

放射能汚染植物バイオマス減容化バイオ技術の開発

加藤 純一^{1*}・金原 和秀²・佐々木 健³・中村 雅哉⁴
 中島田 豊¹・平井 浩文⁵・大塚祐一郎⁶・新谷 政己²

なぜ減容化が必要か、なぜバイオ技術で、か

福島第一原子力発電所の事故により広範囲の植物、農作物が放射線汚染を被っている。この膨大な量の植物バイオマス処理するためには、まずはその減容化を図る必要がある。我々は、放射能汚染植物バイオマスの減容化を図るとともに、併せて有用なバイオ燃料（メタン）をも生産するためのバイオプロセスの開発を目指し研究を行っている。放射性物質を拡散せずに前処理や発酵変換が可能なのか、生産したメタンに放射性物質が混入しないか、発酵変換で生じる廃棄物からの放射性物質の除去は適切に行えるのか、これらが研究の重要なポイントとなる。

焼却処分は放射能汚染した植物バイオマスの減容化に有効な方法の一つである。焼却により植物バイオマス量は容量的にも重量的にも大幅に減容化できる。しかし、水分含有量が多い植物バイオマスの焼却では、水分存在下で十分な燃焼を成立させるために重油などの助燃剤を添加する必要があり、それに多大な経費がかかってしまう。より大きな問題は、放射性物質の飛散である。セシウムは比較的沸点が低い金属（沸点：641°C）であるので、焼却処理により容易に気化してしまうことが予想される。したがって、放射性セシウムの飛散を完全に防止する工夫を加えなければならない。これらのことから、焼却に依らない、低コストな減容化処理法の開発が強く望まれている。

我々は焼却に依存しない植物バイオマス減容化法としてメタン発酵に着目した。その理由は、1) メタン発酵は下水余剰汚泥や農産廃棄物などのバイオマスの減量化技術としてすでに確立されており実用化が容易である、2) 低温（30～60°C）で処理が可能なので焼却処理で不安視される放射性セシウムの気化の問題を回避できる、3) 処理産物は腐敗に対し耐性となり長期貯蔵に適する、ことがあげられる。確かにメタン発酵は確立された技術であるが、そのまま放射能汚染植物バイオマスの減量化に適用することはできない。なぜなら、これまで放射能汚染したバイオマスをメタン発酵した実績はなく、その処理により放射性物質がどの画分（ガス、固形、液状のそれぞれの画分）にどれだけ移行するかについて

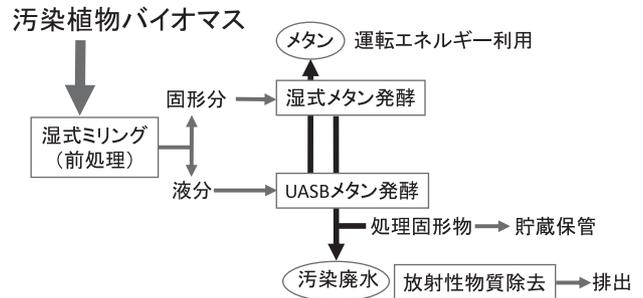


図1. 本研究プロジェクトで検討している減容化システム

のデータはまったくない。したがって本研究の最大の焦点は、メタン発酵を利用する減容化処理のそれぞれの過程で放射性物質がどのように動くのか/分布するのかを明らかにすることである。

我々が検討している減容化システムは、樹木を含む植物バイオマスのメタン発酵処理を加速するための前処理（湿式ミリング）、前処理後の固形画分をメタン発酵する乾式メタン発酵、液状画分をメタン発酵する上向流嫌気性汚泥床（upflow anaerobic sludge blanket, UASB）、さらにメタン発酵で生じる廃水から光合成細菌を用いて放射性物質を除去する技術から構成される（図1）。本記事では、文部科学省・国家課題対応型研究推進事業・原子力基礎基盤戦略研究イニシアティブ「放射性物質により汚染された植物バイオマスの減量化総合処理システムの開発研究」（代表者：加藤純一）で行っている研究について紹介する。

