

除染が容易でない放射能汚染土壌の 光合成細菌を用いたバイオ除染

佐々木 慧, 竹野 健次,
新川 英典, 佐々木 健

(平成27年10月5日受理)

Polluted Soil: Alleviating Biotechnological Radioactivity Removal Difficulties Using Photosynthetic Bacteria

Kei SASAKI, Kenji TAKENO, Hidenori SHINKAWA and Ken SASAKI

(Received October 5, 2015)

In the Fukushima Agriculture Technology Centre, an initial difficulty to remove radioactivity from polluted soil through a chemical (HNO_3) treatment was remedied through one using immobilized photosynthetic bacterium beads, *Rhodobacter sphaeroides* SSI. Combined with lactic acid fermentation and anaerobic digestion, the removal rate (about 30%) was improved upon, but this range, by comparison, was found to be considerably lower than that for soils in the Namie and Minamisouma regions of Fukushima (59.5–73.0%); these soils containing relatively high amount of muck or organic matter. In the case of the soil which chemical treatment is difficult, radioactive cesium already seems to have been strongly combined to the crystal moiety of the soil components, and the release of cesium is not considered effective through a biotechnological process. It was suggested that photosynthetic bacteria treatment technology for radioactivity removal is rather preferred for soils relatively rich in organic matter.

Keyword : remove radioactivity, polluted soil in Fukushima, immobilized photosynthetic bacterium beads, soil organic matter

化学処理（硝酸処理）で除染が容易でない土壌の除染を、ビーズ状に固定化した光合成細菌, *Rhodobacter sphaeroides* SSI株を用いて, 福島県農

業総合センターにおいて実施した。これらセンターでの放射能汚染土壤の除染率は、光合成細菌と乳酸発酵、及び嫌気消化を組み合わせても、30.1–52.9%であり、福島、浪江や南相馬の腐葉土や有機質を多く含む土壤の除染（59.5–73.0%）と比較して低かった。酸処理で除染困難な土壤では、放射性セシウムは既に土壤の結晶部分に強く結びついており、ひきはがしは生物化学的処理では容易でないことが示唆された。光合成細菌での放射能除染は、腐葉土や有機質を多く含む土壤に適していると推定された。

キーワード：放射能除染、福島の汚染土壤、固定化ビーズ、光合成細菌、土壤有機物

1. はじめに

東京電力福島第一発電所の事故以来、拡散した放射能は土壤にしみ込んで、今なお放射能の脅威にさらされている地域も多い。事故から4年以上が経過し、汚染地域の放射能レベルは徐々に低下しているが、まだまだ高濃度に汚染された土壤は福島地域に広く分布している。

我々は、15年も前から光合成細菌による放射性核種の汚染除去技術開発に取り組んでいる。イラン、イラク戦争で使われた劣化ウラン弾による中東の地下水や、土壤の汚染¹⁾に対し、ヒロシマの技術者として何とか行動したいと考えたからである²⁾。そして、固定化光合成細菌を用いることにより、ウラン約100%、ストロンチウム約82%、コバルト約58%の除去ができることを確認していた²⁾。セシウムも除去できることを確認していた³⁾。

我々は放射能汚染が起きた2011年8月に、福島市役所の依頼を受け、福島市内の公立中学校のプールの水の、光合成細菌ビーズを用いた除染を行い、約100%の除染、及び底の底質（ヘドロ）の約80%の除染に成功した⁴⁾。さらに、南相馬市で放射能汚染された土壤の約67%の除染に成功した⁵⁾。土壤の除染はヘドロより容易ではなく、光合成細菌ビーズだけでは約30%程度の除染率であったが、乳酸菌と嫌気消化を組み合わせることにより、約60%の除染ができることを発見した⁵⁾。これらの除染率は、放射能汚染後研究され始めた、酸抽出⁶⁾、ゼオライト等物理化学吸着処理⁷⁾、化学薬品処理⁸⁾などと同等か優れたものであり、しかも、毒性はなく安全性にすぐれ2次汚染や放射性廃棄物の極めて少ない除染技術であった。

