

# 固相キレート抽出-誘導結合プラズマ質量分析法による 海水中極微量Feの分析

## Analysis of Trace Fe in Sea Water by Using Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry with Solid Phase Chelate Extraction Technique

相本道宏\*  
Michihiro AIMOTO  
三木理  
Osamu MIKI

加藤敏朗  
Toshiaki KATO

木曾英滋  
Eiji KISO

堤直人  
Naoto TSUTSUMI

### 抄 録

日本沿岸海域の磯焼け(藻類が生育しない状態)の回復のため、製鋼スラグと腐植物質を混合して溶出鉄源とし、溶存Feを海域に供給する実験を行っており、数年間に渡り藻類の生育に一定の効果があることを確認している。Fe供給効果の確認や検証には海水中の微量な溶存Feの定量分析が不可欠であるが、従来は海水の高塩濃度のためppbレベルの定量分析は困難であった。そこで、海水中の極微量Feを定量分析するため、海水マトリクスからのFeの分離に固相キレートを用いて抽出した上で、クールプラズマ条件の誘導結合プラズマ質量分析法で測定する方法を確立し、実験海域の海水に適用した。また、その他の水質パラメータも同時に測定した。試験海域での海水中のFe含有量は、鉄源埋設部近傍で最も高い濃度となり、沖合いに離れるにつれて減少する傾向が観察された。溶存態シリカやMg、Ca含有量は海水の電気伝導度と相関が見られたが、Fe含有量との相関は見られなかった。この結果から、鉄源である製鋼スラグから溶出したFeが海域に拡散することで、海藻の生育を促進させている可能性が示唆され、磯焼け海域に製鋼スラグと腐植物質を混合して溶出鉄源として適用する方法が効果的であることが確認できた。

### Abstract

Field experiments on recovering from barren sea ground called "Isoyake" by providing Fe in sea water to restore seaweed beds on barren ground, has been carried out. Fe supply source, a mixture of steelmaking slag and compost (humic wood chips), were laid underground in shoreline. A certain amount of restoration of seaweed beds has been confirmed at the locations for several years. Quantitative determination of trace amount of Fe in sea water is necessary to validate the effect of iron source. However, to analyze dissolved Fe in sea water was difficult due to its trace concentration and the interference by high concentration of salts in the analytical samples. We established new analysis method of Fe in sea water, by treating sea water with solid phase chelate extraction and analyzed by inductively coupled plasma mass spectrometry with cool plasma condition. This method was successfully applied for the sea water sample taken from experimental site. Other water quality parameters in the experimental site were also investigated. Fe concentration was significantly highest around the Fe supply source and was decreased with the distance. Although the concentrations of dissolved silica, Mg and Ca were correlated to electrical conductivity of the sample water, Fe concentration was not. According to those results, the concentration of dissolved Fe from steelmaking slag was confirmed, and Fe might be contiguously supplied to the sea water from Fe supply source and promoted the growth of seaweeds. Therefore, applying a mixture of steelmaking slag and compost as Fe supply source is an effective technique to supply dissolved iron to Isoyake area.

## 1. 諸 言

日本の沿岸域の一部では、有用藻類が生着、成長しない結果、水底が石灰藻で覆われる“磯焼け”現象が問題となっており、沿岸漁業における海藻類や漁獲など、水産資源の減少という深刻な問題をもたらしている<sup>1)</sup>。原因は、海水温の上昇やそれに伴う海流の変化、植食性動物による食害などの複合的な要因にて発生するとされており、それぞれの地域における地形や生物を含めた海洋環境などにより異なることが想定される。このような状況を改善するため、様々な藻場再生対策が検討されてきた<sup>2,3,4)</sup>。

一方、海域の栄養成分の変化、具体的には藻類の成熟や成長にとって必須な栄養塩であるFe<sup>5)</sup>の存在濃度の低下が磯焼けの発生や進行の別要因として報告され<sup>6,7)</sup>、Fe供給による藻場造成も試みられている<sup>8,9)</sup>。海域にFeを供給する際、Feは海水中の溶存酸素の影響で速やかに酸化され、水酸化物として沈殿するために生物利用性が著しく下がると考えられ<sup>10)</sup>、溶存Feとして安定供給することが課題である。我々は、その対策の一つとして、Feを含む製鋼スラグを腐植物質と共存させることにより、溶存鉄を腐植酸鉄として安定的に形成させ、海水中のFe欠乏により磯焼けした海域へのFe供給源として適用する施肥材の開発、適用を全国約20箇所の海域で進めており、海域環境改善効果が実証されつつある<sup>11,12)</sup>。

