

総合論文

# 光合成細菌による水環境中のセシウム，ストロンチウム，有害金属の回収，および水，底質，土壌の放射能の実用的除染

佐々木 健<sup>1\*</sup>・岸部 貴<sup>1</sup>・竹野 健次<sup>1</sup>・三上 綾香<sup>2</sup>・原田 敏彦<sup>2</sup>・大田 雅博<sup>2</sup>

<sup>1</sup>広島国際学院大学工学部, <sup>2</sup>大田鋼管株式会社

(2013年3月4日受付 2013年5月30日受理)

## Simultaneous removal and recovery of cesium, strontium and toxic metals using photosynthetic bacteria and practical removal of radioactivity from polluted water, sediment mud and soil

Ken Sasaki<sup>1</sup>, Takashi Kishibe<sup>1</sup>, Kenji Takeno<sup>1</sup>, Ayaka Mikami<sup>2</sup>, Toshiro Harada<sup>2</sup>, Masahiro Ohta<sup>2</sup>  
(*Department of Food and Agricultural Bio-recycling, Faculty of Engineering, Hiroshima Kokusai Gakuin University; 6-20-1, Nakano, Akiku, Hiroshima, Japan, 739-0321<sup>1</sup>; Ohta Koukan Co. Ltd.; 6-2-30, Syoukou-Center, Nishiku, Hiroshima, Japan, 733-0833<sup>2</sup>)* Seibutsu-kogaku **91**: 432-446, 2013.

Removal of radionuclides (U, Sr, Co) and toxic metals (Hg, Pb, Cr, Cd, As) was carried out by using a photosynthetic bacterium, *Rhodobacter sphaeroides* SSI strain immobilized on pieces of porous ceramic, which were recovered by an electromagnet. Almost complete removal (100%) of U, removal of 82% of Sr, 58% of Co and almost complete removal (100%) of toxic metals, were observed after 2-4 days of aerobic treatment in synthetic sewage wastewater. Using the immobilized SSI strain on porous ceramic made from waste glass, simultaneous removal of Cs and Sr was carried out. Outdoor experiments, performed in a vessel measuring 1 m<sup>3</sup>, resulted in almost complete (100%) removal of Cs, and 61% removal of Sr after 2-3 days. Removal of radioactive Cs from a swimming pool of a school of Fukushima City was carried out by using alginate immobilized SSI beads (about 2 cm in diameter). About 90% of radioactive Cs in mud (sediment) accumulated at the bottom of the swimming pool was removed after 3 days of aerobic treatment. These beads were used consecutively in the experiments at least 3 times. Beads experienced a reduction in both weight and mass by 99.3% and 97.3%, respectively, after low temperature drying and incineration, at about 600°C, without ever releasing any radioactivity into the atmosphere. Lactic acid fermentation and anaerobic digestion of soil, polluted by radioactive Cs from Fukushima, was carried out, as a pre-treatment. Thereafter, SSI immobilized bead treatment was carried out as an additional treatment. About 70% radioactive Cs was removed from polluted soil, after 19 days of additional treatment. Thus, a practical and effective removal of radioactive Cs from polluted soil was demonstrated by alginate immobilized SSI strain in combination with lactic acid fermentation and anaerobic digestion.

[**Key words**: immobilized photosynthetic bacteria, cesium and strontium removal, radioactive cesium, Fukushima radioactivity, reduction of mass of radioactive material]

## はじめに

福島原子力発電所の事故以来、周辺地域の、水、泥、土壌への放射能汚染が深刻な問題となっている。特に放射能による汚染は目に見えないばかりか、農作物、人体への影響が必ずしも明確でなく、より深刻な問題を投げかけている。震災から2年以上経過したが、水、汚泥、土壌などの除染は必ずしも進んでいるとは言いがたい。できる限り早期の放射能除染が、復興には望まれている。

事故以来、種々の放射性物質の除去技術が提案されている。特にゼオライトや粘土を用いた放射性物質の吸着、除去の実証試験が行われている<sup>1,2)</sup>。また、フェロシアン化鉄やクラウンエーテルなどの化学薬品を用いた放射性物質の吸着試験も行われている<sup>3,4)</sup>。しかしながら、吸着後、放射性物質を大量に含む廃棄物が膨大な量になり、中間的保管や最終処理場の確保などに新たな問題点が生じており、できるだけ減容化できる新たな技術開発が望まれている。

バイオ技術を用いた放射性物質の除去技術も実証が行われたが、チェルノブイリで効果があったとされる、ひまわりを用いた実験では、効果が必ずしも多くないという報告がなされている<sup>1)</sup>。アオイ科のケナフ、アカザ科のキノア、葉の花などを用いたファイトレメディエーションも行われているが、放射能除去効果は科学的には未解明である<sup>1)</sup>。

一方、微生物を用いた放射性物質の除去についてはすでに25年以上前から報告がなされている<sup>5-8)</sup>。古くはWilliams<sup>5)</sup>は*Euglena*と*Chlorella*を用いて、原子力発電所の臨界生成物、<sup>137</sup>Csの取込みができることを示した。Harveyら<sup>6)</sup>は繊維状緑藻で、<sup>137</sup>Csと<sup>85</sup>Srの除去について、また、PlatoとDenovanは<sup>7)</sup>*Chlorella* sp.による低濃度の水中<sup>137</sup>Csの除去について報告している。HaselwandterとBerreck<sup>8)</sup>はカビである*Paxillus involutus*による放射性セシウムの蓄積、Averyら<sup>9)</sup>はらん藻である*Synechocystis* PCC6803によるCsの蓄積について報告した。さらに、*Chlorella emersonii*を用いた1 mMの比較的高濃度のCsClのCs取り込みについて、カリウムとの取り込みの競合について検討している。Tomiokaら<sup>10)</sup>は*Rhodococcus erythropolis*や*Rhodococcus* sp.によるCsの蓄積について報告した。また、最近、志村ら<sup>11)</sup>は緑藻の*Parachlorella binos*による放射性Csの除去についてフラスコレベルで90%以上の取込みに成功している。しかしながら、微生物を用いた実用的な放射性物質除去は報告がない。

我々は約10年以上も前から、イラン、イラク戦争、湾岸戦争などによる劣化ウラン弾 (DU, Depleted

Uranium) 使用による広範囲地下水汚染で、新たな“被曝者、ヒバクシャ”が増えていることに憂慮してきた<sup>12)</sup>。ヒロシマのバイオ技術者としてなんとかしたいと考え、微生物、特に光合成細菌を用いて、環境汚染された地区での実用的放射性物質除去ができないかと研究を進めてきた。我々は光合成細菌について約40年以上も研究を重ね、小規模な環境浄化システムを実用化しており<sup>13-15)</sup>、また、カドミウムなど有害重金属除去に応用可能なことを明らかにしていたからである<sup>16)</sup>。5年前には、回収型多孔質セラミックに固定化した光合成細菌を用いて、放射性核種 (非放射性同位体) のウラン (U)、コバルト (Co)、ストロンチウム (Sr) が除去できることを報告した<sup>17)</sup>。さらに、廃棄物ガラスから低いコストで製造した回収型多孔質セラミックでのセシウム (Cs)、Srの同時除去にも成功している<sup>18,19)</sup>。

本稿では、我々の12年以上の光合成細菌を用いた放射性核種 (非放射性同位体) の除去、さらには、屋外1トントタンクを用いたCsおよびSrの実用的同時除去技術開発について報告する。さらに、福島市の公立学校での、光合成細菌によるプールの水およびヘドロの実証的放射能除染、および、南相馬市での里山腐養質土壌の実用的除染についても、我々の行った結果を総説する。

この研究は実用化に重点を置いた。筆者らは技術士 (生物工学、総合監理部門)、修習技術者 (環境部門) グループであり、1日でも早くバイオテクノロジー技術で福島、東北地方の復興に実際に貢献するべく最優先に行った技術研究であり、学術的内容より、いち早く世の役に立つ技術開発の進展をめざしたことを冒頭に記しておきたい。現地の要望の切実な「すぐ役に立つ技術開発」を目標としている。

## 回収型多孔質セラミックの開発

光合成細菌を固定化するにあたり、回収、リサイクル利用ができかつ光合成細菌が健全に固定化されうる、新規の電気磁石回収型の多孔質セラミックを開発した<sup>17)</sup>。Fig. 1A, 1Bにケイ酸を主成分としたトライポット型多孔質セラミックと、Fig. 1Cに廃棄物ガラスリサイクルによる安価な市販多孔質セラミック (CoCo (株)、東広島) を、磁石吸着型に我々が改造したセラミックを示す。一部に約5%の鉄を焼結しており、磁石によく吸着するように、かつ錆が漏れないように加工している。鉄の部分には光合成細菌が長期生育することが難しいという欠点が経験的にわかっており、この鉄の部分の量的バランスも光合成細菌の固定化には重要なノウハウでもある。棒状のものなど種々の型を製作したが、Fig. 1Aのものが放射性核種 (非放射性同位体) の除去効果の面か

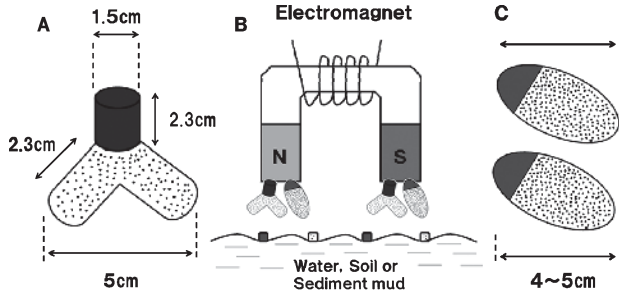


Fig. 1. Recovery type of tri-pot porous ceramic carrier made from SiO<sub>2</sub> (A) and waste glass (C). In the porous ceramic, one part, shown as black moiety contains 5% iron for recovery by electromagnet. Photosynthetic bacterium, *Rhodobacter sphaeroides* strain SSI-immobilized ceramic was recovered from water, soil and sediment mud (B) using an electromagnet after Cs and Sr removal. This figure is reproduced from Ref. 17 with permission of Jpn. Soc. Wat. Treat. Boil.