さらに、浪江町での光合成細菌による除染実証試験では約40,000Bq/kgもの高放射能汚染土壤の除染を行い、46.2–73.0%の除染率を達成した。一方、この除染後の土壤を用いて、50Bq/kgfwの幼児食用基準値以下の、安全な野菜（小松菜、チンゲンサイ）の栽培に、我が国で初めて成功した^{9, 10)}。

この過程で、かねてよりご指導いただいていた福島県農業総合センターより、化学処理（硝酸処理）でも除染が約30%以下の土壤があり、これを光合成細菌で除染できないかとの提案があった。そこで、浪江町での土壤除染を行うかたわら、福島県農業センターでの、除染が容易でない土壤の光合成細菌による除染を試みた。

実験方法

- 1 菌株及び培養法： 使用した光合成細菌は、*Rhodobacter sphaeroides* SSIで、放射性核種や重金属をよく除去できる光合成細菌である^{2, 4, 5)}。培養方法は、前報⁴⁾と同じく、ルー瓶（1.5L）

にて4-5日、嫌気明条件で培養を行った。培養後、菌を遠心分離で集め菌濃度 (OD_{660} = 約2) を約10倍に濃縮して、等量の4.5%アルギン酸ナトリウム溶液と混合して、1-2 cm径のビーズ状に固定化した。詳細は前報通りである⁴⁾。

- 2 使用土壌および除染方法：土壌は福島県農業総合センターに保存の、化学処理（硝酸処理）では除染しにくい（除染率約30%）水田土壌と湿地土壌を用いた。両土壌とも、シルトおよび粘土質で比較的サラサラとした感触で、腐葉土などと比較すると明らかに有機質の少ない土壌であった。

処理方法は、25Lの養魚水槽を持って、土壌5 kgに水9 Lを加え、さらに乳酸菌培養液を1 L加えて10Lとし、よく攪拌した。添加した乳酸菌は、*Lactobacillus casei* の培養液で、前報通り培養したものである⁵⁾。栄養源（グルコース50g, ペプトン1.5g, ビタミン類少量）を前報⁵⁾ 通り加え、3日間、乳酸発酵、嫌気消化を行った。土壌懸濁液の攪拌のため、水槽中に送液ポンプ（（株）工進KP-103, 送液量12L/min）を設置し、処理期間を通してタイマーを用いて45分運転後15分休止を繰り返した。3日後、光合成細菌を固定化したビーズ200個をメッシュ袋にいれたものを2袋投入して、前報と同様に、栄養源としてグルコースを2日毎に、ペプトンを3日毎に添加しつつ、エアープンプで0.2-0.3vvmの通気を行い好気処理を行った。光合成細菌を固定化したビーズは5日後に新しいものに交換し、合計で10日間ビーズによる処理を行った。実験の状況を写真1に示す。水田土壌と湿地土壌、それぞれ3水槽を用いて実験をおこなった ($n=3$)。



写真1 福島県農業センターでの放射能汚染土壌の光合成細菌ビーズによる除染

- 3 土壌放射能の測定：土壌放射能の測定は、土壌を金魚用の網で濾過して約2分間水を切り、均一に処理し水分が見えなくなった時点で、重量を計測し、ベクレルモニター（Becquerel Monitor LB200, Berthold Technologies 社製造）で、放射線量をBq/kg湿重量で測定した。

結果及び考察

- 1 化学処理による除染が容易でない土壌の光合成細菌による除染

図1に除染が容易でない土壌のうち、水田土壌を光合成細菌ビーズにより除染を行った結果を示す。処理後5日で放射能は低下し最低となり、その後ほとんど低下しなかった。13日後では422Bq/kg湿重量で、45.7%の除染率であった。最大では52.9%の除染であった。図2では同じく除染が容易でない湿地土壌の除染結果を示すが、図1の水田土壌除染のパターンと同じ傾向を示し、13日間で最大除染率30.1%であった。

