

(27)

凝集・泡沫分離法による淡水赤潮プランクトン
Peridinium bipes の除去

Removal of Freshwater Red Tide Plankton *Peridinium bipes*
by Coagulation and Foam Separation

仲元寺宣明*, 鈴木祥広*, 丸山俊朗*

Nobuaki CHUGANJI*, Yoshihiro SUZUKI*, and Toshiroh MARUYAMA*

ABSTRACT; In this study, the coagulation and foam separation for collection of red tide phytoplankton *Peridinium bipes* in fresh water was examined in a batch system. The coherency of *P. bipes* was worse than other phytoplankton. During the treatment of *P. bipes* suspension by the coagulation and foam separation without pretreatment, the cells were difficult to catch in the iron hydroxide floc, and the recovery rate was low. By pretreating with ozone or UV, however, the coagulation and foam separation method was remarkably improved, and the recovery rate was above 90%. The adequate coagulant dosages of ozone and UV pretreating methods were 3mg-Fe/ℓ and 5mg-Fe/ℓ, respectively. The casein dosage was 15mg/ℓ in each case. The ozone method was faster than the UV method. The ozone method was accomplished in only 9 minutes. Iron and casein chemicals were scarcely detected in the treated water of the ozone method. As a result of the AGP test, in a control medium and the treated water of the ozone method, the significant difference could not be observed. In conclusion, ozone aeration is the appropriate pretreatment for collecting *P. bipes* by the coagulation and foam separation.

KEY WORDS; *Peridinium bipes*, coagulation and foam separation, pretreating with ozone or UV

1 はじめに

渦鞭毛藻 *Peridinium bipes* (以降、*Peridinium* と略す) を原因種とする淡水赤潮は、発生水域が貧栄養から中栄養水域であり、また、毒性を示さないことから環境衛生上問題とされることはあまりなかった。しかしながら、湖水を赤褐色に染めること、腐敗したときの異臭が周囲に漂うことなどからダム管理者や、観光地としての意味合いを持つような湖では、発生抑制、または効率的な除去法の開発が望まれている。*Peridinium* による淡水赤潮は 1970 年代から 30 年余りの問題¹⁾であり、その生理生態²⁾および集積機構^{3), 4)}については貴重な知見が集積されてきているが、回収除去法についての報告は極めて少ない。

丸山らは、海産魚介類蓄養のための飼育水浄化に関する研究において、空気分散方式の泡沫分離法が飼育水の水質維持に極めて効果的であることを明らかにした⁵⁾。この泡沫分離法の特色は、魚から分泌されるタンパク質である体表面粘質物が残餌や排泄物などの懸濁物を気泡に吸着させる捕集剤としての役割を果たし、連続的に気泡を供給すると、供給される気泡で水面上に懸濁物を濃縮したタンパク質特有の壊れにくい泡(安定泡沫)が形成されることを利用している点である。さらに、この原理を発展させて、凝集剤(鉄塩、アルミニウム塩)と乳製カゼイン(タンパク質; 以降、カゼインと略す)を併用した凝集・泡沫分離法による淡水・海産赤潮プランクトンの除去を検討し、99%以上の極めて高い除去率が得られることを明らかにした^{6), 7)}。凝集・泡沫分離法は湖沼・貯水池の *Peridinium* 赤潮対策として、極めて効果的な除去法になり得ると考えられる。

*宮崎大学工学部土木環境工学科 (Dep. Of Civil and Environmental Engineering, Miyazaki University)