ら実用性が高かった。しかし、コスト的には高価なので、後に述べるように、実用的には安価な廃棄ガラスから製作したFig. 1Cのものが望ましい<sup>18,19)</sup>。

#### 回収型セラミック固定化光合成細菌による放射性核種 (非放射性同位体) の除去と水質浄化能力

光合成細菌は30年以上も前より排水処理、水質浄化、ヘドロ浄化など環境浄化に実用化されており、安全性はきわめて高く、中国やインドでは健康食品として飲用されている報告もある<sup>20)</sup>。菌体を飼料や農業肥料に用いているところも多い<sup>20-23)</sup>。また、健康食品であるコエンザイムQ10は、わが国では光合成細菌から実用的生産が始まったといわれており、また、この10年来コスモ石油(株)が実用化して農業園芸用成長促進剤、医用制がん剤として販売している5-アミノレブリン酸(ALA)も、我々の光合成細菌新規培養技術から改良されて実用化されたものである<sup>24-26)</sup>。このように、光合成細菌は特殊な微生物でなく、すでに比較的多くの分野でなじみの深い微生物である。

回収型セラミック固定化光合成細菌*Rhodobacter sphaeroides* SSI株(固定化SSI)<sup>17)</sup>を用いて、人工下水に含まれるU, Sr, Coなどの放射性核種(非放射性同位体)の回収について、光を必要とせず好気、微好気条件で活発に活動する条件で検討した。もちろん光合成条件での処理、生育も可能だが、現場での排水処理や環境浄化で、光を照射することはコスト的に到底合わない。古くから我々は、好気、微好気でも活用できる光合成細菌種を選別している<sup>13,14)</sup>。SSI株は排水処理に実用化されているS株<sup>13,14)</sup>の自然変異株で、菌体表面に粘着物質(EPS)を生成し、強い凝集性を有している<sup>6)</sup>。

固定化SSIを用いて、放射性核種(非放射性同位体)

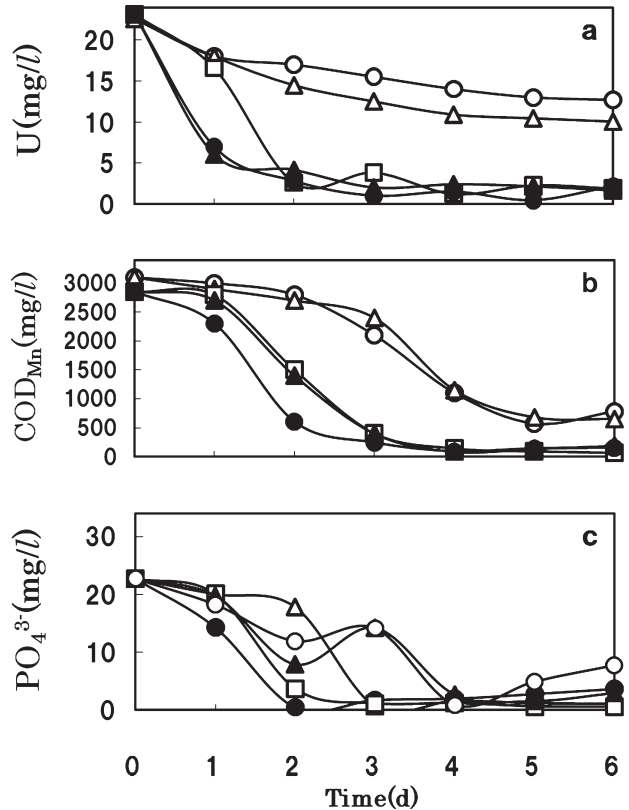


Fig. 2. Profiles of U, COD and PO<sub>4</sub><sup>3-</sup> in the synthetic sewage wastewater containing U using strain SSI immobilized ceramic under aerobic dark condition. ○: Control (aeration only); △: porous ceramic 4 pieces; □: strain SSI immobilized ceramic 1 piece; ▲: strain SSI immobilized ceramic 4 pieces; ●: strain SSI immobilized ceramic 8 pieces. This figure is reproduced from Ref. 17 with permission of Jpn. Soc. Wat. Treat. Boil.

の除去と水質浄化能力を調べた。Fig. 2にUを含む人工下水のCOD、リン酸の同時除去を示す。SSI株はU除去に適しており、Fig. 2aに示すように、固定化SSI 4個/Lの条件で、3日ではほぼ100%のU、COD、リン酸イオンの吸着除去も可能であった<sup>17)</sup>。この時、SSI株は1.8-12 mg/g dry cellを吸着していると推定された<sup>17)</sup>。Tsezons と Volesky<sup>27)</sup>は微生物によるUの吸着を研究し、*Aspergillus oryzae* (1 mg/g cells), *A. niger* (31 mg/g cells), *Pseudomonas fluorescens* (6 mg/g cells), *Streptomyces niveus* (40 mg/g cell), 活性汚泥 (45 mg/g biomass), *Rhizopus arrhizus* (180 mg/g cells) などの数値を報告している。また、Tsuruta<sup>28)</sup>は*Streptomyces levoris*で90.4 mg/g cellの吸着を報告している。SSI株のUの取込み能力は、20 mg/L程度の培地中の濃度では、微生物の中では高くも低くもなく、普通的能力と思われる。Fig. 3にSrを用いた同様の除去実験結果を示す。Uに比較してやや低かったが、固定化SSI 4個/Lで、3日で82%の除去が可能であった。CODとリン酸イオンも3日で約100%除去できた。このように、放射性核種(非

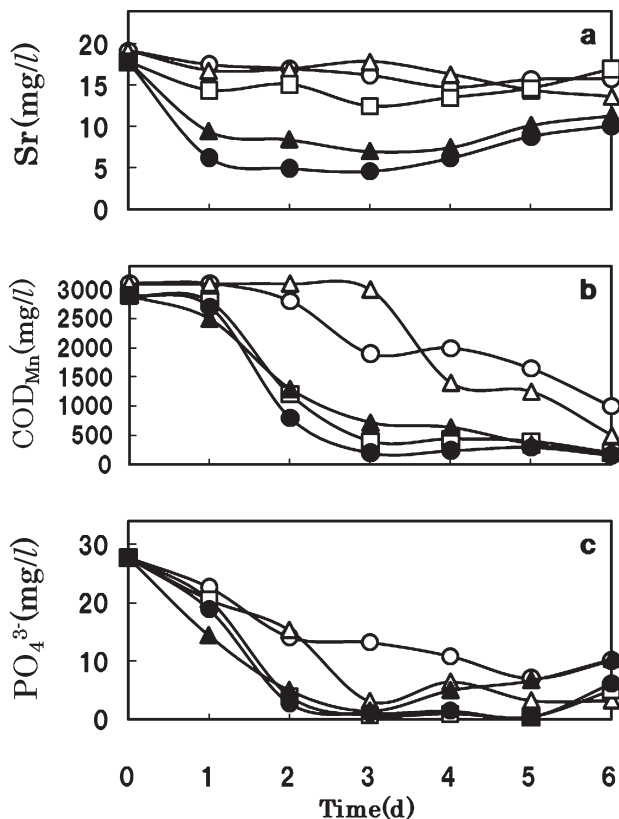


Fig. 3. Profiles of Sr, COD and  $PO_4^{3-}$  in the synthetic sewage wastewater containing Sr using strain SSI immobilized ceramic under aerobic dark condition. Symbols are the same as those in Fig. 2. This figure is reproduced from Ref. 17 with permission of Jpn. Soc. Wat. Treat. Boil.

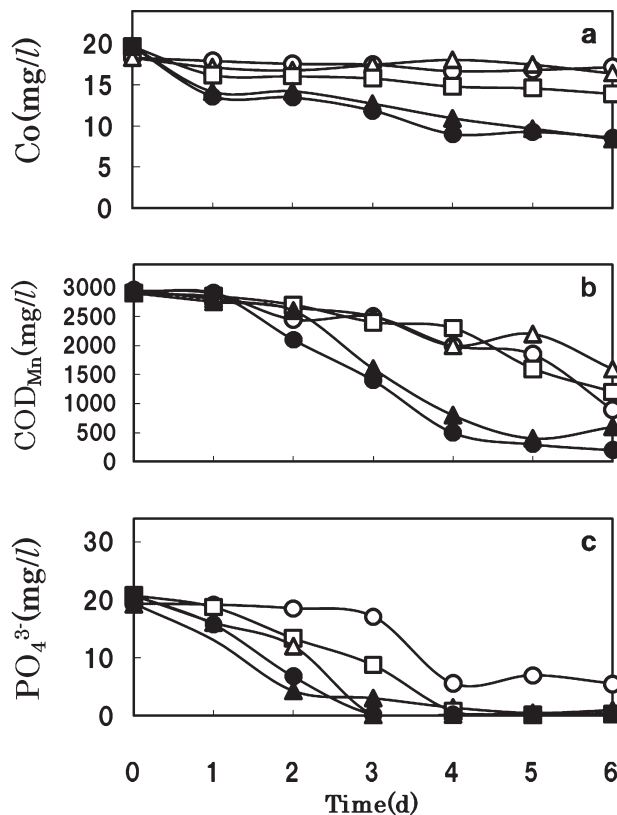


Fig. 4. Profiles of Co, COD and  $PO_4^{3-}$  in the synthetic sewage wastewater containing Co using strain SSI immobilized ceramic under aerobic dark condition. Symbols are the same as those in Fig. 2. This figure is reproduced from Ref. 17 with permission of Jpn. Soc. Wat. Treat. Boil.

放射性同位体)の除去だけでなく、水質浄化能力も併せ持つことが新規に確認された。Fig. 4に示すように、Coの場合はややSSI株に毒性があるようであり、Co、COD、リン酸イオンの除去はやや遅れる傾向にあった。最大で58%の除去であった。Coの除去は微生物では難しく、Mahanら<sup>29)</sup>も藻類でCo除去が容易でないことを報告している。いずれにしても、固定化SSIは放射性核種(非放射性同位体)の除去ばかりでなく、有機質、窒素、リンの浄化など水質浄化にも活用できることが明らかになった。有機物汚染された放射性核種を含む鉱山排水やラグーン排水などの浄化にも適用できると思われる。

#### 固定化SSIによる、重金属、有害金属の除去

多孔質セラミックに固定化した光合成細菌(S株)がCdをよく吸着、除去することはすでに明らかにしているが<sup>16)</sup>、その他のおもな重金属、有害金属の除去についても検討した。Fig. 5から明らかなように、有害重金属であるクロム(Cr)、水銀(Hg)も4個/Lの固定化SSIにより5日ではほぼ100%の除去が可能であった。この時、CODとリン酸イオンも、Fig. 2のUの時と同じように除

去されていた。Cuの場合は6日後に95%の除去であった。また、データは示していないが、鉛(Pb)についてもCuと同じように除去できることが確認されている<sup>17)</sup>。このように、有機質汚濁を含む重金属、有害金属含有廃液の処理にも利用できることが明らかとなった。

ヒ素(As)については、20 mg/Lでは毒性が強くSSI株が死滅してしまうが、低濃度の2 mg/L程度ではFig. 5dに明らかなように十分除去できた。

いずれにしても固定化SSIは、有機物汚濁を含む種々の有害金属、重金属廃液の浄化にも適用可能であることが明らかとなった。このことは、重金属を含む放射性物質除去に応用できる可能性を示唆している。

