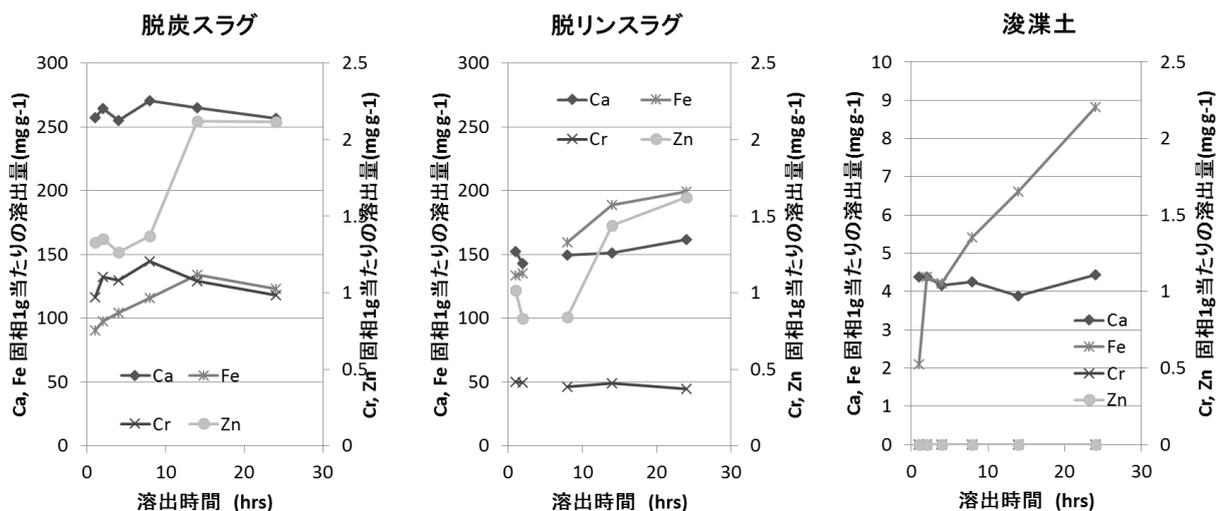
図(1)-7 脱炭スラグ、脱リンスラグおよび浚渫土の元素含有量



図(1)-8 産総研阿賀臨海実験施設の汲み上げ沿岸海水中の金属成分濃度例

スラグのリン含量 (9,800~11,000 mg kg<sup>-1</sup>) は、今回用いた浚渫土 (240 mg kg<sup>-1</sup>) や従来知られている海底堆積物のリン含量 (~1,000 mg kg<sup>-1</sup>) と比較して極めて高濃度であった。沿岸海域、特に閉鎖性水域においてリンの負荷は重要な問題であることから、スラグに含まれるリンの挙

動についてはさらに十分な検討が必要であることが示された。ここではさらに、製鋼スラグおよび浚渫土各々の固相粒子が生物へ取り込まれた場合の影響を想定し、1 M希塩酸による溶出試験を行い、各元素の溶出量の経時変化を測定した。カルシウム、鉄、クロム、および亜鉛の経時変化を図(1)-9に示す。浚渫土の鉄以外の元素の溶出量は、振とう14時間以降はほぼ一定となった。一方、浚渫土の鉄は振とう14時間以降も溶出量は増加し続けた。上記の鉄以外の元素の溶出量がほぼ一定となった24時間後の溶出量を比較すると、全ての金属の溶出量はスラグの方が浚渫土よりも多く、10倍以上の量が観測された。スラグ間で各元素の溶出量を比較すると、脱炭スラグの方が脱リンスラグよりも多い元素は、カルシウム、亜鉛、およびクロムであった。一方、脱リンスラグの方が脱炭スラグよりも多い元素は鉄であった。また、24時間後の各元素の溶出率（=溶出量÷含有量、% (w/w)）が50%を越える元素は、脱炭スラグはMg、Al、Si、Ca、V、Cr、Mn、Fe、Zn、Srであり、脱リンスラグはMg、Al、Si、Ca、Mn、Zn、Srであった。一方、浚渫土の場合は溶出率50%を越える元素はNa、Mg、Caのみであった。以上のことから、スラグの上記の元素は浚渫土と比較して短時間かつ多量に溶出していることから、その化学形態は無機イオンや錯体などの酸可溶態の割合が多いと考えられる。一方、浚渫土中のNa、Mg、Ca以外の金属元素は、酸可溶態と違う化学形態（例：酸化物）の割合が多いと考えられる。



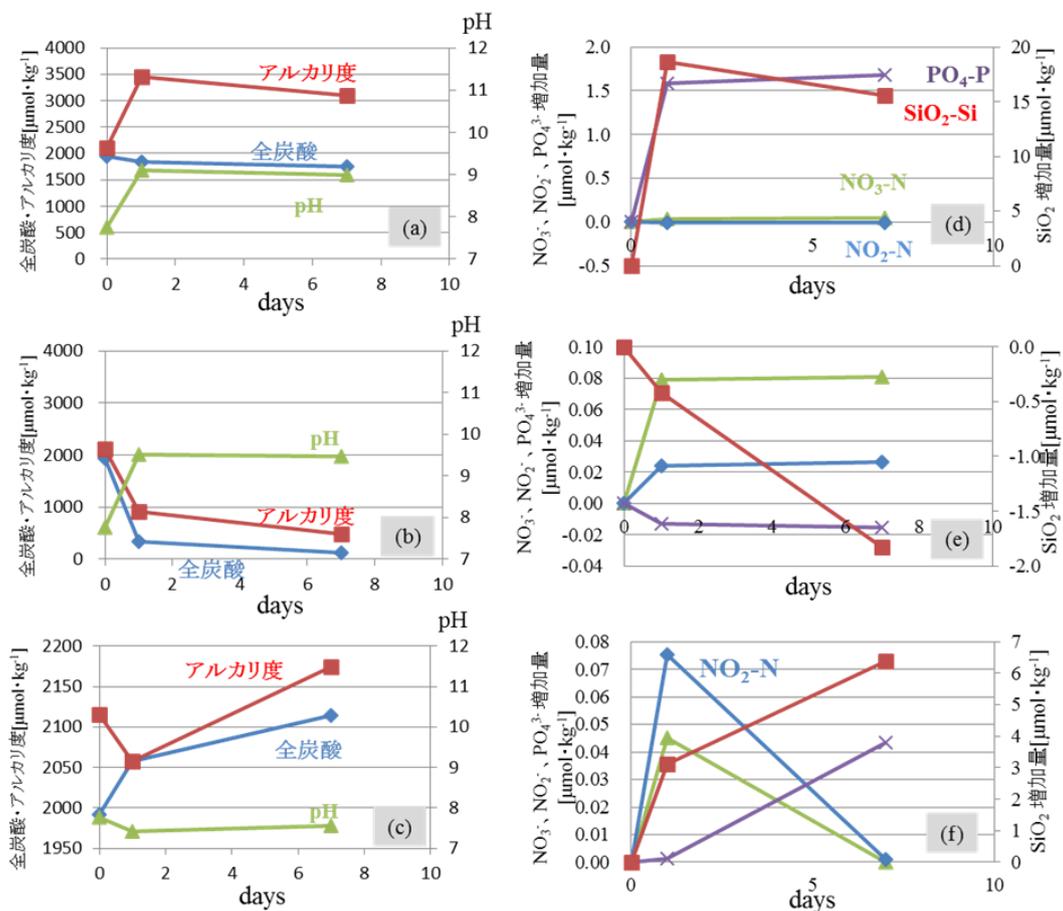
図(1)-9 1 M塩酸による脱炭スラグ、脱リンスラグ、および浚渫土からのカルシウム、鉄、クロム、亜鉛の溶出量の経時変化

## ii. pH環境

海水との混合初期に生じる反応によってスラグや浚渫土から放出される可動的なpH関連成分（全炭酸、アルカリ度）を評価するために、脱炭スラグ、脱リンスラグおよび浚渫土を海水と混合し振盪培養した際の海水中のpH、全炭酸、アルカリ度の変化を調べた（図(1)-10）。培養開始から1日で脱リンスラグ、脱炭スラグともに酸化カルシウム（CaO）などのアルカリ成分の溶出（溶解）に起因すると推測されるpHの急激な上昇が見られた（図(1)-10(a), (b)）。しかしアルカリ度と全炭酸の挙動は2種類のスラグで大きく異なり、脱リンスラグでは全炭酸にほとんど変化がなくアルカリ度が急激に増加したのに対して、脱炭スラグでは全炭酸とアルカリ度ともに急激に減少した。これ

は脱炭スラグと海水の反応において、アルカリ成分の急激な溶解（pHの急上昇の原因）を上回る炭酸塩（ $\text{CaCO}_3$ ）の析出（pHへの影響は相対的に小さい）が生じたためと推測される。一時的に高pHとなった場合には、水酸化マグネシウムの沈殿が起こり、アルカリ度およびpHが低下した可能性も考えられる。1日目から7日目の期間はいずれのスラグ試料でも変化は小さく、全炭酸とアルカリ度の緩やかな減少が認められた。この期間においては炭酸塩が徐々に析出していたものと考えられる。

浚渫土は1日目までにpHの下降と顕著な全炭酸の増加及びアルカリ度の低下が見られた（図(1)-10(c)）。これは浚渫土間隙水に含まれていた（持ち込み分）、無機炭酸および有機酸などの酸性物質の放出に伴う変化であろう。1日目から7日目に観測されたアルカリ度と全炭酸の増加は、浚渫土に含まれていた貝殻等に由来する炭酸塩が溶解したためと考えられる。



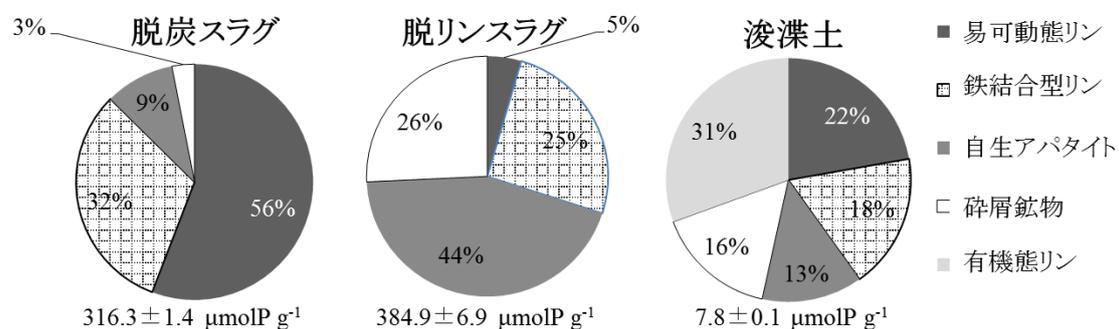
図(1)-10 海水と脱炭スラグ(a、d)、脱リンスラグ(b、e)および浚渫土(c、f)の混合培養実験によるpH、全炭酸アルカリ度の経時変化および浚渫土から海水への栄養塩の溶出量の経時変化

## b. 栄養塩フロー

### i. リンの形態分析

スラグおよび浚渫土に含まれるリンについて、詳細な化学形態の分別定量を実施した。脱炭スラグ、脱リンスラグおよび浚渫土に含まれるリンの全量と形態別割合を図(1)-11に示す。スラグ中に含まれるリンの全量は脱炭スラグで $316 \mu\text{mol g}^{-1}$ 、脱リンスラグで $385 \mu\text{mol g}^{-1}$ と大きな違いなかったが、リンの化学形は大きく異なることが分かった。

脱炭スラグに含まれるリンのうち89%が可動態のリンであるのに対して、脱リンスラグ中の可動態リンの割合は非常に小さく30%であった。このことは、リンの含量が同様であっても使用するスラグの種類によって、環境中に放出されうるリンの量が大きく異なることを示す結果である。浚渫土にはスラグの40から50分の1のリンが含まれる程度であった。量は少ないものの、可動態のリンと有機物に結合したリンの割合は比較的高く、酸化還元環境や土壌の分解状況によって溶出するリンを多く含むことが分かった。また、天然砂の代替試料であるケイ砂の全リン濃度は $0.12 \mu\text{mol g}^{-1}$ とスラグや浚渫土と比べると非常に少ないことが分かった。物理的には天然砂、スラグと類似した粒子径をもつものの、リンの組成から見ると製鋼スラグは天然砂と大きく異なる素材であるといえる。



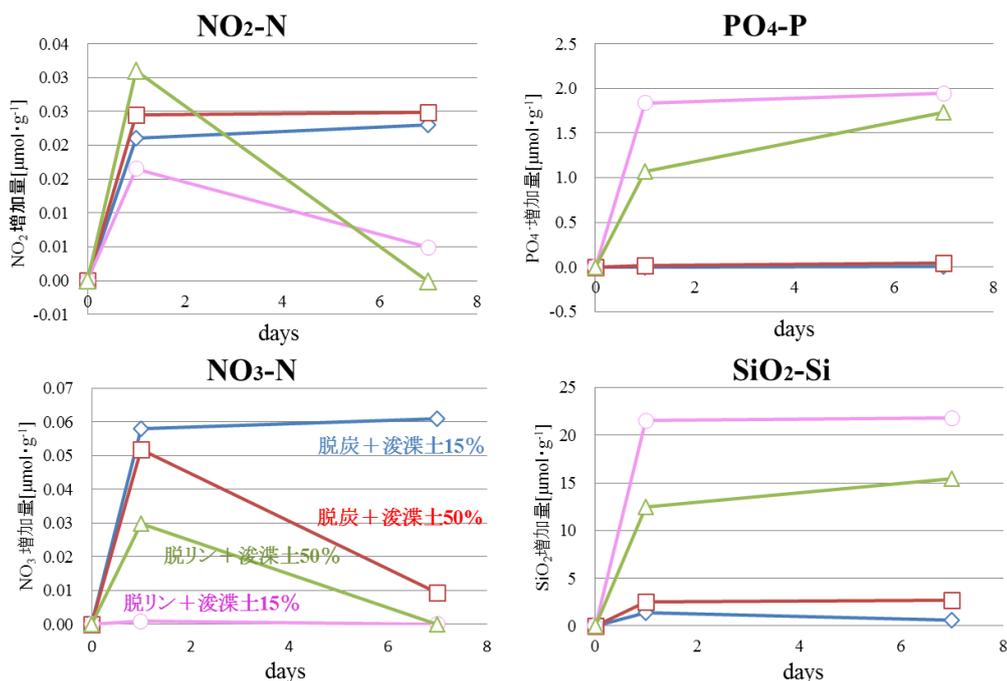
図(1)-11 スラグ・浚渫土に含まれるリンの形態別割合

## ii. 混合土壌内の栄養塩フロー

先のa-ii章における混合培養実験では、浚渫土およびスラグによる栄養塩類の溶出（あるいは吸着）も調査した（図(1)-10(d)(e)(f)）。浚渫土は、海水と混合し培養を始めて1日で海水中の硝酸、亜硝酸およびケイ酸濃度の著しい増加が見られた。増加傾向は緩やかになったものの、ケイ酸濃度は実験終了時まで増加を続けた。一方、硝酸と亜硝酸は1日目から7日目にかけて急激に減少している。本実験では酸素濃度、有機物量などをモニターしていないため確証に乏しいが、おそらく易分解性の有機物の分解により脱窒反応が進行したものと考えられる。リン酸濃度は実験期間を通して増加傾向にあり、特に1日目から7日目の増加が顕著であった。このリン酸濃度の変化も有機物の分解プロセスを考慮することで説明可能である。脱リンスラグでは、培養開始から1日で海水中のリン酸およびケイ酸濃度の著しい増加がみられた。硝酸濃度も同様に1日後に若干の増加がみられた。一方、亜硝酸は初期の海水の濃度からわずかに減少する結果となった。1日目から7日目にかけてはどの栄養塩も増減は緩やかとなった（図(1)-10(d)）。また、脱リンスラグの結果とは逆に、脱炭スラグでは培養開始から1日で海水中のリン酸およびケイ酸濃度の著しい減少がみられた。硝酸・亜硝酸の濃度は両者とも1日目に増加した。1日目から7日目にかけては、硝酸・亜硝酸濃度はわずかに増加し、ケイ酸・リン酸濃度は減少し続けた（図(1)-10(e)）。本実験の条件下では、脱炭スラグ（もしくはスラグから溶出した成分）には、ケイ酸・リン酸を吸着（もしくは沈殿）させる働きが、脱リンスラグにはリンの供給源として浚渫土以上の働きがあることが分かった。

続いて、浚渫土とスラグを混合した土壌に海水を充填し、混合培養実験を行った際の海水中の栄

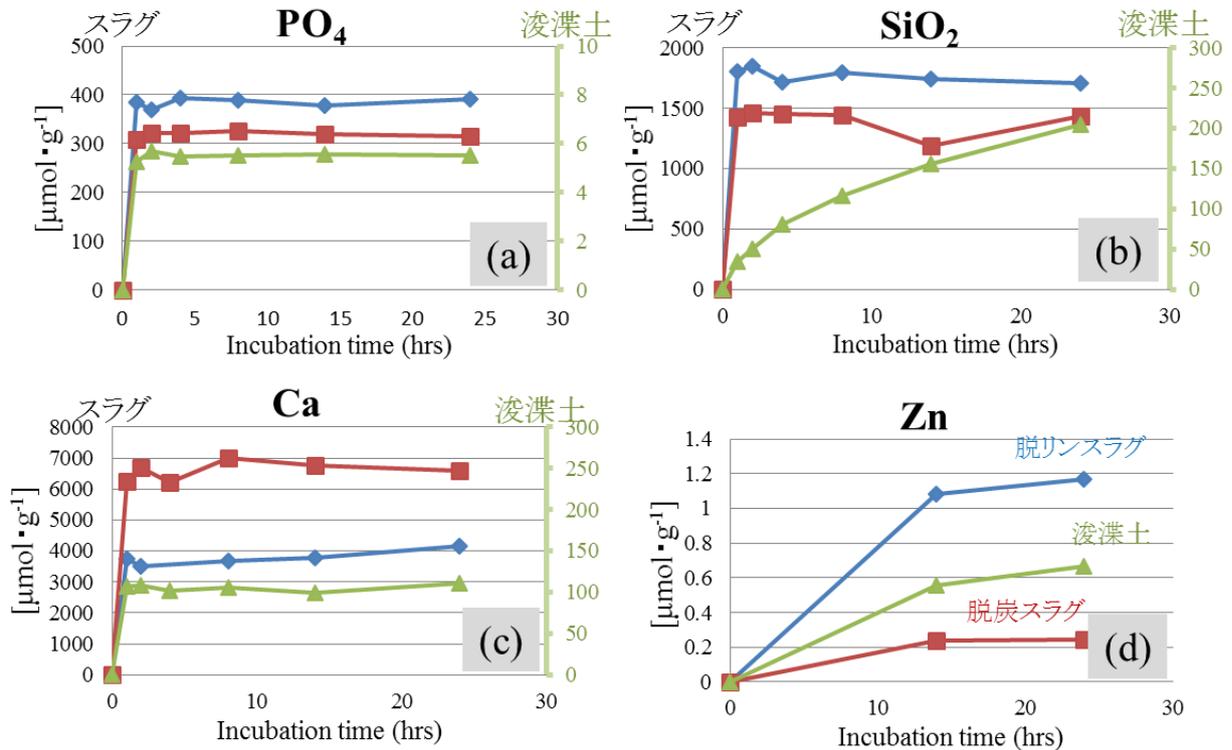
養塩濃度の挙動を調査した。浚渫土を乾燥重量で15%および50%となるようスラグに混合し、海水を充填した際のスラグ-浚渫土混合物乾燥重量当たりの栄養塩の溶出量を図(1)-12に示す。リンについてみると、脱リンスラグと浚渫土の混合物からリンが海水中に溶出しているのに対して、脱炭スラグと浚渫土の混合物と海水を混ぜた場合は、初期リン酸濃度とほぼ同じかそれより若干低い濃度となった。本実験の条件下では、浚渫土から海水への溶出するリンの量と、海水中のリンが脱炭スラグに吸着（もしくは脱炭スラグから溶出した成分と反応して沈降）し除去される量がバランスしていたものと考えられる。ケイ酸については、脱炭スラグによる除去量より浚渫土からの溶出量の方が上回り、海水中のケイ酸濃度の増加がみられた。



図(1)-12 脱炭スラグおよび脱リンスラグと浚渫土の海水混合培養実験による栄養塩溶出量の経時変化

脱炭スラグ50%+浚渫土50% (□)、脱炭スラグ85%+浚渫土15% (◇)、脱リンスラグ50%+浚渫土50% (△)、脱リンスラグ85%+浚渫土15% (○)

上述の実験は、短期的（数日）な時間スケールにおけるスラグあるいは浚渫土からの成分放出に関わるものであるが、数年～数10年スケールでの環境中での成分放出ポテンシャル（可動成分の最大値）の見積もりを試みた。（図(1)-13(a)(b)）に1 M塩酸中でのスラグおよび浚渫土試料からのリン酸とケイ酸の溶出量の経時変化を示した。ほとんどの場合、約1時間以内に急激な溶出が生じてほぼ平衡に達した。ケイ酸について、2種類のスラグでは速やかに溶出したのに対して浚渫土では溶出速度が遅く、緩やかに抽出されていることが分かる。これはスラグ中のケイ素の大部分が酸可溶性のケイ酸塩として存在しているのに対し、浚渫土中では石英や非晶質のシリカなど酸には容易に解けない成分が多く含まれていることを示唆する結果である。このように同じ元素であっても、存在形態の違いにより環境中での挙動は大きく異なることに注意すべきであることがわかった。

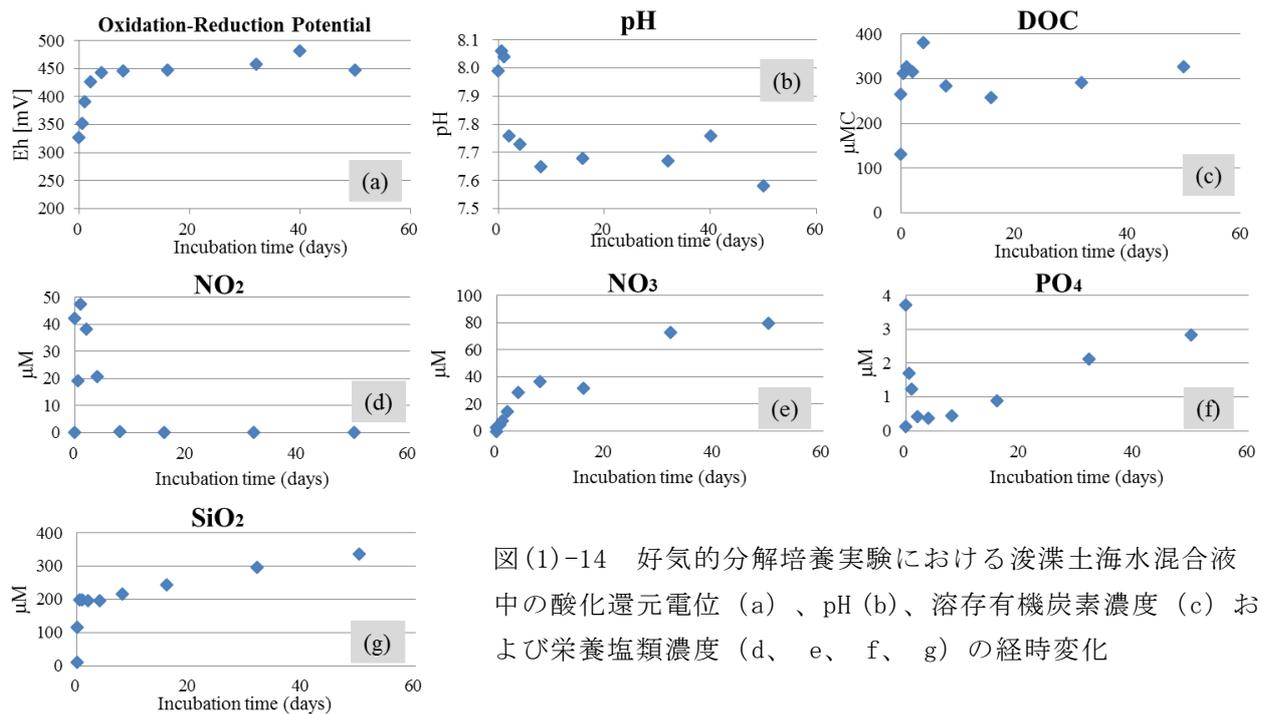


図(1)-13 1M塩酸中でのスラグおよび浚渫土からのリン酸(a)、ケイ酸(b)、カルシウム(c)および亜鉛(d)の溶出量の経時変化

脱リンスラグ (◆)、脱リンスラグ (■)、浚渫土 (▲)

### c. 有機物質の挙動

浚渫土中の有機物分解は、藻場や干潟の造成土壌として浚渫土を用いた場合の酸素消費速度や栄養塩の再生速度に密接に関係するため、定量的に把握することが必要である。そこで、バッチ法による好気的環境下での浚渫土の培養実験を実施した。実験は50日間にわたり実施した。培養期間中の酸化還元電位、pH、溶存有機炭素濃度および溶存栄養塩濃度の経時変化を図(1)-14に示した。酸化還元電位は分解培養開始から4日目まで急激に上昇し、その後ほぼ一定の値となった。実験期間中を通じて実験室大気を曝気していたことから、試料は十分な好気的環境にあったものと判断される。実験開始から数日間に観察されたpHの急激な低下は、有機物の活発な分解による無機炭酸の生成によるものであろう。溶存有機物濃度は初期に大きな増加を示し、固相から海水へと一部の有機物が速やかに溶解したと考えられる。その後の濃度変化が少ないことから、溶存有機物が好気的生物分解に対して安定であると言えるが、粒子からの溶解と生物分解が拮抗し、見かけ上の安定であるという可能性も考慮する必要がある。栄養塩濃度（リン酸、硝酸、亜硝酸、ケイ酸）の変化はそれぞれ複雑な変化を示しており、硝酸、リン酸、ケイ酸は長期にわたって徐々に海水中へ放出される傾向がみられた。



図(1)-14 好氣的分解培養実験における浚渫土海水混合液中の酸化還元電位 (a)、pH (b)、溶存有機炭素濃度 (c) および栄養塩類濃度 (d、e、f、g) の経時変化

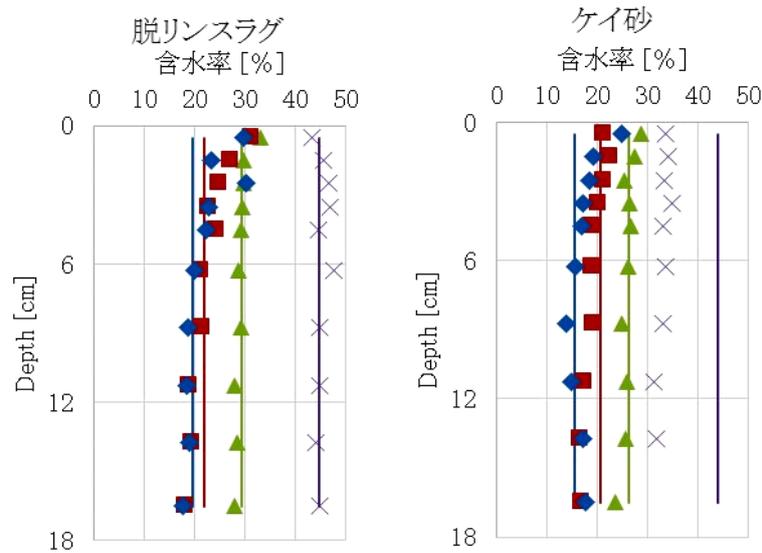
## 2) スラグ・浚渫土の特性把握のための中規模疑似現場実験（疑似堆積物（コア）試験）

### a. 土壌環境の中・長期的モニタリング

コアを設置した大型水槽内にはアメフラシやウミウシなどの生物が見られた。コアの混合土壌の種類（ケイ砂、脱リンスラグ）にかかわらずコアの周りには端脚類や藻類の付着が見られた。これらの生物は大型水槽に導入している阿賀の海水から幼生や胞子が水槽内に供給され成長したものと考えられる。

コアの混合土壌の酸化還元電位Eh (mV) は、ケイ砂-浚渫土混合土壌の方が脱リンスラグ-浚渫土混合土壌よりも高く（20～458 mV）酸化的な環境であった。ケイ砂のコアでは堆積物表面の酸化還元電位が最も高い値をとる傾向が見られたが、脱リンスラグのコアではそのような傾向はなく、表面でマイナスの値をとり深くなるにつれてプラスに転じるコアもあり、値のばらつきが大きかった。

冬実験開始後379日目のコアの含水率を図(1)-15に示す。脱リンスラグ・ケイ砂ともに浚渫土含有率が高い程含水率が高い傾向があり、379日経過後もその傾向はかわらなかった。しかし、コア作製当初は深度方向に一樣であった含水率が、379日間水槽に静置することにより、表面から5 cmまでは海水を含んで含水率をはじめより高く、それ以深は圧縮によって初期値より低くなった。堆積物の圧縮はケイ砂25%+浚渫土75%（図(1)-15右）で最も顕著ではじめ44%であった含水率が31～34%まで低下した。一方、同じ浚渫土混合比の脱リンスラグでは圧縮はほとんど起きておらず、脱リンスラグの使用は天然砂と比べて経時的な堆積物の圧縮を軽減し、土壌作成時からの経時的な土壌面の形状変化を少なくする効果が予想される。

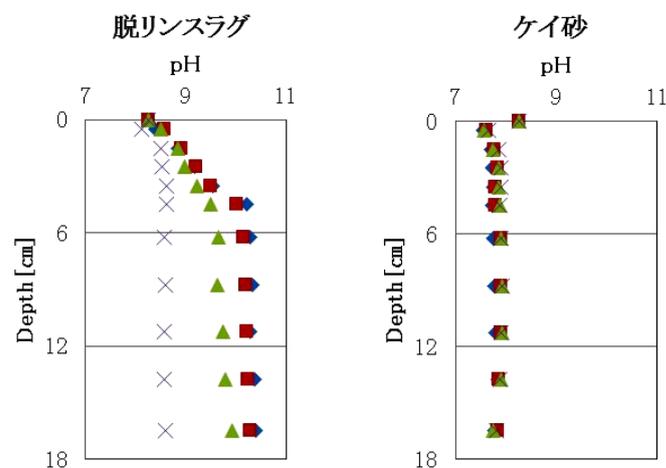


図(1)-15 冬季コア実験開始後379日目の含水率

浚渫土の乾燥混合比は◆（青）：8%、■（赤）：15%、▲（緑）：30%、×（紫）：75%。左が脱リンスラグ、右がケイ砂を用いた混合土壌。 実線は浚渫土と混合直後の含水率

#### b. 水・間隙水環境の中・長期的モニタリング

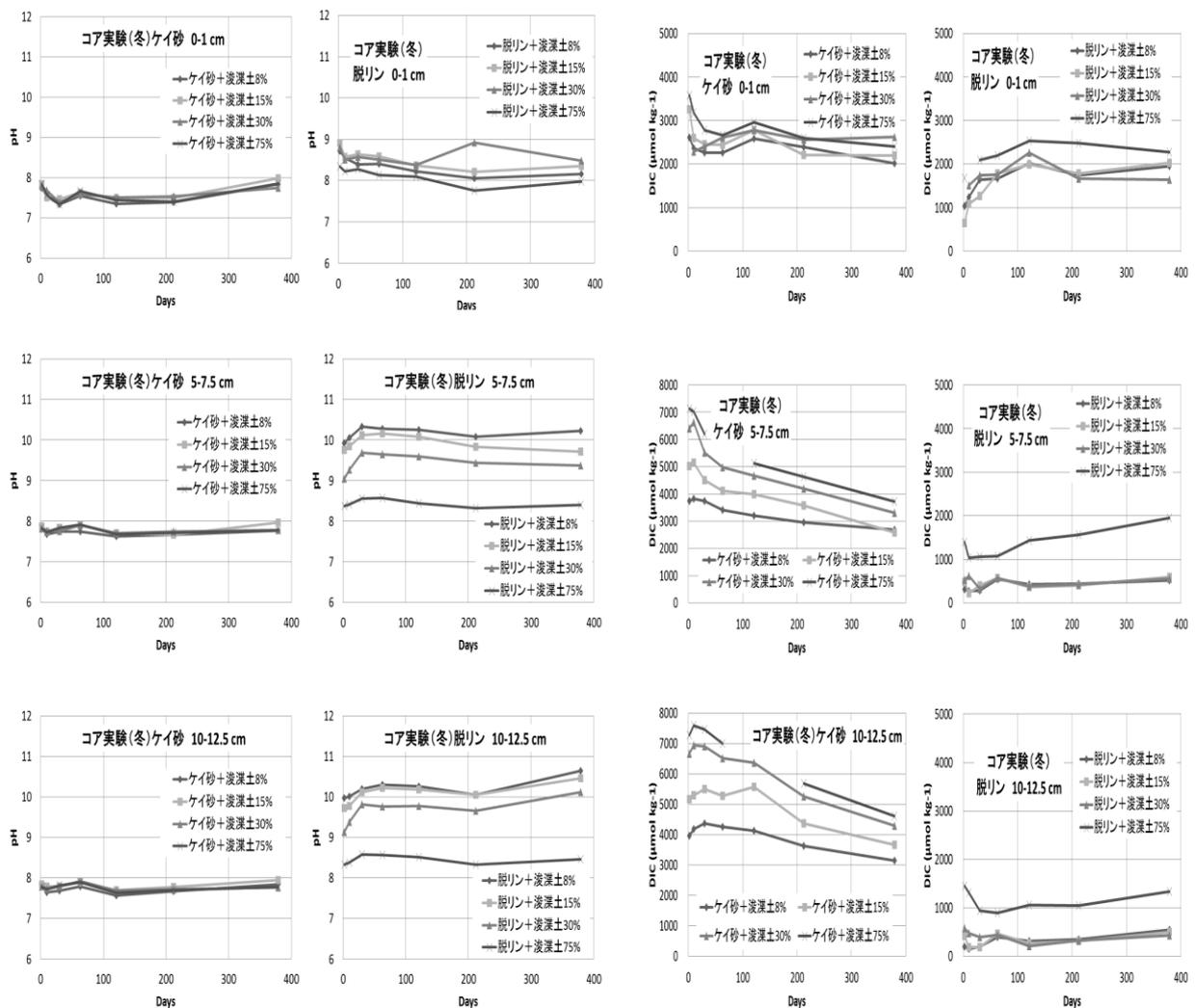
大型水槽内の海水のpHは夏季～冬季実験を通して8.0～8.3であった。夏季実験、冬季実験ともに同様の傾向が見られたので、ここでは代表して冬季実験開始後63日目におけるコア間隙水のpH深度分布を図(1)-16に示す。ケイ砂のコアでは間隙水のpHはコアの深度方向および経時的に目立った変化はみられず水槽海水よりやや低いpH7.6～7.9の値をとった（図(1)-16右）。一方脱リンスラグのコアでは、スラグの割合が高い程、深度が深い程pHが上昇する傾向がみられた（図(1)-16左）。



図(1)-16 冬季実験開始63日後のコア間隙水pHの鉛直分布

浚渫土の乾燥混合比は◆（青）：8%、■（赤）：15%、▲（緑）：30%、×（紫）：75%。左が脱リンスラグ、右がケイ砂を用いた混合土壌

混合土壌間隙水のpHおよび全炭酸（DIC）の経時変化を図(1)-17、18に示す。ケイ砂のコアは実験初期、どの深さにおいても全炭酸が非常に高濃度であった。実験直前の浚渫土中の間隙水には全炭酸、アルカリ度が高濃度で含まれていた。その比率がおよそ1:1であったことから、これらは浚渫土中の嫌氣的な硫酸還元反応（全炭酸の増加と硫酸（アルカリ度）の減少が1:1）の結果によるものと考えられる。実験初期には、この浚渫土から持ち込まれた間隙水によって全炭酸が増加したのと考えられる。その後表層0~1 cmでは急激に全炭酸濃度が低下し、直上水への拡散のため水槽内の海水のレベルに近づいていった。5~7.5 cm層、10~12.5 cm層についても約1年の実験期間の中で徐々に濃度の低下が見られ、拡散による直上水との交換効果が10 cm以深にも達していることがわかった。このように炭酸・アルカリ度では大きな変化が起こっていたが、pHについては経時的および深度方向に顕著な変化は見られなかった。これは、初期の間隙水の過剰分全炭酸とアルカリ度の比がほぼ1:1であったため、pHに及ぼす効果が相殺（通常pHは全炭酸の増加により減少し、アルカリ度の増加に伴い増加する）、pHが7~8の間に保たれたためである。



図(1)-17 冬季実験コア間隙水のpH

図(1)-18 冬季実験コア間隙水の全炭酸（DIC）

## の経時変化

一方、脱リンスラグのコアについては、浚渫土割合が8、15、30%のものについては、5 cm以深では実験開始直後にpHの上昇と全炭酸の低下がみられた。また、アルカリ度も同様に低下していることが確認された。これは、次のような現象によるものと考えられる。まず、スラグに含まれる酸化カルシウムと水が反応し間隙水中のカルシウム濃度とpHが急上昇する。この時、全炭酸は変化せず、アルカリ度が急激に上昇する。その後、pHの上昇によって、水酸化マグネシウムと炭酸カルシウムが析出する。これにより、全炭酸とアルカリ度が共に減少し、pHも低下に転じる。pH10程度で平衡に達し、安定するものと思われる。多元素分析の結果では浚渫土割合8%のコアで表層を除けば間隙水中のマグネシウムがほぼ枯渇しており、上記の反応により間隙水中のカルシウムとマグネシウムが置き換わったことが示唆されている。結果として、スラグ混合比が70%以上の場合、5 cm以深では通常の海水に比べ全炭酸・アルカリ度が低くpHが10前後と高い状態に遷移し、この状態が継続することとなった。0~1 cm層については、直上海水との混合が活発なため、pHの上昇が抑えられ、8.5前後で推移している。一方で、浚渫土割合が75%のコアについては、上記コアの中深層と異なり、コア全体としてpHの上昇が抑えられ、10~12.5 cm層でもpH8.5前後で推移している。多元素分析の結果からも、間隙水中のマグネシウムの減少はあるが、枯渇には至らないことが示されている。この理由としては、酸性度の高い浚渫土の割合が大きいことでpHの上昇が抑えられていることに加え、固化の進行も抑えられているため、直上水との交換がより活発となる効果もあると考えられる。全炭酸濃度は5~7.5 cm層では1年かけて直上海水のレベルに回復しており、10~12.5 cm層でも回復傾向が認められる。

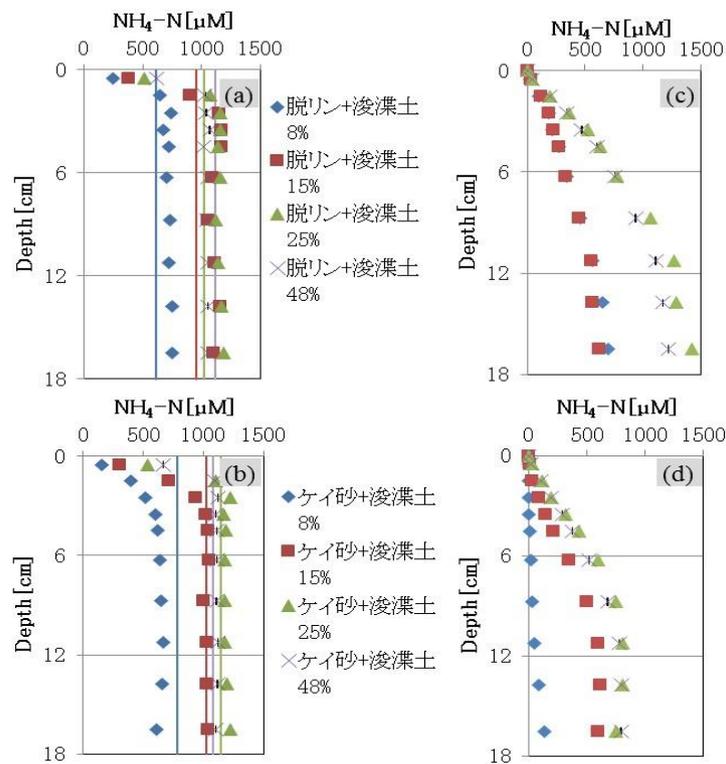
以上により、脱リンスラグ比70%以上の場合は5 cm層以深で高pHの状態が継続することが示されたが、そのような状況でも、マイクロコズム水槽実験では一定のアマモの生育が確認されている。表層5 cm層では直上海水との混合が活発であることが観察されており、pH上昇の影響は抑えられていると考えられる。ただし、脱リンスラグ25%の場合はアマモの成長がより良好であり、1年程度の短期的な評価期間の中では、pH環境としてもより適した環境であったと思われる。

夏季に開始した疑似堆積物試験では、開始日、1、3、10、28、50および80日目に試料を採取した。混合土壌間隙水中のアンモニア、硝酸、亜硝酸、ケイ酸、リン酸濃度について、特徴的な傾向のみられたアンモニア（図(1)-19）、リン酸（図(1)-20）の結果を示す。夏季コア実験開始時、浚渫土と混合した直後の間隙水は、脱リンスラグ・ケイ砂ともに浚渫土割合の最も少ないコア（浚渫土8%）で最も低い値となった（図(1)-19(a)(b)実線）。1日後、ケイ砂、脱リンスラグともコア表層は直上海水との交換による濃度の低下がみられたが、2 cm以深の間隙水のアンモニア濃度はコアの底までほぼ一様であった。1日後に混合直後よりも濃度が幾分か上昇する傾向が脱リンスラグのコアでみられた（図(1)-19(a)）。さらに時間が経過すると、表面だけでなく2cm以深についてもコア上部からアンモニア濃度の低下がみられたが、10cm以深では浚渫土の割合の高いものは80日経過後も高濃度を保った（図(1)-19(c)(d)）。特に脱リンスラグの浚渫土混合比の高いコアでは、深いところで時間の経過とともにアンモニア濃度が増す傾向がみられ、コア内部でアンモニアの生成が起きていることが示唆された。夏季コア実験開始直後、1日、80日後のリン酸濃度（図(1)-20）を見ると、間隙水中のリン酸濃度は浚渫土混合直後から80日経過後までを通してケイ砂の方が脱リンスラグより1桁程度高い値となった。ケイ砂はほとんどリンを含んでいないことから、浚渫土由来のリン酸がスラグの添加により間隙水から除去されたものと考えられる。ケイ

