

## 放射性物質で汚染された植物バイオマスの減容化総合処理システムの開発

### Development of a Total Treatment System for Volume Reduction of Biomass which Contaminated by Radioactive Materials

金原 和秀<sup>1\*</sup>, 平井 浩文<sup>2</sup>, 大塚祐一郎<sup>3</sup>, 中村 雅哉<sup>3</sup>,  
佐々木 健<sup>4</sup>, 中島田 豊<sup>5</sup>, 加藤 純一<sup>5</sup>

KAZUHIDE KIMBARA, HIROFUMI HIRAI, YUICHO OTSUKA, MASAYA NAKAMURA,  
KEN SASAKI, YUTAKA NAKASHIMADA and JUNICHI KATO

<sup>1</sup> 静岡大学大学院工学研究科 〒432-8561 静岡県浜松市中区城北 3-5-1

<sup>2</sup> 静岡大学大学院農学研究科 〒422-8529 静岡県静岡市駿河区大谷 836

<sup>3</sup> 森林総合研究所キノコ・微生物研究領域 〒305-8687 茨城県つくば市松の里 1

<sup>4</sup> 広島国際学院大学工学部 〒739-0321 広島県広島市安芸区中野 6-20-1

<sup>5</sup> 広島大学大学院先端物質科学研究科 〒739-8530 広島県東広島市鏡山 1-3-1

\* TEL & FAX: 053-478-1170

\* E-mail: tkkimba@ipc.shizuoka.ac.jp

<sup>1</sup> Department of Applied Chemistry and Biochemical Engineering, Graduate School of Engineering, Shizuoka University, 3-5-1 Johoku, Naka-ku, Hamamatsu, Shizuoka 432-8561, Japan

<sup>2</sup> Department of Applied Biological Chemistry, Graduate School of Agriculture, Shizuoka University, 836 Ohya, Suruga-ku, Shizuoka, Shizuoka 422-8529, Japan

<sup>3</sup> Department of Applied Microbiology, Forestry and Forest Products Research Institute, 1 Matsunosato, Tsukuba, Ibaraki 305-8687, Japan

<sup>4</sup> Department of Engineering, Hiroshima Kokusai Gakuin University, 6-20-1 Nakano, Aki-ku, Hiroshima, Hiroshima 739-0321, Japan

<sup>5</sup> Department of Molecular Biotechnology, Graduate School of Advanced Sciences of Matter, Hiroshima University, 1-3-1 Kagamiyama, Higashi-Hiroshima, Hiroshima 739-8530, Japan

キーワード：東日本大震災，放射性物質，汚染バイオマス，減容化，処理システム

Key words: Tohoku earthquake, radioactive substance, contaminated biomass, volume reduction, treatment system

(原稿受付 2013 年 7 月 12 日 / 原稿受理 2013 年 7 月 12 日)

### 1. はじめに

東日本大震災は、福島第一原子力発電所の事故を誘発し、膨大な量の放射性物質を環境に放出した。土壤汚染は深刻であり、放置された農地や空き地、山野で生育した雑草やコメを中心とした汚染農作物、雑木、枯葉などのバイオマス量は膨大である。こうした放射能汚染バイオマスは土壤汚染が限りなくゼロになるまで毎年増加することが予測される。本研究は、環境工学、森林化学、生物工学、廃水処理の専門家が結集することにより、放射能汚染したソフトバイオマス・ハードバイオマス（木質系バイオマス）を発酵変換してそのバイオマス量の大幅な軽減を図るとともに、汚染水の浄化も含む実施可能なプロセスと全体システムを提案するものである（図1）。

バイオマスをメタン発酵や乳酸発酵により効率よく減容化するには、微粉化し生物との接触面積を増やす必要がある。そこで、ソフトバイオマス・ハードバイオマスを微粉化すると同時に糖化する技術を開発する（森林総

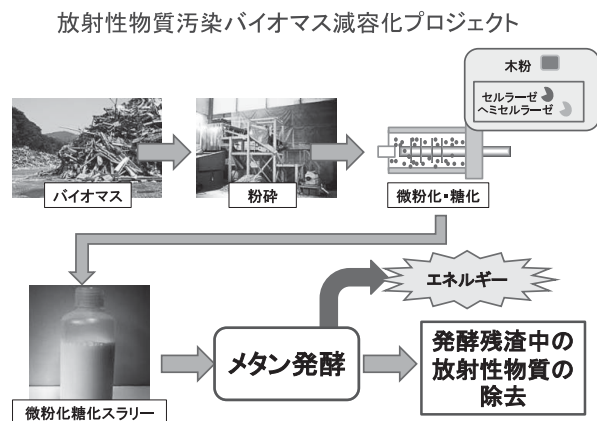


図1. 減容化プロジェクトの概要

合研究所担当)。メタン発酵は糖化処理を行わずともバイオマスにメタンに変換するとともに、大幅な減容化を達成することが期待される。微粉化したソフトバイオマスおよびハードバイオマスの乾式メタン発酵によるメタン生産および減容化技術を開発する(広島大学担当)。ハードバイオマスにはリグニンが多量に含まれているため、微粉化したとしてもメタン発酵では効果的に減容化できないことも予想される。そこで、白色腐朽菌によるリグニン分解技術を織り込んだハードバイオマスの乳酸/メタン発酵技術を開発する(静岡大学担当)。メタン発酵および乳酸発酵からはそれぞれ放射性物質で汚染した消化液が生じる可能性がある。その消化液から放射性物質およびBOD/CODを除去するため、光合成細菌を吸着材とする放射性物質吸着除去技術を開発する(広島国際学院大学担当)。

