

メタルバイオ技術による排水からのレアメタル回収の可能性

Potential of Metal-Biotechnology on Rare-Metal Recovery from Wastewater

池 道彦^{1*}, 山下 光雄², 黒田 真史³
MICHIIHIKO IKE, MITSUO YAMASHITA and MASASHI KURODA

¹ 大阪大学大学院工学研究科 〒565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1

² 芝浦工業大学工学部 〒135-8548 東京都江東区豊洲 3-7-5

³ 大阪大学環境イノベーションデザインセンター 〒565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1

* TEL: 06-6879-7672 FAX: 06-6879-7675

* E-mail: ike@see.eng.osaka-u.ac.jp

¹ Graduate School of Engineering, Osaka University, 2-1 Yamadaoka, Suita, Osaka 565-0871, Japan

² College of Engineering, Shibaura Institute of Technology, 3-7-5 Toyosu, Koto-ku, Tokyo 135-8548, Japan

³ Center for Environmental Innovation Design for Sustainability, Osaka University,
2-1 Yamadaoka, Suita, Osaka 565-0871, Japan

キーワード: メタルバイオテクノロジー, レアメタル回収, 排水, セレン

Key words: metal-biotechnology, rare-metal recovery, wastewater, selenium

(原稿受付 2012年5月7日/原稿受理 2012年5月25日)

1. はじめに

多くのレアメタルは、少なからぬ量が生産(精錬)や加工、廃棄の各工程で酸化物となって排水中に放出され、有効利用のフローから外れてしまっている。例えば、セレンについて PRTR データに基づいた粗い試算をすると、生産量の少なくとも 10%以上が排水中に移行して失われている。ここで、排水中に移行したレアメタルを除去・回収することができなければ、希少資源の損失という視点からのみでなく、水域の汚染につながり、レアメタル汚染という新たな環境問題を引き起こしかねないということからも問題となる¹⁵⁾。すなわち、環境保全と資源循環という両視点から、排水中のレアメタルの除去・回収は極めて重要な意義を持つにも関わらず、現状では実用的な経済性を持った技術は十分に確立されているとはいえない。この原因は、排水中のレアメタルが定義すらできない複雑な組成のマトリックス中に、概して低い濃度で含まれていることにある。即ち、既存の凝集沈殿、吸着等の物理化学的な金属類の分離・精錬技術では、目的のレアメタルを多様な不純物の中から選択的に濃縮することは容易ではなく、極めて高コストになってしまうからである。

この限界を打ち破り、排水からのレアメタル回収を可能とするアプローチとして、特殊な金属類の代謝能力を有する微生物を活用する“メタルバイオテクノロジー”の利用が提案できる¹⁴⁾。生物反応は有機物の分解や合成に関わるものと考えられがちであるが、実際には金属類を含めた無機元素に対しても様々な代謝作用を触媒する

ことが知られ、特に微生物の引き起こす反応は多岐に渡る。ある種の微生物は金属類を電子供与体として利用しエネルギーを得るが、その過程で金属類は酸化される。逆に、酸素の代わりに電子受容体として用いて呼吸した場合には、金属類は還元される。また、生合成に伴って金属類を水素化・メチル化するものもある。微量栄養素として特定の金属類を効率的に摂取して蓄積する微生物や、逆に有害金属類の取り込みを抑制したり、強制的に排出する機能を発達させている微生物は、細胞内外での金属類の移動と濃縮に関わる作用に長けている。このような微生物作用が結果として、液相からの金属類除去に結びつく場合には(固着・気化・吸着濃縮など)、これを排水からの金属類回収に適用できる可能性がある。

微生物は、適正なエネルギー源と栄養素さえ与えておけば自己増殖する触媒であり、使用に伴って劣化する化学触媒に比べて、一般には経済性に優れる。常温・常圧下での反応であり、省エネルギー性が高いばかりでなく、反応によって生じる産物が自然の物質循環に組み込まれる環境適合性を有しているといったメリットもある。また、酵素反応を基本とする微生物作用は基質特異性が高いプロセスであり、特にターゲットとする金属類との親和性が高い酵素が関与している場合には、低濃度域においても比較的高い反応効率が保たれるため、排水のような混合物中でも特定の金属類の変換等を行うことができる。従って、排水中からのレアメタル回収において、メタルバイオは現状の金属類回収法の欠点を解消し得る高いポテンシャルを秘めているものと考えている。