例えば、実験海域の一つである北海道増毛町舎熊海岸では、磯焼けが進行した実海域の汀線部に施肥材を2004年秋に埋設した後、埋設部を中心に広範囲での藻場の再生、拡大を確認してきた<sup>13,14)</sup>。この施肥材は、鉄鋼スラグを材料に調製した水和固化体製ブロックを含めたビバリー®シリーズとして、一般社団法人全国水産技術者協会が制定した漁場造成・再生用資器材の利用技術認定制度において認定、登録されるとともに、全国漁業協同組合連合会が制定した鉄鋼スラグ製品安全確認認証制度で安全性に関する認証を受けており、公的な認知度も向上してきている。

製鋼スラグから溶出したFeが、腐食物質と錯形成することにより安定な溶存状態となり、藻類や微生物の生育に有用な役割を果たしていることが推定される。これを実証し、効果の持続期間や生物作用メカニズムを解明するためには、まず実海域におけるFeの溶存含有量を測定する必要がある。しかし、沿岸海域海水中のFeの濃度は、外洋と比べると高濃度とはいえるものの、数 $\mu\text{g/L}$ レベルの極微量濃度であると想定され、また海水が高塩濃度であることもあり、従来の分析方法による定量は困難であった。そのため、藻場の再生と実験海域におけるFe濃度との関係を明確にできていなかった<sup>12)</sup>。そこで本検討では、Feを海水マトリクスから分離した上で微量分析を行う方法を確認し、北海道増毛町舎熊海岸における実海域の水質調査を実施して施肥効果について考察した<sup>15,16)</sup>。

## 2. 海水中極微量 Fe 分析法

### 2.1 海水マトリクスからのFe分離

海水試料を誘導結合プラズマ質量分析装置 (ICP-MS) や原子吸光度分析装置などの分析装置に直接導入した場合、高濃度に含有される塩が分析装置内でしばしば析出し、分析を妨害する。また、古くから知られているFe分析法である1,10-フェナントロリン吸光度法では分析感度が足りない。そのため、海水から目的物質であるFeを選択的に抽出する必要があると考えた。本検討では、海水マトリクスからのFeの分離処理を行った上で、ICP-MSを用いて高感度分析を行うこととした。

分離処理方法としては、キレートを用いた固相抽出法を選択した。キレートには、Feをはじめとする金属元素を選択的に吸着する日立ハイテクノロジーズ(株)社製 Nobias CHELATE-PA1 を選択した<sup>17)</sup>。このキレートは、ベースとなる樹脂上に、図1に示すとおりイミノ二酢酸基とエチレンジアミン三酢酸基を修飾させた構造であり、遷移金属>アルカリ土類金属>アルカリ金属という選択性を有する。この固相キレートを用い、人工海水に添加したFeを分離し測定するための条件検討を行った。

分析条件検討のための人工海水は、Millipore 超純水(比抵抗18.3M $\Omega$ 以上)に八洲薬品(株)製のアクアマリン試薬を添加して調製した。溶離や洗浄に用いた硝酸には、多摩化学工業(株)製TAMAPURE 100を用いた。その他の試薬は和光純薬工業(株)および関東化学(株)の特級グレードの市販品を用い、特に精製などは行っていない。

### 2.2 pHによるFeの回収率の検討

超純水および人工海水に、0.1 mg/LとなるようにFeを添加し、回収率を測定した結果を図2に示す。試料のpHを変化させ、回収率(添加したFeが固相キレートにどの程度抽出できたか)を調査した結果、超純水にFeを添加した場合は酸性~アルカリ性の幅広い範囲で回収率はほぼ100%となった。また、人工海水に添加したFeは、液性を