## の経時変化

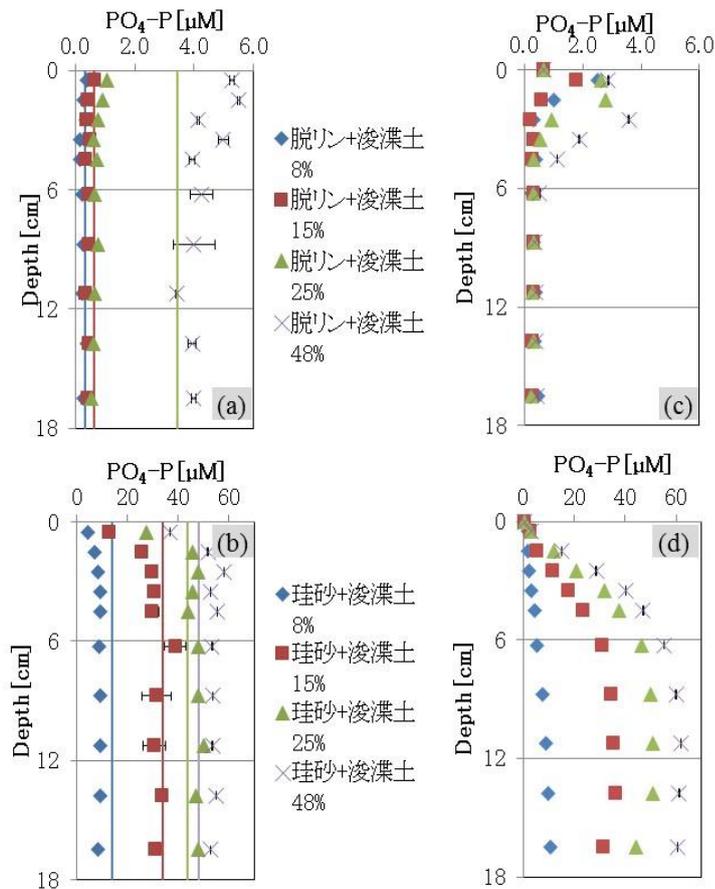
砂コアの間隙水のリン酸濃度はアンモニアと同様に時間の経過とともにコア上部から低下していく傾向がみられた。一方脱リンスラグでは時間の経過とともにコア上部でリン酸濃度の上昇がみられた(図(1)-20(c))。実験開始初期、脱リンスラグの割合の高いコアは表面から底まで一様にリン酸は低濃度であった。スラグの添加によってpHの上昇が起きたため、リン酸は高pH下でカルシウムや水酸化マグネシウムなどと結びつき不溶化していたものと考えられる。時間が経過し拡散によってコア上部からpHが低下していくにつれて、そこに徐々にリン酸が溶け出していったものと推察される。脱リンスラグは栄養塩であるリン酸を長期にわたって少しずつ土壌間隙水へと供給する肥料の役割をもつ藻場・干潟造成材として期待できる。

冬季に開始した疑似堆積物試験では、開始日、2、10、30、63、121、212日目および379日目に試料を採取した。図(1)-21に実験期間中にデータロガーで連続計測された水槽の水温変化(a)と、コア試料採取時に測定した水槽海水中の栄養塩濃度の変化(b、c)を示した。水温は1月後半から3月中旬にかけておよそ11℃と最も低く、8月中旬に約30℃と最高値を示した。海水中の栄養塩濃度は、おおむね春から初夏にかけて低くなる傾向を示した。



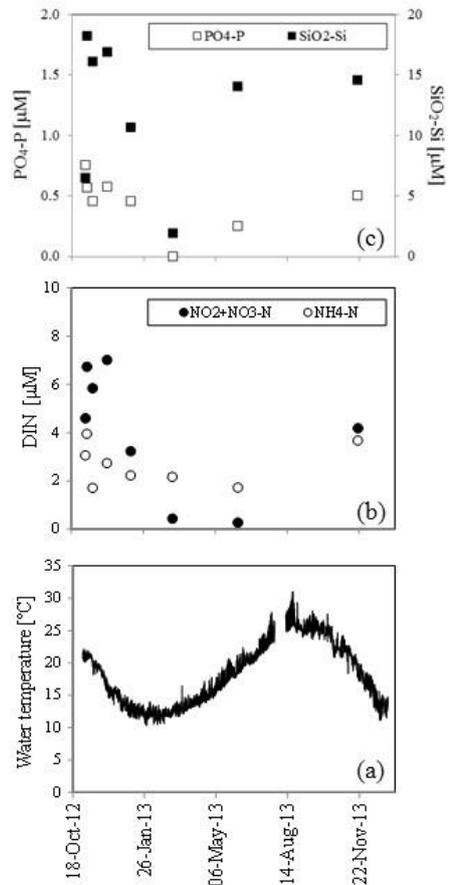
図(1)-19 夏季コア間隙水中のアンモニア濃度の鉛直分布

(a)、(b) 実験開始1日後；(c)、(d) 実験開始80日後；浚渫土の乾燥混合比は◆(青)：8%、■(赤)：15%、▲(緑)：25%、×(紫)：48%；上段が脱リンスラグ、下段がケイ砂を用いた混合土壌。  
実線は浚渫土と混合直後の間隙水濃度



図(1)-20 夏季コア間隙水中のリン酸濃度の鉛直分布 (a)、(b) 実験開始1日後；(c)、(d) 実験開始80日後；浚渫土の乾燥混合比は◆(青)：8%、■(赤)：15%、▲(緑)：25%、×(紫)：48%；上段が脱リンスラグ、下段がケイ砂を用いた混合土壌。実線は浚渫土と混合直後に採取した間隙水濃度

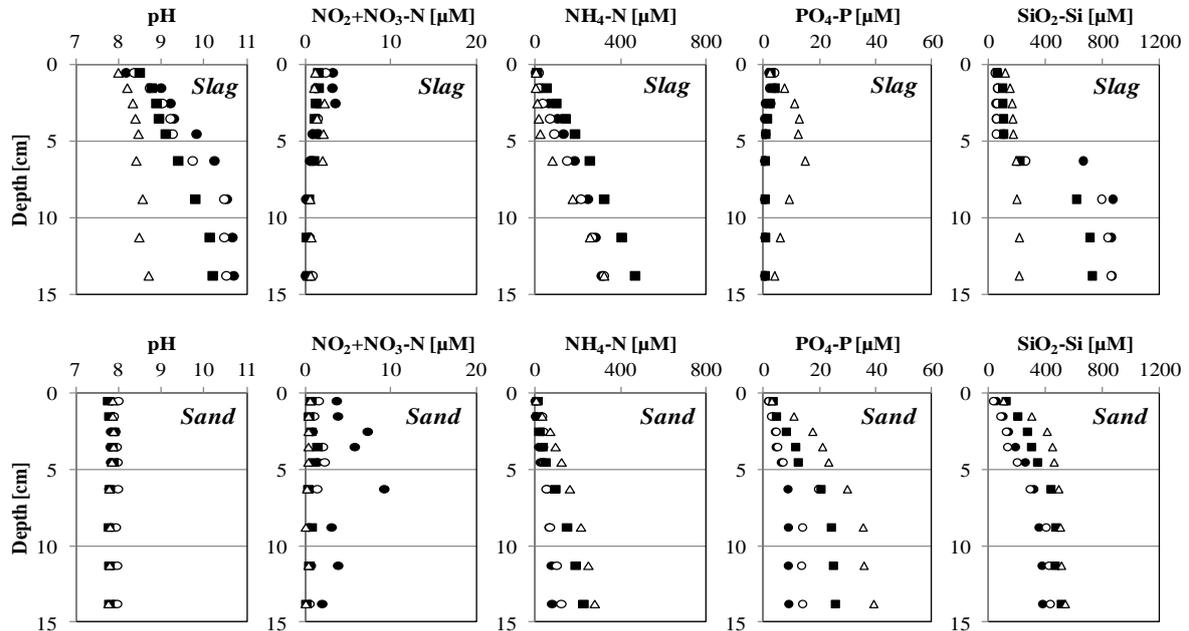
実験終了時(379日目)のコア試料間隙水中のpHおよび栄養塩類の鉛直分布を図(1)-22に示した。海水のpHは8程度であるが、スラグの混合によりpHが上昇し、スラグ含量の最も高い試料ではpHが11近くまで上昇した。コア上層部では海水との交換が徐々に進み、表面に近づくほどpHが低下しているが、深いところでは混合時の高pHが維持されていることが分かる。一方ケイ砂の混合土壌では、浚渫土に由来する酸性物質(主に炭酸)によるpHの低下がみられた。しかし、実験期間中を通じて大きな変化が無いことから、有機物の分解などpHの変動要因となる反応が大きく進行しなかったことが示唆される。ケイ砂混合土壌において硝酸及び亜硝酸態窒素( $\text{NO}_2+\text{NO}_3\text{-N}$ )の高い値が見られるものの、いずれの試料でも硝酸及び亜硝酸態窒素に比べてアンモニア態窒素( $\text{NH}_4\text{-N}$ )の濃度が二桁高く、全窒素としては深さとともに増加する傾向がみられた。主にアンモニア態窒素からなる全窒素濃度はスラグ混合土壌の方がケイ砂混合土壌より高濃度であった。これは、メタゲノム解析において、スラグ混合土壌中でアンモニア産生に関わる細菌群集の増加が示唆され



図(1)-21 コア試料沈置実験における水槽海水の水温(a)および栄養塩濃度(b、c)の経時変化

たこととよく一致する結果である。リン酸態リン ( $\text{PO}_4\text{-P}$ ) ではスラグ混合土壌とケイ砂混合土壌で分布や濃度に顕著な違いが見られた。スラグの混合率が25%より高い混合土壌では、ケイ砂の混合土壌に対してリン酸態リン濃度が一桁低くなっている。製鋼スラグには高濃度のリンが含まれると報告されているが、それらのリンが放出されるよりも、むしろ現場間隙水中のリン酸を吸着していると推測される。ケイ酸態ケイ素 ( $\text{SiO}_2\text{-Si}$ ) の濃度は、pHに対する顕著な依存性が認められ、pHの高いスラグ混合土壌の5 cm以深で急激に濃度の増加が見られた。pHの上昇に対してケイ酸態ケイ素の濃度上昇が急激であることから、pH10付近にケイ酸の溶解に関わる閾値が存在するものと推定される。

海水と堆積物表層間隙水の各栄養塩の濃度差、水温および含水率、比重等から求めた分子拡散係数を用いて、堆積物表層から海水への栄養塩の拡散フラックスを計算した。表(1)-5に実験期間379日間のフラックスの積算値をまとめた。いずれの混合土壌においても浚渫土の割合が高くなると海水への栄養塩の拡散フラックスが大きくなることが分かった。このことから、栄養塩の放出のソースとしては、スラグ（またはケイ砂）よりも浚渫土の寄与が大きいと判断される。上述した間隙水中の濃度と同様に、リン酸の拡散フラックスはスラグの混合により一桁小さくなった。この結果は、スラグに大量に含まれるリンの放出は極めてゆっくりとした反応であり、沿岸生態系の底質に脱リンスラグを用いても急激な栄養塩の放出による富栄養化の懸念は小さく、脱リンスラグが徐放的なリンの施肥効果を有することを示している。スラグをアマモ場に利用する際には、根の呼吸等による間隙水の酸性化がスラグ中の高濃度のリンの放出を促すと推測され、周辺環境に悪影響を及ぼすことなく、根圏にピンポイントで効果的な施肥作用が期待される。



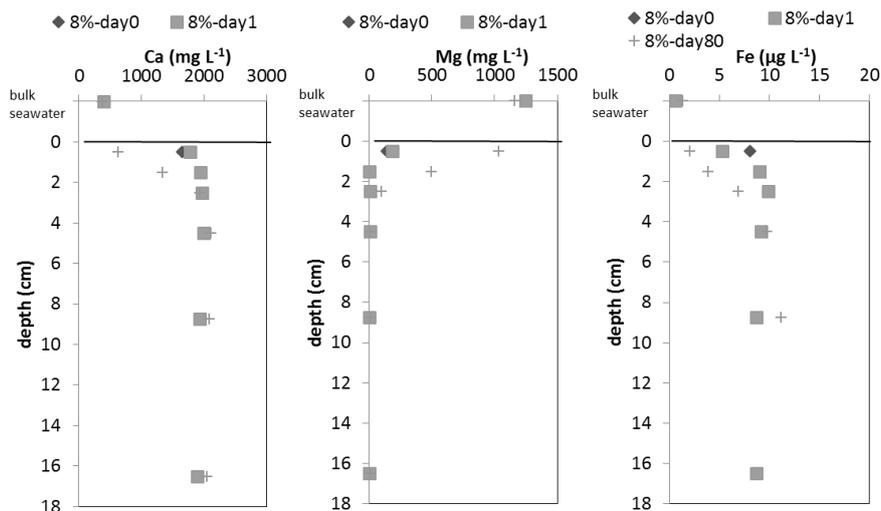
図(1)-22 水槽沈置実験379日目におけるコア試料中の間隙水のpHおよび栄養塩類濃度の鉛直分布（浚渫土の乾燥混合比は●：8%、○：15%、■：30%、△：75%）。上段が製鋼スラグ、下段がケイ砂を用いた混合土壌

表(1)-5 スラグおよびケイ砂混合土壌のコア試料からの栄養塩類の拡散フラックス積算値。

		スラグ混合土壌				ケイ砂混合土壌			
		浚渫土混合割合	8%	15%	30%	75%	8%	15%	30%
窒素	拡散フラックス積算値 [mmol m <sup>-2</sup> ]	1050	1292	1678	3031	560	1009	1446	2889
リン	拡散フラックス積算値 [mmol m <sup>-2</sup> ]	0.73	1.27	7.78	62.9	8.95	21.2	40.3	154
ケイ素	拡散フラックス積算値 [mmol m <sup>-2</sup> ]	237	283	498	1234	210	260	418	1644

スラグー浚渫土混合土壌から金属成分が土壌間隙水へ溶出する挙動を解明するために、柱状化した土壌試料を設置した海水流入水槽において溶出試験を行った。浚渫土8%および48%(w/w, dry)の比率で混合した脱リンスラグー浚渫土の混合土壌コアを設置した海水連続流入水槽の夏季試験環境下における間隙水中の金属成分の経時変化(0~80日)および土壌深度依存性(0~18cm)を測定した。金属成分は21元素(Li、Na、Mg、Al、K、Ca、V、Cr、Mn、Fe、Co、Ga、As、Rb、Sr、Cd、Cs、Ba、Hg、Pb、U)を測定した。以下、スラグからの溶出や吸着が顕著であった元素の測定例として、浚渫土8%混合土壌環境の主要元素のカルシウムおよびマグネシウム、および微量元素の鉄の測定結果を図(1)-23に示す。

カルシウムについては、初期(day=0)条件では脱リンスラグからの多量の溶出が観測された。間隙水濃度の経時変化は、スラグ比率が高い浚渫土8%土壌では0~2cmの土壌深度では減少した一方、スラグ比率が低い浚渫土48%の混合土壌では、1 cm以深で濃度は増加した。また、両土壌の間隙水濃度は1ヶ月経過後にほぼ一定となり、高深度の方が高濃度であった。濃度が一定になった後、1~5 cmの間隙水濃度はスラグ高比率土壌の方が高値であった一方、深度0~1 cmおよび7.5 cm以深はほぼ同等であった。また、深度0~1 cmは海水濃度に近い低濃度であったことから、海水と間隙水が交換されていることが示唆された。

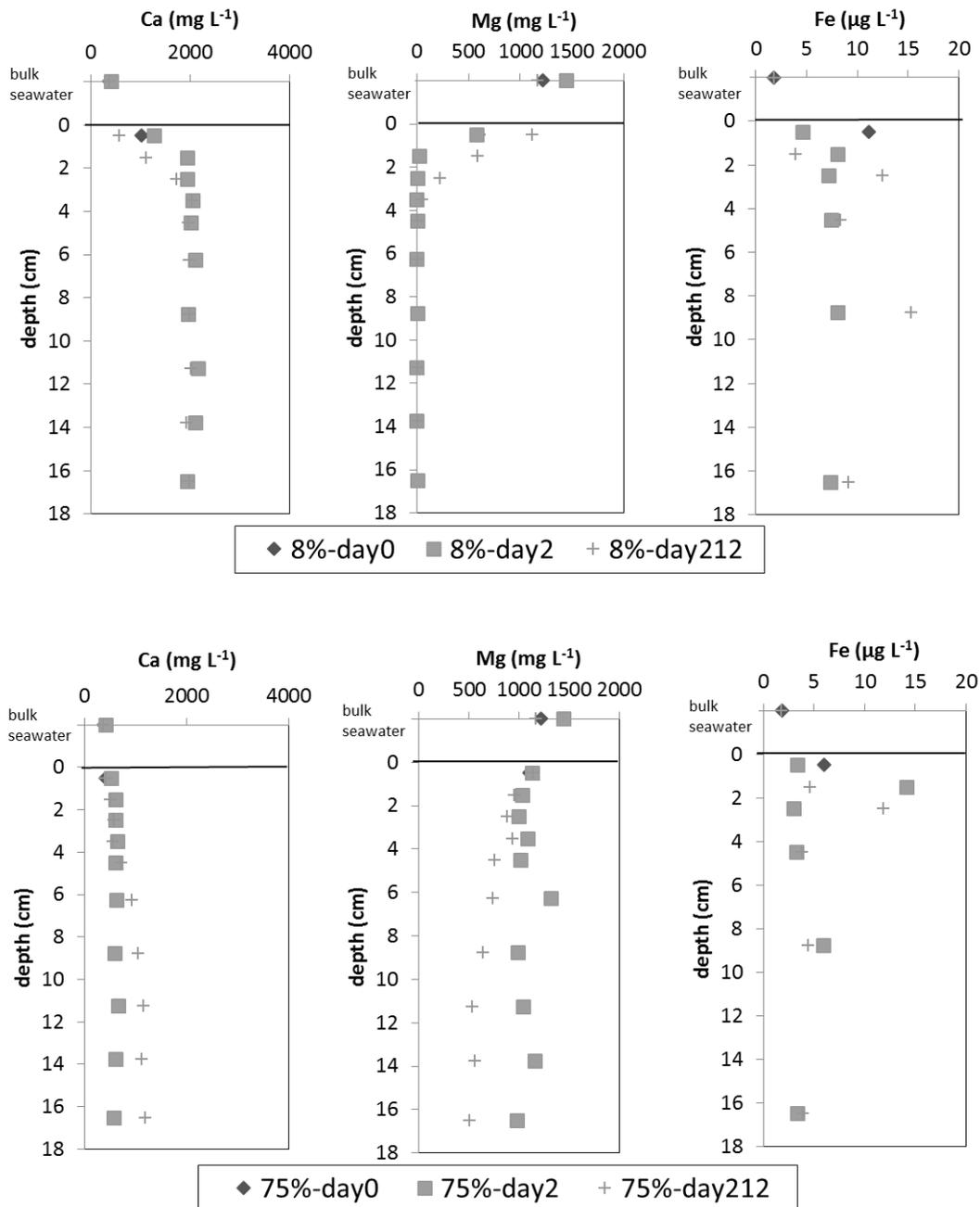


図(1)-23 脱リンスラグー浚渫土混合土壌コア夏季実験におけるカルシウム、マグネシウム、および鉄の間隙水濃度の経時変化 (浚渫土8%混合土壌)

マグネシウムについては、間隙水濃度は水槽に流入させた海水濃度よりも低値であったことから、スラグ由来の間隙水のpH上昇に伴う沈殿、および脱リンスラグや浚渫土への吸着の可能性が示唆された。間隙水濃度の経時変化は、スラグ高比率土壌では0~2 cmの土壌深度では増加した一方、スラグ低比率土壌では1 cm以深で減少した。また、1ヶ月経過後の間隙水濃度はほぼ一定となり、高深度の方が低濃度の傾向であった。さらに、0~5 cmの深度ではスラグ高比率土壌の方がスラグ低比率土壌より低濃度であった一方で、深度7.5cm以深はほぼ同等であった。鉄については、初期(day=0)条件では脱リンスラグからの溶出が観測された。間隙水濃度の経時変化は、短期間の10日後にほぼ一定となり、また、高深度の方が高濃度の傾向であった。以上の結果より、夏季のコア実験系における脱リンスラグの添加は、特に土壌深度1 cm以深の間隙水中で、カルシウムおよび鉄濃度を増加させる一方、マグネシウム濃度を減少させる効果があり、また、これらの効果は少なくとも2ヶ月以上は維持されることが明らかとなった。

冬季コア試験では、浚渫土8%および75%(w/w, dry)の比率で混合した脱リンスラグー浚渫土の混合土壌のコア試験系の間隙水中の21 元素 (Li, Na, Mg, Al, K, Ca, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ga, As, Rb, Sr, Cd, Cs, Ba, Hg, Pb, U)の経時変化(0~212日)を測定した。冬季試験は、夏季試験と比較して、浚渫土混合比を大きく変化させた条件で、より長期間の経時変化を観測した。また、夏季試験で注目したスラグからの溶出や間隙水からの消失が顕著であった主要元素のカルシウムおよびマグネシウムと、微量元素の鉄に再び注目した。各元素濃度の経時変化および深度依存性の測定結果を図(1)-24に示す。

カルシウムの混合土壌からの溶出が観測された。間隙水濃度は脱リンスラグ比率が高い浚渫土8%混合土壌の方がスラグ比率の低い75%混合土壌よりも高いことから、脱リンスラグから間隙水への溶出が示唆された。別途測定した間隙水pHは約8.0~10.5まで上昇したが、この溶出がpHの上昇要因の一つとなっていると考えられる。間隙水濃度の経時変化は、浚渫土8%混合土壌では3cm以深で高濃度を維持した一方、3 cm以浅では減少し、海水と間隙水との交換がある程度進んでいることが示唆された。浚渫土75%の混合土壌では3 cm以浅は土壌からの低溶出と上記の海水交換により間隙水濃度は海水濃度とほぼ同程度の低濃度で維持された。一方、3 cm 以深では間隙水濃度が増加し、海水交換よりも土壌からの溶出が支配的と考えられた。両混合土壌の間隙水濃度は約4ヶ月経過後にほぼ一定となった。一定後の間隙水濃度の深度依存性は、浚渫土8%混合土壌では深度4cmまで増加し、その後ほぼ一定となった。これは4cm以深の間隙水のpHが約9.5~10.5となり、カルシウムが水酸化物として沈殿するためと考えられる。一方、浚渫土75%混合土壌では8 cmまで増加し、それより以深はほぼ一定となった。間隙水のpHは約7.7~8.7と低く、また、間隙水濃度も8%混合土壌よりも低いことから、上記のpH上昇による沈殿の影響はなく、土壌の低いスラグ含有率がカルシウムの供給量を制限したためと考えられた。マグネシウムはカルシウムと反対の傾向を示した。マグネシウムの間隙水濃度は混合土壌の投入により減少し、浚渫土8%混合土壌では75%混合土壌よりも減少した。これはスラグ由来の間隙水のpH上昇による水酸化マグネシウムの沈殿が要因と考えられた。間隙水濃度の経時変化は、浚渫土8%混合土壌は3 cm以深で低濃度を維持した一方、3 cm以浅で濃度増加し、海水と間隙水との交換が示唆された。一方、浚渫土75%混合土壌では全深度で濃度減少した。両混合土壌の間隙水濃度は約4ヶ月経過後にほぼ一定となった。一定後の間隙水濃度の深度依存性は、浚渫土8%混合土壌では高深度であるほどより低濃度となった。間隙水pHは深度に従いより高値であることから、マグネシウムの沈殿が促進されたと考えられる。



図(1)-24 脱リンスラグ-浚渫土混合土壌コア冬季実験におけるカルシウム、マグネシウム、および鉄の間隙水濃度の経時変化と深度依存性

一方、浚渫土75%混合土壌ではマグネシウム濃度は11cmまで減少し、それより以深はほぼ一定となった。間隙水のpHの上昇は約8.7までと限定的であるため、沈殿生成量も少ないと考えられた。鉄はカルシウムと同様に混合土壌から溶出した。間隙水濃度は浚渫土8%混合土壌の方が75%混合土壌よりも総じて高いことから、脱リンスラグからの溶出が示唆された。鉄は微量であり、かつ水槽などの試験環境由来の汚染が生じやすいため、いくつかの異常な高濃度値（例：75%混合土壌、深度1-2 cm、day=2）が観測されたが、総じて以下の様な傾向であった。浚渫土8%混合土壌の間隙

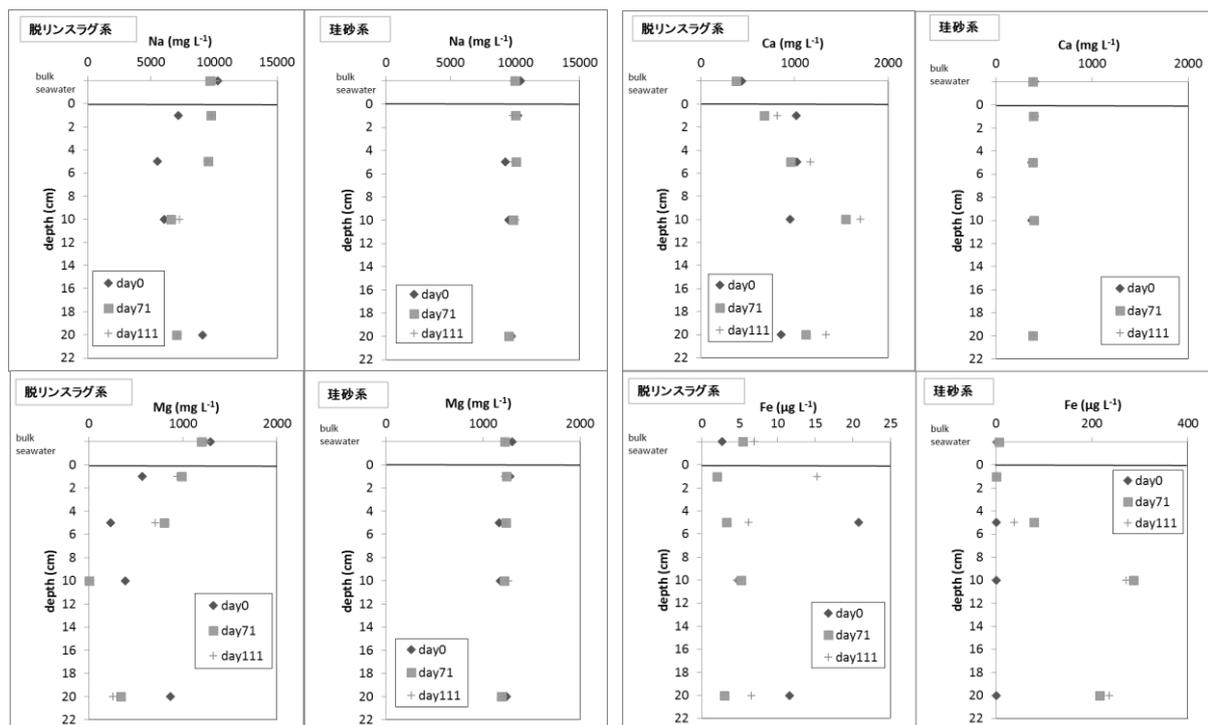
水濃度の経時変化は、2 cm以浅では減少した一方、深度2 cm以深では増加した。前者は間隙水との海水の交換によるものと思われる。また、各々の濃度変化は約2ヶ月後にはほぼ一定となり、その深度依存性は深度2cmまでは増加し、それより以深はほぼ一定となった。これは深度増加によるpH上昇がスラグからの鉄の溶出を促進したと考えられた。一方、浚渫土75%の混合土壌では試験環境由来の汚染と思われる一部の異常高値を除いて、総じて海水濃度とほぼ同程度であり、鉄の間隙水濃度の増減はなかった。

以上の結果、コア冬季試験における脱リンスラグの添加は、カルシウムおよび鉄濃度を増加させる一方、マグネシウム濃度を減少させる効果があり、これらの効果は少なくとも6~7ヶ月以上は維持されることが明らかとなった。また、これらの増減傾向は夏季試験と類似したものであった。

### 3) スラグ・浚渫土の特性把握のための大規模疑似現場実験

#### a. 製鋼スラグと浚渫土の混合土壌を用いた干潟マイクロコズム条件下で金属成分の動態

浚渫土混合比8%の脱リンスラグー浚渫土混合土壌を敷設した干潟マイクロコズム環境において、土壌間隙水中の金属成分の経時変化および深度依存性を調べた。カルシウム、マグネシウム、鉄およびナトリウムの結果を図(1)-25に示す。



図(1)-25 脱リンスラグー浚渫土および珪砂ー浚渫土混合土壌を用いた干潟シュミレータ環境におけるナトリウム、マグネシウム、カルシウム、および鉄の間隙水濃度の経時変化と深度依存性

混合土壌の混合調製時にコア実験では海水を用いたのに対して、本実験では水道水を用いた。このため土壌間隙水の元素の初期濃度が海水とは異なっているが、その差を利用して各深度の流入海水の置換時間を知ることが出来ると考えた。具体的にはナトリウム濃度は海水にて高いが、

スラグおよび浚渫土からの溶出量が少ないため、濃度変化から流入海水の置換の程度を判断することが出来ると予想された。深度0~5 cmの間隙水において、day0のナトリウム濃度は海水濃度よりも低濃度であるが、day71では海水濃度とほぼ同等まで増加していることから、本実験環境では深度0~5 cmでは流入海水との完全置換に約2ヶ月を要すると考えられた。一方で、5 cm以深では111日経過しても置換が不十分であることが示唆された。以後の金属成分の解析は、この海水に置換された深度0~5cmのday71以降のデータを用いて行った。各元素の深度依存性を調べると、深度0~5cmの範囲ではカルシウムおよびマグネシウムはコア実験系と同様な増減傾向が観測された。すなわち、カルシウムは深度に対して増加傾向であった一方、マグネシウムは深度に対して減少傾向であった。鉄はコア実験系とは異なり、海水濃度とほぼ同等で溶出が観測されず、また、明確な深度依存性も観測されなかった。これは土壤の初期条件がコア実験系と異なることが影響している可能性もあると考えている。一方、対照区として用いた珪砂-浚渫土混合土壤では、カルシウム、マグネシウム、ナトリウムは溶出および吸着は観測されなかった。しかし、鉄濃度はday71以降、深度5 cmでは脱リンスラグ混合土壤環境よりも10倍以上高く、珪砂からの多量の溶出が示唆された。珪砂混合土壤を製鋼スラグ混合土壤試験のネガティブコントロール、すなわち金属成分が溶出しない固相として利用する観点からは、カルシウム、マグネシウム、およびナトリウムについては適当であるが、鉄など一部の微量元素は多く溶出するものもあり、生物生育への影響評価などでは注意を要すると考える。

#### b. アマモ大型水槽実験における細菌叢の16S rRNAメタゲノム解析

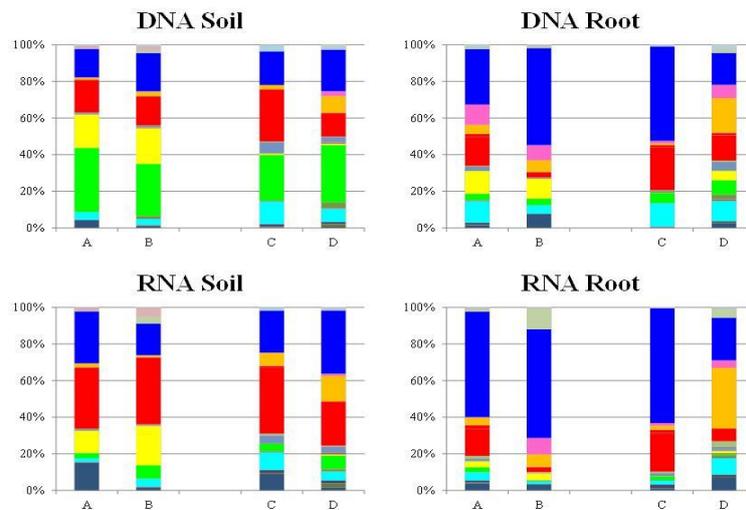
メタゲノム解析を行ったアマモ大型水槽実験における間隙水のpHは、「脱リンスラグのみ」、「脱リンスラグ-浚渫土混合土壤」、「ケイ砂のみ」、「ケイ砂-浚渫土混合土壤」がそれぞれ、9.64、6.22、7.60、8.17であった。「脱リンスラグのみ」および「脱リンスラグ-浚渫土混合土壤」のpHは、「ケイ砂のみ」および「ケイ砂-浚渫土混合土壤」のpHよりもややアルカリ側を示した。脱リンスラグのみ」と「脱リンスラグ-浚渫土混合土壤」を比較すると、浚渫土が存在すると、土壤中の間隙水を $\Delta$ pH 0.4程度下げる効果があることが示唆された。間隙水中の栄養塩濃度を表(1)-6にまとめた。硝酸塩は、「脱リンスラグ-浚渫土混合土壤」において他の試料よりも1桁低かった。亜硝酸は、「脱リンスラグのみ」で検出限界以下、その他の試料でも濃度は低かった。アンモニアは、「脱リンスラグ-浚渫土混合土壤」で、他の試料よりも1桁以上高い値を示した。次いで「脱リンスラグのみ」で高く、「ケイ砂のみ」および「ケイ砂-浚渫土混合土壤」では約 $0.7 \mu\text{M-N}$ であった。リン酸の濃度は、「ケイ砂-浚渫土混合土壤」>「脱リンスラグ-浚渫土混合土壤」>「脱リンスラグのみ」の順番であり、「ケイ砂のみ」では検出限界以下であった。ケイ酸は、「ケイ砂のみ」の試料で最も低く、他の試料ではほぼ同じくらい（約 $70 \mu\text{M-Si}$ ）であった。

次世代シーケンサーを用いた細菌叢の16S rRNAメタゲノム解析により、試料中の細菌を門、綱、目、科、属、種の階層（レベル）まで分類した。図(1)-26に、門のレベルで分類した結果（Proteobacteria門のみ綱のレベルで分類）を示す。DNA解析の結果、土壤・アマモ根圏のいずれにおいても、同定された細菌の門に大きな差は見られず、スラグ添加によって多様性は大きく損なわれないことがわかった。各土壤条件によって優占する種類は、DNAの結果とRNAの結果で異なり、物質フローに関わる細菌叢を明らかにするためには、RNAに基づく解析が必要であることが示

された。

表(1)-6 間隙水中の栄養塩濃度。A：脱リンスラグのみ、B：脱リンスラグ-浚渫土混合土壌、C：ケイ砂のみ、D：ケイ砂-浚渫土混合土壌。

試料	硝酸 (μM-N)		亜硝酸 (μM-N)		アンモニア (μM-N)		リン酸 (μM-P)		ケイ酸 (μM-Si)	
	MN	SD	MN	SD	MN	SD	MN	SD	MN	SD
A	0.19	0.01	0.00	0.00	3.91	0.06	0.08	0.01	70.03	0.07
B	0.02	0.02	0.01	0.02	45.07	0.21	0.71	0.00	71.99	0.03
C	0.13	0.01	0.02	0.01	0.65	0.03	0.00	0.00	20.34	0.07
D	0.18	0.02	0.03	0.01	0.74	0.05	2.84	0.00	67.29	0.07



- Other
- Actinobacteria
- BHI80-139
- CD12
- Chlamydiae
- Cyanobacteria
- FCPU426
- Fusobacteria
- GOUTA4
- Hyd24-12
- LD1
- NKB19
- OP1
- OP8
- Planctomycetes
- Proteobacteria\_Alphaproteobacteria
- Proteobacteria\_Epsilonproteobacteria
- Proteobacteria\_Zetaproteobacteria
- SC4
- TA06
- TPD-58
- VHS-B3-43
- WS1
- WWE1
- [Thermi]
- AC1
- AncK6
- BRC1
- Caldiserica
- Chlorobi
- Deferribacteres
- Fibrobacteres
- GN02
- Gemmatimonadetes
- KSB3
- Lentisphaerae
- Nitrospirae
- OP11
- OP9
- Poribacteria
- Proteobacteria\_Betaproteobacteria
- SAR406
- SR1
- TM6
- Tenericutes
- Verrucomicrobia
- WS2
- ZB3
- Acidobacteria
- Armatimonadetes
- Bacteroidetes
- Caldithrix
- Chloroflexi
- Elusimicrobia
- Firmicutes
- GN04
- H-178
- LCP-89
- MVS-104
- OD1
- OP3
- PAUC34f
- Proteobacteria\_Other
- Proteobacteria\_Deltaproteobacteria
- Proteobacteria\_TA18
- SBR1093
- Spirochaetes
- TM7
- Thermotogae
- WPS-2
- WS3
- [Caldithrix]

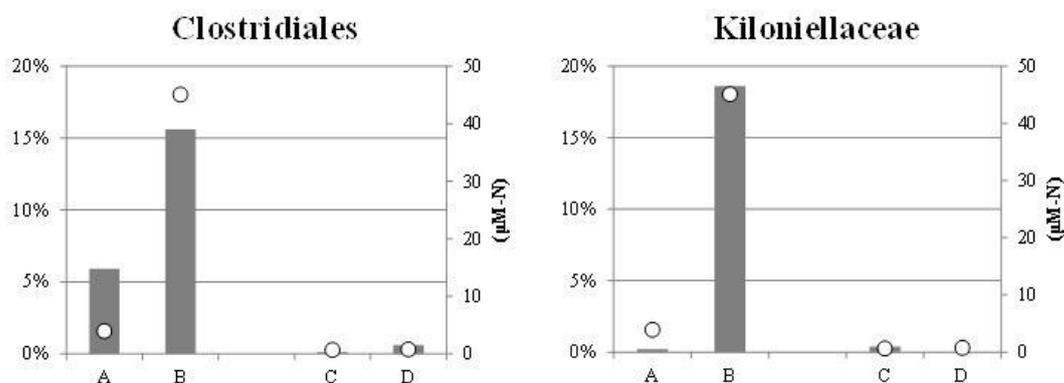
(インデックスの左上から右下に向けて、図では下から上に配置)

図(1)-26 16S rRNA遺伝子の細菌メタゲノム解析の門レベル (Proteobacteria門のみ網レベル)での分類結果。DNA Soil：土壌DNA由来細菌、DNA Root：アマモ根DNA由来細菌、RNA Soil：土壌

RNA由来細菌、RNA Root：アマモ根由来細菌。A：脱リンスラグのみ、B：脱リンスラグー浚渫土混合土壌、C：ケイ砂のみ、D：ケイ砂ー浚渫土混合土壌

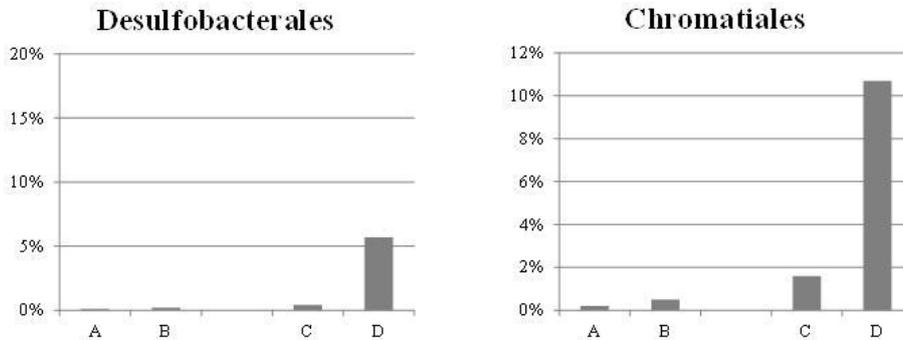
土壌中の細菌RNAにおいて、「脱リンスラグー浚渫土混合土壌」で割合が高くなった種類を図(1)-27に示す。Firmicutes門、Clostridia綱、Clostridiales目は、タンパク質などの有機物の嫌気分解を行う一次発酵性細菌であり、Proteobacteria門、Alphaproteobacteria綱、Kiloniellales目、Kiloniellaceae科は硝酸還元活性を持ち、両方とも代謝産物としてアンモニアを産生する。脱リンスラグー浚渫土混合土壌系では、実際にアンモニア濃度が高かったことから、細菌の代謝活性が物質フローに関与していた可能性が示唆された。次に、「ケイ砂ー浚渫土混合土壌」で割合の高かった種類を図(1)-28に示す。Proteobacteria門、Deltaproteobacteria綱、Desulfobacteriales目は硫酸還元菌であり、Proteobacteria門、Gammaproteobacteria綱、Chromatiales目はイオウ酸化菌である。このことから、スラグ添加区では、硫酸還元やイオウ酸化が弱まっている可能性が考えられた。