そこで本研究では、*Peridinium* の除去法として凝集・泡沫分離処理を検討し、本法における適切な注薬条件および操作条件を明らかにすることを目的とした。

2 材料と方法

2.1 *Peridinium bipes*

Peridinium による淡水赤潮が発生した某ダムから、赤潮懸濁水(以降、*Peridinium* 懸濁液と称する)を約 100 ℓ 採取し、直ちに実験室に持ち帰り、容器に移して連続照射(約 2,000lux)を行った。懸濁液は 1 日数回攪拌し、1~2 週間以内に集中的に実験を行った。浮遊している *Peridinium* を採取するため、現地から持ち帰った *Peridinium* 懸濁液を攪拌後、30 分間静置し、死滅した細胞あるいはその他の懸濁粒子を沈降させた。そして、表層一部から静かに約 5 ℓ 採水し、これを実験用の原水とした。実験期間中、pH は 6.8~8.0、細胞数は $1.0\sim 2.0\times 10^3$ cells/ml、電気伝導度(EC)は $55\sim 60\ \mu\text{S}/\text{cm}$ 、濁度は 8.0~18.0 度の範囲で変動した。また、共存藻類は見られず、原水濁度と *Peridinium* の細胞密度は良い相関を示した。

2.2 回分式泡沫分離装置

本実験で使用した回分式泡沫分離装置を図-1 に示した。本装置は、気液接触塔(内径 3.0cm、長さ 100cm、透明アクリル製)、ガラスボールフィルター(木下理化学工業製、G-4、孔径 5~10 μm)、空気流量計(小島製作所製、RK1200 型)、泡沫吸引管、吸引ポンプ(レイシー社製、AP-115RN)、送気ポンプ(レイシー社製、AP-115RN)、泡沫トラップ瓶、およびドレンからなる。

2.3 実験方法

(1) 凝集沈殿実験

Peridinium 懸濁液について、硫酸第二鉄($\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3$ 、和光純薬製)を用いた場合の至適 pH 条件をジャーテストで調べた。500 ml の懸濁液をジャーテスター(ミヤモト製、8 連式)で急速攪拌を行いながら、pH を調整(1N-HCl、NaOH)し、所定量の硫酸第二鉄を添加後、急速攪拌(150rpm)3 分間、緩速攪拌(40rpm)15 分間を行った。なお、*Peridinium* は走光性を有する事から、沈殿は照度約 4,000lux の下で行い、沈殿時間は 5 分間とした。5 分間とした理由は、未処理の懸濁液を照度 4,000lux の下に静置したところ、5 分後に水面に集積し、濁度の上昇が確認されたためである。5 分経過しても浮上しないものを沈殿したと判断した。沈殿後、ビーカーを静かに傾斜して上澄水 150 ml を採取し処理水とした。原水と処理水の濁度の差から濁度除去率を求めた。

(2) 水酸化鉄フロックの *Peridinium* 捕捉率

Peridinium 懸濁液について、凝集剤 10mg-Fe/ℓ、pH6.5 ± 0.3 の条件で急速攪拌を 3 分間行いフロックを形成させた。フロック懸濁液から 1 ml を分取し、水酸化鉄フロックに捕捉されている細胞数、および捕捉されていない細胞数を倒立顕微鏡(ニコン社製、TMD300 型)で計数した。捕捉率は、全細胞数に対するフロックに捕捉された細胞数から求めた。

(3) 凝集・泡沫分離実験

カゼイン(化学用、和光純薬製)原液(10,000mg/ℓ)は、0.01N-NaOH に溶解して作成した。原水 500 ml をジャーテスターで急速攪拌を行いながら、pH を調整し、所定量の凝集剤を添加して急速攪拌 3 分間を行った。つづいて所定量のカゼインを添加し、30 秒間攪拌を継続した後、回分

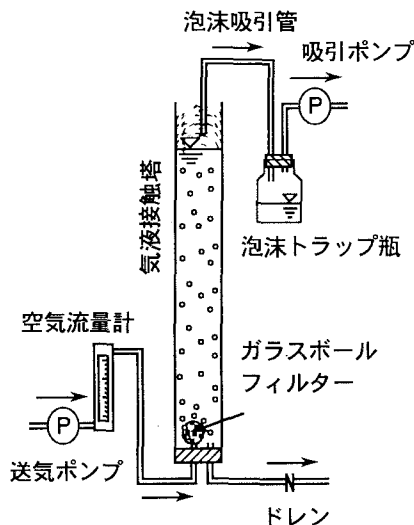


図-1 回分式泡沫分離装置。

式泡沫分離装置(図-1)の気液接触塔に流量 0.3 l/min (気液比 3.0)の空気を送気しつつ移し、水面上に形成される安定泡沫を泡沫トラップ瓶に吸引・回収した。泡沫分離処理を 5 分間行った後、ドレンより処理水を全量回収した。原水と処理水の濁度の差から濁度除去率を求めた。

