

論文

鹿児島県入来カオリン鉱床における微生物被膜の形成

伊牟田 町**・田崎和江**

**金沢大学大学院自然科学研究科

〒920-1192 石川県金沢市角間町

*鹿児島大学理学部

〒890-0065 鹿児島市郡元1-21-35

Formation of Biofilms in Iriki Kaolin Deposit, Kagoshima Prefecture, Japan

Miharu IMUTA** and Kazue TAZAKI**

**Graduate School of Natural Science and Technology, Kanazawa University

Kakuma-machi, Kanazawa, Ishikawa 920-1192, JAPAN

*Faculty of Science, Kagoshima University

1-21-35 Korimoto, Kagoshima 890-0065, JAPAN

Abstract

Red brownish microbial mats grow on the surface of drainage pond at Iriki Kaolin deposit, Kagoshima Prefecture, Japan, are predominantly iron oxidizing bacteria. The Fe-bacteria quickly occur on the surface of acidic water pH 3.4 within few days.

The biofilms are composed of amorphous iron hydroxides and ferrihydrite are found both in natural system and cultured solution after 90 days under pH 6→2.5 condition.

Optical and SEM-EDX microscopy showed the formation processes of Fe-rich biofilms with green unicellular bacteria occurred in the system of deionized water and kaolinite blocks. In the system, Fe and S-rich biofilms around kaolinite blocks can be seen, suggesting kaolin minerals encourage to form the biofilms as accelerator in the acidic drainage pond. The biofilms use ferrous ions as their energy source through the oxidation into ferric ions.

Key words: Kaolin deposit, Biofilms, Kaolinite, Ferrihydrite, Bacteria

1. はじめに

水面に成長してゆく皮膜の形成要因には pH, Eh, 温度, 流速, 成分などの物理化学的条件^{1,2)}に加えて微生物の代謝が重要な役割を果たしている^{3,9)}。特に鉄細菌による生体鉱物化作用については多くの報告がある¹⁰⁻¹⁸⁾。また、珪酸鉱物と微生物の相互作用や先カンブリア紀のチャートの中に保存されていた珪化した微生物の報告がある¹⁹⁻²⁰⁾。さらに、バクテリアの光合成は酸素を出さないため、先カンブリア紀におけるストロマトライト藻類の光合成は大気の進化をもたらしたと報告されている²¹⁾。現在においても、温泉地帯などの光合成微生物と珪素との関わりや、炭素や光合成を営まない生態系においても、鉄や硫黄その他の元素の生体濃縮など、化学変化の影響を水質・地質環境に与えている報告がある^{22,23)}。

フィロケイ酸塩では、四面体シートの頂点酸素を八面

体シートが共有することによって、四面体シートと八面体シートが結合している。カオリナイトを含む1:1層の八面体シートの表面はすべてOH⁻であり、陽イオンには2つのO²⁻（四面体シートの頂点酸素）と4つのOHが配置している²⁴⁾。このことが水蒸気の保持や他の元素との酸素結合を特に自由にし、鉄その他の元素や水分などの化学変化を利用している無機栄養微生物の生存エネルギー確保を可能にしている²⁵⁾。

本研究ではカオリン鉱床から侵出する酸性の地下水が沈殿池に流入し、その水面を覆って形成している微生物被膜の特性について調べた。カオリン鉱物と微生物膜の関わりを明らかにするために電子顕微鏡観察と、地下水中に生息している鉄細菌の自然培養実験を行った。また、カオリン鉱床内の粘土塊（カオリナイト）を、脱イオン水に入れバイオフィルムの形成過程を観察した。pHや電気伝導度の変化および微生物被膜の観察を通し

て、微生物とカオリナイトとの相互作用による被膜の形成過程を明らかにした。

2. 実験方法と試料

2-1. 研究試料

鹿児島県薩摩川内市入来町の蘭牟田火山西麓入来カオリン採掘跡で、2006年10月17日に採取したカオリン鉱物、そこから流出する地下水、その沈殿池表面に形成された皮膜を研究に用いた (Fig. 1 A, B).

入来カオリンの産状については、K-Ar年代測定の結果、蘭牟田火山を形成する第四紀更新世(35-45万年前)の両輝石安山岩類と、その下位の鮮新世の酸性凝灰岩が熱水変質作用を受けることによって生成されたと報告されている²⁶⁾。また、主にカオリナイトとデイッカイトからなるカオリン帯が安山岩および凝灰岩中に不規則に賦存し、母岩との間にはスメクタイト帯が形成されている。本鉱床を形成した熱水変質作用によって生成されたその他の鉱物として、石英、クリストバライト、オパールCT、黄鉄鉱、アナターゼの産出その他詳細な性質と生成過程について報告されている²⁷⁻²⁸⁾。

カオリン鉱床から流れ出る地下水は、幅50cm、長さ30mにおよび地表を赤褐色に染めながら沈殿池に注がれている。沈殿池全体は光沢のある赤褐色の被膜で覆われている (Fig. 1 B 矢印)。現地において沈殿池の水のpH、電気伝導度 (EC)、酸化還元電位 (ORP)、溶存酸素 (DO) を測定し (Table 1)、沈殿池被膜の形成過程を明らかにするために、沈殿池流入口の水を培養に用いた。また、カオリン鉱物内の微生物の有無を知るために、カオリン鉱床の露頭から白色のカオリン鉱物の中に緑色の細い脈が存在する部分を採取し、脱イオン水を用いて、自然培養実験を90日間行った (Fig. 6)。

2-2. 実験観察分析方法

粘土および沈殿池の被膜はDAPI (4,6-diamido-2-Phenylindole) 染色をほどこし、落射蛍光顕微鏡 (オリンパス AX80) を用いて紫外線照射下で観察した。また、粘土および沈殿池被膜は、エネルギー分散型 X 線分析装置を備えた走査型電子顕微鏡 (PHILLIPS-EDX-Low vacuum-XL 30CP, 加速電圧15kV) (SEM-EDX) およびウエット走査型電子顕微鏡 (フィールドエミッション日立 S-4100H, 1.6nm, 15kV) (FE-SEM) を用いて化学組成の分析と微細な形態観察を行った。さらに、X 線粉末回折装置 (Rigaku-RINT 1200) (CuK α 線, 加速電圧40kV, 電流30mA) (XRD) を用いて鉱物組成の同定を行った。