バイオマスの前処理—湿式ミリング—

バイオマス賦存量調査を行った結果、福島県におけるバイオマス賦存量は乾燥重量基準にて、肉用牛糞尿がもっとも多く、ついで雑草、稲作残渣（稲ワラ）が多い事がわかった。また、現地調査の結果から、汚染牛糞は堆肥化され有機物分の少ない状態で仮置場に保管されており、メタン発酵による減容化は不要と考えられた。一方、原発事故後に収穫された牧草類が農家敷地内の仮置場に放置されている状況であり、メタン発酵減容化処理の必要性が見いだされた。さらに、今後の除染作業において、汚染木の木の葉さらい、枝打ちを行う方針である

*著者紹介 ¹広島大学大学院先端物質科学研究科分子生命機能専攻（教授） E-mail: jun@hiroshima-u.ac.jp

²静岡大学工学部化学バイオ工学科, ³広島国際学院大学工学部食農バイオ・リサイクル科,

⁴独立行政法人森林総合研究所きのこ・微生物研究領域, ⁵静岡大学農学部応用生物化学科,

⁶独立行政法人森林総合研究所バイオマス化学研究領域

ことから、その際に発生する木の葉および枝などの木質バイオマスの処理が必要となることがわかった。これらの調査から、1) 稲ワラ、2) 牧草類、3) 枝打ちなどで大量に排出されると予想される木質系バイオマスを、主な減容化の対象とした。

これらバイオマスの粗ミル粉碎物を用い予備的にメタン発酵を行ったところ、稲ワラと牧草では比較的良好なメタン生成ポテンシャルを得たが(200~300 mlメタン/g-VS、グルコースを基質とした時340 mlメタン/g-VS)、スギ粉末のそれは非常に低く(図2)、減容化システムに植物バイオマスの前処理行程を組み込む必要があった。

植物バイオマスの前処理には、森林総合研究所が開発した湿式ミリングを採用した。湿式ミリングは、鉱石の粉碎に活用されているボールミリングにヒントを得ている。ミリング本体はジルコニア製のビーズを入れたミルベッセルである(図3)。そこに木材粉末、緩衝液および糖化酵素を入れて攪拌することにより、木材を粉碎・超微粒化すると同時にセルロース/ヘミセルロースを糖化する。本方法の特徴は、物理的な微粒化処理と酵素処理

を組み合わせていることである。物理的処理は微粒化だけでなく、リグニンなどの木材マトリックスを破壊することにより、糖化酵素のセルロース/ヘミセルロースへのアクセスを向上させ、糖化を大幅に促進する。また、湿式の微粒化処理だけでは懸濁物の粘度が上がってしまい、微粒化の効率が落ちてしまう。しかし、酵素処理を併用することで粘度の上昇を抑えることができる。この湿式ミリング処理を12時間行ったところ、スギ粉末は平均粒度700 nmにまで微粒化することができた。また、以下に述べるように、湿式ミリング処理によりスギ材のメタン生成ポテンシャルも大幅に向上した。

湿式ミリングは木材だけでなく稲ワラや牧草の前処理にも適用可能である。それにより、後段のメタン発酵の高速化が望まれる。また、この処理により強固に吸着している放射性セシウムの可溶化も期待できるが、これについては現在検討中である。さらに、前述のようにボールミリングは採鉱現場で利用されていることから、湿式ミリングのスケールアップも容易であると考えられる。

乾式メタン発酵, UASB

湿式ミリング処理物は遠心分離により、糖化産物を豊富に含む上清画分と、未分解のセルロース/ヘミセルロースとリグニンが主な沈殿画分に分けられる。湿式ミリング処理により、汚染植物バイオマスの放射性物質がどちらの画分に分布するかは不明であったので、まず双方の画分をより効率的にメタン発酵処理することを念頭に置いた。そこで、湿式ミリング処理物の沈殿画分は乾式メタン発酵、上清画分は上向流式嫌気汚泥床(UASB)で処理することにした。