(4) 泡沫分離処理水水質分析

泡沫分離処理水中のカゼイン、全鉄(T-Fe)、硝酸性窒素($\text{NO}_3\text{-N}$)、およびリン酸塩($\text{PO}_4\text{-P}$)の濃度を測定した。カゼイン、 $\text{NO}_3\text{-N}$ および $\text{PO}_4\text{-P}$ は、ろ過($0.45\text{ }\mu\text{m}$)してから分析した。カゼインはタンパク質の定量法である Bradford 法⁸⁾に従い、Coomassie Brilliant Blue (CBB)色素試液(ナカライテスク社製)を用いて測定した。T-Fe は、フェロジン法⁹⁾(3-(2-Pyridyl)-5,6-bis(4-sulfophenyl)-1,2,4-triazine, disodium salt ; Ferrozone、ドータイト製)を用いて測定した。また、 $\text{NO}_3\text{-N}$ はカドミウム還元法(HACH 社製、DR-2000)、 $\text{PO}_4\text{-P}$ はモリブデン青法によった。

(5) AGP 試験

泡沫分離処理水の細胞増殖能力(Algal Growth Potential、以降 AGP と略す)試験を行った。泡沫分離処理水をガラス繊維ろ紙(Whatman 社製、GF/C 型、孔径 $1.2\text{ }\mu\text{m}$)で吸引ろ過し、高温・高圧滅菌(121°C 、 1.2atm 、30min ; トミー工業製、BS-325 型)を行った。放冷後、試験水 95 ml に *Peridinium* 原水 5 ml を植継ぎ、全量を 100 ml とした。同様の操作を原水についても行い、これをコントロールとした。培養条件は、 25°C 、静置、照度 4,000lux、明暗周期 12 時間とし、一日数回手で攪拌した。また、試験期間中毎日、マイクロピペットで $100\text{ }\mu\text{l}$ の培養液をスライドガラス上に滴下し、細胞数を倒立顕微鏡で計数した。

3 結果と考察

3.1 凝集沈殿処理および泡沫分離処理

図-2 は、凝集沈殿処理における pH と濁度除去率の関係である。凝集剤添加量 20mg-Fe/l 以上、 $\text{pH}5\sim7.5$ で最も高い濁度除去率(85~90%)が得られた。そこで、pH を 6~7 に調整し、凝集剤添加量を $10\sim50\text{mg-Fe/l}$ 、カゼイン添加量を $20\sim100\text{mg/l}$ の範囲で変化させて、凝集・泡沫分離処理における濁度除去率を求めた。添加した Fe はフロックを形成し、泡沫も良好に生成されたにも関わらず、*Peridinium* はほとんど回収されなかった(除去率 50%以下)。また、*Peridinium* 懸濁液に粘土粒子のカオリンを分散させた懸濁液を作成して、同様の操作を行ったところ、カオリンのみがフロックとともに良好に回収され、*Peridinium* の細胞は処理水中に残留することがわかった。

そこで、凝集沈殿処理を行った後の *Peridinium* 懸濁液を照度 4,000lux の下に放置し、観察した。すると、静置 30 分後に、一度沈殿した *Peridinium* の一部が再び浮上し、遊泳する現象が見られた。これは、*Peridinium* の細胞がフロックに捕捉されていないことを意味しており、凝集・泡沫分離法による処理が不良であった原因と考えられた。

植物プランクトン細胞表面には、金属水和物の吸着できる部位(吸着サイト)とできない部位があり、植物プランクトンの種類によっても細胞表面における金属水和物の吸着面積が異なることが報告されている¹⁰⁾。本研究の対象種である *Peridinium* の細胞表面に関連する研究事例は見あたらないが、親水性である水酸化鉄の凝集フロックに吸着・捕捉されなかったことから、表面は水酸化鉄が吸着できない界面(非吸着性

