#### 研究成果報告書 科学研究費助成事業

今和 6 年 6 月 1 8 日現在

機関番号: 21401

研究種目: 基盤研究(C)(一般)

研究期間: 2020~2023

課題番号: 20K06349

研究課題名(和文)VOC・重金属複合汚染に対するスーパーヤナギの反応機構解明とバイオマス利用法確立

研究課題名(英文)Elucidation of reaction mechanism of "super willow" to VOC and heavy metal combined pollution and establishment of biomass utilization method

#### 研究代表者

石川 祐一(Ishikawa, Yuichi)

秋田県立大学・生物資源科学部・教授

研究者番号:60315603

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 3.300.000円

研究成果の概要(和文):スーパーヤナギとよばれる高収量ヤナギを用いて、省力的な環境修復技術・生態系サービス管理技術・バイオマス資源化技術を確立することを目的とした。成果は以下の通りである。1. ヤナギの植栽可能地である荒廃湿地・耕作放棄地分布の時空間変動を衛星画像とGISで解析した。2. 荒廃湿地・耕作放棄地でのスーパーヤナギによるバイオマス資源化を評価した。3. 複合汚染土壌でのスーパーヤナギによる重金属・VOC除去法を考案した。4. VOC除去における動態を、安定同位体を用いて詳細に明らかにした。5. スーパーヤナギの多面的利用法として養液栽培の培地としての利用、昆虫食飼料としての利用を検討した。

研究成果の学術的意義や社会的意義ヤナギは、北半球に広く分布し、冷温帯の気候に適した資源作物である。ヤナギは主に木質バイオマスの収穫に利用されるが、産業創出のため様々な利用法が模索されている。本研究では、人口増加問題を鑑みて時流に沿った利活用法を検討するために、ファイトレメディーション(植物を用いた環境修復技術)や産業昆虫の飼料への活用に注目した。ヤナギは根が深くまで発達し、バイオマス量が大きい植物であることから、広範囲の汚染物質の除去が期待できる。また、バイオチャーや産業昆虫の飼料として新たな利活用は、未利用地(耕作放棄地、土壌・地下水汚染地)の有効活用や産業創出の観点からも有用であり、持続可能な産業展開が期待できる。

研究成果の概要(英文): The objective of this project was to establish labor-saving environmental restoration technology, ecosystem service management technology, and biomass conversion technology using high-yielding willow, called "super willow". The results are as follows: 1) Spatiotemporal variation in the distribution of degraded wetlands and abandoned fields where willow can be planted was analyzed using satellite images and GIS; 2) Biomass conversion using super willow in degraded wetlands and abandoned fields was evaluated; 3) A method for heavy metal and VOC removal using super willow in complex contaminated soils was devised; 4) The dynamics of VOC removal was investigated and stabilized by using super willow. The kinetics of VOC removal was investigated in detail using stable isotopes; 5. The use of super willow as a culture medium for nutrient cultivation and as an insect feed was investigated as a multifaceted use of super willow.

研究分野: 環境農学

キーワード: スーパーヤナギ 耕作放棄地 バイオマス利用 環境修復 カドミウム 1,4-ジオキサン クスサン 昆虫食

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等に ついては、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

## 1.研究開始当初の背景

鉱業が盛んであった地域では重金属賦存量が高い傾向にある。重金属含有土壌の持続的な管理・修復が求められており、我々はスーパーヤナギによる重金属含有土壌の修復技術開発を進めてきた(Ishikawa, Y.,et al.,Journal of Arid Land Studies, 23, 167-172, 2014)。加えて、近年廃棄物の不適切処理に伴う有機化学物質との複合土壌汚染が問題視されている。例として廃油等の中間処理・最終処分を行っていた秋田県能代市能代産業廃棄物処理センターでは、土壌中からは基準値程度のヒ素や鉛といった重金属、周辺地下水からは基準値以上の 1,4-ジオキサンやベンゼンといった VOC が検出され、VOC・重金属による複合汚染が懸念されている。現在は促進酸化法による高次処理によって処理されているが、処理コストの低減化が求められている。

もう一つの課題として人口減少が顕著である秋田県では全耕作地に占める耕作放棄地面積が過去5年間で69.6%増加しており増加率は全国1位である(農業センサス,2005)。耕作放棄地面積の増加を防ぐための早急な対応が求められている。その一つの解決策として最小限の手間で大量のバイオマスが得られるスーパーヤナギの粗放的栽培を行う着想に至った。バイオマス資源として普及が進めばエネルギー自給や加温式施設園芸等にも利用できる可能性がある。