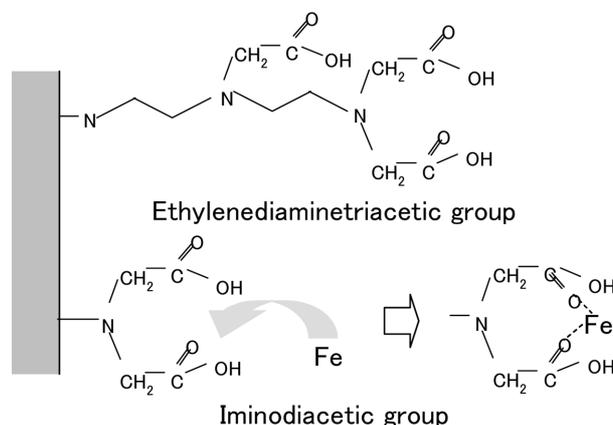


図1 本検討で用いたキレートの化学構造  
Chemical structure of chelate in this study

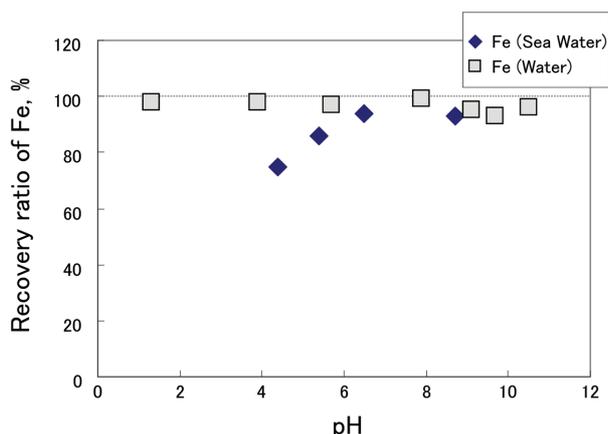


図2 海水および超純水に添加したFeの回収率へのpHの影響  
Effect of pH on recovery ratio of Fe in sea water and ultrapure water

酸性にすると回収率が低下する傾向が確認された。高塩濃度かつ酸性で回収率が低下するのは、本検討で用いたキレートのイオン強度とpHの差異によるキレートの安定度の違いによるものと考えられる。海域はpH 8程度であるため、高塩濃度かつ酸性の排水が流入するような特殊な環境を除き、実海水の分析には問題ないと思われる。

### 2.3 試料中のEDTA濃度の影響

超純水に0.1 mg/LとなるようにFeを添加し、EDTA(エチレンジアミン四酢酸)を順次添加した場合のFeの回収率を測定した結果を図3に示す。EDTAを添加すると、溶液中でFeはFe-EDTA錯体を形成することが知られている。

EDTAが一定量以上共存すると、Feは本検討で用いたキレートでほとんど抽出することができなくなった。これは、本検討で用いたキレートがEDTAと良く似た配位子を有していることから、抽出能力がEDTAの錯形成能とほぼ同等であり、Fe-EDTA錯体が安定な錯体となってしまうと、そこからFeを奪い取ることができないためだと考え

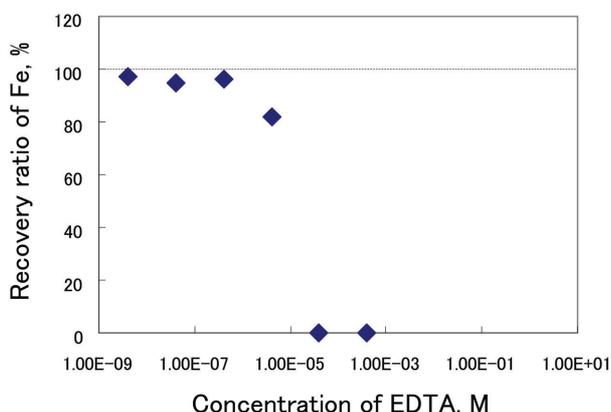


図3 Fe回収率へのEDTAの影響  
Effect of EDTA on recovery ratio of Fe

られる。

そのほか多くの錯形成可能性物質に関し検討を行なった結果、洗剤に含有される界面活性剤などはある程度共存しても分離抽出可能であったが、Feと強固に錯形成する物質(例えばタンニン酸)では、添加量により回収率がほとんど0となることが確認された。そのため、生活排水が多量に流入する環境での海水試料の場合は、分析値が低値を示す可能性があるため、ガスクロマトグラフィや液体クロマトグラフィを用いて錯形成物質がどの程度含有されているかを確認した上で、酸処理して錯形成を分解するなどの処理が必要になると考えられる。

また、腐植物質の共存を考慮してフルボ酸試薬(国際腐植物質学会標準試料 Brown Forest Fulvic Acid)での添加回収実験を行ったが、Feの回収率が添加量を大幅に超過する結果となった。これは添加したフルボ酸試薬が溶解性のFeを含有しており、それがキレート抽出されたためと考えられる。このことから、フルボ酸-Fe錯体は抽出可能だと推定した。

### 2.4 溶離プロファイル

Feを固相抽出した後、溶離液を用い吸着したFeを溶離させるが、この際の溶離液量とFeの抽出率(回収率)の関係について調査した。溶離液量が多くなれば、試薬ブランクにより分析に不利になること、また汚染の機会が増加すること等から、回収率と溶離液量の適切な条件を確認することは重要である。

試料は、超純水に0.1 mg/Lとなるように硝酸鉄溶液を添加し、酢酸アンモニウムを用いてpHを7程度になるように調製したものである。また、溶離液には3 Mの高純度硝酸(多摩化学製の高純度試薬を超純水で希釈したもの)を用いた。図4に、溶離液量とFeの抽出率の関係を示す。溶離液量が4 ml以上で回収率がほぼ一定になることから、本実験システムでは4 mlの溶離液量が適切であると考えた。

