

平成 21 年 5 月 20 日現在

研究種目：基盤研究(B)
 研究期間：2006～2008
 課題番号：18405001
 研究課題名(和文) 東南アジアのエビ養殖による抗生物質汚染と富栄養化の実態の解明及び
 保全対策
 研究課題名(英文) TRUE STATE OF ANTIBIOTICS, HEAVY METAL POLLUTION AND
 EUTROPHICATION DUE TO COASTAL SHRIMP FARMING IN SOUTH EAST ASIAN COUNTRIES AND ITS
 CONSERVATION TECHNIQUES
 研究代表者
 宗景 志浩(MUNEKAGE YUKIHIRO)
 高知大学・教育研究部自然科学系・教授
 研究者番号：50036745

研究成果の概要：

ヴェトナムのエビ養殖池及びその周辺の底泥を採取して、抗生物質、重金属、富栄養化物質の濃度を調べ、あわせて耐性菌の出現率や抗生物質の抵抗性に関する実験を行った。食料生産の場であるにもかかわらず、重金属濃度は高く、環境基準値を大きく超えるものもあった。多くの抗生物質や薬剤が使われており、生物濃縮が危惧される。保全対策として光触媒と紫外線を用いた蓄積抗生物質の分解、シリカセラミックを用いた重金属吸着除去法について研究した。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	4,700,000	1,410,000	6,110,000
2007年度	5,900,000	1,770,000	7,670,000
2008年度	2,700,000	810,000	3,510,000
年度			
年度			
総計	13,300,000	3,990,000	17,290,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：環境学・環境動態解析

キーワード：環境保全，エビ養殖，富栄養化，抗生物質汚染，重金属汚染，東南アジア諸国

1. 研究開始当初の背景

東南アジア諸国はエビ養殖が盛んであるが、病気が頻発するため養殖を中止せざるを得ない所も出ている。抗生物質、富栄養化物質、重金属による底泥の汚染が深刻で、養殖エビの安全性が危惧されると同時に持続的なエビの養殖開発が求められている。

2. 研究の目的

東南アジアのエビ養殖による抗生物質汚染と富栄養化及び重金属汚染の実態を解明し、環境保全対策を検討することである。

3. 研究の方法

図-1に示すヴェトナムのブンタウ(VT)、ニャチャン(NT)、ダナン(DN)、フエ(HU)、ナムディン(ND)、タイビン(TB)の養殖池及び周辺地域から底泥を採取した。底泥から抗生物質を抽出し、LC-MSDを用いて測定した。また、重金属類はICP/MS及び原子吸光を用いて測定した。保全対策としてTiO₂と紫外線(UV)による抗生物質の分解法、シリカセラミックの重金属吸着除去能力について実験を行った。

4. 研究成果

(1) 環境汚染の実態

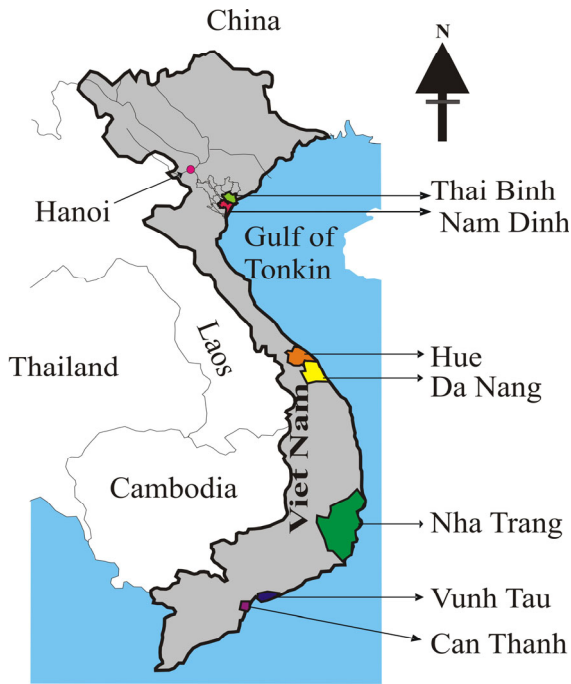


図-1 サンプル地域(ヴェトナム)

①抗生物質分布

抗生物質は、2002年8月採取の水と底泥を分析した際には、Trimethoprim(TMP), Sulfamethoxazole(SMX), Norfloxacin(NFXC), Oxolinic acid(OXLA)の4種が確認された。今回は抽出法も改良し、HPLC-MSDを用いて質量を測定した。VT, NT, DN, HUの養殖場から採取した底泥にはTMPで1-15mg/g-wet mud蓄積していた。これは2002年の値よりかなり高かった。