以上をまとめ、従来考えられてきたコンセプトを図(1)-29左側に、本研究の結果に基づいて考案した物質フローを図(1)-29右側に示す。従来のコンセプトは、スラグに大量に含まれる鉄が溶解し、植物の栄養源として作用するというものであり、フルボ酸などがキレートとして働き、鉄の溶解や生物への取り込みを促進するという仮説も提唱されていた。メタゲノム解析の結果から考案した物質フローでは、スラグの添加により有機物の分解と硝酸還元が促進され、アマモの栄養塩であるアンモニアの供給が増加すること、鉄の代謝に関わる細菌には顕著な変化は見られないうが、発酵細菌が増加（発酵的作用の促進）により、鉄のキレート化に関わるフルボ酸などの生成が起こること、脱リンスラグー浚渫土混合土壌では、ケイ砂のみの試料に比べると1桁高いリン酸の供給がなされていたことから、脱リンスラグと浚渫土の存在下には鉄、窒素、リンの調和的な供給がなされていることが示唆された。そして、有機物の酸化還元の観点からみると、スラグ添加の系では、硫酸還元系から、細菌にとってよりエネルギー効率の良い硝酸還元系へ生態系の遷移が起こっていたことが推測された。さらなる波及効果として、青潮など他の環境問題への応用の可能性もみえてきた。

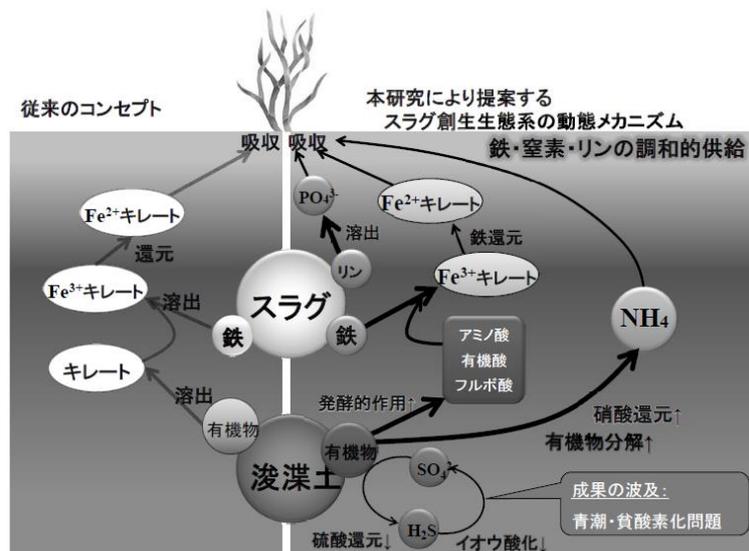


図(1)-27 土壌中の細菌RNAにおいて脱リンスラグー浚渫土混合土壌で割合が高くなった種類  
**Clostridiales**:Firmicutes門、Clostridia綱、Clostridiales目。**Kiloniellaceae**:Proteobacteria門、Alphaproteobacteria綱、Kiloniellales目、Kiloniellaceae科。○：アンモニア（μM-N）。

A : 脱リンスラグのみ、B : 脱リンスラグー浚渫土混合土壌、C : ケイ砂のみ、D : ケイ砂ー浚渫土混合土壌。



図(1)-28 土壌中の細菌RNAにおいてケイ砂ー浚渫土混合土壌で割合の高かった種類  
**Desulfobacterales** : Proteobacteria門、Deltaproteobacteria綱、Desulfobacterales目。  
**Chromatiales** : Proteobacteria門、Gammaproteobacteria綱、Chromatiales目。A : 脱リンスラグのみ、B : 脱リンスラグー浚渫土混合土壌、C : ケイ砂のみ、D : ケイ砂ー浚渫土混合土壌。



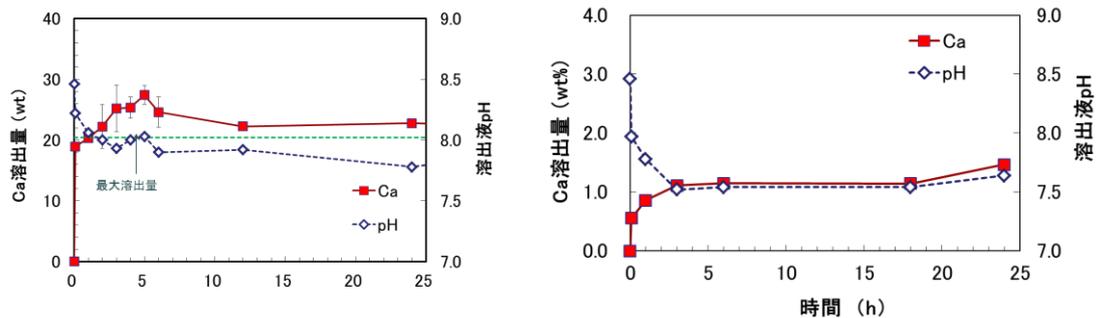
図(1)-29 細菌叢の16S rRNAメタゲノム解析の結果に基づいて考案した物質フロー

#### 4) カルシウムの溶出

##### a. 溶出ポテンシャル

Ca溶出が大きい脱炭スラグを用いて、固液比をJ-CAS法の10倍および溶出時間を5分から120分まで延長した効果を下図に示す。J-CAS法の条件では溶出可能なカルシウム量は約12%となったが、時間延長により26%まで増加することがわかった(図(1)-30)。また、溶媒量を増加させることで最大溶出に達する時間が短縮された。別に回分試験によるスラグからのCa溶出がなくなるまで海水を交換した実験によって使用した脱炭スラグの最大Ca溶出量を28%と定量しており、今回改善したf-Ca定量法でほぼ最大カルシウム溶出量を定量できることを確認した。またここでは、本法でも表(1)-1で用いた参考鉱物からはほとんど溶出しないことも確認できた。

本試験ではpHが急激に増加しており、カルシウムの溶出速度低下を引き起こしている可能性がある。そこでpH上昇を9以下に維持できるTris-HCl量を評価したところ100 mM以上であることがわかった。Tris-HCl 100 mMを添加し、固液比1/100でカルシウムの溶出挙動を評価したところ図(1)-30に示すように、6時間で定量できる事が分かった。この時、遊離酸化カルシウム以外のカルシウム鉱物資源はほとんど抽出されないことを確認した。以上のように新規溶出可能カルシウム定量法を開発したことによって、従来法で定量された量の実際には2.5倍程度のカルシウムが溶出することを明らかにできた。



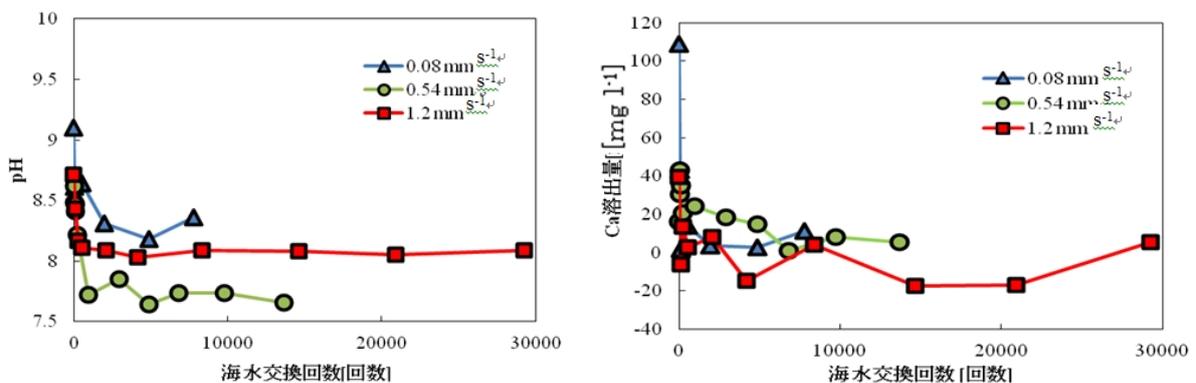
(a) : 脱炭スラグ

(b) 脱リンスラグ

図(1)-30 スラグからのカルシウム溶出量およびpHの時間変化

## b. カラム試験

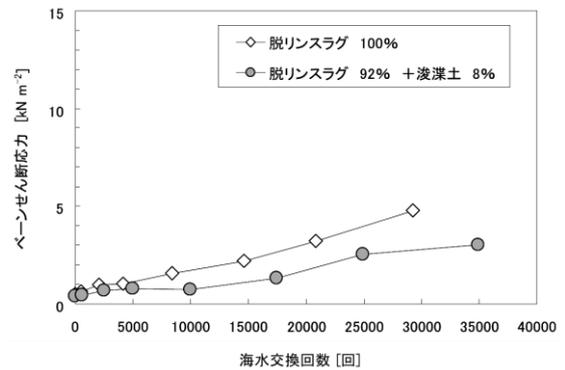
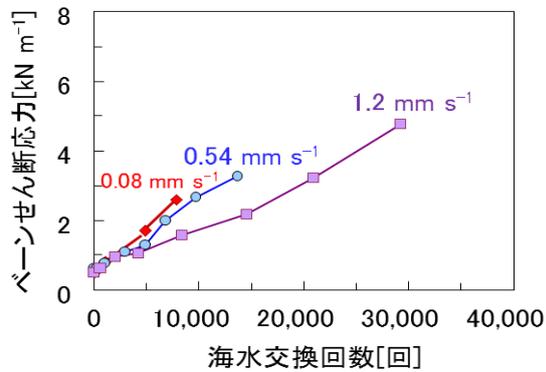
カルシウム溶出の加速試験を行うため最大で一日2回の潮汐の単純計算で約30年の通水カラム試験を行った。脱リンスラグのみの系（浚渫土0%）では海水供給直後にカルシウムが溶出してpH約9.0まで上昇したが（図(1)-31(a)）、海水交換回数が約5000回に達するとカルシウムの溶出は無くなり（図(1)-31(b)）、pHは海水と同程度となった。せん断応力は海水の交換と共に上昇し続け、約2万回の海水交換で広島県の天然干潟（後述）のせん断応力上限値(3.3 kN m<sup>-2</sup>)を超えた（図(1)-32）。加えて浚渫土の添加でせん断応力の上昇速度を低減できることがわかった（図(1)-33）。塊粒化した脱リンスラグは赤茶色化しており、粒子間には酸化鉄を主成分とする閉塞物質が確認（樹脂固定、切断、研磨後のEPMA観察、元素マッピング）され、この酸化鉄によって複数のスラグ粒子同士が結合しているようであった（図(1)-34）。つまり海水中のD0とスラグ粒子中の鉄が反応してできる酸化鉄が、脱リンスラグ固化の一因であると考えられた。



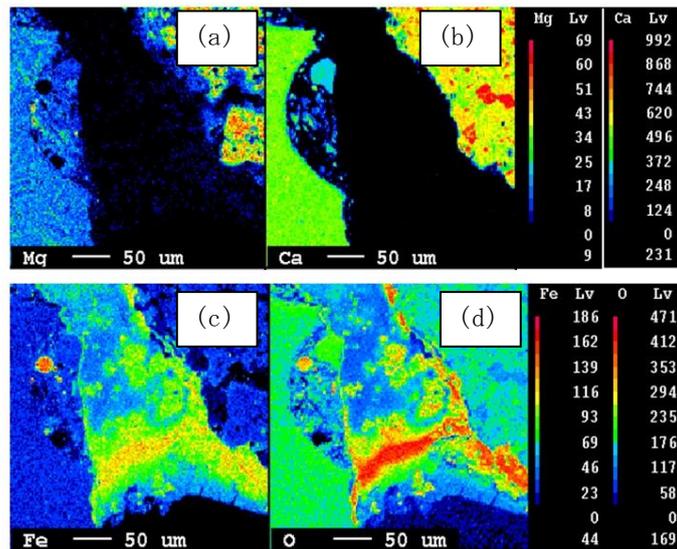
(a)

(b)

図(1)-31 脱リンスラグの海水交換によるpHおよびカルシウム濃度の変化



図(1)-32 3種の流速での脱リンスラグの海水交換によるせん断応力の変化

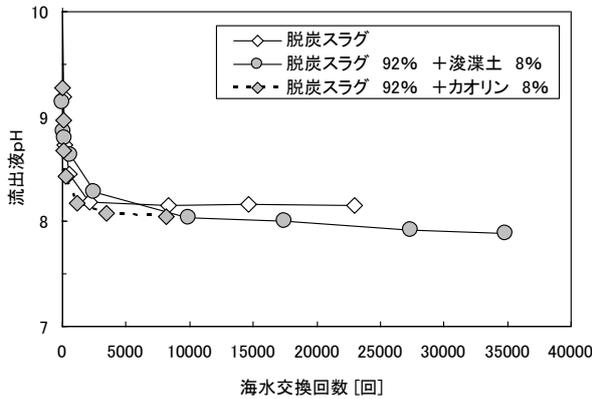
図(1)-33 浚渫土添加の有無がせん断応力上昇に及ぼす影響 (脱リンスラグ) ( $3 \text{ mm s}^{-1}$ )

図(1)-34 脱リンスラグ粒子間閉塞物質内のMg(a)、Ca(b)、Fe(c)、O(d)の分布 (Mgのマッピング写真で左右の比較的均一な部分がスラグ)

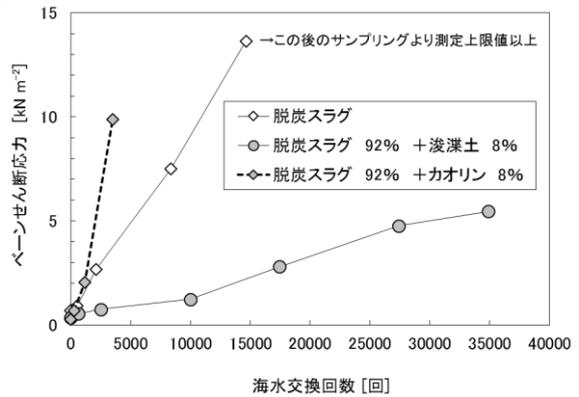
脱炭スラグについては本カラム試験を流速は流量 $3 \text{ mm s}^{-1}$ で行った結果を示すが、海水供給直後にカルシウムを溶出し、pHは約10.0まで上昇した(図(1)-35)。固化速度は脱リンスラグと比べて約10倍速く、せん断応力は交換回数約10,000回で測定限界に達した(図(1)-36)。脱炭スラグのみの系の粒子間には高pH条件で析出する海水由来の水酸化マグネシウムや炭酸カルシウムが閉塞しているようであった(図(1)-37)。

加えて浚渫土の添加により製鋼スラグの固化を抑制できることが分かった。その理由の検討として、まずシルト成分の添加によって単にスラグ間の摩擦や析出物の発生空間を減少することで固化の抑制が起きた可能性を検証するため、浚渫土の代わりに有機物質を含まないカオリン粒子を同量添加した系も作成し、比較した(図(1)-35)。結果、カオリンを添加した系では、むしろ

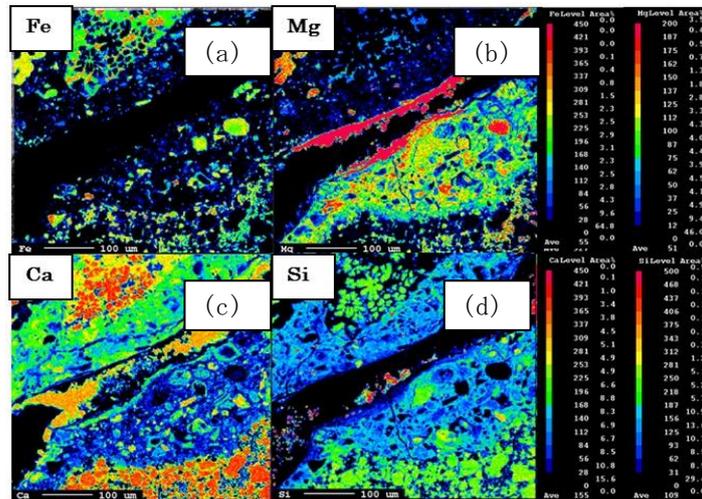
固化が促進しており、浚渫土の添加によるスラグの固化抑制はシルト成分では無く有機物質が関与している可能性が考えられた。ここで脱リンスラグの系ではあるが浚渫土添加系のEPMAの元素マッピング(図(1)-38)においては、無添加系(図(1)-34)と同様に酸化鉄による粒子間隙の閉塞が確認できている一方で、間隙中に浚渫土が多く含まれていることが確認できており、シルト分による潤滑効果や析出物空間の減少など物理的な効果でない可能性が高いことが分かった。



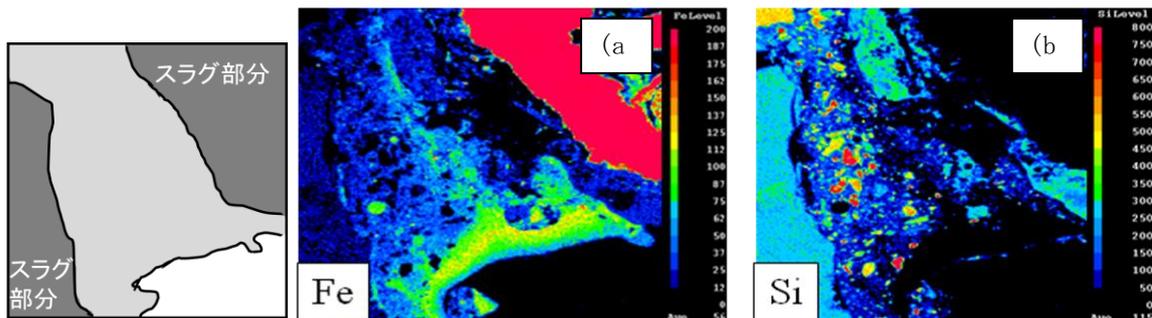
図(1)-35 脱炭スラグの海水交換によるpHの変化 (mm s<sup>-1</sup>)



図(1)-36 脱炭スラグの海水交換による(3mmせん断応力)の変化 (3 mm s<sup>-1</sup>)



図(1)-37 脱炭スラグ粒子間閉塞物質内のFe(a)、Mg(b)、Ca(c)、Si(d)の分布 (Feのマッピング写真で左上および右下の比較的均一な部分がスラグ)



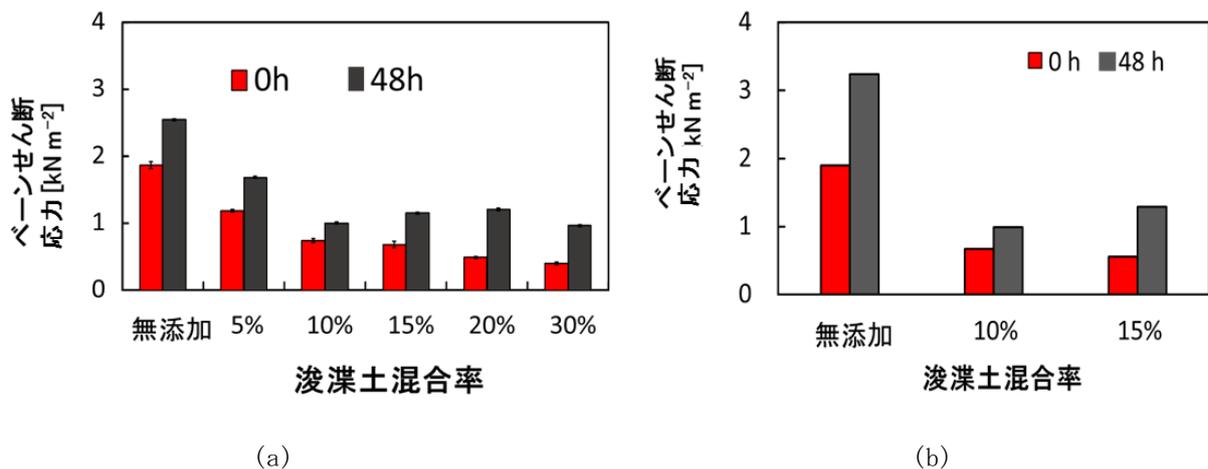
図(1)-38 浚渫土を混合した脱リンスラグ粒子間閉塞物質内の Fe(a)と Si(b)の分布

ここで、脱炭スラグの試験時の透過海水のpH変化を調べた結果、固化を起こした脱炭スラグ100%やカオリンとの混合物と、脱炭スラグ92% + 浚渫土8%の系において大きな違いは見られず、有機物質による中和がその原因で無いことも分かった。そこで、閉塞、ブリッジ部に浚渫土中の有機物が取り込まれることによる強度低下、あるいは有機物による溶出したカルシウムや鉄の結晶成長の阻害効果と考えた<sup>10)</sup>。

## 5) 混合土壌における固化反応

### a. 短期浸漬固化試験

これまでの結果よりスラグからは大量のカルシウムが放出されることが分かったため、そのカルシウムがシリカと反応して固化するポズラン反応や、pH上昇に伴うマグネシウム塩や炭酸塩の沈着も生物に影響を及ぼすことが考えられた。そこで、混合土壌の固化についても調査することとした。ここでは脱リンスラグと浚渫土混合土壌において、混合直後および48時間後における土壌の硬さをベーンせん断応力で評価した(図(1)-39)。混合直後においても、浚渫土を脱リンスラグに添加すると、ベーンせん断応力が低下した。また、48時間後には各試験区とも固化が進行するが、カラム試験同様、浚渫土を脱リンスラグに混合すると固化を低減できることがこの試験でも確認できた。脱炭スラグも脱リンスラグと同じ傾向を示し、浚渫土を混合すると固化の進行を抑制することができた(図(1)-39(b))。参考として、広島県に位置する瀬野川河口干潟、ハチ干潟(乾湿部)の自然干潟のベーンせん断応力は0.7~2.5 kN m<sup>-2</sup>である。



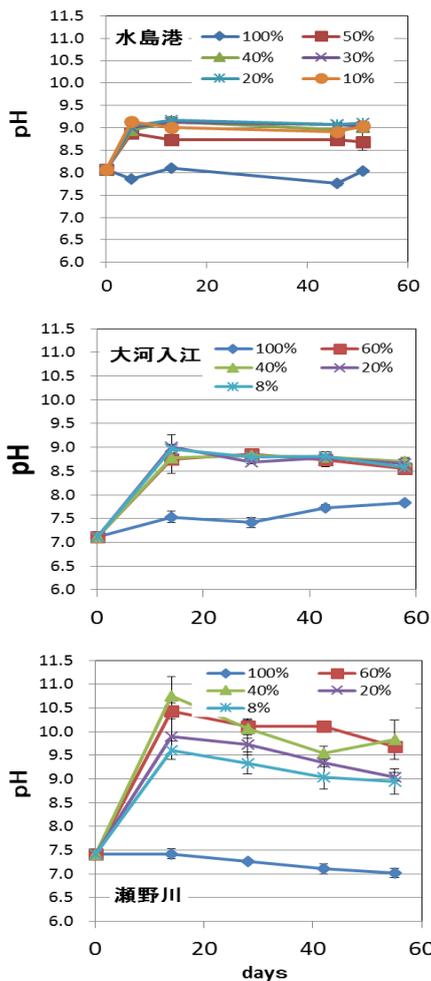
図(1)-39 各スラグに対する浚渫土の混合率とベーンせん断応力の関係

48時間後のpHは脱リンスラグのみ試験区で、8.6、浚渫土を混合した試験区で8.3~8.5であり、浚渫土を混合するとpHの上昇が多少抑制される傾向を示した。脱炭スラグでは試験区に差はなく12.3~12.7まで上昇した。脱炭スラグは脱リンスラグよりも遊離カルシウムなど溶出しうるカルシウムの量が多いためと考えられた。混合土壌のpHと固化は固化に関与する析出塩と深く関係しており、脱炭リンスラグよりも脱炭スラグにて固化がより進んでいる原因として、脱炭スラグの方が脱

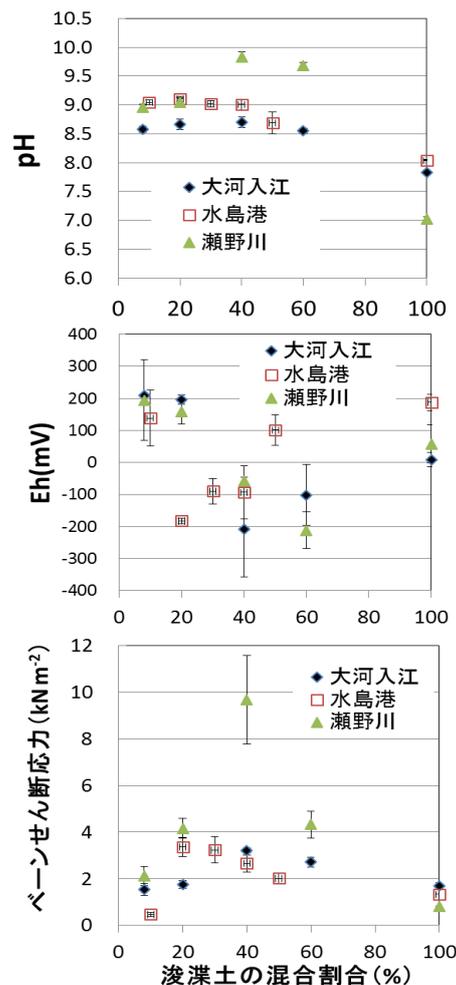
リンスラグに比べて混合土壌のpHの上昇が顕著であり、固化に関与するマグネシウム塩やケイ酸カルシウム塩などの析出に適したpH条件であったためと考えられた。

## b. 長期掛け流し調査および干満・冠水の影響調査

リンスラグと水島港浚渫土の混合について行った実験では、冠水試験、干満試験とも、スラグを混合したことにより数日でpHの上昇が認められた（図(1)-40）。冠水試験は7.4→8.5、干満試験は8.1→9.0で、後者のpHが高くなった。Ehは、冠水試験での浚渫土混合率100および10%、干満試験の100、50、10%で上昇した以外は低下または横ばいであった。ベーンせん断力は、冠水試験では浚渫土混合率30%、干満試験では浚渫土混合率20~40%で最も大きくなった。逆に100あるいは10%ではそれほど硬くならなかった。以上、冠水試験に比べ、干満試験の方が、pHは高め、Ehは低め、ベーンせん断力は大きめになる傾向があり、これは泥が干出することで、溶出成分がスラグおよび泥粒子の間に濃縮されることに起因しているものと考えられた。以下では、干満試験について、3ヶ所の異なる泥を用いた試験結果について示す。実験最終日（水島港：51日、瀬野川河口干潟：55日、大河入り江：58日）のpH、Ehおよびベーンせん断応力の値を図(1)-41に示す。pHの値は、大河入り江の泥は水島港の泥とほぼ同じであったが、瀬野川の泥では泥混合比40および60%において若干高めであった。瀬野川河口は淡水の流入が最も多い場所であり、緩衝作用が小さいため、スラグ由来のpHの上昇が反映されたものと推察される。



図(1)-40 3種の天然土壌の冠水試験におけるpH変化



図(2)-41 3種の泥の混合時の冠水試験での

pH、酸化還元電位、ベーンセン断応力  
(水島港51日後、瀬野川河口干潟55日後、  
大河入り江58日後)

Ehは、最低値を示したのが水島港の泥では20%混合、大河入り江の泥では40%混合、瀬野川河口の泥では60%混合、と異なった。これらの違いの原因については不明である。ただし、いずれの泥でも泥100%あるいはスラグ90%以上ではORPは正の値で酸化状態であるのに対して、脱リンスラグと泥を混合することによってORPが低下することは共通していた。スラグ90%以上では海水の浸透性が高いため酸化状態が保たれるものと考えられる。ベーンセン断応力は、水島港と大河入り江の泥では大きな違いは見られなかったが、瀬野川河口の泥では、40%において $9.7 \text{ kN m}^{-2}$ という大きな値を示し固化的な変化が起こった。このことはpHの上昇が著しかったことと関連し、大河入り江の泥は淡水含有量が多いためカルシウムやマグネシウムの溶出量も多く、固化的な変化が促進されたものと推察される。

## 5. 本研究により得られた成果

### (1) 科学的意義

スラグ自体の精密な化学分析、浸漬試験や潮汐を模した干満試験などを行い、ケイ砂との比較から造成土壌を製鋼スラグと浚渫土の混合土壌で代替した場合の、製鋼スラグと浚渫土の化学的相互作用によって駆動されるリン循環、栄養塩、酸化還元物質、アルカリ成分および二酸化炭素などの物質フローを明らかにすると共に、それらに起因する固化的な変化や浚渫土の添加によるその抑制機構などを明らかにできた。

具体的には高精度・高感度な化学分析法とコア実験による混合土壌の精密プロファイル解析の組み合わせにより、代表としては栄養塩として重要なリンに関して、脱炭スラグと脱リンスラグで含有量はほとんど変わらないにもかかわらず、容易に海水中に溶出する可動態リン量が全量に対して89、30%と大きな違いあることを明らかにし、このリン量は浚渫土の40~50倍、天然砂中のリン量の1000倍以上であることも明らかにできた。従来から言われているカルシウムの溶出についても、従来法で定量された量の実際には2.5倍程度のカルシウムが溶出する可能性を明らかにできた。またそのカルシウム溶出により、従来から言われているpHの上昇はスラグを利用する上で最も留意すべき項目であるが、このpHの変化をもたらす主たる要因である全炭酸とCa等溶出に伴うアルカリ度の時間変化を測定、数値化でき、加えて2種のスラグでその挙動が大きく異なることを明らかにできた。さらに浚渫土における全炭酸・アルカリ度の変化量はスラグの10分の1以下であり、スラグの海水投入直後の短期的なpH上昇に浚渫土の混合による緩衝作用は十分働かないことを示した。一方、高pH、高Ca濃度をもたらすと考えられているスラグの固化的な変化に関しては、pH上昇が大きい脱炭スラグにおいても海水交換をしない回分試験では顕著な固化的な変化は起こらず海水交換を行なうことで顕著な固化的な変化が起こり、塩分濃度の低い干潟の泥の場合は緩衝作用が低いため固化的な変化しやすい可能性がある、さらに浚渫土による固化的な変化抑制とそのメカニズムを明らかにするなど、固化的な変化制御に関わる新規な知見が得られた。さらには、上記の化学パラメータ解析とメタゲノム解析を組み合わせることにより、スラグ-浚渫土混合土壌において、栄養塩に関わる物質フローとそれを駆動する細菌叢が大きく変化し、より効果的な栄養塩の供給が起こる可能性も発見した。これらの成果の一部は、深度別にも明らかにできた。

これらを元にスラグからのリン溶出が付着藻類やアマモの生育に寄与する可能性が明らかになり、脱リンスラグは栄養塩であるリン酸を長期にわたって少しずつ土壌間隙水へと供給する肥料的な効果が期待できることがわかり、製鋼スラグに浚渫土を混合することで、pHの上昇、固化反応の進行抑制、さらには浚渫土からの有機物や栄養塩の供給を制御できる可能性を示せ、藻場・干潟基盤材としての特性・有効性を評価でき、混合土壌から成る人工干潟が潜砂性生物の生息基盤として適したものとなることを明らかにした。

加えて、pH上昇や固化に強く関与するスラグ中の溶出可能カルシウム量の定量方法及び微量元素の分析手法を開発でき、溶出可能カルシウム量を定量した結果、従来法で定量された量の実際には2.5倍程度のCaが溶出することを明らかにした。一方で、微量元素についてはスラグ中に29種類の元素の存在を確認できた。これらの評価手法は他の海砂代替材利用環境や干潟環境などの沿岸域の元素の挙動解明のツールとして利用可能であると考えられた。

## (2) 環境政策への貢献

### <行政が既に活用した成果>

特になし

### <行政が活用することが見込まれる成果>

生態系の再生・創出が環境劣化を引き起こす自然砂の採取に依存することなく、環境再生と資源再生が Win-Win の関係で成り立つことを示した。

本成果は様々な立場で干潟・藻場の再生・創出に関与するステークホルダー間の相互理解に貢献することが見込まれる。具体的には国土交通省および水産庁は瀬戸内海において、失われた干潟を取り戻すため、人工干潟の造成を構想しており、航路浚渫で出る浚渫土とスラグの二者の混合利用の検討時に利用できる科学的根拠となりうる。特にアマモ場造成において、海砂などの天然資源を投入せずに、産業副生成物を活用して自然再生すべき案件の根拠となり得、安全な活用方法を科学的データに基づいて実施することができ、造成対象となる自治体、漁業者、周辺住民に対しての資料としても活用可能である。

## 6. 国際共同研究等の状況

特になし

## 7. 研究成果の発表状況 ※【別添】H25研究等報告書作成要領 参照

特に記載すべき事項はない。

### (1) 誌上発表

#### <論文(査読あり)>

特になし

#### <査読付論文に準ずる成果発表> (対象：社会・政策研究の分野)

特になし

### <その他誌上発表（査読なし）>

- 1) 谷本照己，長尾正之：環境浄化技術，12(6)，49-51(2013)  
「鉄鋼スラグを利用したアマモ場造成」

### (2) 口頭発表（学会等）

- 1) 塚崎あゆみ，鶴島修夫，鈴木昌弘：海洋理工学会平成24年度春季大会（2012）  
「製鋼スラグと浚渫土により造成した干潟・藻場生態系内の物質フローの解明 —無機栄養塩の挙動およびpH変動に関する基礎的実験—」
- 2) 塚崎あゆみ，鶴島修夫，鈴木昌弘：日本海洋学会春季大会（2013）  
「製鋼スラグと浚渫土による干潟・藻場生態系の創生 —栄養塩類の挙動—」
- 3) 塚崎あゆみ，鶴島修夫，鈴木昌弘，中里哲也，谷本照己，田尾博明，西嶋渉：第16回日本水環境学会シンポジウム(2013)  
「製鋼スラグと浚渫土の混合土壌における物質フローの解明 I：栄養塩の動態」
- 4) 中里哲也，黄昱，藤田愛，塚崎あゆみ，鶴島修夫，鈴木昌弘，谷本照己，田尾博明，西嶋渉：第16回日本水環境学会シンポジウム（2013）  
「製鋼スラグと浚渫土の混合土壌における物質フローの解明II：金属成分の動態」
- 5) 谷本照己，長尾正之，塚崎あゆみ，鈴木昌弘，鶴島修夫，中里哲也，谷本照己，田尾博明，西嶋渉：第16回日本水環境学会シンポジウム（2013）  
「製鋼スラグと浚渫土の混合土壌によるアマモ水槽実験」
- 6) 山田奈海葉，堀知行，木村真人，谷本照己，塚崎あゆみ，鈴木昌弘，鶴島修夫，田尾博明，西嶋渉：第16回日本水環境学会シンポジウム（2013）  
「製鋼スラグと浚渫土で造成したアマモ場土壌中の細菌叢について」

### (3) 出願特許

特に記載すべき事項はない。

### (4) シンポジウム、セミナー等の開催（主催のもの）

特に記載すべき事項はない。

### (5) マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない。

### (6) その他

上記(2)-1)のうち，塚崎あゆみ：海洋理工学会平成24年度春季大会（2012）に関して優秀ポスター賞を受賞

## 8. 引用文献

- 1) 港湾・空港等リサイクル推進協議会（2005）  
「港湾・空港等整備におけるリサイクル技術指針」

- 2) 社団法人日本鉄鋼連盟 (2009) .  
「転炉系製鋼スラグ海域利用の手引き」
- 3) Futatsuka, T., Shitogiden, K., Miki, T., Nagasaka, T., Hino, M., ISIJ Int. 44, 753-761 (2004)  
“Dissolution behavior of nutrition elements from steelmaking slag into seawater”
- 4) M. P. Javellana, I. Jawed, Cem. Concr. Res. 12, 399-403 (1982)  
“Extraction of free lime in Portland cement and clinker by ethylene glycol”
- 5) P. Arjunan, A. Kumar, Cem. Concr. Res. 24, 343-352 (1994)  
“Rapid techniques for determination of free lime and free magnesia in cement clinker and portlandite in hydrates”
- 6) R.N. Yong, V.R. Ouhadi, Appl. Clay Sci. 35, 238-249 (2007)  
“Experimental study on instability of bases on natural and lime/cement-stabilized clayey soils”
- 7) C. Shi, R.L. Day, Cem. Concr. Res. 30, 607-613 (2000)  
“Pozzolanic reaction in the presence of chemical activators Part II. Reaction products and mechanism”
- 8) Japan Cement Association, Japan Cement Association Standard, JCAS I-01:1997, Tokyo (1997)  
「遊離酸化カルシウムの定量方法」
- 9) 朱小華 他, 沿岸海洋研究, 37, 59-67 (1997)  
「広島湾における底層懸濁物質の濃度変動」
- 10) Hoch A. R., Reddy, M. M., Aiken, G. R., Geochimica et Cosmochimica Acta, 64, 61-72 (2000) .  
“Calcite crystal growth inhibition by humic substances with emphasis on hydrophobic acids from the Florida Everglades”

## (2) 干潟・藻場生態系における基礎生産と構造の解明

## 広島大学

環境安全センター	西嶋 渉
環境安全センター	奥田 哲士
大学院工学研究院・物質化学システム専攻	中井 智司
大学院生物圏科学研究科環境循環系制御学専攻	山本 民次
大学院生物圏科学研究科環境循環系制御学専攻	佐々木 晶子 (平成23～24年度)
大学院工学研究院エネルギー・環境部門	陸田 秀実 (平成24～25年度)
宇部工業高等専門学校	
物質工学科	中野 陽一 (平成24年度)
米子工業高等専門学校	
物質工学科	中野 陽一 (平成25年度)
物質工学科	藤井 貴敏 (平成25年度のみ)

## &lt;研究協力者&gt;

## 広島大学

工学研究院エネルギー・環境部門	陸田 秀実 (平成23年度)
宇部工業高等専門学校	
物質工学科	中野 陽一 (平成23年度)

平成23～25年度累計予算額：69,837千円（うち、平成25年度予算額：21,219千円）

予算額は、間接経費を含む。

## [要旨]

製鋼スラグと浚渫土の混合土壌（スラグ区）を用いて造成した干潟・藻場生態系構造を物質フロー解析を含めて対照区として設定したケイ砂と浚渫土の混合土壌（ケイ砂区）との比較において評価・解析した。潮間帯の中央付近を想定した3/100傾斜の干満・波のある干潟をマイクロコズム内に再現した。一次生産という視点では、脱リンスラグ区では、ケイ砂区に比べ、造成初期の微細藻の増殖が顕著であったが、その後はケイ砂区と個体数、構成種に顕著な違いはないことが明らかとなる一方で、脱リンスラグ区では大型付着藻類であるアオサ類が顕著に繁茂し、土壌硬度の高いスラグ区での土壌の安定性が大型藻類の増殖を促したと推定された。一方、潮下帯を再現したマイクロコズムにおけるアマモの生育試験からは、脱リンスラグでは間隙水のpH上昇は起こったものの、スラグ単独および浚渫土を混合した系でも固化は起こらずアマモが生育・成長し、浚渫土の混合によって成長が促進されることを明らかにできた。さらに栄養株の活着と種子の発芽試験においても、スラグ混合土壌の天然土代替としての有効性が示され、特に浚渫土30～40%の含有率のスラグ混合土壌が効果的であることという結果が得られた。これらの結果を基に、干潟・藻場の造成に利用される製鋼スラグから溶出する物質の時空間的な動態と生態系に及ぼす影響を評価するための数値シミュレーションモデルを構築、生物も含めた物質循環を数値化し、干

潟・藻場域に投入された製鋼スラグから溶出する各種物質濃度を予想できるツールを開発できた。以上の結果によって、脱リンスラグを砂代替に用いて浚渫土と混合した土壌は、土壌硬度が砂を基盤とした混合土壌より高く土壌の安定性が高まるため干潟造成に利用した場合流動条件によっては大型藻類の増殖が起こり特徴的な生態系が形成される一方で、藻場造成ではアマモの生育基盤として十分砂代替として利用できることを明らかにできた。

#### [キーワード]

製鋼スラグ、浚渫土、生態系、アマモ、生物生息基盤

### 1. はじめに

製鋼スラグと浚渫土の組み合わせによる干潟・藻場造成に関する研究において、サブテーマ1では製鋼スラグと浚渫土の組み合わせにおける複雑な反応や物質フローの解明を行ったが、サブテーマ2では製鋼スラグと浚渫土の組み合わせにおける複雑な反応や物質フローが結果として、そこで形成される生態系へ及ぼす影響の解析を行うこととしていた。

### 2. 研究開発目的

製鋼スラグと浚渫土の混合土壌の干潟・藻場生態系の造成土壌としての特性を基礎生産機能に及ぼす影響と生態系全体の構造に及ぼす影響の両面から評価する。さらに生態系の評価結果を物質フロー、土壌環境の視点から解析する。またそれらの結果を基に、干潟・藻場の造成に利用される製鋼スラグから溶出する物質の時空間的な動態と生態系に及ぼす影響を評価するための数値シミュレーションモデルを構築する。

### 3. 研究開発方法

#### (1) 天然・人工干潟生態系の評価

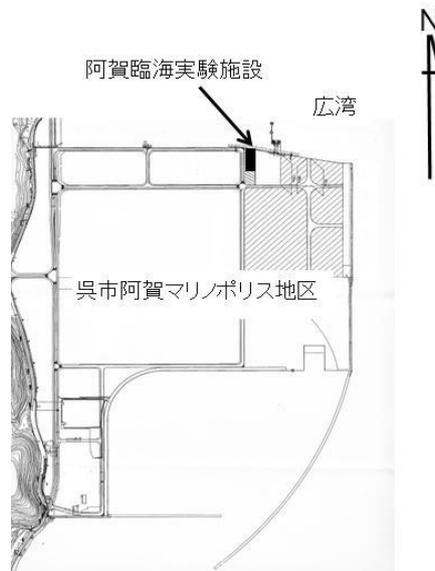
製鋼スラグと浚渫土の混合土壌を用いて実験的に造成する干潟生態系を評価する上での基礎的な情報を得るために、周辺海域の自然干潟及び人工干潟において土壌環境と底生生物の関係について調査するとともに人工的に造成された干潟生態系の特性を調査した。土壌環境と底生生物の関係についての調査は、干潟マイクロコズム設置海域である安芸灘の4か所の自然干潟（竹原市ハチの干潟、広西大川河口、三津口湾、松永湾藤井川河口）で行った。互いに100 m以上離れた調査点を1か所の干潟につき8-9点設け、各点の土壌の深さ2.5 cmの場所でpH、ORP、塩分濃度、ベーンセン断応力を測定した。土壌中の含水率と強熱減量、及び粒度組成を調べるため、φ 48 mmのPVCパイプを深さ5 cmまで2回挿して土壌を採取し冷凍保存した。底生生物用のサンプルは、φ 140 mmのPVCパイプを5 cm挿して採集し、70%エタノールで保存した。採集した全ベントスを埋在性と表在性に分け（明白に埋在性、表在性と区分できないベントスは除外）、各グループの種数と密度に対する土壌環境の関係を調べた。その際に、一般化線形混合モデルを用いた。このモデルでは、種数と密度の頻度分布を負の二項分布と仮定し、干潟の場所をランダム要因とした。また、土壌環境因子間の交互作用についても検討した。変数の有効性の検証には尤度比検定を用いた。