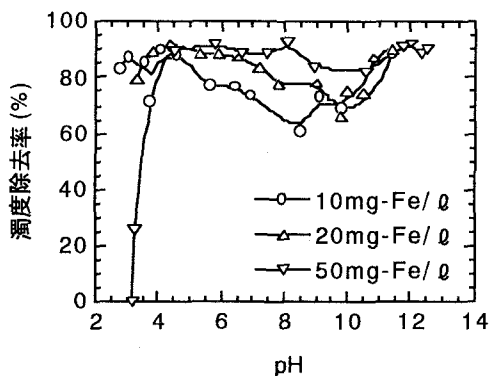


図-2 凝集沈殿処理におけるpHと濁度除去率の関係。

界面)、おそらく疎水性界面であると推察された。また、*Peridinium* は遊泳能力を有すること、細胞が複数の鏡状の殻からなる複雑な形状である¹¹⁾ことも、フロックに捕捉され難い要因であると考えられる。

3.2 前処理を行った場合の凝集沈殿処理における除去率、および水酸化鉄フロックの *Peridinium* 捕捉率

物理・化学的処理によって、遊泳運動を停止させ、細胞表面の非吸着性界面を水酸化鉄の吸着できる界面に改変することができれば、*Peridinium* はフロックに捕捉され、凝集・泡沫分離処理によってフロックとともに除去することが可能になると考えた。そこで、UV 照射(Nippo 製 UV ランプ、8W)、オゾン曝気(O₃、東芝製)、塩素(NaOCl、和光純薬製)、過酸化水素水(H₂O₂、和光純薬製)、超音波(Nihonseiki 製超音波破碎機、US-150 型)、硫酸銅(CuSO₄、和光純薬製)による前処理を行い、凝集性を検討した。UV、O₃、H₂O₂、および超音波処理については、予め、それぞれの処理条件と生残率の関係を調べ、殺藻率 100%が得られる条件を求めた (表-1)。

表1 前処理方法と処理時間.

前処理方法	条件	時間
UV	40mW/min・cm ²	10min
O ₃	6.38mg-O ₃ /ℓ	1.1ℓ/min 30sec
超音波	超音波破碎機	3min
H ₂ O ₂	100mg-H ₂ O ₂ /ℓ	3min
CuSO ₄	2.0mg-CuSO ₄ /ℓ	1min
塩素	1.0mg-Cl ₂ /ℓ	1min

それぞれの方法で *Peridinium* 懸濁液を前処理してから凝集沈殿処理した場合における、pH と濁度除去率の関係を図-3 に示した。凝集剤添加量は 10mg-Fe/ℓ の一定とした。UV、O₃、および塩素の場合、pH6~9 で安定した除去率(88~90%)が得られた。一方、H₂O₂、超音波、および CuSO₄ の場合には、未処理のものと比較すると高い除去率が得られたものの、安定した除去率が得られなかった。

次に、水酸化鉄フロックの *Peridinium* の捕捉の程度を調べた(図-4)。前処理を行わない場合、捕捉率は 53%であり、吸着サイトが少ないことが示唆された。ところが、前処理を行うことによって捕捉率は著しく向上した。最も捕捉率の高い前処理方法は O₃ であり、捕捉率は 99%であった。塩素、UV も極めて高い値を示し、それぞれ 95%、96%であった。一方、凝集沈殿処理において除去率の低かった H₂O₂、超音波、および CuSO₄ は捕捉率も低かった。

アルミニウム塩による植物プランクトンの凝集沈殿処理は、前塩素処理によって植物プランクトンの代謝する有機物質が酸化分解され、凝集性が向上することが報告されている¹²⁾。本研究においても、酸化力の強い O₃、UV、および塩素の処理法では、凝集性が向上し、高い捕捉率が得られた。細胞表面の非吸着性界面の一部が酸化作用によって改変され、吸着サイトが生じて水酸化鉄が吸着できるようになり、凝集性が向上したと考えることができる。H₂O₂ も酸化力を有する薬剤であるが、捕捉率は低かった。この原因は不明であるが、OH ラジカルのための酸化反応では表面を改変するまでには至らなかったと思われる。

