

(24)

## 水生植物（マコモ）の根圏における硝化作用の抑制 手法の検討とそれによる窒素吸収と硝化の比較

### Inhibition of Nitrification Process and Comparison of the Nitrogen Uptake and Nitrification in the Rooting Zone under an Aquatic Plant (*Zizania Latifolia*)

江成敬次郎\*、浦川めぐみ\*、李 瑞雨\*、伊崎和夫\*、中山正与\*  
Keijiro ENARI\*, Megumi URAKAWA\*, Chanwoo LEE\*, Kazuo IZAKI\*, Masatomo NAKAYAMA\*

**ABSTRACT** ; *Zizania latifolia* is profitable for nutrients uptake and the nutrient elimination of a enclosed system, serving as food for migrating swans. Experiments in the laboratory scale were conducted to inhibit the nitrification process and to estimate the nitrogen uptake as well as the nitrification in the rooting zone of the *Zizania latifolia*. In order to eliminate the effects of soil adsorption, experiments were carried out on water culture. Inhibition of the nitrification can be achieved by ATU and ATU did not influence *Zizania latifolia* in nutrient uptake for 7 days. It was found that the amount of removal of NH<sub>4</sub>-H by the nitrification process was 4.7 times higher than that of the uptake in *Zizania latifolia* in September. It was also found that the reaction rate (K) by both uptake and nitrification was 0.146 mg·L<sup>-1</sup>·day<sup>-1</sup>·g-*Zizania latifolia*<sup>-1</sup> and that by uptake alone was 0.0165 mg·L<sup>-1</sup>·day<sup>-1</sup>·g-*Zizania latifolia*<sup>-1</sup>.

**KEYWORDS** ; Aquatic plant, nitrification, nitrogen uptake, water culture, *Zizania latifolia*

#### 1. はじめに

我々の周囲の水環境では、湖沼や内海、内湾といった閉鎖性水域の水質汚濁が改善されず大きな社会問題になっている<sup>1)</sup>。特に、窒素やリンなどの栄養塩類を含む生活排水などの流入による閉鎖性水域における富栄養化は、依然として解決が必要とされる問題である。その対策として、水生植物を使った水質浄化手法が注目されつつある<sup>2)~4)</sup>。この手法は、水生植物が水中の栄養塩を吸収して生長することや、根圏の微生物の働きなどを利用したものであり、できるだけエネルギーを使わずに、また低コストで水を処理する技術であるため、その価値が見直されるようになってきた。わが国においても、湖沼沿岸にはイネ科の植物が多数生育するが、大群落を作るものとしてはヨシとマコモがあり、これらの水質浄化システムの創出手法が多く検討されている<sup>1),5),6),7)</sup>。ヨシ湿地の場合は、これまでに湖沼・河川や生活排水を対象として浄化に利用された実績があり、ヘドロや水域の水質浄化の効果が明らかになっている<sup>1),5)</sup>。しかし、広範囲にヨシ湿地を創出するには、植栽時の作業量や採取時の処理などの問題があげられる。一方、大型の抽水植物であるマコモは、種子または根茎で越冬し、冬季には地上部は枯死するが根茎が残存する。その根茎は、白鳥など水鳥の餌となっており、植物の刈り取りや回収をせずに窒素・リンを系外に除去できる可能性を持つ植物である。しかし、白鳥などの

\*東北工業大学大学院工学研究科 (Graduate School of Engineering, Tohoku Institute of Technology)

飛来地である伊豆沼・内沼では沼周辺で植栽事業が行われているものの、水質浄化手法を創出するための基礎資料は十分とは言えない状況である<sup>6),7)</sup>。

水生植物を用いた水質浄化のうち、窒素除去のメカニズムには、植物による吸収、根圏の硝化菌による硝化作用と脱窒菌による脱窒作用、土粒子による吸着があるが、特に、マコモによる窒素吸収やマコモの根圏に存在する微生物による硝化・脱窒との関係などはまだ明確にされていない。したがって、それぞれのメカニズムを定量的に把握する必要があるし、このことによって水質浄化手法の最適環境条件を構築するための知見が得られるものと考えられる。

本研究は、前記した窒素除去のメカニズムのうち、吸着分を除き、植物による吸収分と硝化・脱窒分を定量的に評価することを目標としている。本実験では、そのための実験手法として、硝化の抑制を検討し、吸収と硝化を個別に求め、それぞれの比較を試みた。