②耐性菌の出現状況

寒天培地での細菌出現数(図-2)は、抗生物質非添加区で $431-990 \times 10^3$ cfu/gであった。5ppm添加区でも $0-389 \times 10^3$ cfu/g程度出現し、 $CFC > SMX > TMP > AMC > STM > OTC > NFC \approx OFC$ の順序で出現した。NFC, OFCには抵抗性があった。

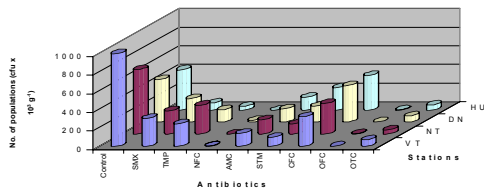


図-2 底泥中の細菌出現数 (VT, NT, DN, HU)

③重金属分布

ヴェトナム北部の紅川河口域のデルタに位置するTB, ND地区の養殖池底泥中の重金属濃度をICP-MSを使って測定した。その結果を図-3に示した。底泥中のAs, Ba, Sb濃度は平均266, 414, 877 μ g/Kgで、環境基準値の

2-10倍を示し、水サンプルではストロンチウム(Sr)が600-3700 μ g/Lと異常に高かった。

VT, NT, DN, HUのエビ池から採取した底泥のヒ素とカドミウムを図-4, 5に示した。VT, NTでは高濃度であるが、ホーチミンの工場地帯に隣接するため重金属が流出していることも考えられる。生物濃縮が危惧され、エビ養殖の危険性が指摘される。また、エビは底棲生物で常に重金属に曝されており、病気に対する耐性も低下すると考えられる。

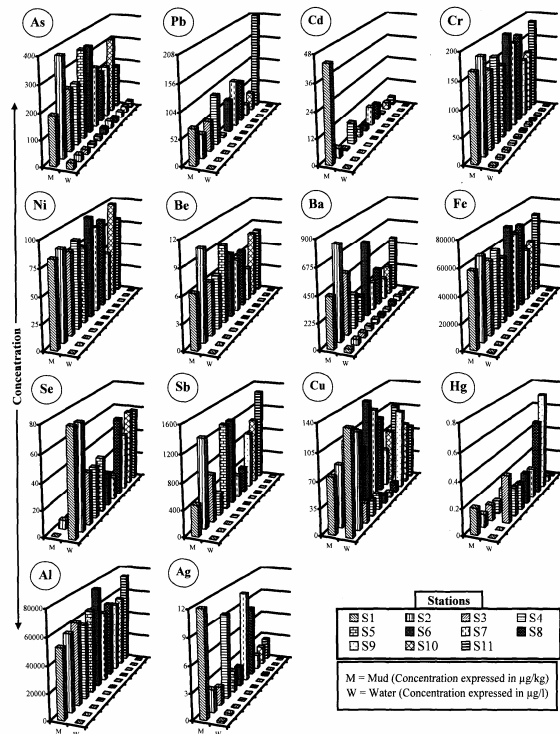


図-3 底泥中の重金属濃度 (ND, TB)

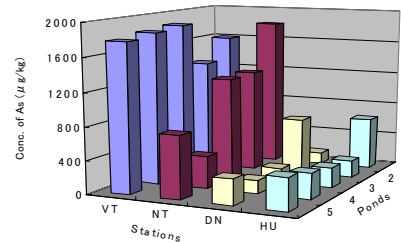


図-4 底泥中のヒ素 (VT, NT, DN, HU)

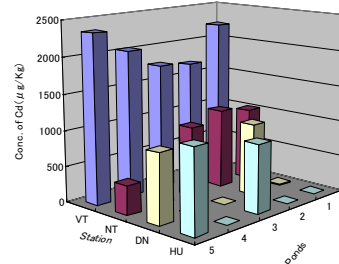


図-5 底泥中のCd (VT, NT, DN, HU)

④富栄養化の強度

富栄養化の程度を知るために、4地域の底泥サンプルから全リンを測定した。全リン(図-6)は1-120 mg/g-dry mudであった。NT, DN, HUが富栄養化の程度が高く、VTでやや低かった。長期にわたってエビの養殖用餌料を与えた結果であろう。最高値はDNのsp13池の120mg/gであった。

