

論文

ベントナイトをまとう微生物

上島雅人*・茂木賢一**・田崎和江**

*金沢大学大学院自然科学研究科

**金沢大学理学部

〒920-1192 金沢市角間町

Microbes Associated with Bentonite

Masato UESHIMA*, Kenichi MOGI** and Kazue TAZAKI**

*Graduate School of Natural Science and Technology, Kanazawa University

Kakuma, Kanazawa, Ishikawa 920-1192 Japan

**Faculty of Science, Kanazawa University

Kakuma, Kanazawa, Ishikawa 920-1192 Japan

Abstract

Bentonite, existing ubiquitously in soils and sediments, is widely used in the various fields. Interaction between bentonite and microbes has been investigated at floc (aggregates of clays and microbes) and ore collected from the Kasaoka Bentonite Mine, Okayama, Japan.

The floc consists of bentonite, algae, diatoms and bacteria. TEM observation of the algae after ultrasonic treatment for 30 min. shows that the algal cell walls are still covered with bentonite. The FT-IR spectrum of the sonicated algae supports that a cross-linking structure composed of Si-C and Si-O-C bonds are formed between bentonite and algal cell wall, which implies that bentonite-microbe interaction may have an organic-inorganic complex compound.

The present studies have revealed that bentonite has a role of protection for microbial cells, with surrounding on the surface of the cells. Consequently, it is suggested that bentonite shields life from spill of the toxic materials, and that the bentonite-microbe interaction is necessary to be considered in buffer for waste disposal in terms of protection of ecosystem in the strata.

Key words: Bentonite, Floc, Algae, Bentonite-microbe interaction, Ultrasonic treatment, FT-IR.

1. はじめに

ベントナイトは、モンモリロナイトが主成分の粘土の総称である。用途は土木基礎工事泥水、鋳物成型粘結材、農薬（水田除草剤のバインダー）、

猫のトイレ砂などさまざまであり、その用途の広さから「千の用途を持った粘土」といわれている¹⁾。山形県月布鉱床などのベントナイトの成因は、火山ガラス質凝灰岩が続成作用により変質したといわれている²⁾。ベントナイトの成因を知る

基礎実験として、火山ガラスのアルカリ変質によるシミュレーションが報告されており、それによれば、常圧条件下で、90-100℃の1M-NaOH溶液を7日間反応させることによりスメクタイトを合成した例がある³⁾。このように、これまでベントナイトの鉱床の成因について、主に物理的、化学的に研究されてきた。

しかし近年、微生物が関与して形成された粘土鉱物について注目されている。たとえば、河川、鉱山廃水、温泉で採取した微生物被膜（バイオマット）から、微生物が細胞壁の内側および外側に粘土鉱物を形成させることが明らかにされている^{4),5)}。また、深海底堆積物中においても、球菌、桿菌、糸状菌などのバクテリアによるノントロナイトの形成についても報告されている⁶⁾⁻⁹⁾。さらに、室内における自然培養実験においても、釉薬中に形成したバイオマットに生息するシアノバクテリアがハロイサイトを形成した報告もある⁸⁾。

一方、粘土は原始地球が形成された時点から存在したといわれている。すなわち、原始地球には水が存在し、さまざまな粘土鉱物が物理、化学的に形成されたと考えられる。水や粘土が存在する環境下において、その後生命体が出現したが、そのプロセスは不明な点が多い。生命の前駆体として粘土が鋳型の役割をし、その場で遺伝子複製が行われたという考えがある¹⁰⁾。ベントナイトと微生物の関係についていえば、ベントナイトの特性の一つである膨潤性によって、陽イオンや水、有機物を層間に含むことができ、このミクロな環境が、水や栄養を必要とする微生物にとっては恰好の生息場であることが予想される。長沼他(1999)¹¹⁾は、ベントナイトを加えた培地を用いて微生物培養を行い、種々のpHでそれぞれ異なった微生物の増殖を認めている。

近年、ベントナイトは高レベル放射性廃棄物の地層処分の緩衝材としての利用も検討されているが、深層に生息するバクテリアによるベントナイトへの影響、イオンの移動と固定を調べることは重要である。

本研究では、ベントナイトと共存する微生物を観察・分析し、その関係や結合状態について考察した。

2. 試料および分析方法

本研究で用いた試料、分析方法および実験方法を以下に記す。

2.1. 笠岡ベントナイト鉱床の原鉱およびフロック

岡山県笠岡市北部には、新第三系の凝灰岩を母岩とする小規模のベントナイト鉱床が分布している¹²⁾(Fig.1)。笠岡市東大戸の鉱床には200 m²ほどの沈殿池があり、ベントナイトが懸濁している。この池の水面にはフロック(floc)が多数浮遊している。このフロックは直径5~10 cmの平たい粘土の塊のように見えるが、所々黒あるいは緑色の部分があり、微生物の生息が予想される。この鉱床において、ベントナイトの原鉱およびフロックを採取し、研究試料とした(Fig.2)。また、現地において池の水質を測定した結果、pH 7.7でDOは11~12 mg/lと酸化的环境である。深さ30 cmのDOも水面とほぼ同様の値を示した。また、ECは120 μ S/cmであり、溶存するイオンの量は少ない(Table 1)。

2.2. ベントナイトの原鉱を用いた自然培養実験

本研究では、ベントナイトの原鉱中に生息する微生物の観察を容易にするために、現地の水とベントナイトを用いて、微生物を増殖させる自然培養実験を行った。＜2 mmに砕いたベントナイト約20 gをプラスチック容器に入れ、蒸留水約200 mlを加えて4日間静置した。プラスチック容器にふたを閉めて嫌氣的にしたものとふたを閉めずに酸化的にしたものの2種類の条件で行った。透過型電子顕微鏡観察用マイクログリッドを貼り付けたスライドガラスを容器の中に入れ、それらに付着した粒子を観察した。なお、自然培養実験におけるpHは、4日間で、好氣的条件では8.7から7.2へ、嫌氣的条件では8.6から7.1にそれぞれアルカリ性から中性に変化した。このpHの変化は、懸濁液中の溶存イオンの量が何らかの影響で変化したことを意味している。

2.3. 分析方法

2.3.1. X線粉末回折分析

ベントナイトの原鉱およびフロック中の鉱物組

Table 1 Water chemistry at the pond of Kasaoka Mine.

pH	EC	DO		WT
		Surface	11.8 mg/l	
7.7	120 μ S/cm	30 cm below	11.6 mg/l	27.2 $^{\circ}$ C