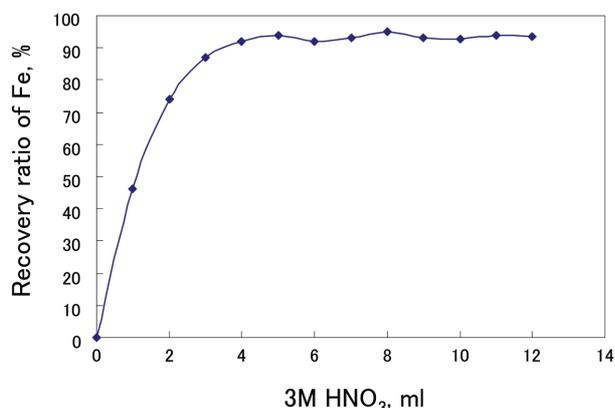


図4 固相抽出されたFeの硝酸溶離プロファイル  
Elution profile of Fe extracted by solid phase chelate

### 2.5 分析手順および定量性の確認

以上の結果を踏まえ、実海水試料中のFe濃度を測定した。測定手順の概略を図5に示す。キレート剤をメタノールで活性化し、硝酸洗浄し酢酸アンモニウムで処理した後、0.45 μm ポアフィルタでろ過し、酢酸アンモニウムでpHを7程度に調整した海水試料を通水する。固相抽出された試料中のFeを硝酸で溶離し、溶離液中のFe濃度をICP-MSにより測定することにより海水中のFe濃度を求めた。

ICP-MSは、溶液をネブライザにより霧化させて高温の誘導結合プラズマ内に導入させ、溶液に含まれる元素を励起・イオン化させ、生成したイオンをサンプリングコーンおよびスキマーコーンといったオリフィスを介し真空中に導入、イオンレンズにより質量分析計に収束させてイオンの質量と個数を計測する手法である。Feは、同位体のうち<sup>56</sup>Feが最も存在率が高く、感度良く測定できると考えられるが、<sup>40</sup>Arと<sup>16</sup>Oが結合して多原子イオンを形成し、<sup>56</sup>Feと同質量となり干渉するため、四重極型の質量分析計を備えた通常のICP-MSでは数μg/Lレベルの低濃度の測定ができない。

これを回避する方法としては、①二重収束型質量分析計を備えた高分解能ICP-MSを用いる、②プラズマと質量分析部の間に反応セルを置くことによって生成した多原子イオンを破壊する<sup>17)</sup>、などの方法が知られているが、本検討では、③プラズマ温度を低下させて多原子イオンの生成を抑制するコールドプラズマ法、を採用した。具体的には、通常は高周波出力が1.0~1.2 kWで用いられているところを約0.6 kWとした。①②と比べた③の欠点として、通常のプラズマ条件に比し感度が低下する、分析溶液中の酸などのマトリクスの干渉を受けやすくなるなどの課題が挙げられるが、感度は低下しても数μg/LレベルのFeの測定には問題ないこと、分析溶液のマトリクスはキレート分