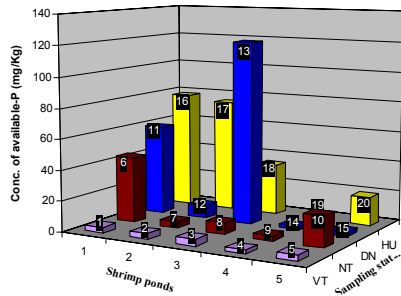


図-6 底泥中の全リン (VT, NT, DN, HU)

有機物量(図-7)は有機炭素で0.93-5.69%であった。NT, DN, HUでは75%の池で特に高い(4-6%), 20%の池でやや高い(>2-≤4%), 5%の池で低い(1-≤2%)状態を示した。これよりCP比(図-8)は, VT(0.154-0.658), NT(0.071-0.842), DN(0.027-1.372)及びHU(0.0421-1.562)となった。CP比が底泥中の有機物の割合に大きく影響を与えており、エビ池の生産量を規制している重要な因子である。

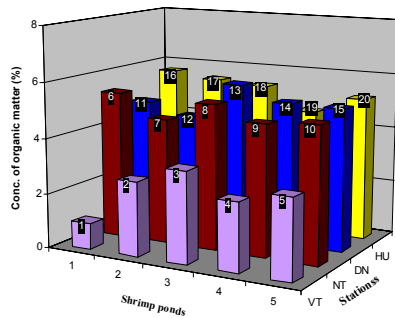


図-7 底泥中の有機物(%) (VT, NT, DN, HU)

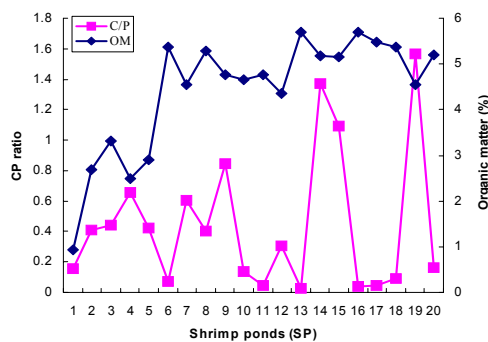


図-8 CP比(%) (VT, NT, DN, HU)

⑤底泥のSEM-EDS

図-9に, SEM-EDSによる底泥のSEM-EDS写真とC, Na, Mg, Al, Si, P, S, Cl, K, Ti, Fe元素の存在比を示した。Si(23.39-47.42%), Al(4.5-15.9%), Fe(0.59-8.29%), C(6.55-12.55%)であった。

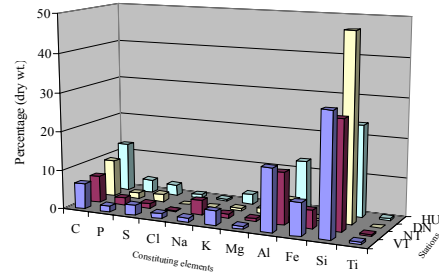


図-9 底泥のSEM-EDS (VT, NT, DN, HU)

(2) 保全対策

①UV と TiO₂による抗生物質の分解

図-10に示す装置を使って抗生物質を分解することを試みた。①のタンクに塩分10%の海水に溶かした1ppm濃度の抗生物質TMP (Trimethoprim) とSMX (Sulfamethoxazole)を用意した。これをポンプ②にてUV照射装置③に導く。ポンプ流量は15, 42, 80cc/minに, 光触媒TiO₂は0, 0.1, 0.5gに変化させ, UVは消費電力20W一定で行った。

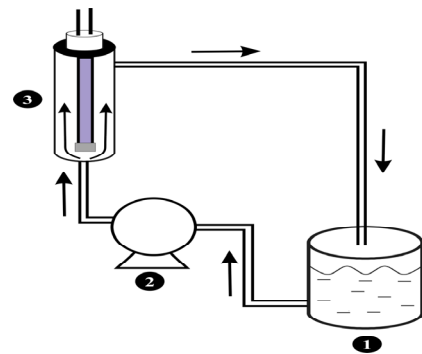


図-10 分解装置

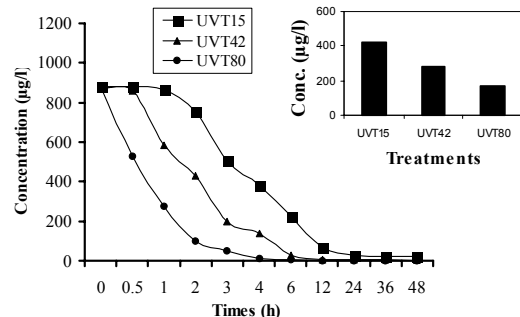


図-11 抗生物質の分解 (SMX)