乾式メタン発酵および白色腐朽菌を活用する乳酸発酵は発展段階の技術とは言え、メタン発酵・乳酸発酵自体は非常によく研究されている。しかし、本研究で想定される種々雑多なバイオマスを対象にした研究は稀であり、かつ放射性セシウムを含むバイオマスからの発酵生産はまったく例がない。それらへの適用可能性の検証が、本研究のブレークスルーポイントである。

## 2. 検討対象バイオマスの調査

汚染地域、特に福島県内でメタン発酵処理の必要性が高いバイオマスの選定を目的として、まず、文献調査などによる福島県内におけるバイオマス賦存量調査し、一般的なバイオマス発生量を調査した。さらに、福島県内の放射性物質汚染地域にある自治体を訪問し、現場レベルで処理必要性の高いバイオマス種に関する聞き取り調査を行った。

### 2.1. 調査対象エリアと方法

調査対象エリアは、福島県全域の13市31町15村とした。調査方法は、文献調査(国等の統計資料等)とした。

福島県西郷村役場、福島県南相馬市役所、そして飯舘村役場飯野出張所の3ヶ所を訪問し、放射性物質汚染対策担当職員と面談、汚染バイオマス発生状況の聞き取り調査および、汚染バイオマス仮貯蔵現場を視察した。

### 2.2. 調査結果

#### ① 福島県におけるバイオマス賦存量等調査(文献調査)

##### 1) バイオマス種別での賦存量

福島県における種別のバイオマス賦存量は、肉用牛ふん尿が最も多く、次いで乳用牛ふん、稲作残渣 稲わらが多かった。一方、湿潤重量では、肉用牛ふん尿が最も多く、次いで乳用牛ふん、下水汚泥(濃縮汚泥)が多い結果となった。

##### 2) 市町村別でのバイオマス賦存量

福島県におけるバイオマス賦存量は、乾燥重量では郡山市及び田村市、湿潤重量では郡山市、いわき市及び田村市が多かった。

##### 3) 種別でのバイオマス有効利用可能量

福島県におけるバイオマス有効利用可能量は、乾燥重量で肉用牛ふん尿が最も多く、次いで雑草、稲作残渣 稲わらが多かった(図2)

#### 4) 福島県におけるバイオマス有効利用可能量(市町村別)

福島県におけるバイオマス有効利用可能量(市町村別)は、乾燥重量では郡山市及び田村市、湿潤重量では郡山市、いわき市及び田村市が多かった。

#### ② 福島県内自治体現地調査

##### 1) 福島県西郷村

西郷村では再利用せずに処理すべき廃棄物を100 Bq/kg以上の汚染物と想定し対策を予定していた。処理する必要性が高いとされた汚染バイオマスは、震災年に栽培された牧草類(発生場所(農家など)にて現地保管)、枯れ葉類であった。今後、木葉さらい及び住宅に近接する20 m以内の汚染木の枝打ちを進める方針のため、さらに汚染バイオマスが発生することが予想された。

##### 2) 福島県南相馬市

南相馬市役所を訪問、関係者から現状の汚染バイオマスの保管・処理状況について聞き取り調査を行ったところ、牧草など、現在は農家に仮置きされており、3年をめどに農地からの撤去・処理したい(市内に仮置き場を設置、移動)、牛糞たい肥が汚染物として特に多い(たい肥中の放射性物質濃度基準=400 Bq/kg)とのことであった。

##### 3) 飯舘村

飯舘村役場飯田出張所を訪問、関係者から聞き取り調査を行ったところ、現状、未だ放射性物質汚染濃度が非常に高く(数万~数百万 Bq/kg、飯舘村長泥で5  $\mu$ S/h)処理が難しい状況であること、仮置き場、中間貯蔵施設の設置場所決定など処理フローが未決定のため、現在、処理フローの道筋をつけるための検討しか行っていないこと、汚染物量が多い(土壌、稲藁残渣、飛灰など)ので、大量かつ迅速に処理できる方法を模索しているとのことであった。

以上の調査結果から、本プロジェクトにて検討対象とするバイオマスとして、1) 福島県下で賦存量、処理可能量の多い稲ワラ、2) 福島県下で賦存量が多い雑草類

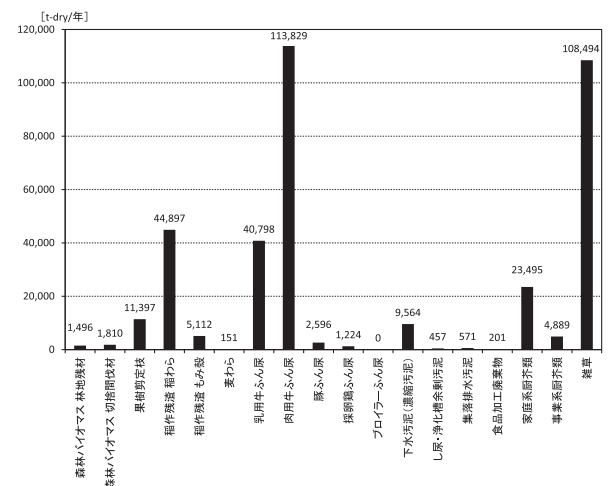


図2. 福島県におけるバイオマス有効利用可能量(バイオマス種別、乾燥重量)