#### 廃棄ガラスセラミック固定化光合成細菌による、Cs、Srの同時除去

ケイ酸を主成分とするトライポット回収型多孔質セラミック(Fig. 1A, 1B)はややコスト高であるため、安価な廃棄物ガラスを用い磁石で回収できるように我々が改造して(Fig. 1C)、CsとSrの同時除去を検討した<sup>19)</sup>。

実験条件はケイ酸の多孔質セラミック固定化光合成細

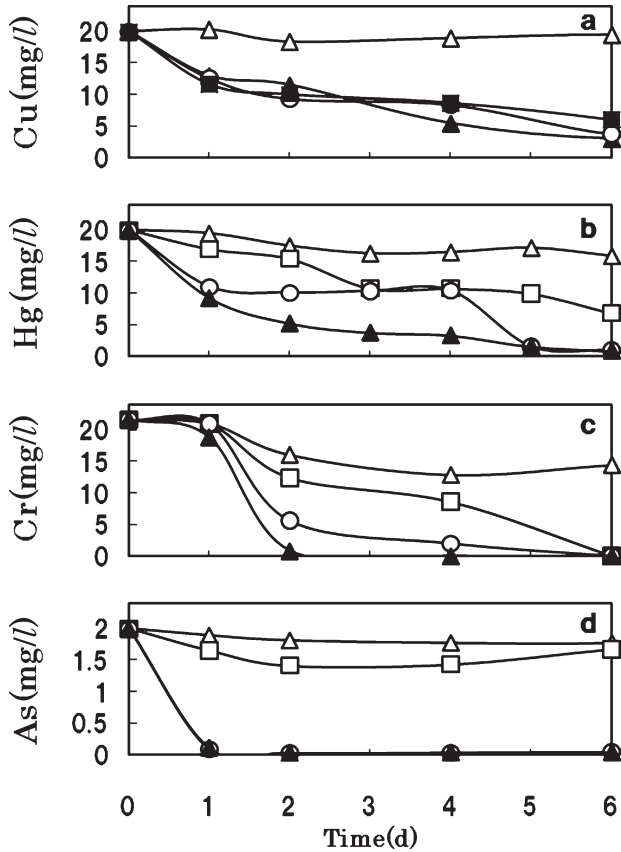


Fig. 5. Cu, Hg, Cr, and As removal with strain SSI immobilized ceramic in the synthetic sewage wastewater under aerobic dark condition.  $\Delta$ : porous ceramic 1 piece;  $\square$ : strain SSI immobilized ceramic 1 piece;  $\circ$ : strain SSI immobilized ceramic 2 pieces;  $\blacktriangle$ : strain SSI immobilized ceramic 4 pieces. This figure is reproduced from Ref. 17 with permission of Jpn. Soc. Wat. Treat. Boil.

菌を用いた放射性核種（非放射性同位体）の除去実験と同じで、セラミックをケイ酸から廃棄ガラス製に替えただけである。福島原発の事故以来、水や土壌の放射性セシウムの除染に大量に必要となることが予想され、低コストでの放射性物質除去を念頭に置いたからである。種々の廃棄物ガラスセラミック製品を試験した結果、Fig. 1Cに示すものが、SSI株の生育と表面や内部への固着に適していると判断され採用した。なお、このガラス製セラミックからの有害物質の溶出は認められなかった<sup>19)</sup>。Fig. 6にガラスセラミック固定化SSIによる、CsとSrの同時除去の結果を示す。

ガラス固定化SSI 4個/L使用で、Fig. 6に見られるように、2日後で人工下水中のほぼ100%のCsが除去された。8個の使用でもほぼ同じ結果が得られた。4日以降Csがわずかに増加しているのは、基質（グルコース）の欠乏により、菌が活性を失い吸着したCsを放出していると推定される<sup>30)</sup>。一方、Srはガラス固定化SSI 8個の使用で、2日で61%除去できることが明らかとなり、

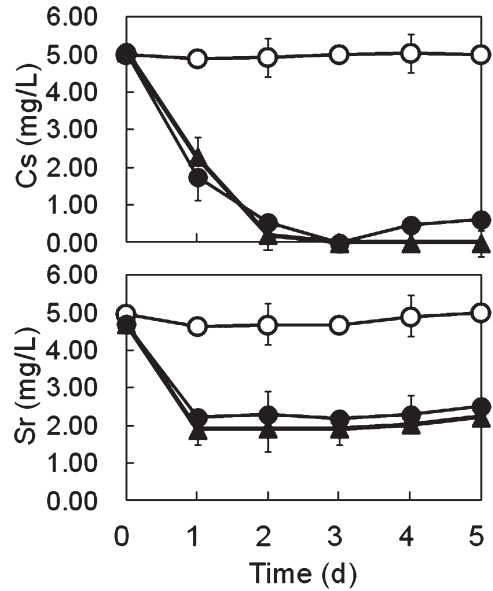


Fig. 6. Cs and Sr removal by SSI (*R. sphaeroides* SSI) immobilized ceramic in synthetic wastewater of glucose (4 g/L) as a substrate. 4–8 pieces of SSI-immobilized ceramic were put in synthetic wastewater ( $K=1.75$  mg/L) in 1 L vessel and aeration (0.2–0.5 vvm) was conducted at 30°C:  $\circ$ , control; 4 pieces of ceramic (not SSI-immobilized);  $\bullet$ , 4 pieces of SSI-immobilized ceramic;  $\blacktriangle$ , 8 pieces of SSI-immobilized ceramic. This figure is reproduced from Ref. 19 with permission of Scientific Research Publishing.

CsとSrの同時除去が、Fig. 3からFig. 5に示すケイ酸セラミックでの実験と同様に可能であった。このことから、コスト的に考えて安価な廃棄ガラス製のセラミックを用いて、大規模なCs除去、放射性物質除染に実用化しうる可能性が考えられる。

一度、ケイ酸セラミックや廃棄ガラスセラミックに吸着した放射性核種（非放射性同位体）、CsやSrを含むSSI菌体は、アルギン酸Caゲルに包括固定化の状態、ゲルごとセラミックの表面に吸着しているので、NaCl溶液中でゾルにもどし超音波洗浄をすれば、CsやSrを含む菌体ごと水溶液として回収できることが判っている<sup>19)</sup>。すなわち、広く低濃度に汚染された放射性物質をガラス固定化SSIで高濃度のCsやSr溶液に濃縮が可能であることを意味している。菌が離脱したセラミックは再びSSI株を固定化して再利用することも可能である。

#### 光合成細菌による放射性核種（非放射性同位体）の除去メカニズム

光合成細菌が放射性核種（非放射性同位体）を除去できるメカニズムは、Cdなど、重金属除去と同じメカニズムと推定される<sup>17)</sup>。SSI株は自己凝集性が強い。これは菌体表面に、RNA、多糖類、タンパク質などからなるEPSを生産するためである。このEPSは負電荷をもつ

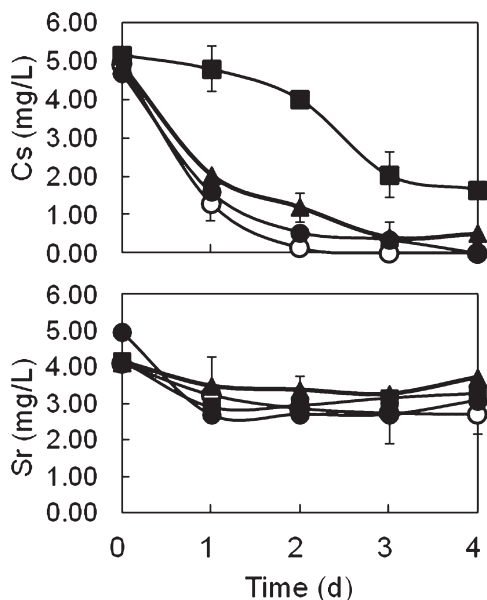


Fig. 7. Effect of K concentration on removal of Cs and Sr by SSI (*R. sphaeroides* SSI) immobilized ceramic in the synthetic wastewater of glucose (4 g/L) as a substrate. 4 pieces of SSI-immobilized ceramic were put in 1 L synthetic sewage wastewater. Then aeration (0.2–0.5 vvm) was conducted at 30°C. Initial Cs and Sr were 5.0 mg/L. ○, K 0 mg/L; ●, K 1.75 mg/L; ▲, K 3.35 mg/L; ■, K 6.70 mg/L. This figure is reproduced from Ref. 19 with permission of Scientific Research Publishing.

ており、この負電荷に引き寄せられ、カチオンである放射性核種（非放射性同位体、U、Co、Sr、Cs）や重金属や有害金属が、菌体表面に吸着除去されるものと推定している。実際、光合成細菌 *R. sphaeroides* S や *Rhodovulum* sp. による Cd の除去は、フリードリッヒ吸着式に従うことが確認されており<sup>16)</sup>、放射性核種（非放射性同位体）の除去も吸着による除去と考えられる。

しかし、Cs の場合は 1 価のカチオンであり、K と化学的に似た挙動を示すことから、カリウムポンプによる菌体内取り込みも充分考えられる。光合成細菌 *R. sphaeroides* はおもにカリウムポンプにより K を菌体内に取り込んでいる報告もあり<sup>31,34)</sup>、現在のところ SSI 株による Cs 除去については、吸着とカリウムポンプによる取り込みの両方のメカニズムが働いているものと推定される。そこで、SSI 株の Cs 取り込みに及ぼすカリウムの影響を検討した。

#### ガラス固定化 SSI 株による Cs 除去における K の影響

Fig. 7 にガラス固定化 SSI 4 個/L を用いた、種々の濃度の K 存在下、Cs (5 mg/L) の除去について示す。人工下水の K 濃度が 6.70 mg/L の場合、低い濃度の 0–3.55 mg/L に比べて Cs の除去は抑制された。SSI 株の Cs 取り込みは K の影響が大きいことが明らかとなった。この

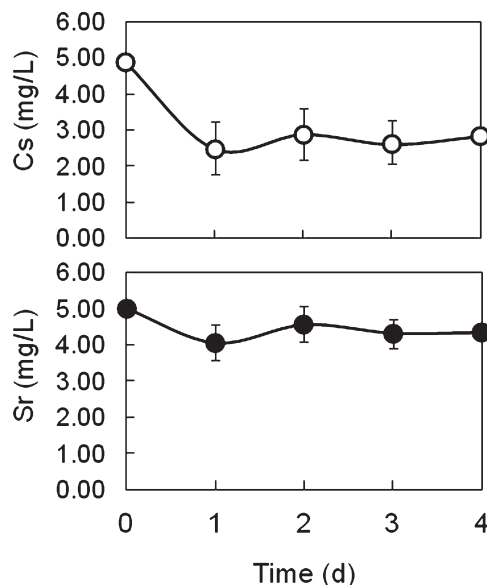


Fig. 8. Outdoor experiments of Cs and Sr removal by SSI (*R. sphaeroides* SSI) immobilized ceramic in synthetic wastewater of lactic acid (4 g/L) as a substrate. 1,200 pieces of SSI-immobilized ceramic were put in 500 L sewage wastewater (K=1.75 mg/L, contained in 1 m<sup>3</sup> vessel). Aeration of 0.2–0.5 vvm was conducted. pH of the water was maintained manually at 6.0–7.5. The outdoor temperature was 21–25°C: ○, Cs concentration in wastewater; ●, Sr concentration in wastewater. This figure is reproduced from Ref. 19 with permission of Scientific Research Publishing.