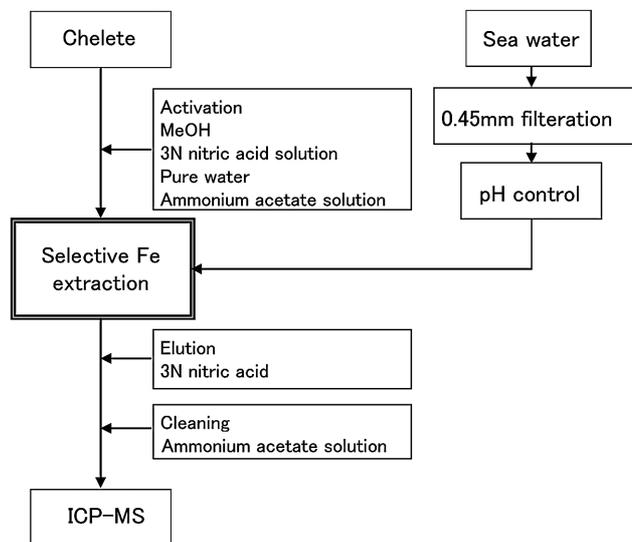


図5 分析フロー  
Analytical procedure

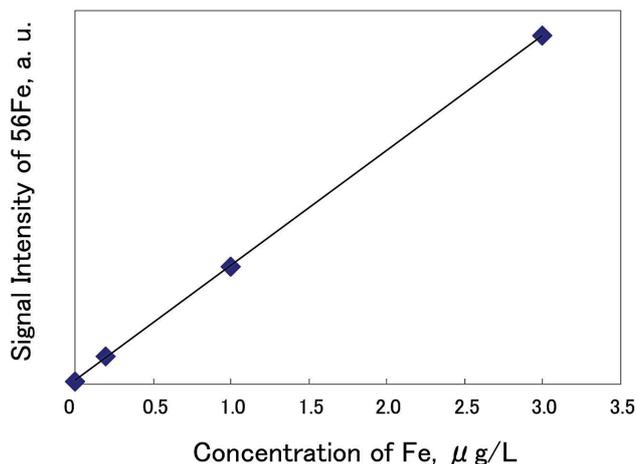


図6 Feの検量線  
Calibration curve for Fe determination

表1 海水認証標準物質中Feの定量結果  
Analytical results of Fe in nearshore seawater reference material for trace metals

	(μg/L)	
	Certified value	Measurement result
CASS-04	0.713 ± 0.058	0.6 <sub>0</sub> ± 0.0 <sub>1</sub>
CASS-05	1.44 ± 0.11	1.4 <sub>3</sub> ± 0.0 <sub>1</sub>

離と酸溶離により試料によらず同一となることから、大きな問題なく測定することができると考えた。なおICP-MSには、エスアイアイ・ナノテクノロジー社製 SPQ-9000およびSPQ-9500を用いた。

図6に、実海水試料の定量に用いた検量線を示す。相関係数が0.999、ブランク当量濃度が0.02 μg/Lとなり、良好な直線性を有することが確認できた。海水中の数μg/Lレベルの濃度を定量可能であると考えられる。この検量線を用い、カナダの海水認証標準物質CASS-4およびCASS-5の分析を行なったところ、表1に示すとおり、認証値とほぼ一致する値を得ることができた。

### 3. 実海域への適用

#### 3.1 実海域でのスラグ施肥実験概要

本分析法を、磯焼けの進行がある北海道増毛町舎熊海岸で実施した実海域での施肥実験に適用した。図7に、実験区の概要を示す。海岸の汀線部において、約100m間隔の4地点に実験区(A, B)と対照区(E)を設置し、各実験区にはそれぞれ効果検証すべき施肥材を埋設した。埋設した施肥材は、やしがら製の袋に1袋当たり約200kgずつ充填し、1実験区当たり39袋(3×13)、合計約8tを用いた。

実験区Aは、廃木材チップより製造した腐植物質と製鋼スラグとを体積比1:1で混合した施肥材、実験区Bには製鋼スラグのみを充填した施肥材を、それぞれ幅1m、長さ26m、深さ0.8mの側溝を掘り、2004年に埋設した。埋

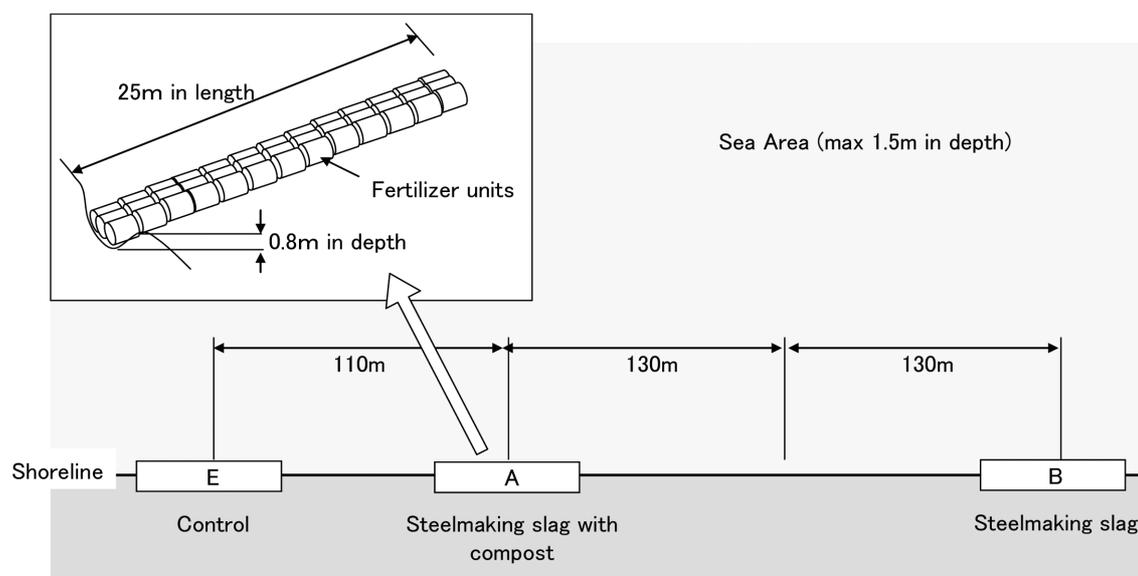


図7 実験区の概要  
Schematic of experimental site

設後、約3年を経過した2007年6月に試験海域の水質調査を実施した。水質調査当時、実験海域全般にわたって海藻類の繁茂が広がって藻場が再生しつつある状況であった<sup>13)</sup>。