EC: electric conductivity, DO: dissolved oxygen, WT: water temperature

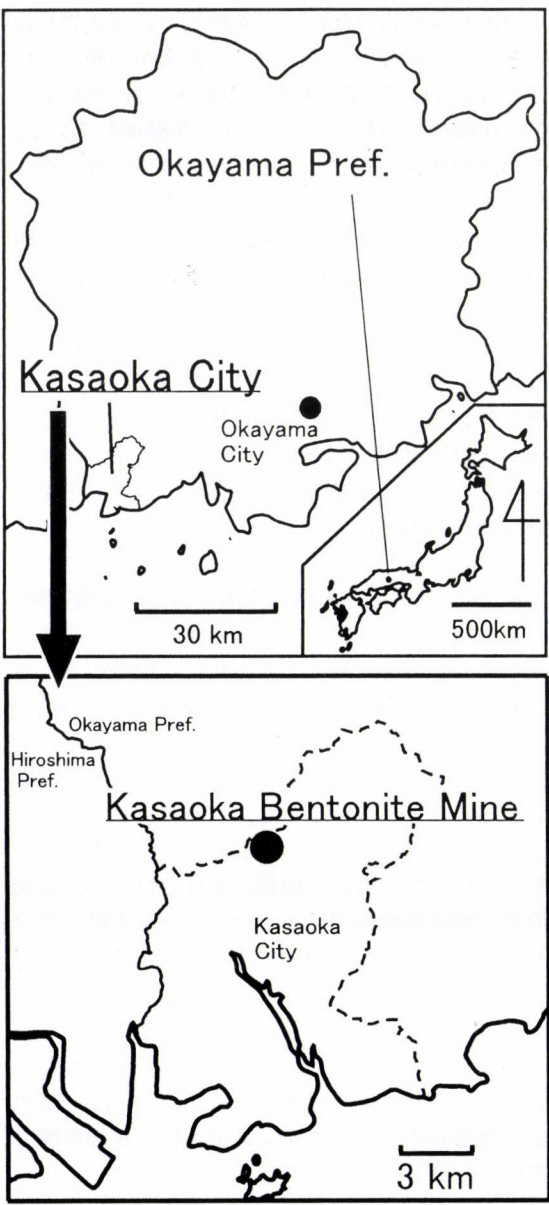


Fig.1 Locality map of Kasaoka Bentonite Mine, Okayama Prefecture, Japan.

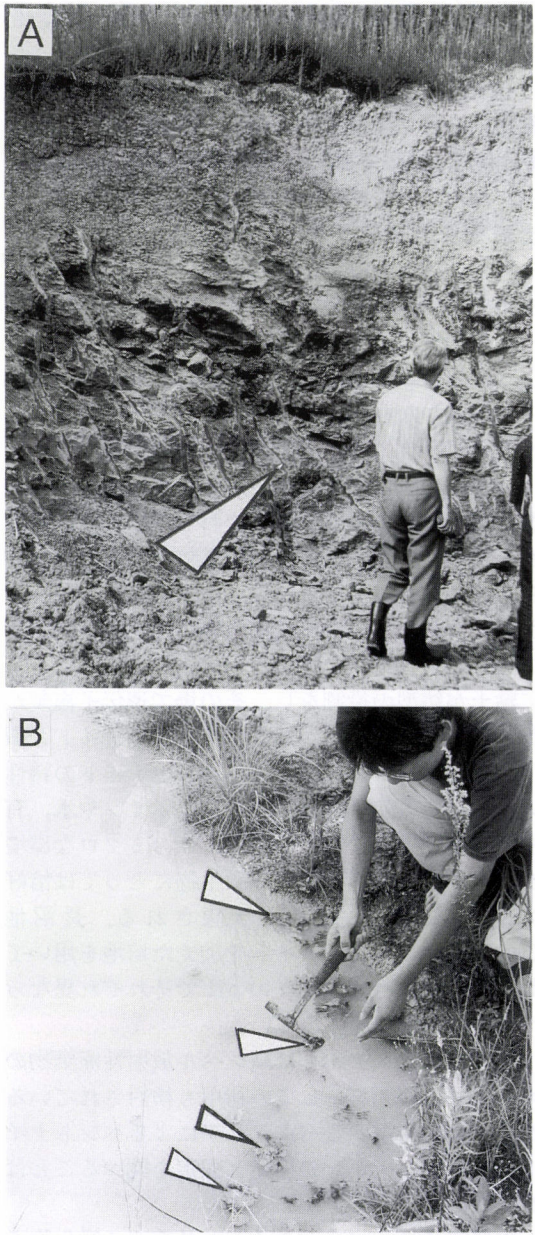


Fig.2 Outcrop photographs of Kasaoka bentonite deposits (A). Arrow indicates analytical point. (B) Flocs floating in the pond nearby the deposits (arrows).

成を同定するためにX線粉末回折分析(XRD)(理学電機製, RINT1200V, Cu-K α 線源)を行った。原鉱は、不定方位試料および水簸した $<2\mu\text{m}$ の定方位試料を測定した。一方、フロックは水を加えて懸濁させ、懸濁液をスライドグラスにのせ、風乾した定方位試料を測定した。粘土鉱物の底面間隔($d(001)$)の分析はエチレングリコール処理を施した定方位試料を用い、 $2\theta=2\sim 20^\circ$ の範囲で測定した。

2.3.2. 光学顕微鏡観察

フロックをかみそりで薄くスライスした試料と、フロックをほぐし、付着した粘土を30分間超音波洗浄した試料を光学顕微鏡(Nikon OPTIPHOT-2)で観察した。超音波洗浄は下記の行程で行った。(1)ほぐしたフロック約0.1gを試験管に入れ蒸留水約5mlを加えた。(2)10分間超音波処理を施し、懸濁液を捨て蒸留水約5mlを加える操作を3回繰り返した。フロック中の水のpHは、1mm径の微小領域測定用電極(HORIBA SE-1700 GC)を用いて測定すると、開始時のpHは7.61で、3回の洗浄後のpHは7.46に下降した。なお、生息する微生物の存在を確かめるために、DAPI(4',6-diamidino-2-phenylindole)で染色した試料を落射蛍光装置を用いて観察した。DNAはDAPI染色によって青色の蛍光を呈するが、無機物などDNA以外も黄色などの蛍光を呈するものがある(擬蛍光)。また、染色しない試料でも、葉緑素、粘土は赤色の蛍光を呈する(自家蛍光)。ベントナイトの擬蛍光を明らかにするために、ベントナイトの原鉱もDAPI染色を施し、蛍光顕微鏡下で観察した。自然培養実験の試料は、スライドグラスを容器から取り出し、DAPIで染色し、観察した。