ことは K の取り込みにカリウムポンプが働いている可能性が考えられる。すなわち、カリウムポンプにより K が光合成細菌に取り込まれて菌体内に十分な状態になると、K と Cs は同じ挙動をするので、もはや K も Cs もそれ以上は取り込まれないようであった。高い K 濃度であると Cs の菌体内取り込みは少ししか行われず、結局 Cs の除去率は低くなるようである。Avery ら<sup>9)</sup>は *Chlorella emersonii* を用い、Cs の取り込みの時の K との競合を検討し、我々の結果と同じ傾向を認めて、Cs はカリウムポンプで K と同時に取り込まれていることを考察している。SSI 株では、菌体表面への EPS によるマイナスチャージと、カリウムポンプの両方が働き、Cs を除去していると推定される。一方、Sr の除去については K の影響は受けなかった。前報のごとく<sup>16)</sup> EPS のマイナスチャージによる除去と思われる。

なお実用的に考えた場合、福島地区の河川水や水道水の K 濃度は 1–3 mg/L 以下であり、現地屋外での実用的 Cs 除去には影響はほぼないものと思われる<sup>19)</sup>。

#### 屋外での実用的 Cs および Sr の除去

室内の 1 L レベルでの容器の実験では実用試験として十分でない。バイオ技術の場合は必ずスケールアップ実験を行い、室内でのフラスコ、または小規模試験の結果

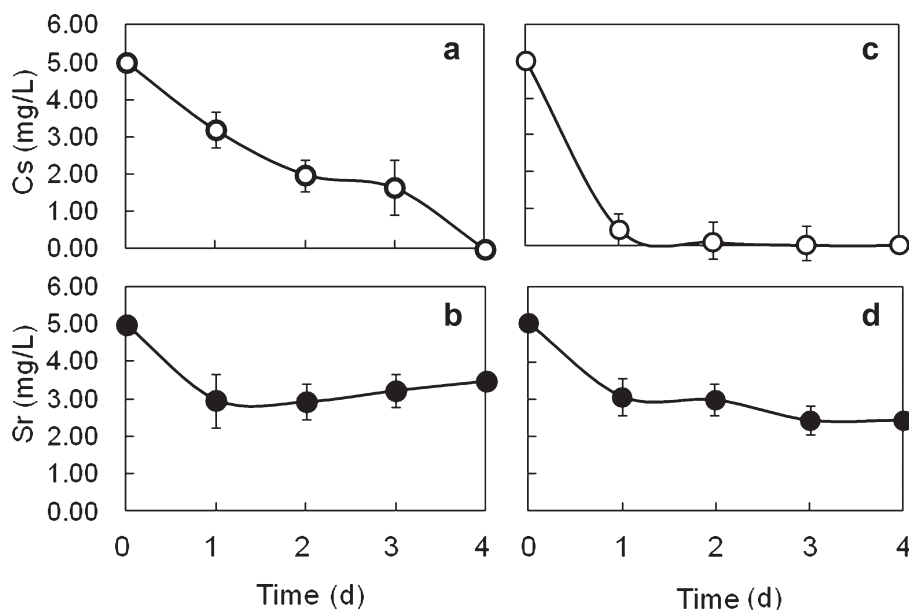


Fig. 9. Outdoor experiment of Cs and Sr removal by SSI (*R. sphaeroides* SSI) immobilized ceramic in synthetic wastewater of glucose (4 g/L) as a substrate. 1,200 pieces (a, b) and 1,700 pieces (c, d) of SSI-immobilized ceramic were put in 500 L of synthetic wastewater ( $K=1.75$  mg/L, contained in 1 m<sup>3</sup> vessel). Symbols and treatment conditions were the same as those presented in Fig. 8. This figure is reproduced from Ref. 19 with permission of Scientific Research Publishing.

が反映されることを確認しておく必要がある。Fig. 8とFig. 9に屋外1トントクでの実証試験の結果を示す。また、実験の様様をFig. 10に示す。Fig. 10に示すように、ガラス固定化SSIをメッシュバッグに入れ除染処理後、水中から回収が容易なようにしている。このガラス固定化SSIはトライポット型の固定化SSIと同様に、電磁石で回収が可能であるので、大型電磁石が用意できる場合はメッシュバッグの必要がなく回収がきわめて容易である。このセラミックは約95%の部分を水中に浸して、氷山のようにかろうじて浮かんでいる状態で、大型電磁石で回収が容易なようにガラス素材、比重などを選別改良している。

Fig. 8に屋外で(21–25°C)、乳酸を人工下水の基質にした場合のCsとSrの同時除去を示す。1–3日で51%のCs除去が可能であった。Srの除去はやや容易でなく、1–3日で11–20%の除去であった。この結果は室内1 L規模の実験とほぼ同じであった。また、酢酸とプロピオン酸の混合物(2 g + 2 g/L, 計4 g/L)を基質とした場合の実験とほぼ同じ結果であった(データは示さず)<sup>19)</sup>。乳酸や酢酸およびプロピオン酸などの基質は、食品廃棄物や家畜廃棄物から、嫌気消化や乳酸発酵により比較的容易に得られる基質であるので、重金属除去への廃棄物利用が期待される。

一方、グルコースを用いた場合は、Fig. 9aに示すように4日ではほぼ100%のCsが除去できた。Srは31%の除去であった。しかし、固定化セラミックの数を

Photo 1A



Photo 1B



Fig. 10. Mesh bag containing SSI immobilized glass ceramic (A). Outdoor practical removal of Cs and Sr using a 1 m<sup>3</sup> vessel.

1200個/500 Lから1700個/500 L(3.4個/L相当)に増量した場合、2–4日ではほぼ100%のCsと51%のSr除去を達成できた。このことは本システムで実用的にCsとSrが同時除去できることを示し、原子力発電所からの放射性物質を含も廃液の処理にも使えるのではないと思われる。

Harveyらは淡水性緑藻を用いた室内実験で、<sup>137</sup>Csと<sup>185</sup>Srの同時除去を行い、光合成培養の3日後でそれぞれ64%のCsと34%のSrの除去を報告している<sup>6)</sup>。我々のほうがほぼ100%のCs除去が達成できており、しかも屋外実証試験での好気処理結果であり、光照射を必要とせずより実用性が高いものと思われる。最近、志村ら<sup>11)</sup>は緑藻、*Parachlorella binos*を用いた実験で、100 mg/Lの高濃度菌体で、10分後約40%の放射性Csと約20%の

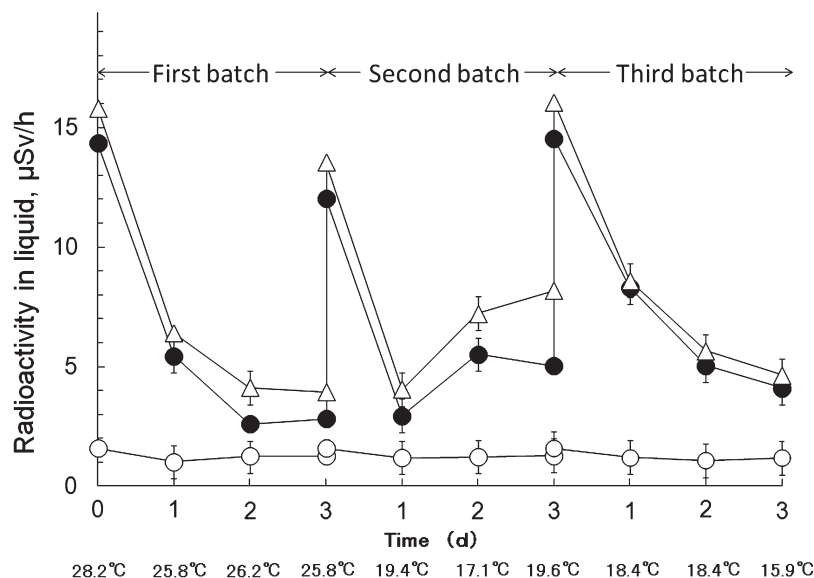


Fig. 11. Removal of radioactive Cs from sediment mud obtained from a school swimming pool solubilized by acid (HNO<sub>3</sub>) by repeated batch treatment with the same immobilized *R. sphaeroides* SSI. After first and second batch treatments, fresh sediment mud solubilized by acid was placed in a 55-L container with glucose and pepton, and then aeration was continued. Under the figure, temperatures of the vessel at 10 am each day are shown. ●, radioactivity in broth; △, radioactivity of sediment residue after filtration; ○, radioactivity in filtrated water. This figure is reproduced from Ref. 31 with permission of Jpn. Soc. Biosci. Biotechnol. Agrochem.