### 3.2 実験結果および考察

2地点の実験区、対照区、および実験区Aと実験区Bの中間の汀線部からそれぞれ沖に向けて3m, 5m, 10m, 25m, 50mの箇所(延20箇所)の水深50~100cmの範囲で海水を清澄なポリ瓶に採取した。採取した海水試料を冷蔵便で輸送し、速やかに分析に供した。水質項目は、前項で述べた手法によるFeのほか、JIS K 0101-1998<sup>18)</sup>に基づき、pH、電気伝導度(EC)、全窒素(T-N)、全リン(T-P)、Ca、Mgを、JIS K 0102-1998<sup>19)</sup>に基づきイオン状シリカ(D-Si)を測定した。

採取した全20地点の水質分析結果を表2に示す。ECは平均で $44.2 \pm 2.8$  mS/cmであるが、最小39.0から最大48.5で観察され、試験海域における河川水や湧水等の淡水流入の影響が示唆される。D-Siについては平均で $0.70$  mg/Lで

表2 実海域海水の測定結果一覧  
Analytical results of sea water taken from experimental site

		Measurement results	
		Average	min - max
pH		$8.27 \pm 0.08$	8.14 - 8.39
EC	mS/cm	$44.2 \pm 2.8$	39.0 - 48.5
T-N	mg/L	$0.13 \pm 0.02$	0.10 - 0.18
T-P	mg/L	$0.016 \pm 0.009$	< 0.01 - 0.04
D-Si	mg/L	$0.70 \pm 0.28$	0.27 - 1.24
Ca	mg/L	$445 \pm 37$	379 - 505
Mg	mg/L	$1,380 \pm 117$	1,157 - 1,558
Fe	$\mu$ g/L	$5.9 \pm 4.5$	< 1 - 18.1

あったが、最小値と最大値で約5倍の開きがあり、D-Siの主要な供給源が淡水であればEC同様その影響を受けている可能性が推察される。一方、Feは平均で $5.9 \mu$ g/Lであったが、最小値と最大値に大きな隔たりがあった。本検討によるFeの分析方法において、Feの回収率は淡水の影響を受けないため、溶存Feの濃度分布は淡水流入の影響だけでは説明できない可能性が推察される。

調査を行った水質項目について採水地点を考慮した水平分布を図8に示す。本図は施肥材を埋設した汀線を下端、上方向を沖合とし、各分析箇所における分析結果をBi-Liner法で補完している。図8(a)に示すFeの分布から、Feは腐植物質と製鋼スラグからなる施肥材を埋設した実験区A近傍で、 $18.1 \mu$ g/Lをピークとする濃度分布が観察された。また、製鋼スラグのみからなる施肥材を埋設した実験区B近傍においても $10 \mu$ g/Lをピークとし、沖合に向かって濃度勾配が観察された。いずれも、Feが施肥材から供給されている可能性を示すものと考えられる。ただし、対照区Eから沖合に向けたラインにも $5 \sim 10 \mu$ g/L程度のやや高めの濃度域が観察された。

図8(b)に示すpHは、汀線から沖合に向けて低下傾向にあった。実験区Bでやや高く、実験区Aでやや低い傾向がみられた。一方、図8(c)に示すEC、図8(d)に示すD-Siは、図中左下から右手方向に勾配がある類似の濃度分布であり、淡水流入によりD-Siが海域に供給され、また海水が淡水で希釈されることによりECが低下したと考えられる。同様に、一般的に淡水には微量しか含まれず、海水起因の成分であるCa(図8(e))とMg(図8(f))は、対照区Eから沖合に向けたラインで低濃度域が観察され、淡水流入による海水の希釈を裏付ける結果となっている。