ここでは、排水中からのレアメタル回収を可能とする

メタルバイオ技術の開発について、セレンを例として紹介したい。産業排水中に存在するセレン酸イオン (SeO_4^{2-} : $\text{Se}(\text{+VI})$) / 亜セレン酸イオン (SeO_3^{2-} : $\text{Se}(\text{+IV})$) を還元し固形の元素態セレン ($\text{Se}(\text{0})$) に転換するバイオミネラルゼーション作用、セレンをメチル化して気化するバイオボラタリゼーション作用を利用して、排水中のセレンを資源としてリサイクルする試みである。

2. セレン排水処理の現状

セレンは電子材料、鋼材の添加剤、ガラスの着色・脱色、化学触媒などの幅広い用途に利用されているが、排水中での存在形態であるオキサニオン ($\text{Se}(\text{+VI})$ と $\text{Se}(\text{+IV})$) は生物に対して慢性・急性の毒性を有することから、我が国においては平成5年3月に水質環境基準健康項目の規制物質に加えられ、平成6年2月には水質汚濁防止法によって0.1 mg/L という厳しい排水基準が設定された。しかし、実用に耐える排水処理技術は未だ確立されたとはいえず、特に $\text{Se}(\text{+VI})$ を排水中から除去することは容易ではない。現在のところ最も有効なセレン含有排水の処理技術は、触媒還元で $\text{Se}(\text{+VI})$ を $\text{Se}(\text{+IV})$ にまで還元した後、鉄塩やアルミ塩などの凝集剤を大量に加えて凝集沈殿し、固液分離にて除去する方法であるが (図1)、 $\text{Se}(\text{+VI})$ の還元や凝集沈殿に必要なエネルギー、薬剤等資源の消費が大きく、経済的ではない。また、セレンは凝集沈殿により鉄等の化学泥中に吸着されるが、その含量が1%程度以下と低いことか

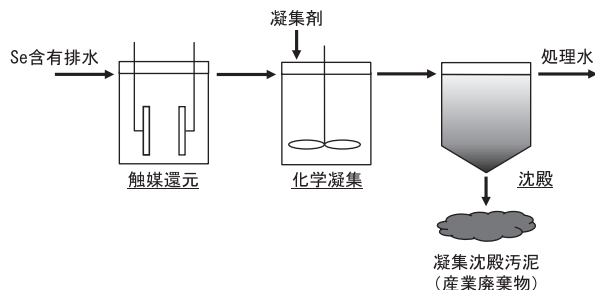


図1. 現行のセレン含有排水処理プロセス。

ら、資源としてリサイクルする価値がなく、現状では脱水された後、産業廃棄物としてコストをかけて廃棄処分するしかない。言い換えれば、一旦排水中に移行したセレンは高いコストをかけて排水基準を満たすよう、どこかに除去されてはいるものの、資源として回収されることなく失われてしまう。

3. セレン回収のカギとなる微生物作用

セレンは様々な生物地化学作用によって、気圏・水圏・土壌圏を循環しているが (図2)⁹⁾、このうち水圏に存在する $\text{Se}(\text{+VI})$ や $\text{Se}(\text{+IV})$ は、主に微生物の還元作用により $\text{Se}(\text{0})$ などの固形セレンとなって土壌圏へ移行することが知られ、バイオミネラルゼーション作用と呼ばれている。固形セレンはさらに還元、メチル化されることで気相へ移行し、これをバイオボラタリゼーション作用と呼ぶ。この両作用の利用が、排水からのセレン回収技術を確認するためのカギを握る。化学的に行う $\text{Se}(\text{+VI})/\text{Se}(\text{+IV})$ の固相や気相への還元は経済的に見合うものではなく、非現実的であるが、微生物反応は理論上は非常に安価になり得るため、効率的なセレン代謝微生物を入手することができれば、低コストで水溶性セレンを固相、あるいは気相へと分離・除去するプロセスが実現できる。

バイオミネラルゼーション作用で固相に除去されたセレンは、微生物細胞の構成成分である有機物中に濃縮されているという点で、凝集沈殿で生成する化学泥とは大きく異なり、資源としての価値を有している。有機成分を燃焼等により分解・除去すれば、残渣灰分中のセレン含有率は飛躍的に高くなり、妥当な経済性を持ってリサイクルできる可能性がある。一方、バイオボラタリゼーションで気化されたセレンを、スクラバーなどで適当な溶液中に捕集すれば、夾雑物の少ない高純度のセレン溶液が得られ、やはりリサイクルできる。これら両作用による排水からのセレン回収・資源化の仮想プロセスを図3に示している。