我々が着目するヤナギ属(Salix)は世界で約350種、国内では約30種存在しており、渓畔などを中心に生育する。挿し木で増える細葉ヤナギの中でもオノエヤナギ(Salix sachalinensis)やエゾノキヌヤナギ(Salix pet-susu)は寒冷地でも樹高が25mにも達することから木質バイオマスを用いた超短伐期栽培樹種として選定されている(上村ら、北海道におけるエネルギー作物「ヤナギ」の生産の可能性、(独)森林総合研究所北海道支所、pp.15、2014)。特に生育の良好な4系統が選抜され、2年栽培の結果37~62t乾物/ha/年のバイオマスが得られた(Mitsui et al., Biomass and Bioenergy、34、467-473、2010)。既往研究で秋田県内での栽培を試み、3年間の結果で60~350t新鮮重/ha(図2、26~48t乾物/ha/年に相当)という収量が得られている。バイオ燃料技術革新協議会(2010)によれば40円/Lを目指すバイオエタノールプラントに利用可能なバイオマス資源としてヤナギの目標収量は、8~20t乾物/ha/年とされており、我々が着目している系統ではこの目標を凌駕する収量が十分に期待できる。これらの系統は「スーパーヤナギ」と命名されている(佐藤ら、バイオマス科學會議發表論文集、7、64-65、2012)。

また、植物を用いた環境浄化技術であるファイトレメディエーション(Phytoremediation)には、植物体中に対象物質を蓄積するファイトエクストラクション(Phytoextraction)の他に植物の蒸散によって地中の物質を大気中に放散するファイトボラタリゼーション(Phytovolatilization)が挙げられる。土壌や排水中に存在する重金属を対象にした植物浄化は、おもにファイトエクストラクションによって植物体中に蓄積した後に植物体を除去することによって行われる。一方、揮発性有機化合物(VOC)を効率的に除去するためにはファイトボラタリゼーションが有効であると考えられるが、その効率(対象物質の放散量/蒸散量)は植物の品種・系統の違いに加えて共存物質の影響が大きいと予測される。

## 2.研究の目的

「スーパーヤナギの生体内外の反応を産業利用可能なレベルで明らかにする」ため、本申請では高収量を誇るスーパーヤナギの有用性を以下の 2 点から検討し、新たな農資源の利活用法を提案することを目的とした。

目的(1) 荒廃湿地・耕作放棄地でのバイオマス資源化技術の開発

目的(2) 重金属・VOC 複合汚染土壌での環境修復技術の開発

## 3.研究の方法

(1) 荒廃湿地・耕作放棄地分布の時空間変動解析

主に衛星画像を用いて植え付け可能地となり得る耕作放棄地の抽出を行った。撮影日時の異なる衛星画像を用いて最適な撮影時期を推定するとともに、高度や接続する農道など現地情報と組み合わせ、植え付け可能地の空間変動を解析した。

(2) 荒廃湿地・耕作放棄地でのスーパーヤナギによるバイオマス資源化

秋田県内耕作放棄地および宮城県内荒廃湿地における生育試験を通じて、バイオマス生産の 持続性について検討するとともにバイオマス生産量を規定する環境因子の抽出を行った。

(3) 複合汚染土壌でのスーパーヤナギによる重金属・VOC 吸収除去法確立

重金属として Cd, VOC として 1,4-ジオキサンを用いた。スーパーヤナギの成長に及ぼす含有重金属・VOC の影響を調べるために水耕栽培試験を行った。植栽区のスケールアップを行い、廃棄物処理場跡地の浸出水を用いて小規模スケールで環境修復が可能かどうか検討した。

(4) 複合汚染土壌でのスーパーヤナギによる重金属・VOC 吸収除去法の確立

VOC として 1,4-ジオキサンを対象とした。安定同位体で標識した 1,4-ジオキサンを用いた水 耕試験栽培を通じて 1,4-ジオキサンの蒸散、植物体内での代謝、植物体内への貯留への分配を 夏季および秋季で測定し、1,4-ジオキサン除去量の推定を試みた。