と類似のメタン発酵ポテンシャルが想定され、さらに現在仮置場に保管されており減容化処理が必要とされる牧草類、3) そして、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選定した。

### 3. 湿式ミリング法によるバイオマス減容化技術の開発 (森林総合研究所担当)

木質バイオマスに含まれるリグニンを未変性のまま抽出する特許技術(特願 2009-251872)を適用して、湿式ミリング装置を用いて、放射性セシウムに汚染された草本系ソフトバイオマスと木質系ハードバイオマスを減容化するための基礎的諸条件の検討および問題点の抽出を行った。

#### 3.1. 試験方法および結果

##### ① モデルバイオマスの選定

福島の汚染地域を想定してモデルバイオマスの選定を行った。針葉樹のモデルバイオマスとしてスギ、広葉樹のモデルとしてシラカバ、草本系のモデルとして稲わらを選定した。

##### ② モデルバイオマスのチップ化、木粉化、微粉末化

スギ材、シラカバ材、乾燥稲わらそれぞれ約 30 kg を用意した。スギ材、シラカバ材については、森林総研内木工室に設置されているチップパーにより 2 cm 四方程度のチップに処理した。また、稲わらについては裁断機により 3 cm 程度の長さで切断した。チップ化したスギ材とシラカバ材および裁断した稲わらは Retsch 製カッターミル SM100D に 2 mm のスクリーンを装着して粉碎した。粉碎した粉末はさらに株式会社アイシンナノテクノロジー製のナノジェットマイザー NJ-100B にて微粉末化した。得られた微粉末の粒度測定を行ったところ、スギ、シラカバ、稲わらとも約 20  $\mu\text{m}$  程度であった。

##### ③ 湿式ミリング処理

湿式ミリング処理試験機はベッセル容量 4 L のビーズミル LME4 (株式会社アシザワ・ファインテック) を使用し、ビーズ径 0.5 mm、ビーズ材質はジルコニア製を使用した。予めジェットミルにより top 200  $\mu\text{m}$  以下、平均粒度 10~20  $\mu\text{m}$  に調整したバイオマス微粉末それぞれ 7.0 kg に 61.6 kg の 30 mM リン酸バッファー pH 5.0 を投入し、スラリーを作成後、酵素液 1.4 kg を入れ、原料スラリー (70 kg) とした。70 kg の原料スラリーを投入し、ミキサーで攪拌しながらポンプによりベッセル部へ投入した。スギのベッセル部投入前のスラリーはかなりの粘性の低い懸濁液であった。ベッセル部への投入をもって湿式ミリング処理の開始とした。ベッセル部を通過したスラリーは再度タンクへ戻すことにより循環運転を行った。1~2 時間毎にサンプリングし粒度を測定した。測定は日機装製レーザー回折・散乱式粒度分析計マイクロトラックシリーズを用いた。湿式ミリング開始後徐々に粘度の上昇が観察されたが装置が止まるほどの粘度上昇は見られなかった。最終的に 15 時間の処理で平均粒度 0.759  $\mu\text{m}$  に到達し、処理終了とした。稲わらに於いては 18 時間の処理で平均粒度 0.696  $\mu\text{m}$  に到達した。

##### ④ 湿式ミリング処理物の遠心・乾燥処理

スギの湿式ミリング処理物 100.0 g を量り取り、遠心用のファルコンチューブに分注した。13,000 $\times$ g, 20 min 遠心分離処理を行い、上清の糖化液と残渣に分けた。上清は薄く黄色を呈するクリアな液体であり、残渣部はクリーム色の粘土のような感触であった。100.0 g のスラリーから遠心処理により 49.4 g の上清および 50.6 g の残渣が得られた。また残渣については、約 2 倍量のイオン交換水で再懸濁し 13,000 $\times$ g, 20 min の遠心処理後上清を除去して洗浄した。この洗浄操作を 3 回繰り返し洗浄残渣とした。得られた洗浄残渣を等量のイオン交換水で再懸濁し、10 ml ずつ 90 mm のディスクシャーレに分注した。50 $^{\circ}$ C で一晚乾燥させ、残った残渣の重量を測定した。シャーレ上で乾燥した残渣の状態は薄茶色の透明なフィルム状物質でありリグニンが濃縮されていることが観察された。測定の結果 5.525 g の残渣が得られた。湿式ミリング処理前のスラリー 100 g には木粉が 10 g 含まれていたはずであるが、湿式ミリング処理後の残渣が 5.525 g であったことから、4.475 g は湿式ミリング処理の過程で酵素分解により溶け出した多糖類成分の量を示していると考えられた。このことから、今回のスギにおける糖化粉碎処理物の上清は 4% 程度の糖成分(モノマーからオリゴマーまで様々な分子が混合した)水溶液であると考えられた。また、洗浄前の残渣は 4% 程度の糖成分水溶液を多く含みさらに残渣画分には未糖化の多糖類とリグニンを含む混合物であると考えられた。今回のスギの糖化粉碎処理における糖化率は、ホロセルロースあたり約 63.8~66.8% であった。