一方、人工的に造成された干潟生態系の特性評価については、太田川放水路に2010年3月に造成された人工干潟と類似土壌組成を持つ同放水路内の自然干潟3か所において実施した。土壌調査用

のサンプルはφ65 mm PVCパイプにより採取し、底生生物用の土壌サンプルは、25×25×25cmのコドラートを用いて同一地点で3か所採取した。

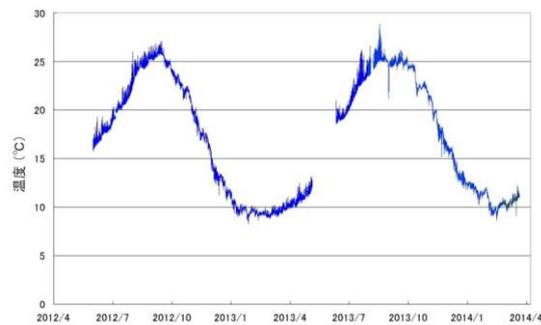
## (2) 潮間帯への敷設を想定した脱リンスラグを活用して造成した干潟環境と生態系（干潟マイクロコズム I）

マイクロコズム実験のための実験場は呉市阿賀マリノポリス埋め立て地内（図(2)-1、呉市阿賀南7-7503-13）にあり、実験場の北側岸壁から約20 m沖合（広湾）の海底上約50cmの高さに海水取水口を設置し、ポンプにより海水を施設内の容量3トンの貯水タンクに汲み上げた。貯水タンクの水位は約3mの高さにあり、タンクから各種実験水槽まで水位差により給水し、水槽内に設置された排水口をオーバーフローした海水を海に返す方式により、実験水槽に連続して天然海水を掛け流した。当該研究で用いる掛け流し水槽によるマイクロコズム実験システムのアマモ生育に対する適正評価の一環として、実験水槽へ供給する海水温を水温計（アレック電子製COMPACT-CT）により1分間隔で連続してモニタリングし、天然藻場内との比較も行った。



図(2)-1 呉市阿賀マリノポリス地区における阿賀臨海実験場

阿賀臨海実験場における海水貯水タンク内の水温の経時変化を図(2)-2に示す。水温は1日の間でも時間的にかなり変動するが、年間を通してみれば1月から2月にかけて9～10℃で最低となり、9月頃25～27℃で最も高い傾向である。アマモは8月以降の高水温期になると衰退期となって株数や株長が減少し、30℃以上の水温が数日間続くと枯死する<sup>1)</sup>。実験水槽に海水を供給する貯水タンク内の水温は最大でも約27℃であって、アマモの生育を妨げる水温まで上昇していない。天然藻場との比較では、広島県呉市安浦町三津口湾の藻場内で測定された水温は最低で約10℃、最高水温は25～27℃であった。これらのことから、当該実験で用いた水槽による藻場マイクロコズム実験システムは天然アマモ場の水温環境をよく再現でき、アマモの生育に適した環境下における水槽実験であったと推察される。

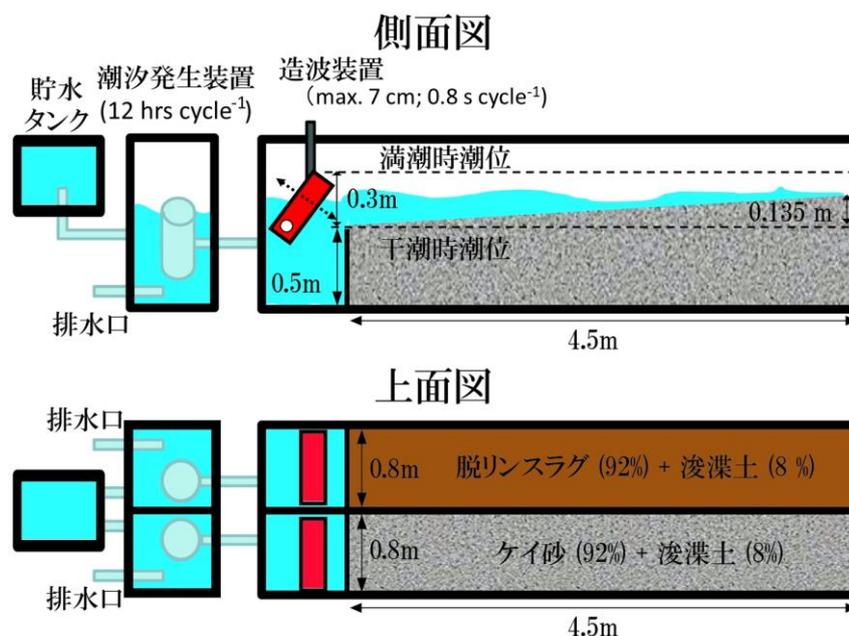


図(2)-2 阿賀臨海実験場における海水貯水タンク内の水温の経時変化

潮間帯の中央付近を想定した3/100傾斜の干満・波のある干潟をマイクロコズム内に再現した。干潟マイクロコズムは阿賀臨海実験場に2系列設置し、浚渫土8%を混合した脱リンスラグ及びケイ砂の系をそれぞれ敷設し、濾過海水を掛け流した(図(2)-3、4)。濾過海水を実際の干満の周期にて給水・排水し、沖側(図(2)-3左側)に設置されている造波装置を用いて波高7 cm以下の波を再現した。

堆積物の中央粒径の変化によって、底生生物の種数や密度に対するpH及びORPの影響は変化する(底生生物の種数、密度を目的変数、中央粒径、せん断応力、pH、ORPを説明変数( $p < 0.05$ 、交互作用項を含む)とする一般化線形混合モデルに対する尤度比検定)。この影響を等しくし、それ以外の土壤環境因子が底生生物に与える影響を検出するため、この実験に使用したスラグ及びケイ砂の粒度組成はほぼ同じになるように合わせた(図(2)-5)。

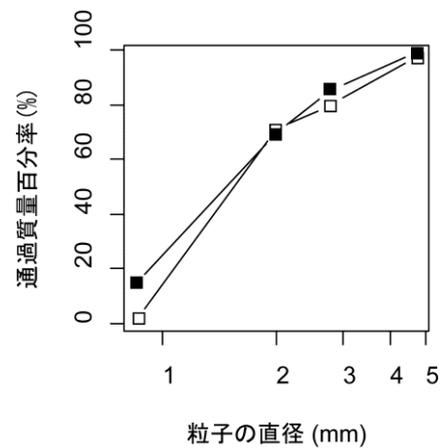
第一回目は浚渫土8%を混合した脱リンスラグ及びケイ砂の系をそれぞれ敷設し、濾過海水を掛け流した。試験は2012年6月25日から始め、368日間稼働させた。



図(2)-3 干潟マイクロコズムの概要



図(2)-4 干潟マイクロコズムと外観写真



図(2)-5 実験に用いた脱リンスラグ（白四角）とケイ砂（黒四角）の粒径加積曲線

### 1) 土壌特性・間隙水の水質の変化

2012年7月9日（稼働後14日目）から間隙水のpH、ORP、Ca、Mg濃度、土壌せん断応力、を測定した。海水注水直後の2012年6月21日と、8月31日、10月10日のみNO<sub>3</sub>-N、NO<sub>2</sub>-N、NH<sub>4</sub>-N、PO<sub>4</sub>-P、SiO<sub>2</sub>-Siを土壌の直上、土壌の深さ1、5、10、20 cmで測定した。NH<sub>4</sub>-Nはさらに2013年6月28日にも測定した。

## 2) 藻類およびベントス叢の変化

干潟生態系を形成する生物叢については、大型藻類および底生生物に対する定性評価と付着藻類およびマクロベントス（大型底生動物）の定量評価を行った。定性評価については大型藻類および底生生物が発生し始めた2012年10月2日（稼働後99日目）から約半月ごとに行ったが、ここでは10分×人区<sup>-1</sup>の観察結果に基づいて評価した。定量調査については、2012年10月1日（稼働後98日目）から2013年6月28日（稼働後368日目）まで1カ月に1回程度、10×10×10 cmのコドラートにより各区3カ所から土壌を採取し、目合い1mmのふるいの上に残った残渣を70%エタノールで固定し、生物を種同定および計数を行った。また、スラグによる食物網を介した生物群集への影響を調べるため、2012年10月から2013年6月までに採集した各生物の $\delta^{13}\text{C}$ 及び $\delta^{15}\text{N}$ の安定同位体比を測定した。また、付着微細藻類の評価のためにコドラートにより表層土壌を採取後、最終濃度5%ホルマリンで固定し、種組成および計数を行った。

また、種構成による生物叢把握の補完的に分析として土壌表面のクロロフィルa濃度を測定した。沖側（図(2)-3左側）から1.25、2.5、3.75 mの3カ所の表層土壌について、面積1×1 cm、深さ5 mmを採取し、クロロフィルa濃度を90%アセトン抽出後、吸光光度法（U-2001形ダブルビーム分光光度計・株式会社日立ハイテクノロジーズ）により測定した。さらに、光合成活性指標を携帯式クロロフィル蛍光測定器PAM（Pulse Amplitude Modulation; AP-P100、アクアペン）によるFm、Fv値を3回繰り返して測定し、計算により求めた。PAM測定に際しては、実験容器に光が入らないよう隙間なく暗幕をかけて葉緑体を30分間暗順応させた。この状態でアクアペンのプローブ先端が土壌表面に接触するまで差し込み、Ft値（瞬時値でクロロフィル量に比例）を測定した後、プローブの位置を変え、Qy値（Fv/Fm、光合成活性に比例）を測定した。

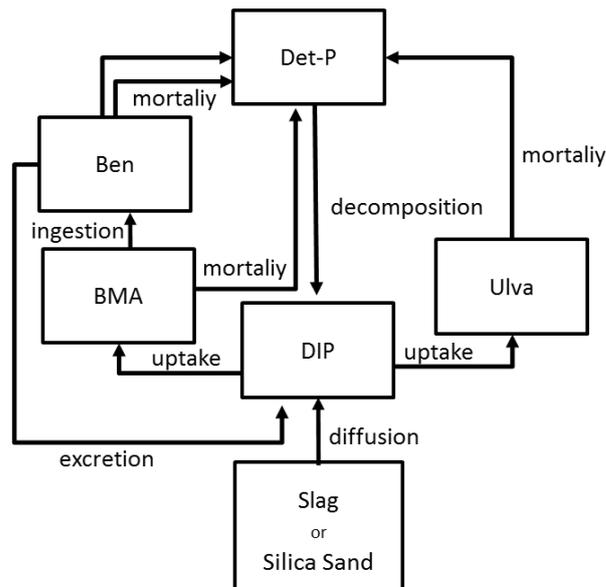
## 3) リン循環に基づく大型藻類と付着微細珪藻の競合の解明

干潟マイクロコズムに形成された低次生態系を表現するために数値生態系モデルを作成し、それぞれの実験区における特にリンに着目し、その循環の違いについて解析した。土壌表面に増殖した底生微細藻類のほとんどが珪藻であり、スラグ区ではアオサが高被度で土壌表面を覆ったため、一次生産者として、底生微細珪藻（BMA）とアオサ（Ulva）をコンパートメントとして取り上げた。また、動物性ベントスは、堆積物食者（DEB）とろ過食者（FIB）とし、リンの形態をリン酸（DIP）、溶存有機態リン（DOP）、デトライタス態リン（Det-P）の三態として、生物体も含めた系内でのリン循環を計算した。数値モデルのフレームワークを図(2)-6に示す。BMAやUlvaによるリンの取り込みと増殖、DEBやFIBによる餌の捕食・摂食、DOPやDet-Pの分解などについては文献値を用いた。モデルに使用した式等について以下に記述する。

DIPの溶出フラックスは実測による。干潟マイクロコズムでの試験が終了した2013年6月28日に、直径7.3 cm、長さ33.4 cmのアクリルコアを用いて土壌のコアサンプルを採取した。コアサンプルは、1.25、2.50、3.75 m地点のスラグ区・ケイ砂区について、また、表層の微細藻類等生物の影響をみるために表層泥1 cmを取り除いたサンプルと何もしていないサンプルを各1本ずつ計12本採取した。また、スラグ区に繁茂していたアオサはすべて取り除いて行った。試験はコアサンプル上に現場導入海水を同じ容積になるよう注ぎ止水系で行い、開始から4時間後にそれぞれ採水し、0.45  $\mu\text{m}$ のフィルターでろ過した試料をAuto Analyzerで $\text{PO}_4\text{-P}$ を測定した。

また、初期値としてコアサンプルに注いだ現場海水の  $\text{PO}_4\text{-P}$  濃度も同様に測定した。

測定後、表層泥を取り除いたコアサンプルの溶出物質量から表層泥のあるコアサンプルの溶出物質量を除算することにより表層微細藻類による栄養塩の取り込み量とした。つまり、この値が正の場合は「藻類による取り込み量」 > 「細菌による分解・溶出」となり、負の場合は逆に「藻類による取り込み量」 < 「細菌による分解・溶出」と見なした。



図(2)-6 数値モデルのフレームワーク

#### ・底生微細藻 (BMA)

$$\frac{dBMA}{dt} = VF[BMA] \text{光合成(増殖)} - MF[BMA] \text{枯死} - IF[DEB] \text{摂食}$$

光合成  $VF[BMA] (\text{mol} \cdot \text{Day}^{-1})$

$$VF[BMA] = eDIP[BMA] \times \min(eI[BMA], et[BMA])$$

ここで、

$et[BMA]$  : 底生微細藻類の増殖に対する泥温の影響 (—)

$eDIP[BMA]$  : 底生微細藻類の増殖に対する  $\text{PO}_4\text{-P}$  濃度の影響 (—)

$eI[BMA]$  : 底生微細藻類の増殖に対する光量の影響 (—)

とした。

$et[BMA]$ 、 $eDIP[BMA]$ 、 $eI[BMA]$ は、それぞれ次式で表わした。

$$et[BMA] = \exp(te \times Ts)$$

$$eDIP[BMA] = \frac{DIP}{ks[BMA] + DIP}$$

$$eI[BMA] = \frac{I}{I_{opt}[BMA]} \times \exp\left(1 - \frac{I}{I_{opt}[BMA]}\right)$$

・ 枯死  $MF[BMA]$  ( $\text{mol Day}^{-1}$ )

$$MF[BMA] = Mt0[BMA] \times \exp(te \times Ts) \times BMA \times Av$$

・  $Mt0[BMA]$  : 水温  $0^\circ\text{C}$  における底生微細藻類の枯死速度 ( $\text{Day}^{-1}$ )

堆積物食ベントスによる摂食  $VF[DEB]_{BMA}$  :  $\mu \text{ mol day}^{-1}$

$$VF[DEB]_{BMA} = IN[DEB] \times DEB \times Av$$

$$IN[DEB] = INt0[DEB] \times \exp(te \times Ts)$$

・  $IN[DEB]$  : 堆積物食者の摂食速度

#### ・ ベントス

ベントス態リン量 (DEB、FIB) は、神戸市環境局[2]の調査結果を参考にして湿重量当たりのリン量 ( $\mu \text{ mol P g}^{-1} \langle \text{wet weight} \rangle$ ) を求めた。

#### ・ 堆積物食ベントス

$$\frac{dDEB}{dt} = VF[DEB]_{\text{摂食}} - MF[FIB]_{\text{枯死}} - UF[FIB]_{\text{尿排泄}} - EF[FIB]_{\text{糞排泄}}$$

摂食

・ 堆積物中の Det-P の摂食  $VF[DEB]$  :  $\mu \text{ mol day}^{-1}$

$$VF[DEB]_{DetP} = IN[DEB] \times SL[DEB]_{DetP} \times DEB \times Av$$

$$IN[DEB] = INt0[DEB] \times \exp(te \times Ts)$$

枯死  $MF[DEB]$  :  $\mu \text{ mol day}^{-1}$

$$MF[DEB] = Mt0[DEB] \times \exp(te \times Ts) \times DEB \times Av$$

尿排泄  $UF[DEB]$  :  $\mu \text{ mol day}^{-1}$

$$UF[DEB] = Ut0[DEB] \times \exp(te \times Ts) \times DEB \times Av$$

糞排泄  $EF[DEB]$  :  $\mu \text{ mol day}^{-1}$

$$EF[DEB] = DEB \times Av \times (V[DEB]_{DetP} \times E[DEB]_{DetP} + V[DEB]_{BMA} \times V[DEB]_{BMA})$$

$$V[DEB] = IN[DEB] \times SL[DEB]$$

E[DEB] : 排泄率

### ・ろ過摂食ベントス

$$\frac{dFIB}{dt} = VF[FIB]_{\text{摂食}} - MF[FIB]_{\text{枯死}} - UF[FIB]_{\text{尿排泄}} - EF[FIB]_{\text{糞排泄}}$$

摂食

・水中からの Det-P の摂食  $VF[DEB] : \mu \text{ mol day}^{-1}$

$$VF[FIB]_{wDetP} = IN[FIB] \times SL[FIB]_{wDetP} \times FIB \times Av$$

$$IN[FIB] = INt0[FIB] \times \exp(te \times Ts)$$

枯死  $MF[FIB] : \mu \text{ mol day}^{-1}$

$$MF[FIB] = Mt0[FIB] \times \exp(te \times Ts) \times FIB \times Av$$

尿排泄  $UF[FIB] : \mu \text{ mol day}^{-1}$

$$UF[FIB] = Ut0[FIB] \times \exp(te \times Ts) \times FIB \times Av$$

糞排泄  $EF[FIB] : \mu \text{ mol day}^{-1}$

$$EF[FIB] = FIB \times Av \times (V[FIB]_{DetP} \times E[FIB]_{DetP} + V[FIB]_{BMA} \times V[FIB]_{BMA})$$

$$V[FIB] = IN[FIB] \times SL[FIB]$$

E [FIB]はそれぞれ、堆積物食者の摂取した各餌に対する排泄率とし、0 から 1 の間で変動する。

### ・アオサ (Ulva)

$$\frac{dUlva}{dt} = VF[Ulva]_{\text{光合成}} - MF[Ulva]_{\text{枯死}}$$

光合成  $VF[BMA] (\text{mol} \cdot \text{Day}^{-1})$

$$VF[Ulva] = Vt0[Ulva] \times et[Ulva] \times \min(eDIP[Ulva], eI[Ulva]) \times Ulva \times AV$$

ここで、

$Vt0[Ulva]$  : 水温 0°Cにおけるアオサの増殖速度 (Day<sup>-1</sup>)

$et[Ulva]$  : アオサの増殖に対する泥温の影響 (-)

$eDIP[Ulva]$  : アオサの増殖に対する PO<sub>4</sub>-P 濃度の影響 (-)

$eI[Ulva]$  : アオサの増殖に対する光量の影響 (-)

とした。

$et[Ulva]$ 、 $eDIP[Ulva]$ 、 $eI[Ulva]$ は、それぞれ次式で表わした。

$$et[Ulva] = \exp(te \times Ts)$$

$$eDIP[Ulva] = \frac{DIP}{ks[Ulva] + DIP}$$

$$eI[Ulva] = \frac{I}{Iopt[Ulva]} \times \exp\left(1 - \frac{I}{Iopt[Ulva]}\right)$$

・ 枯死 MF[Ulva] (mol Day<sup>-1</sup>)

$$MF[Ulva] = Mt0[Ulva] \times \exp(te \times Ts) \times Ulva \times Av$$

・ Mt0[Ulva] : 水温 0°Cにおけるアオサの枯死速度 (Day<sup>-1</sup>)

・ Det-P

$\frac{dDetP}{dt}$  = 底生微細藻の枯死 + アオサの枯死 + ベントスの排糞 + ベントスの枯死 - 水中からの沈降

— 堆積物食ベントスによる摂食 - 分解 (DOP、DIP)

底生微細藻の枯死、ベントスの排糞、ベントスの枯死、ベントスによる摂食・・上記

分解 KF[DetP]

$$KF[DetP]_{DOP} = Kt0[DetP] \times \exp(te \times Ts) \times DetP \times V \times 1.5$$

$$KF[DetP]_{DIP} = Kt0[DetP] \times \exp(te \times Ts) \times DetP \times V$$

・ DIP

$\frac{dDIP}{dt}$  = 堆積物食ベントスによる排尿 + 分解 (DetP、DOP) - 光合成 (BMA、Ulva)

— 水中への溶出

堆積物食ベントスによる排尿 + 分解 (DetP、DOP) - 光合成 (BMA)・・上記

水中への溶出 (ケイ砂区・スラグ区それぞれの上向きフラックス・フィックの拡散方程式<sup>12)</sup>)

$$J = -\phi D' \left( \frac{\partial C}{\partial z} \right)$$

ここで、

$\phi$  : 空隙率 (-)

$D'$  : 堆積物全体に対する拡散係数 (m<sup>2</sup>・s<sup>-1</sup>)

C : 溶存物質濃度 (mol)

z : 厚み (m)

$$\phi = \frac{\rho}{\rho + (1 - \omega) / \omega}$$

$\rho$  : 乾泥の密度 (kg・m<sup>-3</sup>)

$\omega$  : 含水率 (%)

$$D' = \left( \frac{1}{F\phi} \right) D_0^t$$

F : formation factor (—)

$D_0^t$  :  $t^{\circ}\text{C}$ における分子拡散係数 ( $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ )

$$F = \phi^{-n}$$

$$D_0^t = D_0^o (1 + at)$$

$D_0^o$  :  $0^{\circ}\text{C}$ における分子拡散係数 ( $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ )

a : 定数 (陽イオン 0.048、陰イオン 0.040)

本モデルで使用したパラメータを表(2)-1に示す。多くは<sup>3),4)</sup>から引用した。また、アオサのVmax (12.24~27.42)とKs (9.46~10.79)は[5]から得られた実験結果よりチューニングして設定した。フラックスを求める際のdCや $\phi$ といった値は本研究より実験的に求めた値を使用した。

表(2)-1 数値モデルに用いたパラメータ

symbols	Definitions	Value	Unit	Reference
te	Coefficient of temperture effect	0.069	—	
Kt0[DetP] <sub>DOP</sub>	Decomposition rate of DetP to DOP at 0°C	0.000008	day <sup>-1</sup>	tuning
Kt0[DetP] <sub>DIP</sub>	Decomposition rate of DetP to DIP at 0°C	0.00002	day <sup>-1</sup>	tuning
Kt0[DOP] <sub>DIP</sub>	Decomposition rate of DOP to DIP at 0°C	0.0005	day <sup>-1</sup>	tuning
D[P]	Diffusion coefficient of phosphorus	4.20E-05	$\mu\text{molP day}^{-1}$	Wang. et al. (2003b)
Vt0[BMA]	Growth rate of benthic micro algae at 0°C	0.01	m day <sup>-1</sup>	Wang. et al. (2003b)
Ks[BMA]	Half-saturation constant for phosphorus uptake of benthic micro algae	45	$\mu\text{molP day}^{-1}$	後藤ほか(2004)
Mt0[BMA]	Mortality rate of benthic micro algae at 0°C	0.02	day <sup>-1</sup>	後藤ほか(2004)
Vmax[Ulva]	Maximum growth rate of Ulva	27.42	m day <sup>-1</sup>	Luo. et al. (2012)
Ks[Ulva]	Half-saturation constant for phosphorus uptake of Ulva	9.46	$\mu\text{molP day}^{-1}$	Luo. et al. (2012)
Int0[FIB]	Maximum growth rate of filter feeder benthos at 0°C	0.01	day <sup>-1</sup>	tuning
Mt0[FIB]	Mortality rate of filter feeder benthos at 0°C	0.001	day <sup>-1</sup>	Pape et al. (1999)
Ut0[FIB]	Excretion rate of filter feeder benthos at 0°C	0.003	day <sup>-1</sup>	Pape et al. (1999)
SMax[FIB] <sub>DetP</sub>	Maximum prey limit for DetP in bottom water of filter feeder benthos	0.2	$\mu\text{molP L}^{-1}$	Pape et al. (1999)
SMin[FIB] <sub>DetP</sub>	Minimum prey limit for DetP in bottom water of filter feeder benthos	0.005	$\mu\text{molP L}^{-1}$	Pape et al. (1999)
SMax[FIB] <sub>BMA</sub>	Maximum prey limit for benthic micro algae of filter feeder benthos	1000	$\mu\text{molP m}^{-2}\langle\text{wet sediment}\rangle$	Pape et al. (1999)
SMin[FIB] <sub>BMA</sub>	Minimum prey limit for benthic micro algae of filter feeder benthos	100	$\mu\text{molP m}^{-2}\langle\text{wet sediment}\rangle$	Pape et al. (1999)
Int0[DFB]	Maximum growth rate of deposit feeder benthos at 0°C	0.05	day <sup>-1</sup>	Pape et al. (1999)
Mt0[DFB]	Mortality rate of filter deposit benthos at 0°C	0.002	day <sup>-1</sup>	Pape et al. (1999)
Ut0[DFB]	Excretion rate of filter deposit benthos at 0°C	0.0075	day <sup>-1</sup>	Pape et al. (1999)
E[DEB] <sub>DetP</sub>	Egestion rate for DetP in bottom water of deposit feeder benthos	0.8	—	後藤ほか(2004)
E[DEB] <sub>BMA</sub>	Egestion rate for DetP in bottom water of deposit feeder benthos	0.5	—	後藤ほか(2004)

#### 4) 微生物叢の変化

底質微生物叢解析についてはPCR増幅反応を用いず直接土壌内の微生物叢を評価する手法であるキノン解析によって実施した。キノンは呼吸鎖における電子伝達物質であり、それぞれの微生物が特有のキノンを有していることから微生物群集構造解析に用いられる。試料は干潟マイクロコズムの沖側(図(2)-3)から2mの位置で表層5mmを採取し、採取後は-20°Cで保存した。保存した試料はキノン抽出の前に凍結乾燥にかけ、乾燥した試料はクロロホルム・メタノール混合液(2:1、v/v)によってキノンを抽出した。抽出したキノンをヘキサンに再抽出したのちさらに固相吸着カートリッジ(Sep-Pak plus silica Waters社)を用い、夾雑物の除去とUQ類、MK・PQ類の分画を行い、アセトンへの溶媒転換した。各キノン種を分離・同定するために、高速液体クロマトグラフ

イー（HPLC）を用いた。分析に用いたHPLCは、HPLC用送液ポンプ（日本分光製、PU-980）、カラムオープン（日本分光製、CO-960）、UV/VIS検出器（日本分光製、UV-970）、クロマトグラムデータ処理（システムインスツルメンツ製、クロマトコーダー21）を備える機器を用いた。カラムは逆相分配型のODSカラム（Agilent Technologies製、ZORBAX ODS  $\phi$  4.6 mm $\times$ 250 mm）を使用した。インジェクション量は20  $\mu$ L、カラム温度は35 $^{\circ}$ C、移動相にはメタノール・ジイソプロピルエーテル（9:2、v/v）を用い、流量を1 mL min $^{-1}$ とした。キノンの定量には、定量標準物質としてUQ-10を用い、各キノンの定量のために吸収極大波長の検出面積を用いた。各キノンの吸収極大波長は、ユビキノンは275 nm、メナキノンは270 nm、プラストキノンは（PQ-9）が258 nmである。分子種の同定には、種々の微生物から抽出した既知のユビキノンは、メナキノンはなどの混合液の溶出時間との比較によって行った。

## 5) 干潟域における製鋼スラグの溶出シミュレーションモデルの構築

本研究で取り扱う製鋼スラグと浚渫土の混合土壌内での物質フローを数値シミュレーションにより評価するモデルを作成した。モデルの作成には土壌の物理環境と製鋼スラグからの溶出物濃度を考慮しなければならない。そのため固気液3相を考慮することが可能かつスラグからの溶出を表現できる粒子法を格子法にハイブリッドした新規の格子粒子ハイブリッド型計算法を構築し、干潟・藻場の物理化学環境シミュレーションを行った。その概要は図(2)-7に示す通りである。格子粒子ハイブリッド法を使用するメリットは、製鋼スラグの化学反応に関する条件（粒径、透水係数、溶出量、反応深さ、溶解度等）を粒子法で解くため、個々のスラグ粒子に対して条件設定が可能な点にある。一方、土壌内と液相中における溶出物濃度の移流拡散等の時空間的物理量は格子法で解くことにする。また、地下水面の挙動は、密度の移流拡散方程式で追跡する。海底形状やスラグ配置、土壌変形などを粒子表現しているため、形状・配置の自由度が極めて高い。なお、格子と粒子間の物理量は、線形補間とした。

支配方程式は、以下に示す通り、非圧縮性粘性Navier-Stokes方程式、温度・塩分の移流拡散方程式、圧力方程式、移動境界面（例えば、潮位、地下水位、土壌界面など）の移流方程式である。これに加え、製鋼スラグの海水中での化学反応を考慮した溶出物 $C$ （例えば、Ca、Fe、Mg、NH $_4$ -N、PO $_4$ -Pなど）の移流拡散方程式である。pHからCa濃度への換算には、米国地質調査所が作成したPHREEQC（Parkhurst・Appelo1、1999）を用いることとした。

ここで、 $u$ は流速、 $P$ は圧力、 $\mu$ は粘性係数、 $\rho$ は流体密度、 $g$ は重力加速度、 $\phi$ は密度関数（界面識別関数）、 $C$ は溶出物濃度、 $S_{in}$ ・ $S_{out}$ は溶出物の流入出、 $R_{ca}$ は化学反応項、 $\mathcal{M}$ はカーネル関数、 $F_{fsi}$ は流体と粒子の相互作用項である。

本モデルで考慮することが可能なパラメータは表(2)-2に示す通りである。特に、製鋼スラグを粒子としてモデル化するため、スラグ粒径、化学反応深さ、溶出濃度、溶出速度、周辺海水のpHに応じた遅延効果・緩衝影響、溶解度などを適宜考慮できる点に特徴がある。境界条件は、潮位変動、波浪、流れ（例えば、戻り流れや鉛直循環流）などの物理場を入力することが可能である。

また、各種条件下（浚渫土とスラグ混合物の割合）における製鋼スラグからの溶出物の種類と溶出速度は、予めラボ実験を行った結果を用いることとした。

$$\frac{\partial u_i}{\partial x_i} = 0$$

$$\frac{\partial u_i}{\partial t} + u_j \frac{\partial u_i}{\partial x_j} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial P}{\partial x_i} + \frac{\mu}{\rho} \frac{\partial^2 u_i}{\partial x_j \partial x_j} + F_{SV} + g$$

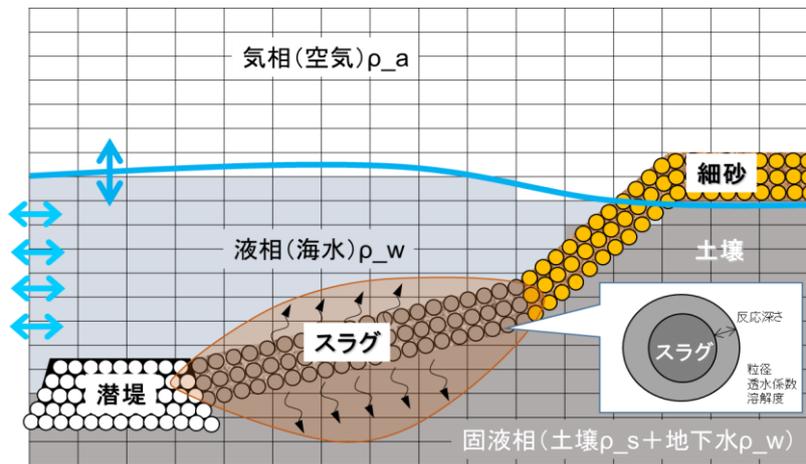
$$\frac{\partial \phi_I}{\partial t} + u_j \frac{\partial \phi_I}{\partial x_j} = 0 \quad \phi_j: \text{相の判別}$$

$$\frac{\partial(C)}{\partial t} + u \frac{\partial(C)}{\partial x} + v \frac{\partial(C)}{\partial y} + w \frac{\partial(C)}{\partial z} =$$

$$K_h \left( \frac{\partial^2(C)}{\partial x^2} + \frac{\partial^2(C)}{\partial y^2} \right) + K_z \left( \frac{\partial^2(C)}{\partial z^2} \right) + S_{in} + S_{out} + R_{ca}$$

$$\nabla \left( \frac{\nabla P^{n-1}}{\rho^*} \right) = \frac{\nabla \cdot \mathbf{u}^*}{\Delta t}$$

$$F_{jii}(\mathbf{r}_a) = -\frac{1}{\rho(\mathbf{r}_a)} \sum_b m_b \frac{P(\mathbf{r}_b)}{\rho(\mathbf{r}_b)} \nabla_a W(\mathbf{r}_a - \mathbf{r}_b, h)$$



図(2)-7 数値シミュレーションモデルの概要

表(2)-2 考慮可能な数理パラメー

項目	考慮できるパラメータ
対象海域	干潟, 藻場 in 2D
混相(固気液3相)	水, 空気, 土壌を考慮
潮位	水位レベル, 干出, 干水
流動	潮流, 波浪による流れ(波高, 周期, 戻り流含む)
移流・拡散に関わる係数	観測値との同化パラメータ
地下水	潮位と波浪による流れに追随
N種類の土壌	粒径, 密度, 透水係数, 混合比
N種類のスラグ	粒径, 密度, 透水係数 (脱炭, 脱リン, クリンカアッシュ, 石炭灰造粒物など)
スラグの反応量	反応深さ・速度, 溶出濃度 溶解度, 遅延制御
溶出物 (Ca, Fe, NH4, PO4, Mg)	土壌内の移流・拡散による溶出ポテンシャル(時間変化・空間分布) 海水への流出移動量
スケール効果	格子・粒子の調整パラメータ(実スケールとモデルスケールの比)
その他	PH緩衝影響

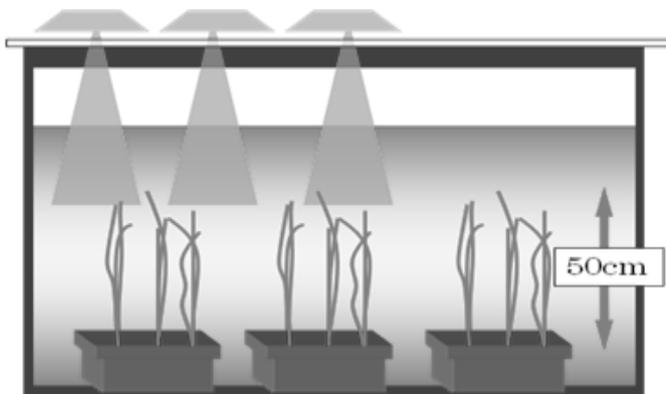
### (3) 潮間帯への敷設を想定した脱炭スラグを活用して造成した干潟環境と生態系（干潟マイクロコズム I I）

脱リンスラグを用いた干潟マイクロコズムIの試験終了後、二回目のマイクロコズム試験として炭酸化処理した脱炭スラグを用いた試験を行った。脱炭スラグの固化の原因がスラグからのCaOの溶出であることから、炭酸化処理によってスラグ表面のCaOを炭酸カルシウムとして固定し、炭酸カルシウムの被膜を作成することによってスラグ内部からのCaOの溶出を抑制し、固化を防止することを試みた。円筒容器に乾燥スラグ10 kgを充填し、常温下でCO<sub>2</sub>を1 L min<sup>-1</sup>にて供給することによってスラグを炭酸化させた。総CO<sub>2</sub>供給量は約50 g kg<sup>-1</sup>で、約20 g kg<sup>-1</sup>が反応した。炭酸化処理した脱炭スラグに浚渫土を5%混合した混合土を用いて2013年10月に干潟マイクロコズム内に干潟を造成した。この際、実験期間が前回の脱リンスラグと比較して短期間であったため、広島市太田川放水路の河口干潟にて採取した60 Lの土壤に含まれるベントスを2013年12月3日（稼働後53日目）に、沖側端に植種した。なお、本試験では脱リンスラグより固化の進行が顕著な脱炭スラグでの試験である点を考慮し、より高硬度に対応できるコーン圧入試験を土壌強度の評価に用いた。

### (4) 潮下帯への敷設を想定したスラグを活用して造成した藻場環境とアマモ生育

#### 1) アマモの根の活着力

アマモの生育には生息基盤である土壌の安定が重要であると同時に十分に根が土壌に活着し流出しないことが特に人工的にアマモを植種する場合は重要である。そこでスラグに対するアマモの活着を評価した。試験用に用いたアマモ及び天然底泥は広島県湾内で採取した。海水は山口県水産試験場のろ過海水を使用した。縦2m、横1m、高さ1mの長方形の水槽をアマモ培養水槽とし、海水約1.8 m<sup>3</sup>で満たした。図(2)-8にアマモ培養水槽の概略を示し、図(2)-9にアマモの培養の様子を示す。明暗条件は12時間ごとにメタルハイドランプをon-offすることで切り替えた。光量子はアマモ葉の先端で100 μmol m<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup>にランプの高さで調整した。また、海水の温度は20±0.5°Cで温調し、塩分濃度は30‰で維持した。



図(2)-8 アマモ培養の概略図

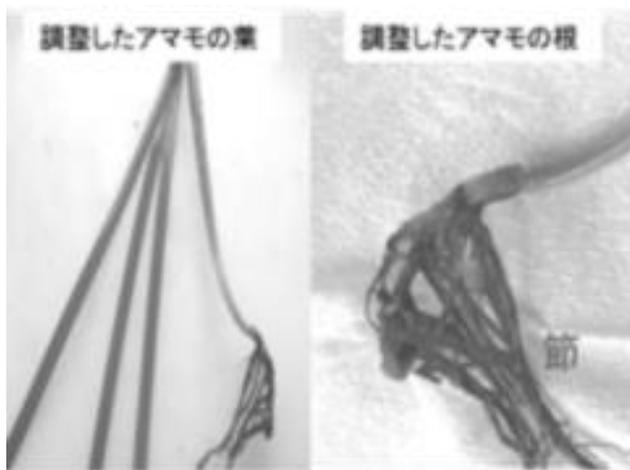


図(2)-9 室内水槽でのアマモ培養の様子

試験には、干潟マイクロコズム試験で用いたものと同じ脱リンスラグと浚渫土を用い、脱リン

スラグへの浚渫土の混合割合を0%（スラグのみ）から8、20、30、40、50、100%（浚渫土のみ）とした。

評価のためのアマモの調整は以下の通りである。採取したアマモは地下茎を4節で切断し、葉丈を50cm、葉数を3枚に調整後、天然底泥に移植し2週間評価環境で馴化した(図(2)-10)。この段階で問題のある個体は排除した。次に評価する土壌に移植し、3週間培養後、施設園芸、牧草などで根の活着力を評価や圧縮試験に用いられるデジタルフォースメーターを用いて引き抜き抵抗試験により根の活着性を評価した<sup>6)</sup>。測定方法は、砂面から2 cmの部分を残して葉を切断し、クリップを取り付け11 cm min<sup>-1</sup>で垂直に引き抜いた。引き抜き時における最大値を計測し、アマモの引き抜き抵抗値とした<sup>7)</sup>。引き抜き試験の様子を図(2)-11に示す。なお、一列につき10株を準備した。



図(2)-10 試験用アマモの調整



図(2)-11 引き抜き試験の様子

## 2) 海水温の違いによるアマモの光合成活性試験

アマモは夏場の高温に弱い。夏を越せないアマモ場では毎年種から発芽・成長する1年生アマモによって構成され、夏を越せるアマモ場では種からの発芽だけでなく夏を越したアマモによる栄養繁殖によってアマモ場が維持されるのでより安定性のあるアマモ場となる。このアマモの高温耐性と土壌の関係を明らかにし、スラグや浚渫土の使用がアマモの高温耐性に及ぼす影響を明らかにする試験を行った。試験は海水温20℃で培養したアマモが入った水槽の水温を2日ごとに1℃増加し、光合成量子収率(Q<sub>y</sub>)に基づくアマモの葉の光合成活性で評価した。Q<sub>y</sub>はFluorPen FP100(図(2)-12)を用いて測定した。測定を行う前に暗順応させるため、消灯後6時間を置いてから測定を行った。測定箇所(図(2)-13)は葉の先端から4 cm刻みの計10ヵ所(全36 cm)である<sup>8)</sup>。

光合成量子収率(Q<sub>y</sub>)は、葉が吸収した光エネルギーが、1) 蛍光になる、2) 光合成に使われる、3) 熱になる、4) それ以外の方法で消光される、という4つの用途に変換されると考え、それぞれ反応速度をk<sub>F</sub>、k<sub>P</sub>、k<sub>D</sub>、k<sub>Q</sub>としたら蛍光の量子収率Φ<sub>F</sub>は次式で表すことができる。同様に光合成の量子収率Φ<sub>P</sub>(Q<sub>y</sub>)は次式で表す。

$$\Phi_F = \frac{k_F}{(k_F + k_D + k_P + k_Q)}$$

これらを踏まえてFv/Fmについて考える。

$$\Phi_P = \frac{k_P}{(k_F + k_P + k_D + k_Q)}$$

Fmは蛍光の強さの最大値、Fvは最小値を表す。これは蛍光収率に置換え可能で次式のように表す。

$$\frac{F_v}{F_m} = \frac{F_m - F_0}{F_m}$$

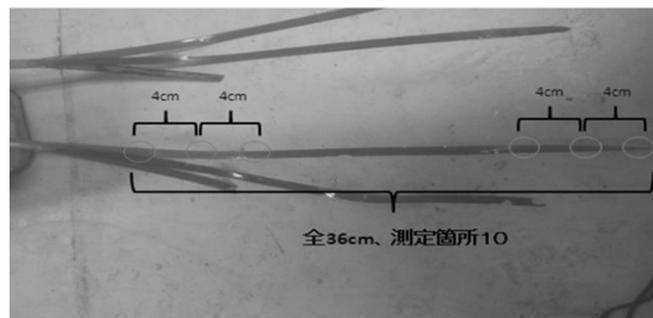
これを変形すると

$$\frac{F_v}{F_m} = \frac{k_{Pm}}{k_F + k_P + k_D + k_Q} = \Phi_{Pm}$$

よってFv/Fmは光合成量子収率(Qy)を示す(暗順応時に限る)。図(2)-12のFluorPen FP100ではFv/Fmを測定することができ、Qyに換算した。<sup>9)</sup>アマモのQyの測定箇所は図(2)-13に示す部分とした。