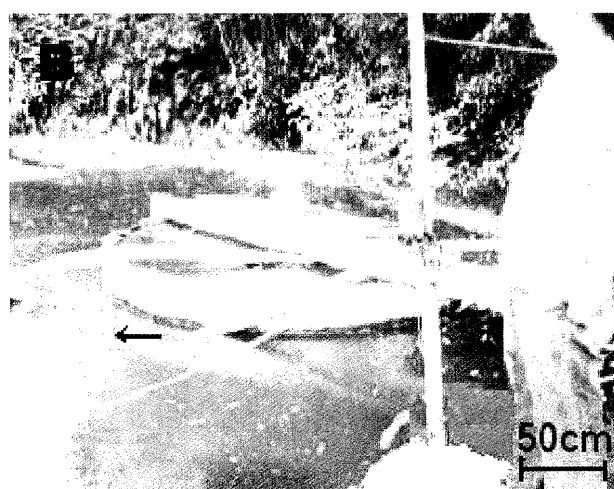
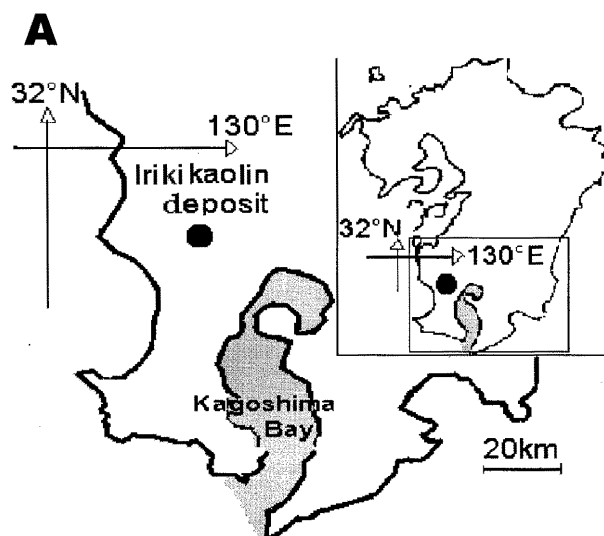


Fig. 1 Location map of Iriki Kaolin deposit, Kagoshima Prefecture, Japan (A), and the sampling point in the drainage pond which occurred red brownish biofilms (B; an arrow). The samples were collected from B on Oct. 17th 2006.

2-3. SEM-EDX

EDXによる化学組成の分析用試料は、Cuの試料台にのせて、Auでコーティングし、接着剤には銀ペーストを用いた。また、水蒸気型低真空環境型走査型顕微鏡 (E-SEM) による化学組成の分析を行った。

一方、カオリン鉱床から侵出する地下水が1-2日後には赤褐色に変化することから、粘土塊を脱イオン水中に入れ電気伝導度およびpHの変化を90日間測定し、微生物の増殖状況を光学顕微鏡および蛍光顕微鏡を用いて観察し、容器の内壁に付着したバイオフィルムをSEM-EDXを用いて形態観察および化学組成の分析を行った。

Table 1. Characteristics of water in mining drainage pond where occurred red brownish biofilms.

Sample Location	pH	ORP (mV)	EC (mS/cm)	DO (mg/l)	DO (%)	WT °C
Inflow water of an entrance	3.4	415	1.675	2.5	28.2	21.6
Center of drainage pond	3.4	435	1.684	4.5	52.0	21.4

2-4. 自然培養実験

沈殿池表面に形成するバイオマットの形成過程を明らかにするために流入口の地下水を採取し、ポリエチレン製容器に満たした水中にスライドガラス10枚を間隔を開けて設置し、1回の観察に1枚ずつスライドガラスを取り出し光学顕微鏡観察に用いた。容器は室温(25~35℃)で軽くフタをして静置し、採取日から90日間写真撮影と光学および蛍光顕微鏡、Wet-SEMを用いて形態観察を行った。

また、カオリン鉱床露頭から採取した粘土50gを、脱イオン水300ccの中に入れて室温に静置した。pHおよび電気伝導度の変化を90日間測定し、バイオフィルムを

SEMによる形態観察およびEDXによる化学組成の分析を行った。粘土中の緑色物質を光学・蛍光顕微鏡を用いて微生物の観察を行うとともに、Wet-SEMまたはDry-SEM, EDXを用いて形態観察および化学組成の分析を行った。

3. 分析および観察結果

3-1. 水質測定

カオリン鉱床から浸出する地下水および沈殿池中心部の水質は、2006年10月17日現地において測定した(Table 1)。pHは流入口、沈殿池中心部ともに3.4と強酸性を示

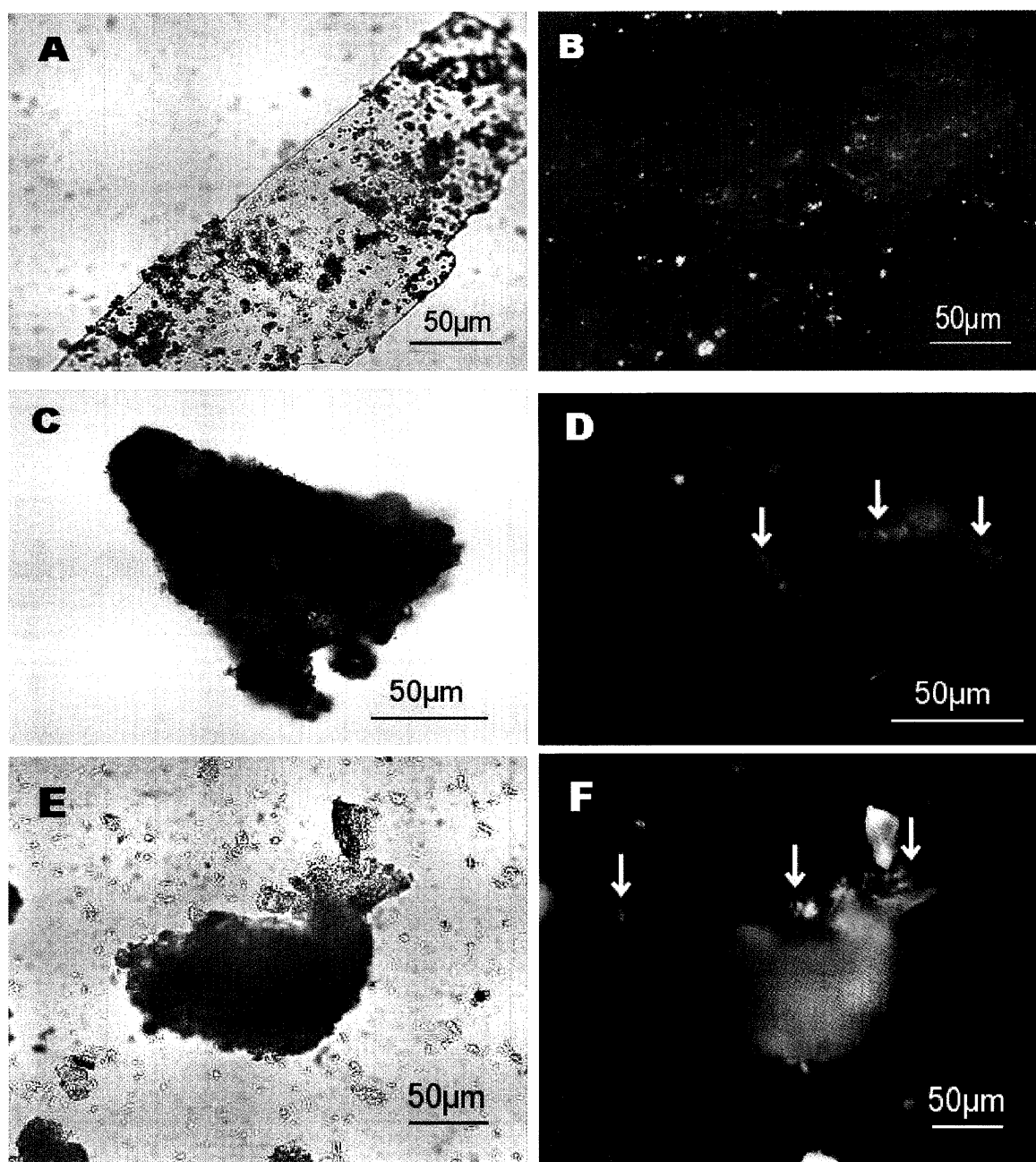


Fig. 2 Optical micrographs of biofilms collected from drainage pond (A~D) and clays in kaolin deposit (E, F). Fluorescence micrographs of DAPI stained biofilms show blue bacteria (B, D, F arrows) at green clayey films (D, F).