稲わらの湿式ミリング処理物 100.0 g を量り取り、遠心用のファルコンチューブに分注した。13,000 $\times$ g, 20 min 遠心分離処理を行い、上清の糖化液と残渣に分けた。上清はスギと比較して濃い茶色を呈しており、残渣部は深緑色の粘土のような感触であった。100.0 g のスラリーから遠心処理により 48.85 g の上清および 51.15 g の残渣が得られた。また残渣については、約 2 倍量のイオン交換水で再懸濁し 13,000 $\times$ g, 20 min の遠心処理後上清を除去して洗浄した。この洗浄操作を 3 回繰り返し洗浄残渣とした。得られた洗浄残渣を等量のイオン交換水で再懸濁し、10 ml ずつ 90 mm のディスクシャーレに分注した。50 $^{\circ}$ C で一晚乾燥させ、残った残渣の重量を測定した。測定の結果 5.72 g の残渣が得られた。湿式ミリング処理前のスラリー 100 g には稲わら粉が 10 g 含まれていたはずであるが、湿式ミリング処理後の残渣が 5.72 g であったことから、4.28 g は湿式ミリング処理の過程で酵素分解により溶け出した多糖類成分の量を示していると考えられた。稲わらの成分構成を分析した結果、スギの結果と比較してほぼ同程度糖化が進行していることが明らかとなった。

#### 3.2. まとめ

木質系ハードバイオマスのモデルとして、スギおよびシラカバを選定し、草本系ソフトバイオマスのモデルとして稲わらを選定した。これら木質系ハードバイオマスと草本系ソフトバイオマスは湿式ミリング装置によって一連の処理を行った結果、約 700 nm 程度の超微粉末化が可能であり、良好に湿式ミリング処理可能であること

を明らかにした (図3)。

#### 4. 乾式メタン発酵技術の開発 (広島大学担当)

本開発では、被災地域にて汚染環境修復時に排出される有機廃棄物資源を用いて、高効率乾式嫌気消化 (メタン発酵) 法の開発を行う。この目的のため、汚染地域、特に福島県内の処理対象バイオマスのメタン発酵ポテンシャルを調査した。

##### 4.1. 対象バイオマスのメタン生成ポテンシャル調査

2章のバイオマス賦存量調査および現地調査の結果から選定した、稲ワラ、牧草 (雑草) 類、木質系バイオマスの嫌気消化特性を調べるために、メタン発酵試験を行った。

###### ① 試験方法

###### 1) 使用メタン発酵污泥

メタン発酵試験には、広島県内の水処理センターから供試された余剰活性汚泥の高温嫌気消化汚泥を使用した。本汚泥の含水率は78.5%、強熱減量 (volatile solids; VS) は0.857 g/g-DWであった。汚泥はポリエチレン製タンク内で4°C、暗所にて保存していたものを用いた。

###### 2) バイオマス試料

本試験では、稲ワラ、および牧草類 (バミューダヘイ) については民間販売店より購入したものをモデル試料として用いた。また、木質バイオマスとしては、森林総合研究所より供試されたスギ粉末の湿式ミリング処理後の遠心分離処理による固形物残渣を、メタン発酵基質として用いた。このとき糖化率は (重量換算) ホロセルロースあたり約65%であった。

###### 3) メタン生成ポテンシャル測定方法

メタン生成ポテンシャルは、高温メタン発酵汚泥に、

バイオマス試料中のVSが5 g/kgとなるように添加、さらにpH緩衝剤としてNaHCO<sub>3</sub>、イオン交換水を加えて全量が100 gとなるようにバイアルビン (700 ml容) に加えて良く混合後、ヘッドスペースをN<sub>2</sub>ガスで嫌気状態とし、55°C恒温しん盪培養器で培養を行った。

###### ② 試験結果及び考察

試験結果を表1にまとめた。稲ワラ粉砕物では、メタン生成まで3日程度の遅延が生じたが、その後は順調にメタンが生成し、最大メタン生成速度は44 ml/g-VS/dであった。培養12日目にはほぼ定常に達し、今回の測定におけるメタン生成ポテンシャルは234 ml/g-VSであった。

牧草 (バミューダヘイ) 粉砕物のメタン発酵回分培養では、遅延期は4日程度と稲ワラ粉末と同程度であったが、メタン生成速度は稲ワラ粉末よりも低く、最大メタン生成速度は稲ワラ粉末の半分程度であった。その結果、メタン生成が終了するまでの培養時間が20日程度、メタン生成ポテンシャルは185 ml/g-VSであった。

木質系バイオマスとしてスギ粉末のメタン生成ポテンシャルを測定したところ、メタン生成ポテンシャル (27 ml/g-VS) は稲ワラ、牧草のそれぞれ12%、15%程度と非常に低かった。そこで、予備的検討として、森林総合研究所にて湿式ミリング処理したスギ粉末の固形物画分についてメタン発酵試験を行った。その結果、スギ粉末の湿式ミリング処理固形物画分では、他のバイオマスと同様メタン生成の遅延期は短く、速やかにメタン生成が開始された。最大メタン生成速度も未処理物と比較して改善されており、メタン発酵ポテンシャルも未処理物の3倍に向上した。この結果は、湿式ミリング処理による木質系バイオマスの前処理はメタン発酵特性を大きく改善できる可能性を示唆するものであった。