2.3.3. フーリエ変換顕微赤外分光分析

ベントナイトおよびフロック中の化学結合を明らかにするために、30分間超音波洗浄した試料をフーリエ変換赤外分光装置(FT-IR)(日本分光FT/IR-610V)によって測定した。懸濁試料をCaF₂ディスクに滴下し、風乾させたものを装置に備付けられた顕微鏡(MICRO-20)に設置し、顕微鏡下で分析区域($20\times 20\mu\text{m}^2$)を限定

し、 $4000\sim 650\text{cm}^{-1}$ の範囲の吸収スペクトルを測定した。

2.3.4. 走査型電子顕微鏡観察およびエネルギー分散型X線分析

スライスしたフロック、および30分間超音波洗浄したフロックについて走査型電子顕微鏡(SEM)(JEOL JSM-5200LV, 加速電圧15kV)を用いて観察を行った。構成元素の組成は、走査型電子顕微鏡に取り付けられたエネルギー分散型X線分析装置(EDX)(PHILLIPS EDAX PV 2000 EX)を用い、加速電圧15kVで分析した。

2.3.5. 透過型電子顕微鏡観察

30分間超音波洗浄したフロックをマイクログリッドに載せ、透過型電子顕微鏡(TEM)(JEOL JEM-2000 EX, 加速電圧120および200kV)を用いて観察を行った。また、試料中の鉱物を電子線回折(加速電圧120および200kV)によって同定した。自然培養実験の試料は、マイクログリッドを容器から取り出し、直接観察した。

3. 結果

笠岡ベントナイト鉱床で採取したベントナイトの原鉱とベントナイトの沈殿池から採取したフロックについて観察、分析した結果を下記に述べる。

3.1. X線粉末回折分析

笠岡ベントナイトの原鉱には主にスメクタイト(15.0\AA)、カオリン鉱物(7.2\AA)、石英(3.34\AA)のほか、微量のクリストバライト(4.0\AA)、トリディマイト(3.8\AA)、長石類(3.2\AA)、カルサイト(3.0\AA)および水酸化鉄鉱物(2.6\AA)が含まれている(Fig. 3A)。原鉱を水簸した $<2\mu\text{m}$ サイズの定方位試料では、 15.1\AA の底面反射はエチレングリコール処理により 17.2\AA にシフトし、スメクタイトと同定された。この試料には強いスメクタイトの底面反射の他に、弱いイライト($10.0, 3.3\text{\AA}$)およびカオリン鉱物($7.2, 3.6\text{\AA}$)の底面反射が認められる(Fig. 3B)。フロックの定方位試料も、エチレングリコール処理により 15.3\AA の底面反射は 17.2\AA にシフトし、スメクタイト

と同定された。すなわち、このブロックには、原鉱と同様に、スメクタイト、カオリン鉱物、石英のほか、微量のクリストバライトおよび長石類が含まれる (Fig.3C)。なお、原鉱中の粘土鉱物(B)の反射強度はブロック中のそれら(C)より約5倍強い。

3.2. 光学顕微鏡観察

DAPI 染色したベントナイトの蛍光顕微鏡観察では、ベントナイトが黄色の擬蛍光を呈した。DAPI 染色したブロックの断面の光学顕微鏡写真を Fig.4 に示す。糸状の物質は蛍光顕微鏡下では青色 (DNA) あるいは赤色 (葉緑素) の蛍光を呈し、藻類であることが明らかになった。ブロックは厚さ約 0.1 mm で、その縁や表層は比較的藻類が多く、内部は緻密でベントナイトで充填されている。なお、藻類の隙間は黄色の擬蛍光を示す。ブロックの断面を DAPI 染色した蛍光顕微鏡写真から、ブロックの表面のみならず、内部にも藻類が生息していることがわかる (Fig.4)。藻類の周囲には、所々青色の蛍光を呈する長さ約 2 μm のバクテリアがみられる。30 分間超音波洗浄した試料の光学顕微鏡観察では、緑色の藻類が顕著になり、周囲の付着物が除去されているようにみえる。蛍光顕微鏡下においても、この試料は、DNA を示す青色および葉緑素を示す赤色の蛍光のみがみられ、ベントナイトの擬蛍光は認められない。藻類の細胞壁に付着した粘土分は 30 分間の超音波洗浄によりほとんど除去されているようにみえる。自然培養実験のスライドガラスの蛍光顕微鏡観察では、微生物の形状に似た長さ 2 μm 前後の桿状の粒子が認められた。しかし、黄色の擬蛍光のみが認められ、青色あるいは赤色の蛍光は認められなかった。

3.3. フーリエ変換顕微赤外分光分析

ベントナイト、ブロックおよび 30 分間超音波洗浄した藻類のフーリエ変換顕微赤外分光分析結果を Fig.5 に示す。ベントナイトおよびブロックの試料では 3620 および 910 cm^{-1} の Al-OH-Al に対応する吸収ピーク、また、1030 cm^{-1} の Si-O に対応する吸収ピークが認められた (Fig.5A, B)。一方、ブロックの試料では、3366 cm^{-1} の O-H の