Srの除去を試験管レベルで報告し、これ以上は時間をかけても除去率は増加しないことを報告している<sup>11)</sup>。微生物を用いた実用的なCsとSrの同時除去に関する報告がなく比較考察ができないが、我々の屋外実証実験が最初であろう<sup>30)</sup>。

このシステムのメリットは水が濁っていても処理可能で、通気を行えばよく実用性が高いことである。また、ほかの金属を含む廃液の処理も可能で、放射性物質を含む排水のゼオライト処理や膜処理の前処理として利用できるものと思われる。固定化セラミックに回収したCsやSrは電磁石で回収後、塩化ナトリウム水溶液中に浸すと、セラミックに固定化したアルギン酸Ca（ゾル）がアルギン酸Naになりゲル化し溶け出すので、超音波処理を行うとさらに溶出が進み、セラミックの多孔質の内部のSSI菌体も溶出してきた。最大95%のCsとSrを溶液の状態での回収が可能なが判っている<sup>19)</sup>、低濃度で広く汚染された水中の放射能を、SSI菌体とともに濃縮することが可能な技術である<sup>19)</sup>。

### 放射性Csの実用的除染

これまでは非放射性的のCsやSrを用いて実験を行ってきたが、福島市より公立学校のプールの水の除染を依頼され、福島市中での実験を行った。意外にもプールの水の中には放射性Csは2011年9月の時点でほとんど検出されず、放射性ヨウ素もSrもほとんど検出されなかつ

た<sup>31)</sup>。放射性Csは底にたまったヘドロに吸着された状態で検出された<sup>31)</sup>。このヘドロは周囲の林や生け垣の木葉などが飛来し腐敗したものと、夏期に発生したアオコの腐敗、蓄積したものである。

そこで、放射性Csを多く含むヘドロを、天然凝集沈殿材キトサンを用いて凝集沈殿し、比較的高濃度の濃縮ヘドロを採取した。このヘドロ（乾燥重量6.69 g/L, COD<sub>Mn</sub> 3.20 mg/L）は比較的高い放射能を含んでいた（13–15 μSv/h）。この濃縮ヘドロを、プールサイドの屋外実験（55 L角形容器）で、固定化光合成細菌SSIビーズ（固定化SSIビーズ）による除染実験を行った<sup>31)</sup>。この時、固定化SSIビーズは、廃棄ガラス固定化菌体よりやや高価となるが、大き目（約2 cm）のブドウ粒状アルギン酸ビーズを用いた<sup>15,31)</sup>。これは後述するように、放射性Csを回収後に、乾燥と低温焼却（600°C）で、容量と重量を97–99%減容できるため、福島で問題となっている中間保管場所の確保対応に配慮したものである。このビーズはレストランなどの高温グリストラップ排水処理に我々が実用化したものである<sup>15,32)</sup>。

50 LのヘドロをpH 2.0で1日間、硝酸処理をしたのち、pHを中性に戻し、固定化SSIビーズを2袋（1袋内にビーズ210個を含む）入れたヘドロに浸漬し、好気処理した。栄養源として人工下水成分（グルコース、ペプトン、ビタミン類）<sup>18,31)</sup>を添加した。硝酸処理は、有機物や土壌結晶中に固く結びついた放射性Csを、Cs<sup>+</sup>として水溶



液中に溶出できるといわれていることから実施した。川本ら<sup>1)</sup>は土壌に対し0.5 Nの硝酸処理を60–95°Cで行い70–90%の硝酸が水中に溶出していることを確認している。ここでは、実用性を考え、常温で硝酸処理を行った。

Fig. 11に示すように、3日で14.35  $\mu\text{Sv/h}$ の放射能が2.06に、つまり10.6%に低減した。プール周囲の空間放射線量は1.0–1.3  $\mu\text{Sv/h}$ であったので平均1.20  $\mu\text{Sv/h}$ とすると、 $(2.06-1.20) / (14.35-1.20) \times 100$ で、放射能除去率が10.6%と算出できる。アルギン酸自体は非放射性Csや放射性Csは吸着できないので<sup>31)</sup>、これはSSI株が放射性Csを取り込んだものと思われる。このように、実用的バイオ技術で、約90%の放射能除去成功はこれまで報告がない新規の知見であった。

さらに、新たにヘドロを入れ替えて、同じビーズで2度目の回分処理をおこなっても、1日で、2.95  $\mu\text{Sv/h}$ まで低下した。天候変動で屋外温度がやや低下しSSI株の活性低減のため、Cs放出による放射能はやや上昇したが、さらに新たなヘドロを入れ替えて、処理を継続すると、3回目の回分処理では78.3%の除去が達成された。SSI株は25–35°Cで増殖活性が強いけれど、10–20°Cでも十分放射能除去活性を示すことが示された。この低温での繰り返し利用可能という事実は、寒い東北では実用的に重要である。

### ヘドロからの放射性Csの溶出

放射性Csはヘドロに強く結合していたので、硝酸によるヘドロからのCsの溶出を検討した。Fig. 12に示すように、pH 2.0や1.6で1日保持しても、ほとんど水の中には放射性Csは溶出されなかった。産業総合研究所の川本ら<sup>1)</sup>は0.5 mol/Lの硝酸で、95°Cにしてもせいぜい約70%の放射性Csをしか汚染土壌から溶出できなかったと報告している。橋本ら<sup>33)</sup>は、Csは腐葉土のフミン質やフルボ酸に強く結合しており、粘土やカリオナイトおよびマイカよりも50–100倍の強さで結合していることを報告している。このことは、光合成細菌の作用(吸着力、カリウムポンプ吸引力)により、ヘドロから有機質に結合したCsをCs<sup>+</sup>の形ではぎ取っている可能性を示唆しており<sup>31)</sup>、重要な知見であり、今後詳細な学術的検討が必要である。

### 硝酸処理無処理でのヘドロからの放射性Csの除去

硝酸処理をしてもほとんどCsは水の中に溶け込んでこなかったため、硝酸処理することなく固定化SSIビーズで処理をした。Fig. 13Aに示すように、ヘドロを硝酸で前処理しなくても十分放射性Csが除去できることが明らかとなった。このことは実用面からきわめて重要

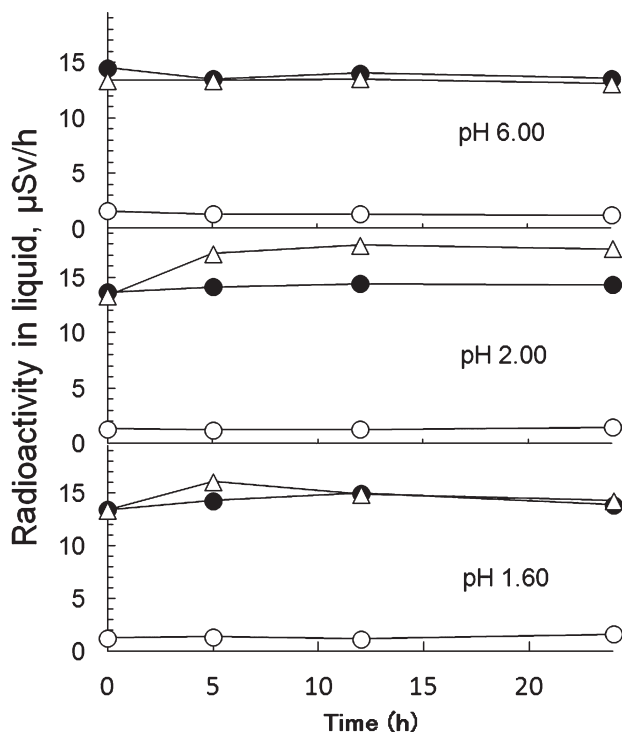


Fig. 12. Profiles of the radioactivity of Cs during HNO<sub>3</sub> solubilization of concentrated sediment mud. pH 6.00 indicates no HNO<sub>3</sub> addition, while pH 2.00 and 1.60 indicate conc. HNO<sub>3</sub> addition in concentrated sediment mud. No immobilized cells were added. ●, radioactivity of concentrated sediment mud broth; △, radioactivity in sediment residue after filtration; ○, radioactivity in filtrated water. This figure is reproduced from Ref. 31 with permission of Jpn. Soc. Biosci. Biotechnol. Agrochem.

である。また、Fig. 13Bには、メッシュバッグ中のビーズ量を半分に処理した結果を示すが、Fig. 11と同じように放射性Csが除去されており、Fig. 11の結果の妥当性をも十分支持するものである。菌の量、温度など最適化実験を行うとより効率の良い放射能除去も可能であろう。

### 回収した使用済み固定化SSIビーズの減容化

福島では粘土やゼオライトを用いた放射能除染が実際には行われているが、吸着した後の膨大な量の放射性廃棄物の発生で、中間処理施設の確保が新たな問題を投げかけている。

本技術の有用なところは、放射性Csを吸着したアルギン酸ビーズを、乾燥と焼却することで、大幅に回収した廃棄物を減容できる点にある<sup>31)</sup>。すなわち、メッシュバッグから回収したビーズは、80–90°Cで3日間オープンの中で乾燥したところ、水分が飛散し容量は97.2%減容した。オープン中の大気中の放射能は3日ともほぼ0.12–0.13  $\mu\text{Sv/h}$ で、大気中への放射能の飛散は認めら

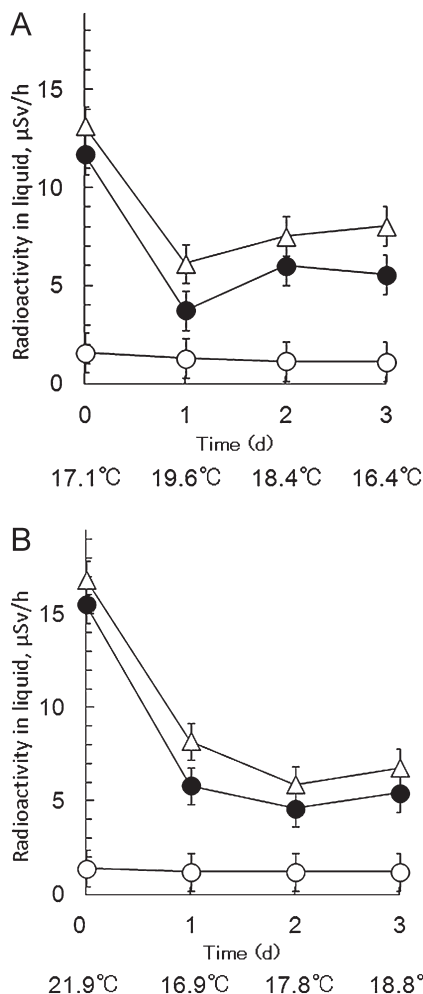


Fig. 13. Removal of radioactive Cs from concentrated sediment mud directly (without HNO<sub>3</sub> treatment) (A) and removal of radioactive Cs from sediment mud solubilized by acid (with HNO<sub>3</sub> treatment at pH of 2.00 for 1 d) using half amount of immobilized cells (B). Under the figure, the temperatures of the vessel at 10 am each day are shown. Symbols are identical to those used in Fig. 1. This figure is reproduced from Ref. 31 with permission of Jpn. Soc. Biosci. Biotechnol. Agrochem.