##### 4.2. まとめ

本プロジェクトにて検討対象とするバイオマスとして、1) 稲ワラ、2) 雑草・牧草類、3) 木質系バイオマスを選定し、選定したバイオマスについてメタン生成ポテンシャルを測定した。その結果、高温嫌気消化汚泥がこれらバイオマスを分解し、メタン生成する能力を持つことが見いだされたが、メタン生成ポテンシャルは異なっていた。稲ワラ、牧草のメタン生成ポテンシャルは、それぞれ234 ml/g-VS、185 ml/g-VSであり、大きな違いは見られなかった。一方、スギ粉砕物のメタン生成ポテンシャルは稲ワラ、牧草と比較して顕著に低かった。そこで、予備的に湿式ミリングにより処理したところメタン生成ポテンシャルは81 ml/g-VSに向上したことから、スギなどの木質系バイオマスの湿式ミリングに

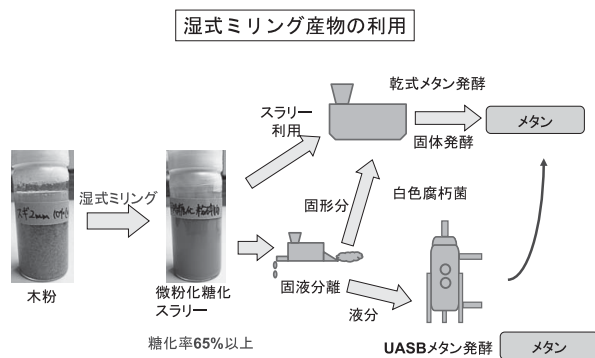


図3. 湿式ミリング処理産物の処理の流れ

表1. 各種バイオマスのメタン生成活性まとめ

試料	メタン生成ポテンシャル (ml/g-VS)	最大メタン生成速度 (ml/g-VS/d)	遅延期 (d)
稲ワラ粉末	234	44	2.8
牧草 (バミューダヘイ) 粉末	185	22	3.7
スギ粉末	27	4.4	9.8
スギ粉末 (湿式ミリング処理)	81	6.8	1.2
グルコース (対照)	338	40.4	3.6

よる処理の有効性が示唆された。

## 5. 木質バイオマス減容化発酵システムの開発 (静岡大学担当)

本研究では、白色腐朽菌を用いたバイオマス減容化の高速化と上向流式嫌気性汚泥床 (UASB) メタン発酵による糖化バイオマスのエネルギー回収を目的として実験を行った。

### 5.1. 試験方法

#### ① UASB 試験方法

##### 1) UASB 反応器の設計・製作

反応器の材質として、透明のアクリルを用いた。対照実験を行うため、容積 1.25 L の反応器を 2 基製作した。

##### 2) 糖化液性状調査

森林総合研究所から提供されたイナワラ、スギ糖化液の化学的酸素要求量 (COD), 全固体量 (TS), pH を測定した。COD は重クロム酸カリウム法で、TS は乾燥重量法を用いて測定した。

##### 3) メタン発酵試験

メタン発酵試験の概略を図 4 に示す。反応器にメタン生成グラニューールを約 500 mL 入れ、35°C で培養を行った。2 基のうち一方の供給液には、塩化セシウムを、セシウム濃度が 10 mg/l になるよう添加した。

##### 4) バイオガス生成量の測定

水上置換法により、発生したガス量を測定した。

##### 5) 原子吸光法によるセシウムの測定

フレイム原子吸光光度計を用いた原子吸光法により、排出液、供給液中のセシウムの定量を行った。マトリックスマッチングを考慮し、検量線の作成、試料の希釈には供給液を使用した。

##### 6) バイオガス内のセシウムの定量

上記と同条件で、原子吸光法によりガス内のセシウムの定量を行った。500 mL の蒸留水に、10 日分の発生バイオガスをトラップしたものを試料とした。

##### 7) 菌体内のセシウムの定量

上記と同様に、原子吸光法により、菌体内のセシウムの定量を行った。2 基の反応器からそれぞれグラニューールを 4 mL 採取し、105°C の乾燥器で乾燥させた後、測定の前処理として、硝酸-過塩素酸灰化を施した。塩化セシウム無添加の反応器からグラニューールを採取し、

同様にして処理をした後、検量線作成に用いた。

#### ② 白色腐朽菌試験方法

##### 1) 固体培養装置の設計・試作

白色腐朽菌を用いて、微粉化木質バイオマス中のリグニンを分解するにあたり、白色腐朽菌の生育条件を検討し、効率的なリグニン分解による減容化が可能となる固体発酵法を確立する必要がある。また、大量のバイオマスの処理を達成するための培養装置を開発する必要がある。装置設計に必要なパラメータをベンチスケールの培養装置を試作して検討した。試作した固体発酵装置を図 5 に示した。

##### 2) 供試菌

本研究では、白色腐朽菌 *Phanerochaete sordida* YK-624 株を用いた。

##### 3) 培地組成及び培養方法

###### 〈菌体培養〉

使用した白色腐朽菌については、PDA (Potato dextrose agar) プレートに植菌し、30°C のインキュベータで 3 日間培養した。培養後、4°C で冷蔵保存し、実験の際に適宜使用した。

###### 〈三角フラスコによる培養〉

風乾ブナ木粉 (16-80 mesh) 1 g, 蒸留水 2.5 mL を含む 100 mL 容三角フラスコをオートクレーブ滅菌した。PDA プレートで 3 日間培養した供試菌のプレート外縁付近より打ち抜いた菌体ディスク 1 個を滅菌済みブナ木粉の中央に接種し、30°C で 1~4 週間培養を行った。培養後、Klason 法に従いリグニン残存率を測定した。