T-N, P, D-Siなどの栄養塩類は、融雪の時期や水温が

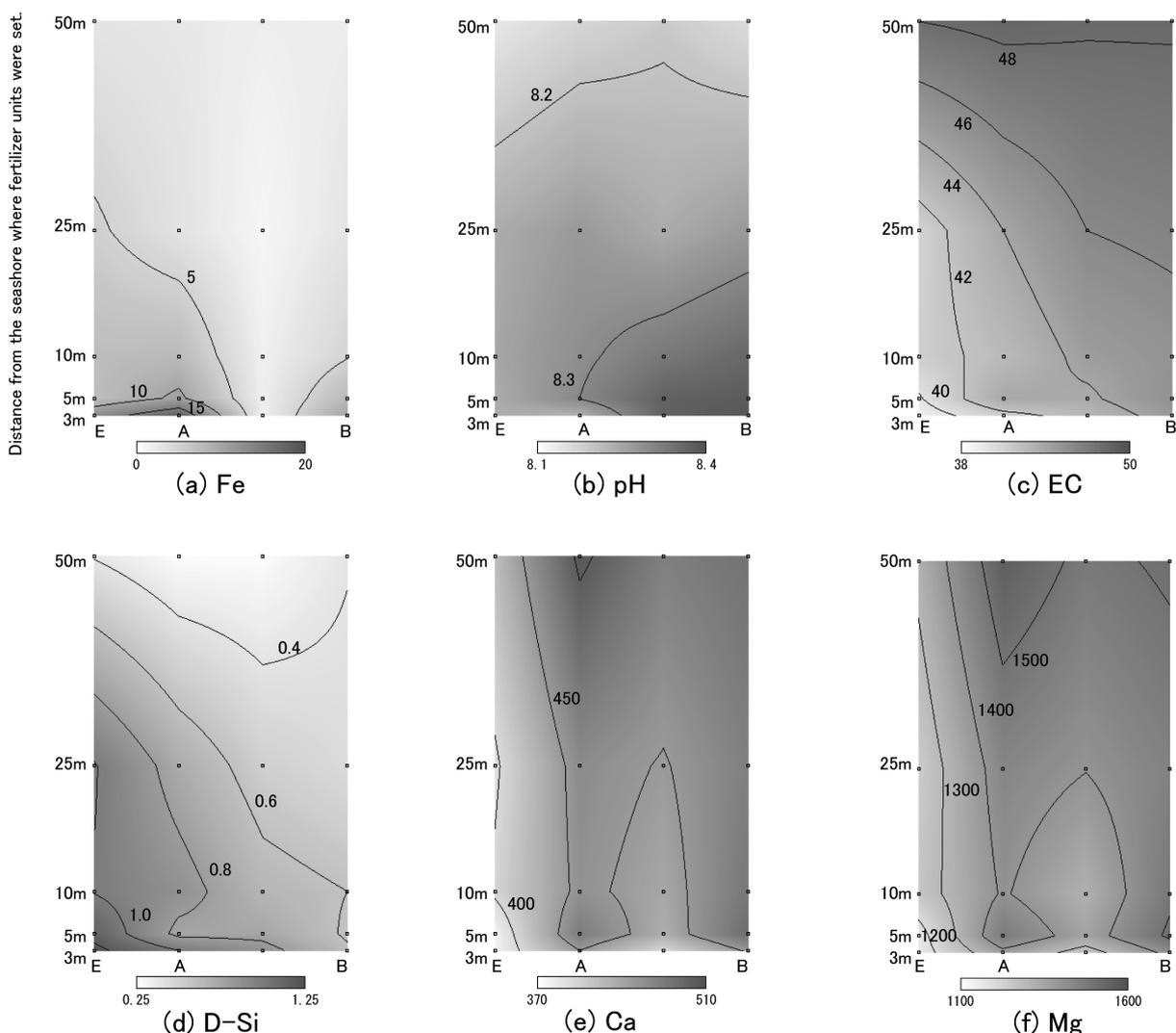


図8 調査区域における各成分の水平分布  
Horizontal distribution of each parameter at the experimental site

高まる季節においては淡水からの供給がなされることが想定される。これら栄養塩類と同様に、沿岸海域へのFe供給源として淡水の影響があるのではないかと考えた。そこで、本検討の実験海域においても観察されたFe分布への淡水流入の影響を考察するため、各水質パラメータの相関を調べた。ECとD-Siとは明確な負の相関関係(相関係数 $R = 0.99$ )が認められ、D-Siは淡水起因である可能性が推定された。CaとMgはそれぞれECと正の相関関係( $R = 0.79$ )がみられ、さらにCaとMgの間についても明確な相関関係( $R = 0.99$ )が認められたことから、CaとMgは海水にもともと存在したものが淡水流入により希釈されたと推察される。

これに対してFeは、ECおよびD-Siとは $R = 0.6$ 、T-Nとは $R = 0.5$ 、T-Pとは $R = 0.4$ 、CaおよびMgとは $R = 0.2$ と他のパラメータとは相関が薄く、淡水流入の影響のみでは試験海域のFe濃度分布を説明できない。施肥材を設置した実験区AおよびBで最も高濃度となったことも考慮すると、施肥材からの供給である可能性が高いと考えるの