一方、重金属の銅(CuSO₄)で細胞内の生理活性を失活させた細胞、および単に超音波で物理的に細胞壁を破壊させた細胞の表面には、非吸着性界面がそのままの状態であることから、凝集性は向上しなかったと考えられる。

以上の結果から、O₃、塩素、および UV 処理を行った場合の、凝集・泡沫分離処理を再度検討することとした。

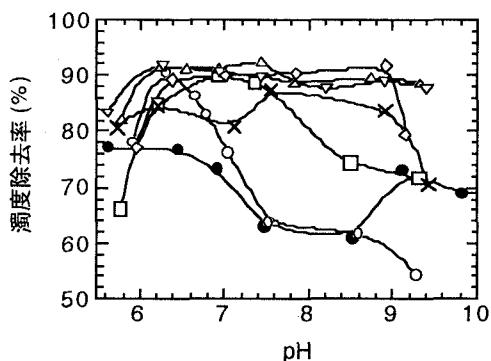


図-3 前処理を行った場合の凝集沈殿処理におけるpHと濁度除去率の関係。

●, 未処理 ; ○, H_2O_2 ; □, $CuSO_4$;
△, O_3 ; ▽, UV ; ◇, 塩素 ; ×, 超音波。

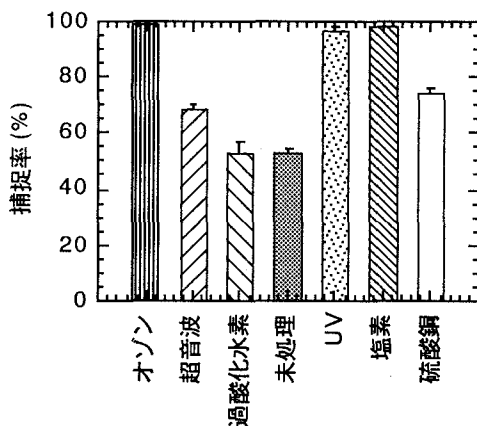


図-4 水酸化鉄フロックの *Peridinium* 捕捉率の比較。

3.3 前処理・凝集・泡沫分離法における除去率

O_3 、塩素、または UV で *Peridinium* の前処理をした後、凝集・泡沫分離処理を行った。図-5 は、pH と濁度除去率の関係である。UV および O_3 による前処理を行った場合には、中性付近 (pH6.0~7.0) で 90%以上の高い除去率 (残留濁度1度以下) が得られた。泡沫分離プロセスでは、気液接触塔内のフロック懸濁液は分散気泡によって混合されるが、 O_3 と UV の前処理では、*Peridinium* の細胞はフロックから脱離することなく、フロックとともに気泡に吸着され、泡沫として除去された。 O_3 と UV 処理によって細胞表面に生じた吸着サイトは、水酸化鉄との親和性が高いと推測される。また、塩素で前処理を行った場合においても捕捉率は高く、良好なフロックが形成されていることが確認された(図-3、図-4)。しかしながら、塩素で前処理を行った場合、中性付近では全く回収されなかった。塩素処理後の *Peridinium* 懸濁液には塩素臭が残っていたことから、残留塩素によってカゼインが変性し、適切に機能しなかったためではないかと考えられる。

凝集・泡沫分離法は、凝集プロセスにおいて対象物質 (本研究では *Peridinium* 細胞) をフロックに包括させることができれば、続く泡沫分離プロセスによって効率的に分離・除去できる。ただし、カゼインを変性させるような残留物質が生成する前処理は適当でないことがわかった。

以上の結果から、凝集・泡沫分離法における適切な前処理法は O_3 と UV であると判断した。以降、 O_3 、または UV で前処理した場合の凝集・泡沫分離法をそれぞれ、 O_3 前処理法、または UV 前処理法と称する。