## 2. 実験方法

### 2-1. 実験に使用した水生植物および実験装置

本実験に使用した水生植物は、マコモ (*Zizania latifolia*) である。この植物は、大型の抽水植物で、ヨシよりいくぶん水深の深いところを生育場所とする。草丈は 1~3m に生長する。本実験に使用したマコモは、根茎から発芽させたもので、あらかじめ、湿潤重量約 17~30g、草丈 80~120cm に生長させたものである。本実験は、窒素除去メカニズムの一つである土壤による窒素吸着を防ぐために水耕栽培を行った。実験に用いた水耕栽培装置を Fig. 1 に示す。透明ビニール袋に入れた 5L の栽培液にマコモの苗を根が浸るように入れ、さらに透明ビニール袋を黒ビニール袋で覆いビニール袋の口元を結わえてポリバケツに設置した。このような状態で、蒸発量を無視することができ、栽培液量の減少は吸水量を示すことになる。栽培液の組成は Table 1 に示す。栽培液には、NH<sub>4</sub>-N が 14mg·L<sup>-1</sup>、PO<sub>4</sub>-P が 6mg·L<sup>-1</sup> となるように窒素とリンが含まれている。

Table 1 Composition of culture solution

Components	Concentration (mg·L <sup>-1</sup> )
K <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	52.3
CaCl <sub>2</sub> ·2H <sub>2</sub> O	44.1
MgCl <sub>2</sub> ·6H <sub>2</sub> O	122.0
C <sub>10</sub> H <sub>12</sub> N <sub>2</sub> O <sub>8</sub> NaFe·2H <sub>2</sub> O	18.9
H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub>	3.01
MnSO <sub>4</sub> ·5H <sub>2</sub> O	2.17
CuSO <sub>4</sub> ·5H <sub>2</sub> O	0.075
ZnSO <sub>4</sub> ·7H <sub>2</sub> O	0.201
Na <sub>2</sub> MoO <sub>4</sub> ·2H <sub>2</sub> O	0.024
(NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	66.0
NaH <sub>2</sub> PO <sub>4</sub> ·2H <sub>2</sub> O	31.2

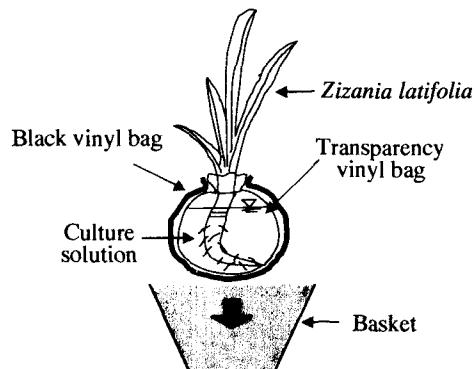


Fig. 1 Schematic diagram of apparatus

Table 2 Experimental conditions

	RUN1	RUN2	RUN3	RUN4	RUN5
<i>Zizania latifolia</i>	○	○	×	○	×
MLSS	○	×	○	×	○
ATU	×	○	×	×	○

Notice : 400mL of MLSS (620mg·L<sup>-1</sup>) and 5mL of ATU (2g·L<sup>-1</sup>) were added.

MLSS contain nitrifying bacteria. ○ : added × : not added

## 2-2. 実験方法

15 本のマコモを 5 本ずつ RUN1、RUN2、RUN4 に分け、7 日間ガラスハウスで水耕栽培した。また、マコモのない条件として RUN3 と RUN5 を用意した。各 RUN の実験条件を Table 2 に示す。各 RUN にアルカリ度供給のため、pH 調整剤  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  溶液 ( $80 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$ ) を  $5 \text{ mL}$  ずつ添加した。さらに、各 RUN の条件によって、硝化抑制剤 ATU (Allylthiourea) 溶液 ( $2 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$ ) を  $5 \text{ mL}$ 、硝化菌を含む活性汚泥混合液 ( $620 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ ) を  $400 \text{ mL}$  添加した。硝化菌を含む活性汚泥とは、グルコースを主体とした人工下水で培養していた活性汚泥混合液 ( $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ ,  $\text{Na}_2\text{CO}_3$ , リン酸緩衝液 ( $\text{KH}_2\text{PO}_4$ ,  $\text{K}_2\text{HPO}_4$ ) を用いて 2 ヶ月間培養したものである。ATU は、硝化反応の抑制剤として、アンモニア性窒素から亜硝酸性窒素への反応を抑制する。実験期間中、毎日栽培液を  $50 \text{ mL}$  採水し、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$  の濃度、pH を測定した。また、実験前後のマコモ重量の変化を測定した。各無機態窒素濃度はオートアナライザー (AACS-II) を用いて測定した。また、本実験は 9 月に行った。