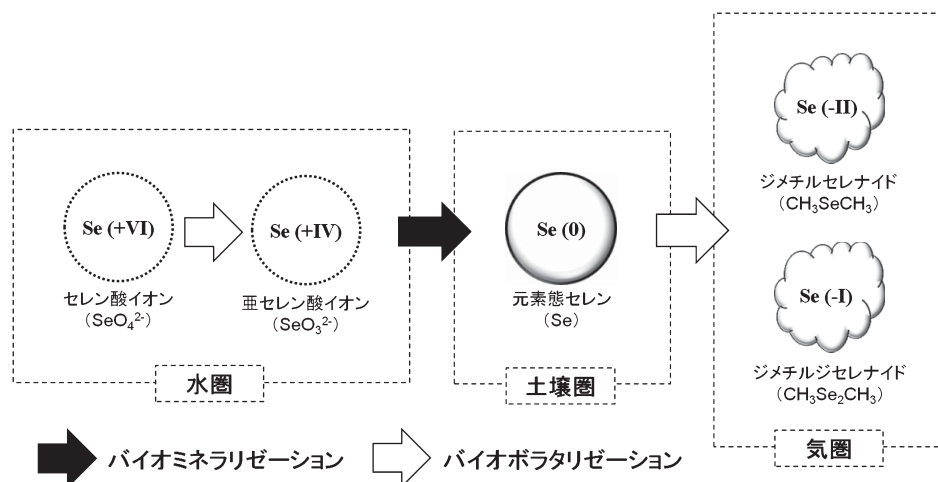


図2. 微生物による環境中セレンの還元的変換。

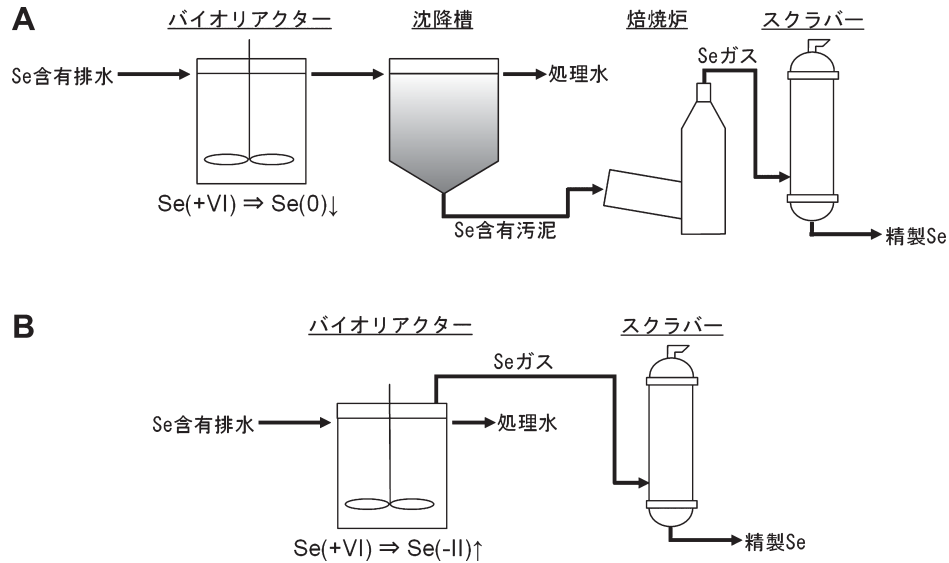


図3. 微生物の還元作用を利用した排水からのセレン回収・資源化の仮想プロセス。(A) バイオミネラリゼーションを利用したプロセス。(B) バイオポタリゼーションを利用したプロセス。

4. セレン酸還元細菌 *Pseudomonas stutzeri* NT-I 株⁷⁾

排水からのセレン回収プロセスを実現することのできるセレン代謝微生物の候補として、我々の研究グループでは、**Se(+VI)**還元細菌 *Pseudomonas stutzeri* NT-I 株を取得している。

NT-I は好気条件下で **Se(+VI)** を **Se(0)** にまでスムーズに還元する珍しいセレン酸塩還元細菌であり、セレン精錬工場の排水溝に形成された生物膜より分離した。NT-I は振盪フラスコによる好気培養で、**Se(+VI)** を速やかに還元し、**Se(+IV)** を経て **Se(0)** に転換することで水中から除去することができる。例えば、TSB (Trypticase Soy Broth) のような栄養に富む培地で培養すれば、数 10～数 100 mg-Se/L の **Se(+VI)** を数時間～1 日のうちにすべて水相から除去する (図4)。通常の還元微生物では **Se(+VI)** の還元に厳密な嫌気条件の維持を必要とするものが多いが、NT-I は酸素が存在していても大きな阻害を受けることがなく、ハンドリングが容易で、安定な機能発現を期待できるという利点があるうえ、これまで報告されている **Se(+VI)** 還元細菌^{4,8-10)} のいずれにも劣らない速度で **Se(0)** への転換を行うことができる。図5には、水溶性セレンがほぼ除去された時点での NT-I の電子顕微鏡写真を示している。**Se(+VI)/Se(+IV)** の還元産物である **Se(0)** が数 10～数 100 nm 径のナノ粒子として細胞外に蓄積されている様子が解る。