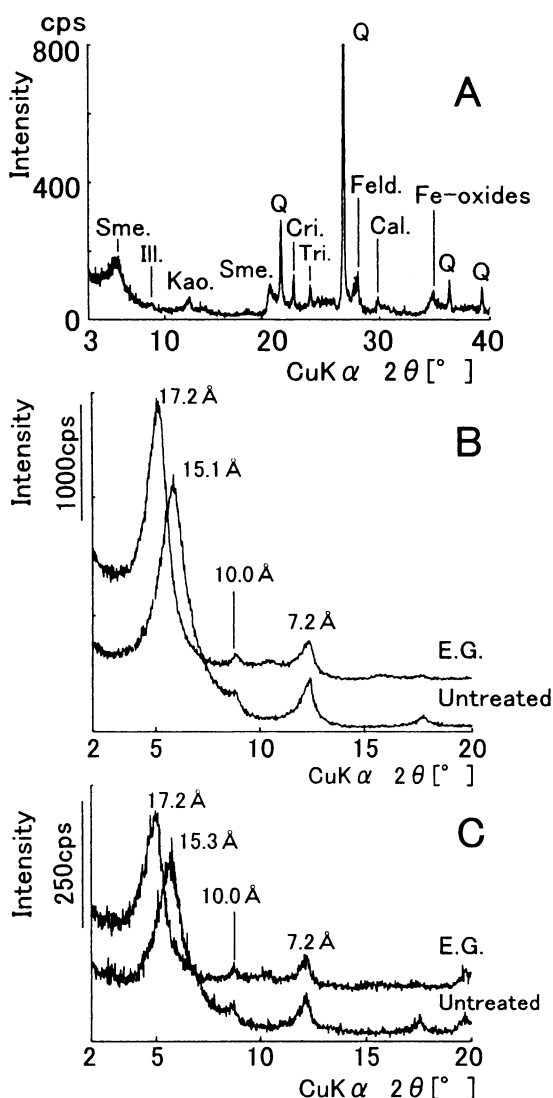


Fig.3 X-ray powder diffraction patterns of clay samples collected from Kasaoka bentonite deposits. (A) Bulk sample of the bentonite ore, which is mainly composed of smectite (Sme.), kaolin minerals (Kao.) and quartz (Q) with small amounts of illite (Ill.), cristobalite (Cri.), tridymite (Tri.), feldspars (Feld.), calcite (Cal.) and Fe-oxides. Untreated and ethylene-glycolated bentonite ore (<2 μm clay fraction) (B) and the floc (C), showing the 15 Å peak expanded to 17.2 Å indicate smectite.

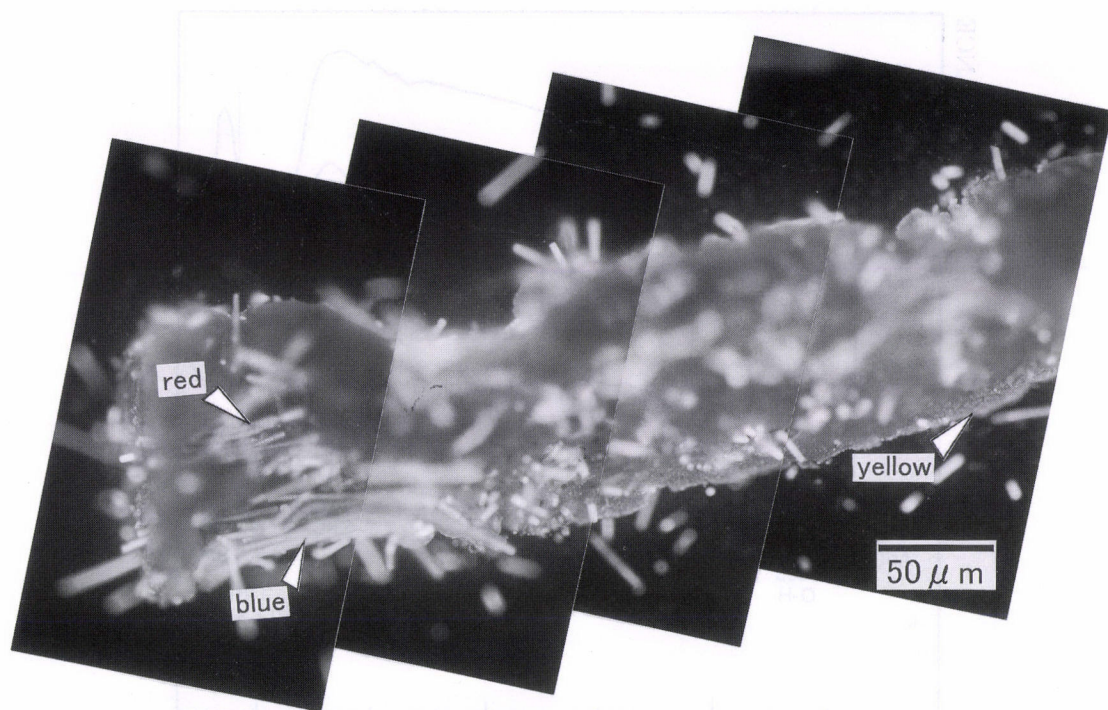


Fig.4 Epifluorescence micrograph of the thin-sectioned floc with DAPI dyeing, showing mixture of bentonite and algae (blue; DNA or red; chlorophyll). Yellow parts indicate the presence of bentonite.

ブロードなピークが顕著である他、 2900 cm^{-1} のC-Hのピーク、有機分子の複雑な結合と思われる弱いピークが $1400\sim 700\text{ cm}^{-1}$ に多数認められた。また、Si-O ($1100\sim 1000\text{ cm}^{-1}$)、C-O ($1075\sim 1000\text{ cm}^{-1}$)およびSi-O-C ($1100\sim 945\text{ cm}^{-1}$)に対応するブロードなピークが認められた他、 1430 、 1100 および 790 cm^{-1} のSi-Cに対応するピークが顕著に認められる (Fig.5C)。この結果は、藻類の有機分子と粘土の無機分子が一部化学結合している可能性を示唆している。

3.4. 走査型電子顕微鏡観察およびエネルギー分散型X線分析

ブロックの断面の反射電子像を観察すると、ブロックの表面は暗く、内部は明るくみえる (Fig.6A)。すなわち、ブロックの表面は軽元素で構成される物質の密度が高く、一方、内部はそれらより原子番号の大きい元素で構成される物質の密度が高いことを示している。光学顕微鏡観察

により、ブロックは主に粘土と藻類で構成されていることから、前者の表面は藻類、後者の内部は粘土物質を示している。表層付近を拡大すると、糸状の藻類が高密度に張り巡らされているほか、粘土の存在する部分にはケイソウも共存する (Fig.6B 矢印)。ブロックの表面の二次電子像では、薄膜で覆われた藻類が観察され、そのEDX分析では、粘土の主な構成元素であるSi、Alのほか、S、K、Ca、Feの元素が認められた (Fig.7A)。なお、このSi:Alのピーク比は2:1である。一方、30分間超音波洗浄した藻類の二次電子像では、薄膜はほとんど取り除かれているようにみえるが、そのEDX分析では、粘土の構成元素であるSi、Alが主に認められ、藻類自体の構成元素であるP、S、Cl、Kがわずかに認められた (Fig.7B)。なお、超音波洗浄した藻類のSi:Alのピーク比は、粘土と同様に2:1であり、超音波洗浄後も薄膜の成分が表面に付着していることを示している。なお、原鉱のベントナイ