## 3. 実験結果および考察

### 3-1 無機態窒素濃度の変化

マコモを含む各 RUN では、各 RUN ごとに 5 本のマコモで 7 日間実験を行ったが、無機態窒素濃度の変化が 5 本ともにほぼ同じ傾向が見られたので、本研究では 5 本の平均値による考察を行う。また、マコモを含まない RUN では 7 日間の実験期間中、測定サンプルとして毎日  $50 \text{ mL}$  ずつ採水した。また、マコモのある RUN では、蒸散によって水量が減少する。これらのことから、栽培液中の無機態窒素濃度に影響する<sup>8)</sup>。Table 3 に実験前後の栽培液重量を示す。これらの結果より、マコモのある RUN1、2、4 では、平均でおよそ  $0.42 \text{ kg}$  ( $420 \text{ mL}$ ) が減少しており、RUN3、5 の減少量で示される採水分 (約  $0.3 \text{ kg}$ 、

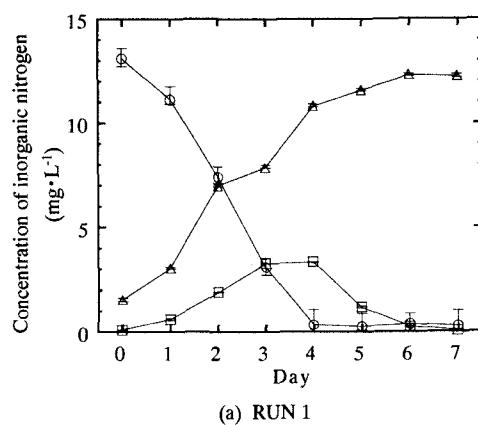
Table 3 Changes in weight of culture solution

	RUN1			RUN2			RUN3			RUN4			RUN5			
	Max.	Min.	Ave.	Max.	Min.	Ave.	Max.	Min.	Ave.	Max.	Min.	Ave.	Max.	Min.	Ave.	
Weight of culture solution before experiment	4.99	4.95	4.97	4.99	4.96	4.98	5	4.91	4.97	4.96	4.97	4.96	5	4.96	4.96	
(kg)	After experiment	4.57	4.5	4.54	4.6	4.53	4.56	4.65	4.61	4.6	4.58	4.54	4.56	4.61	4.6	4.61

$300 \text{ mL}$ ) を減じると、約  $0.12 \text{ kg}$  ( $120 \text{ mL}$ ) が蒸散していると考えられる。ここでは、マコモの蒸散による水量変化のある RUN1、2、4 と、蒸散による水量変化のない RUN3、5 の濃度変化を比較するため、RUN1、2、4 の濃度を以下の式を用いて補正した。ここで、 $C_{ta}$  は  $t$  日目の補正した濃度 ( $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ )、 $C_t$  は  $t$  日目の測定濃度 ( $\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ )、 $Q_t$  は  $t$  日目の水量 (L)、 $Q_0$  は初期水量 (L) を意味している。

$$C_{ta} = C_t \times Q_t / Q_0 \quad (1)$$

各 RUN の  $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$  濃度変化を Fig. 2 に示す。RUN1 と RUN3 では、 $\text{NH}_4\text{-N}$  濃度が急激に減少し、約 4 日目にはほぼ  $0 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$  まで減少した。また、 $\text{NO}_3\text{-N}$  濃度は増加する傾向が見られたが、 $\text{NO}_2\text{-N}$  濃度は約 3 日目にピークに達し、その後減少した。RUN2 と RUN4、RUN5 では、 $\text{NH}_4\text{-N}$  濃度はやや減少したが、 $\text{NO}_2\text{-N}$  と  $\text{NO}_3\text{-N}$  濃度はほとんど変化がなく、ほぼ  $0 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$  を維持した。Fig. 3 に各 RUN における pH の変動を示す。RUN1 と RUN3 の pH は初期 pH 値 8.8 から下がり始め、4 日目には約 5.6 付