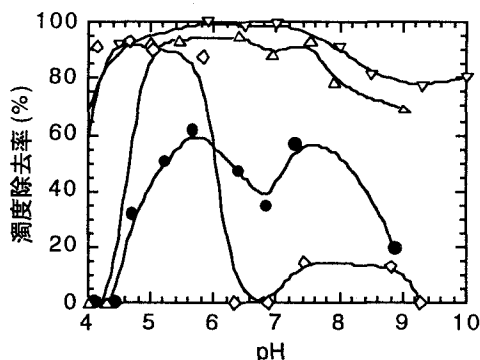


図-5 泡沫分離処理におけるpHと濁度除去率の関係。

●, 未処理 ; △, O_3 ; ▽, UV ; ◇, 塩素。

3.4 O₃ 前処理法と UV 前処理法における最適薬剤添加量

O₃ 前処理法と UV 前処理法における、凝集剤とカゼインの適切な添加量について調べた。図-5 から pH は 6.6 ± 0.3 の一定とした。90%以上の除去率(残留濁度 1 度以下)が得られた条件を白抜きで示した。いずれの場合も凝集剤とカゼイン添加量の増大に伴って除去率は上昇した。O₃ 前処理法(図-6(a))において、凝集剤無添加の場合、カゼイン添加量 30mg/ℓ においても除去率は 50%程度であった。しかし、凝集剤添加量の増加に伴って除去率は上昇し、3mg-Fe/ℓ では 97%に達した。凝集プロセスが重要であることが明らかである。また、90%以上の除去率を得るために必要な薬剤添加量は、凝集剤 3~10mg-Fe/ℓ、カゼイン 10~30mg/ℓ であった。

UV 前処理法(図-6(b))の場合、凝集剤 3mg-Fe/ℓ における濁度除去率は 90%を下回り、凝集剤の必要量は 5mg-Fe/ℓ であった。O₃ 前処理法、および UV 前処理法の適切な凝集剤添加量はそれぞれ、3mg-Fe/ℓ と 5mg-Fe/ℓ、カゼインはいずれも 15mg/ℓ である。