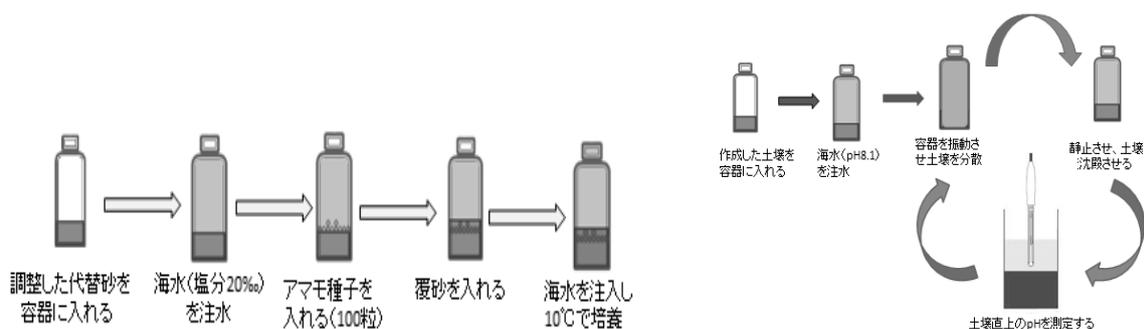


図(2)-12 FluorPen FP100



図(2)-13 光合成収率 (Qy) の測定箇所

発芽試験の手順を図(2)-14、15に示す。海水の塩分濃度を20‰に調整し、亜硫酸ナトリウムを加えることで溶存酸素濃度を0にした。容器に人工代替砂を3~5 cm程度投入する。調整済みの海水を、蓋の近くまで注ぎアマモ種子を100粒ずつ投入した。アマモ種子は熟成が終わり黒色に変色した種子を選別した。覆砂は1 cm程度行う。さらに海水を注ぎ、空隙がないようにして蓋を閉めて10℃で培養し、目視により発芽数を計数した。

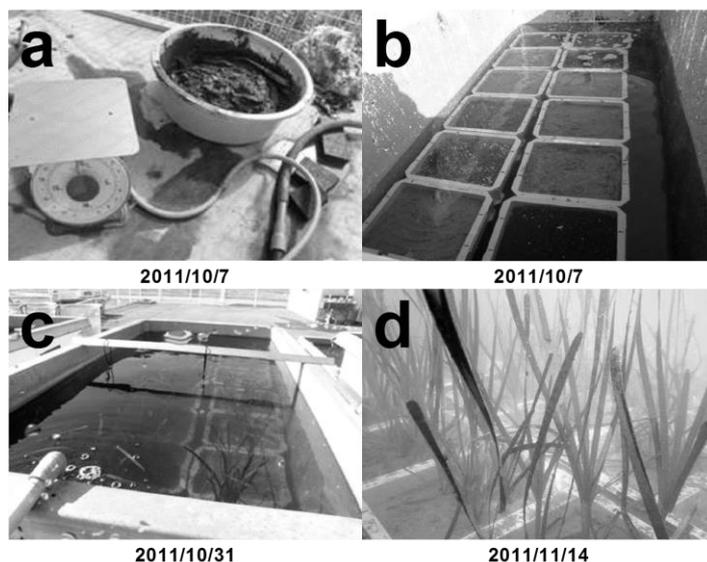


図(2)-14 発芽試験の手順

図(2)-15 代替砂溶出試験の手順

### 3) 小規模藻場試験

試験には、干潟マイクロコズム試験で用いたものと同じ脱リンスラグと浚渫土を用い、異なる混合比で脱リンスラグと浚渫土を混合した土壌を30 cm (縦) × 23 cm (横) × 12 cm (高さ) の平型バットに敷き詰め、図(2)-16に示したようにこれらの平型バットを3-2)節と同様に呉市阿賀マリノポリス埋め立て地内実験場の屋外に設置された大型水槽(縦 1400 × 横 650 × 高さ 270 mm)の内に配置し、2011年10月7日から1cmのメッシュで濾した生海水をかけ流した。スラグは、前処理なしで直接使用した場合と、固化の原因となるアルカリ成分の除去を目的に流水水槽中で1日間洗浄したものをを用いた。最初の2日間はアマモを移植せず、その後各バットに呉市安浦町三津口湾の天然アマモ場から採取したアマモを地下茎5 cm、葉長50 cmに切り揃えたアマモを6本ずつ移植した。平型バット内のアマモの株数と最大葉長、山中式土壌硬度計による混合土壌の硬度(例えば<sup>10)</sup>)、間隙水のpH、栄養塩濃度の経時変化を2012年5月までモニタリングした。また、実験開始約5ヶ月後にあたる2013年2月に実験土壌中の底生生物とアマモ葉上付着生物を調べた。底生生物については、平型バット内混合土壌を23cm×10cmでバットの底まで土壌を採取し、0.8 mmメッシュの篩上の残渣物について分析した。



図(2)-16 脱リンスラグと脱炭スラグを用いた小規模試験

(a) 平型バットに敷き詰める混合土壌の製作。(b) 混合土壌を敷き詰めた平型バット。一つの大型水槽に12の平型バットを並べた。(c) (d) 平型バットに移植されたアマモ。

### 4) 藻場マイクロコズム試験

脱リンスラグと脱炭スラグを用いた小規模藻場試験により、脱炭スラグを主体とする混合土壌については固化が発生し、長期的なアマモの生育に重大な影響を及ぼすことがわかった。そこで、大型水槽を用いた藻場マイクロコズム試験で使用する製鋼スラグは脱リンスラグとし、コントロールとして天然砂(ケイ砂)を使用した。脱リンスラグと浚渫土の混合比は、浚渫土乾燥重量比で干潟マイクロコズム試験と同じ92:8(脱リンスラグ92%—浚渫土8%)、85:15、70:30および25:75とし、ケイ砂と浚渫土の混合比も同じとした。なお、スラグやケイ砂を混合しない土壌の傾向を把握する

ため、浚渫土単独（浚渫土100%）の試験も実施した（図(2)-17）。

2012年11月初旬に、内寸90×110cm、深さ67 cmの角形水槽に上述の混合土壌をそれぞれ厚さ18 cmで敷き詰め、天然海水を掛け流した。なお、藻場土壌内の間隙水質をモニタリングする目的で土壌表面から1、6および12 cmの深さにフィルター（Ryzon）を埋設し、定期的にシリンジで吸引して間隙水を採取した。アマモ移植最適時期にあたる12月初旬に呉市安浦町三津口湾の天然藻場から採取したアマモを地下茎5 cm、葉長40 cmに切り揃え、各水槽に80本ずつ移植した。実験水槽におけるアマモの株数と葉長、間隙水のpH、栄養塩濃度等を2014年3月までモニタリングした。また、実験開始約4ヶ月後（2013年2月）と約1年後にあたる2013年10月に実験土壌を直径11 cmの筒で深さ10 cmまで採取し、0.8 mmメッシュの篩でふるって底生生物の分析を行った。このほか、人工アマモ場の造成材料としての脱リンスラグと浚渫土の混合土壌が、ケイ砂と浚渫土の混合土壌と同等の効果を基盤土壌表面の付着藻類に与えるか否かを検証するため、ケイ藻（Diatoms）・藍藻（Cyanobacteria）・緑藻（Green Algae）ごとに分別された基盤土壌表面の単位面積当たり付着藻類量を、蛍光強度法に基づくクロロフィルa量として、7ヶ月間にわたり調査した。計測には、多波長蛍光高度計Bentho Torch（bbe Moldaenke社）を用いた<sup>11)</sup>。



図(2)-17 大型水槽を用いた藻場マイクロコズム実験の概要

#### 5) 藻場域における製鋼スラグの溶出シミュレーションモデルの構築

ここでは(2)-2-e節と同様の計算手法により、潮下帯での製鋼スラグの溶出シミュレーションモデルの構築を行った。

### 4. 結果及び考察

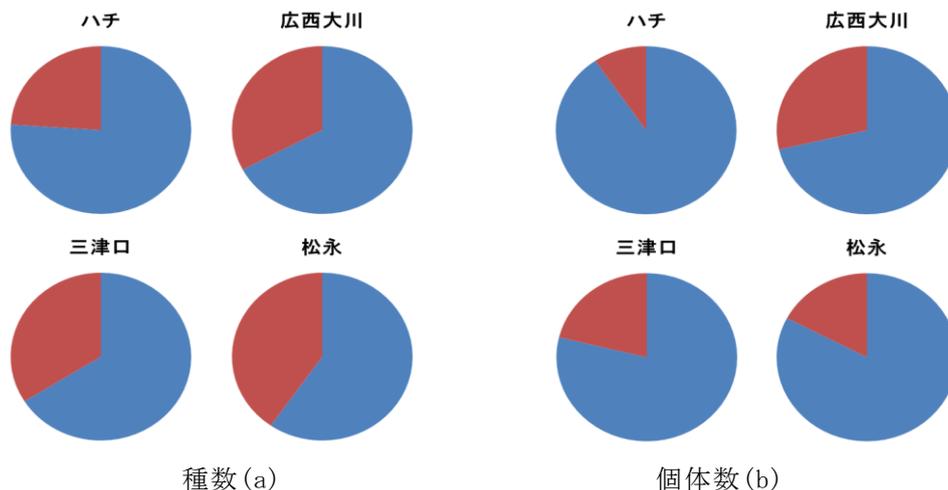
#### (1) 天然・人工干潟生態系の評価

##### 1) 天然干潟の土壌環境と底生生物群集

全調査地点（n = 35）で観測されたpHの範囲は6.92～8.08、ベーレンセン断応力の範囲は0.44～3.29 kN m<sup>-2</sup>であった。採集した生物のうち、埋在性ベントスに該当した分類群は、主に二枚貝綱と多毛綱であり、表在性ベントスに該当した分類群は、主に腹足綱と軟甲綱であった。採集した全ベントスのうち、埋在性ベントスの種数が占める割合は68%、個体数が占める割合は81%であり、全体的に埋在性ベントスが優占した。埋在性ベントスが優占する状況は、4か所の干潟を個別に見た場合、多少違いはあったものの基本的には変わらなかった（図(2)-18）。全地点のデータを対象と

して、間隙水環境（pH、ORP）と埋在性・表在性ベントスの種数及び密度との関係を調べたが、各2因子間に有意な関連性は見られなかった（負の二項分布を仮定した一般化線形混合モデルにおけるワルド検定の $p > 0.05$ ）。せん断応力は埋在性・表在性ベントスの種数と、表在性ベントスの個体数に影響を及ぼさなかったが、より固い堆積物表面ほど表在性ベントスが増加する傾向が見られた（ $p < 0.05$ 、負の二項分布を仮定した一般化線形混合モデルにおけるワルド検定）。

堆積物の粒度組成が変化することによって、粒径以外の土壤環境が底生生物の分布に影響を及ぼすことについて昨年度の報告書の中で言及したが、仮説検定によりこの効果を確認した（表(2)-3）。埋在性ベントスの分布は、表在性ベントスよりも特定の堆積物粒度組成の条件下で、pH、ORP、せん断応力と関連して変動した。例えば、pHは堆積物の中央粒径が $200 \mu\text{m}$ 以下の条件下で、埋在性ベントスの種数との間で正相関した（図(2)-19）。他の検定結果で得られた交互作用も検証した結果、先述の例と同様に、粒度の細かな堆積物環境下で、いくつかの土壤環境因子とベントスの分布との間に関連性があった。しかし、干潟マイクロコズムを用いた実験では中央粒径は $1 \text{mm}$ 以上あり（図(2)-5）、上記のような粒度組成が関連した交互作用によるベントス群集への影響が起こる可能性は低いと考えられた。



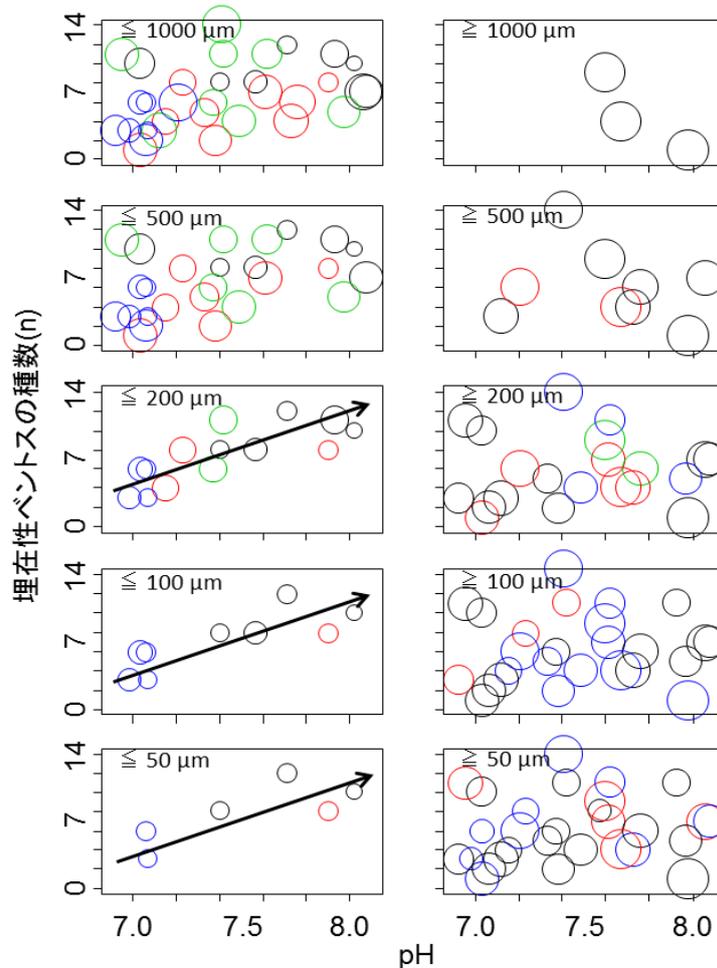
図(2)-18 広島湾内4か所の天然干潟における埋在性ベントス（青）及び表在性ベントス（赤茶）の種数(a)及び個体数(b)

表(2)-3 埋在性・表在性ベントスに対する土壤環境因子どうしの交互作用の検証結果。数字は尤度比検定のp値。赤字は有意水準5%で交互作用の有効性を示した検定結果

土壤の粒径に関する環境因子		埋在性ベントス		表在性ベントス	
		種数	密度	種数	密度
中央粒径	せん断応力	0.47	0.35	0.21	0.43
	pH	0.034	0.33	0.86	0.20
	ORP	0.24	$1.6 \times 10^{-4}$	0.46	$4.3 \times 10^{-4}$
シルト・クレイ含有率	せん断応力	0.71	0.34	0.50	0.56
	pH	0.67	0.24	0.53	0.67
	ORP	0.62	0.88	0.51	0.93
淘汰度	せん断応力	0.68	0.015	0.84	0.70
	pH	0.26	0.13	0.60	0.50

ORP	0.028	0.15	0.22	0.38
-----	-------	------	------	------

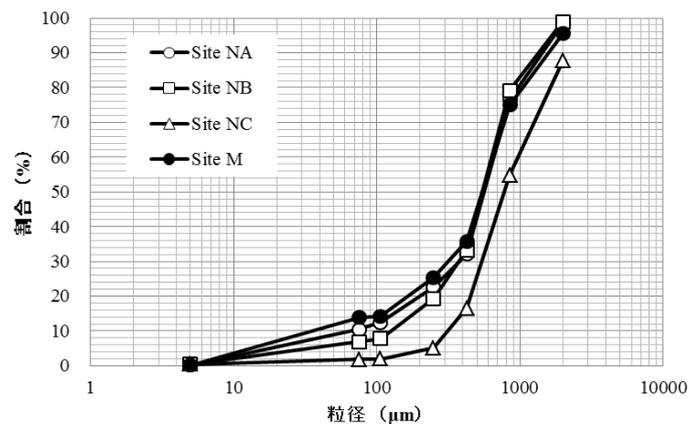
また、干潟および藻場マイクロゾム実験場のごく近傍に位置する広西大川では、ホトトギスガイ（全個体数の20%）、ウミニナ（16%）、ゴカイ科に属する多毛類（12%）、ヨコエビ亜目（10%）が優占していた。



図(2)-19 10パターンの中核粒径の範囲で制限した条件下におけるpHと埋在性ベントスの種数との関連性。黒：ハチの干潟、赤：広西大川、緑：三津口湾、青：藤井川。円の大きさは中央粒径の大きさを反映。

## 2) 人工干潟生態系の特性評価

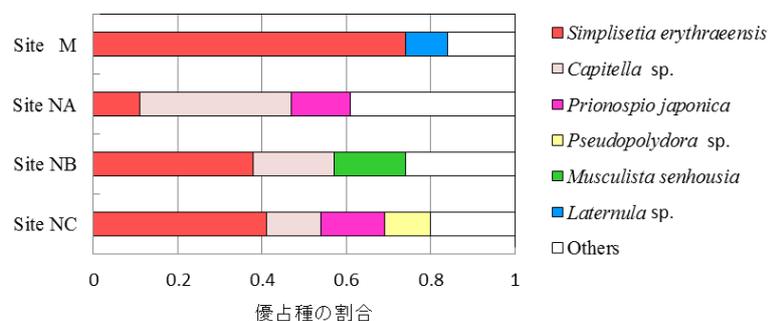
調査した人工干潟（Site M）及び自然干潟土壌（Site NA～NC）の粒径分布を図(2)-20に示す。Site MとSite NA、NBは同様な粒度分布を示し、中央粒径はそれぞれ0.508、0.503、0.540mmであった。一方、Site NCはやや粒径が大きく、中央粒径はそれぞれ0.789mmであった。シルト・クレイ含有量についてはSite NAとNBで異なっており、0.222%と0.123%であり、Site NAの含有量はほぼSite Mと等しかった。



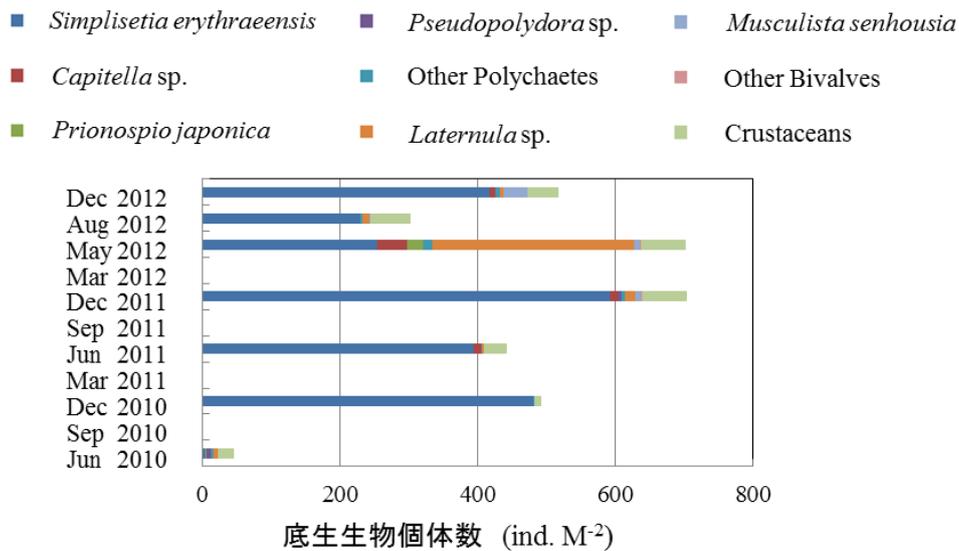
図(2)-20 人工干潟 (Site M) 及び自然干潟土壌 (Site NA~NC) の粒径分布

図(2)-21にそれぞれの干潟で優占した底生生物を示す。Site Mではコケゴカイ (*Simplisetia erythraeensis*) が70%以上優占していた。一方で自然干潟ではコケゴカイも優占していたが、その割合は土壌組成がほぼSite Mと等しいSite NAで約10%、Site NB、NCで40%程度であった。一方、自然干潟3か所で優占していたイトゴカイ (*Capitella* sp.) はSite Mでは優占していなかった。Site Mと自然干潟3か所の土壌組成以外の大きな違いは土壌高さである。人工干潟は河川現地盤上に盛土して造成されたため、自然干潟と比較して土壌高さが高く、東京湾平均海面 (T.P.) を基準とするとSite MでT.P. 0.8m、Site NA~NCはいずれもT.P. -1.2mである。太田川放水路という同一の水域に形成された生態系かつほぼ同一の土壌組成を持つ干潟であっても干出・冠水時間が異なる土壌高さが底生生物種構成に大きな影響を及ぼすことがわかった。

図(2)-22は、本課題に取り組む以前からのSite Mにおけるモニタリング結果を含めて人工干潟が造成された2010年3月以降の底生生物の個体数と種構成の推移を示す。造成に使われた土壌は放水路内の砂州を掘削して取得しており造成時にはほとんど底生生物はいなかったと考えられる。造成3か月後では底生生物数は非常に少なかったが、9か月後には個体数としてはほぼそれ以降と同じレベルに達している。ただ、ほとんどはコケゴカイであり、Shannon-Wiener、Simpson等主要な多様度指数は9か月後から、26か月後に向けて増加しており、1年程度でも個体数レベルではある程度の評価が可能である反面、種構成や季節的な変動を含めた生態系評価には2年以上のモニタリングが望ましいことが示唆された。



図(2)-21 人工干潟 (Site M) 及び自然干潟土壌 (Site NA~NC) における優占種



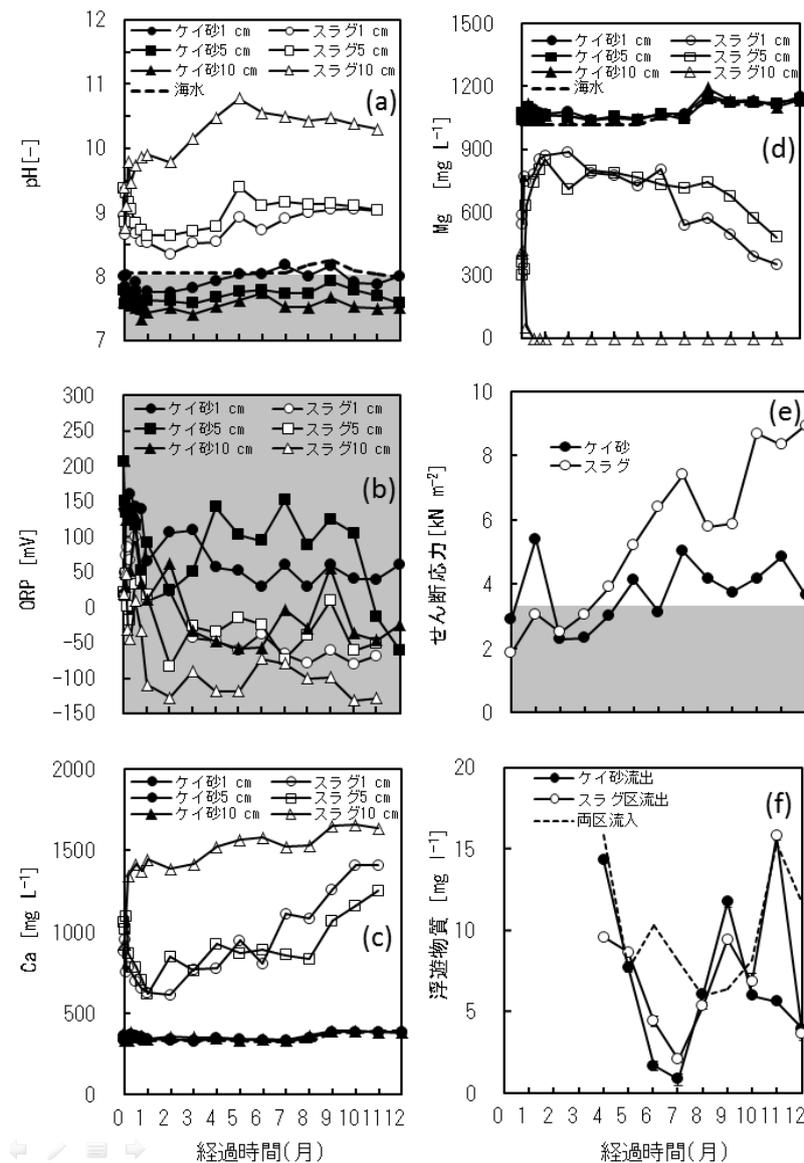
図(2)-22 人工干潟 (Site M) における底生生物個体数と組成の推移

## (2) 潮間帯への敷設を想定した脱リンスラグを活用して造成した干潟環境と生態系 (干潟マイクロコズム I)

### 1) 土壌特性・間隙水の水質の変化

干潟マイクロコズムの土壌及び海水環境の時系列変化を図(2)-23に示す。スラグ間隙のpHは、海水と比べて高く、より深い測点ほど高い値を示した。土壌の深さ10 cmのpHは、実験開始から約1年経過しても10以上と高かった。間隙水のCa濃度は、海水の1.8~4.9倍ほど高く、最も深い測点では実験開始から4カ月経過後、常に1500 mg l<sup>-1</sup>以上の高い値を示し、この傾向は実験開始から1年経過しても継続した。Mg濃度はスラグ区の全測点で海水より低く、実験開始から半月以上経過した深さ10 cmの間隙水ではほぼ0であった。

土壌のせん断応力は実験開始後1か月目まではケイ砂区の方が高かったが、その後はスラグ区の方が高くなった(図(2)-23(e))。さらに、実験開始後2か月以降の土壌のせん断応力は、両区とも概ね時間の経過と共に上昇し、先述の天然干潟の上限値を越えた。スラグ区の土壌のせん断応力の値は、その後も上昇し、10か月目以降8~9 kN m<sup>-2</sup>となり、ケイ砂区の4~5 kN m<sup>-2</sup>と比較し2倍程度の値を示した。本マイクロコズム内では波は再現しているものの定常波であり、荒天による波高の上昇やかく乱は再現していない。実際の干潟では土壌の掘削や堆積なども起こりながら干潟形状を維持しているがそのようなダイナミックな変化が再現されないマイクロコズム内では土壌は締め固まる方向にしか作用を受けず、ケイ砂区においても自然干潟で観察されるより高いせん断応力になったと考えられる。スラグ区では固化の進行という側面があっただけでなく砂の密度(2.6 g cm<sup>-3</sup>)と比較して脱リンスラグの密度(3.6 g cm<sup>-3</sup>)は大きいためにより動きにくく締め固まりが進んだと考えられる。

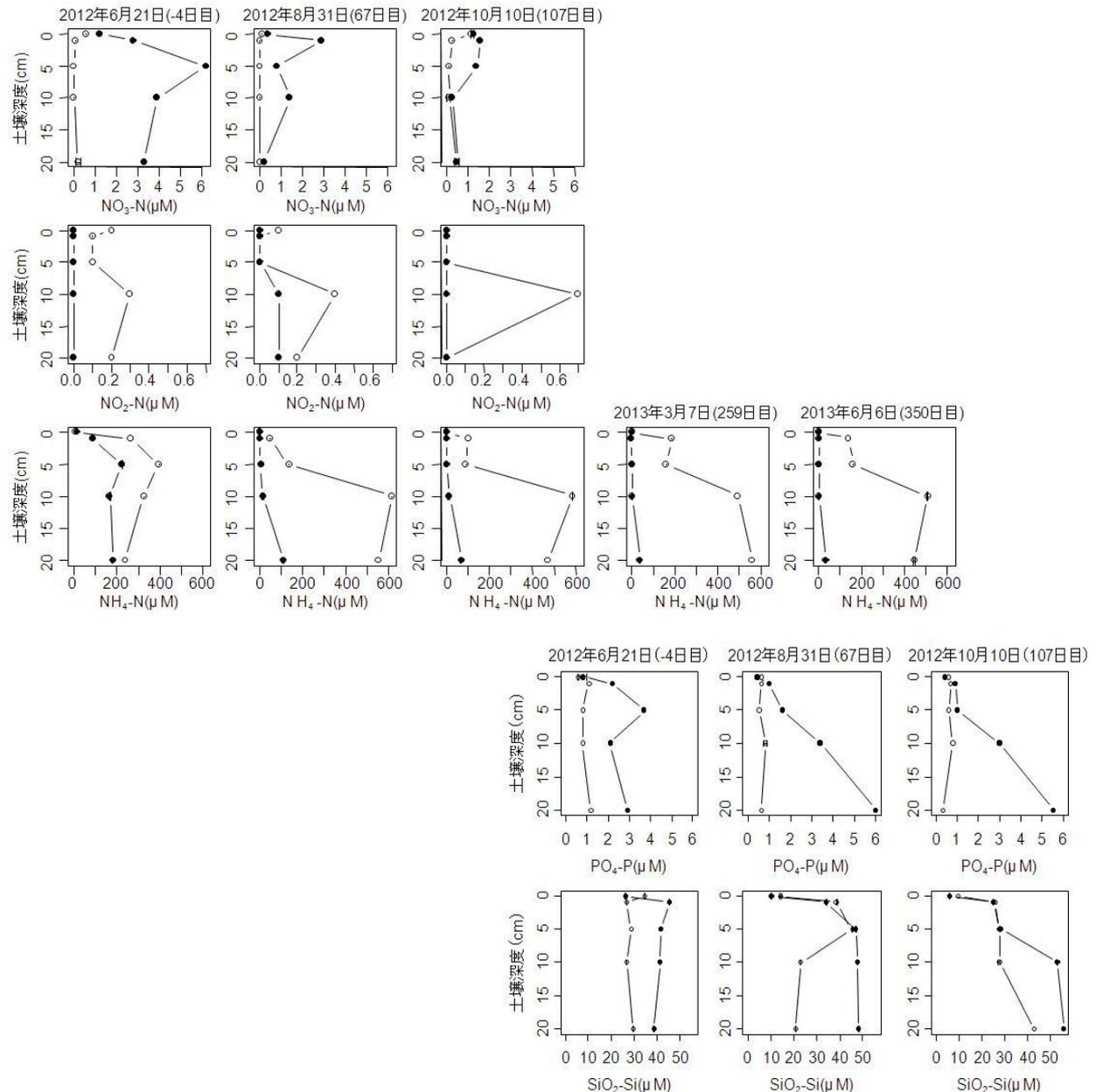


図(2)-23 干潟マイクロコズムのスラグ区(白印)とケイ砂区(黒印)の間隙水中pH(a)、ORP(b)、Ca(c)とMg(d)の深度別(1、5、10 cm)濃度、土壌表面から深さ4cmまでのベーンせん断応力(e)、及び海水中の浮遊物質濃度(f)の経時変化(経過時間は測定開始日(2012年7月9日)を0日目とした月数)。(a)と(b)の灰色の範囲は、天然干潟の間隙水における範囲。(d)の灰色部分は天然干潟の値。

次に栄養塩動態について図(2)-24に示す。硝酸態窒素( $\text{NO}_3\text{-N}$ )は実験に使用したケイ砂そのものに豊富に含まれており、経時的に低下したが、これは生物体内に取り込まれたものと考えられる。一方、亜硝酸態窒素( $\text{NO}_2\text{-N}$ )とアンモニア態窒素( $\text{NH}_4\text{-N}$ )の濃度はもともとスラグ区で高く、スラグ区の深さ10 cm以深では経時的に $\text{NH}_4\text{-N}$ の蓄積が見られた。この結果は、スラグ区土壌の10 cm以深における硝化細菌の活動が不活発であることを示唆しているが図(2)-23に示したようにスラグ区ではORPが特に深部で低下しており硝化が起りにくい環境であったと考えられる。リン酸( $\text{PO}_4\text{-P}$ )は常にスラグ区の土壌で低かったが、これは相対的に脱リンスラグが豊富に含む水酸化鉄がリン酸を吸着するためであると考えられた。ケイ酸( $\text{SiO}_2\text{-Si}$ )はもともとケイ砂に多く

含まれるが、両区の土壤深さ5 cm以浅にあったものが減少した。この減少は後述の珪藻類の増殖が原因と考えられた。

以上の結果は、脱リンスラグを砂代替として用いた場合には土壤の硬さとスラグからの溶出物等に伴う間隙水水質、特に高pH、栄養塩濃度に留意して干潟上に形成される生態系を評価する必要があることを示している。また、非定常の荒天等に伴う大きな攪乱が再現できないマイクロコズムでの評価ではあるが、スラグからの溶出物等に伴う特異な間隙水環境は少なくとも1年程度は継続することが明らかとなった。

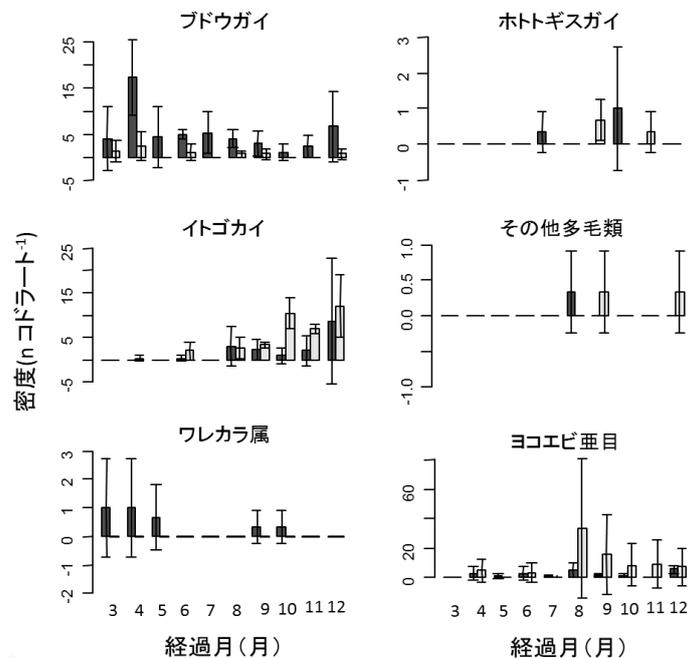


図(2)-24 干潟マイクロコズムのスラグ区(白印)とケイ砂区(黒印)の間隙水中における $\text{NO}_3\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{PO}_4\text{-P}$ 、 $\text{SiO}_2\text{-Si}$ の深度別濃度(カッコ内は測定開始日(2012年6月25日)を起点とした日数)

## 2) 藻類およびベントス叢の変化

定性調査では、スラグ区から3門6分類群の動物と3門5分類群の藻類、ケイ砂区から3門7分類群の動物と3門6分類群の藻類の出現が確認された。アナアオサ、フクロノリ、紅藻（葉状）、ブドウガイ（着底後の稚貝及び成貝、卵）、ホトトギスガイ、ゴカイ科、ヨコエビ亜目、ワレカラ属はスラグ区およびケイ砂区両方で確認された。このうち出現頻度がスラグ区で有意に高かったのは全種表在性であるボタンアオサ ( $p = 2.2 \times 10^{-10}$ )、フクロノリ ( $p = 0.0045$ )、紅藻類（葉状） ( $p = 0.041$ )、テングサ科 ( $p = 3.0 \times 10^{-5}$ )、ケイ砂区で有意に高かったのは埋在性ベントスを含むホトトギスガイ ( $p = 1.6 \times 10^{-6}$ )、ミズヒキゴカイ ( $p = 0.0076$ )、ウシケノリ科 ( $p = 0.0029$ ) であった。一方、スラグ区にのみ出現した生物は、藻類ではボタンアオサ、テングサ科、動物ではアラムシロであり、いずれも表在性の生物に該当した。一方、ケイ砂区にのみ出現した生物は、藻類ではヒラアオノリ、スジアオノリ、ウシケノリ科、動物ではミズヒキゴカイ科、イトゴカイ科であり、動物は2分類群とも埋在性ベントスであった。このうち出現頻度が高くスラグ区でのみ確認されたボタンアオサとテングサ科の藻類、ケイ砂区でのみ確認されたミズヒキゴカイ、ウシケノリ科の藻類は、それぞれの区の環境を示す指標種とみなせた。

動物の定量調査ではブドウガイ、ホトトギスガイ、イトゴカイ、その他多毛類、ワレカラ属の6種が確認された（図(2)-25）。スラグ区では表在性ベントスであるブドウガイとワレカラ属の密度が高く、ケイ砂区では埋在性あるいは埋在性と表在性の両方に該当するイトゴカイ、ヨコエビ亜目の密度が高かった。定性調査と定量調査の結果は、スラグ区は表在性ベントスが優占しやすい環境にあることを示唆している。これらの種のうち、密度に有意差がみられたのはブドウガイとイトゴカイであった（ブドウガイ  $P = 3.0 \times 10^{-5}$ ；イトゴカイ  $P = 0.031$ ；ワレカラ属  $P = 0.063$ ；ヨコエビ亜目  $P = 0.26$ ；ワレカラ属  $P = 0.063$ 、いずれもウィルコクソンの符号順位和検定（両側検定））。



図(2)-25 スラグ区（白棒）及びケイ砂区（黒棒）における大型底生動物の生息密度

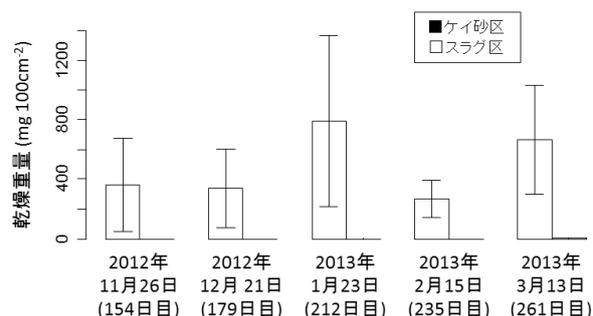
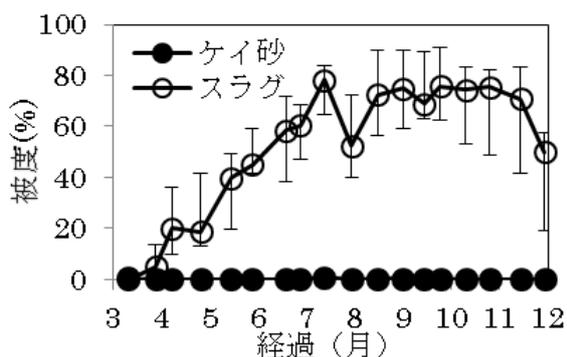
干潟マイクロコズムのスラグ区と、マイクロコズムに使用した海水採取元の呉湾の干潟（広西大川の河口干潟）に共通する動物分類群は、ホトトギスガイ、ゴカイ科、ヨコエビ亜目であり、ウミユナを除くと広西河口干潟で優占していた種はすべてスラグ区でも観察された。本試験ではベントスの植種は行っていないが、海水を経由してこれらのベントスの幼生が移入し、増殖したと考えられる。

大型藻類の定着が10月（実験開始から約3.3カ月経過）から両区で確認され始めたが（図(2)-26）、10月上旬からスラグ区で藻体の成長が目立ち、顕著な増殖が見られた（図(2)-27）。大型藻類の被度は3月以降横ばいとなり、6月の実験終了時に50%程度まで低下した。両区ともアオサ属藻類が最も多かった。実験終了の2か月ほど前から葉緑素の抜けたアオサ類が目立ち、ちぎれてマイクロコズムの沖側に堆積していた。一部の藻類では、付着基盤である土壌ごとにはがれていた。スラグ区での大型藻類の平均乾燥重量（ $415.3 \text{ mg } 100 \text{ cm}^{-2}$ ）は、ケイ砂区（ $0.34 \text{ mg } 100 \text{ cm}^{-2}$ ）と比べておよそ1、200倍高かった（図(2)-28）。

微細藻類は2012年7月9日（実験開始後14日目）から2013年5月17日（実験開始後326日目）までの合計13回のサンプリングによって、4綱36分類群（珪藻綱30分類群；藍藻綱3分類群；黄金色藻綱2分類群；ハプト藻綱1分類群）の定着を確認した。スラグ区より4綱30分類群（珪藻綱26分類群；藍藻綱2分類群；黄金色藻綱1分類群；ハプト藻綱1分類群）、ケイ砂区より3綱30分類群（珪藻綱26分類群；藍藻綱3分類群；黄金色藻綱1分類群）の存在を確認した。両区とも珪藻綱に属する分類群数が全体に占める割合は約87%に達した。スラグ区でのみ確認された分類群は珪藻綱4種（*Cymatopleura solea*、*Odontella* sp.、*Skeletonema costatum*、*Synedra* spp.）、黄金色藻綱1種（*Distephanus speculum*）、ハプト藻綱1種（Haptophyceae）であり、ケイ砂区でのみ確認された分類群は、珪藻綱4種（*Cyclotella* spp.、*Eucampia zodiacus*、*Hyalodiscus stelligera*、*Thalassionema nitzschioides*）、藍藻綱1種（*Aphanocapsa* sp.）、黄金色藻綱1種（*Dictyochoa fibula*）であった。