(5) 収穫物の品質評価と高度利用法の検討

スーパーヤナギを原料としてバイオチャーを製造し、施設園芸栽培用培地としての利用が可

能かどうかミニトマトの栽培を通じて評価した。

また、スーパーヤナギの葉が食用昆虫の飼料として利用可能かどうかヤママユガ科クスサンの飼育を通じて評価した。

#### 4. 研究成果

## (1) 荒廃湿地・耕作放棄地分布の時空間変動解析

荒廃湿地・耕作放棄地分布の時空間変動解析:秋田県内の中山間地域において3時期のRapid Eye 画像(分解能5m、5,7,10月)を用い、GIS 解析ソフトウェアにより土地利用分類を行った。画像上で荒廃農地と判断された圃場と実際の荒廃農地を比較した結果、5月が最も正しく予測していた一方、水田の畦及び周囲の草地を荒廃農地とする誤分類が多くみられた。雲が少なく入手しやすい点から、5月下旬の衛星画像が適していると考えられた。

数値標高モデル(DEM)や 1:25000 地図を用いて荒廃農地の標高、傾斜、農地にアクセスするための道路幅、隣接する荒廃農地の地点数を求め空間的評価を行った。その結果、標高 10m 以下には荒廃農地が存在せず、道幅は狭いほど荒廃農地が多い傾向があり、単独の荒廃農地よりも 2 筆以上の地点がより多い傾向にあったこと。このことから、アクセスが困難な地点において集団で荒廃化する傾向が推測された。ヤナギの植栽によって必要最小限のアクセスを維持することができ、粗放的な農地管理につながることが期待できる。

## (2) 荒廃湿地・耕作放棄地でのスーパーヤナギによるバイオマス資源化

東日本大震災に起因する津波被害地でのヤナギの生育を評価するために宮城県亘理町に、耕作放棄地のヤナギ生育を評価するために秋田県五城目町に圃場を設営し、ヤナギ栽培試験を継続した。宮城県亘理町に設置した2圃場のうち、マルチを施用したNT圃場では $5.0 \sim 19.1 \text{ t/ha/y}$ 、AM 菌の接種やバイオチャーの施用を試みた AH 圃場では $9.0 \sim 10.7 \text{ t/ha/y}$  となった。AM 菌接種やバイオチャー施用による生育促進は条件により有効であった(Ishikawa et al., 2022)。砂質の低肥沃土壌ではマルチなどの栽培技術の最適化が重要であり、適切な技術の組み合わせによって早生種の収穫目標 $5 \sim 15 \text{ tC ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$  (日本エネルギー学会)に匹敵する収量が可能であった。一方、皆伐・再萌芽後の収量は $3.1 \sim 8.1 \text{ t/ha/y}$  と低下した(石川ら, 2022)。獣虫害が大きかった系統は更新時に根の食害が大きく再更新が順調に進まなかったことが原因と思われる。このことから病虫害耐性も生産を制限する大きな要因となることが示唆された。

## (3) 複合汚染土壌でのスーパーヤナギによる重金属・VOC 吸収除去法確立

カドミウム等重金属の除去効率を圃場試験によって検討した。以前に設営した秋田県大仙市での圃場試験(石川ら,2020)を継続し、通年での重金属の移動・集積メカニズムを明らかにするため、月1回生葉・リターのサンプリングと展葉のモニタリングを行った。その結果、生育期と落葉期で生葉・落葉中のカドミウム含量について異なる傾向が見られた(石川ら,2021)。萌芽更新初年目では初期成長の根からの養分吸収に伴い重金属も多く吸収したことが示唆された。葉重量と生葉のCd含量は葉の寿命が長くなるにつれて上昇した一方、葉リターでは両系統ともCd含量が減少した。CuはCdと比較して含量の変化が少なく、植物の要求性による違いが反映されていると考えられた(川口ら,2022)。

また、バイオチャーなどの土壌改良資材を加えた栽培試験を行った結果、バイオチャー施用によりすべての系統でヤナギの生育が促進され、リター重量が増加した。一方、リター中重金属含量は、すべての系統においてバイオチャー無施用区で最も高く、バイオチャーを入れた処理区では低下した。土壌中の重金属は移動性の低い有機態分画に移動し、ヤナギによる重金属吸収を抑制する結果となったため、収量増加と含量低下のトレードオフの関係が示唆された(太田ら、2023; 向後ら、2023)。