紫外線を照射するだけでもかなりの分解は認められたが、TiO₂を加えることでさらに促進された。また、UVとして太陽光を使い、光触媒 TiO₂を併用することにより効果があることを見いだした(図-11)。

②重金属の除去

a) As, Cd の吸着除去

シリカセラミックスには、ヒ素 As, カドミウム Cd, 鉛 Pb の吸着除去能力がある。シリカセラミック 0.5-1g に対し一定濃度の As, Cd, を入れたガラス瓶を恒温器内で振とうする。一定時間ごとに濃度を測定し、濃度変化から吸着量(図-12, 14)及び等温吸着曲線を作成した。

図-13, 15には等温吸着曲線を示す。活性炭や化学物質を使った吸着には及ばないが、いずれも吸着除去能力がみられた。シリカセラ

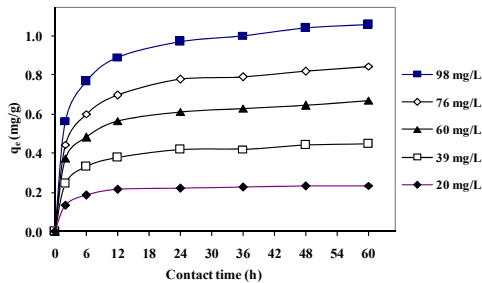


図-12 As 吸着量

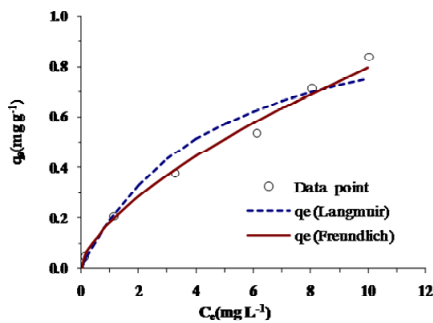


図-13 等温吸着曲線 (As)

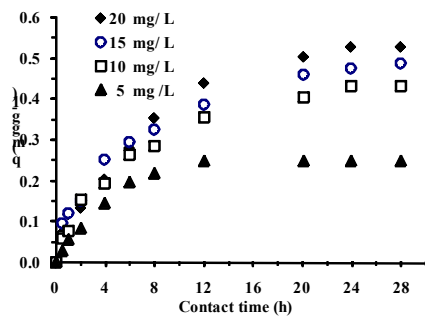


図-14 Cd 吸着量

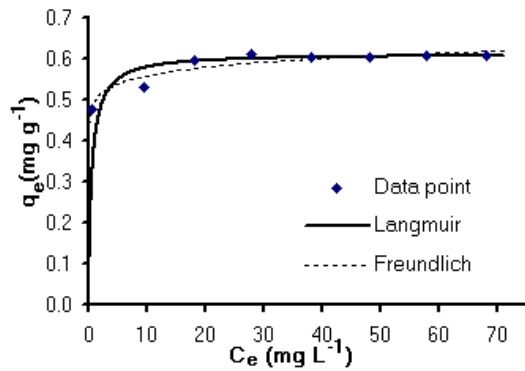


図-15 等温吸着曲線(Cd)