乾式メタン発酵 乾式メタン発酵は、中島田・西尾らが開発した無加水、低含水率(80%以下)状態でメタン生成可能な新規乾式嫌気消化法である¹⁾。これまで、1) 余剰脱水汚泥、2) 生ゴミ、3) 飼料イネ、4) 家畜糞尿(主に鶏糞)などさまざまな有機廃棄物に適用可能であることを報告してきた²⁾。この技術を用いれば、湿式ミリング処理で生じる沈殿画分のオンサイト一括処理とともに、メタンとしてバイオエネルギーを回収することができる。さらに、無加水処理なので、嫌気消化した後の処理水(消化液)には放射性物質は希薄化されず効果的な回収処理が可能と考えられる。

図3は、湿式ミリング処理にかける前の粗ミル処理したスギ、稲ワラおよび牧草を乾式(水分含有量80%)および湿式(水分含有量90%)でメタン発酵したときのメタン生成ポテンシャルである。湿式メタン発酵による稲ワラおよび牧草のメタン生成ポテンシャルは湿式のものと同様で、乾式メタン発酵の有効性がうかがえる。しかし、粗ミル処理ただけのスギ粉末は嫌気消化できず、メタン生成が起こらない。そこで、スギ粉末を

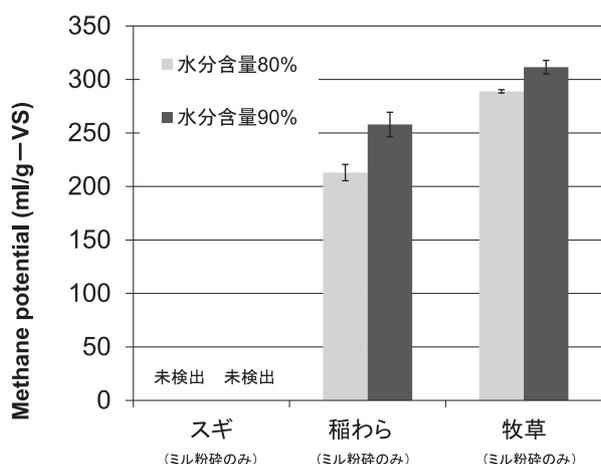


図2. 乾式メタン発酵 (水分含有量80%) および湿式メタン発酵 (水分含有量90%) におけるスギ、稲ワラおよび牧草のメタン生成ポテンシャル

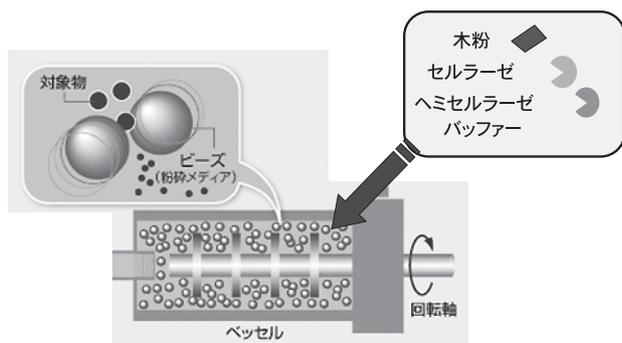


図3. 湿式ミリングの概念図

湿式ミリング処理し、その沈殿画分を乾式メタン発酵に供した。スギ粉末のセルロース/ヘミセルロース画分の大部分は、湿式ミリング処理の際の酵素糖化で上清画分に移行しているにもかかわらず、メタン生成ポテンシャルは100~140 mlメタン/g-VSに向上した。これは、湿式ミリングにより木材マトリックスが破壊され、分解可能な画分への微生物のアクセシビリティが向上したことに起因すると思われる。この結果は、湿式ミリング処理の有効性を示すものである。放射能汚染した植物バイオマスを模擬するために非放射性のセシウムを添加して乾式メタン発酵を行ったが、無添加区と同様の発酵経過を示した。