(a) RUN 1

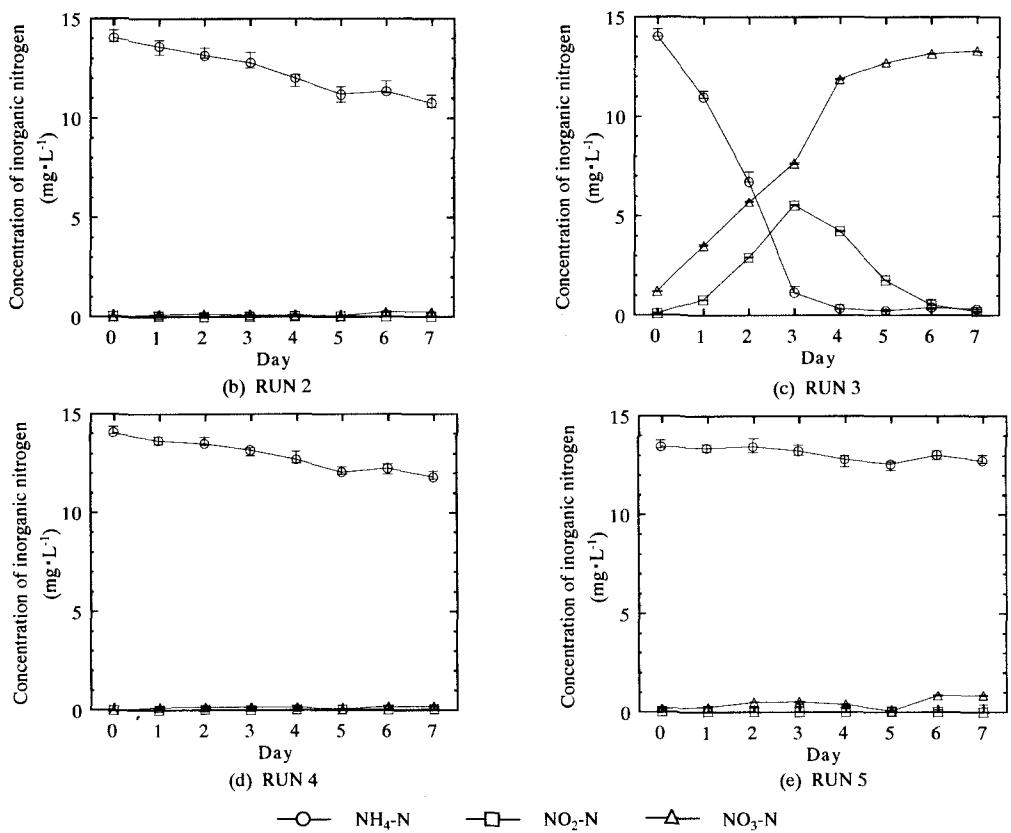


Fig. 2 Concentration changes in inorganic nitrogen

近にまで減少した。このことから、RUN1 と RUN3 では硝化が起こっていることが分かる。一方、RUN2 と RUN4、RUN5 の pH は初期 pH8.8 から減少したもの、7 日目でも 7.3~8 の値であった。

### 3-2 ATU による硝化作用の抑制およびマコモの窒素吸収作用への影響

Fig. 2 での RUN3 と RUN5 を比較すると、RUN3 は NO<sub>2</sub>-N と NO<sub>3</sub>-N 濃度の増加や pH の低下など典型的な硝化現象が見られた反面、RUN5 は ATU の添加によって硝化が抑えられていることが分かる。次にマコモに対する ATU の影響を考察するため、RUN2 と 4 を比較する。RUN2 と 4 におけるマコモ単位湿重量あたりの NH<sub>4</sub>-N 濃度の減少を Table 4 に示す。ATU が入っている RUN2 と入っていない RUN4 のマコモ単位湿重量あたりの NH<sub>4</sub>-N 濃度減少はそれぞれ  $0.13 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1} \cdot \text{g-Zizania latifolia}^{-1}$  と  $0.12 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1} \cdot \text{g-Zizania latifolia}^{-1}$  になり、ほぼ同じ濃度減少値が得られた。以上の結果から 7 日間で見た場合、ATU はマコモの窒素吸収作用に悪影響を与えるに、硝化作用を抑制できることが分かった。