これらの除染率は最大値と比較して、先に我々が南相馬や浪江での森林腐葉土や牧場の土壌の除染率、59.5-73.0%に除染率と比較してもあまり高くない値であり、光合成細菌ビーズを用いて

も、バイオ除染としてそれほど高い除染率を得ることはできなかった。

しかしながら、ビーズ処理中の放射能低下のパターンを比較すると、森林腐葉土（森林褐色土）では光合成細菌処理後4日で放射能が約1/3程度低下するがその後も時間経過に伴い放射能が低減するのに比べ¹¹⁾、今回の水田土壤や湿地土壤では、5日ではほぼ最大の除染率を示し、その後はほとんど低下しない違いが観察された。このことは、森林腐葉土は有機質を多く含み、前処理での乳酸発酵や嫌気消化処理により、光合成細菌ビーズ処理中でも処置槽の底は嫌気状態となっており、有機物の分解がゆっくり4日以降も進んでおり、放射性セシウムを含む有機物の分解に伴い、低分子中の放射性セシウムも低下していたと推定された。

しかし今回、水田土壤や湿地土壤は有機物質が比較的少なく、乳酸発酵や嫌気消化の前処理でほとんど有機物は分解されており、それが5日の光合成細菌ビーズ処理で、分解生成された低分子の有機物はビーズに取り込まれたか表面に吸着され、5日以降は低分子有機物中の放射性セシウムは除去できなかったものと思われる。実際、有機質に富む土壤は、触るとふっくらとした感触だが、有機質の少ない今回の土壤はシルトか粘土状態のサラサラとした感触であった。

残存する放射性セシウムは藤川が報告¹²⁾しているように、土壤の結晶中に強く都合しており、これらは極めて除染しにくいものと思われる。光合成細菌の生物化学的処理でも結晶結合をひきはがす除染は容易でないことが明らかとなった。

2. 他の土壤との比較

表1に我々が、南相馬や浪江で、森林腐葉土や牧場の土壤を光合成細菌ビーズと、乳酸菌及び嫌気消化処理との組み合わせで処理した結果と比較して今回の結果を示す。光合成細菌ビーズ処理のみでは除染率は約30%であったが、乳酸発酵及び嫌気消化と組み合わせると約60%まで除染率が上昇することはすでにわかっており、これは乳酸菌や嫌気消化により、放射性セシウムを含む高分子有機物が低分子有機物に変わり、セシウムが光合成細菌に取り込まれやすく、また吸着されやすくなったものと推定されている⁵⁾。