UASB UASBは固形物を含まない有機性廃水を高速に嫌気消化処理できるプロセスである(図4)。そこで、湿式ミリング処理後の上清画分はUASBに供した。上清画分の化学的酸素要求量(COD)は約40,000 mg/Lであったが、それを300 mg COD/Lにまで希釈してUASB運転を開始した(水理学的滞留時間は6時間)。このとき、バイオガスの生成量は約300 ml/L/日、組成はメタン70%、CO₂10%であった。70日間かけて供給液のCODを徐々に上げ、最終的には800 mg COD/Lの負荷量でも安定に嫌気消化できるようにした。800 mg COD/Lの時のバイオガスの生成量は約1200 ml/L/日で組成はやはりメタン70%、CO₂10%であった。800 mg COD/Lの負荷量で安定化した時点で供給液に非放射性のセシウムを10 mg/Lスパイクして運転をしたが、メタン発酵にはなんらの影響も認められなかった。処理排水のセシウム濃度はセシウムスパイク1日後に10 mg/Lに達し、それ以降10 mg/Lに安定した。このことから、セシウムはグラニュールに多少吸着するものの、24時間以内に平衡化し、それ以降は処理排水とともに排出されることがわかった。バイオガス中のセシウム含有量は検出限界以下であり、予想していたとおり、セシウムはバイオガスには移行しないことが示された。実際の工程で

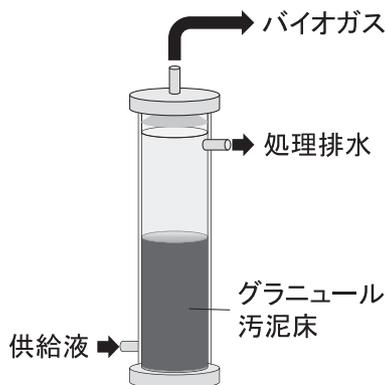


図4. 上向流式嫌気性汚泥床 (UASB)

は、放射能汚染した排水の量を最小限にするため、湿式ミリング処理上清画分の希釈にUASB処理排水をリサイクルして用いることになる。

光合成細菌を用いる放射性物質除去技術

メタン発酵処理により放射能汚染した固形残渣と処理排水が生じる。固形残渣は乾燥処理を行った後に中間貯蔵地に移送し、貯蔵することになる。処理排水は何らかの方法で放射性物質を除去したのち、廃棄することになる。2012年度に広島大学が行った調査から、放射性ストロンチウムはほとんど存在しないことが判明しているため、除去の対象となる放射性物質はセシウムに絞られる。

広島国際学院大学の佐々木らは長年にわたり光合成細菌を用いた廃水処理の研究を行っている。その研究の途上で、光合成細菌*Rhodobacter sphaeroides* SSI株がカドミウムなどの重金属を吸着除去する能力を持つこと³⁾、さらにはウラン、コバルト、ストロンチウム、クロムも吸着除去することを見いだした^{4,5)}。そこで、*R. sphaeroides* SSI株を用い、メタン発酵処理排水からの放射性セシウム除去技術の開発に取り組んだ。

R. sphaeroides SSI株のセシウム吸着除去機構の詳細はまだ明らかになっていない。しかし、エネルギー依存的に吸着除去することから、カリウムの能動的取り込み系がセシウムの吸着除去に関与していると考えられている。それ故、セシウム除去技術のポイントは、エネルギー源の供給と最適な通気を行うためのリアクターの設計になる。以前の研究では、エネルギー源としてグルコースを用いていた。しかし、*R. sphaeroides*は幅広い有機物をエネルギー源として資化できることから、メタン発酵

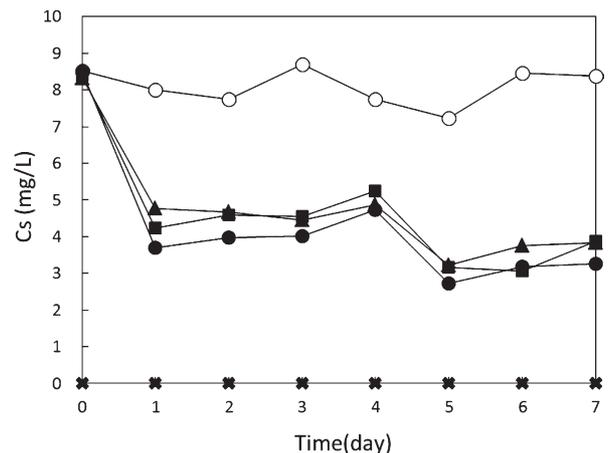


図5. *R. sphaeroides* SSI株の固定化菌体によるメタン発酵消化液からのセシウムの除去。○：対照(グルコース4 g/L投入、ビーズなし)、▲：グルコース4 g/L、SSI固定化ビーズ200個投入、■：乳酸4 g/L、SSI固定化ビーズ200個投入、●：酢酸・プロピオン酸4 g/L、SSI固定化ビーズ200個投入、×：グルコース4 g/L、SSI固定化ビーズ200個投入、セシウム添加なし。