##### 4) 固体培養装置による培養

図 5 の固体培養装置で実験を行った。風乾ブナ木粉 (16-80 mesh) 200 g に対し、含水率が 70% となるよう蒸留水 407 mL を培養装置に加え、十分に攪拌した。その後、培養装置に蓋をし、オートクレーブ滅菌した。滅菌完了後、培養槽内が 30°C 程度になるように放冷した。菌液を培養槽の蓋を開けている時間が短くなるよう注意しながら木粉に均一に塗布した。その後、10 L/min でエアレーションを行いながら 30°C で 6 日間培養した。培養後、菌処理を行ったブナ木粉をポリ瓶に回収し、リグニン残存率の測定に用いた。

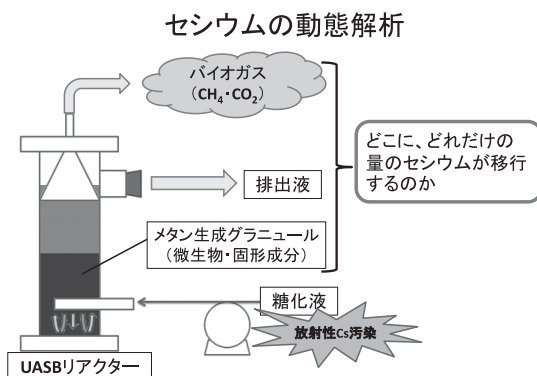


図 4. メタン発酵試験の概略

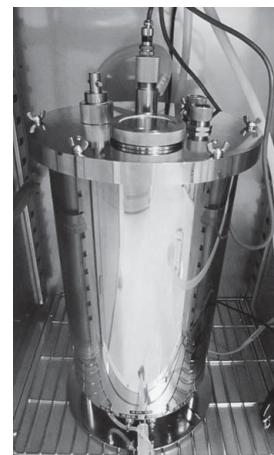


図 5. 固体培養装置

## 5.2. 実験結果および考察

### ① UASB 試験結果

#### 1) 糖化液性状調査

イナワラとスギの糖化液とその性状を図6と表2に示す。イナワラは褐色を呈しているが、これは葉緑素が酸化したためであると考えられた。成分解析の結果から、イナワラ、スギ糖化液のCOD値はそれぞれ、55000 mg/l, 39000 mg/lと高い値であることが分かった。この値から換算すると、イナワラ、スギのセルロース成分の約70%が糖化したことが示唆された。pHはそれぞれ4.2, 4.7と低いため、UASBに供給するには中和が必要であった。

#### 2) ガス生成量

バイオガス生成量の測定結果からCOD=400 mg/Lでのガス生成量は、セシウム添加、無添加の両反応器ともに300–400 mL/dであった。COD=800 mg/Lに上げて以降、2基とも徐々にガス生成量は上昇し、1000–1200 mL/L/dの範囲で推移した。

#### 3) 排出液、供給液中のセシウム定量

塩化セシウム添加後の反応器の供給液、排出液のセシウム濃度を原子吸光で測定した結果、供給液、排出液ともにセシウム濃度はほぼ同値であった。経時変化を測定すると、添加後1日未満で菌体内へのセシウムの吸着が平衡状態になり、以降は供給されたセシウムはすべて排出されたものと示唆された。

#### 4) バイオガス中のセシウムの定量

バイオガスを合計8.1 L水中にトラップし、水中のセシウムの存在を原子吸光で測定した。その結果、ブランクとほぼ同値であったことから、バイオガス中にはセシウムは移行していないということが示唆された。

#### 5) 菌体内のセシウムの定量

グラニューール試料の原子吸光測定結果は、3.31 mg/Lであった。この値に、濾過灰化液量2 mLを乗じて、菌体乾燥重量0.171 gで除すことにより、菌体単位質量あたりに含まれるセシウム量を算出した。その結果、1 gの乾燥グラニューールあたりのセシウム量は $3.9 \times 10^{-5}$  gと非常に低い値となった。



図6. 糖化液 (左: イナワラ, 右: スギ)

表2. 糖化液の性状

	イナワラ	スギ
COD (mg/L)	$5.5 \times 10^4$	$3.9 \times 10^4$
TS (g/L)	64.0	50.0
pH	4.2	4.7

### ② 白色腐朽菌試験結果

図7に三角フラスコで行った試験と固体培養装置を用いた試験のリグニン分解率を示した。三角フラスコでの培養において、米糠を添加した場合、リグニン分解率が減少した。米糠は窒素を豊富に含んでいることから、培地に加える窒素量がリグニン分解度に大きく影響することが示唆された。また、還元型窒素量が10 mM以上ある場合には、菌糸の成長は窒素量の少ない場合と同等か、それ以上であるにも関わらず、リグニン分解が停止することから、窒素源量の最適化が必要であると示唆された。固体培養装置でYK-624株を6日間培養した場合、15.2%のリグニン分解率が得られたことから、エアレーションを行い、高濃度の酸素を供給することで、リグニン分解酵素活性が増加し、リグニン分解が促進することが示唆された。