れなかった。さらに、約600°Cで焼却したところ、光合成細菌を含むアルギン酸ビーズは灰分のみとなり、重量で99.3%の減容が可能となった<sup>31)</sup>。このことは、放射能を含む中間廃棄物の保管の問題を解決に向かわせる一つの新技术と言てよい。

前述の廃棄ガラスを用いたガラス固定化SSIでCsを回収する方法では、セラミックから塩化ナトリウム水溶液と超音波処理で、放射性Csを含むSSI菌体を引き出し溶出する操作が必要だが、アルギン酸ビーズを用いた場合はこれが省略でき、より簡便により少量での中間保管が可能となる。粘土やゼオライトによる吸着ではこのような大幅減容は不可能なので、固定化SSIビーズを用いた生物濃縮技術はより有用と思われる。

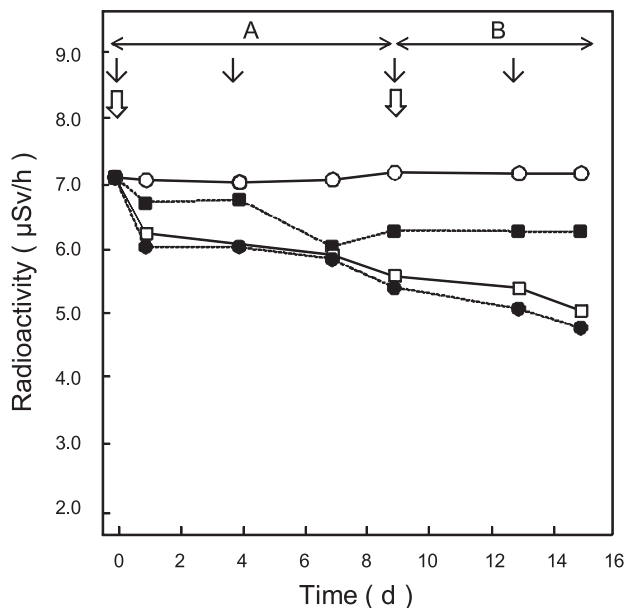


Fig. 14. Removal of radioactivity by *Rhodobacter sphaeroides* SSI immobilized beads from polluted soil suspended broth in Fukushima. 1–3 bags containing beads (about 210 pieces per bag) were put in soil suspended broth (5 kg soil and 10 L tap water). Nutrients (glucose, peptone and vitamins) were added and aeration 0.2–0.3 vvm continued. Temperature and pH were maintained 30 ± 1.0 and 6.0–7.5: A, first treatment; B, second treatment after fresh SSI immobilized beads bags added. Solid arrows and open arrows respectively indicate nutrient addition and SSI immobilized mesh bags replaced: ○, control (no mesh bag of SSI immobilized beads); ■, one mesh bag; □, 2 mesh bags; ●, 3 mesh bags. This figure is reproduced from Ref. 34 with permission of Jpn. Soc. Biosci. Biotechnol. Agrochem.

### 汚染土壌からの放射能の除染

ヘドロからの放射性Cs除去に成功したので、福島に広く分布する、汚染土壌、特に里山の森林土壌（南相馬市原町地区）の除染を行った<sup>34)</sup>。汚染土壌5 kgに水10 L（南相馬市水道水、0.4 μSv/h以下）を懸濁しよく攪拌して、ヘドロ除去と同じく栄養源を添加し固定化SSIビーズを入れたメッシュバッグを1–3袋浸漬して通気を行った。この結果をFig. 14に示す。土壌懸濁液の放射能は予想に反してあまり除去されなかった。もっとも除去された3袋入れた実験でも、7.26 μSv/hであった放射能が9日で5.63 μSv/hに低下し、22%の放射能除去であった。ヘドロの約90%除去と大きな違いであった。さらにメッシュバッグに新しいSSI株をいれ除染を継続したが、15日後に5.02 μSv/hと最大31%の除去率であった<sup>34)</sup>。

放射性Csについて、藤川<sup>35)</sup>は放射性Csはシルト、粘土質土壌と強く結合していることを報告している。また、橋本は<sup>33)</sup>、放射性Csは腐葉土についてはフルボ酸やフミン質に強く結合していることを報告している。ヘドロに比較して、土壌ではこれらとCsとの結合が強いよう

で、このシステムでは放射性Csの汚染土壌の実用的除染は厳しい状態であった。そこで乳酸菌を用いる前処理について検討した。

### 乳酸菌による土壌からの放射性Csの分離

我々は長く乳酸菌と光合成細菌を用いた広島湾のヘドロの浄化の研究を行ってきた<sup>36,37)</sup>。この中で、ある乳酸菌はヘドロや干潟の土壌の有機物を分解して、CODを低下させ浄化しうることを明らかにしている<sup>37)</sup>。嫌気消化菌や乳酸菌で有機物を分解し生成した酢酸、やプロピオン酸および乳酸を、光合成細菌で分解浄化するシステムである<sup>38)</sup>。そこで、この考え方を放射能汚染土壌の除染に応用した。汚染土壌5 kgと水(水道水) 10 Lを加えた土壌懸濁液に、培養した乳酸菌 (*Lactobacillus casei*) を添加した場合の、土壌からの放射性Csの溶液への溶出を検討した。この乳酸菌は環境浄化剤、えひめAIから単離したものである<sup>39)</sup>。えひめAIは、愛媛県では河川の浄化、ヘドロ除去、トイレ水の浄化に広く実用的に用いられており、効果が確認されている環境浄化剤である<sup>40)</sup>。

Fig. 15Aは乳酸菌を添加しない土壌懸濁液を嫌気発酵(35°C) したただけの場合であるが、14日後に沈殿部の土壌画分は3.40  $\mu\text{Sv/h}$ となり、54% (7.25  $\mu\text{Sv/h}$ から3.40) の放射能減少であった。約半分の放射能が懸濁液画分に溶出していた。しかし、乳酸菌培養液を添加した場合 (Fig. 15B), 乳酸発酵と嫌気消化が同時進行したが、興味深いことに、土壌画分は14日後に2.50  $\mu\text{Sv/h}$ と66%の減少が確認され、一方、懸濁液画分に多くの放射能が検出された。このことは、乳酸発酵や嫌気消化によって、Cs含有腐葉土を含む森林土壌の高分子の有機物が分解され、低分子の粒子になって懸濁液画分に存在、浮遊しているためと推定される。Fig. 15Aの嫌気消化のみとFig. 14Bの嫌気消化と乳酸発酵のいずれの場合でも、懸濁液画分を遠心分離した上清中、水には放射能はほとんど検出されなかった。実験した南相馬市の空間線量は0.3–0.5  $\mu\text{Sv/h}$ であったので、水の中にはCs<sup>+</sup>としての放射性Csはまずないと言ってよい。水の中には遠心分離で固形分は除かれており、Csがあるとすれば、Cs<sup>+</sup>しか考えられず、しかも、線量計で計測する時、空間放射能線量以下には、線量計の数字が下がらないからである(バックグラウンド)。福島市のヘドロで、硝酸を用いて放射性Cs溶出を行った結果と同じで (Fig. 12), Cs<sup>+</sup>は水の中にはほとんど出てこないと考えてよいと思われた。

このように、乳酸発酵で腐葉土の放射性Csが粒径の小さな有機物とともに溶液中に溶出、懸濁していることはこれまで報告がなく、新規の知見である<sup>34)</sup>。この実験

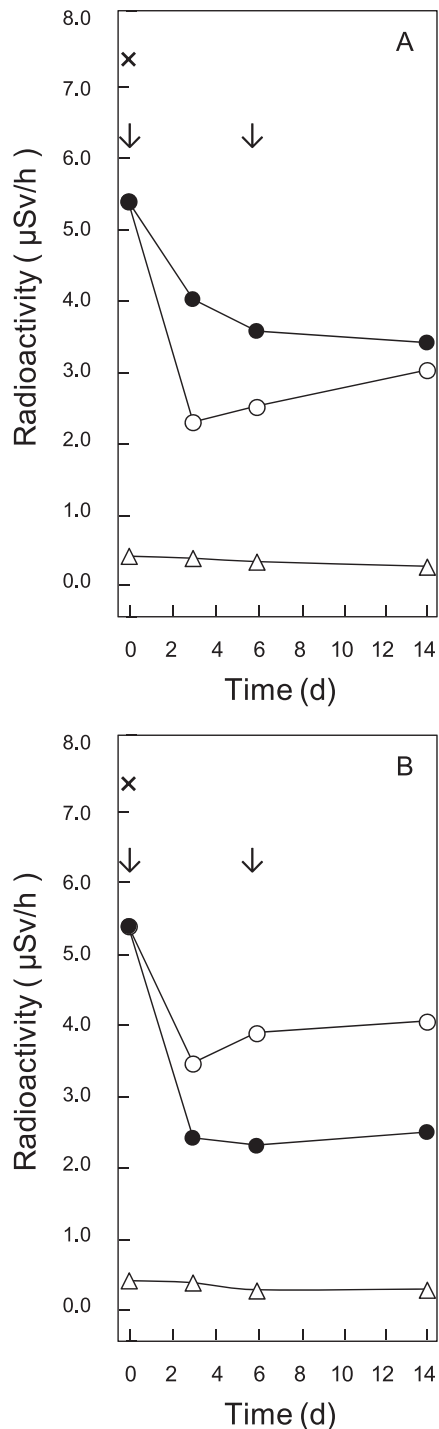


Fig. 15. Radioactivity distribution in soil and suspended broth fraction during anaerobic digestion (A) and anaerobic digestion and lactic acid fermentation (B) of radioactive Cs polluted soil in Fukushima. Soil suspended broth (5 kg soil and 10 L tap water) were incubated at 35°C ± 1.0 after nutrient addition (solid arrows). pH was maintained as 6.0–7.5: A, anaerobic digestion; B, 1 L of lactic acid bacterial culture broth was added; ○, suspended broth fraction after 20 s static condition; ●, soil fraction after 20 s static condition; △, clear water after centrifugation (10,000 × g 20 min); ×, original soil (7.25  $\mu\text{Sv/h}$ ) used here. This figure is reproduced from Ref. 34 with permission of Jpn. Soc. Biosci. Biotechnol. Agrochem.