図(2)-26 アオサ類被度の様子（左：ケイ砂区、右：スラグ区）



図(2)-27 各区アオサ類被度の経時変化

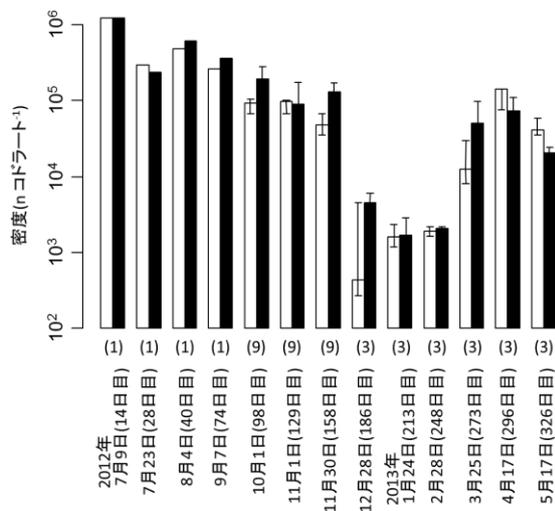
図(2)-28 各区アオサ類乾燥重量の経時変化

微細藻類の平均密度は、スラグ区 (205、182  $\text{cm}^{-2}$ ) と比べ、ケイ砂区 (247、355  $\text{cm}^{-2}$ ) で約1.2倍高かったものの大きな差はみられなかった。ケイ砂区の微細藻類は2012年7月23日 (実験開始後28日目) を除き、実験開始から2013年3月25日 (実験開始後273日目) まで一貫してスラグ区よりも高かった (図(2)-29)。しかし、2013年4月17日 (実験開始後296日目) 以降、この傾向は逆転し、スラグ区の微細藻類密度が高くなった。珪藻綱の平均密度は両区で全平均密度の99%以上を占めた (図(2)-30)。初期には *Nitzschia longissima* が増殖し、その後 *Navicula* spp.、*Nitzschia* spp.、*Melosira* spp.、*Cymbella* spp. が優占したが、この傾向は両系で共通しており、両系で主要な藻類に大きな違いがないことが明らかとなった。一方で、先述した一方の区でのみ確認された分類群の出現頻度と平均密度に注目した場合、これらの種の出現頻度は13回の調査中1~5回、平均密度は3~1、133 個体  $\text{cm}^{-2}$ 以下の範囲でばらついていた。スラグ区では富栄養化した海域で増殖する赤潮珪藻の1種である *S. costatum* の出現頻度が13回中5回、平均密度1、097 個体  $\text{cm}^{-2}$  (31種中12位) と高く、スラグ区を特徴付ける微細藻類であると言える。スラグ区にのみ出現したその他5種の出現頻度は1-3回までばらつき、平均密度は154 個体  $\text{cm}^{-2}$  と低かった。一方、ケイ砂区では藍藻綱の *Aphanocapsa* sp. の平均密度が1、133 個体  $\text{cm}^{-3}$  (31種中14位) と高かったものの、出現頻度は13回中1回と低かった。ケイ砂区にのみ出現した他の5種の出現頻度も全て1回であり、これらの種はケイ砂区を特徴付ける種というよりは、日和見的に出現した種とみなせる。

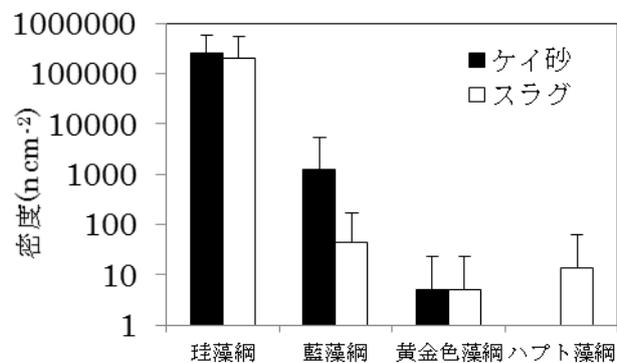
スラグ区とケイ砂区に共通して出現した微細藻類の密度を、統計解析を用いて比較した結果、有意に密度の中央値が異なったのは *Cymbella* spp.、*Navicula* spp.、*Surirella* sp. の3種であり、これらの種の密度の中央値はすべてケイ砂区側で高かった (*Cymbella* spp.  $p = 0.023$ 、スラグ区  $0 \text{ cm}^{-2}$  ( $0 \sim 33 \text{ cm}^{-2}$ ) vs ケイ砂区  $33 \text{ cm}^{-2}$  ( $0 \sim 4800 \text{ cm}^{-2}$ ) ; *Navicula* spp.  $p = 0.021$ 、スラグ区  $33600 \text{ cm}^{-2}$  ( $96 \sim 52800 \text{ cm}^{-2}$ ) vs ケイ砂区  $50800 \text{ cm}^{-2}$  ( $22200 \sim 83067 \text{ cm}^{-2}$ ) ; *Surirella* sp.  $p = 0.0039$ 、スラグ区  $0 \text{ cm}^{-2}$  ( $0 \sim 67 \text{ cm}^{-2}$ ) vs ケイ砂区  $233 \text{ cm}^{-2}$  ( $0 \sim 367 \text{ cm}^{-2}$ )。カッコ内は四分位範囲)。

スラグ区とケイ砂区では、大型藻類の繁茂に大きな違いが表れた。この原因として、スラグ区では土壌の固化に伴い土壌表面の安定性が増した結果、アオサ類を中心とする大型藻類が定着及び増殖しやすくなったと考えられた。この大型藻類の増殖に伴って土壌表面に到達する光量子が減少することが想定されたが、ケイ砂区との付着藻類量および付着藻類構成群の違いは顕著ではなかった。

一方、クロロフィル *a* 濃度によっても表面微細藻類量を評価した。実験開始 28 日に両区でピークを示し、特にスラグ区 1.25 および 3.75 m 地点で  $90\text{--}95 \mu\text{g g}^{-1}$  と高い値を示し、同一のケイ砂区と比較し、2~9 倍高かった (図(2)-31)。その後は両区でクロロフィル *a* 濃度は低下し、140 日に再び増加した。クロロフィル *a* 濃度の変動は先に示した付着藻類数の変動とは明確な一致をみなかった。一方、光合成活性の指標である Fm/Fv 値についても測定したが測定期間中 0.55~0.75 の範囲で変動していた。クロロフィル *a* 濃度のピークを示した 28 日目および 140 日目には値の上昇がみられた。ただし、必ずしも Fm/Fv 値の上昇した区画でクロロフィル *a* 濃度が高くなるという直接的な関係は見られなかった。



図(2)-29 各区微細藻類密度の経時変化  
バー直下のカッコ内数字はコドラートの数



図(2)-30 各区微細藻類密度の経時変化

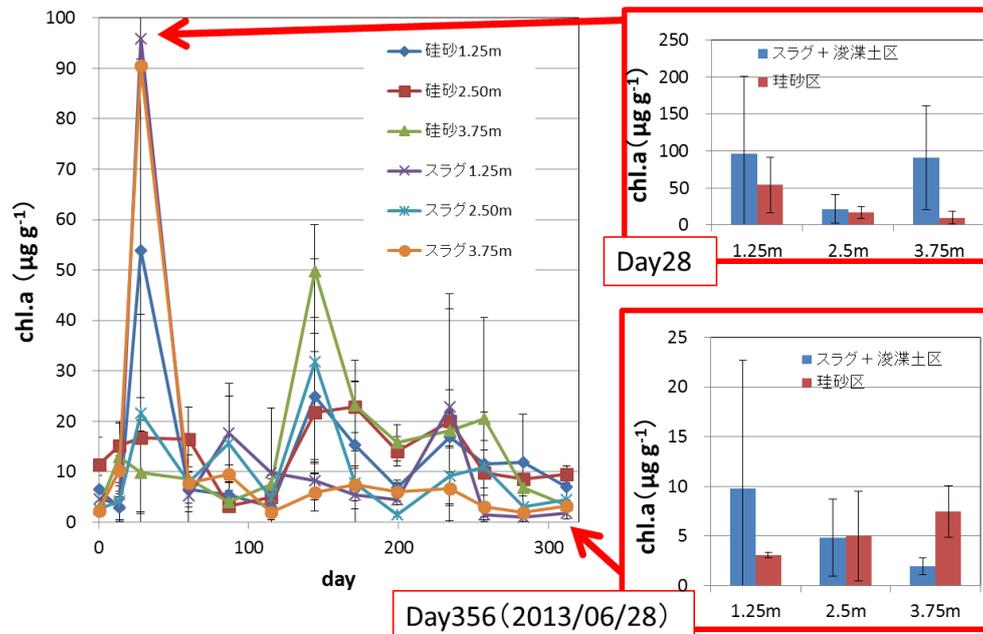
環境調査及び生物調査の結果から得られた、スラグ区とケイ砂区の相対的な特徴を表(2)-4にまとめた。スラグ区の土壌は天然干潟ではみられない硬さに達し、間隙水の pH 及び  $\text{NH}_4\text{-N}$  は海水より高かった。この傾向は実験開始後 1 年経っても維持されていた。スラグの密度 ( $3.6 \text{ g cm}^{-3}$ ) がケイ砂 ( $2.6 \text{ g cm}^{-3}$ ) と比べて大きく、一定の固化の進行が見られ、土壌の安定性が高かった結果がアオサの増殖と表在性ベントスが卓越した生態系構造を引き起こしたと考えられる。しかし、自然界では荒天による土壌の攪乱などが非定期的起こっており、アオサや表在性ベントスの増殖には抑制的に働く。本マイクロコズムでは非定常の攪乱は再現できておらず、自然界の干潟より土壌が安定しやすくアオサや表在性ベントスの増殖を促進した点は考慮する必要がある。

安定同位体比分析の結果を図(2)-32に示す。ワレカラ属とゴカイ科は、浚渫土、すなわち浚渫土中の有機物質を餌としている傾向がみられ、スラグにしるケイ砂にしる浚渫土との混合土壌としたことによってこれらのベントスの増殖が促されたと考えられる。一方、ホトトギスガイの炭素安定同位体の数値は、スラグ区とケイ砂区で同調して変動していたことから、ろ過食者であるホトトギスガイは再懸濁した付着藻類よりも海水起源の植物プランクトンを餌としていたと考えられる。

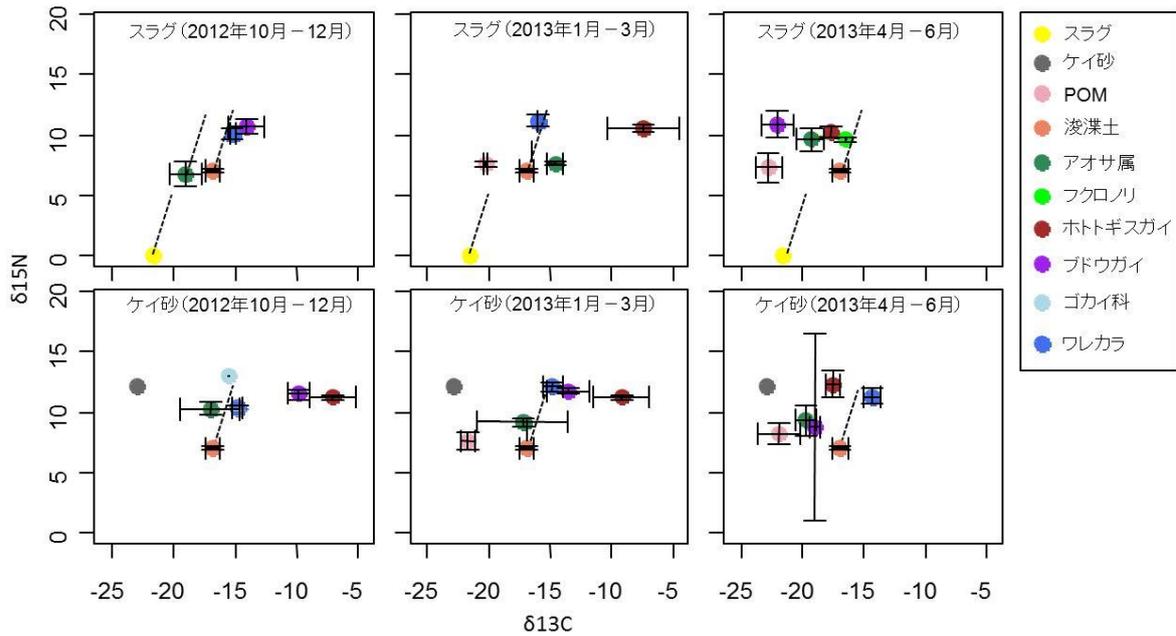
アオサ属を主な餌とする生物種は確認できず、スラグ区あるいはケイ砂区特有の食物網は明らかとはならなかった。

表(2)-4 スラグ区とケイ砂区の相対的特徴

	スラグ区	ケイ砂区
間隙水 pH	高	低 (海水と同じ)
間隙水 Ca	高	低
間隙水 Mg	低	高
間隙水 NH <sub>4</sub> -N	高	低
間隙水 PO <sub>4</sub> -P	低	高
土壌せん断応力	高	低 (天然干潟により近い)
ボタンアオサ出現頻度	高	低
テングサ科出現頻度	高	低
ウシケノリ科出現頻度	低	高
大型藻類被度	高	低
<i>Skeletonema costatum</i> 出現頻度	高	低
<i>Cymbella</i> spp. 密度	低	高
<i>Naviculla</i> spp.	低	高
<i>Surirella</i> sp.	低	高
ミズヒキゴカイ出現頻度	低	高
ブドウガイ密度	高	低
イトゴカイ密度	低	高



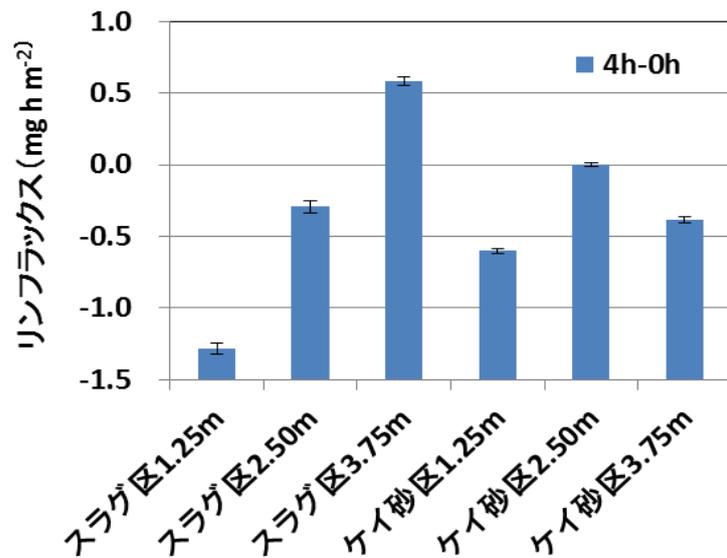
図(2)-31 干潟マイクロコズム試験での表面クロロフィルa濃度



図(2)-32 安定同位体比からみたスラグ区とケイ砂区の季節別食物網構造  
 スラグ粒子と浚渫土を起点とする点線の右上端は、これらの堆積物を主な餌として摂取した生物の炭素同位体比及び窒素同位体比の位置を示している。

3) リン循環に基づく大型藻類と付着微細珪藻の競合の解明

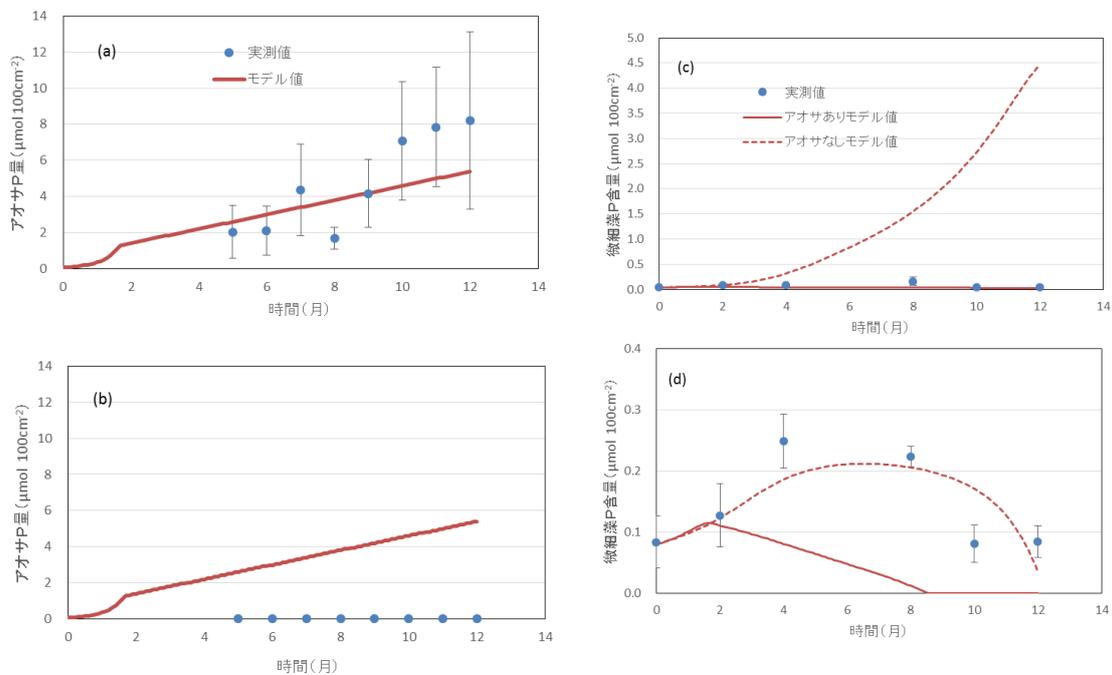
リンの溶出フラックス測定結果を図(2)-33に示す。スラグ区では冠水時間が短い、一番岸側でリンのフラックスが正(土壌→水中)となったが、それ以外はすべて負となった。この結果は、土壌からリンが溶出しなかったということではなく、溶出したリンが速やかに土壌表面に藻類に消費された結果と推定される。



図(2)-33 干潟マイクロコズム試験最終日に行ったリンの溶出試験結果

スラグ区では、アオサが表面を覆い、ケイ砂区とは外観が大きく異なった。アオサは2013年10月中旬から増え始め、2014年1月に被度約80%程度に達し、その後、実験終了時まで、被度75%程度で維持された。一方、ケイ砂区では実験期間中ほとんどアオサは繁茂しなかった。

両実験区とも、各態リンについて、流入水、直上水、間隙水中の濃度を定期的に測定した。さらに、底泥から直上水中への溶出速度も測定した。これらのデータを使い、各区におけるリンの循環を計算したところ、両区ともアオサが繁茂する結果となり、スラグ区におけるアオサ繁茂の状況は再現できた。一方、理論的にはケイ砂区でもアオサは繁茂できることからケイ砂区でアオサが繁茂しなかった理由はリンによる増殖制限ではないことがわかった（図(2)-34(a)(b)）。一方、底生微細珪藻の現存量の変化については、スラグ区ではアオサ有りの条件により再現でき、アオサがない場合には実際の微細珪藻の現存量より顕著な増殖を示したことからアオサの繁茂により付着珪藻の増殖が抑制されていることがわかった（図(2)-34(c)(d)）。また、ケイ砂区では、アオサ無しの条件で付着珪藻の現存量を再現できた（図(2)-34(a)(b)）。

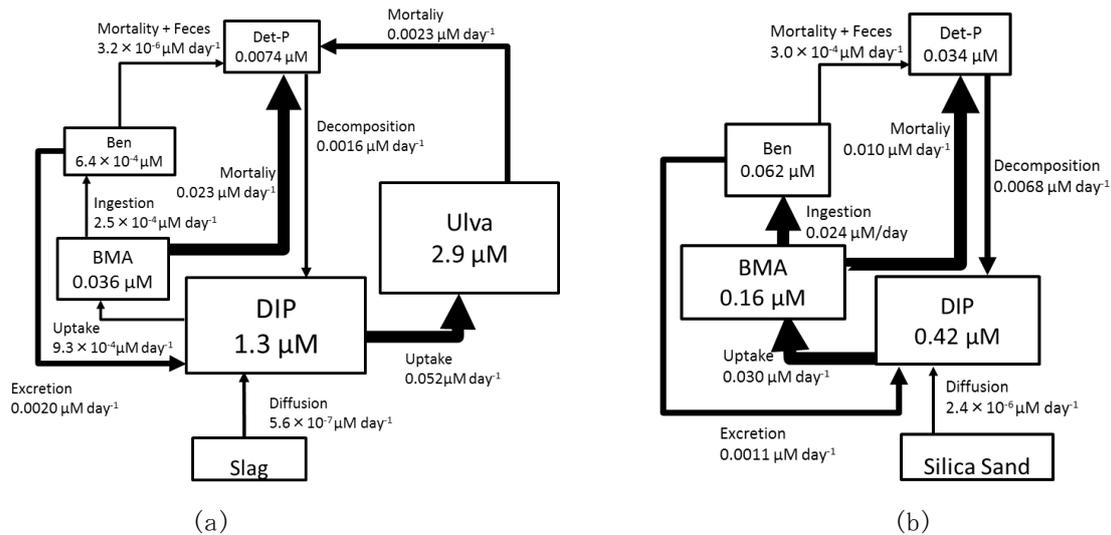


図(2)-34 リン循環モデル計算結果。左列：アオサ現存量の変化、(a)スラグ区、(b)ケイ砂区、右列：底生微細珪藻の現存量、(c)スラグ区、アオサ有りの場合、良く再現、(d)ケイ砂区、アオサ無しの場合、良く再現。

試験期間中のストックとフローの平均値を図(2)-35に示す。スラグ区ではアオサ（図中U1va）が、溶出してくる栄養塩のほとんどを消費しているのに対して、ケイ砂区では微細藻類（図中BMA）が栄養塩を取り込んで増殖していることが分かる。アオサは先の同位体分析でもベントスの餌とはなっておらず、魚類等にも摂餌されにくいことから、上位の食物連鎖に乗らず、物質の循環が滞る原因となる。したがって、健全な干潟環境を維持するためには、微細藻の増殖を促すことが重要と考えられ、スラグを用いた人工干潟の造成においては、アオサの制御が重要となる。

以上の結果からアオサと付着珪藻の競合関係を明らかにできたと同時にスラグ区とケイ砂区に

おけるアオサ繁茂の違いはリンの溶出には依存しないことを明らかにできた。計算結果からは両系でアオサは増殖できるにも関わらずケイ砂区で増殖しなかったことから、ケイ砂区では今回の波の条件においても土壌が定期的に攪乱され、不安定であったためにアマモの繁殖が抑制され、より安定であったスラグ表面でのみ繁殖したと推定される。スラグは固化が起こりやすいだけでなく、密度も大きいことから極めて静穏かつ荒天時の影響を受けにくい場所で干潟を造成する場合はアオサ等の大型藻類の繁茂の可能性は事前に十分検討しておく必要がある。

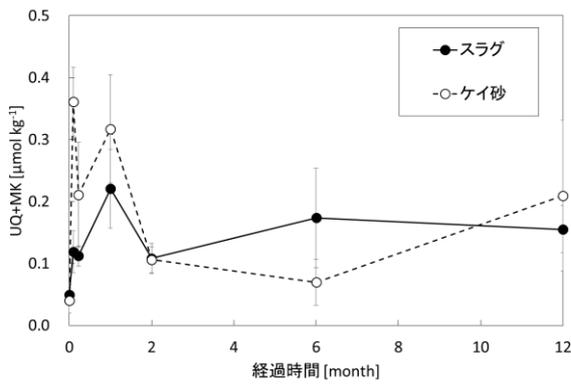


図(2)-35 スラグ区(a)およびケイ砂区(b)の試験期間中のストックとフローの計算結果(平均値)

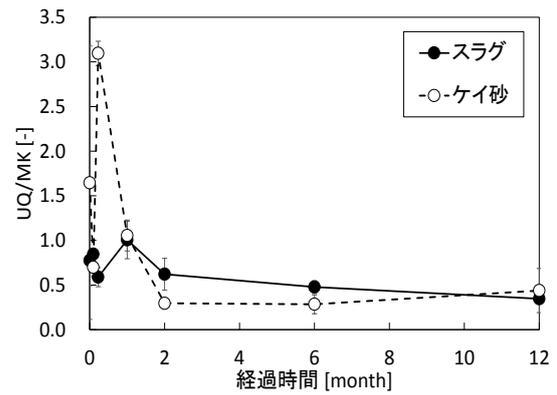
#### 4) 微生物叢の変化

微生物叢解析の結果について評価した。UQとMK量(UQ+MK)の変化とUQとMKの割合(UQ/MK)の変化を図(2)-36と図(2)-37にそれぞれ示す。UQ+MKは、スラグ区とケイ砂区を比較すると初期段階においてケイ砂区でUQ+MKは $0.36 \mu\text{mol L}^{-1}$ まで増加しているが、スラグ区では $0.22 \mu\text{mol L}^{-1}$ の増加であった。キノン量の増加はデトリタスを分解する細菌群によるものであると考えられるが、スラグ区では増加していない。これはスラグでは稼働から1か月の間はpHが高い値をとっており、微生物の活動が抑えられていた可能性がある。一方、UQ/MKを見るとケイ砂区で稼働初期に大きな増加がみられ、主としてUKを持つ好氣的細菌群が増加したことが示唆された。また、稼働時間が長くなると両系でMKの割合が増加しており、OPRの低下傾向も表れていることことから、嫌氣的環境に変化していったことが考えられる。稼働12か月後では、UQ+MKに大きな相違はなかったことから、微生物量は両系で同程度となっていることがわかった。

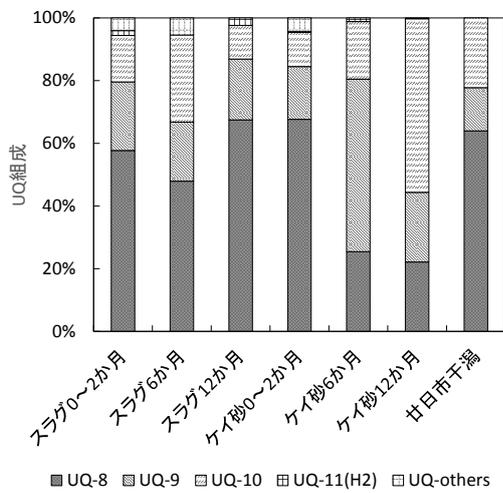
次に、図(2)-38にUQの組成、図(2)-39にMKの組成を示す。廿日市干潟とあるのは、広島県廿日市市の実海域における干潟のキノンプロファイルである。ケイ砂区で2月以降にUQ-9、UQ-10が増加し優占種が変化した。UQ-10は*Sphingomonas*、*Rhodobacter*などのバクテリアが多く含有するキノン種で、好気条件で光合成を行う好気性光合成細菌として知られている。MK組成変化をみると、スラグ区では6か月から12か月の間で微生物叢が大きく変化していることが分かる。pHは6か月から12か月の間で、8.71~9.05に上昇しており、さらに通水性も低下していることから、生育環境の変化が微生物叢変化に表れたと考えられる。



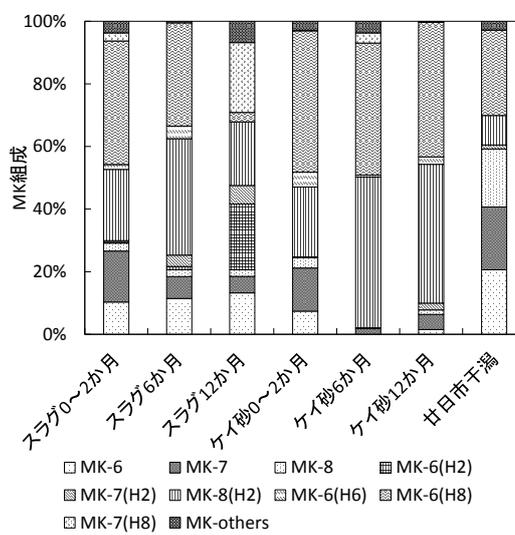
図(2)-36 UQ+MKの変化



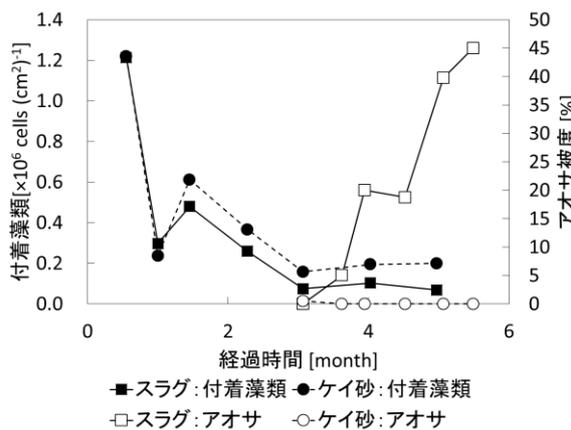
図(2)-37 UQ/MKの変化



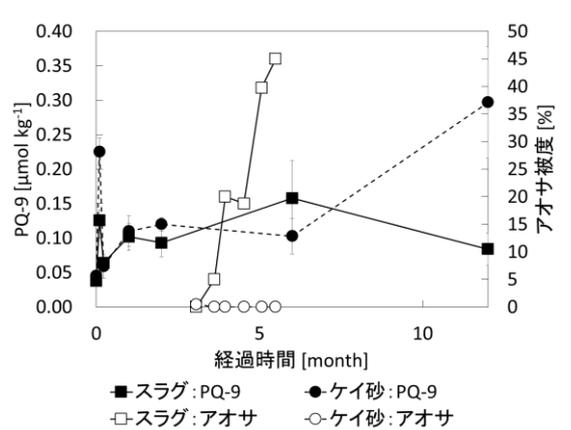
図(2)-38 UQ組成変化



図(2)-39 MK組成変化



図(2)-40 付着藻類とアオサ被度の経時変化



図(2)-41 PQ-9とアオサ被度の経時変化

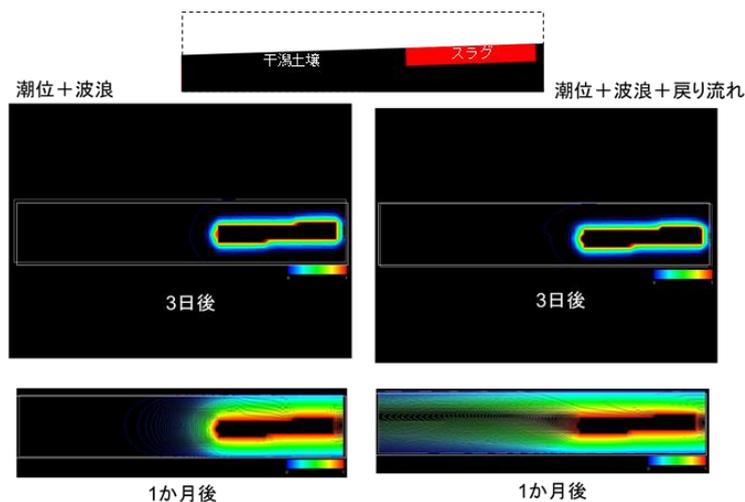
付着藻類とアオサ被度の経時変化を図(2)-40に、PQ-9とアオサ被度の経時変化を図(2)-41に示す。スラグ区では、稼働3か月後でアオサ被度が上昇しており、それに伴い付着藻類がケイ砂より

も低い値をとっている。稼働6か月以降にスラグ区において藻類が有するPQ-9が減少しており、直接付着藻類を計数した結果と一致する傾向が示された。

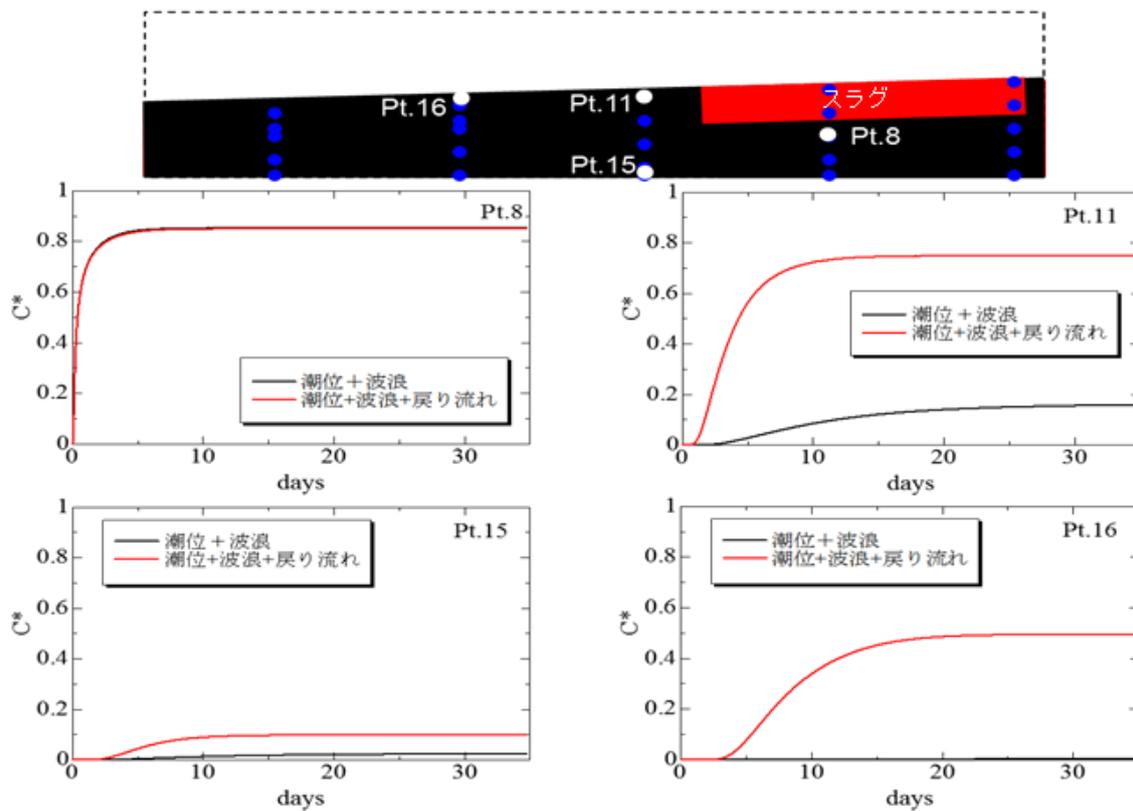
### 5) 干潟域における製鋼スラグの溶出シミュレーションモデルの構築

開発した数値計算モデルを干潟域に適用した事例を紹介する。図(2)-42（上段）は先述の干潟マイクロコズム水槽に対して、本モデルを適用したときの計算領域を示す。黒領域は干潟土壌、赤領域は製鋼スラグ投入領域を示す。干潟長4.5 m、最大高さ0.68 m、斜面勾配3/100、潮位振幅40 cm、波高10 mm、波周期0.8 sとし、実験条件と実際のマイクロコズム運転条件と同一とした。なお、製鋼スラグは脱炭スラグとし、溶出物Caの溶出速度はラボ実験データに基づいて境界条件として与えた。図(2)-42（下段）は、1か月後の溶出物Caの濃度 $C^*$ （規格化 $0 \leq C^* \leq 1$ ）の空間分布を示したものである。スラグ投入エリアからCaが溶出し、やがて沖へ拡がっていく過程が再現されている。特に、潮汐流、波浪作用による流れに加えて、戻り流れの影響を付加した場合に、沖への移流・拡散が顕著となっており、波浪作用によって沖から岸方向に加えられる運動量によって陸側の水位が高まりそれを戻す流れの作用がスラグ溶出物の土壌内での沖側への物質輸送及び海水中への拡散に大きな影響を及ぼしていることがわかった。

図(2)-43は、各モニタリングポイント（Pt. 8、11、15、16）について、溶出物の濃度 $C^*$ の時間的化を調べたものである。赤線は潮位、波浪および戻り流れの影響を考慮した場合、黒線は潮位と波浪による影響を考慮した場合を示す。スラグ投入地点近傍のPt. 8では両ケースに差は見られないものの、沖側測点Pt. 11及び15では、戻り流れを考慮した場合において、急激に濃度増加が見られ、その後、約10日後の濃度 $C^*$ はほぼ定常状態に達していることが分かり、スラグからの溶出物による濃度変化は比較的短期間に安定に達することがわかった。一方で、スラグからの溶出物は長期的には減少してくるが1か月程度では土壌内濃度の減少を引き起こすところまではいかないこともわかった。



潮位と波浪を考慮した場合      潮位と波浪と戻り流れを考慮した場合  
図(2)-42 カルシウム濃度の空間分布（上段：3日後、下段：1か月後）



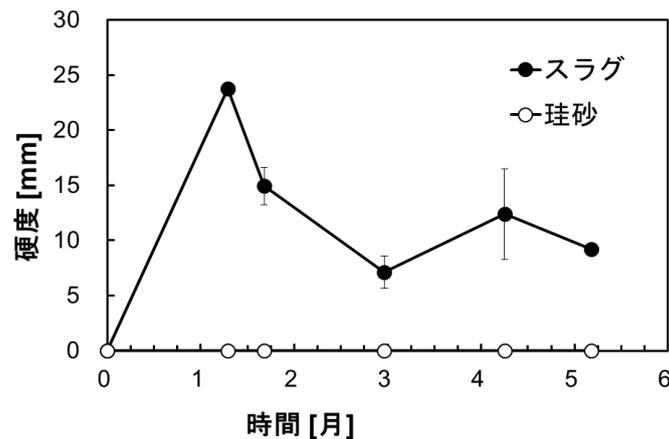
図(2)-43 各モニタリング点におけるCa濃度の時系列変化

### (3) 潮間帯への敷設を想定した脱炭スラグを活用して造成した干潟環境と生態系(干潟マイクロゾウム I I)

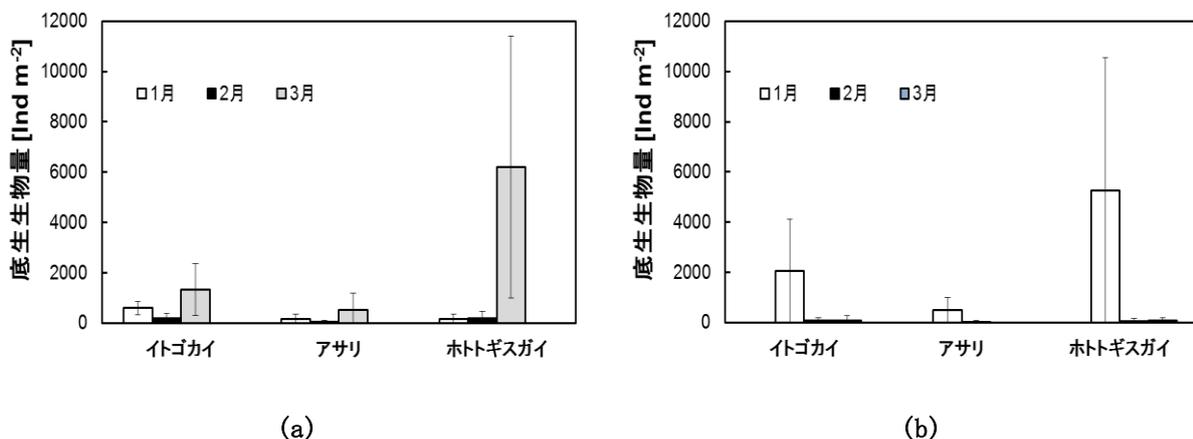
炭酸化した脱炭スラグによるマイクロゾウム試験における、コーン圧入試験により測定した造成干潟の土壌硬度を図(2)-44に示す。ケイ砂区では常に土壌硬度指数は0 mmであった。一方、スラグ区では最大28 mmまで上昇したものの、その後は生物生息が可能な値まで下降しつつある。予備的に同様に作成した炭酸化脱炭スラグのみを干潟マイクロゾウムに一部に設置し土壌硬度をモニタリングした際には土壌硬度の上昇は見られていないことから、浚渫土との混合時に、ミキサー壁面との摩擦が生じ、スラグ表面に形成した炭酸カルシウム被膜が剥離したことが原因ではないかと考えられる。炭酸化した脱炭スラグの干潟への利用においては今後この原因を究明する必要がある。

図(2)-45に実験開始後3ヶ月までの底生動物の生物量を示す。スラグ区では2ヶ月目までは底生生物の現存量は小さかったが、3か月目にはホトトギスガイやイトゴカイが増殖し、ケイ砂区より高い値を示した。ケイ砂区では1か月目に高い底生生物量を示したがその後小さな値となり、植種した底生生物が十分分散していなかったために局所的な高い値を拾った可能性がある。3か月目までの結果両区とも初期植種の影響が考えられることもあり継続的なモニタリングが必要である。

以上より脱炭スラグは、表面の炭酸化処理を行うことでアルカリの溶出、および固化の抑制が可能である一方で、その取扱いと安定性に課題がある可能性があり、今後十分な検討が必要である。