表1の結果はこのことをよくあらわしており、有機物質の多い森林腐葉土や牧場の土壤では、除

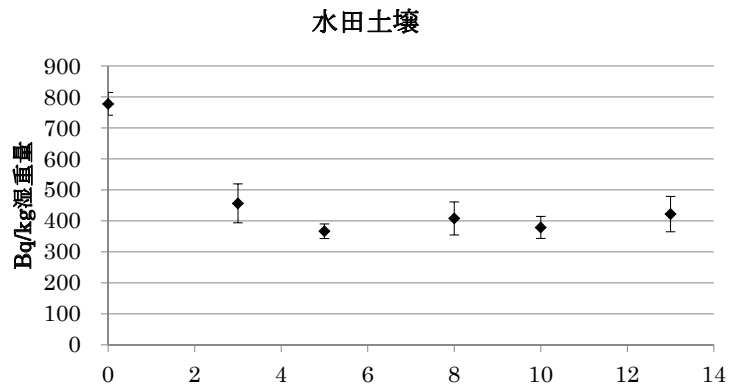


図1 水田土壤の光合成細菌ビーズによる除染。3日目、および8日目に光合成細菌ビーズを添加。2日毎にグルコースと3日毎にペプトンを添加した。

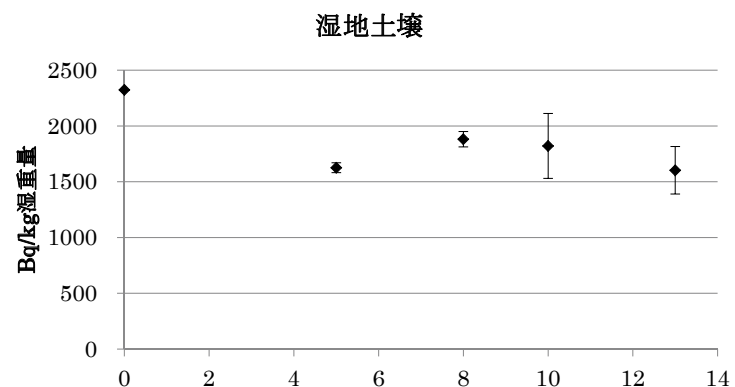


図2 湿地土壤（さす土）の光合成細菌ビーズによる除染。3日目、および8日目に光合成細菌ビーズを添加。2日毎にグルコースと3日毎にペプトンを添加した。

表1 光合成細菌ビーズによる各種ヘドロ及び土壌の放射能除染

ヘドロ	放射能	放射能除去率(%)	土壌	放射線量	放射能除去率(%)
A 除染前	14.35 μ Sv/h		A 除染前	10.56 μ Sv/h	
	除染後 2.60 μ Sv/h	81.9	除染後	3.52 μ Sv/h	66.6
B 除染前	12.07 μ Sv/h		B 除染前	199,248 Bq/kg	
	除染後 2.95 μ Sv/h	75.6	除染後	72,225 Bq/kg	63.8
C 除染前	14.80 μ Sv/h		C 除染前	87,181 Bq/kg	
	除染後 4.00 μ Sv/h	73.0	除染後	35,340 Bq/kg	59.5
D 除染前			D 除染前	36,490 Bq/kg	
			除染後	9.855 Bq/kg	73.0
E 除染前			E 除染前	778 Bq/kg	
			除染後	367 Bq/kg	52.9
F 除染前			F 除染前	2,325 Bq/kg	
			除染後	1,626Bq/kg	30.1

A-D : 文献 10) E, F : 今回の実験、E (水田土壌), F (湿地土壌)

E, F は Bq/kgww (湿重量) 表示。他は乾燥重量表示

除染率は59.5–73.0%と比較的高いが、有機物の比較的少ない今回の水田土壌や低質土壌では、除染率が30.1–52.9%と低くなっている。しかも最大除染率は5日以内で得られ、一方、有機質の多い土壌では徐々に放射能は低下し、7–9日で最大の除染率を示す傾向があった。これらの結果から、我々の開発した光合成細菌と乳酸菌との組み合わせによる処理は、有機質に富む土壌の除染には適しているが、有機質の少ない土壌には適用が難しいこと、さらに、これら除染が容易でない土壌の場合は、放射性セシウムは土壌結晶中で固く結びついており、酸処理や化学処理と同様に除染は容易でないと思われた。

土壌の放射能除染について他の文献との比較を行うと、ゼオライト除染では土壌の70–100%の除染が報告されている⁷⁾。土壌の酸処理では硝酸、シュウ酸で75%、塩酸、酢酸アンモニウムで20–50%の除染効率が報告されている⁶⁾。一方、中村ら¹³⁾は亜臨界水爆砕法により70–98%の除去率が得られることを報告している。最近、惣田らは空気揚土攪拌式洗浄装置で、福島飯館村の汚染土壌で87–89%の除染達成を報告している¹⁴⁾。しかし、実際、9サンプルの土壌のうち、75%以上の除染ができたのは5サンプルで、残り4サンプルは20–60%の除染率であった。この報告内容は、今回、我々が行った除染とほぼ同じ傾向を示した。酸抽出、加圧熱処理などの土壌除染は除染装置が大がかりなものとなり、酸処理後の廃酸の処理にも課題があり実用化には至っていない。一方、ゼオライトの処理では放射性廃棄物である放射能汚染されたゼオライトが大量に発生し、この仮置き場が必要となるなどの問題から、福島では実用的には行われていない。化学処理では、プルシアンブルー、クラウンエーテル、その他吸着材などの研究^{2, 8, 9)}においても、ゼオライトと同様の除去率が報告されているが、除染の回数の増大や除染後の廃棄物処理が同じく問題となっている。