NT-I によって **Se(0)** として蓄積された固相の不定形セレンは濃赤色を呈すが、さらに培養を継続すると、この色が消えてしまう現象を見出したことから、NT-I は **Se(0)** をさらに還元し、気化させる能力も併せ持つことが明らかとなった。図4に示したように、TSB 培地での培養を4日まで継続すると、水相・固相中のセレンの大部分が検出されなくなり、気相へ移行することが分かる。別途の密封した培養瓶中で **Se(+VI)** 還元試験を行い、気相部のセレンを GC-MS (ガスクロマトグラフ質量分析計) で分析したところ (図6)、気化産物として

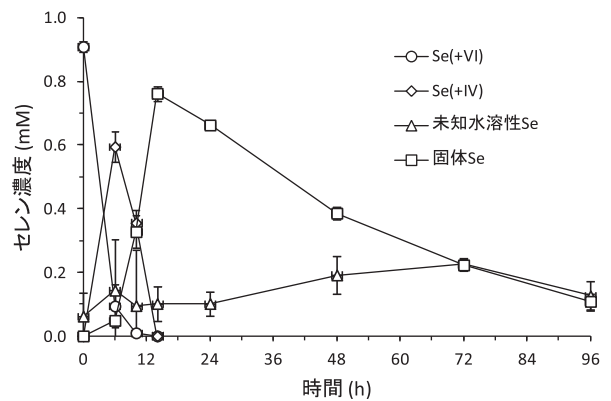


図4. *P. stutzeri* NT-I 株によるセレン酸代謝。NT-I 株をセレン酸ナトリウムを加えた TSB 培地中で好氣的に培養した。未知水溶性セレンは、水溶性セレンの分析値から **Se(+VI)** および **Se(+IV)** 由来のセレンを差し引いたものとして定義した。エラーバーは標準偏差を示す (n=3)。

主にジメチルジセレナイド (DMDSe) が生成しており、少量ながらジメチルセレナイド (DMSe) やジメチルセレンニルサルファイド (DMSeS) が共存していることが示され、NT-I はセレンをメチル化することで気化していることが明らかとなった。セレンをメチル化して気化させることのできる微生物については多数知られているが^{1-3,11,12)}、主な気化産物として DMDSe を生成するという報告は見られず、NT-I が特殊なセレン気化メカニズムを有している可能性が示唆されている。また、NT-I 株と比較し得る揮発化速度が報告されている微生物は *Corynebacterium* sp. のみであり²⁾、最もセレンの気化速度が速い細菌株の一つであると考えている。

すなわち、NT-I は、**Se(+VI)** および **Se(+IV)** の両水溶性セレンのバイオミネラリゼーション、さらにはバイオポタリゼーションの何れにも長けた、セレン代謝全般に優れた菌株であり、排水からのセレン回収に極めて有望な触媒であるといえる。

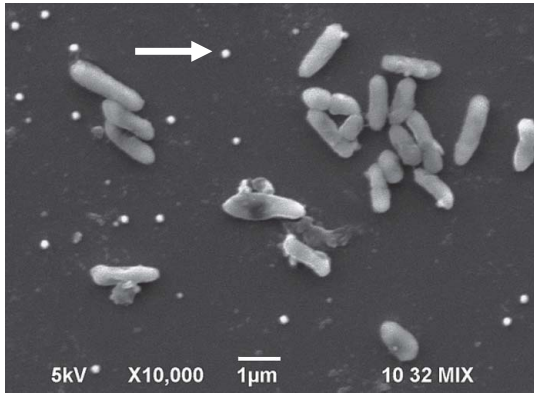


図5. *P. stutzeri* NT-I 株の電子顕微鏡写真。走査型電子顕微鏡を用いて、Se(+VI)を添加したTSB培地で培養したNT-I株を観察した。Se(+VI)の還元により元素態セレン粒子(図中矢印)を生成していることがEDX分析で確認された。