ミックスは、原料が特殊な土であることから、二次汚染の心配もなく低コストで供給できることが利点である。エビ池のような自然界で使うには向いていると思う。

b) 水銀 Hg (II) の吸着除去

重金属の吸着の場合と同様に、シリカセラミックを使って2価の水銀についても吸着実験を行った。図-16, 17に濃度変化と等温吸着曲線の一例を示す。

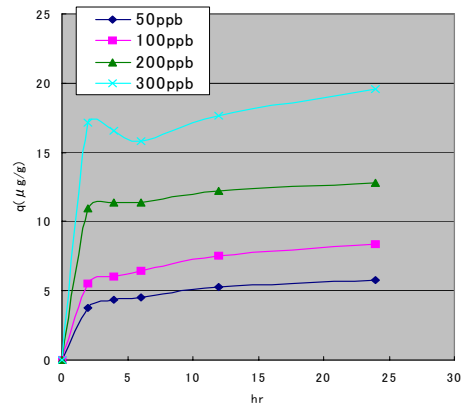


図-16 Hg(II) 吸着量

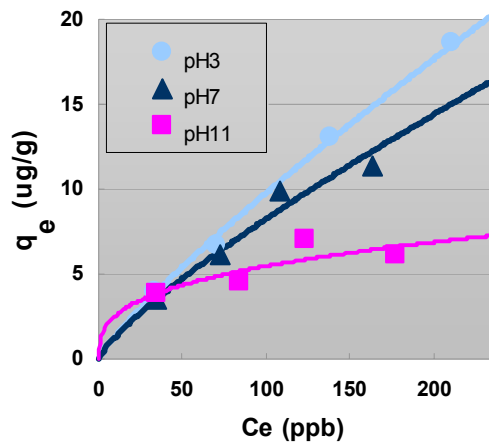


図-17 等温吸着曲線(Hg(II))

③リンの吸着除去

富栄養化物質のうちアンモニアは細菌により比較的容易に除去可能だがリンは必ずしも容易ではない。そこで、シリカセラミックスを用いてリンの吸着除去実験を行った。図-18 に吸着量を図-19 に等温吸着曲線を示す。

ここで用いたシリカセラミックスはリンを効率的に吸着した。また、同じセラミックスが極端に富栄養化した場合の海底のリン濃度を低下させ、酸化還元電位を上昇させるなど環境改善効果のあることを実験によって確かめた。

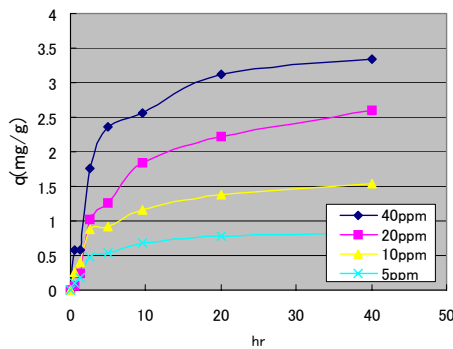


図-18 リン吸着量

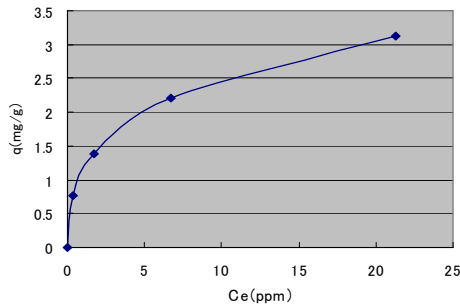


図-19 等温吸着曲線(PO₄-P)

(3) 環境浄化モデルプラント

上記(1)で述べたようにエビ池は重金属、有機物、抗生物質などによる汚染が深刻である。これらを効率的に分解・吸着する eco-friendly な浄化システムプラントを図-20 に提案する。このシステムは3パートからなる。すなわち、チャンバーAでは、物理的吸着(汚染水に特殊活性炭を混入して攪拌)により、チャンバーBでは化学的分解(紫外線、光触媒、オゾン)を利用し、チャンバーCでは生物学的分解(細菌)を用いる。これらを有機的に組み合わせたシステムで構成される。各部で最適な浄化条件を決める必要がある。

インドで汚染の拡散が深刻な DDT, DDD, DDE などの農薬類も吸着・分解の対象である。現在、DDE についての分解・吸着の基礎実験を行っている。

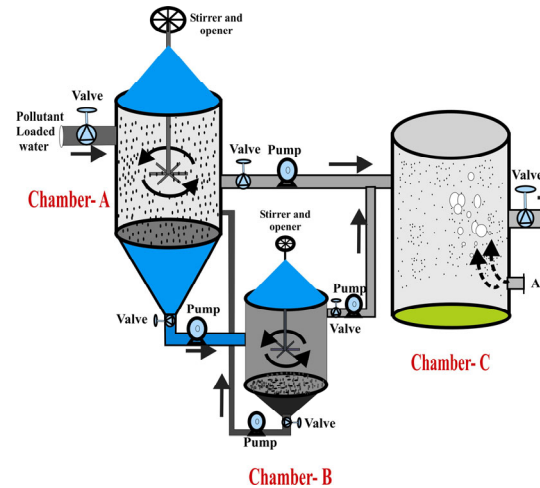


図-20 浄化システムプラント (提案)

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 9 件)