し、ORPは415, 435mVと酸化的であり、ECは1.675, 1.684mS/cmと高い値を示している。DOは2.5, 4.5mg/l (28.2, 52.0%)、水温は21.6, 21.4°Cであった。地下水流入口のDOは28.2%と還元的であるのに対して、沈殿池中心部は52.0%と酸化的である。ORPとECは流入口と池中心部では有意の差は認められなかった。

3-2. 沈殿池の被膜およびカオリン鉱床の粘土

沈殿池の被膜の表面には小顆粒状物質 (1-3 μ m) が光学顕微鏡で観察され (Fig. 2 A, C), DAPI染色では青色の蛍光発色を示した (Fig. 2 B, D 矢印)。SEM観察およびEDX分析では、栗の毬状の突起を持った粒子 (直径0.3-2 μ m) が互いに連結し、それらを覆う薄膜が認められた (Fig. 3 A, Fig. 4 A-a)。この部分の化学組成は、SとFeが多量に認められ、Si, Alは微量である (Fig. 3 A)。X線粉末回折分析では低結晶性のフェリハイドライト (4.98, 3.38, 2.56 \AA) が認められる (Fig. 3 a)。

この栗の毬状の膜は水中方向へと成長して (写真の表裏は逆になるが Fig. 4 A-a)、池の表面方向の粘土膜 (写真の表裏は逆になるが Fig. 4 A-b) は平滑である。池の表面方向の膜はSEM観察では六角板状のなごりを止めており、EDXではSi, Al (2:1) が主体である (Fig. 4 A-b)。すなわち、池の表面に形成されたカオリナイト主体の薄膜を基盤として、SとFeを含む栗の毬状の部分が水中方向へと拡大していく。

一方、カオリン鉱床の露頭から採取した粘土は、白色粘土の中に緑色の脈が混在している部分があり、この緑色の粘土の部分はEDXにおいてFe, Sがみとめられた。また、この部分にDAPI蛍光染色において青色を呈する顆粒状物質 (3 μ m前後) があり、かつ、青緑色の蛍光発色を示す塊状の粘土 (直径50-100 μ m) も観察された (Fig. 2 E, F, なおEは同視野の光顕)。この白い粘土の部分のSEM観察によれば、六角板状の粒子が層状に重なっており、EDXではSi, Al (2:1) のみの化学組成を示した (Fig. 3 B, inset)。この部分のX線粉末

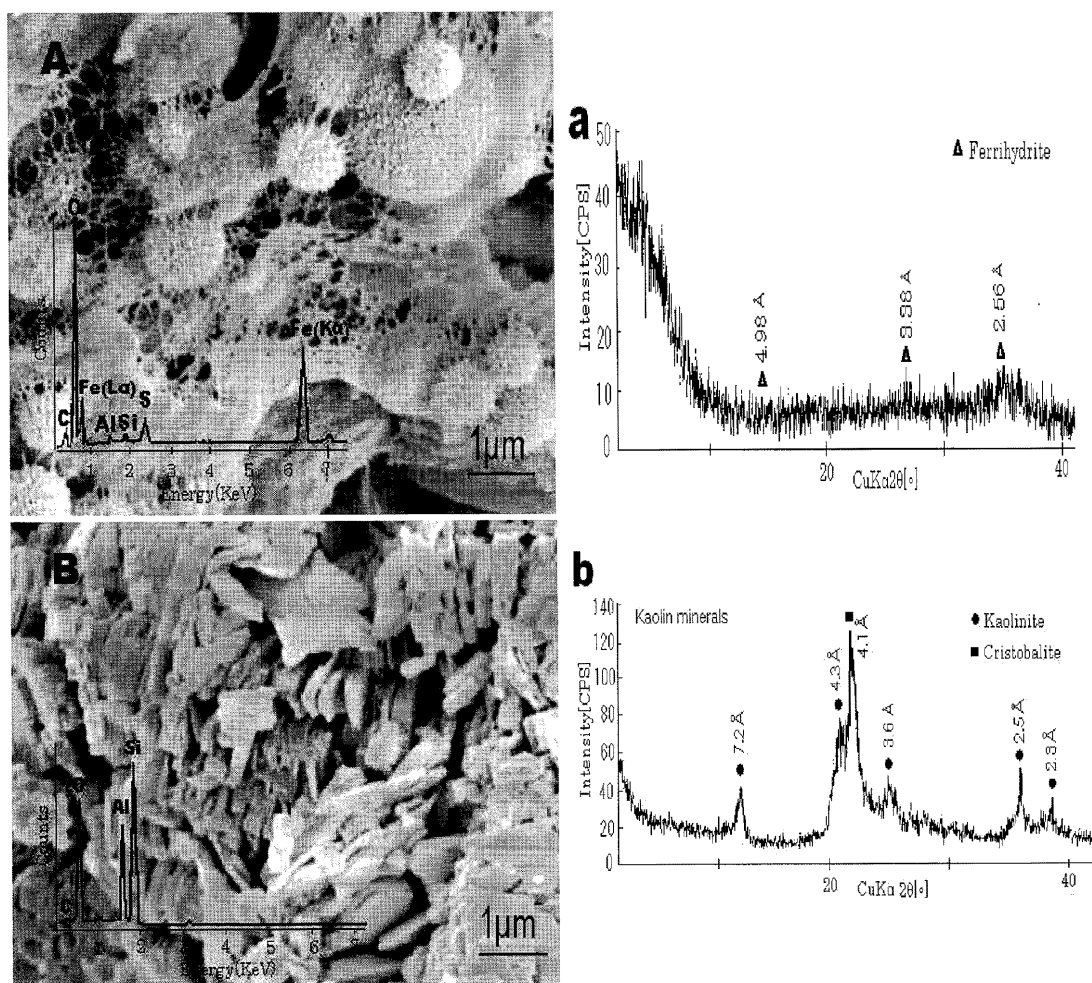


Fig. 3 Scanning electron micrographs (SEM) equipped with the energy dispersive X-ray analyses (EDX) (A, inset), and X-ray powder diffraction analysis (XRD) (a) of biofilms collected from drainage pond (A, a), and clays in kaolin deposit (B, b). The biofilms of chestnuts shape (0.3-2 μ m in diameter) which wears on membranes, composed of O, S and Fe (A), identify as ferrihydrite with sulfur. The kaolin minerals compose of the hexagonal plates (B). The spectra indicate peaks of O, Al and Si (B, inset), characterized kaolinite and cristobalite (b).