図(2)-44 実験期間中の炭酸化脱炭スラグ区(DCS+DS)およびケイ砂区(SS+DS)の造成干潟の土壌硬度(コーン圧入試験)の変化

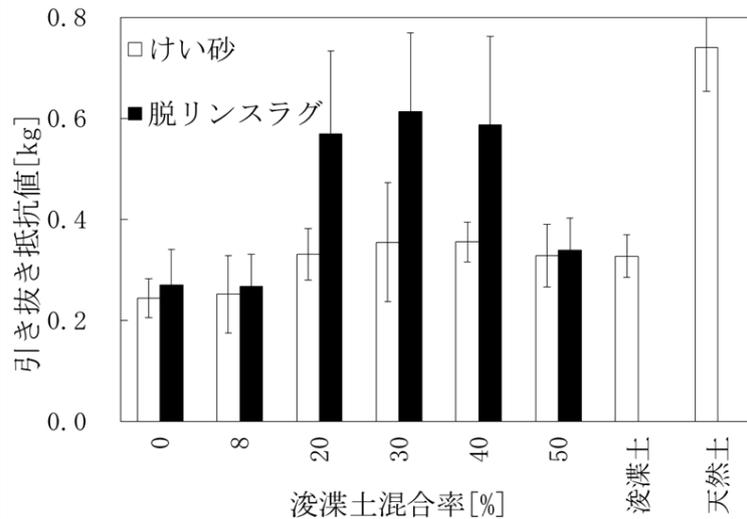


図(2)-45 実験開始後3ヶ月までの炭酸化脱炭スラグ区(a)およびケイ砂区(b)の底生動物の生物量

#### (4) 潮下帯への敷設を想定したスラグを活用して造成した藻場環境とアマモ生育

##### 1) アマモの根の活着力

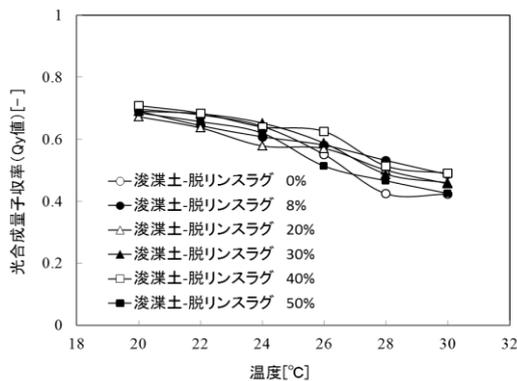
引き抜き抵抗試験の結果を図(2)-46に示す。浚渫土を0、8、50、100%の割合(100%は浚渫土のみ)で脱リンスラグに混合した場合、スラグ区、ケイ砂区共に引き抜き抵抗値は約0.3kgと一定の値を示したが、20~40%においてはスラグ区がケイ砂区より明確に高い抵抗値を示した。脱リンスラグでは浚渫土20%では0.569 kg、30%では0.613 kg、40%では0.587 kgを示し平均として約0.590 kgの抵抗値であったのに対し、ケイ砂の平均は約0.347 kgとなった。また、脱リンスラグはアルカリを溶出する性質を有するため、土壌内の化学環境の悪化により根腐りや枯死といった現象が懸念されたが、これらの負の現象は確認されなかった。また、アマモの生育に影響を及ぼさない範囲での脱リンスラグの比重の大きさや一定の固化が根の活着にプラスに働いた可能性がある<sup>14)</sup>。



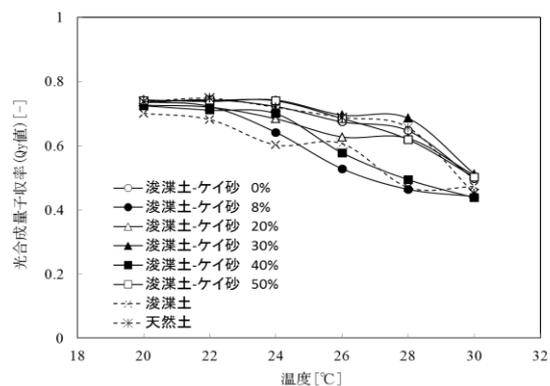
図(2)-46 脱リンスラグ・ケイ砂と浚渫土の混合率ごとの引き抜き抵抗試験の結果

## 2) 海水温の違いによるアマモの光合成活性試験

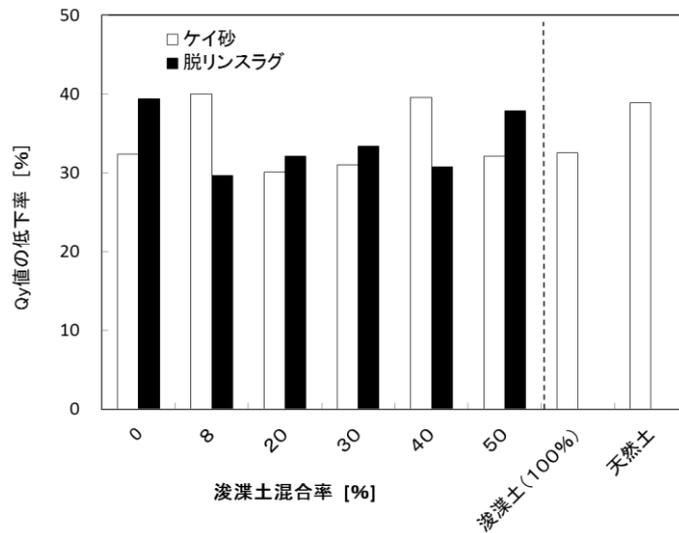
海水温上昇に伴うアマモの光合成量子収率（ $Q_y$ 値）の推移のグラフを図(2)-47、図(2)-48に示す。いずれの系列においてもアマモの $Q_y$ 値は20℃から30℃にかけて低下傾向を示した。20℃から30℃にかけての $Q_y$ 値の低下率をまとめたグラフを図(2)-49に示す。浚渫土の混合率が0%では脱リンスラグがケイ砂よりも低下率が大きかったが、浚渫土を混合することによってケイ砂と同等、もしくはケイ砂よりも低下率が小さかった。また、天然土壌を用いた際は約40%の低下を示したのに対し、脱リンスラグに浚渫土8%から40%混合した混合土壌では約30%の低下率となり、 $Q_y$ 値の低下が少ない結果となった。このことから混合率によっては温度上昇に対する耐性が天然土壌よりも優れていることが示唆された。



図(2)-47 海水温上昇に伴うアマモの光合成量子収率（ $Q_y$ 値）の推移（脱リンスラグ）

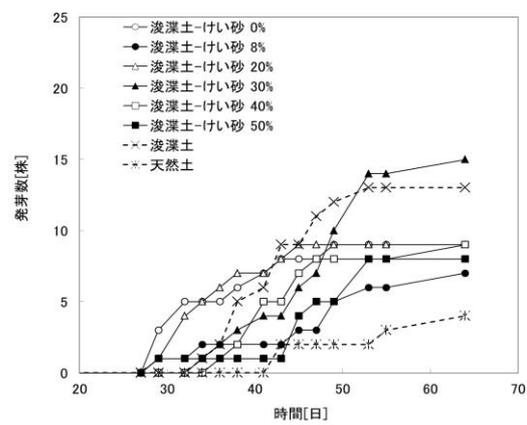
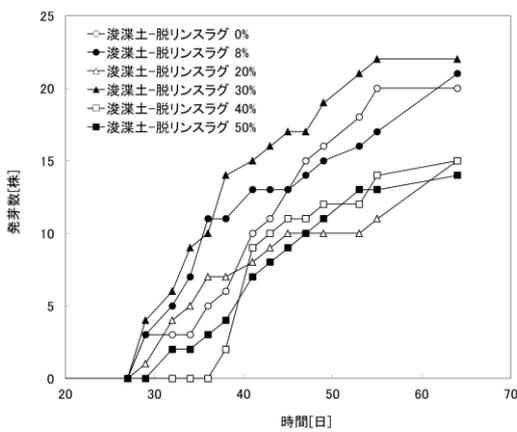


図(2)-48 海水温上昇に伴うアマモの光合成量子収率（ $Q_y$ 値）の推移（ケイ砂、浚渫土、天然土）



図(2)-49 各浚渫土混合率における20から30℃の温度変化に対するQy値の低下率

発芽数の推移（約2ヶ月間）を図(2)-50、51に示し、発芽の様子を図(2)-52に示す。培養1か月弱で発芽が始まり、2日毎に1~3株ずつ発芽した。発芽試験を開始して47日が経過した時点では、ケイ砂区よりも脱リンスラグ区の方が発芽数が高い結果となった。ケイ砂区での発芽数の平均は9.5株であったのに対し、脱リンスラグ区の場合は17.8株であり約2倍であった。また、浚渫土のみにおいても発芽率は13株と高い値であった。



図(2)-50 スラグ区における発芽数の経日変化 図(2)-51 ケイ砂区における発芽数の経日変化

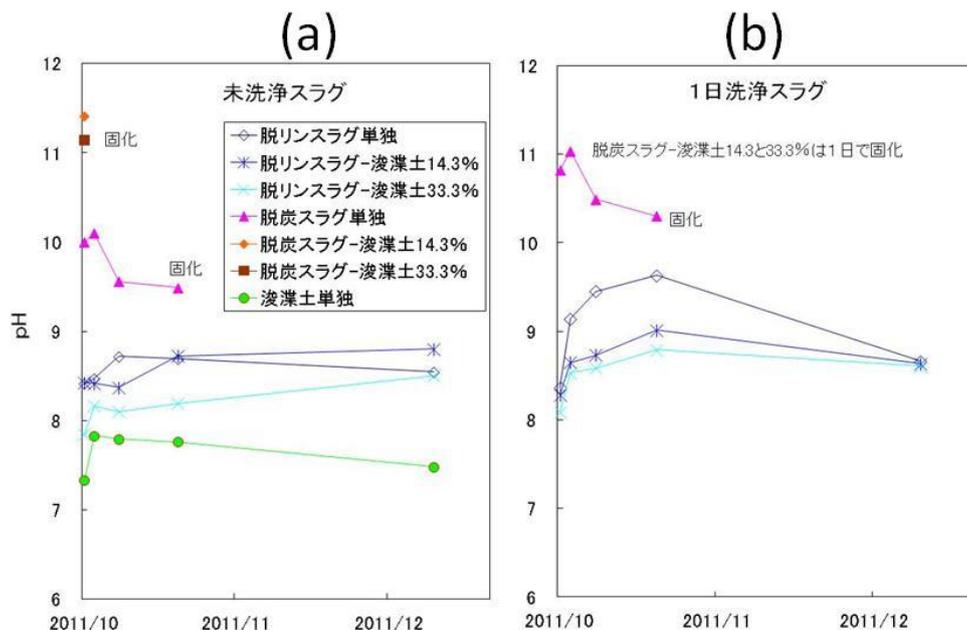


図(2)-52 発芽後の様子

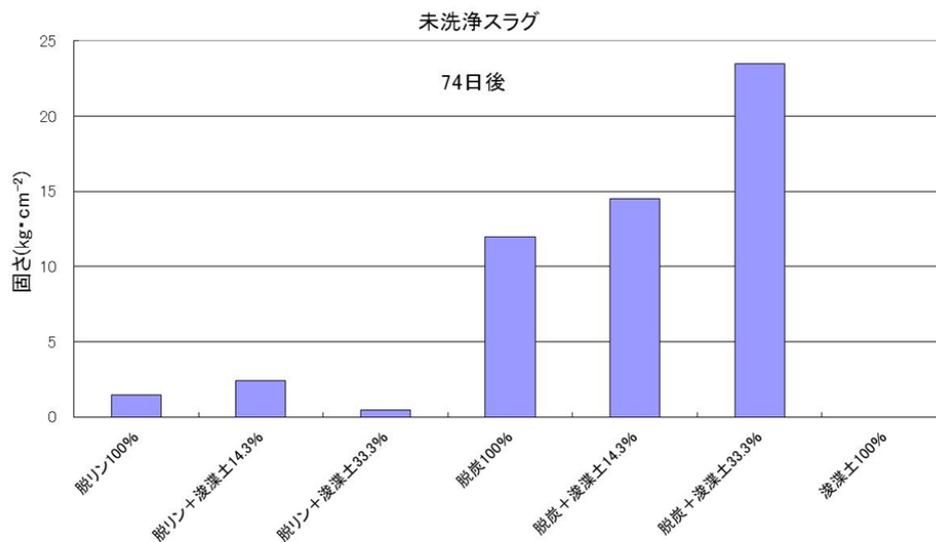
### 3) 小規模藻場試験

未洗浄スラグと浚渫土の混合土壌および1日洗浄スラグと浚渫土の混合土壌の間隙水のpHの変化を図(2)-53(a)(b)に示す。脱炭スラグを用いた混合土壌では、未洗浄および1日洗浄のいずれにおいても間隙水のpHは非常に高く、未洗浄脱炭スラグ85.7%のpHは移植直後で11.4に達した。脱炭スラグ85.7%と66.7%の混合土壌では、未洗浄および1日洗浄の両方で、実験開始1日後に土壌が固化したため、間隙水のpHの時間変化は測定できなかった。一方、脱リンスラグを用いた混合土壌での実験開始初期のpHは9.0~9.5となったが、実験開始後2ヶ月後には洗浄処理の有無に関わらずpHは8.7程度に低下した。

未洗浄の脱リン、脱炭スラグと浚渫土の混合土壌の2.5ヶ月(74日)後の土壌硬度を図(2)-54に示す。脱炭スラグと浚渫土の混合土壌では、いずれの試料においても脱リンスラグ混合土壌や浚渫土100%土壌と比較して土壌硬度が極めて大きく、固化が認められた。



図(2)-53 未洗浄(a)と1日洗浄スラグ(b)の混合土壌のpHの変化



図(2)-54 未洗浄スラグと浚渫土の混合土壌の74日後における土壌硬度

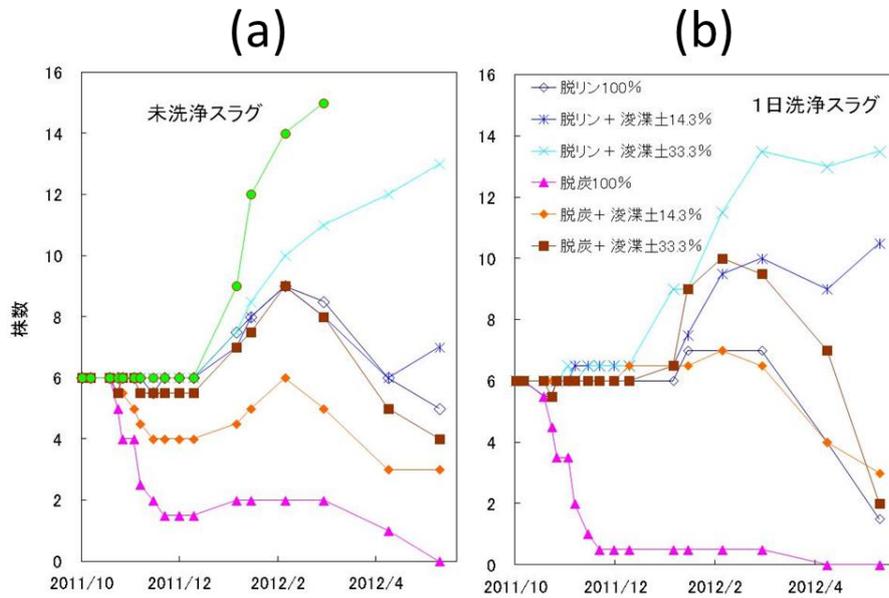
未洗浄のスラグ（脱炭と脱リンスラグ）と浚渫土の混合土壌、および1日洗浄したスラグと浚渫土の混合土壌それぞれに移植したアマモ株数（初期株数6本、2系統の平均）の経時変化を図(2)-55(a)(b)に示す。未洗浄脱炭スラグ100%の土壌における移植後1.5ヶ月後のアマモ平均株数は2本以下であり、アマモ移植後約2ヶ月後では実質上ほぼすべてのアマモが枯死した。脱炭スラグを1日洗浄した場合についても同様の結果が得られ、洗浄による効果は乏しいと推察される。未洗浄脱炭スラグ66.7%および85.7%の混合土壌では、アマモ株数は移植後2ヶ月目までは初期株数（6本）を下回り、その後、増加した。

一方、未洗浄脱リンスラグでは、すべての混合割合において、移植2ヶ月後まで株数の変化は見られず、その後、増加した。また、浚渫土100%の場合では、移植2ヶ月後から増加し、4ヶ月後では初期株数の2倍以上（14本）となった。1日洗浄脱リンスラグと浚渫土の混合土壌では、移植後2ヶ月目までは混合比86.7%および66.7%でやや株数の増加が認められ、4ヶ月目では脱リン100%の株数は7本、85.7%で9.5本、66.7%で11.5本となった。1日洗浄脱炭スラグの混合比86.7%と66.7%では、移植後2ヶ月目までは初期株数からほとんど変化は認められず、4ヶ月後ではスラグ混合比85.7%の株数は7本、66.7%で10本となった。

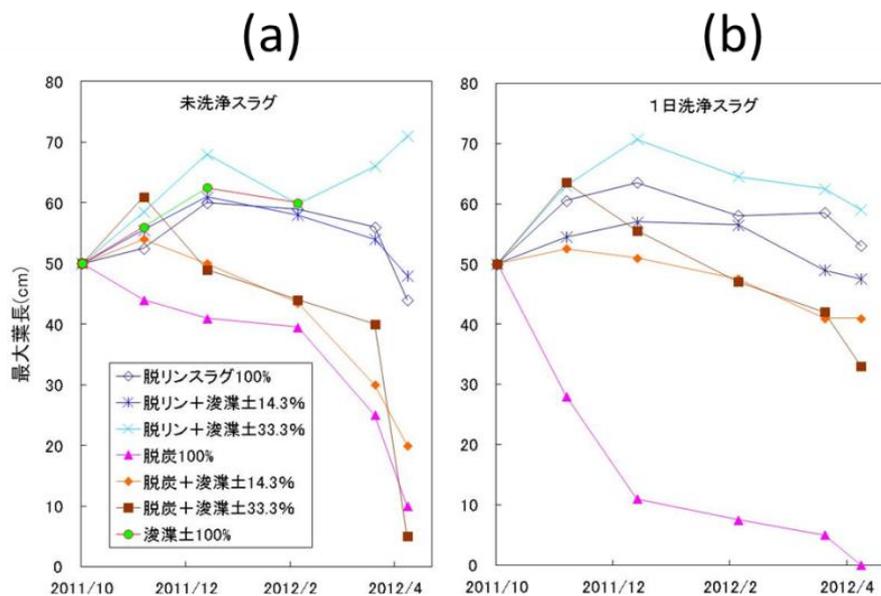
未洗浄スラグと浚渫土の混合土壌および1日洗浄スラグと浚渫土の混合土壌に移植したアマモの最大葉長の経時変化をそれぞれ図(2)-56(a)(b)に示す。前述したように、脱炭スラグ100%に移植した場合はほぼすべてのアマモが枯死した。アマモ移植後4ヶ月後において、枯死寸前の状態で残存していたアマモ最大葉長は、未洗浄の脱炭スラグ100%の場合で39.5 cm、1日洗浄の場合で10 cm以下（7.5 cm）であり、他の混合土壌と比較して有意に短かった。また、脱炭スラグの割合が85.7%と66.7%では、洗浄処理の有無に関わらず、移植後2ヶ月以降の最大葉長は、他の混合土壌の最大葉長を下回っていた。

実験開始5ヶ月後における土壌表面積230cm<sup>2</sup>あたりの底生生物の種類数と個体数を図(2)-57、58に示す。固化した脱炭スラグ85.7%と100%の混合土壌では環形動物は認められない。同じく固化した脱炭スラグ66.7%混合土壌では環形動物（多毛類の*Capitella* sp.）が認められ、これはこの

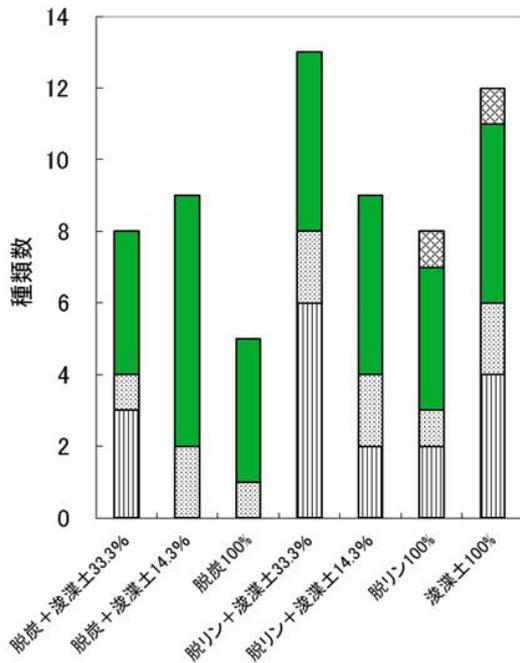
土壌で比較的アマモ株数が多かったことによると推察される。個体数では全ての土壌で節足動物のアリアケドロクダムシが優占した（表(2)-5）。未洗浄スラグと浚渫土の混合土壌では、浚渫土100%と比較してほぼ同等の底生生物が出現したと判断される。



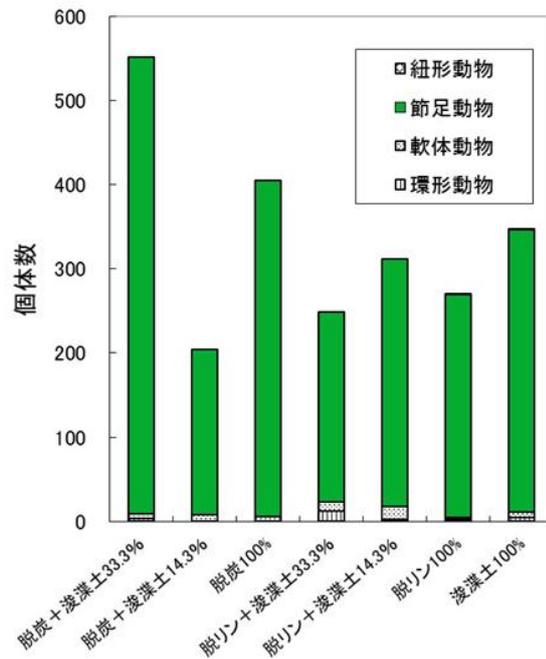
図(2)-55 未洗浄(a)と1日洗浄スラグ(b)の混合土壌のアマモ株数の経時変化



図(2)-56 未洗浄(a)と1日洗浄スラグ(b)の混合土壌のアマモ葉長の経時変化



図(2)-57 土壤中の底生生物の種類数  
(種の表記は図(2)-58と同じ)

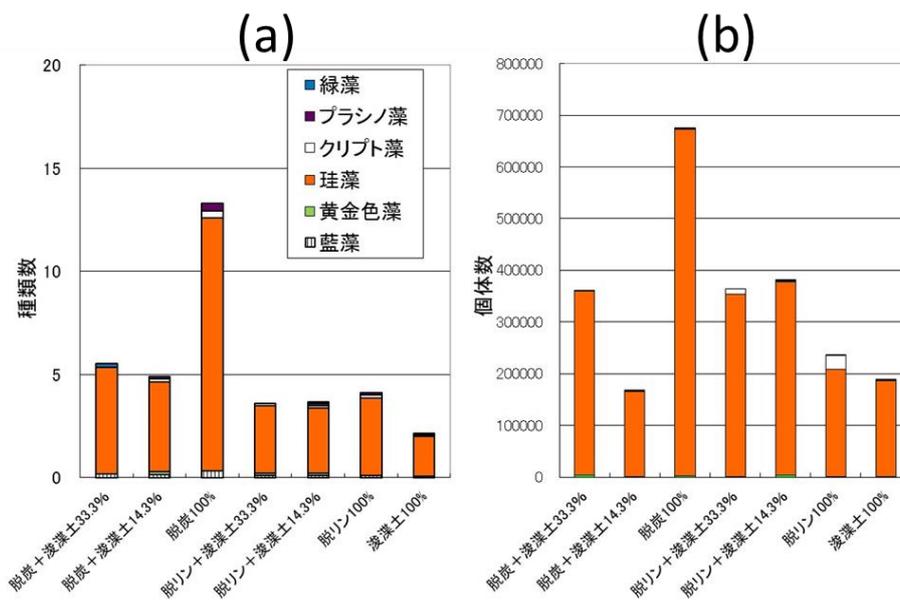


図(2)-58 土壤中の底生生物の個体数

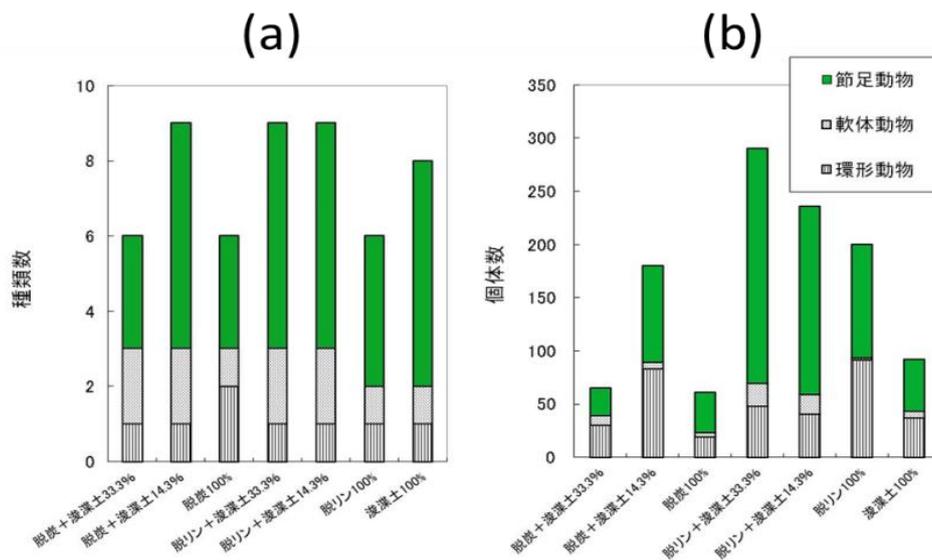
表(2)-5 優占種の個体数

門	種名	脱炭+ 浚渫土33.3%	脱炭+ 浚渫土14.3%	脱炭 100%	脱リン+ 浚渫土33.3%	脱リン+ 浚渫土14.3%	脱リン 100%	浚渫土 100%
環形動物	キャピテラ	1	0	0	4	2	1	2
軟体動物	ニシキウズガイ	0	4	0	4	8	3	4
	ブドウガイ	5	4	6	7	7	0	2
節足動物	モズミヨコエビ	6	9	7	5	9	9	1
	アリアケドロクダムシ	528	172	388	212	276	252	328
	トゲワレカラ	6	9	1	5	4	0	4

底生生物を分析した平型バット内のアマモ株地上部を全て採取し、アマモ葉上付着微細藻類の種類数と個体数を計数し、図(2)-59(a)(b)に示す。付着藻類は、種類数と細胞個体数共に珪藻が優占した。土壤間で種類数に大きな違いはないのに対し、個体数は脱リンスラグ66.7%と85.7%の混合土壤で他の土壤と比較して大きな値を示した。アマモ付着動物では、図(2)-60(a)と(b)に示すように全ての土壤において節足動物が種類数、個体数共に優占し、脱リンスラグと浚渫土の混合土壤における個体数が他の土壤と比較して大きい傾向にあった。



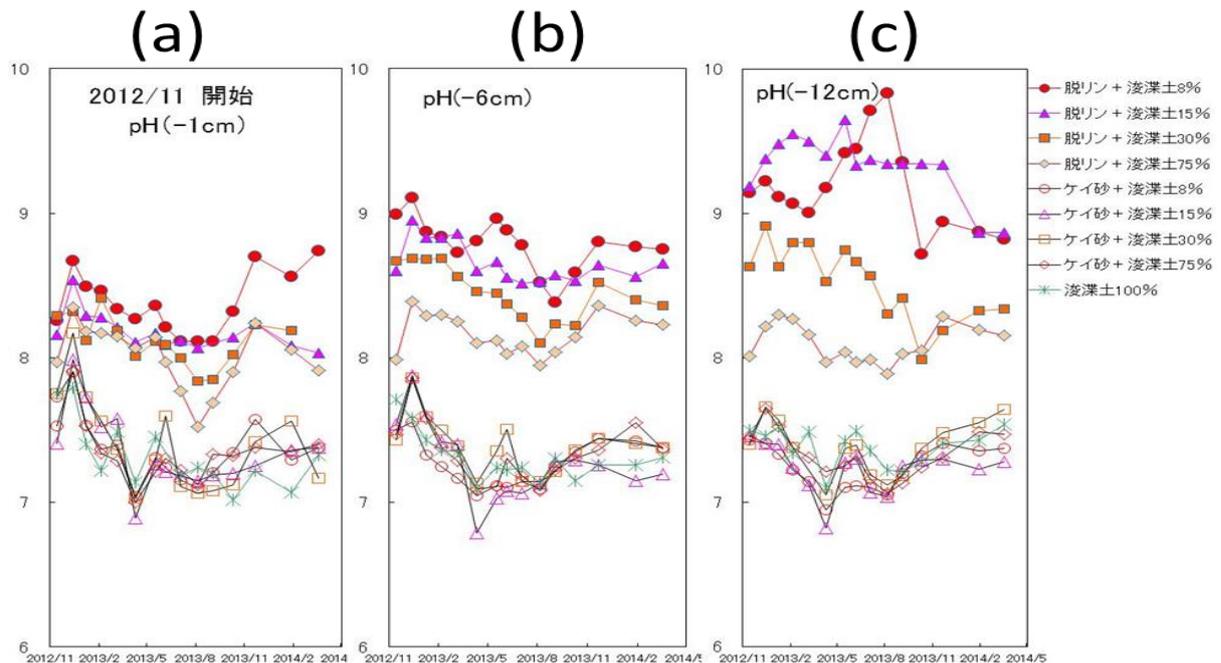
図(2)-59 アマモ1株あたりの葉上付着微細藻類の種類数(a)と個体数(b)



図(2)-60 アマモ葉上付着動物の種類数(a)と個体数(b)

#### 4) 藻場マイクロゾム試験

図(2)-61(a)(b)(c)は、各混合土壌について、それぞれ表面から1、6および12 cmの深さにおける間隙水pHの経時変化を示す。脱リンスラグ区のpHは実験期間中を通してケイ砂区や浚渫土単独土壌と比較して高く、スラグ混合比が大きいほど高い。特に、スラグ85と92%土壌の下層(-12 cm)のpHは、変動が認められるものの1年間を通してほぼ9以上であった。しかしながら、表層(-1 cm)におけるスラグ混合土壌のpHは実験開始時の8.5前後から時間の経過と共に低下し、約1年経過後ではスラグ92%土壌を除いて海水とほぼ同じ8前後となった。

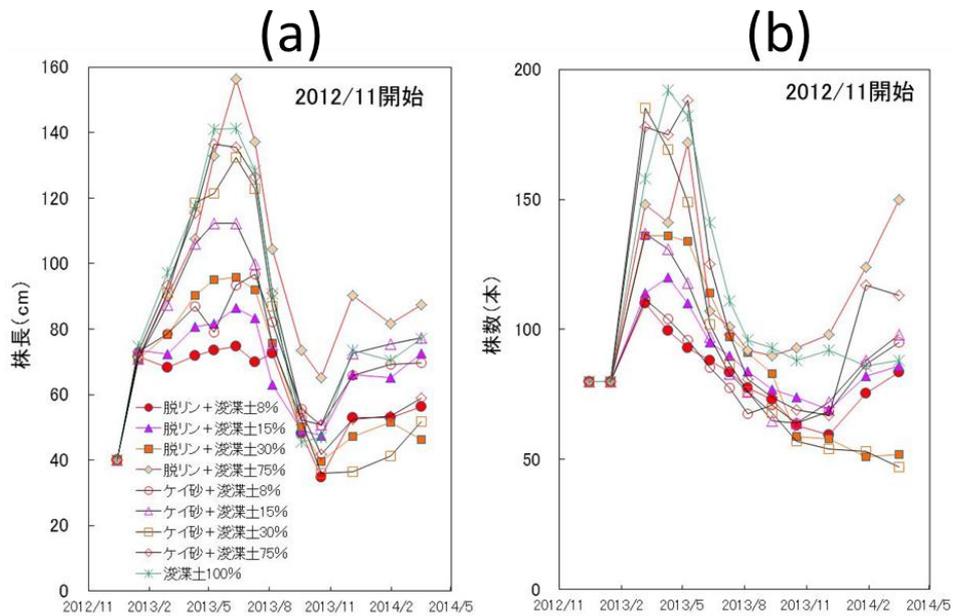


図(2)-61 実験土壌の深さ1cm(a)と6cm(b)および12cm(c)におけるpHの経時変化

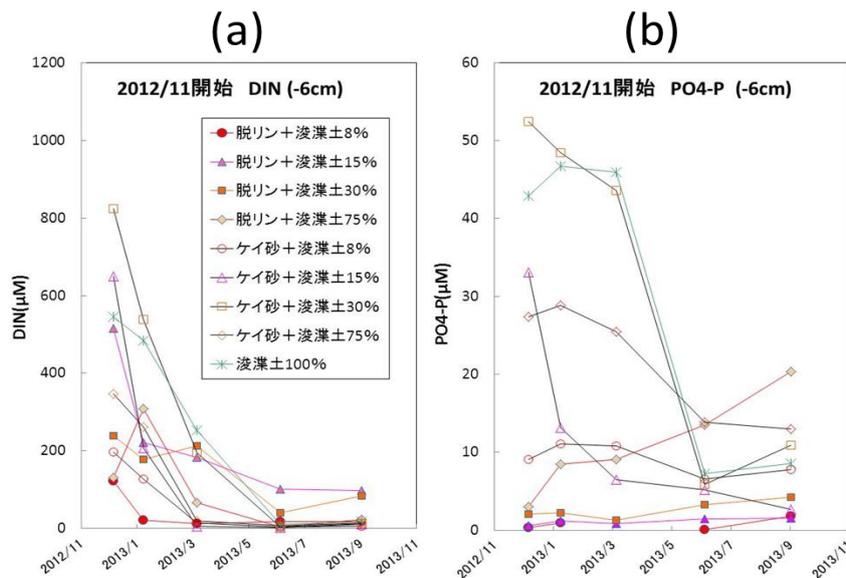
実験土壌に移植したアマモの葉長上位6~8本の平均葉長(初期葉長40 cm)の経時変化を図(2)-62(a)に示す。アマモは移植直後から急速に成長し、移植1ヶ月後では全ての土壌において葉長約70 cmに達した。1ヶ月後以降では、土壌の違いにより葉長に差が認められるようになり、ケイ砂92%とスラグ70%以上の混合土壌における葉長はアマモ繁茂期にあたる2013年6月においても70~100 cmと僅かな増加であるのに対し、スラグ25%とケイ砂85%以下の混合土壌および浚渫土単独土壌のアマモは更に成長を続け、特にスラグ25%土壌では6月に葉長約160 cmまで成長した。アマモ衰退期にあたる7月以降では、全ての土壌で葉長は次第に短くなったが、水温が低下する11月以降において再び成長する傾向を示し、特にスラグ25%土壌で成長が大きい。

図(2)-62(b)はアマモ株数(初期株数80本)の経時変化を示す。移植1ヶ月後までは株数に変化はないが、その後、株の分枝により全ての土壌において株数が増加した。しかしながら、株数の増加には土壌により大きな差があり、ケイ砂92%とスラグ85%以上の土壌では最大約120本であるのに対し、ケイ砂70%と25%、スラグ25%土壌および浚渫土単独土壌では2013年5月に初期株数の2倍以上の170~190本まで増加した。その後のアマモ衰退期では、葉長と同様に株数も次第に減少したが、12月以降において再び増加傾向が認められ、特にスラグ25%土壌で最も増加した。

アマモの成長と深く関連する間隙水中の栄養塩として、溶存態無機窒素濃度(DIN)とリン酸態リン( $PO_4\text{-P}$ )の経時変化を図(2)-63(a)(b)に示す。DINはアマモ移植初期ではケイ砂、脱リンスラグ共に浚渫土混合比の高い土壌で高い傾向であるが(深さ6 cmで最高約800  $\mu\text{M}$ )、2013年6月には全ての土壌で急激に減少した(深さ6 cmで最高約100  $\mu\text{M}$ )。一方、 $PO_4\text{-P}$ の経時変化もDINとほぼ同じ傾向であり、DINと $PO_4\text{-P}$ 共に、アマモの生育に取り込まれたと推察される。

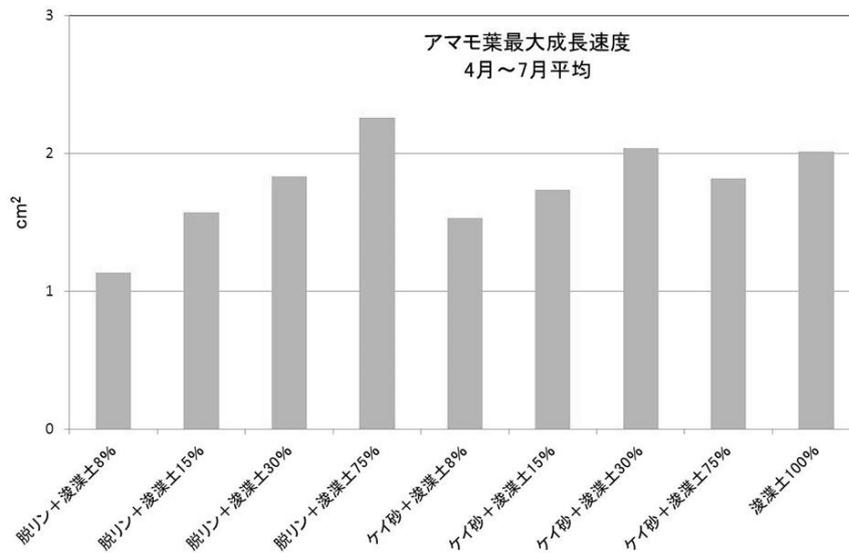


図(2)-62 実験土壤に移植したアマモの平均葉長(左)と株数(右)の経時変化



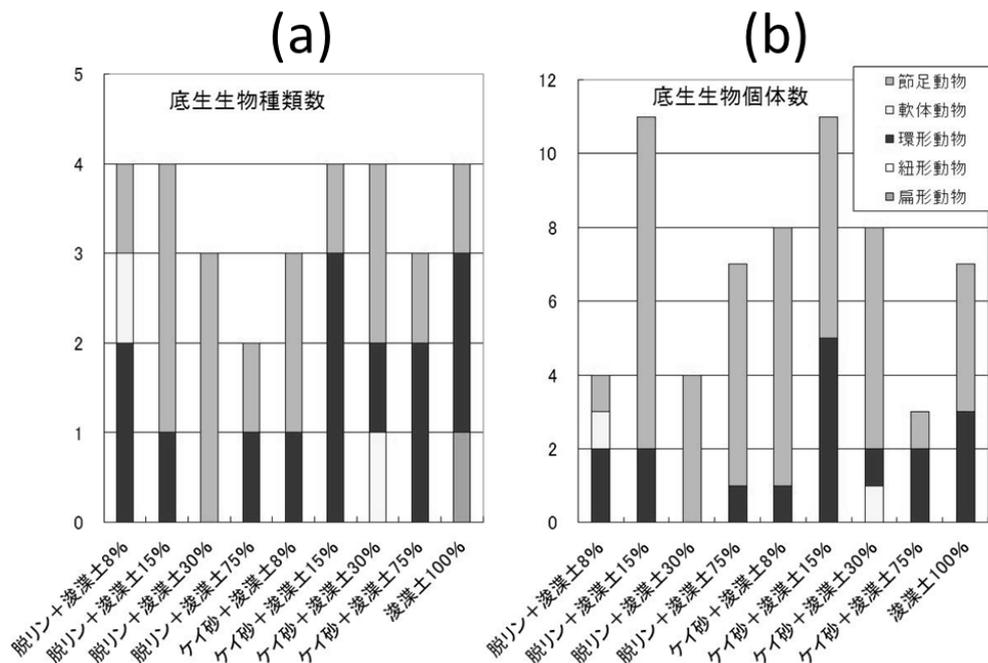
図(2)-63 実験土壤間隙水中のDIN(a)と $PO_4\text{-P}$ (b)の経時変化

2013年4月～7月に計測したアマモ葉の1日あたりの成長速度の平均を、図(2)-64に示す。1日あたりのアマモ葉の成長速度は、全体で見れば1～1.5  $cm^2$ であり、これは仮にアマモ葉の幅が1 cmであるとすれば、1日に1～1.5 cm伸びたことになる。ケイ砂混合土壤では、アマモ葉の成長速度は浚渫土の混合比の大きさに関わらずほぼ同じであり、浚渫土100%土壤の値と同等である。一方、脱リンスラグ混合土壤では、浚渫土の混合比が大きいほど成長速度が大きい傾向であり、スラグ70%土壤で浚渫土100%土壤とほぼ同じ成長を示し、さらに、スラグ混合比が25%土壤では浚渫土100%土壤と比較しても成長が大きいという結果を示した。



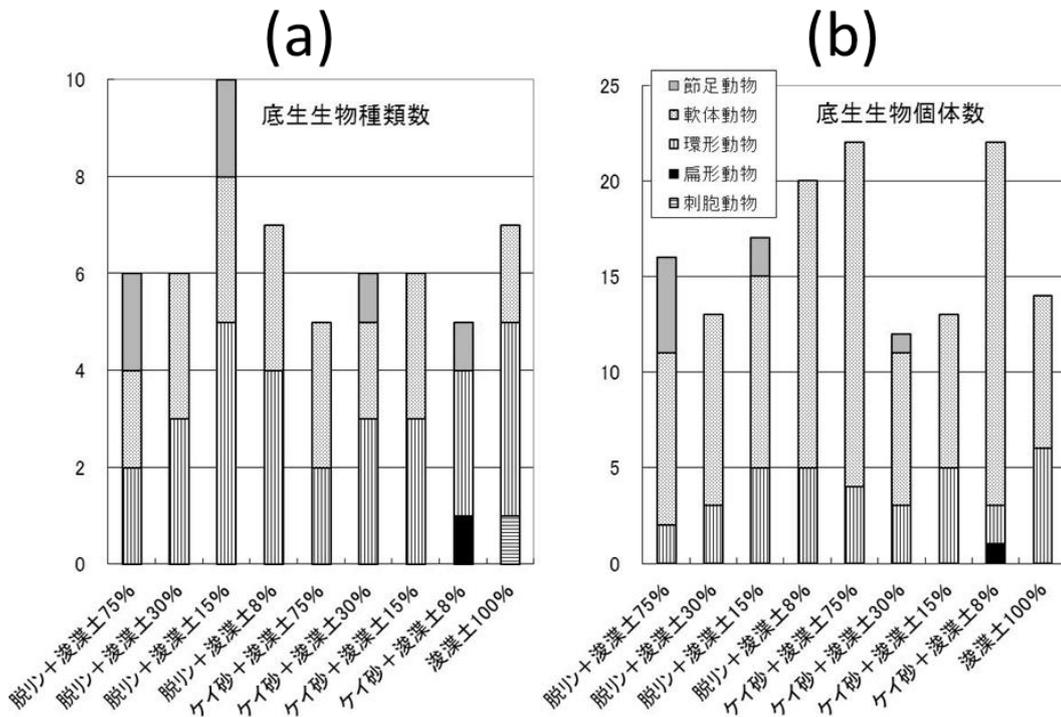
図(2)-64 アマモ葉の1日あたりの平均成長速度

実験開始約4ヶ月後における土壌表面積95 cm<sup>2</sup>あたりの底生生物の種類数と個体数を図(2)-65 (a)と(b)に示す。底生生物の種類数では最大4種類、個体数では最大11個体であり、実験開始4ヶ月後ではまだ底生生物の出現は少ない。全ての土壌で出現したのが節足動物であり、ドロクダムシとカマキリヨコエビが多数を占めた。続いて多いのが環形動物の多毛類であり、土壌の違いによる生物の生息状況に大きな違いは認められない。実験開始4ヶ月後では、底生生物の出現し始める初期段階と推察される。