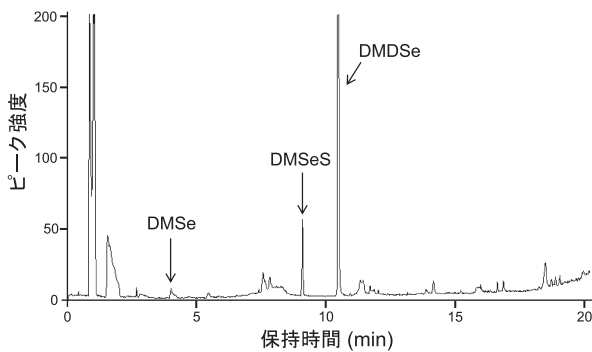


図6. NT-I 株の生成するセレン化合物のGC-MSによる分析。

5. バイオミネラリゼーションによる 精錬排水からのセレン回収の試行

メタルバイオ実用化の可能性を探るため、NT-Iを用いて実容積500Lのパイロットスケールの連続回分方式のバイオリクターを構築し(シーケンシングバッチリアクター:SBR)、セレン精錬工業排水を対象としたセレン回収の試行を行った。図7に本バイオリクターの模式図を示している。NT-Iは遊動型のアクリル製生物附着担体で保持し、基質としてエタノールを添加して底部より弱く曝気・攪拌した。ここで、精錬排水のpHは約1と極めて低く、塩濃度も6~7%と高かったことから、NaOHで中和したうえで工業用水にて数倍に希釈し、NT-Iが増殖できるよう前処理を行う必要があった。

前処理を施した精錬排水をSBRへの流入水とし、回分処理を行ったところ(図8)、60~70mg-Se/LのSe(+IV)は5日間の間に1mg-Se/L以下のレベルにまで除去されると同時に、バイオリクター内は不定形のSe(0)の蓄積を示す濃い赤色を呈し、固形セレンへと転換されたことが示された。バイオリクター中の排水の80%を固体のセレン含有バイオマスを含む処理水として回収し、前処理したSe(+IV)含有精錬排水を新たに供給した2回目の回分においても、ほぼ同様のSe(+IV)の処理とセレン回収が可能であり、実排水に対してNT-Iの繰り返し利用が可能であることが確認された。また、

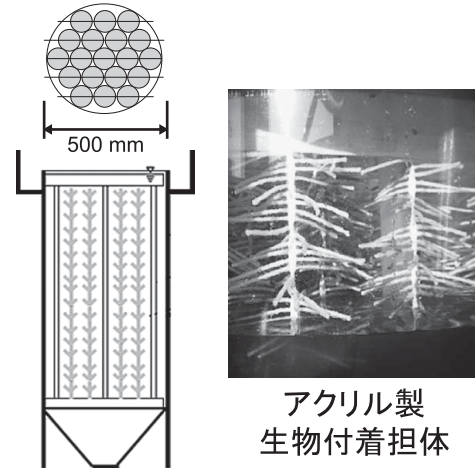


図7. NT-I株を用いたパイロットスケールのセレン回収SBRの模式図。直径500mmの槽内に菌体保持のためのアクリル製のリボン状生物附着担体を備えている。

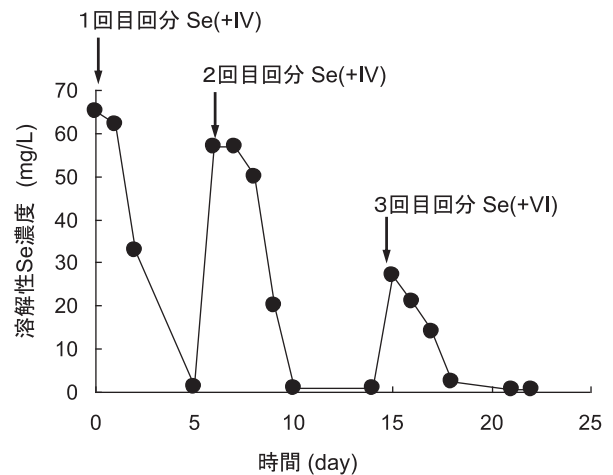


図8. SBRによるセレン除去・回収試験結果。5日おきに全液量の80%をセレン含有バイオマスを含む処理水として回収し、前処理を施した新規の精錬排水と入れ替えた。1回目と2回目の回分処理ではSe(+IV)を添加し、3回目の回分処理ではSe(+VI)を添加した。

3回目の回分では、約30mg-Se/LのSe(+VI)を含む排水を供給したが、やはり5日間程度で水溶性セレンとして同様の低濃度にまで除去することができた。このことから、実排水に対しても適正な調整を行えばNT-Iを適用して、水溶性のセレンを固形物として回収できることが実証されたといえる。