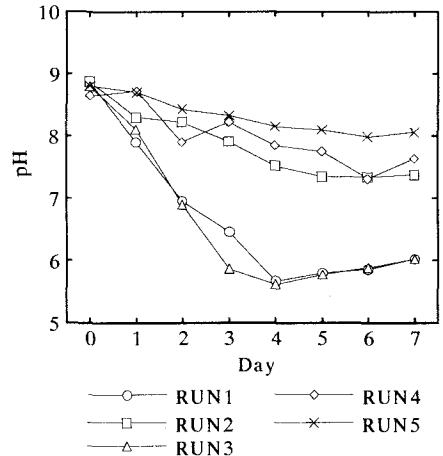


Fig. 3 Changes in pH

Table 4 Concentration changed of NH<sub>4</sub>-N per wet weight of *Zizania latifolia*

	RUN2	RUN4
Average wet weight of <i>Zizania latifolia</i> (g)	27	20
Concentration changed of NH <sub>4</sub> -N (mg·L <sup>-1</sup> ) in 7 days	3.4	2.3
Concentration changed of NH <sub>4</sub> -N per wet weight of <i>Zizania latifolia</i> (mg·L <sup>-1</sup> ·g <sup>-1</sup> )	0.13	0.12

3-3 マコモによる NH<sub>4</sub>-N の吸収と硝化作用との比較

実験条件から RUN1 はマコモによる NH<sub>4</sub>-N の吸収と硝化作用が生じる系（吸収+硝化系）であり、RUN2 と 4 は ATU による硝化作用を抑制したため、マコモによる吸収だけが生じる系（吸収系）である。したがって、RUN1 と RUN2,4 を比較することにより硝化とマコモの吸収による NH<sub>4</sub>-N 変化量を比較することが可能である。

Fig. 4 に RUN1、2、4 における NH<sub>4</sub>-N 濃度減少を以下の式で近似し、減少速度を求めた。RUN1 の場合、NH<sub>4</sub>-N 濃度が 4 日目にはほぼ 0 mg·L<sup>-1</sup> になったため、4 日目までのデータを用いた。RUN1 の相関係数 ( $R^2$ ) は 0.98、RUN2 は 0.97、RUN4 は 0.96 であり、良好な相関関係が見られた。Fig. 4 の結果に基づ

$$\frac{d(NH_4 - N)}{dt} = -K \quad (2)$$

き、RUN1、2、4 においてマコモ単位湿重量あたりの濃度減少速度 ( $K$ , mg·L<sup>-1</sup>·day<sup>-1</sup>·*Zizania latifolia*<sup>-1</sup>) を求め、Table 5 に示した。RUN1 のマコモ単位湿重量あたりの減少速度 ( $K$ ) は 0.146 mg·L<sup>-1</sup>·day<sup>-1</sup>·g-Zizania latifolia<sup>-1</sup> であった。また、RUN2 と 4 のマ

コモ単位湿重量あたりの減少速度 ( $K$ ) はそれぞれ 0.017 mg·L<sup>-1</sup>·day<sup>-1</sup>·g-Zizania latifolia<sup>-1</sup>、0.016 mg·L<sup>-1</sup>·day<sup>-1</sup>·g-Zizania latifolia<sup>-1</sup> であった。このように、吸収と硝化が生じる系と吸収だけの系では、NH<sub>4</sub>-N 濃度の減少速度定数で比較すると約 9 倍の開きが生じた。次に NH<sub>4</sub>-N 減少量を比較する。Table 6 に RUN1、2、4 のマコモ単位湿重量あたりの NH<sub>4</sub>-N 減少量を示す。RUN1 のマコモ単位湿重量あたりの NH<sub>4</sub>-N 減少量は 2.8 mg·g-Zizania latifolia<sup>-1</sup>、RUN2 は 0.63 mg·g-Zizania latifolia<sup>-1</sup>、RUN4 は 0.58 mg·g-Zizania latifolia<sup>-1</sup> となった。RUN1 から RUN2 と 4 の平均値を引くと硝化による NH<sub>4</sub>-N の減少分となり、硝化による NH<sub>4</sub>-N の減少は吸収による減少のうち約 79%に相当し、約 21%がマコモの吸収による NH<sub>4</sub>-N の減少になることが分かる。以上の結果から、9 月に行った本実験では硝化作用による NH<sub>4</sub>-N の変化量がマコモの吸収による NH<sub>4</sub>-N 変化量より減少量で約 4.7 倍、濃度減少速度で約 9 倍大きかったという結果が得られた。なお、硝化による NH<sub>4</sub>-N の変化量では硝化菌量が影響する。また、植物による栄養塩の吸収力は季節ごとに異なることが報告されている<sup>9),10)</sup>。さらに、湿地において 15.6 gN·m<sup>-2</sup>·day<sup>-1</sup> の窒素負荷において 68%の窒素除去のうち 4%が植物の吸収により除