このように、土壌の除染は実際容易ではなく、現在少なくとも福島の南相馬市や浪江町で、表面の土壌をはぎとり仮置き場に移動する除染を除いて、実用的な除染はほとんどおこなわれていないようである(2015年9月時点)。この容易でないということは、土壌の粒子や結晶の状態に大きく影響されるが、有機物含有量も重要な因子ではないかと、今回新たに推定された。

光合成細菌が放射性セシウムをよく除去できる理由として、我々は仮説を立てている⁹⁾。図3に

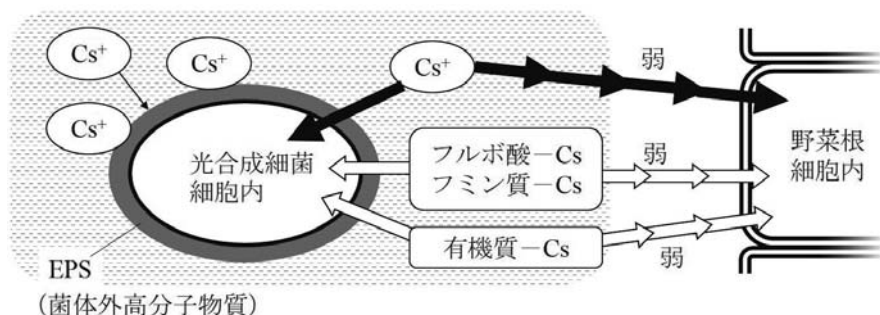


図3 光合成細菌SSI株のCsの吸着、取り込み機構と野菜根細胞のCs取り込みの減少の推定説明図

EPS：菌体外高分子物質（表面が負電荷）； ➡：カリウムポンプ；

⇨未知の取り込み機構

光合成細菌SSI株が菌体表面EPSにCs⁺を吸着するのに加え、カリウムポンプ及び未知の有機質とフルボ酸やフミン酸結合Csの取り込み機構により、野菜根細胞より優先的に（先に）Csを吸着、取り込みを行う（推定）。

示すように、光合成細菌SSI株は菌体表面に多糖類、タンパク等の菌体外高分子物質（EPS）を生産するが、このEPSは電氣的にマイナスに帯電しており、これにカチオンであるCs⁺が吸着されると考えている⁴⁾。一方、Jasperは、光合成細菌の放射性セシウムはカリウムポンプの作用により吸収されていると報告している¹⁵⁾。カリウムポンプとは、微生物や植物が栄養素であるカリウムを効率的に細胞内に取り込む為の機構のことで、植物に普遍的に備わっているものである。セシウムはカリウムと類似の化学的性質を示すことから、カリウムと同じように2種類以上の蛋白質輸送機構により細胞内に取り込まれることは、野菜や植物、細菌、光合成細菌で良く知られている¹⁶⁾。実際、カリウム肥料の大量投与により、放射性セシウムの野菜細胞に取り込まれる量が低減されていることは、植物のカリウムポンプによるセシウム取り込み作用に依存しているとされている¹⁶⁾。我々は、本実験で使用したSSI株は、EPS生産によるセシウム吸着に加え、他の菌にない強力なカリウムポンプや、低分子の有機物、フルボ酸やフミン質に結合したセシウムも、光合成細菌の菌体内に取り込む機能を有しているのではと推定している⁹⁾。この取り込み機構は植物の根の細胞のそれより、より強力なのではと推定している。現在、このことを光合成細菌の細胞膜を分取し詳細に分析することにより生化学的な証明を行いつつある。