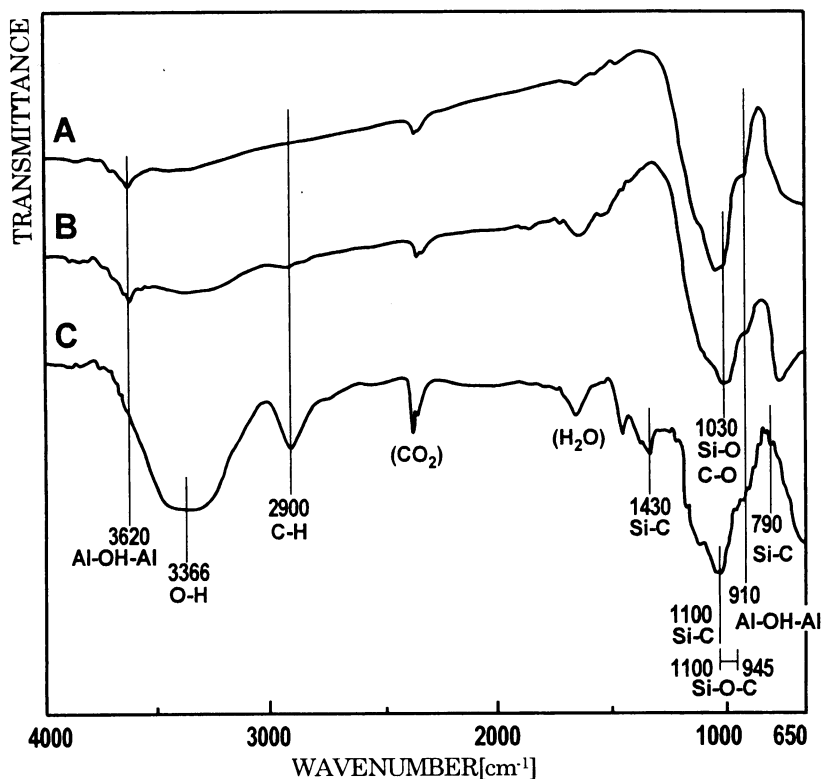


Fig.5 FT-IR microscopic spectra of bentonite (A), floc (B) and sonicated algae (C) showing Al-OH-Al (3620, 910 cm^{-1}) and Si-O (1030 cm^{-1}) absorption bands in both bentonite (A) and floc (B) samples. The O-H (3366 cm^{-1}), C-H (2900 cm^{-1}), and Si-O or C-O (1030 cm^{-1}) absorption bands are present in the spectrum of the sonicated algae (C). The absorption bands at 1430, 1100, and 790 cm^{-1} are correspondent to that of Si-C band. The weak bands between 1100 and 945 cm^{-1} suggest to Si-O-C band (C).

トのEDX分析では、Si: Alのピーク比が3:1であったことから、この薄膜は、ベントナイトからSiが一部溶脱したものと推測される。

3.5. 透過型電子顕微鏡観察

フロックをほぐし、30分間超音波洗浄した試料の透過型電子顕微鏡観察では、直径約5 μm の糸状の藻類が多数認められ、その細胞壁には微粒子がしっかりと付着して表面を覆っているのが観察された。これらの微粒子の電子線回折像は、スメクタイトに対応する4.5, 2.6, 1.7および1.5Åの明瞭な回折スポットやリングを示した。また、藻類の周りには共存する桿菌も認められた。

また、自然培養実験のマイクログリッドの観察では、嫌氣的、好氣的いずれの条件においても長

さ約1.5~3.5 μm の桿菌の増殖が認められ、それらも薄膜で覆われている (Fig.8 矢印)。この薄膜の電子線回折像も同様に、スメクタイトに対応する4.5, 2.6, 1.7および1.5Åの明瞭な回折スポットを示した。自然培養実験の光学顕微鏡観察で黄色の擬蛍光のみが認められたが、それは、微生物が粘土の薄膜をまとっているためであることがTEM観察により明らかになった。