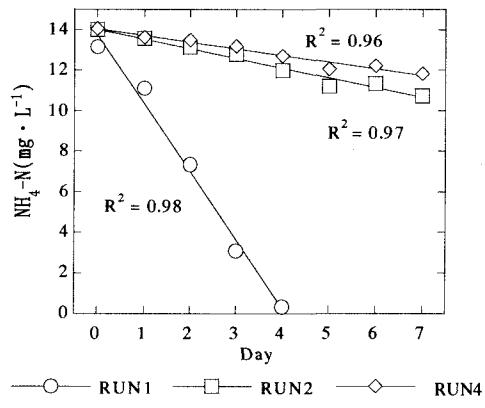
Fig. 4 NH<sub>4</sub>-N removal rate

Table 5 Reaction rate

	RUN1	RUN2	RUN 4
K (mg·L <sup>-1</sup> ·day <sup>-1</sup> ·g-Zizania latifolia <sup>-1</sup> )	0.146	0.017	0.016

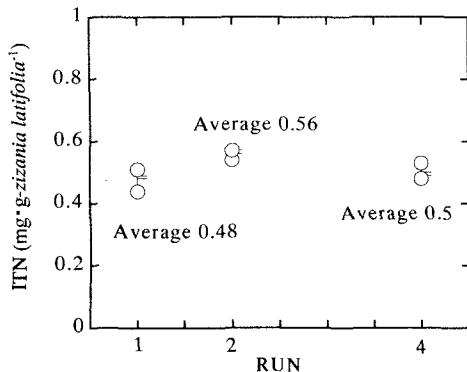
Table 6 Amount of changed NH<sub>4</sub>-N per wet weight of *Zizania latifolia*

	RUN1	RUN2	RUN4
Average wet weight of <i>Zizania latifolia</i> (g)	23	27	20
Amount of changed NH <sub>4</sub> -N in 7 days (mg)	64.5	17	11.5
Amount of changed NH <sub>4</sub> -N per wet weight of <i>Zizania latifolia</i> (mg·g <sup>-1</sup> <i>Zizania latifolia</i> )	2.8	0.63	0.58

去されたという報告もある<sup>11),12)</sup>。このように、根圏における硝化作用や植物による吸収には多くの要因が影響を与えている。それらをコントロールして定量的に比較することが今後の課題である。

### 3-4 吸収+硝化系と吸収系のITN 減少量の比較

Fig. 5にRUN1、2、4での7日間におけるマコモ単位湿重量あたりの無機態窒素（ITN）減少量を示す。RUN1、2、4の7日間におけるITN 減少量はそれぞれ  $0.48 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1} \text{-Zizania latifolia}^{-1}$ 、 $0.56 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1} \text{-Zizania latifolia}^{-1}$ 、 $0.5 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1} \text{-Zizania latifolia}^{-1}$  であった。RUN1の場合、RUN2、4と比べてやや低いものの、ほぼ同じ減少量が見られた。つまり、硝化が生じていても ITN 除去量は大きくならなかった。その理由は硝化によって生じた NO<sub>3</sub>-N が脱窒によって除去されていないことやマコモに吸収されていないためであると考えられる。マコモというイネ科の植物は好アンモニア性植物であることが報告されている<sup>13),14)</sup>。そして、NH<sub>4</sub>-N と NO<sub>3</sub>-N が共存する場合に NH<sub>4</sub>-N の吸収が先行する現象も観察されている。したがって、マコモを用いた水質浄化システムにおいて窒素除去を最大にするためには、硝化によって生じた NO<sub>3</sub>-N が十分に脱窒作用で除去される環境条件が必要と考えられる。