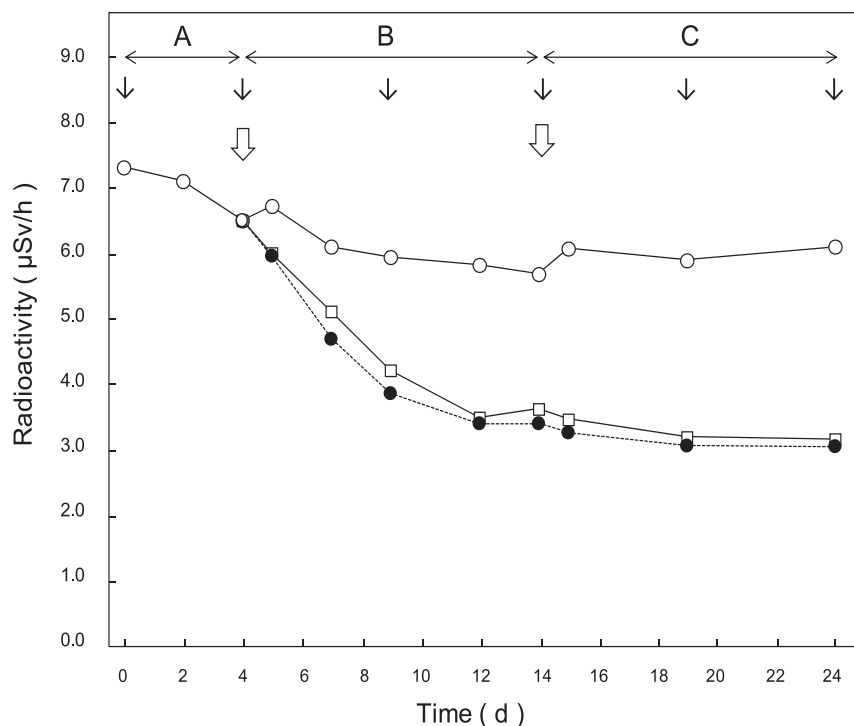


Fig. 16. Removal of radioactivity of soil suspended broth in Fukushima by combination with anaerobic digestion and lactic acid fermentation and *Rhodobacter sphaeroides* SSI immobilized bead treatment from polluted soil suspended broth. As the pre-treatment, anaerobic digestion and lactic acid fermentation were conducted for 3 d (A) at  $35^{\circ}\text{C} \pm 1.0$  after lactic acid bacterial broth and nutrient (glucose, peptone, and vitamins) addition to the soil suspended broth (5 kg soil and 10 L tap water). Subsequently 2–3 mesh bags were soaked and aeration of 0.2–0.3 vvm was continued under the same conditions as those described for Fig. 14. Temperature and pH were maintained respectively at  $30^{\circ}\text{C} \pm 1.0$  and 6.0–7.5 (B, C): A, pre-treatment, anaerobic digestion and lactic acid fermentation; B, first treatment after SSI immobilized bead addition; C, second treatment after fresh SSI immobilized beads bags soaked. Solid arrows and open arrows indicate nutrient addition and SSI immobilized mesh bag addition: ○, control (no mesh bag of SSI) addition; □, 2 mesh bags added; ●, 3 mesh bags added. This figure is reproduced from Ref. 34 with permission of Jpn. Soc. Biosci. Biotechnol. Agrochem.

では土壌の放射能は約66%除かれ、懸濁液画分に溶出したが、より有機物分解力の強い乳酸菌を検索すれば、より高い除去率は十分期待される。現在、新規の高活性有機物分解乳酸菌の検索を行っているところである。乳酸菌は培養が簡単であるし、食品工業廃棄物などの有機性廃棄物での培養も可能であるので、コストを考えると実用性は高いと思われる。

#### 乳酸発酵と光合成細菌処理の組み合わせによる、 土壌の除染

光合成細菌 SSI ビーズ処理では土壌の放射能は最大31%しか除去できなかった (Fig. 14)。そこで、前処理として乳酸発酵と嫌気消化を行い、その後溶出してきた細かい粒子、低分子の有機物に含まれる放射性Csを SSI ビーズで除去する実験を行った。Fig. 16に示すように、土壌懸濁液を最初  $35^{\circ}\text{C}$  で4日間嫌気消化と乳酸発酵を行い、その後メッシュバッグに入れた SSI ビーズを浸漬し、栄養源添加と通気を行いつつ、好気処理を行った<sup>34)</sup>。

その結果、2袋と3袋の場合それほど大差はなかった

が、24日後に  $7.33 \mu\text{Sv/h}$  あった土壌懸濁液の放射能は3袋投入で  $3.02$  まで低減した。これは最大で59%の低減であった。SSI株のみの31%と比較して大きく低減した。これは、乳酸菌や嫌気発酵により、高分子有機物に含まれている放射性Csが、細かい粒子となり、懸濁液画分に懸濁し、SSI株による取込みがより容易になったためと思われる<sup>34)</sup>。乳酸菌を改善し、土壌中の有機物分解がより進行すれば、約70%以上の除染も可能性は十分考えられる。さらに、ヘドロの放射能除染のように約90%の除染の可能性も考えられる。しかし、粘度質土壌と強く結びついたCsは、乳酸菌では除染の限界もあろうかとも思われる。このことは現在検討中である。

さらにこの時の土壌画分、懸濁液画分および水の画分の放射能分布を Fig. 17に示す。

対照の嫌気消化と乳酸菌発酵のみで光合成細菌を加えていない場合は、懸濁液画分の放射能は処理中あまり変わらず、やや上昇した。土壌画分の放射能も少しずつ上昇していった。この上昇する理由は明らかではないが、土壌の中に深く結合した放射性Csや乳酸菌や消化菌体

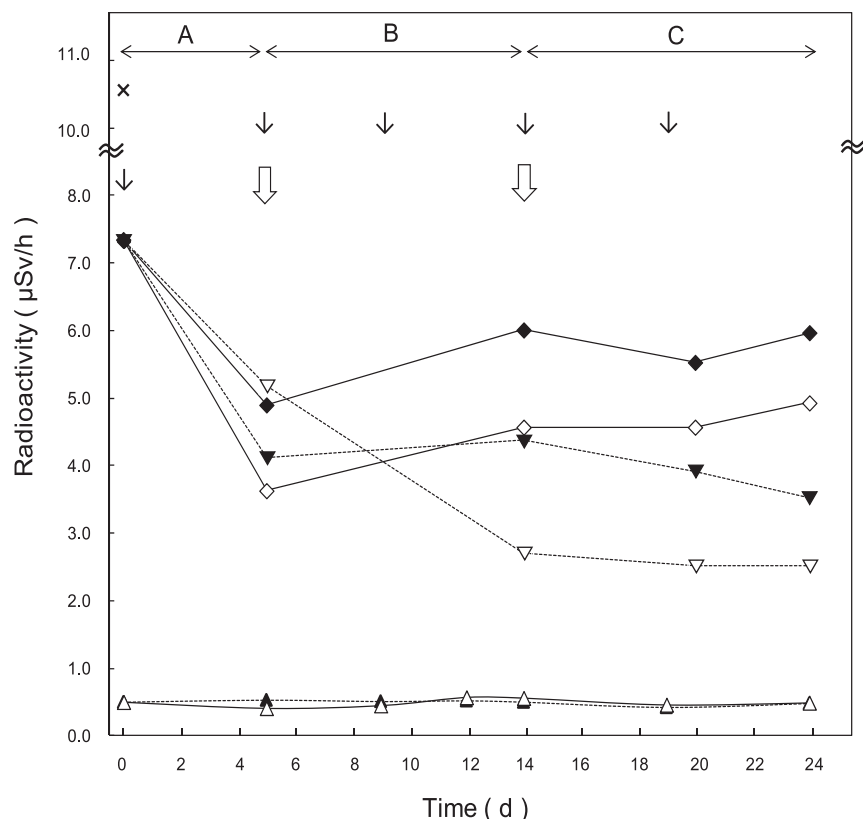


Fig. 17. Radioactivity distribution in soil, suspended broth, and clear water fraction during combined treatment with anaerobic digestion and lactic acid fermentation and SSI immobilized beads. The same experiment depicted in Fig. 3. ◆, control, soil fraction after 40 s static condition; ◇, control, suspended solid fraction after 40 s static condition; ▲, control, clear water fraction after centrifugation (10,000 × g, 20 min); ▼, soil fraction after 40 s static condition with 3 mesh bags of SSI immobilized beads loading; ▽, suspended broth fraction after 40 s static condition with 3 mesh bags of SSI immobilized beads loading; △, clear water fraction after centrifugation (10,000 × g, 20 min); ×, original soil (10.56 µSv/h) used here. This figure is reproduced from Ref. 34 with permission of Jpn. Soc. Biosci. Biotechnol. Agrochem.

内部などに取り込まれた放射性Csで、周囲の土壌や菌体細胞壁で遮蔽されており検出器に検出されない部分が溶出し、細かい粒子の有機物とともに懸濁し、新たに放射能として検知している可能性も考えられる。高精度の機器でベクレル単位での定量的学術検討が必要である。

しかし、SSIビーズのメッシュバッグを3袋加えた場合は、懸濁液画分、土壌画分の放射能は徐々に低減した。これはSSI株に放射性Csが取り込まれたものと思われる。24日後に土壌画分の放射能は3.52 µSv/hまで低減した。この土壌の採取後の、実験初発の放射能は10.56 µSv/hであったので、67%の除去と算出された。バイオ技術で、土壌の放射能が約7割も低減できた例は報告がなく、新規の知見である。実用的にも対比する報告がなく、この数値の判断は難しいが、7割という数値はゼオライト処理(70–100%)<sup>9,10)</sup>を考えると同じかやや低いレベルであった。しかし、ゼオライト処理は処理後の汚染ゼオライトの減容化ができず、中間保管場所の確保の問題を引き起こしており、このことを考えると、光合成細菌とアルギン酸の組合せはメリットが大きいと

思われる。加えて、嫌気消化菌、乳酸菌、光合成細菌などは昔から、土壌改良剤として、農業、園芸に多用されてきた経緯があり<sup>23,39)</sup>、本バイオ技術は農業や園芸になじみやすいものと思われる。たとえば、土壌の除染はゼオライト処理やクラウンエーテルによる薬剤処理などが試みられているが、処理した土壌が農業や園芸に利用できるかどうか、毒性などの詳細な検討が必要である。一方、本処理で除染した土壌は後述するように、除去できる放射性Csはほぼすべて光合成細菌に移行しており、もはや植物を栽培しても植物体内には移行しないものと思われ、農業や園芸に直ちに利用できる利点があり、実用の可能性は高い。

さらに、回収したビーズは乾燥、焼却で約97–99%の減容が可能であり、中間保管場所確保の問題も解消可能である。加えて、本処理のメリットの一つとして考えられるのは、光合成細菌SSI株の接触で、光合成細菌に取り込みやすい形態の放射性Csはすでに取り込まれており、土壌に残存する放射性Csは土壌の結晶構造にきわめて強く結合して<sup>35)</sup>、もはや植物を栽培しても、植物体

には取り込むことができない結合になっているものと考えられる。つまり、残存している約3割の放射性Csは不溶性<sup>137</sup>Csとなっていることが考えられる。光合成細菌は植物の進化論上、酸素を発生する光合成細菌、シアノバクテリアと同じ分類に位置する生物であり<sup>22)</sup>、植物と同じ強いカリウムポンプ機能を細胞に擁しており、これで吸着できないCsは、植物でも吸着できないものと考えられる。このことについては現在、放射能移行率が比較的高いといわれる小松菜、ホウレンソウ、馬鈴薯などの栽培実験で検討中である。

## まとめ

光合成細菌、*Rhodobacter sphaeroides* Sの自己凝集変異株SSI株を用いて、放射性核種（非放射性同位体）、有害金属および放射能の実用的除去および回収を行い、以下の結果を得た。

(1) SSI株を新規に開発した、磁石により回収できるトライポット型多孔質セラミックに固定化して、放射性核種（非放射性同位体）、U、Sr、Coを人工下水成分を含む溶液中で好気処理し、除去回収を行ったところ、2-3日の好気処理でそれぞれ、100、82、58%除去可能であった。