4. 考察

以上の結果からベントナイトをまとう微生物の実態が明らかとなった。下記に微生物と粘土鉱物の関係や結合状態について考察する。

藻類、バクテリア、ケイソウよりなるフロック

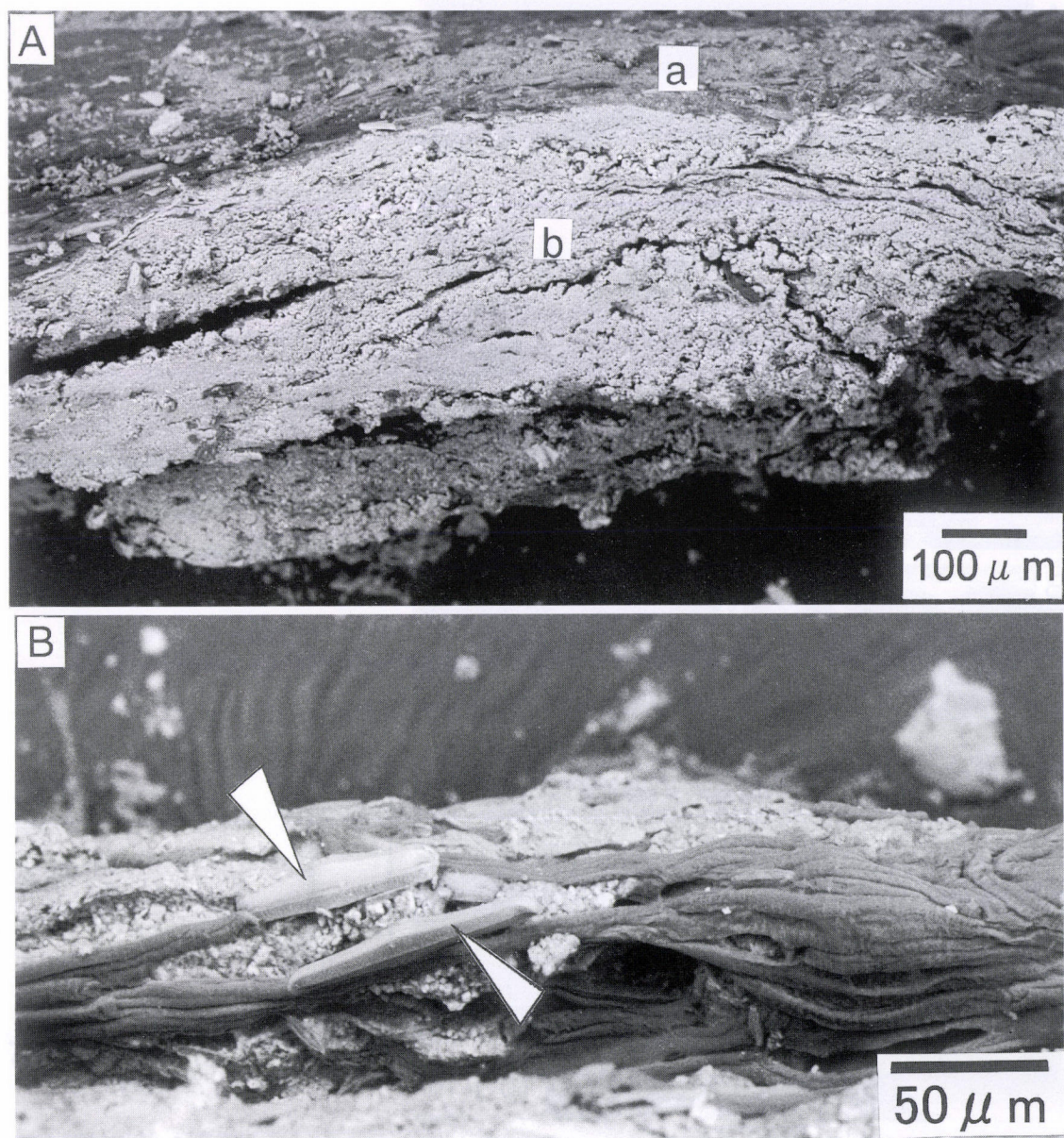


Fig.6 Back-scattered electron images of the cross-sectioned floc, showing double layers. (A) Living algae (a) place on the surface of bentonite (b). (B) Close up photograph of floc shows diatoms (arrows) with algae.

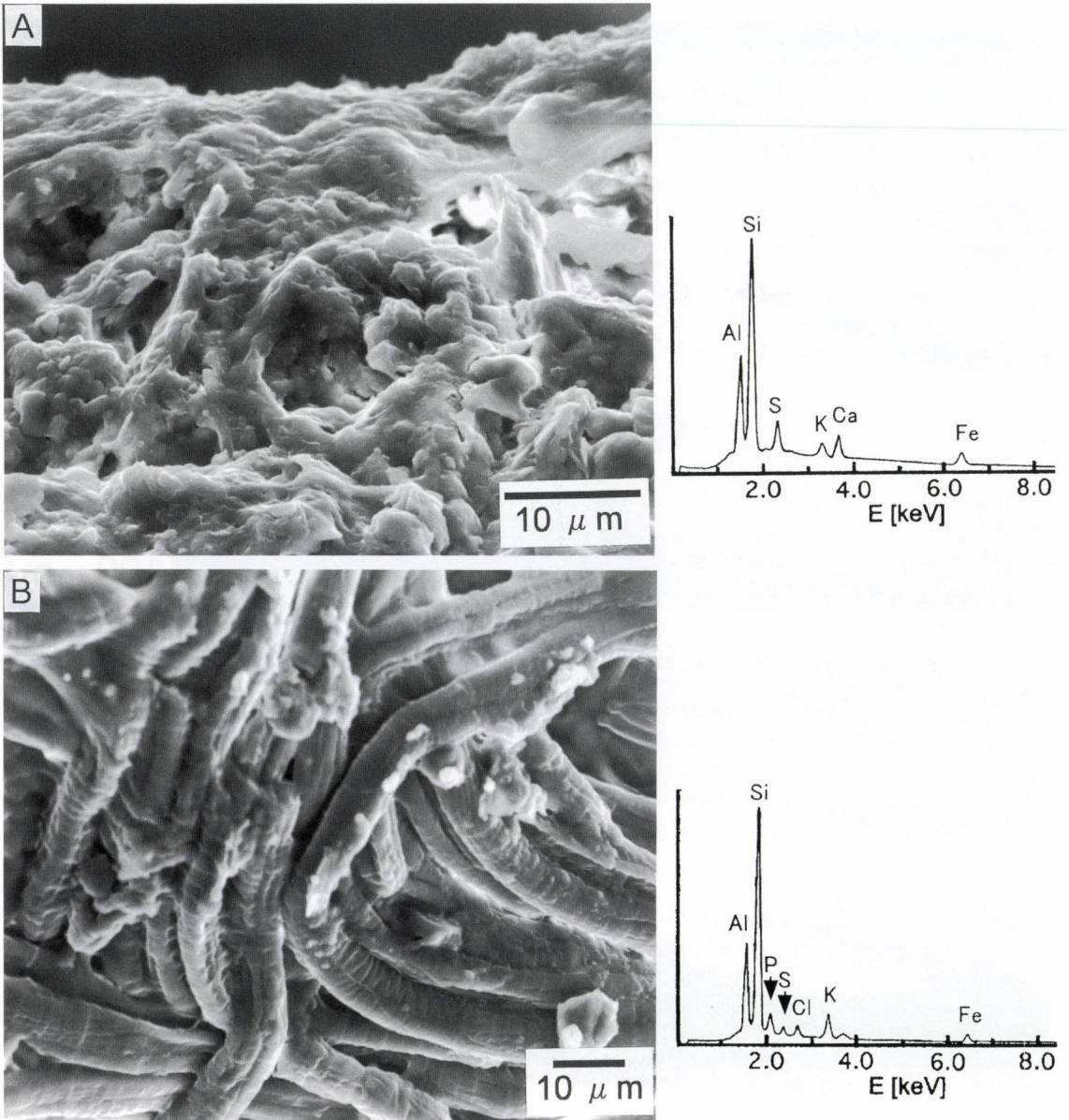


Fig.7 SEM micrographs and its EDX spectra of the floc (A) and algae after ultrasonic treatment for 30 min. (B). EDX spectra of both floc and algae show the main components of Si and Al. Algae are still covered with bentonite on the surface of the cell wall after ultrasonic treatment. Elements of P, S and Cl are contained in algae.