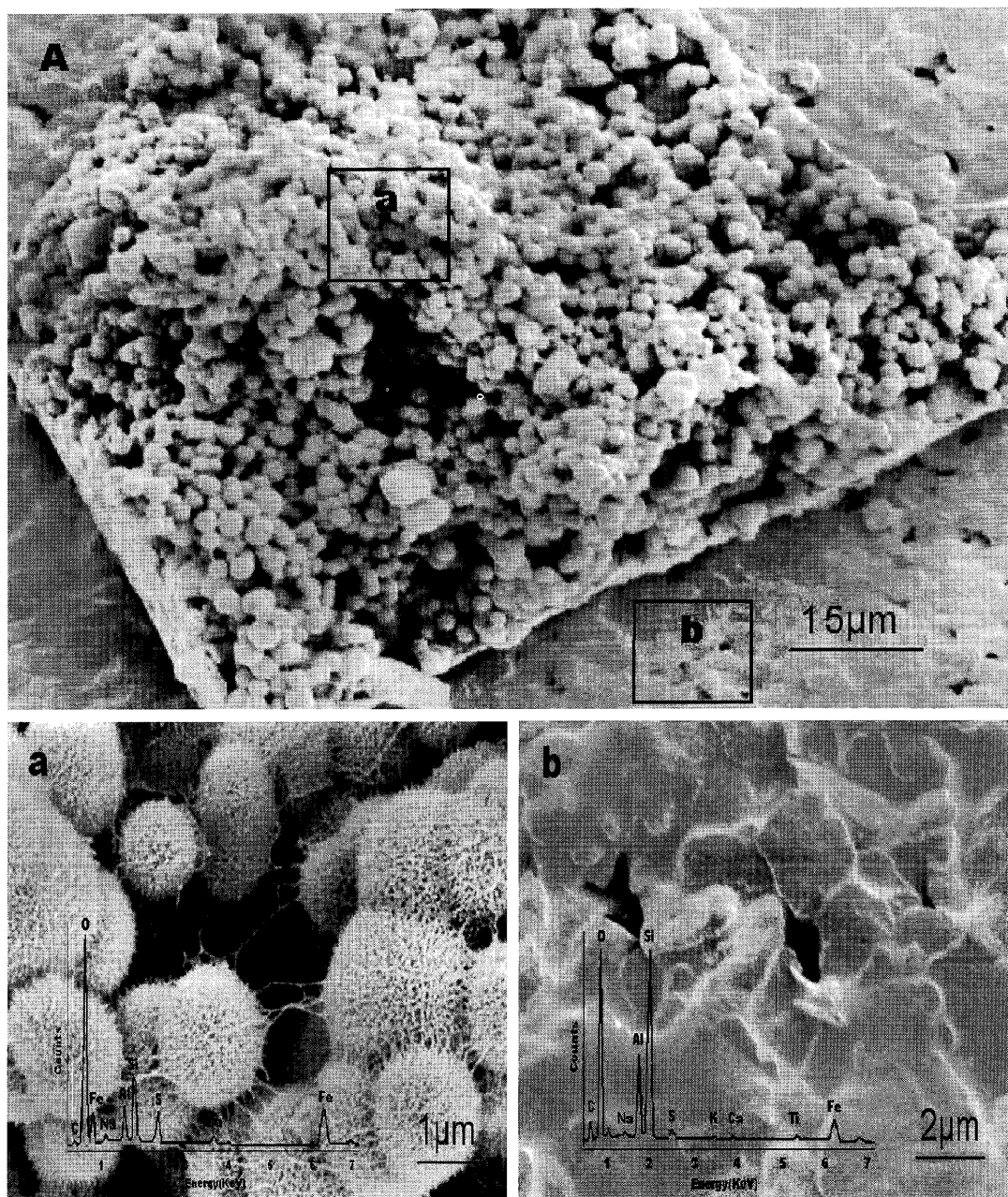


Fig. 4 Scanning electron micrographs equipped with the energy dispersive X-ray analysis (EDX) of biofilms collected from drainage pond (A). The characterized shape of chestnuts ($0.3\text{--}2\ \mu\text{m}$ in diameter) with membranes which were associated with ferrihydrite (a). The biofilms occurred reverse side of clayey films (b).

回折によりカオリナイトおよびクリストバライトと同定した (Fig. 3 b).

3-3. 自然培養実験

3-3-1. 微生物被膜の構造

採取直後の地下水は目視では透明であったが、翌日には赤褐色に変化した (Fig. 5 A). 5日目の容器内部の水を取り出してみると中の水は透明であった (Fig. 5 B 右). この水の一部を別の容器に取り出したものは、60日以上過ぎても容器を再び赤褐色に染めることはなかった. 採取直後の混濁しはじめた水を光学顕微鏡で観

察すると細菌がまばらに観察され、2日目には連鎖状になり (Fig. 5 C), 3日以降はバイオフィームの形成が見られ (Fig. 5 D, E), 60日以後は光学顕微鏡の視野全体にフィルムが張られ、球状の粒子で満たされていた (Fig. 5 F). また、この時の容器内の水は60日後には pH2.5であった. 採取1日目の水中の細菌は、蛍光顕微鏡 DAPI 染色によると青色の蛍光発色を呈し (Fig. 5 H, なお、G は同視野の光顕)、まれに光合成を営むクロロフィルの赤色の発色を呈するものも認められた (Fig. 5 J, なお、I は同視野の光顕). また、ポリエチレン製容器の中で約3ヶ月培養することにより形成した微生物被