## 5.3. まとめ

実験の結果、バイオガス中からセシウムは検出されなかった。また、UASBにおけるセシウムの動態解析の結果、添加したセシウムは排出液とともに排出されるということがわかった。ブナ木粉培地に米糠を加え、YK-624株の培養を行ったところ、リグニン分解率が減少したことから、栄養源の過剰添加はリグニン分解を阻害するという結果が得られた。また、固体培養でリグニン分解が促進した。

## 6. 光合成細菌を活用する排水(消化液)処理技術開発 (広島国際学院大学担当)

本項目は、放射能汚染森林バイオマスを、湿式ミリング法で微細加工と酵素糖化を行い(森林総合研究所)、乾式メタン発酵(広島大学)または乳酸発酵・UASB処理(静岡大学)後の廃液(消化液)を、固定化光合成細菌(SS1株)による好気処理により、放射性セシウムを効率よく取り除くことができるシステムの構築を目的としている。特に、乾式メタン発酵や乳酸発酵・UASB処理を行った後の、炭素源が酢酸、プロピオン酸、乳酸および、そのほかの雑多な有機物質を多量に含む、比較的粘性の高い消化液に対し、好気処理による水質浄化を行う必要がある。福島現地調査の結果、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ことか

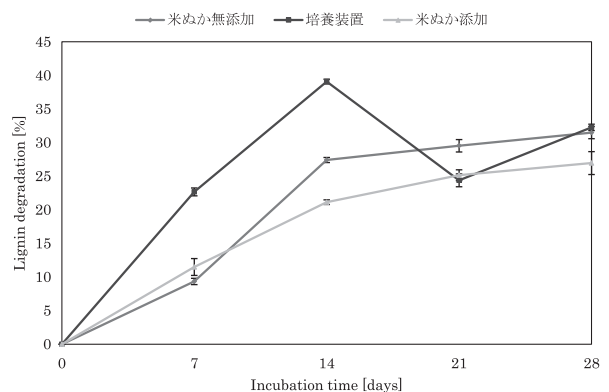


図7. 白色腐朽菌によるリグニン分解の比較

ら、除去対象は放射性セシウム除去に焦点が絞られている。また、このような比較的粘度の高い消化液の好気処理は、水で希釈後、活性汚泥処理を行うような処理が通常である。希釈による容量増加を避けるためには、消化液を希釈せず直接かつコンパクトに好気処理を行う必要があるため、光合成細菌をこの処理に適応させるためには、以下の大きな解決すべき問題点がある。

- (1) これまでグルコースを主な炭素源とした好気処理で、固定化光合成細菌でのウラン、ストロンチウム、セシウム、コバルトなどの放射性核種の処理を行ってきたので、消化液中の酢酸、プロピオン酸、乳酸などを炭素源として放射性セシウム除去が可能か、また、COD や BOD は十分低減できるのか予備的検討が必要である。
- (2) 光合成細菌によるセシウム除去において、従来は、光合成細菌の菌体外に生成される菌体外高分子物質 (EPS) による吸着と考えられていた。その後の研究で、カリウムの存在により、セシウムの除去効率が変動することがわかってきたことから、光合成細菌のセシウム除去にはカリウムポンプが関与していることがほぼ確実な状況になってきた。カリウムがないと光合成細菌自体生育できないので、カリウムの量的バランスもセシウム除去には重要で、検討が必要である。
- (3) 従来の発酵槽による好気処理設備およびジャーファーメンター等では処理が困難なことが予想されるので、粘性の高い消化液への酸素供給、物質循環を効率よく行いうる特殊なバイオリクター設計が不可欠であり、バイオリクターによる好気処理の可能性は見出せるのか、検討が必要である。

以上の問題点を解決するため、次の検討を行い、上記問題点の解決を図ることを目的とした。すなわち、光合成細菌 SSI 株による酢酸、プロピオン酸、乳酸を炭素源としてのセシウム除去の可能性の検討を、人工下水と非放射性 Cs を用いて行った。最初は、廃棄ガラスから試作したセラミックである、ガラス固定化 SSI を用いた。また、種々のカリウム濃度でのセシウム除去の可能性について、種々濃度を変えて検討した。さらに、グルコースの代わりに、酢酸、プロピオン酸および乳酸を炭素源として、ガラス固定化 SSI の代わりに、約 2 cm 大のアルギン酸ビーズ (SSI 固定化ビーズ) を用いて、Cs が除去できるかを検討した。また、SSI 固定化ビーズで、炭素源を種々変えて、またこれらを複数回投与することで、SSI 株の活性化を行い、Cs 除去効率があげられないかを検討した。さらに、比較的粘性のある消化液の浄化のために、処理が簡略なエアリフト式バイオリクターを試作して、SSI 固定化ビーズによる消化液中でのセシウム除去と水質浄化能力について検討した。さらに、これらの基礎知見をもとに、ベンチスケールバイオリクターの構想と設計を行った。

## 6.1. 検討の結果得られた成果

放射能汚染バイオマスのメタン発酵、乳酸発酵廃液 (消化液) の、光合成細菌、*Rhodobacter sphaeroids* SSI による放射性セシウム除去および水質浄化を目標とし

て、予備実験として非放射性セシウム (Cs) を用いて、固定化光合成細菌のうち、廃棄ガラスを用いた、ガラス固定化 SSI、およびアルギン酸を用いた約 2 cm 径に固定化した SSI 固定化ビーズを用いて、消化液中の Cs 除去および COD について種々検討し、以下の結果を得た (図 8, 9)。