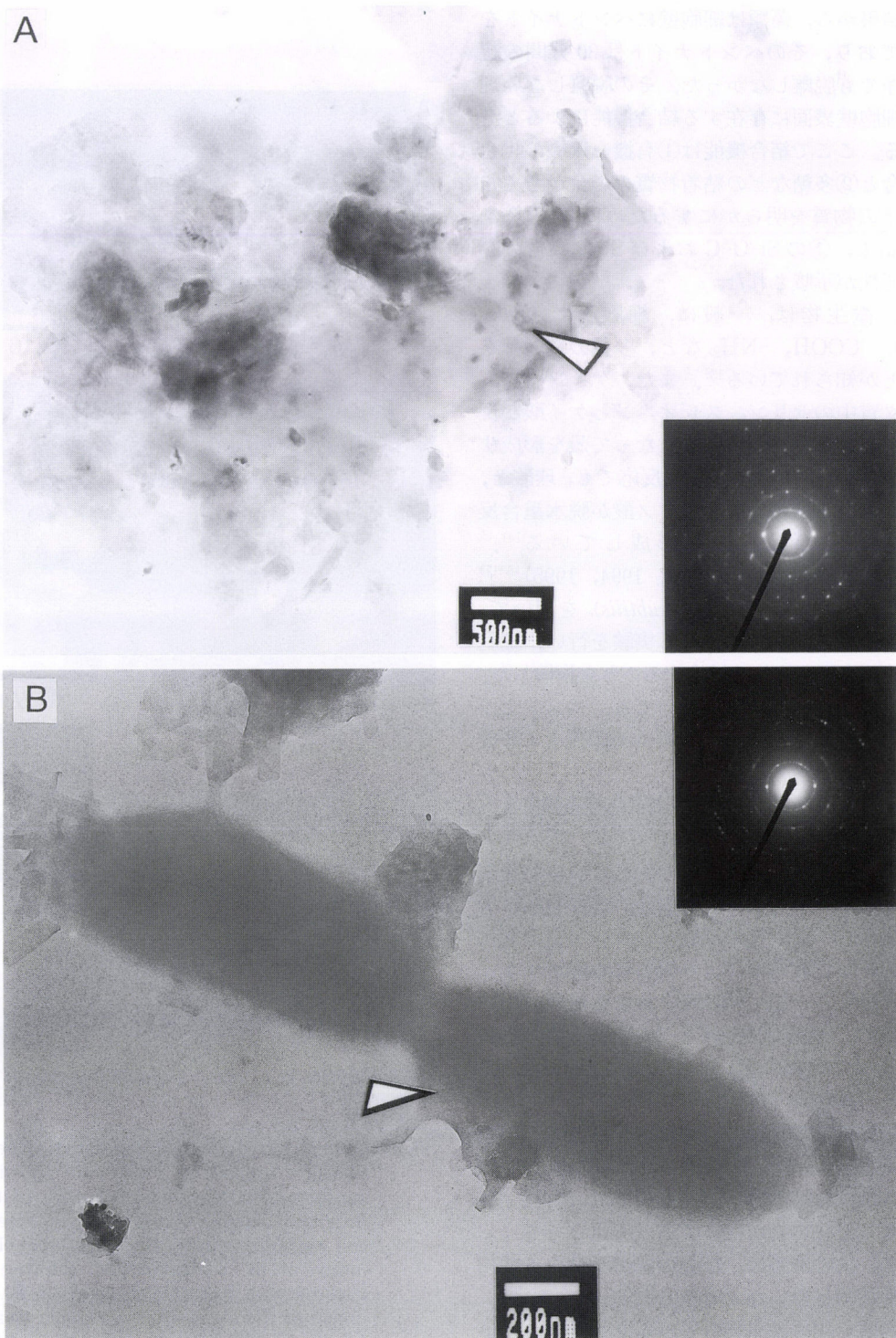


Fig.8 TEM images of cultivated bacteria in bentonite suspension under aerobic (A) and anaerobic condition (B). The both electron diffraction patterns of the bacterial cell wall (arrows) indicate the presence of smectite.

の観察結果から、藻類は細胞壁にベントナイトをまといっており、そのベントナイトは30分間の超音波洗浄でも脱離しなかった。その脱離しない理由は、細胞壁表面に存在する結合機能によると考えられる。ここで結合機能は①有機-無機の化合物の場合と②多糖などの粘着物質の場合が考えられる。その物質を明らかにするためにFT-IRを行った結果、①のSi-O-CおよびSi-C結合の存在の可能性が示唆された。

なお、微生物は、一般に、細胞壁に-OH、 $>C=O$ 、 $-COOH$ 、 $-NH_2$ など、多種の官能基をもつことが知られている¹³⁾。また、ケイソウは、タンパク質中のセリン、スレオニンとケイ酸が反応し、そのタンパク質が鋳型となって殻を形成することが指摘されており、この反応でも、珪酸と、タンパク質の単量体であるアミノ酸が脱水重合反応により、Si-O-C結合を形成している¹⁴⁾。Urrutia and Beveridge (1993, 1994, 1995)¹⁵⁻¹⁷⁾は、培養した枯草菌(*Bacillus subtilis*)を用いて、金属イオンや珪酸を固定させる実験を行い、細胞壁と珪酸が金属を介して結合することを指摘した。以上のことから、本研究においても、ベントナイトが藻類の細胞壁に接触する際に架橋構造を形成していることが考えられる。

細胞壁のみならず、微生物の出す粘着物質によって粘土鉱物を固定する場合もある⁸⁾が、本研究においては、墨汁法により藻類の細胞壁には粘着物質は認められなかった(Fig.9A)。粘着物質による固定の場合、微生物の周囲に形成した粘土鉱物は3分間の超音波処理により容易に脱離させることができる⁸⁾。一方、本研究における藻類の反射電子像では、藻類の表面が、30分間超音波処理後も薄膜状の物質に覆われている(Fig.9B)。さらに、この藻類のTEM観察によってもスメクタイトの微粒子がその細胞壁を覆っている(Fig.9C矢印)。この結果からも、細胞壁とベントナイトの間には架橋構造が形成され、有機と無機の複合した化合物が存在すると考えられる。したがって、この藻類は、細胞の保護を粘土で代用しているのではないかと考えられる。