なお、5日サイクルの回分の終了時において、バイオマス中のセレン含量は最大では30%以上に達し、十分に資源としての回収に耐えるバイオマスが得られることも確認された。また、別な実験ではバイオマス中のセレン含量は45%近くにも達する場合があり、これを焼却したことを想定した無機成分中ではセレンが実に80%以上を占める、いわば高品位鉱へと変換できたものといえる。模擬的に細菌細胞にSe(0)を混合した試料を用いて、酸性雰囲気下、500°Cで焙焼すれば、十分に資源化し得る純度で、元素態あるいは酸化態のSe固形物(Se(0)もしくはSeO₂)を回収できることも明らかにし

ており、図3(A)に示したプロセスの構築が夢ではないことが確認された。

6. バイオボラタリゼーションによるセレン回収の試み

図3(B)に示したように、NT-Iのバイオボラタリゼーション活性を利用することができれば、よりシンプルなプロセスで排水からセレン回収を行うことができる。このコンセプトの実現可能性を評価するため、ジャーファーメンターを用いてNT-Iによるセレンの揮発化回収試験を行った。ただし、ここでは実際の排水は用いておらず、TSBにSe(+VI)を添加した系での模擬実験にとどまっている。すなわち、0.5 mMのSe(+VI)を含む2 LのTSBにNT-Iを植種し、5 L容ジャーファーメンターの温度、攪拌速度、流量、pHをそれぞれ38°C、250 rpm、1 L/min、9.0に保って回分培養を行った。この間、ファーメンターからの排気をエアストーンを通じて濃硝酸中にくぐらせた簡易な模擬スクラパー(硝酸トラップ)¹³⁾により、気化したセレンの回収を図った。

培養液を経時的にサンプリングし、サンプル中の固形セレンおよび全水溶性セレンの濃度を測定した結果を図9に示している。初期にSe(+VI)として添加したセレンは、9時間までに速やかに水相から除去され、そのほとんどはSe(0)と考えられる固相へと移行した。それ以降は固相中のセレン量は水溶性セレンとともに徐々に減少し、最終的には水相・固相中のセレンの多くの部分が除去された。また、この除去セレンの総量が、気化したものと考えると、硝酸トラップにより約8割を回収することができ、バイオボラタリゼーションによる水中からのセレン回収が可能であることが確認された。ここで用いた硝酸トラップは極めてシンプルなものであったが、気液接触効率の向上や、よりセレン吸収効率のよいトラップ液の選定、排気の循環などの改良を行うことで、気化セレンの全量を回収することも難しくないと考えられる。

セレンが回収された硝酸トラップ中の全元素分析を行ったところ、硝酸の成分とセレンの他には硫黄および少量のケイ素が検出されたが、ICP-AES(誘導結合プラズマ発光分光分析)で分析可能なその他の元素は検出されなかった。ここで、検出されたケイ素はガラス容器からの溶出であると考えられることから、ファーメンターより気化し、回収された元素はセレンと硫黄のみであったといえる。硝酸中からのセレンの精製方法は今後の課題であるが、セレンと硫黄のみという非常に単純な組成の液からは、セレンを容易に精製できるものと考えられ、低コストでのセレン回収が期待できる。

7. 他の元素への展開の可能性

ここまで示してきた排水からのセレン回収技術は、同様の反応を触媒する有効な微生物が得られれば、他の元素にも水平展開できる。例えば、水溶性の有価金属を固形や吸着性の高い形へと還元・変換する多様な微生物作用が表1のように知られており、テルルについては、すでにバイオミネラリゼーションを触媒する微生物を取得している(図10)⁶⁾。金属代謝能を有する微生物の取得

は、必ずしも一筋縄ではいかないが、ヒ素の酸化・還元、マンガン酸化、クロム還元、バナジウム還元、パラジウムや白金の還元、放射性元素やレアアースの吸着・濃縮、水銀イオンの気化、焼却灰からの金属類溶出等、