が妥当であろう。

#### 4. 結 言

海水中の極微量Feを定量するため、固相キレート抽出により海水中のFeを抽出して高感度分析する手法を検討した。特定成分(他の分析方法で確認が可能)の分析の妨害可能性はあるものの、この方法により溶存Feの評価は可能であることがわかった。また、この固相キレートを用いて海水認証標準物質の分析を行ったところ、得られた分析値と認証値はよく一致した。

藻場再生メカニズムを考察するべく、磯焼けが進行した沿岸海域の藻場再生を目的とし、腐植物質と製鋼スラグなどからなる施肥材を汀線部に埋設する実験を実施して藻場の再生を確認してきた北海道増毛町実験海域の水質分析を実施した。その結果、実験海域はEC分布から淡水流入の影響が観察された海域であったが、Feは、EC、D-Si、Ca、Mgなど他の水質パラメータと明確な相関がみられず、淡水起因でないことが推定された。さらに、実験海域のFe

濃度は、施肥材設置地点近傍で最高濃度であり、沖合に向かうにつれて希薄になる分布が観察された。以上より、実験海域では施肥材より溶出したFeが広い範囲に拡散していることが強く示唆され、海藻類の増殖へ寄与している可能性を推定した。

本検討により、実海域でのFe含有量を測定でき、製鋼スラグによる施肥材が海域に溶存Feを供給する能力を有している可能性が確認できた。本施肥材(商品名ビバリー®シリーズ)が、海域環境改善、製鋼スラグの資源化促進として有用な方法であることを実証し続けていくため、今後も溶存Feを含めた各海域のモニタリングや生物・環境影響評価を継続していく予定である。

## 謝 辞

本検討を進めるにあたり、北海道大学北方生物圏フィールド科学センターの本村泰三教授、京都大学化学研究所の宗林由樹教授からは極めて有用なご助言を頂きました。また、増毛漁業協同組合、株式会社ニッテクリサーチ、渋谷潜水工業株式会社、株式会社北海道オーシャングリーン開発からの多大なご支援を頂きました。ここに深謝申し上げます。

## 参考文献

- 1) 藤田大介:磯焼け21世紀初頭の藻学の現状. 日本藻類学会編, 2002, p.102
- 2) Harold, C. et al.: Ecology. 66(4), 1160(1985)
- 3) Kuwahara, H. et al.: Fisheries Engineering. 38(2), 159(2001)
- 4) Horie, H. et al.: J. Hokkaido For. Prod. Res. Inst. 17(3), 1(2003)
- 5) Motomura, T. et al.: Bull. Jap. Soc. Sci. Fisheries. 47, 1535(1981)
- 6) Matsunaga, K. et al.: J. Exp. Mar. Biol. Ecol. 241, 193(1999)
- 7) Suzuki, K. et al.: Phycologia. 34, 201(1995)
- 8) Matsunaga, K. et al.: J. Appl. Phycol. 6, 397(1994)
- 9) Matsuoto, K. et al.: J. Chem. Eng. Jpn. 39, 229(2006)
- 10) Rose, A. L. et al.: Environ. Sci. Technol. 36, 433(2002)
- 11) 山本光夫 ほか: J. Jpn. Inst. Energy. 85, 971(2006)
- 12) 木曾英滋 ほか: 豊かな沿岸を造る生態系コンクリート研究. 調査小委員会シンポジウム論文集. 2006
- 13) 木曾英滋 ほか: 第20回海洋工学シンポジウム要旨集. 2008
- 14) 渋谷正信: 土木施工. 48(11), 21(2007)
- 15) 加藤敏朗 ほか: 第20回海洋工学シンポジウム要旨集. 2008
- 16) 相本道宏: 海洋化学研究. 22(1), 19(2009)
- 17) Sohrin, Y. et al.: Anal. Chem. 80(16), 6267(2008)
- 18) JIS K 0101-1998工業用水試験方法
- 19) JIS K 0102-1998工場排水試験方法



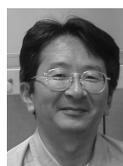
相本道宏 Michihiro AIMOTO  
先端技術研究所 解析科学研究部 主任研究員 環博  
千葉県富津市新富 20-1 〒293-8511  
TEL:(0439)80-2253



加藤敏朗 Toshiaki KATO  
先端技術研究所 環境基盤研究部 主幹研究員 学博



木曾英滋 Eiji KISO  
環境・プロセス研究開発センター 土木建築部 マネジャー



堤 直人 Naoto TSUTSUMI  
環境・プロセス研究開発センター 無機材料研究開発部 主幹研究員



三木 理 Osamu MIKI  
先端技術研究所 環境基盤研究部 主幹研究員 工博