粘着物質を出す微生物にとってもベントナイトは外界の環境からの保護の役割を果たすことが考えられる。微生物の出す粘着物質は主に親水性で、

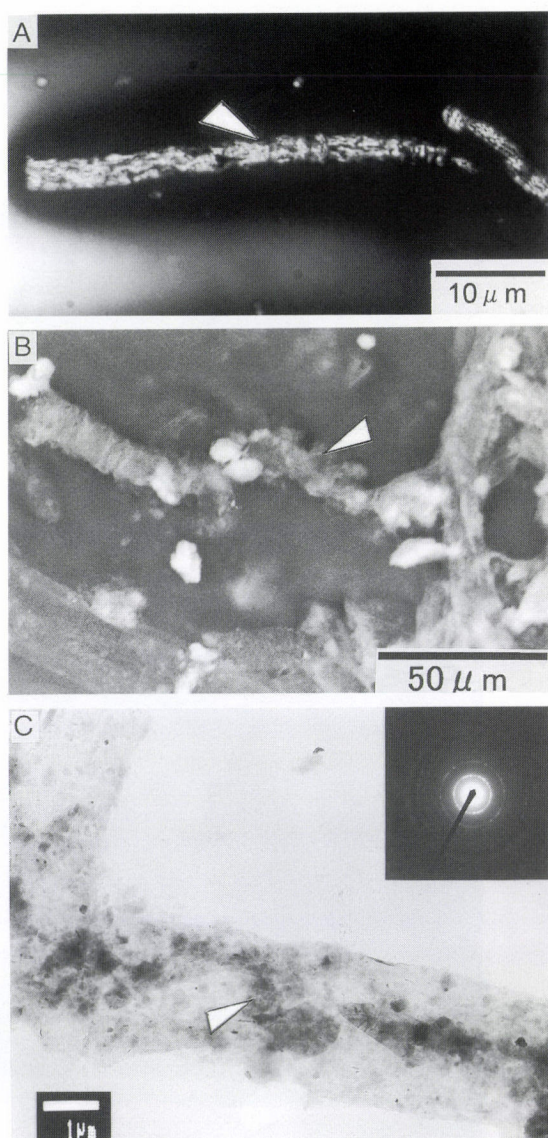


Fig.9 Optical micrograph of separated algae from the floc stained by indian ink showing no capsules and extracellular polymeric materials, because indian ink was directly contacted with cell wall (arrow in A). Back-scattered electron image of the sonicated floc, showing algae covered with flaky clays (arrow in B). TEM image of the algae after ultrasonic treatment for 30 min. (C). Electron diffraction pattern of the algal cell is correspondent to smectite (inset in C).

強い水流によっては流れてしまう。そのうえ、熱、酸、アルカリによって変成を受けやすい。ところが、微生物の細胞壁の表面に粘着物質が粘土と複合体を形成すれば、細胞壁を強固にし、細胞自体を外界から守り、かつ、有害物質を細胞壁にトラップし、内部への侵入を防ぐなど、さまざまな役割があると考えられる。鈴木・前野 (1994)¹⁸⁾は、スメクタイトと有機高分子を混合させた懸濁液は、スメクタイトのみの懸濁液より粘度を増すことを指摘している。粘着物質と粘土の混合物は、粘着物質のみよりもレオペクシー性が向上し、微生物にとって細胞の保護膜として有用であると考えられる。

これらのベントナイトをまとう微生物の機能は、外部の有害物質の遮蔽効果とともに、地下生物圏における環境を考える上で重要である。また、廃棄物の地層処分の緩衝材にベントナイトを利用する場合、ベントナイトのみならず、地層中の微生物との相互作用を考慮すべきであることを示唆している。ベントナイトをまとう微生物は、ベントナイト内において、廃棄物から拡散したイオンをトラップするのか、あるいは拡散速度を増すのか、また、イオンの種類によってどのような違いがあるのかを今後検討する必要がある。

5. まとめ

笠岡ベントナイト鉱床の原鉱とその中に生息するバクテリア、および沈殿池に浮かんでいるフロックとなって繁殖する藻類の観察・分析を行った。本研究における結果および考察を下記にまとめる。①藻類の細胞壁の周囲をベントナイトが覆っている。②そのベントナイトは、30 分間の超音波処理でも、剥ぎ取ることができなかった。③ベントナイトー藻類間に Si-O-C, Si-C 結合による架橋構造の形成が示唆された。このことは、ベントナイトと細胞壁の間の有機ー無機複合化合物の存在を意味している。④本研究で認められた藻類には夾膜(粘着物質)はなく、ベントナイトの薄膜がその役割を担っている。⑤細胞壁のベントナイトは、外界の環境からの保護の役割を果たしていると考えられる。⑥ベントナイトをまとう微生物の機能は、物質の遮蔽効果などが考えられる。⑦地

下生物圏における環境を考える場合、また、廃棄物の地層処分の緩衝材にベントナイトを利用する場合など、ベントナイトのみではなく、微生物との相互作用を考慮する必要があることを本研究結果は示している。

謝 辞

粘土学会の笠岡ベントナイト鉱床見学を企画・案内して下さった倉敷芸術科学大学の小林祥一博士、岡山大学の松田敏彦博士、岡山理科大学の坂本尚史博士、山口一裕博士に感謝申し上げる。また、金沢大学理学部地球学教室の奥野正幸博士には、フーリエ変換顕微赤外分光装置(日本分光 FT/IR-610V および MICRO-20)を使用させていただいた。ここに感謝申し上げる。なお、文部省科学研究費補助金基盤 B(代表者、田崎和江)を本研究の一部に使用した。

引用文献

- 1) 古賀 慎 (1997) 粘土とともに(粘土鉱物と材料開発), 三共出版, 161pp.
- 2) 小林紘治・伊藤雅和 (1992) 粘土科学, 31, 222-230.
- 3) Tomita, K., Yamane, H. and Kawano, M. (1993) *Clays Clay Miner.* 41, 655-661.
- 4) Ferris, F.G., Fyfe, W.S. and Beveridge, T.J. (1987) *Chem. Geol.*, 63, 225-232.
- 5) Tazaki, K. (1997) *Clays Clay Miner.*, 45, 203-212.
- 6) Fortin, D., Ferris, F.G. and Scott, S.D. (1998) *Am. Miner.*, 83, 1399-1408.
- 7) Köhler, B., Singer, A. and Stoffers, P. (1994) *Clays Clay Miner.*, 42, 689-611.
- 8) Ueshima, M. (1999) Doctoral thesis. 117pp.
- 9) 上島雅人・田崎和江 (1997) 鉱物雑, 26, 87-92.
- 10) Cairns-Smith, A.G. (1986) *Genetic takeover and the mineral origin of life*. Cambridge University Press, London, 477pp.
- 11) 長沼 毅・木村浩之・高杉秀美・植田浩義・小山田 潔・竹ヶ原竜大 (1999) 月刊海洋, 号

- 外 19, 133-138.
- 12) 小林祥一・松田敏彦・坂本尚史 (1999) 第43回粘土科学討論会見学会のしおり, 7pp.
- 13) Stone, A.T. (1997) Reviews in mineralogy, Vol. 35, Geomicrobiology: interaction between microbes and minerals, pp.309-344, The Mineralogical Society of America, Washington, DC.
- 14) Hackey, R.E., Mopper, K. Kilham, P. and Degens, E.T. (1973) *Marine Biol.* 19, 323-331.
- 15) Urrutia, M.M. and Beveridge, T.J. (1993) *J. of Bacteriol.*, 175, 1936-1945.
- 16) Urrutia, M.M. and Beveridge, T.J. (1994) *Chem. Geol.*, 116, 261-280.
- 17) Urrutia, M.M. and Beveridge, T.J. (1995) *Geoderma*, 65, 149-165.
- 18) 鈴木啓三・前野昌弘 (1994) *Fragrance J.* 6, 29-37.