3. まとめ

酸処理で放射能除染が容易でない福島の水田土壌と湿地土壌を、福島県農業総合センターにて、光合成細菌と乳酸菌の組み合わせで除染し、次の結果を得た。

- 1 除染が容易でない有機物を含まない土壌では、30.1–52.9%の除染率となった。
- 2 有機物の高い南相馬や浪江の土壌の除染率（我々の過去のデータ、除染率59.5–73.0%⁹⁾）と比較すると低く、また、除染率は5日で最大を示しその後あまり変わらないことから、有機物の量により除染率が大きく影響する可能性が今回推定された。
- 3 残存する放射能は、土壌の結晶に強く結びついているセシウムで、これは生物化学的処理では除去できないため、除染率が変化しないと推定された。
- 4 我々の開発した、光合成細菌と乳酸菌を組み合わせた土壌の放射能除染は、有機物を多く含む

土壌に適しており、有機物の少ない土壌には適用が難しいことが推定された。

謝 辞

本研究を行うに当たり、実験場所、土壌の提供およびご指導を頂いた、福島県農業総合センター生産環境部 環境・作物栄養科科长、佐藤睦人先生に深謝いたします。本研究の経費の一部は「平成26年度 学内特別研究費」により支弁されたものである。

参 考 文 献

- 1) 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，p6-158 (2008)
- 2) Sasaki, K., Hara, C., Takeno, T., Okuhata, H., and Miyasaka, H.: *J. Wat. Treat. Biol.*, 46, 119-127 (2010)
- 3) 佐々木健, 原田敏彦, 大田雅博：化学, 66, 57-60 (2011)
- 4) Sasaki, K., Morikawa, H., Kishibe, T., Mikami, A., Harada, T., and Ohta, M.: *Biosci. Biotechnol. Biochem.*, 76, 859-862 (2012)
- 5) Sasaki, K., Morikawa, H., Kishibe, T., Takeno, K., Mikami, A., Harada, T., and Ohta, M.: *Biosci. Biotechnol. Biochem.*, 76, 1809-1814 (2012)
- 6) 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/pr2011083.html
- 7) 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，平成24年3月2日（2012）
- 8) 瀬古典明, 鈴木伸一, 矢坂毅：「東日本大震災後の放射性物質汚染対策」, p204-210, NTS出版, 東京, (2012)
- 9) 佐々木慧, 岡川眞和, 竹野健次, 新川英典, 佐々木健：用水と廃水, 57, 458-467 (2015)
- 10) Sasaki, K., Nakamura, K., Takeno, K., Shinkawa, H., Das, N., and Sasaki, K.: *J. Agric. Chem. Environ.*, 4, 63-75 (2015) <http://dx.doi.org/10.4236/jacen.2015.43007>
- 11) 佐々木健, 竹野健次：生物工学, 92, 13-15 (2014)
- 12) 藤川陽子：東日本大震災後の放射性物質汚染—放射線の基礎から環境影響評価, 除染技術とその取組, p137-145 NTS出版, (2012)
- 13) 中村聡, 神保安広, 石堂昭夫：デコミッショニング技術特別号, 6, 207 (2013)
- 14) 惣田訓, 舟橋弥典, 森本成樹, 大槻宗司, 堀出文男, 橋本卓典, 池道彦, 山下学, 東利保, 西嶋重弘, 環境技術, 43, 729-738 (2014)
- 15) Jasper, P.: *J. Bacteriol.*, 133, 1314-1322 (1978)
- 16) 山口紀子, 高田裕介, 林健太郎, 石川寛, 倉俣正人, 江口定夫, 吉川省子, 坂口敦, 朝田景, 和瀬明太, 牧野知之, 赤羽幾子, 平館健太郎：農業環境技術研究所報告, 43, 729-738 (2012)