# (4) スーパーヤナギによる VOC 除去メカニズムの解 明

1,4-ジオキサン濃度を制御した室内実験系において、13Cで標識した安定同位体を用い、植物体中の1,4-ジオキサン動態をより詳細に明らかにした。夏季の成長・蒸散が盛んな時期において蒸散が1,4-ジオキサン減少量全体の68%を占めるのに対して代謝が19%、その他根圏域での物理的生物的な除去が11%を占めることが明らかになった(図1, Miyai et al., 2022)。

さらに異なる 4 系統ならびに異なる時期での栽培 試験を行い、栽培期間全体を通した除去メカニズム の解明を進めた。その結果、秋季の蒸散量低下に伴 い、除去量は夏季の 10~20%と大きく低下した。秋季 における蒸散と同化による 1,4-ジオキサン除去の割

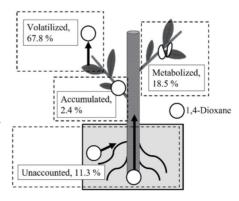


図 1. スーパーヤナギによる 1,4-ジオキ サン吸収後の消長 (Miyai et al., 2022)

合は小さく、蓄積量とその他要因(根圏域での分解等)の割合が大きくなった。秋季では、ヤナギの1,4-ジオキサンに対する蒸散と同化の活性が低下し、根から吸収された1,4-ジオキサンが植物体中に多く残留した結果、蓄積による1,4-ジオキサン除去の割合が増加したと考えられる(Miyai et al., 2024)。

## (5) 収穫物の品質評価と高度利用法の検討

スーパーヤナギを原料として、マメ科植物のバイオチャーと比較してもほぼ同様の化学性を持つバイオチャーを製造できることが示された。また、バイオチャーの利用法としてトマトの養液栽培の培地としての利用を検討した結果、標準的な培地であるロックウールと比較して収量の低下は見られず糖度の向上に寄与した。

さらに、食用昆虫の飼料としての利用法を検討した結果、好んで食べるといわれるクリと比較しても生育は良好で、かつ青魚に匹敵するタンパク質含量を蓄積することが明らかとなった。昆虫食飼料として利用することでヤナギ葉から効率的なタンパク質転換が期待できることを明らかにした。

以上のことからスーパーヤナギを耕作放棄地や荒廃湿地で栽培することは可能であり、環境 修復やバイオチャーとしての利用に加えて昆虫食飼料としての利用も可能であることを示すこ とができた。木質バイオマスの生産をその目的に照らして妥当で実用性のあるものとするため には、バイオマス収量の安定性に加え、炭素収支や投入される労力も含めたコストを生産系レベ ルで考慮することが今後の課題である。

#### 5 また発主論立等

Journal of Arid Land Studies

5 . 王な発表論又寺	
〔雑誌論文〕 計6件(うち査読付論文 5件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件)	
1.著者名	4 . 巻
Takahiro MIYAI, Osamu KIGUCHI, Tadashi TAKAHASHI , Naoyuki MIYATA, Atsushi HAYAKAWA, Yuichi	34S
ISHIKAWA	
2.論文標題	5 . 発行年
Effect of seasonal change and strain difference on 1,4-dioxane phytoremediation by fast-growing	2024年
willows	
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
Journal of Arid Land Studies	7-10
掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子)	査読の有無
10.14976/jals.34.S_7	有
オープンアクセス	国際共著
オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	-
1.著者名	4 . 巻
Yuichi ISHIKAWA, Hideo SUGIMOTO, Yasunobu MATOBA, Toshio OSHIDA, Atsushi FUKUDA, Hisao USHIKI,	32S
Tetsu NISHIOKA, Yuji AOKI, Takahiro MIYAI, Shunsuke KIKUCHI, Ryo FUJITA, Satoshi WAKAMIYA,	
Shota SASAKI, Shota NAGASAWA, Moe SATOH, Sachiko YABUKI, Hitoshi KANNO, Hidetsugu MORIMOTO, et	
al.	
2.論文標題	5 . 発行年
Beyond the Tsunami Disaster: Ten Years' Activities to Use Uncultured Fields after the Great	2022年
East Japan Earthquake in Miyagi, Japan	
zact capan zartinguaite in mijagi, capan	
3 . 雑誌名	6.最初と最後の頁

掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 査読の有無 10.14976/jals.32.S\_25 有 オープンアクセス 国際共著 オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難