(2) 放射性核種（非放射性同位体）の除去と同時にCOD、リン酸イオンの除去もほぼ100%除去可能で、水質浄化も同時に可能であった。放射性核種（非放射性同位体）の除去ばかりでなく、Hg、Pb、Cd、Cr、Asなどの有害金属の除去と回収も可能であった。

(3) これらの放射性核種（非放射性同位体）および有害金属の除去は、SSI株の菌体外に生産されるEPS（Extracellular polymeric substances）のマイナスチャージによる吸着現象と推定された。

(4) 廃棄物ガラスより試作した、新規の磁石回収型ガラスセラミックにSSI株を固定化し、CsとSrの同時除去を行ったところ、Csは3日でほぼ100%、Srは61%の同時除去が達成された。

(5) Cs除去は高濃度（6.7 mg/L）のカリウムで妨害され、低濃度で促進された。SSI株によるCs除去は、EPSのマイナスチャージによる吸着ばかりでなく、カリウムポンプによる取り込み機構も関与していることが推定された。

(6) 屋外1トントクを用いた実証試験でも3日ではほぼ100%のCs除去、51%のSr除去が達成され、実用性が証明された。

(7) 福島での放射能性Csに汚染された水泳プールの水の除染を行ったところ、放射能はほとんど底のヘドロに結びついて存在していた。ヘドロをキトサンで凝集沈

殿して、アルギン酸固定化SSIビーズで屋外実証試験で好気処理したところ、3日で、14.35 μSv/hのヘドロ中の放射性Csが2.06 μSv/hに低減し、約90%の除染が達成された。この固定化SSIビーズは少なくとも3回の繰り返し使用が可能であった。

(8) この固定化SSIビーズは回収後、乾燥、約600°Cで乾燥、焼却を行ったところ、容量は97.3%、重量は99.3%の減容が可能であり、中間廃棄物保管の問題にも対処できることが確認された。

(9) 同じシステムで、福島南相馬の放射能汚染土壌の除染を行った。里山の腐葉土を含む粘土質土壌5 kgと水10 Lに懸濁して固定化SSIビーズを用いて処理したところ、15日間で31%の放射能除去しか達成されなかった。

(11) しかし、前処理として、乳酸菌（*Lactobacillus casei*）の培養液を添加して4日間、嫌気処理と乳酸発酵を行ったのち固定化SSIビーズで処理したところ、24日後に懸濁液画の放射能は65%、沈殿部の土壌の放射能は元の土壌（10.45 μSv/h）の67%除去が可能であった。乳酸菌による腐葉土の有機物分解と低分子化が、SSI株によるCsの除去回収に奏功していると推定された。バイオ実用技術による土壌放射能の約70%の除去は新発見であった。

## 要約

光合成細菌、*Rhodobacter sphaeroides* SSIを、電磁石で回収可能な多孔質セラミックに固定化して、放射性核種であるU、SrおよびCoと重金属または有害金属のHg、Pb、Cr、CdおよびAsの除去実験を行った。ほぼ100%のU、82%のSr、58%のCoと、ほぼ100%の重金属または有害金属が、2-4日間、人工下水中で好気処理することにより除去された。廃棄ガラスで作製した多孔質セラミックにSSI株を固定化したところ、CsとSrの同時除去が達成された。1トントクを用いた屋外実証実験では、ほぼ100%のCsと、62%のSrが、2-3日の処理後に除去されていた。

アルギン酸を用いて約2 cmのビーズ状に固定化したSSI株を用いて、福島市中の学校の水泳プールの放射性Cs除去を行った。3日の好気処理で水泳プールの底の底質（ヘドロ）中に蓄積された放射性Csの約90%が除染された。このビーズは少なくとも3回は繰り返し使用が可能であった。回収したビーズは、低温（約600°C）で乾燥と灰化を行うと、重量と容量がそれぞれ、99.3%と97.3%に、放射能を大気中にまき散らすことなく減容できた。さらに、福島放射能汚染された土壌について、乳酸発酵と嫌気消化を前処理として行い、引き続き固定

化SSIビーズで追加処理を行ったところ、約19日のSSI株追加処理で放射能汚染土壌の放射能の約70%が除染された。このように、乳酸発酵と嫌気消化と固定化SSI処理を新規に組み合わせることにより、土壌に対する実用的かつ効果的な放射性Csの除染技術が開発された。

## 謝 辞

本研究を遂行するにあたり、種々ご協力いただいた株式会社オー、馬場信行社長、福島市役所 佐藤幸英氏、渡辺 勉氏、斎藤智博氏、高野浩行氏、株式会社グレイス 長澤初男社長、および森川博代氏に深謝いたします。

## 文 献

- 1) 農林水産省:農地土壌の放射性物質除去技術(除染技術)について, 農林水産技術会議, [http://www.aist.go.jp/aist\\_j/press\\_release/pr2011/pr20110831/pr20110831.html](http://www.aist.go.jp/aist_j/press_release/pr2011/pr20110831/pr20110831.html).
- 2) 産業技術総合研究所:2011年8月31日発表プレスリリース, [http://www.aist.go.jp/aist\\_j/press\\_release/pr2011/pr20110831.html](http://www.aist.go.jp/aist_j/press_release/pr2011/pr20110831.html).
- 3) 竹下健二: 東日本大震災後の放射性物質汚染対策, NTS出版, p.173-181 (2012).
- 4) 瀬古典明, 鈴木伸一, 矢板毅: 東日本大震災後の放射性物質汚染対策, NTS出版, p.204-210 (2012).
- 5) Williams, L.G.: *Limnol. Oceanogr.*, **5**, 301-311 (1960).
- 6) Harvey, R.S., and Patrick, R.: *Biotechnol. Bioeng.*, **11**, 449-456 (1967).
- 7) Plato, P. and Denovan, J. T.: *Radiat. Bot.*, **14**, 37-41 (1974).
- 8) Haselwandter, K. and Berreck, M.: *Trans. Br. Mycol. Soc.*, **90**, 171-174 (1988).
- 9) Avery, S. V., Codd, G. A., and Gadd, G. M.: *J. Gen. Microbiol.*, **138**, 69-76 (1992).
- 10) Tomioka, N., Uchiyama, H., and Yagi, O.: *Appl. Environ. Microbiol.*, **60**, 2227-2231 (1994).
- 11) 志村浩己, 伊藤勝彦, 杉山篤, 湯川恭啓, 小林哲郎: 東日本大震災後の放射性物質汚染対策, NTS出版, p.223-228 (2012).
- 12) No DU プロジェクト編: ウラン兵器なき世界をめざして, ICBUWの挑戦, 合同出版, p.6-158 (2008).
- 13) 佐々木健: 生物工学, **79**, 434-439 (2001).
- 14) 佐々木健, 竹野健次: 生物工学, **87**, 478-480 (2009).
- 15) Yamaoka, Y., Takeno, K., Shinkawa, H., Noparatnaraporn, N., and Sasaki, K.: *Biosci. Biotechnol. Biochem.*, **72**, 1601-1603 (2008).
- 16) Watanabe, M., Kawahara, K., Sasaki, K., and Noparatnaraporn, N.: *J. Biosci. Bioeng.*, **95**, 374-378 (2003).
- 17) Sasaki, K., Hara C., Takeno, T., Okuhata, H., and Miyasaka, H.: *Jpn. J. Wat. Treat. Biol.*, **46**, 119-127 (2010).
- 18) 佐々木健, 原田敏彦, 大田雅博: 化学, **66**, 57-60 (2011).
- 19) Sasaki, K., Morikawa, H., Kishibe, T., Takeno, K., Mikami, A., Harada, T., and Ohta, M.: *Adv. Biosci. Biotechnol.*, **4**, 6-13 (2012). doi:10.4236/abb.2013.41002
- 20) 牧 孝昭: 生物工学, **89**, 113-116 (2011).
- 21) 小林達治: 光合成細菌, 学会出版センター, p.339-351 (1984).
- 22) 小林達治: 光合成細菌で環境保全, 農山漁村文化協会, (1993).
- 23) 農山漁村文化協会編: 光合成細菌, 別冊現代農業, 農山漁村文化協会, p.15-155 (2012).
- 24) Sasaki, K., Morii, Y., Nisizawa, Y., and Nagai, S.: *J. Ferment. Technol.*, **65**, 511-515 (1987).
- 25) Sasaki, K., Watanabe, M., Tanaka, T., and Tanaka, T., *Appl. Microbiol. Biotechnol.*, **58**, 23-29 (2002).
- 26) Sasaki, K., Watanabe, M., Suda, Y., Ishizaki, A., and Noparatnaraporn, N.: *J. Biosci. Bioeng.*, **95**, 374-378 (2003).
- 27) Tsezos, M. and Volesky, B.: *Biotechnol. Bioeng.*, **23**, 583-604 (1981).
- 28) Tsuruta, T.: *J. Biosci. Bioeng.*, **97**, 275-277 (2004).
- 29) Mahan, C. A. M., Majidi, V., and Holcombe, J. A.: *Anal. Chem.*, **61**, 624-627 (1986).
- 30) 佐々木健, 森川博代, 原田敏彦, 大田雅博: 東日本大震災後の放射性物質汚染対策, NTS出版, p.211-222 (2012).
- 31) Sasaki, K., Morikawa, H., Kishibe, T., Mikami, A., Harada, T., and Ohta, M.: *Biosci. Biotechnol. Biochem.*, **76**, 859-862 (2012).
- 32) 佐々木健: 公開特許公報 (A), 特開2009-172544.
- 33) 橋本洋平: 東日本大震災後の放射性物質汚染対策, NTS出版, p.137-145 (2012).
- 34) Sasaki, K., Morikawa, H., Kishibe, T., Takeno, K., Mikami, A., Harada, T., and Ohta, M.: *Biosci. Biotechnol. Biochem.*, **76**, 1809-1814 (2012).
- 35) 藤川陽子: 東日本大震災後の放射性物質汚染対策, NTS出版, p.106-119 (2012).
- 36) 奥畑博史, 杉野伸義, 宮坂 均, 森川博代, 竹野健次, 佐々木健: 環境技術, **40**, 7373-734 (2011).
- 37) Okuhata, H., Miyasaka, H., Morikawa, H., Takeno, K., and Sasaki, K.: *Jpn. J. Wat. Treat. Biol.*, **48**, 73-79 (2012).
- 38) Takeno, K., Sasaki, K., Watanabe, M., Kaneyasu, T., and Nishio, N.: *J. Biosci. Bioeng.*, **88**, 410-415 (1999).
- 39) 農山漁村文化協会編: えひめAIの作り方・使い方(現代農業, 特選シリーズ), 農山漁村文化協会, p.4-64 (2011).
- 40) 愛媛県鬼北町: えひめAI(環境浄化微生物), <http://www.town.kihoku.ehime.jp/guide/seikatu/> (2009-6-13).