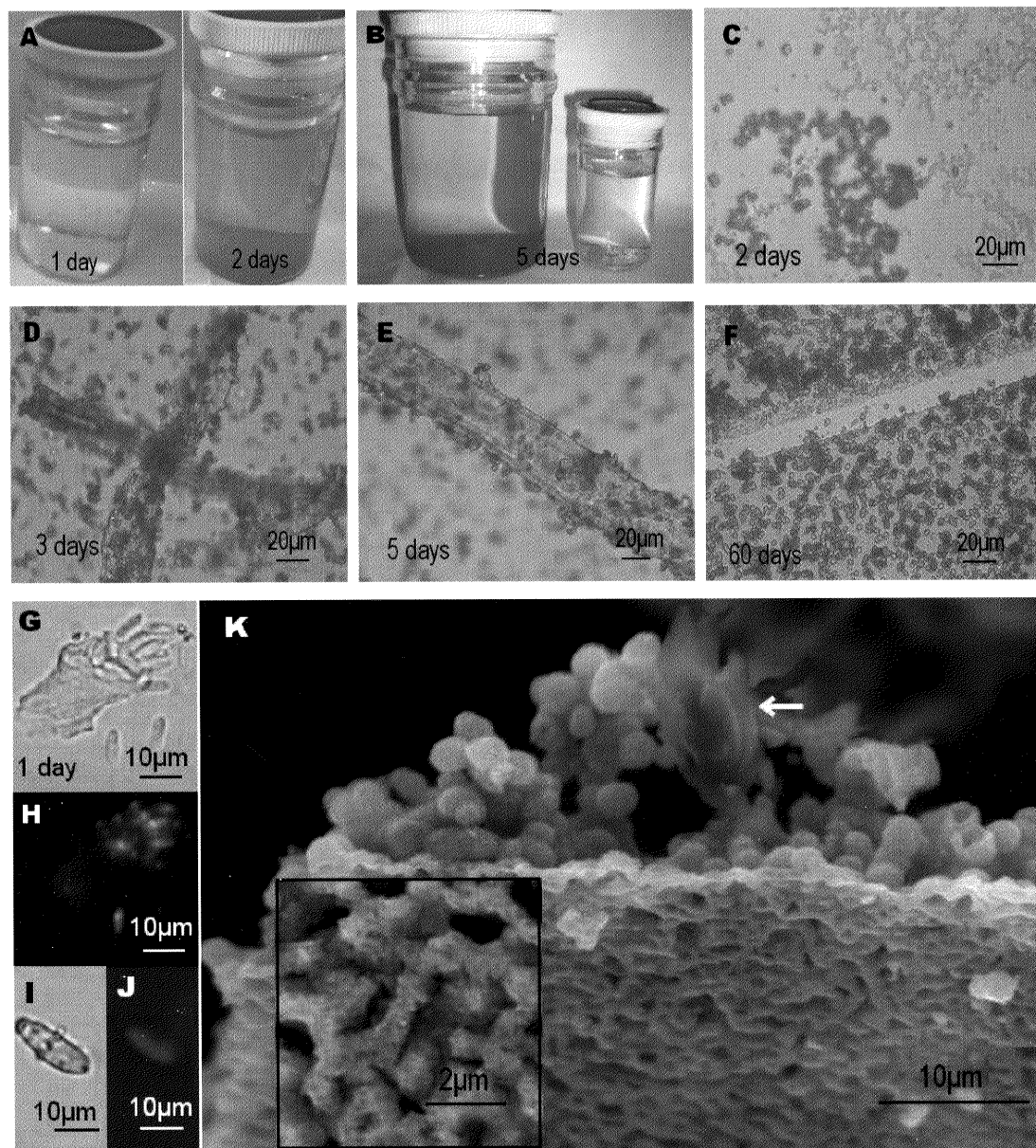


Fig. 5 Biofilms quickly occurred inside wall of the container after 1-5 days in Fe-rich water collected from drainage pond (A, B). Optical micrographs of biofilms show coccus typed bacteria after 2 days (C), and became higher dense after 3, 5, and 60 days (D-F). The higher magnification of the optical micrographs of bacteria after one day (G ~ J), and wet scanning electron micrograph of bacteria (K, an arrow) on the wall of polyethylene container after 90 days, collected from inflow water of an entrance of drainage pond. Enlarged micrograph of the biofilms is inset in K.

膜は水表面に形成させることなく、直接ポリエチレン製容器上に形成されるので、沈殿池の水表面での微生物被膜とは異なっている、微生物被膜の定着面が直接 wet-SEM によって観察された (Fig. 5 K, inset). 直径約 100nm の微粒子で包まれた網状の物質が蛇行し、張り巡らされることにより膜を形成していた。膜の内側には直径 1-3 μm 前後の栗の毬状の粒子が成長し、直径約 3 μm の単細胞微生物が着床しているのが認められた (Fig. 5 K 矢印).

3.3.2. 粘土と微生物の関係

カオリン鉱物中の緑色部分 (Fig. 6 A) には Fe, S, Si, Al が認められ、その元素濃度マッピングを示した (Fig. 6 B a, b, c, d). この自然培養実験90日後には白色粘土の表面に肉眼的にも緑色の部分が認められた。90日後の水の pH は 6.0 から 2.5 に変化していた (Fig. 6 C, D). また、水に接した粘土表面はさらに緑を深め一部褐色の部分を含んでいた (Fig. 6 C, D a, 白色は粘土基盤 b). これらの粘土表面をスポイドで取り出し光学顕微鏡観察を行うと、微生物は鉄分を含んだ破片物質を取り囲むようにコロニーを形成しているのが観察された (Fig. 6

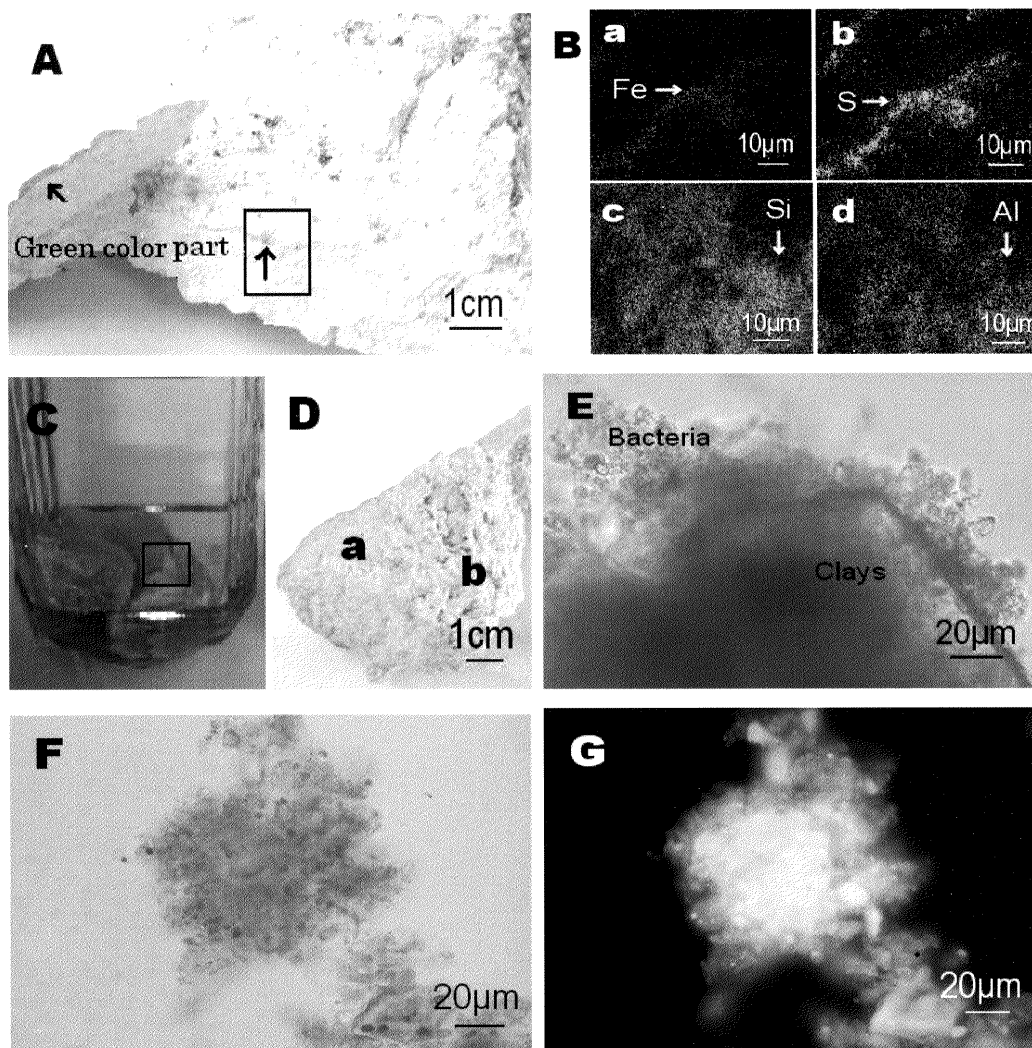


Fig. 6 The elemental content maps of green color part in white kaolinite clay (an arrow) (A). Green color parts were characterized high Fe (B-a) and S (B-b) contents, whereas Si (B-c) and Al (B-d) are rich on the base. Natural cultivation system after 6 months (C, D) showing both green bacteria (D-a) and white parts of kaolinite (D-b). Optical micrographs show green bacteria and oxidized coccus bacteria (E, F). The DAPI stained sample indicated chlorophyll red in color (G).