図(2)-65 実験開始約4ヶ月後における底生生物の種類数(a)と個体数(b)

図(2)-66(a)(b)は、実験開始約1年後における土壌表面積95 cm<sup>2</sup>あたりの底生生物の種類数と個体数を示す。底生生物の種類数では最大10種、個体数では最大22個体であり、実験開始4ヶ月後と比較して2倍程度まで増加した。4ヶ月後では節足動物と環形動物がほとんどであったが、1年後では軟体動物の二枚貝(ブドウガイ、ホトトギスガイ、シズクガイ)が多く生息するようになった(表(2)-6)。天然海水中のこれら二枚貝の幼生が実験水槽内に流入し、全ての土壌で定着、成長したと推察される。

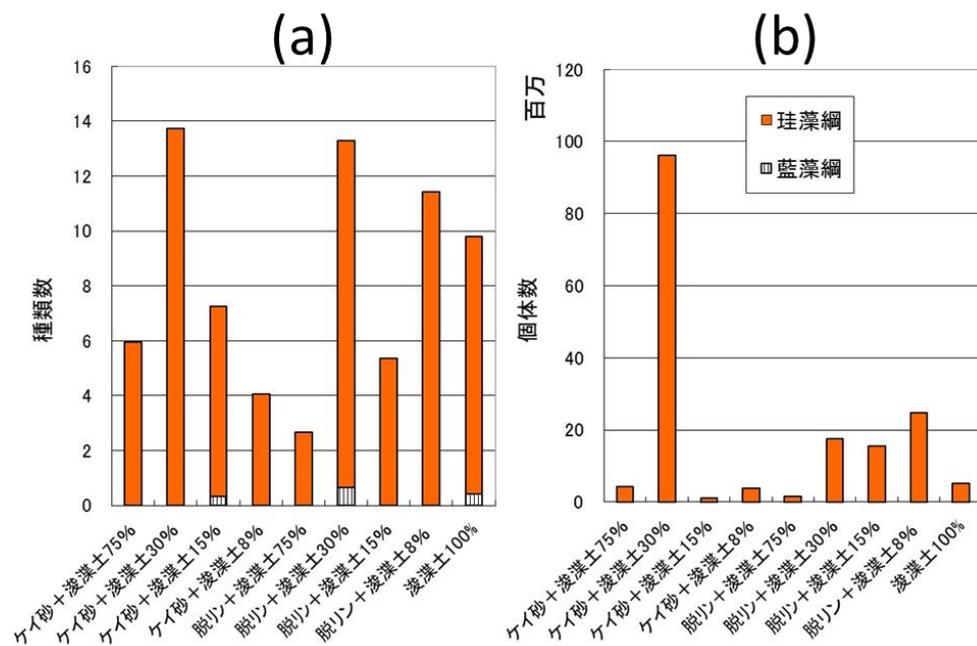


図(2)-66 実験開始約1年後における底生生物の種類数(a)と個体数(b)

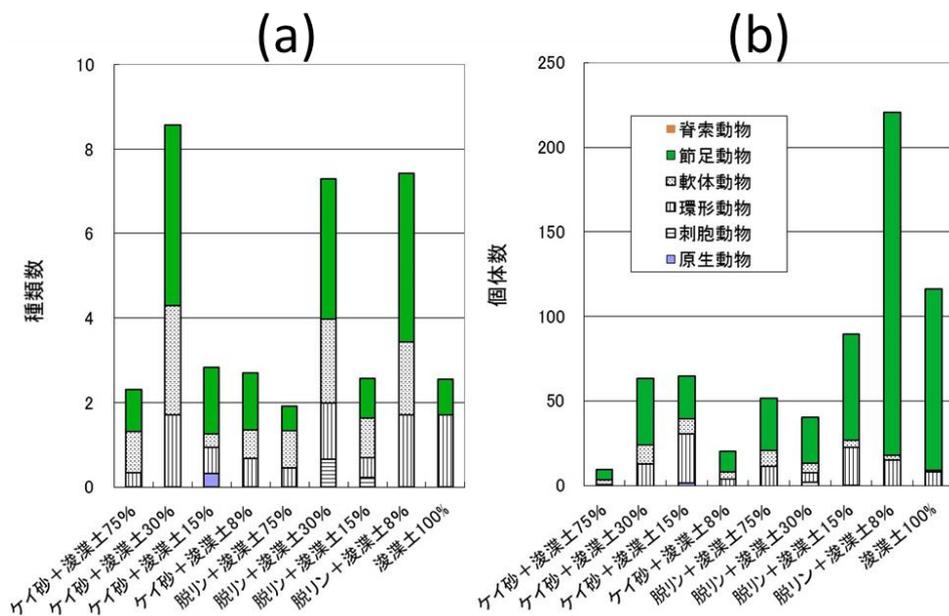
表(2)-6 実験開始約1年後における底生生物優占種の個体数

門	種名	脱リン+浚渫土75%	脱リン+浚渫土30%	脱リン+浚渫土15%	脱リン+浚渫土8%	ケイ砂+浚渫土75%	ケイ砂+浚渫土30%	ケイ砂+浚渫土15%	ケイ砂+浚渫土8%	浚渫土100%
環形動物	サンバコガイ	1	1	1	0	2	1	3	2	3
軟体動物	ブドウガイ	3	2	4	3	7	5	1	9	4
	ホトトギスガイ	0	3	3	9	10	3	4	1	3
	シズクガイ	6	5	3	3	1	0	3	9	0

実験開始約1.5年後(2014年1月下旬)におけるアマモ葉上付着微細藻類の種類数と個体数を図(2)-67(a)(b)に示す。付着微細藻類は、種類数と細胞個体数共に珪藻が優占し、種類数に大きな違いはないのに対し、個体数は脱リンスラグの混合土壌で大きな値を示した。アマモ付着動物では、図(2)-68(a)(b)に示すように節足動物が種類数、個体数共に大きく、脱リンスラグにおける浚渫土混合割合が大きい土壌において個体数が大きい傾向にあった。



図(2)-67 実験開始約1.5年後におけるアマモ1株あたりの葉上付着微細藻類の種類数(a)と個体数(b)

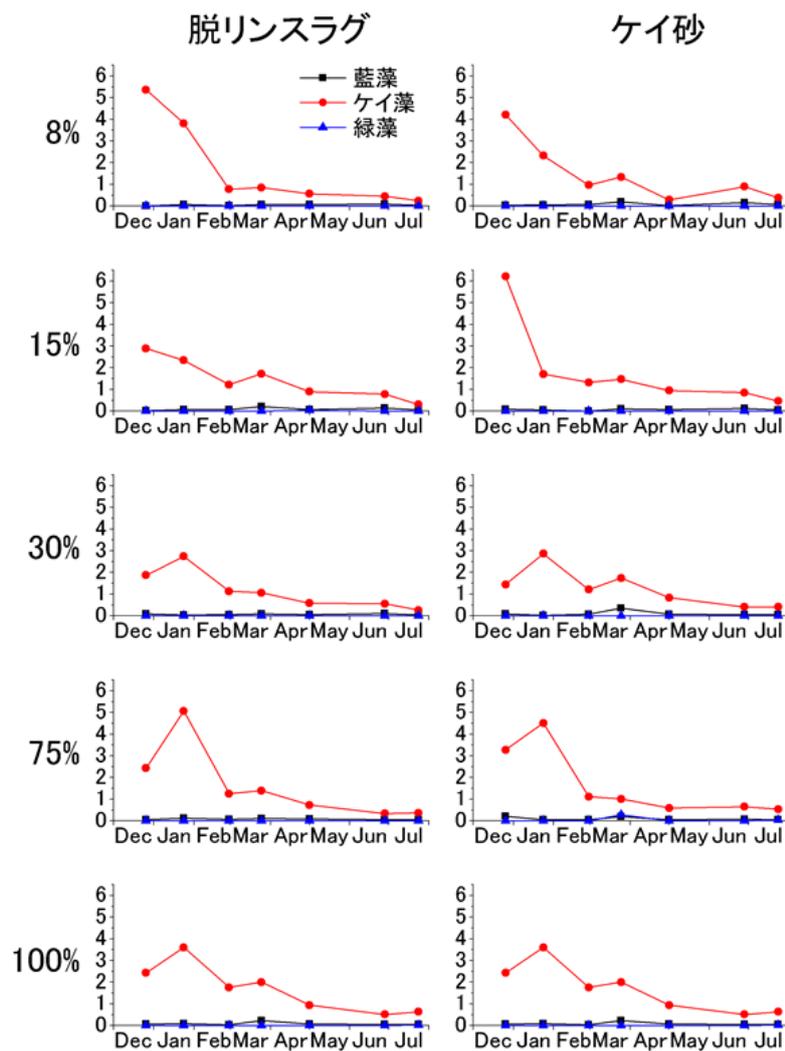


図(2)-68 実験開始約1.5年後におけるアマモ1株あたりの葉上付着動物の種類数(a)と個体数(b)

浅場にアマモ場を造成することにより、アマモ自体の一次生産にとどまらず、アマモ葉上や基盤土壌表面に一次生産を担う付着藻類が繁茂することで、沿岸域の物質循環が改善される可能性がある。Takaiら<sup>12)</sup>は安定同位体比を用いた研究により、浅海域では、海底付着藻類が担う一次生産が、浮遊性藻類が担う一次生産に匹敵するポテンシャルを持っていること、前者が後者よりも

効率よく物質循環に利用されうる可能性があることを明らかにしている。

付着藻類量の時間変化を図(2)-69に示すが、付着藻類の大半は珪藻類であった。また、2012年12月から1月にかけて、脱リンスラグ区およびケイ砂区の多くで付着藻類量が最大値を記録した。浚渫土100%の実験水槽では、付着藻類量が低下し始める時期が2ヶ月程度遅れたものの、脱リンスラグ区またはケイ砂区とはほぼ同様の傾向を示した。また、同一混合比で比較した場合、本実験結果からは、脱リンスラグ区とケイ砂区の間で付着藻類量の時間変化に顕著な違いは認められなかった。



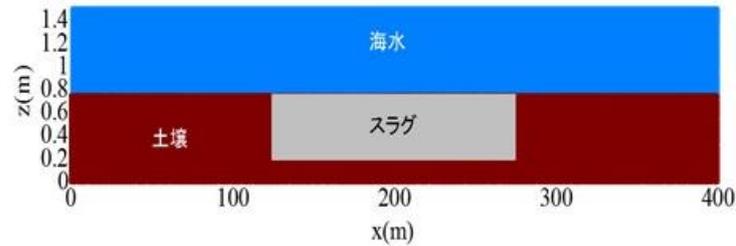
図(2)-69 付着藻類量の時間変化

単位： $\mu\text{g cm}^{-2}$ 。縦軸のパーセントは、浚渫土の乾燥重量基準パーセント

## 5) 藻場域における製鋼スラグの溶出シミュレーションモデルの構築

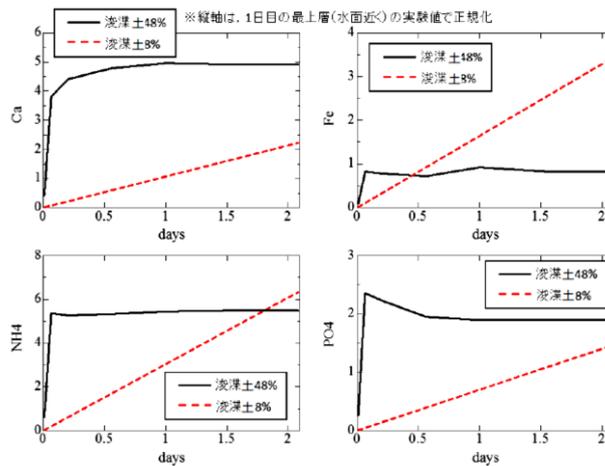
干潟において開発した数値シミュレーションモデルを藻場域に適用した事例を紹介する。計算領域は図(2)-70に示す通りである。計算領域中央に製鋼スラグ（脱リンスラグと浚渫土8%もしくは48%）を埋設し、潮位変動2.5 mを外力条件として与え、潮流を駆動させた。製鋼スラグから溶

出する物質はCa、Fe、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{PO}_4\text{-P}$ とし、それぞれの溶出速度はミニコア実験（夏場）に合わせた。

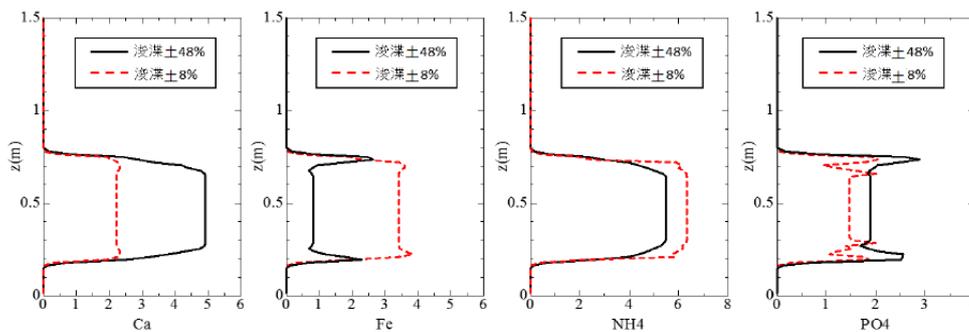


図(2)-70 藻場域の計算領域

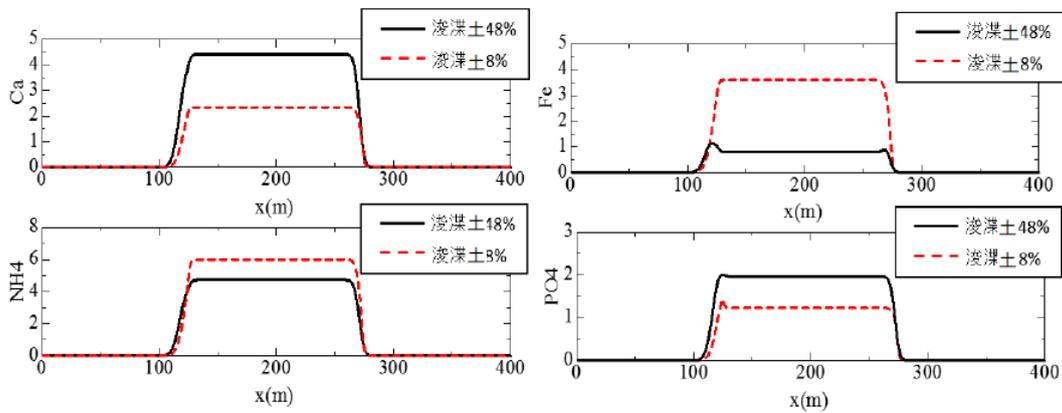
図(2)-71 は、浚渫土8%（点線）浚渫土48%（実線）における製鋼スラグ内部（表面付近）の各溶出物濃度の時間変化を示したものである。なお、縦軸の濃度は実験開始1日目の最上層の値で正規化している。また、図(2)-72および図(2)-73は各溶出物濃度の水平および鉛直分布（2日後）を示したものである。図より、浚渫土の割合によって、溶出物の溶出速度が大きく異なるため、その時系列変化と空間分布に大きな差がみられることが分かる。なお、浚渫土8%の場合は、まだ定常状態となっていないため、さらなる長時間シミュレーションが必要である。これらの図より、予めミニコアサンプルによる溶出実験データを境界条件として、本シミュレーションモデルを用いると、各種溶出物の時空間分布特性を把握できることが分かる。



図(2)-71 各溶出物濃度の時系列変化の比較（縦軸は初日の値で正規化）



図(2)-72 各溶出物濃度の鉛直分布の比較



図(2)-73 各溶出物濃度.水平分布の比較 (縦軸は図(2)-71同様、初日の値で正規化)

## 5. 本研究により得られた成果

### (1) 科学的意義

製鋼スラグと浚渫土の混合土壌の干潟・藻場生態系の造成土壌としての特性を、基礎生産機能に及ぼす影響と生態系全体の構造に及ぼす影響の両面から評価し、生態系の評価結果を物質フロー、土壌環境の視点から解析した。

具体的には潮間帯の中央付近を想定した3/100傾斜の干満・波のある干潟をマイクロコズム内に再現し、評価を行った。一次生産という視点では、脱リンスラグ区では、ケイ砂区に比べ、造成初期の微細藻の増殖が顕著であったが、その後はケイ砂区と個体数、構成種に顕著な違いはないことが明らかとなる一方で、脱リンスラグ区では大型付着藻類であるアオサ類が顕著に繁茂した。土壌硬度の高いスラグ区での土壌の安定性が大型藻類の増殖を促したと推定された。また、使用した浚渫土が餌となりワレカラ属とゴカイ科が増殖したことが安定同位体分析から明らかとなり、浚渫土混合の効果が科学的に証明された一方で、スラグ区でケイ砂区と比較して表在性ペントスが多いことが示された。これらスラグ区とケイ砂区で共通して増殖する生物がいる一方で、スラグ区に特有に増殖したアオサなどの違いはスラグの密度がケイ砂と比較して大きく、一定の固化が起こったために土壌が安定したことが大きな要因であると推定された。この結果は、当初想定されたpH上昇などの溶出成分による化学的な環境の特異だけでなく、物理的な特性が形成される生態系に影響を及ぼすことが示された点で新しい知見である。ただし、この違いはマイクロコズム内の静穏かつ荒天などによる一時的な大きな攪乱のない条件下で起こった現象であり、実際の造成に当たっては一時的な大きな攪乱など土壌の物理環境に及ぼす現象を十分考慮する必要性を示せた点でも意義のある知見である。

潮下帯を再現したマイクロコズムにおけるアマモの生育試験からは、間隙水のpH上昇は起こったものの、脱リンスラグではスラグ単独でも固化は起こらずアマモが生育・成長し、さらに栄養塩を豊富に含む浚渫土の適当な混合によって好適な造成材料となることを示した。さらに栄養塩の活着と種子の発芽試験においても、スラグ混合土壌の天然土代替としての有効性が示され、特に浚渫土30~40%の含有率のスラグ混合土壌が効果的であることという結果が得られた。

これらの結果を基に、干潟・藻場の造成に利用される製鋼スラグから溶出する物質の時空間的な動態と生態系に及ぼす影響を評価するための数値シミュレーションモデルを構築、干潟・藻場に投入された製鋼スラグから溶出する各種物質濃度を予想できるツールを開発できた。

以上の結果によって、脱リンスラグを砂代替に用いて浚渫土と混合した土壌における生態系構造とその構造をもたらした要因が明らかとなり、特に土壌が安定しやすいことがスラグを用いた場合に特徴的な生態系が形成される要因になることが示され、藻場造成ではアマモの生育基盤として十分砂代替となり得ることが示され、特に浚渫土との適当な混合がアマモにとって成長、種子の発芽、高温耐性の面から好適な環境を準備することが明らかにできた。

## (2) 環境政策への貢献

### <行政が既に活用した成果>

特に記載すべき事項はない。

### <行政が活用することが見込まれる成果>

21世紀環境立国戦略では、豊穡の里海の創生をはじめとする自然の恵みを活かした活力溢れる地域づくりが重点的に着手すべき戦略の一つとして挙げられており、環境省の基本施策として干潟・藻場等の重要な生態系の保全と再生が掲げられている。しかし、平成10年の広島県での海底土砂の採取禁止に始まり、海底土砂の採取は瀬戸内海沿岸11県でほぼ全て禁止という状態であり、自然砂の採取に依存しない干潟・藻場等造成材料の開発が求められてきた。重要な選択肢として鉄鋼スラグ等リサイクル材の活用はこれまでも検討されてきたが科学的に不明な点も多く代替材と成り得ていなかった。本課題の成果により鉄鋼スラグの中でも有望な製鋼スラグを干潟・藻場の造成に用いる際に必要とされる科学的な知見を蓄積できたとともに浚渫土の混合利用の有用性を合わせて証明できたことは行政に対して有用な選択肢を提示できたと考ええる。特にスラグの化学成分を徹底的に評価し、スラグ使用における安心・安全に寄与し、高pHや固化といったスラグ特有の反応機構を明らかにし、制御する知見を示したうえで脱リンスラグと浚渫土の組み合わせで良好なアマモの生育・成長を確認するなど実用的な知見も得られ、沿岸再生において環境再生と資源再生がWin-Winの関係で進みうることを示したことは今後の環境行政に一つの方向性を提示できたと考ええる。

## 6. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

## 7. 研究成果の発表状況

### (1) 誌上発表

#### <論文(査読あり)>

- 1) Satoshi Asaoka, Tetsuji Okuda, Satoshi Nakai, Wataru Nishijima : ISIJ International, 53, 10, 1888-1893 (2013)  
 "Determination method for maximum calcium releasing potential from steel slags, marine sands alternatives in seawater"

- 2) 陸田秀実, 鎌田正也, 奥田哲士, 土井康明: 土木学会論文集, B2, 69, 2, I\_1276-I\_1280 (2013)  
「鉄鋼スラグからの溶出物による CO2 海洋固定化能に関する研究」
- 3) Wataru Nishijima, Yoichi Nakano, Satoshi Nakai, Tetsuji Okuda, Tsuyoshi Imai, Mitsumasa Okada: Marine Pollution Bulletin, 82, 1-2, 101-108 (2014)  
"Macrobenthic succession and characteristics of a man-made intertidal sandflat constructed in the diversion channel of the Ohta River Estuary"
- 4) Tetsuji Okuda, Satoshi Asaoka, Hitomi Yano, Kouji Yoshitsugu, Satoshi Nakai, Wataru Nishijima, Kenji Sugimoto, Daijirou Matsunami, Yorihide Asaoka, Mitsumasa Okada: Chemosphere, 111, 164-168 (2014)  
"Chemical Behavior of Sand Alternatives in the Marine Environment"

<査読付論文に準ずる成果発表> (対象: 社会・政策研究の分野)

特になし

<その他誌上発表(査読なし)>

- 1) Akiyama Y. B., Yano H, Katayama T, Takeda M, Okuda T, Nakai S, Nishijima W: Proceedings of EMECS10-MEDCOAST2013 Joint Conference, 875-884 (2013)  
"Effects of steelmaking slag on marinebenthos"
- 2) 西嶋 渉: 環境技術, 42(7), 398-403 (2013)  
「製鋼スラグの環境修復材としての海域利用」

(2) 口頭発表(学会等)

- 1) Satoshi NAKAI, Masayuki OZAKI, Tetsuji OKUDA, Wataru NISHIJIMA, and Mitsumasa OKADA: The 6th Joint China/Japan Chemical Engineering Symposium, Wuhan, China (2011)  
"Use of waste gypsum for shear thickening of dredged soil by decarburization slag"
- 2) 西嶋渉, 中井智司, 奥田哲士: 平成23年度水産環境保全委員会シンポジウム: リサイクル材による海域環境修復の最前線, 広島県東広島市, 広島大学 (2011)  
「製鋼スラグと半水石膏を組み合わせた浚渫土固化材の開発と海砂利採取跡地の環境修復への応用」
- 3) Satoshi Nakai, Esteban R. Mino, Tomohiro Kose, Tetsuji Okuda, Wataru Nishijima and Mitsumasa Okada: Dioxins 2011, Brussels - Belgium (2011)  
"PHOTODEGRADATION OF PERFLUOROCTANOIC ACID USING Fe(II/III) IN CONBINATION WITH CHELATING AGENTS"
- 4) 中井智司, 尾崎雅之, 奥田哲士, 西嶋渉, 岡田光正: 第58回海岸工学講演会, 盛岡市, 岩手県民情報交流センター (2011)

- 「半水石膏と脱炭スラグを用いた浚渫土の増粘処理」
- 5) 矢野ひとみ, 中井智司, 奥田哲士 西嶋渉, 杉本憲司, 浅岡賢英, 岡田光正: 第22回廃棄物資源循環学会, 東京都, 東洋大学 (2011)
- 「海砂代替材として検討される産業副産物の海水中における挙動」
- 6) 西嶋渉: 第40回水環境フォーラム山口, 山口県 (2012)
- 「沿岸生態系の造成材料としての製鋼スラグの評価」
- 7) Tetsuji Okuda, Satoshi Asaoka, Koji Yoshitsugu, Satoshi Nakai, Wataru Nishijima: The 10th Expert Meeting on Solid Waste Management in Asia and Pacific Islands, Tottori, Japan (2012)
- “Evaluation of leaching potential of Ca in steel slag for its reuse in marine environment “
- 8) Wataru Nishijima, Hitomi Yano, Satoshi Asaoka, Tetsuji Okuda, Satoshi Nakai and Mitsumasa Okada: The 27th International Conference on Solid Waste Technology and Management, Philadelphia, USA(2012)
- “Solidification behavior and control of steel slag in marine environment “
- 9) Satoshi ASAOKA, Hitomi YANO, Tetsuji OKUDA, Satoshi NAKAI, Wataru NISHIJIMA, Mitsumasa OKADA: The 27th International Conference on Solid Waste Technology and Management, Philadelphia, USA(2012)
- “Long term physical and chemical behaviors of steel slags in sea water and sediment “
- 10) 山下秀星, 中野陽一, 奥田哲士, 中井智司, 西嶋渉: 第14回化学工学学生発表会宇部大会, 山口県宇部市 (2012)
- 「人工アマモ場に適した人工代替砂の開発」
- 11) 矢野ひとみ, 中井智司, 奥田哲士, 西嶋渉: 第46回日本水環境学会年会, 東京都, 東洋大学 (2012)
- 「製鋼スラグと浚渫土を混合した海砂代替材の固化および生物付着特性」
- 12) S. Nakai, Tetsuji Okuda, Wataru NISHIJIMA, Mitsumasa Okada: 50th ECSA (Estuarine Coastal and Shelf Science) Conference, #011. 2, June 3-7, Venice, Italy (2012)
- “Settlement of clam larvae onto slags derived from steel manufacturing “
- 13) Satoshi Asaoka, Hitomi Yano, Tetsuji Okuda, Satoshi Nakai, Wataru NISHIJIMA, Mitsumasa Okada: 50th ECSA (Estuarine Coastal and Shelf Science) Conference, #011. 2, June 3-7, Venice, Italy (2012)
- “Determination method for maximum calcium dissolving potential of steel slags “
- 14) Satoshi ASAOKA, Tetsuji Okuda, Hitomi YANO, Kouji YOSHITSUGU, Satoshi NAKAI, Wataru NISHIJIMA, Kenji SUGIMOTO, Daijiro Matsunami, Yorihide ASAOKA, Mitsumasa OKADA: The 6th International Conference on Environmental Science and Technology 2012, p64 (#914), June 25 - 29, Houston, Texas, USA (2012)
- “Characteristics Changes of By-products Origin Sand-alternatives in Sea Water and Sediment “
- 15) YANO Hitomi, Satoshi ASAOKA, Tetsuji Okuda, Satoshi Nakai, Wataru Nishijima: Water

- and Environment Technology Conference 2012 (WET2012), June, 29-2B-12, Tokyo (2012)  
 “Physicochemical and biological properties of steel slag bed mixed with dredged material “
- 16) Wataru Nishijima, Hitomi Yano, Satoshi Asaoka, Tetsuji Okuda, Satoshi Nakai and Mitsumasa Okada : 2012 ISWA World Solid Waste, P.8, September, Florence Italy (2012)  
 “Evaluation of Steel Slag as an Alternative Material of Sand for Coastal Ecosystem Creation “
- 17) 西嶋渉, 矢野ひとみ, 奥田哲士, 中井智司 : 第15回日本水環境学会シンポジウム 基調講演 : 2012年9月, 佐賀 (2012) < 基調講演 >  
 「沿岸生態系の修復・再生材料としての製鋼スラグの活用」
- 18) 中井智司, 中村将志, 浅岡聡, 奥田哲士, 西嶋渉, 崎山一孝, 米田一紀 : 化学工学会 第44回秋季大会, 東北大学川内北キャンパス (2012)  
 「干潟造成に用いる海砂代替材としての製鋼スラグの評価」。
- 19) Hitomi Yano, Y. Akiyama, Satoshi Asaoka, Tetsuji Okuda, Satoshi Nakai, Wataru Nishijima : SETAC Asia Pacific, Kumamoto, Japan (2012)  
 “The use of dredged soil as additives to leverage steel slags for restoring sea grass beds and tidal flats, September “
- 20) 奥田哲士, 吉次宏二, 矢野ひとみ, 片山貴博, 秋山吉寛, 中井智司, 西嶋渉, 浅岡聡, 岡田光正 : 平成24年度研究発表会, 仙台市仙台国際センター (2012)  
 「海水中における製鋼スラグの固化挙動」
- 21) Y. Akiyama, T. Katayama, H. Yano, T. Okuda, S. Nakai, W. Nishijima : International Symposium including Field Workshops -Biodiversity in Changing Coastal Waters of Tropical and Subtropical Asia- (BCCWTA), Amakusa, Japan (2012)  
 “Distribution of benthic fauna decided in association with sediment environments on tidal flat in Hiroshima, Japan “
- 22) 片山貴博, 矢野ひとみ, 秋山吉寛, 奥田哲士, 中井智司, 西嶋渉 : 第47回日本水環境学会, 大阪 (2013)  
 「海水中での製鋼スラグの固化メカニズムの解明と浚渫土の添加による軽減」
- 23) 木場恭平・山本民次 : 第47回日本水環境学会, 大阪 (2013)  
 「製鋼スラグと有機泥の混合による人工干潟造成材の開発に関する基礎研究—有機泥の違いが混合物の性質に及ぼす影響」
- 25) 山本民次・木場恭平・西嶋渉 : 日本水産学会, 東京 (2013)  
 「人工干潟造成に関する基礎的研究 : 生物生息に適した有機泥と製鋼スラグの混合比の決定」
- 26) 西嶋 渉 : 第7回海の再生全国会議, 東京 (2013) (招待講演)  
 「海の再生におけるリサイクル材の活用」
- 27) 秋山吉寛, 矢野ひとみ, 木場恭平, 片山貴博, 竹田優志, 奥田哲士, 中井智司, 山本民次, 西嶋渉 : 日本貝類学会平成25年度大会, 愛知県豊橋市, 豊橋市自然史博物館 (2013)  
 「製鋼スラグと浚渫土の混合土壌を敷いたメソコスムに現れた貝類」

- 28) Akiyama Y., Yano H., Katayama T., Koba K., Nagao M., Okuda T., Nakai S., Tanimoto T., Yamamoto T., Nishijima W.: ISWA World Congress Vienna 2013, Vienna, Austria (2013)  
 “Impact of steel slag on benthic community under semi-artificial environment”
- 29) 鎌田正也：第60回 海岸工学講演会，福岡市（2013）  
 「鉄鋼スラグからの溶出物によるCO2海洋固定化能に関する研究」
- 30) 中井智司：平成25年度日本水産工学会学術講演会，北海道，札幌コンベンションセンター（2013）  
 「干潟造成に用いる海砂代替材としての製鋼スラグの評価」
- 31) 山西諒，杉本憲司，中野陽一，奥田哲士，西嶋渉，中井智司：瀬戸内海研究フォーラム in 山口，山口県宇部市（2013）  
 「鉄鋼スラグを活用した人工アマモ場代替砂の開発」
- 32) 奥田哲士，秋山吉寛，西嶋渉，片山貴博，矢野ひとみ，中井智司：瀬戸内海研究フォーラム in山口，山口県宇部市（2013）  
 「鉄鋼スラグによる干潟再生」
- 33) 矢野ひとみ，片山貴博，秋山吉寛，奥田哲士，中井智司，西嶋渉：化学工学学会第45回秋季大会，岡山県岡山市，岡山大学（2013）  
 「浚渫土を添加した製鋼スラグの干潟再生材としての評価」
- 34) 藤井貴敏，伊達勇介，中野陽一，青木薫，小田耕平，日野英壺，中井智司，秋山吉寛，奥田哲士，西嶋渉：第16回日本水環境学会シンポジウム，沖縄県，琉球大学（2013）11月  
 「製鋼スラグと浚渫土の混合材による干潟造成時の底質微生物叢解析」
- 35) 秋山吉寛，竹田優志，矢野ひとみ，片山貴博，奥田哲士，中井智司，長尾正之，谷本照己，西嶋渉：第16回日本水環境学会シンポジウム，沖縄県，琉球大学(2013)  
 「製鋼スラグと浚渫土の混合土壌に出現した底生生物群集」
- 36) Kenji SUGIMOTO, Yoichi NAKANO, Tetsuji OKUDA, Satoshi NAKAI, Wataru NISHIJIMA, Mitsumasa OKADA: EMECS10-MEDCOAST2013 Joint Conference, Marmaris, Turkey(2013)  
 “Changes in dominant species of seagrass bed on eastern Yamaguchi, Seto Inland Sea, Japan”.
- 37) Akiyama Y., Yano H., Katayama T., Okuda T., Nakai S., Nishijima W.: EMECS10-MEDCOAST2013 Joint Conference, Marmaris, Turkey (2013)  
 “Effect of steelmaking slag on marinebenthos”
- 38) 片山 貴博，竹田 優志，矢野 ひとみ，秋山 吉寛，奥田 哲士，中井 智司，西嶋 渉：廃棄物資源循環学会，第24回研究発表会（2013）  
 「浚渫土による海水中での製鋼スラグの固化制御」
- 39) Satoshi NAKAI, Tetsuji OKUDA: Aquaculture2013, Las Palmas, Gran Canaria (2013)  
 “Attraction of larval settlement of short-necked clam by steel-manufacturing slag”
- 40) 杉本憲司：第44回水環境フォーラム山口（2014）  
 「山口県東部海域における製鋼スラグを用いた藻場生育基盤造成と海藻遷移」
- 41) 坪井亮宏，藤井貴敏，日野英壺，青木薫，小田耕平，中野陽一，伊達勇介，杉本憲司：第19

- 回高専シンポジウムin久留米，福岡県久留米市（2014）  
「アマモ群落間における種子移動機構の解明」
- 42) 山本民次・木場恭平・西嶋 渉：日本水産学会，北海道函館市（2014）  
「人工干潟造成に関する基礎研究Ⅱ：有機泥と製鋼スラグを用いた人工干潟での藻類の発生」
- 43) 藤井貴敏，秋山吉寛，奥田哲士，西嶋渉：第48日本水環境学会年会，宮城県仙台市，東北大学（2014）  
「広島県の干潟における土壌の物理学的特徴と生物学的特徴の関係性」
- 44) 中井智司：化学工学会第79年会，岐阜県岐阜市柳戸（2014）  
「浅場造成への利用を志向した製鋼スラグの固化抑制」
- 45) 中井智司：The 11th Japan-China Symposium on Water Environment（第11回日中水環境シンポジウム），Xiamen，China（2014）（招待講演）  
“Benthic community emerging on the artificial tidal flat constructed using a steelmaking slag “
- 46) Tetsuji OKUDA: First China-Japan (CAS-JST) Workshop on “New Environmentally Sustainable Systems for Japan and China “（第1回日中環境ワークショップ），Xiamen，China（2014）（招待講演）  
“Scientific understanding and approach to the management of the Seto Inland Sea”

### （3）出願特許

特に記載すべき事項はない。

### （4）シンポジウム、セミナーの開催（主催のもの）

- 1) 平成23年度 沿岸域再生セミナー，広島大学 生物生産学部 C206講義室（2011年8月5日）  
約50名  
「干潟・藻場の再生・創出」

### （5）マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない。

### （6）その他

- 上記（2）-1)のうち，矢野ひとみ他：第22回廃棄物資源循環学会（2011）は廃棄物資源循環学会中国四国支部の支部奨励賞を受賞  
上記（2）-1)のうち，矢野ひとみ他：第46回日本水環境学会年会（2012）はクリタ賞を受賞  
上記（2）-1)のうち，奥田哲士他：瀬戸内海研究フォーラムin山口（2013）は優秀賞を受賞  
上記（2）-1)のうち，片山貴博他：第24回廃棄物資源循環学会研究発表会（2013）は廃棄物資源循環学会中国四国支部の支部奨励賞を受賞

## 8. 引用文献

- 1) 川崎保夫：電力中央研究所報告，U87046，1-24（1987）

- 「アマモへの温度の影響, III, 昇温によるライフサイクルの変化」
- 2) 神戸市環境局 : (1995)  
「須磨海岸等の差浜・藻場における水質浄化機能機能調査について」
  - 3) Pape O. L., Jean F., Menesguen A. : Mar. Ecol. Prog. Ser., 189, 135-147 (1999)  
“Pelagic and benthic trophic chain coupling in a semi-enclosed coastal system, the Bay of Brest (France) : A modeling approach”
  - 4) Wang H., Appan A., Dulliver J. S. : Water Research. 37 3939-3953 (2003),  
“Modeling of phosphorus dynamics in aquatic sediment : II-examination of model performance”
  - 5) Min Bo Luo, Feng Liub, Zhao Li Xu : ,Ulva prolifera and Ulva linza. Aqua. Bota. 100. 18-24 (2012)  
“Growth and nutrient uptake capacity of two co-occurring species”
  - 6) 越時秀, 田辺猛 (2011)  
「1水稲の湛水土壤中条播直播栽培における株の押し倒し抵抗値と引き抜き抵抗値との関係」
  - 7) Amelia B. Hizon-Fradejas, Yoichi Nakano, Satoshi Nakai, Wataru Nishijima, Mitumasa Okada : Journal of Water and Environment Technology, 7, 91-101 (2009)  
“Anchorage and resistance to uprooting forces of eelgrass (*Zostera marina* L.) shoots planted in slag substrates”
  - 8) 尾田 正 : (2000)  
「アマモの枯死期及び葉体の部位による光合成活性」
  - 9) 園池 公毅 : (2009)  
「クロロフィル蛍光と吸収による光合成測定」
  - 10) 群馬県 : [http://www.maff.go.jp/j/seisan/kankyo/hozen\\_type/h\\_sehi\\_kizyun/pdf/gum23.pdf](http://www.maff.go.jp/j/seisan/kankyo/hozen_type/h_sehi_kizyun/pdf/gum23.pdf) (最終アクセス日 : 2014年5月5日) (2004)  
「5. 土壌の物理性の測定 (群馬県作物別施肥基準・土壌診断基準)」
  - 11) Aberle, N., M. Beutler, C. Moldaenke and K. H. Wiltshire: Archiv für Hydrobiologie, 167, 575-592 (2006)  
“‘Spectral fingerprinting’ for specific algal groups on sediments in situ: a new sensor”
  - 12) Takai, N., Y. Mishima, A. Yoroazu and A. Hoshika: Limnol. Oceanogr., 47, 3, 730-741 (2002)  
“Carbon sources for demersal fish in the western Seto Inland Sea, Japan, examined by <sup>13</sup>C and <sup>15</sup>N analyses”

## Ecological Evaluation and Material Flow Analysis of Tidal Flat and Eelgrass Bed Ecosystems Constructed with Steel Slag and Dredged Material

Principal Investigator: **Wataru NISHIJIMA**

Institution: Hiroshima University

1-5-3 Kagamiyama, Higashi-Hiroshima, Hiroshima, JAPAN

Tel: +81-82-424-6197 / Fax: +81-82-424-4351

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

Cooperated by: Environmental Research & Management Center, Hiroshima University

### [Abstract]

For re-creation and re-establishment of tidal flats and eelgrass beds, sea, river and mountain sands have been used, whereas mining of sea sand is being prohibited in some prefectures in Japan to avoid disturbance of the coastal ecosystem. Therefore, steel slags have been focused as a sand alternative; however, the slags are known to release alkaline and cause solidification. In addition, with regard to use of the slags alone, lack of silt and clay as well as organic matters is concerned from the viewpoint of establishing benthic ecosystem. On the other hand, dredged soil (DS) is abundant in nutrients, silt and clay and organic matters, and therefore DS was expected to be a candidate of additives to sandy sediment media to supply these as well as to control physicochemical characteristics of sediment media. In order to evaluate the mixture of slags and DS as the sediment media for re-creation and re-establishment of tidal flats and eelgrass beds, analyzed here were biological and physicochemical characteristics of the sediment media and material flow of the benthic ecosystems developed in the artificial tidal flat and eelgrass beds constructed using the DS and slag mixtures.

We carried out rigorous chemical analyses of the dephosphorised and decarbonylation slags and their immersion tests into sea/fresh water with/without tidal action. In the control experiments, silica sand was used. A series of results showed the materials flow such as behaviors of alkaline, carbon, nutrients and redox agents caused by certain chemical interactions between the slags and DS and microbial activities. In addition, mechanisms of the slag solidification and its mitigation by the addition of DS were revealed. Furthermore, the eelgrass beds and tidal flat simulator tests confirmed the usability of the slags and DS mixtures as the basal media, where the nutrient release from the dephosphorised slag and DS, mitigation of pH increase and solidification of the slags by the DS addition and resultant growth of eelgrass or migration of benthic algae and benthos were involved. Finally, we constructed the mathematical simulation models to expect behaviors of the slags-eluting components and resultant effects on the ecosystems developed in

the artificial tidal flat constructed using the slags and DS.