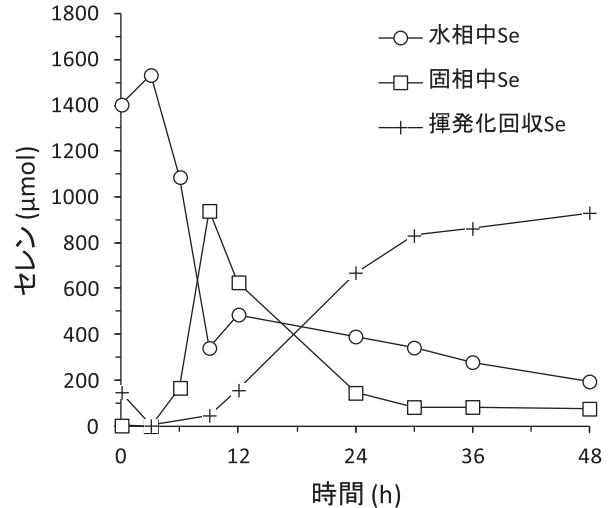


図9. バイオボラタリゼーションによるセレンの回収。NT-I株を、セレン酸を含むTSB培地中で培養し、排気を濃硝酸中にバブリングすることにより排気中のセレンをトラップ回収した。縦軸は培養系内に存在するセレン量をモル数として示している。

表1. 金属類を不溶化/難溶化させる微生物還元作用

セレン	Se(+VI) → Se(+IV) → Se(0)
テルル	Te(+VI) → Te(+IV) → Te(0)
パラジウム	Pd(+II) → Pd(0)
金	Au(+III) → Au(0)
銀	Ag(+I) → Ag(0)
クロム	Cr(+VI) → Cr(+III)
バナジウム	V(+V) → V(+IV) → V(+III)
ウラン	U(+V) → U(+IV)
テクネチウム	Tc(+VII) → Tc(+IV)

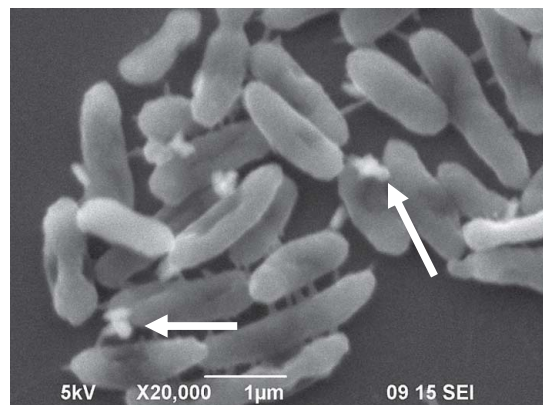


図10. *Stenotrophomonas maltophilia* TI-1株の電子顕微鏡写真。走査型電子顕微鏡を用いて、テルル酸ナトリウムを添加したTSB培地で培養したTI-1株を観察した。テルル酸を還元することにより元素態テルル粒子(図中矢印)を生成していることがEDX分析で確認された。

多岐にわたる作用を担う微生物が取得されている¹⁶⁾。また、急速に発展してきたバイオインフォマティクスを駆使し、世界中の微生物バンクや遺伝子バンクを検索すれば、有望なものが容易に見つけられよう。

8. おわりに

メタルバイオによる排水からのレアメタル回収プロセスを現実のものとするためには、今後解決しなければならない課題も少なからず残されている。最も重要な問題は、物理化学的反応に比べて反応速度が遅いこと、さらに、排水中にレアメタルと共存している有害物質により微生物触媒が阻害を受け不安定になりやすいことである。工業プロセスとしては致命的ともいえるこれらの制約は、活きた微生物を利用する以上は不可避であり、完全に取り去ることはできないが、高性能バイオリクターの開発や遺伝子操作/改変による微生物触媒の育種によって、かなりの程度は克服されていくのではないかと期待している。

高効率型バイオリクターの例としては、メンブレンバイオリクター (MBR) の利用やポリエチレングリコール等のゲルへの固定化により、微生物濃度を高く保つことがあげられる。また、センサー類と計算機シミュレーションを駆使した反応条件の適正制御を行うことによって、排水組成や負荷の変動に対応した微生物反応の安定化が図れるだろう。一方、有用なレアメタル代謝遺伝子をクローニングし、適正な宿主-ベクター系を利用して高発現させれば、触媒としての反応速度を向上させることができる。野生型の微生物は、金属精錬等の排水でみられる典型的な高塩濃度や低 pH 域では活性が大幅に低下してしまうが、好塩性菌や耐酸性菌を宿主として目的遺伝子を導入した組換え体を育種すれば、十分に機能することも考えられる。

このような研究開発によってメタルバイオがさらに発展し、レアメタルの循環回収に大いに貢献することを期待している。

謝 辞

ここで示した成果は部分的に、平成 22～24 年度文部科学省科学研究費補助金基盤研究 (B) (課題番号: 22310047) (池代表)、平成 19 年度地域新生コンソーシアム研究開発事業 (池代表)、平成 21 年度経済産業省産業技術研究開発委託費 (レアメタル抽出技術開発) (山下代表) によるものであることを記して、謝意を表す。また、研究に携わってくれた研究コンソーシアムのメンバー、学生諸氏に感謝する。