E). また、これらの微生物は緑色のバクテリアと褐色の球状細菌が混在しているのが認められた (Fig. 6 F). DAPIによる蛍光染色では、このバクテリアは光合成を営むクロロフィルの存在を示す赤色の発色を呈した (Fig. 6 G). 一方、培養前の白色粘土中の緑色の部分にも細菌がSEMにより確認され (Fig. 7 A-a 矢印)、細菌の周囲に直径100nm程度の粒子が3-5個繋がった粒子でくす玉を形成している部分が認められる (Fig. 7 A 矢印)。また、この部分においての六角板状のカオリナイトの形跡はわずかにしか認められず (Fig. 7 B), EDXにおいてもAlが減少し (Fig. 7 A), カオリナイト自体が減少している。一方、それらの粒子を包むように被膜の形成が認められた (Fig. 7 B)。脱イオン水中に粘土塊を入れた自然培養後の粘土塊表面には、カオリナイトと思われる六角板状の粒子の上に小顆粒が認められる (Fig. 7 C 矢印)、単細胞のバクテリアの増殖も見られた

(Fig. 7 D)。

脱イオン水にカオリナイトを入れた実験中の水質変化を Fig. 8 に示した。EC は開始 5 日後には 3.0 mS/cm であり、実験開始後 20 日間で 10.2 mS/cm に上昇し、その後 50 日まで安定した値を示した。さらに、60 日を過ぎたところから再び 14.0 mS/cm に上昇し、70 日後では 13.0 mS/cm になり、その後 90 日まで安定していた。pH は、実験開始後 10 日間で 5.5 から 4.5 まで低下し、その後 30 日まで安定した。30 日～50 日間は pH は 5 近くまで上昇したが、70 日後には 4 に低下しはじめ、90 日後では pH 4 以下になった。

4. 考察

4-1. カオリン粘土と沈殿池被膜の形成

カオリン鉱床から浸出する地下水は、酸性 (pH 3.4) の水であり、Si, Al, S, Fe を主成分とする。これらは S

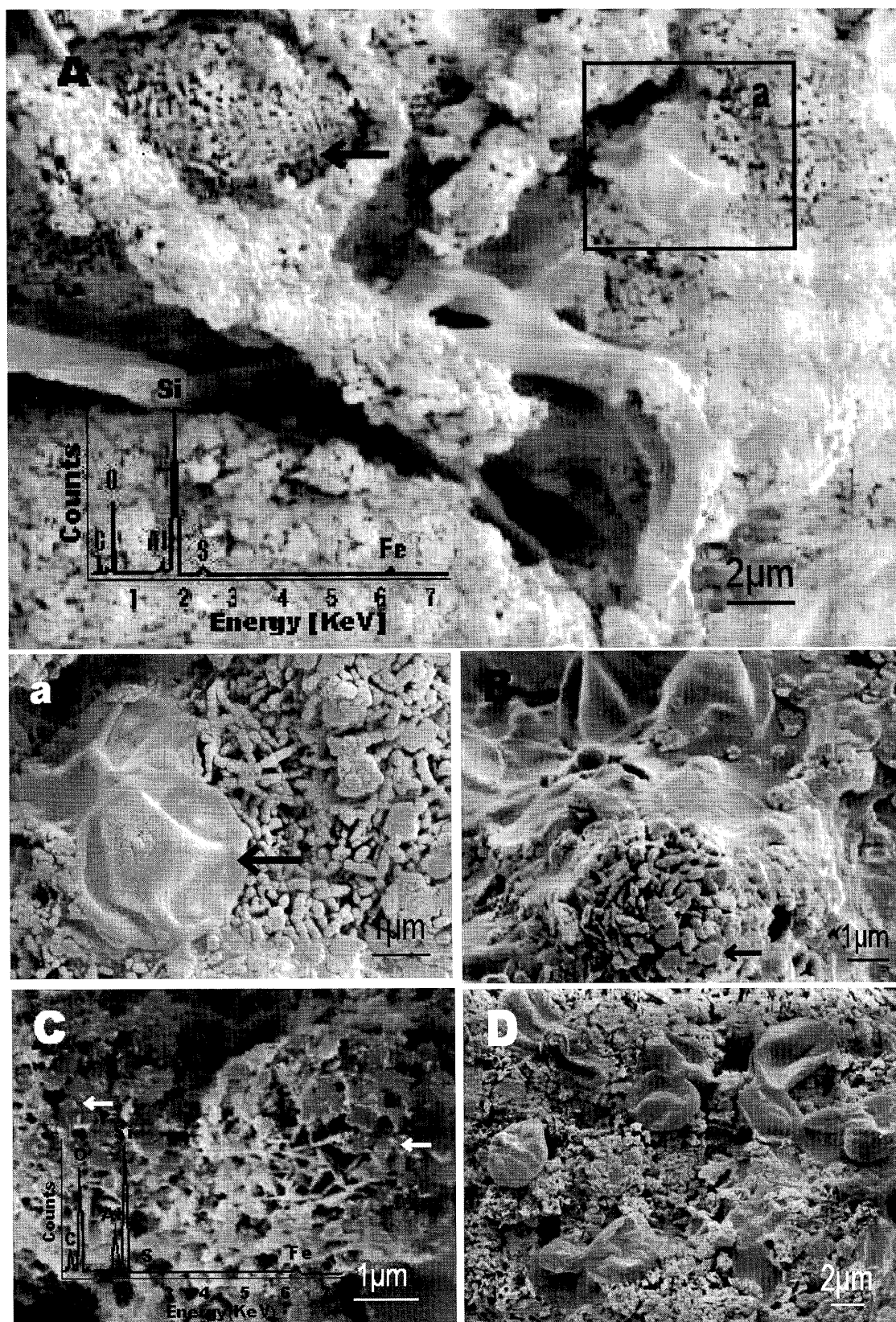


Fig. 7 Scanning electron micrographs equipped with the energy dispersive X-ray analyses (EDX) of starting material (A) and the sample after 90 days in the natural cultivation system (C, D) of clays collected from in kaolin deposit. Formation of sachet with 6 μm in diameter of colony (A, an arrow) and 3 μm in diameter of bacteria (a, an arrow), 0.5 μm in diameter of hexagonal plates (B, an arrow) in clays films (B). The bacteria on the hexagonal plates 0.1 μm in diameter (C, arrows) and unicellular bacteria after 90 days (D).