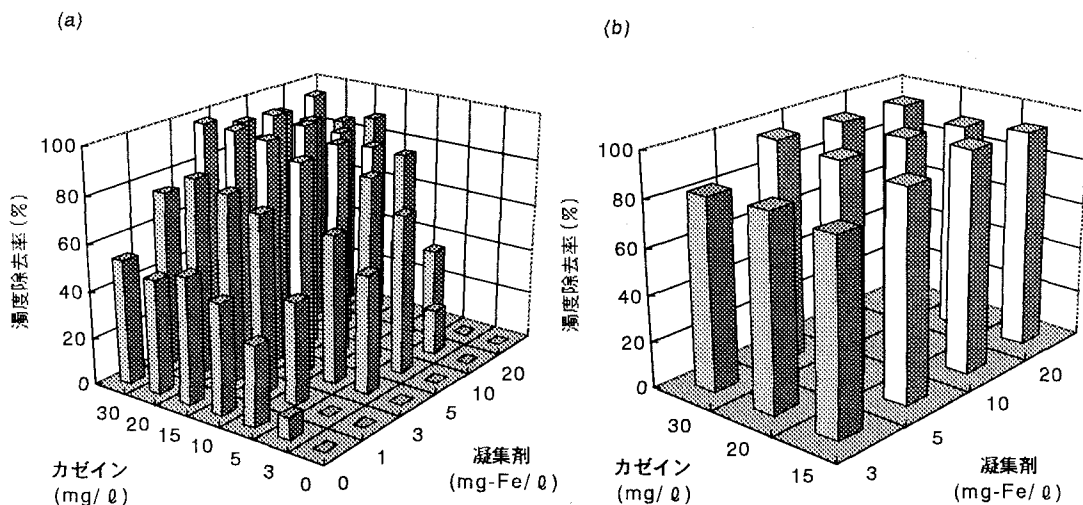


図-6 O₃ 前処理法(a)、ならびに UV 前処理法(b)における薬剤添加量と濁度除去率の関係。

3.5 泡沫分離処理水水質

処理水は、再び湖水に還することになる。本研究で用いた凝集剤は鉄塩であり、鉄は全ての生物にとって必須の元素であるが、藻類の増殖を促進し、赤潮発生の引き金となることが報告されている^{13), 14)}。また、カゼインは乳製品であり、食品添加物にも広く使用されていることから毒性は全くないが、残留性が高ければ汚染の原因になる可能性がある。そこで、O₃ 前処理法および UV 前処理法処理水のカゼイン、T-Fe、および栄養塩(NO₃-N、PO₄-P)の濃度を測定した(表-2)。原水と O₃ 前処理法、および UV 前処理法処理水の T-Fe 濃度に大きな差は見られず、Fe の残留性はないことがわかった。カゼインの濃度は、原水と比較して 0.8mg/ℓ 程度高くなったが、全窒素(T-N)濃度に換算して約 0.1mg/ℓ (カゼインに含まれる N は T-N で 13~16%) と低く、カゼインの残留による汚濁負荷は無視して良いと考えられる。

NO₃-N、PO₄-P についてみると、UV 前処理法は原水と比較して、PO₄-P で 0.018mg/ℓ、NO₃-N で 0.3mg/ℓ 上昇していた。UV 照射によって細胞内の栄養塩が溶出したためではないかと考えられる。O₃ 前処理法は、PO₄-P が 0.010mg/ℓ 高くなったが、NO₃-N の上昇は少なかった。

表-2 O₃前処理法およびUV前処理法処理水水質(n=3、値は平均値)。

	カゼイン(mg/ℓ)	T-Fe(mg/ℓ)	PO ₄ -P(mg/ℓ)	NO ₃ -N(mg/ℓ)
原水	0.23	0.008	0.014	0.23
UV前処理法処理水	0.92	0.009	0.032	0.53
O ₃ 前処理法処理水	1.06	0.007	0.024	0.27

3.6 泡沫分離処理水のAGP試験

O₃ 前処理法および UV 前処理法の処理水について、AGP 試験を行った(図-7)。試験開始から 17 日目について、UV 前処理法処理水とコントロールの間に有意差(危険率 1%)が認められた。前処理を行う事によって溶出した細胞内の栄養塩(表-2)が、AGP を高めた原因ではないかと考えられる。一方、O₃ 前処理法処理水とコントロールの間には有意差は認められなかった。

3.7 最適な前処理方法について

UV 前処理法、あるいは O₃ 前処理法によって 90% 以上の除去が可能であることが明らかとなった。しかしながら、処理水水質および AGP 試験の結果、UV 前処理法による処理を行った場合には栄養塩濃度が増加しており、AGP もコントロールと比較して高かった。また、前処理に要する時間は、UV は 10 分間、O₃ は 30 秒間であり、O₃ の方が処理時間が著しく短い。処理時間、および処理水の水質と AGP を考慮すると O₃ が最も適当であると考えられる。

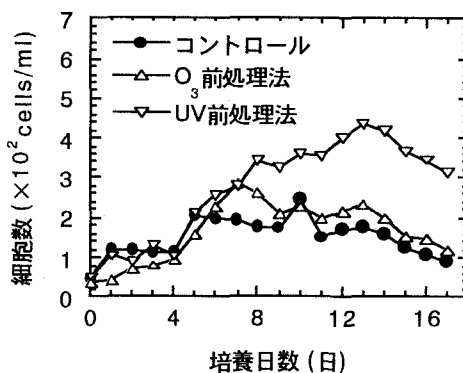


図-7 AGP試験における培養日数と細胞数の関係 (n=3、プロットは平均値)。

4 結論

淡水赤潮プランクトン *Peridinium bipes* の除去法として硫酸第二鉄とカゼインを併用した凝集・泡沫分離法について検討した。本研究で得られた知見を以下に記す。