文 献

- 1) De Souza, M.P., A. Amini, M.A. Dojka, I.J. Pickering, S.C. Dawson, N.R. Pace, and N. Terry. 2001. Identification and characterization of bacteria in a selenium-contaminated hypersaline evaporation pond. *Appl. Environ. Microbiol.* 67: 3785–3794.
- 2) Doran, J.W. and M. Alexander. 1977. Microbial transformations of selenium. *Appl. Environ. Microbiol.* 33: 31–37.
- 3) Fleming, R.W. and M. Alexander. 1972. Dimethylselenide and dimethyltelluride formation by a strain of *Penicillium*. *Appl. Environ. Microbiol.* 24: 424–429.
- 4) Fujita, M., M. Ike, S. Nishimoto, K. Takahashi, and M. Kashiwa. 1997. Isolation and characterization of a novel selenate-reducing bacterium, *Bacillus* sp. SF-1. *J. Ferment. Bioeng.* 83: 517–522.
- 5) Haygarth, P.M. 1994. Global importance and global cycling of selenium, pp. 1–27. In W.T. Frankenberger, Jr. and S. Benson (eds.), *Selenium in the environment*. Marcel Dekker, Inc, New York, U.S.A.
- 6) Kagami, T., A. Fudemoto, N. Fujimoto, E. Notaguchi, M. Kanzaki, S. Soda, M. Yamashita, and M. Ike. 2011. Isolation and characterization of bacteria capable of reducing tellurium oxyanions to insoluble elemental tellurium. *Proceedings of ECO-MATES 2011*, 2: 163–164.
- 7) Kuroda, M., E. Notaguchi, A. Sato, M. Yoshioka, A. Hasegawa, T. Kagami, T. Narita, M. Yamashita, K. Sei, S. Soda, and M. Ike. 2011. Characterization of *Pseudomonas stutzeri* NT-I capable of removing soluble selenium from the aqueous phase under aerobic conditions. *J. Biosci. Bioeng.* 112: 259–264.
- 8) Losi, M.E. and W.T. Frankenberger, Jr. 1997. Reduction of selenium oxyanions by *Enterobacter cloacae* SLD1a-1: Isolation and growth of the bacterium and its expulsion of selenium particles. *Appl. Environ. Microbiol.* 63: 3079–3084.
- 9) Macy, J.M., T.A. Michel, and D.G. Kirsch. 1989. Selenate reduction by a *Pseudomonas* species: a new mode of anaerobic respiration. *FEMS Microbiol. Lett.* 61: 195–198.
- 10) Oremland, R.S., J.S. Blum, C.W. Culbertson, P.T. Visscher, L.G. Miller, P. Dowdle, and F.E. Strohmaier. 1994. Isolation, growth, and metabolism of an obligately anaerobic, selenate-respiring bacterium, strain SES-3. *Appl. Environ. Microbiol.* 60: 3011–3019.
- 11) Soudi, M.L., P.T.M. Ghazvini, K. Khajeh, and S. Gharavi. 2009. Bioprocessing of seleno-oxyanions and tellurite in a novel *Bacillus* sp. strain STG-83: A solution to removal of toxic oxyanions in presence of nitrate. *J. Hazard. Mater.* 165: 71–77.
- 12) Van Fleet-Stalder, V., H. Gurleyuk, R. Bachofen, and T.G. Chasteen. 1997. Effects of growth conditions on production of methyl selenides in cultures of *Rhodobacter sphaeroides*. *J. Ind. Microbiol. Biotechnol.* 19: 98–103.
- 13) Winkel, L., J. Feldmann, and A.A. Meharg. 2010. Quantitative and Qualitative Trapping of Volatile Methylated Selenium Species Entrained through Nitric Acid. *Environ. Sci. Technol.* 44: 382–387.
- 14) 池 道彦. 2009. メタルバイオテクノロジーの可能性: 新“元素戦略”へ向けて, pp. 7–14. 吉田和哉, 植田充美, 池道彦編, メタルバイオテクノロジーによる環境保全と資源回収. シーエムシー出版.
- 15) 久保田正亜. 1997. 忍び寄る日本のレアメタル汚染 製錬の過程で土壌中に, 製品の利用・廃棄時も注意が必要. *化学と生物.* 35: 826–827.
- 16) 吉田和哉, 植田充美, 池 道彦編, メタルバイオテクノロジーによる環境保全と資源回収. シーエムシー出版.