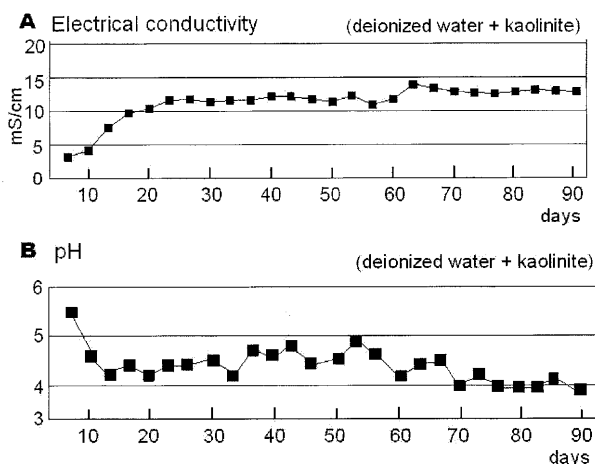


Fig. 8 Electrical conductivity (A) and the pH (B) in the system of deionized water and kaolinite within 90 days.

や Fe の混在した部分が大気により酸化して変色したという無機的酸化のみでなく、脱イオン水中での培養実験において、カオリナイト表面に緑色の単細胞細菌が増殖した結果バイオフィームが形成したことが明らかになった。カオリン鉱物は六角板状の形態を示し、ハロイサイトの7-10 Åの層間にOH基ないし水分子がある。今回の実験に用いた白色の粘土（カオリナイト主体）の中にはS、Feを含む緑色の脈が混在している。このSやFeをエネルギー代謝に用いる微生物が、OH基や水蒸気を介して負電荷により粘着性を示すことから、微生物のSやFeの生体濃縮作用が二次的に起こったことが考えられる²⁹⁻³³。今回の観察においても、沈殿池のバイオフィームは池の水面の表面に張られた粘土被膜を伝わって形成されていることがSEM観察によって確認された（Fig. 4 A a, b）。一方、沈殿池の水をポリエチレン製容器に入れて90日間培養したバイオフィームはその内壁に直接付着して形成しており、粘土被膜の形成は認められないことが明らかになった（Fig. 5 K）。すなわち、微生物によって生体濃縮されたFeやSを主とする酸性の水は、カオリナイトの親水基と界面活性の状況を作り出すことによって、適度の粘性を保つと同時に、疎水基を池の表面方向に向け、カオリナイト被膜を水面方向に形成したことが示唆された。これらの被膜の水中側に成長した粒子は、SEM、EDXによりSとFeが認められた。フェリハイドライトは、溶液中の陰イオン性化学種と表面の正電荷サイトとの表面錯体形成を行う。この錯体形成促進には、微生物による鉱物の生体濃縮が関与し、結果的に水中の飽和度低下を来すことで、カオリナイトの溶解を促進したと考えられる³⁴⁻⁴⁰。

4-2. 自然培養実験

沈殿池への流入口の水を容器に入れた直後から細菌の増殖がはじまり、容器の内壁に微生物膜を形成した。容器内の水はすでにバイオフィームを形成出来るFeやSの元素がそろっていたと考えられる。これらの付着性微

生物は採取直後から容器内壁を赤褐色に染めるが、5日後は容器内の水を別の容器に移しても再び容器内壁を赤褐色に染めることはなかったことから、容器内の微生物膜の形成は5日間でフェリハイドライトなどの要素が利用されつくしたことを示している（Fig. 5 B 右）。

カオリナイト主体の粘土塊を脱イオン水中に入れることにより、自然培養で発生した微生物は、緑色の単細胞細菌（直径3 μm）と赤褐色の球菌（直径100nm-1 μm）である。双方とも粘土表面で直接増殖しコロニーを形成していた（Fig. 6 C, D）。朝田・田崎（2000, 2002）はカオリナイトの形成自体にもバイオミネラルゼイションが関与していると述べており^{41, 42}、今回の実験においても、粘土鉱物塊の表面ではすでに微生物とカオリナイトとの相互作用におけるフィルム形成能力があることが示唆された。

また、沈殿池の被膜は2006年10月17日のサンプル採取時は池全体に被膜の形成が見られたが、その一週間後、雨により表面の薄膜は破壊されていた。その後は冬期の天候のためか、赤褐色の物質は池の底に沈殿したままで、池の水は透明になっていた。2007年7～8月、雨期を過ぎて再び池の水面の薄膜の形成が見られた。雨など物理的な被膜破壊要素によりその体積が小さくなり、被膜が一時期水面に浮けなくなったことが一因と考えられる。

光学顕微鏡観察でも珪酸塩鉱物に細菌のコロニーが付着しているのが観察された。これらの細菌は付着性であり、珪酸塩鉱物に付着しながらバイオフィームを形成している。微生物の細胞粘着やコロニーおよびフィルム形成については医学上でもしばしば問題にされている^{43, 44}。カオリナイトのクラスターと微生物コロニーの関わり⁴⁵、スメクタイトフィルム⁴⁶、工業用材料としての珪酸被膜のメソポーラスと微生物の関与など^{47, 48} これらの性質を珪酸塩鉱物と微生物が持っていることを本研究でも確認出来た。

また、水中でバイオフィームを形成している球菌とカオリナイト表面に増殖する球菌は、SとFeの共通した環境で増殖することから、代謝的には類似した鉄・硫黄酸化細菌として考えられる。しかし、実験上の限られた環境の中での粘土鉱物表面と、微生物の代謝産物が豊富に注がれる水中とは異なり、カオリナイトのフィルムの形成の有無などの影響により、微生物の生息環境が異なっていると考えられる。また、鉄酸化球菌の光合成については、ごくまれにクロロフィル陽性をDAPI蛍光発色により確認している（Fig. 5 J）。これらは発達段階の違いなのか、微生物種の違いであるかは明らかでない。しかし、粘土の表面に増殖した緑色の単細胞細菌はほとんどの細胞がクロロフィル陽性を示している。

脱イオン水にカオリナイトを入れた実験中の電気伝導度は開始5日後には3.0 mS/cm、20日間でECは10.2 mS/cmに上昇し50日後まで安定している。また、pHは10

日後で5.5から4.5まで低下し、その後30日で安定する。この現象はカオリナイトおよびその粘土表面のSやFeが脱イオン水中へ溶出したための変動を表している。しかし、60日後を過ぎたころから電気伝導度は再び14.0mS/cmに上昇し、13.0mS/cmで90日後まで安定した。pHは実験開始後30日を過ぎたころから50日過ぎるまでの間5近くまで上昇し、70日を過ぎたあたりから再び低下し始め、90日目では4以下に低下した。これらの変動は、粘土内部のSやFeが脱イオン水中に溶出しはじめたことを示唆しているが、細菌増殖のエネルギー代謝によるFeやSの生体濃縮の影響も合わせて、増殖の時期とカオリナイト溶解の時期が関係づけられる可能性もあり興味深い。すなわち、今回の実験における電気伝導度およびpHの変化は、粘土中のSとFeの溶出が実験開始後10日で急激におこり、60日を過ぎたあたりから、微生物代謝の影響が出はじめたことが示唆された。