Fig. 5 Amount of changed ITN per wet weight of *Zizania latifolia*

### 4.まとめ

本研究結果より以下の知見が得られた。

- 1) 7日間では、ATUの添加によるマコモの吸収作用に悪影響を与えるに硝化作用を抑制することが可能であった。したがって、この手法により様々な条件でのマコモによる吸収分と硝化・脱窒分を個別に評価できる可能性が得られた。
- 2) マコモ単位湿重量あたりの吸収と硝化による NH<sub>4</sub>-N 濃度の減少速度 (K) は  $0.146 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1} \cdot \text{day}^{-1} \cdot \text{g}^{-1} \text{-Zizania latifolia}^{-1}$  であり、吸収だけの減少速度は約  $0.0165 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1} \cdot \text{day}^{-1} \cdot \text{g}^{-1} \text{-Zizania latifolia}^{-1}$  であった。
- 3) 9月に行った、本実験ではマコモ単位湿重量あたりの硝化と吸収による NH<sub>4</sub>-N 減少量は約 2.8 mg·g<sup>-1</sup>*Zizania latifolia*<sup>-1</sup>、マコモの吸収による NH<sub>4</sub>-N 減少量は約 0.6 mg·g<sup>-1</sup>*Zizania latifolia*<sup>-1</sup> であり、硝化による NH<sub>4</sub>-N の減少量は吸収による減少量より約 4.7 倍大きかった。
- 4) NH<sub>4</sub>-N の減少はマコモによる吸収より硝化による分が大きいものの、最大窒素除去を図るために硝化によって生じた NO<sub>3</sub>-N が十分に脱窒作用で除去される環境条件が必要であることが指摘された。

## 5. 参考文献

- 1) 徐開欽、加藤智博、稻森悠平、西村修、細見正明、須藤隆一：唆渫ヘドロ上に創出した人工ヨシ湿地の水質浄化機能の評価、用水と廃水、Vol.41, No.6, pp.504-512、1999。
- 2) 細見正明、須藤隆一：湿地による生活排水の浄化、水質汚濁研究、Vol.14、No.10, pp.674-681、1991。
- 3) Jos T.A. Verhoeven and Arthur F.M. Meuleman : Wetlands for Wastewater Treatment: Opportunities and Limitations, *Ecolog. Engin.*, Vol.12, pp.5-12, 1999.
- 4) Brix H. : Functions of Macrophytes in Constructed Wetlands, *Wat. Sci. Tech.*, Vol.29, pp.71-78, 1994.
- 5) 細見正明：ヨシ人工湿地による水質浄化法、用水と廃水、Vol.36、No.1, pp.40-43、1994。
- 6) 江成敬次郎、斎藤考市、中山正与、柴崎徹、佐々木久雄、鈴木淳：伊豆沼に設置された給餌地の汚濁負荷削減効果についての調査研究、環境システム研究、Vol.20, pp.386-390、1992。
- 7) 江成敬次郎、杉山智洋、柴崎徹：伊豆沼に設置された植物浄化田における窒素・リン除去、環境システム研究、Vol.23, pp.478-482、1995。
- 8) 江成敬次郎、西村友樹、佐藤保、斎藤茂、斎藤孝市：水生植物（マコモ）の吸水量評価に関する研究、日本水処理生物学会、Vol.35、No.2, pp.85-97、1999。
- 9) Hosomi M., Murakami A. and Sudo R. : A Four-Year Mass Balance for a Natural Wetland System Receiving Domestic Wastewater, *Wat. Sci. Tech.*, Vol.30, No.8, pp.235-244, 1994.
- 10) Watanabe Y., and Sakurai Y. : Nitrogen and Phosphorus Content in Macrophytes During Growing Season and Decay Season, *Report of Environmental Science Supported by the Ministry of Education, "Ecosystem in Coastal Environmental and preservation"*, pp.26-37, 1988.
- 11) Bowmer K. : Nutrient Removal from effluents by an artificial wetland – Influence of aeration and preferential flow studied using bromide and dye tracers, *Wat. Res.*, Vol.21, pp.591-599, 1987.
- 12) Susan B. Peterson and John M. Teal : The Role of Plants in ecologically Engineered Wastewater Treatment Systems, *Ecolog. Engin.*, Vol.6, pp.137-148, 1996.
- 13) 態沢喜久雄：植物栄養学大要、養賢堂、pp.93-100、1995。
- 14) Walter Larcher : 植物生態生理学、シュプリンガー・フェアラーク東京、pp.136-140、1999。

## 謝辞

本研究の一部は文部省科学研究費補助金基盤研究（C）課題番号（08680617）とハイテクリサーチセンター整備事業の補助を受けて行われた。記して謝意を表す。