- (1) ガラス固定化 SSI を用い、グルコースを炭素源とする人工下水中で好氣的 Cs 除去に及ぼすカリウム (K) の影響を検討した。これまで悩まされてきた K による Cs 除去の不安定性を明らかにするためである。その結果、処理液中に Cs が多いとき (10 mg/L) は、K が多いほうが Cs 除去がよかったが、Cs が少ないとき (5 mg/L 以下) は逆に K が少ないほうが良い結果が得られた。Cs と K 量のバランスが重要であることが分かった。福島では K 量は実際にはきわめて少ないので、実用的には K は極力低いほうがよいことが明らかとなった。
- (2) 光合成細菌活性化剤、アミノバシラスの利用は Cs 除去を安定させる効果のあることが分かった。また、Cs 濃度が低い場合は、活性化剤は必ずしも必要がないことが明らかとなった。

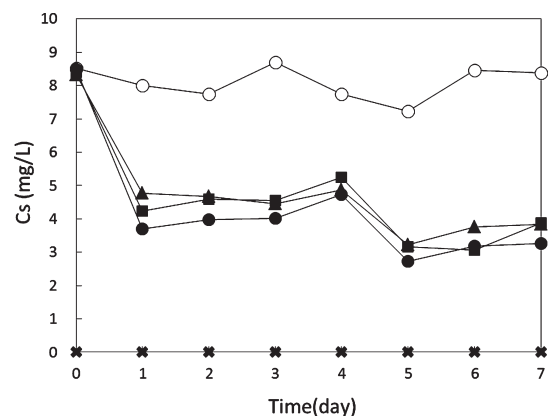


図 8. 光合成細菌、SSI 固定化ビーズによる、メタン発酵消化液 4 L 中の Cs 除去  
○: 対照 (グルコース 4 g/L 投入, ビーズ無) ▲: グルコース 4 g/L, SSI 固定化ビーズ 200 個投入 ■: 乳酸 4 g/L, SSI 株固定化ビーズ 200 個投入 ●: 酢酸・プロピオン酸 4 g/L, SSI 固定化ビーズ 200 個投入 ×: グルコース 4 g/L, SSI 株固定化ビーズ 200 個投入, 消化液に Cs を添加しない場合のデータ。

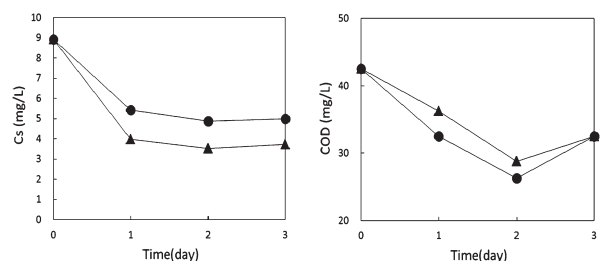


図 9 試作エアリフト式、多段式バイオリクターでの SSI 固定化ビーズによる Cs および COD 除去 ●: エアリフト式 ▲: 多段式

- (3) 酢酸, プロピオン酸, 乳酸を炭素源とした人工下水でも Cs 除去は 25–48% 程度可能であった。
- (4) 牧草を見立てた雑草のメタン発酵消化液中での SSI 固定化ビーズによる Cs 除去も, 48–57% の除去が可能であった。また, SSI 固定化ビーズを用いても同じように Cs 除去が可能であった。このビーズは乾燥, 焼却により 97–99% の容量, 重量の減容が可能であり, 実用面から重要と考えられた。
- (5) メタン発酵消化液に酢酸, プロピオン酸, 乳酸を炭素源にして, SSI 固定化ビーズによる好氣的 Cs 除去を行ったところ, 1 日で最大で 63% の除去が可能であった。さらに 4 日後に炭素源を追加したところ, 5 日目には最大で 73% の Cs 除去が可能であった。この結果を図 8 に示す。  
このことは, 実際に福島でのメタン発酵消化液からの放射性 Cs 除去に可能性を見出した。
- (6) 比較的粘性のあるメタン発酵消化液の好気処理をより効率的に行うために, 1 L 規模のエアリフト式, 多段式バイオリクターを試作して, 好気処理を行ったところ, 通常の平型処理槽と同じような Cs 除去が可能であった。COD の同時除去も可能であった。酸素供給や炭素源供給がまだ律速になっている傾向が認められた。この結果を図 9 に示す。
- (7) これらの知見に基づき平成 25 年度に向け, 4–6 L 規模のベンチスケールの, 回転ドラム式, エアリフト式, 多段式バイオリクターの設計を行った。これらの結果は, 放射能汚染バイオマスのメタン発

酵, 乳酸発酵廃液 (消化液) からのセシウム除去と水質浄化が, 可能性が十分認められたことを, 今回確認したものである。優れた光合成細菌株 (SSI) と我々の長年培った基礎技術がこのことを可能にした。さらなる, ベンチスケールバイオリクターを構築し検討することで, 最終的に福島での放射能除染に有用な, 新規なバイオ技術となりうる可能性を見出した。

## 7. 結 言

以上得られたデータを基に, バイオマス減容化システムの基本設計を行った。本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。

その結果から, 反応体積は 6% まで減少し, 減容化率は 94% であることが分かった。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。

## 謝 辞

本報告書は, 文部科学省の原子力基礎基盤研究委託事業による委託業務として, 国立大学法人 広島大学が実施した平成 24 年度「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」の成果を取りまとめたものである。