- 1) 前処理を行わない場合、水酸化鉄のフロックの捕捉率は 53%と低く、凝集・泡沫分離法による除去率が 50%以下であった原因と考えられた。
- 2) UV 照射、O₃ 曝気、および塩素添加による *Peridinium* 懸濁液の前処理を行うことによって、細胞はフロックに捕捉された。
- 3) O₃ 前処理法、あるいは UV 前処理法によって 90%以上の除去が可能となる。O₃ 前処理法、および UV 前処理法の適切な凝集剤添加量はそれぞれ、3mg-Fe/ℓ と 5mg-Fe/ℓ、カゼインはいずれも 15mg/ℓ ある。また、所要時間は O₃ 前処理法で 9.0 分、UV 前処理法で 18.5 分である。
- 4) カゼインの残留は無視できるほど低い。しかしながら、UV 前処理法では PO₄-P、NO₃-N 濃度が原水と比較して高くなり、細胞内からの溶出と考えられた。
- 5) O₃ 前処理法処理水を湖水に還すことによって *Peridinium* の増殖が促進される可能性は低いと考えられる。

以上の結果から、最も適した前処理方法は O₃ 処理である。

謝辞

本研究を遂行するにあたり、淡水赤潮に関する情報の提供、および飼料の採水にご協力いただいた西日本技術開発株式会社環境部の井芹寧氏、Elshat Rahim 氏、ならびに関係者各位に厚く謝意を表する。

参考文献

- 1) 石田祐三郎(1991)淡水赤潮の現状と問題点、水質汚濁研究、**14**、270-275.
- 2) 西堀尚良、西島敏隆、小野田義輝、畑幸彦(1991)淡水赤潮プランクトンの増殖に及ぼす照度、温度、pH、および窒素栄養塩の影響、日本水産学会誌、**57**、1729-1735.
- 3) 岸本直之、大西庸介、荅地賢二、宗宮功、大西正記(1998)ダム貯水池に発生する *Peridinium* 淡水赤潮の発生要因に関する考察-共存藻類の増殖特性に着目して-、環境工学研究論文集、**35**、227-233.
- 4) 宗宮功(1996)ダムにおける赤潮の集積機構解明に関する研究、課題番号 06680491、平成 6、7 年度科学研究費補助金(一般研究 C)研究成果報告書.
- 5) 丸山俊朗、奥積昌世、佐伯昭和、鳩村茂(1991)活魚輸送・蓄養、養殖における泡沫分離法の飼育海水浄化能、日本水産学会誌、**57**、219-225.
- 6) 河添智、丸山俊朗、鈴木祥広(1997)泡沫分離法による淡水赤潮プランクトンの除去に関する研究、土木学会第 52 回年次学術講演会講演概要集第 7 部、520-521.
- 7) 丸山俊朗、鈴木祥広、河添智、土手裕、増田純雄(1998)凝集剤とタンパク質を併用した空気分散型-泡沫分離法による海産赤潮プランクトンの直接回収、水環境学会誌、**21**、310-317.
- 8) Bradford,M.M (1976) A rapid and sensitive method for the quantitation of microgram quantities of protein utilizing the principle of protein-dye binding, Analytical Chemistry、**72**、248-254.
- 9) Stockey,L.L. (1970) Ferrozine-A new spectrophotometric reagent for iron, Analytical Chemistry、**42**、779-781.
- 10) 秋葉道宏、後藤光亀、佐藤敦久(1992)緑藻 2 種の凝集特性に関する基礎的研究、水道協会雑誌、**61**、2-11.
- 11) 今村賢太郎(1995) *Peridinium bipes*、環境微生物図鑑(小島貞男、須藤隆一、千原光雄編)、pp.353-354、講談社、東京.
- 12) 斉藤昭二、有井鈴江(1993)前塩素注入の有無による大型珪藻 4 種の凝集沈殿除去特性、水道協会雑誌、**62**、18-27.
- 13) 門谷茂、岡市友利(1987)鉄およびその吸収機構、赤潮の科学(岡市友利編)、pp.194-204、恒星社厚生閣、東京.
- 14) Chow,C.W.K, House,J, Velzeboer,R.M.A, Drikas,M, Burch,M.D and Steffensen,D.A (1998) The effect of ferric chloride flocculation on cyanobacterial cells, Water Research、**32**、808-814.