25-29

1.著者名	4 . 巻
Takahiro Miyai, Osamu Kiguchi, Tadashi Takahashi, Naoyuki Miyata, Atsushi Hayakawa, Yuichi	32\$
Ishikawa	
2. 論文標題	5.発行年
Basic Study on the Mechanism of 1,4-Dioxane Phytoremediation by Willows: A Comparison of Three	2022年
Willow Species	
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
Journal of Arid Land Studies	31-35
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.14976/jals.32.\$ 31	有
· -	
オープンアクセス	国際共著
オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	-

# 〔学会発表〕 計8件(うち招待講演 0件/うち国際学会 0件) 1.発表者名

宫井隆大, 木口倫, 高橋正, 宮田直幸, 早川敦, 石川祐一

## 2 . 発表標題

早生ヤナギによる1,4-ジオキサンの浄化手法の開発:生育時期と系統の浄化効率への影響

## 3 . 学会等名

日本沙漠学会学術大会

## 4 . 発表年

2023年

1 . 発表者名 太田匠梧,早川敦,高橋正,石川祐一
2 . 発表標題 バイオ炭の施用が早生ヤナギの重金属吸収に及ぼす影響
3 . 学会等名日本土壤肥料学会愛媛大会
4 . 発表年 2023年
1.発表者名 向後光洋,太田匠梧,墨泰孝,國頭恭,石川祐一
2 . 発表標題 重金属汚染土壌へのバイオ炭施用が重金属形態・早生ヤナギ・微生物群集へ与える影響
3 . 学会等名 日本土壌肥料学会関東支部大会
4 . 発表年 2023年
1.発表者名 石川祐一,杉本英夫,的場泰信,押田敏雄,福田淳,牛木久雄,西岡哲,青木雄二,宮井隆大,菊地駿介,藤田遼,若宮理,佐々木祥太, 長澤昇汰,佐藤萌,矢吹幸子,菅野均志,森本英嗣,日高伸,早川敦,高橋正
2 . 発表標題 東日本大震災に伴う津波被害への対応: 宮城県亘理町の耕作放棄地を利用した10年間の活動報告
3 . 学会等名 日本沙漠学会学術大会
4 . 発表年 2022年
1 . 発表者名 川口 智也・菊地 駿介・早川 敦・高橋 正・石川祐一
2 . 発表標題 葉の月齢の違いによる萌芽更新初年目の早生ヤナギの重金属蓄積に関する研究
3 . 学会等名 日本土壌肥料学会東京大会
4 . 発表年 2022年

1.発表者名 石川 祐一,菊地 俊介,佐々木 祥太, 早川 敦,高橋 正	
2.発表標題 早生ヤナギの落葉に伴う重金属元素の輸送と蓄積に関する研究(第2報)-生育ステージ間での比較-	
3 . 学会等名 日本土壌肥料学会	
4 . 発表年 2021年	
1.発表者名 石川祐一・佐々木祥太・細川奈々枝・早川敦・高橋正	
2.発表標題 早生ヤナギの落葉に伴う重金属元素の輸送と蓄積に関する研究	
3.学会等名 日本土壌肥料学会岡山大会	
4 . 発表年 2020年	
〔図書〕 計1件	
1.著者名 日本沙漠学会	4 . 発行年 2020年
2.出版社 丸善出版	5.総ページ数 534

## 〔産業財産権〕

3 . 書名 沙漠学事典

〔その他〕

-

6 研究組織

_	υ.			
		氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
		木口 倫	秋田県立大学・生物資源科学部・教授	
	研究分担者	(Kiguchi Osamu)		
		(70457761)	(21401)	

6 . 研究組織(つづき
--------------

. 0	・妍九組織(フラさ)		
	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
	栗本 康司	秋田県立大学・木材高度加工研究所・教授	
研究分担者	(Kurimoto Yasuji)		
	(60279510)	(21401)	
	高橋 正	秋田県立大学・生物資源科学部・教授	令和5年4月1日から研究協力者
研究分担者	(Takahashi Tadashi)		
	(80132009)	(21401)	
研究分担者	早川 敦 (Hayakawa Atsushi)	秋田県立大学・生物資源科学部・准教授	
	(10450280)	(21401)	

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	高橋 正 (Takahashi Tadashi)		令和5年4月1日から

## 7.科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------