カオリン鉱床内のカオリナイト表面では、光合成単細胞主体の微生物代謝による生体濃縮が酸性の水とカオリン鉱物との間で起こる。また、酸性の水の沈殿池では、親水基を水面側に向けた粘着性のバイオマットの形成が生じる。そして、これらのカオリナイトおよび微生物被膜が水面に浮くためには、カオリナイトフィルム形成に加えて、粘着性の大きいバイオマットによる体積の増大によるところが大きいと考えられる。実験による限られた環境と時間および電気伝導度とpHの変化は、それらの相互反応を表現しているが、自然界では絶え間なくこれらの反応が繰り返され、天候や物理的その他の要因も加わって、沈殿池の表面の微生物被膜が形成されることが明らかになった。

5. まとめ

カオリナイトの被膜と微生物被膜の形成要因は、SやFe主体の酸性の水を通しての微生物の働きにより、被膜の形成に至った。また、カオリン鉱床内の沈殿池の微生物被膜が水面に浮くためには、SやFeを濃縮する微生物の代謝活動の関与、特に、粘着性微生物被膜とカオリナイトの被膜の表裏一体による体積拡大によるところが大きい。これらの微生物は、カオリナイトの表面では光合成単細胞細菌が主体を占め、疎水基を池表面に向けるとともに親水基を水中にむける。すなわち、カオリン鉱物は、このバイオフィルムの形成を促進する作用がある。

謝 辞

サンプル採集には、入来カオリン(株)川田太郎専務取締役のご協力を得た。ここに感謝申し上げます。富田克利鹿児島大学名誉教授には、試料採取から粘土鉱物についてまでご指導をいただいた。また、本原稿を読んでいただき、有益なご助言をたまわった。ここに厚くお礼申し

上げる。X線粉末回折分析に関しては、田崎和江研究室の院生の協力を得た。

引用文献

- 1) Skinner, H. C. W. and Fitzpatrick, W. R. (1992) *Biominalization*, Catena Verlag, Germany, pp.1-6.
- 2) Leszek, S. and Wanda, S. (1976) *Clays and Clay Minerals*, 24, 156-162.
- 3) Jens, B. O., Michael, G. and Søren, M. (1999) *Applied and Environmental Microbiology*, Sept 4108-4117.
- 4) Wolfaardt, G. M., Lawrence, J. R., Robarts, R. D., Caldwell, S. J. and Caldwell, D. E. (1994) *Applied and Environmental Microbiology*, Feb, 434-446.
- 5) Hilary, M. L. and William, J. C. (1989) *Biofouling*, 1, 323-342.
- 6) Costerton, J. W. and Steward, P. S. (2001) *日経サイエンス* 10, 38-46.
- 7) Drenkard, E. and Ausubel, F. M. (2002) *Nature*, 416, 740-743.
- 8) Chhatwal, G. S. (2002) *Trends in Microbiology*, 10, 205-208.
- 9) Whitchurch, C. B., Tolker, N. T., Ragas, P. C. and Mattick, J. S. (2002) *Science*, 295, 1487.
- 10) Tazaki, K. (2003) *Can. J. Earth Sci.*, 40, 1725-1738.
- 11) Tazaki, K. (1999) *Episodes*, 22, 21-25.
- 12) 田崎和江・盛一 慎吾 (2004) *環境技術* 33, 32-39.
- 13) 佐藤一博・田崎和江 (2004) *環境技術* 33, 57-65.
- 14) Tazaki, K. (2000) *Clays and Clay Minerals*, 48, 511-520.
- 15) Friedrich, W., Sylvia, S., Silke, H., Armin, E., Bernhard, A. and Bernhard, S. (1993) *Nature*, 362, 834-836.
- 16) David, E. and Craig, M. (1997) *Microbiology*, 4784-4792.
- 17) Jaisi, P. D., Hailiang, D., Jinwook, K., Zici, H. and John, P. M. (2007) *Clays and Clay Minerals*, 55, 96-107.
- 18) Gimsing, L. A. and Borggaard, K. O. (2007) *Clays and Clay Minerals*, 55, 108-114.
- 19) Barghoorn, E. S. and Tyler, S. A. (1965) *Science*, 147, 563-577.
- 20) Schopf, J. W. (1993) *Science*, 214, 640-646.
- 21) Walter, M. R., Bauld, J. and Brock, T. D. (1972) *Science*, 178, 402-405.
- 22) Komori, Y., Matsumura, A., Itagaki, T., Sugahara, Y. and Kuroda, K. (1999) *Clay Science*, 11, 47-55.
- 23) 高橋直人・瀬川宏美, 田崎和江 (2007) *日本地下水学会誌* 49, 115-137.
- 24) 永田 洋 (2000) *粘土科学への招待* (須藤談話会編) pp.16-18頁 三共出版(株)東京.
- 25) 田崎和江・朝田隆二 (2002) *岩石鉱物学* 31, 62-65.

- 26) 松本哲一・藤井紀之 (1989) 岩鉱 84, 398-402.
- 27) 藤井紀之・月村勝宏・James, M. J. (1989) 地質調査所月報 40, 299-322.
- 28) 河野元治・富田克利 (1991) 粘土科学 30, 229-239.
- 29) Danielle, F., Grant, F. F. and Steven, D. S. (1998) American Mineralogist., 83, 1399-1408.
- 30) Titus, J. B., John, M., Sophie, C. F., Ellen, W., Barry, M. G. and Lawrence, S. (2002) Science., 296, 1308-1312.
- 31) Dianne, K. N. and Jillian, F. B. (2002) Science., 296, 1071-1077.
- 32) Sato, M. (1999) Clays and Clay Minerals., 47, 793-802.
- 33) David, L. B. and Clifford, T. J. (1993) Clays and clay minerals., 41, 297-304.
- 34) 佐々木直哉・田崎和江 (2001) 地質学会誌 107, 659-666.
- 35) Bigham, J. M., Carlson, L. and Murad, E. (1994) Mineralogical Magazine., 58, 641-648.
- 36) Norman, L., Warren, S. and Andrew, W. (1982) Applied and Environmental Microbiology., 924-938.
- 37) Kawano, M. and Tomita, K. (2001) Amer. Mineral., 86, 1156-1165.
- 38) Kawano, M. and Tomita, K. (2002) Clays and Clay Minerals., 50, 99-110.
- 39) 河野元治・小保方寿峰・富田克利 (2006) 粘土科学 45, 223-232.
- 40) 井上厚行・八田珠郎 (2006) 粘土科学 45, 250-265.
- 41) 朝田隆二・田崎和江 (2000) 地質学雑誌 106, 597-608.
- 42) 田崎和江・朝田隆二・池田頼正 (2002) 粘土科学 42, 21-36.
- 43) Eliana, D. and Frederick, M. A. (2002) Nature., 416, 740-743.
- 44) Gursharan, S.C. (2002) TRENDS in Microbiology., 10, 205-208.
- 45) 朝田隆二・田崎和江 (2000) 粘土科学 1, 24-37.
- 46) Jennifer, E. K. and Paul, A. S. (2007) Clays and Clay Minerals., 55, 189-199.
- 47) Stephen, M. and Geoffrey, A.O. (1996) Nature., 382, 313-318.
- 48) Kresge, C. T., Leonowicz, M. E., Roth, W. J., Vartuli, J. C. and Beck, J. S. (1992) Nature., 359, 710-712.