表1. バイオマス減容化システム日処理収支 (年間湿重量300トン処理試験プラント)

粉碎工程	ミリング工程	メタン発酵工程 固液分離工程	乾燥工程 排水処理工程	廃棄
反応体積 4800 L (100)	12,000 L (250)	1919 L (40) 乾式メタン発酵 10,081 L (210) UASBメタン発酵	1727 L (36) 9917 L (207) リサイクル水 9834 kg	294 L (6)
乾燥バイオマス重量 600 kg (100)			245 kg (41)	218 kg (36)
リグニン 180 kg	残渣 180 kg 固体	382 kg 総乾式メタン発酵		
セルロース 420 kg	残渣 168 kg 固体 (40%) 糖化物 252 kg 液体 (60%)	34 kg 乾式メタン発酵 (含水持ち込み) 218 kg UASBメタン発酵		
発生メタン量		87 m ³	排水処理工程 (光合成細菌) 固形分 28 kg (菌体収率 0.5) ※放射性物質濃縮	

由来の有機酸をエネルギー源としてセシウムを除去できるのではないかと考えた。そこで、メタン発酵消化液に非放射性のセシウムと種々のエネルギー源をスパイクした試料を調製し、*R. spaeroides* SSI株によるセシウム除去試験を行った(図5)。その結果、*R. spaeroides* SSI株はメタン発酵で生じる有機酸(プロピオン酸、酢酸、乳酸)を資化してセシウムを除去することができることがわかった。しかも、その除去能はグルコースを用いた時と同等のものであった。現在、より効率的にセシウム除去ができるよう、さまざまなリアクター(回転ドラム式、エアリフト式、多段式バイオリアクター)を作成し検討を行っている。

減容化システムの基本設計

現在までのデータを基に、バイオマス減容化システムの基本設計を行った。実プラントの前段階のパイロットプラントを想定して、バイオマスの日処理量を湿重量1200 kgと設定し、年間250日稼働として、年間処理量を湿重量で300トンとした。表1に日処理収支の計算結果を示す。この結果から、反応体積は6%まで減少し、減容化率は94%であることがわかった。また、乾燥バイオマスで換算した減量化は64%であった。減容化率が大きいのは、バイオマスの空隙率に関係してくるものであり、粉碎糖化過程で空隙率がほぼなくなることから、減容化に大きな効果があったものと考えられる。

結 語

本研究は3年間のプロジェクトで、2012年度は各要素技術の確立、2013年度は要素技術を組み合わせたシステムの最適化を行い、計画通りの成果をあげた。そして2014年度はいよいよ実際の放射能汚染植物バイオマスをを用いたシステム性能の検証を行う計画となっている。

ご存じのとおり、メタン発酵はすでに大型の装置が作られさまざまなバイオマスの減量化に利用されている。また、ミリングも鉱業で大型の装置が活用されている。したがって、我々の研究により、湿式ミリング-メタン発酵-放射性物質除去処理からなる放射能汚染植物バイオマス減容化システムの最適化がなされれば、その実規模へのスケールアップは容易である。また、本研究で明らかにするシステム内での放射性物質の動態に関するデータを活用することにより、放射能汚染植物バイオマスの減容化処理を安全に行うことができよう。福島復興にバイオ技術が少しでも貢献することを願ってやまない。

文 献

- 1) Abouelenien, F. et al.: *J. Biosci. Bioeng.*, **107**, 293 (2009).
- 2) Nishio, N. and Nakashima, Y.: *J. Biosci. Bioeng.*, **103**, 105 (2007).
- 3) Watanabe, M. et al.: *J. Biosci. Bioeng.*, **95**, 374 (2003).
- 4) 佐々木健ら: 日本水処理生物学会誌, **46**, 119 (2010).
- 5) 佐々木健ら: 生物工学会誌, **91**, 432 (2013).