- ① Jatindra Nath Bhakta, Yukihiro Munekage, Distribution and Potential Impact of Metal Pollutants in the Coastal Environment: A Case Study with Special Reference to Coastal Aquaculture in Red River Delta of Viet Nam, *Electronic Journal of Biology*, 5(1),1-4, 2009, 査読有
- ② Jatindra Nath Bhakta, Yukihiro Munekage, Degradation of Antibiotics (Trimethoprim and Sulphmethoxazole) Pollutants Using UV and TiO₂ in Aqueous Medium, *Modern Applied Science*, 3(2),3-13, 2009, 査読有
- ③ J.N.Bhakta, Y. Munekage, Hg adsorption stoichiometry of ceramic and activated carbon from aqueous phase under different pH and temperature, *Journal of Engineering and Applied Sciences*, 査読有, 投稿中 (掲載確定)
- ④ J.N.Bhakta, Y. Munekage, Ceramic is a potential tool to reclaim aquatic environment: a short review, *Journal of Environmental Protection Science*, 2009, 査読有, 投稿中 (掲載確定)
- ⑤ J.N.Bhakta, P.Majumdar, Y. Munekage, Antimicrobial efficiencies of methanol extract of

Asteracantha longifolia, *Ipomoea aquatica* and *Enhydra fluctuans* against *Escherichia coli*, *Pseudomonas aeruginosa*, *Staphylococcus aureus* and *Micrococcus luteus*, The Internet Journal of Alternative Medicine, 2009, 査読有, 投稿中 (掲載確定)

⑥Md Salim, Yukihiro Munekage, Lead Removal from Aqueous Solution using Silica Ceramic: Adsorption Kinetics and Equilibrium Studies, International Journal of Chemistry, Vol. 1, No.1, Feb.,2009, 査読有

⑦Md Salim, Yukihiro Munekage, Removal of Arsenic from Aqueous Solution Using Silica Ceramic: Adsorption Kinetics and Equilibrium Studies, International Journal of Environmental Research, 3(1):13-22, Winter, 2009, 査読有

⑧Md Salim, Yukihiro Munekage, Silica Ceramic as Potential Adsorbents of Cadmium Removal from Aqueous Solutions, Research Journal of Environmental Science 2(3):185-196,2008, 査読有

⑨Jatindra Nath Bhakta, Yukihiro Munekage, Role of ecosystem components in Cd removal process of Aquatic ecosystem Ecological Engineering, Vol.32,274-280,2008, 査読有

⑩Md. Salim, Yukihiro Munekage and Kyaw Min Naing, Arsenic(III)Removal from Contaminated Water using Silica Ceramic: A batch Adsorption Study, Journal of Applied Sciences 7(16): 2134-2320, 2007, 査読有

⑪Teruya Maki, Hiroshi Hasegawa, Hiroyuki Kitami, Kyoko Fumoto, Yukihiro Munekage and Kazumasa Ueda, Bacterial degradation of antibiotic residues in marine fish farm sediments of Uranouchi Bay and phylogenetic analysis of antibiotic-degrading bacteria using 16S rDNA sequences, Fishries Science 72:811-820, 2006, 査読有

[学会発表] (計 0 件)

[図書] (計 2 件)

①Le Xuan Tuan and Yukihiro Munekage, The Study on the change of antibiotics under different light intensities, (411-418), The role of mangrove forest ecology and coral reefs in the disaster reduction and coastal life improvement (Vietnamese), Agricultural Publishing House, 434P, 2007

②Le Xuan Tuan and Yukihiro Munekage, The degradation of antibiotics in artificial seawater at different light intensities, (269-274), The Role of Mangrove and Coral Reef Ecosystems in natural disaster mitigation and coastal life improvement, Agricultural Publishing House, Hanoi, 385P, 2006

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

6. 研究組織

(1) 研究代表者

宗景 志浩 (MUNEKAGE YUKIHIRO)
高知大学・教育研究部自然科学系・教授
研究者番号：50036745

(2) 研究分担者

山本 由徳 (YAMAMOTO YOSINORI)
高知大学・教育研究部自然科学系・教授
研究者番号：00093956
吉田 徹志 (YOSIDA TETUSI)
高知大学・教育研究部自然科学系・教授
研究者番号：10145112
宮崎 彰 (MIYAZAKI AKIRA)
高知大学・教育研究部自然科学系・准教授
研究者番号：00304668
加藤 伸一郎 (KATO SINITIRO)
高知大学・教育研究部自然科学系・講師
研究者番号：60346707

(3) 連携研究者

BHAKTA J.N (バクタ ジャティンドラ ナース)
高知大学・農学部・研究員
研究者番号：80535237