

藻類を活用した福島汚染水処理システムを考える ～放射性物質の海洋放出から海を守るために～

学校法人福島成蹊学園 福島成蹊高等学校 チームSC

1. はじめに

この研究は、10年前の震災後に先輩たちがはじめた微生物調査が発端である。当時は屋外活動が制限されており、私たちの周りで何が起きているのかわからず不安だった。特に、放射性物質の問題が連日報道され、放射線の影響を考えない日はなかった。そのなかで放射線の影響を受けやすいのは微生物ではないかと先輩たちは考え、微生物調査を学校近くの茶屋沼にて開始した。

調査を開始し、茶屋沼には四季を通して様々な微生物がいることがわかり、採集した微生物のなかで先輩が着目したのが藻類の一つであるミカヅキモ (*Closterium moniliferum* 図1) である。ミカヅキモの文献でミカヅキモの末端空胞部分でバリウムイオンを分離固定する仕組みがあり、同じアルカリ土類金属であるストロンチウムイオンも分離固定するという記述を見つけ、ミカヅキモを利用して汚染水中のストロンチウムイオンを回収できるのではと考え、研究を開始した。次に着目したのが、採集したシャジクモ (*Chara braunii* 図2) である。シャジクモについて文献を調べたところ、シャジクモの細胞壁外にカルシウムイオンを炭酸カルシウムとして吸着させる性質があることを知り、同じアルカリ土類金属であるストロンチウムイオンも吸着させるのではないかと考え、研究を開始した。最後に着目したのが、採集したイシクラゲ (*Nostoc commune* 図3) である。イシクラゲの文献調査では、イシクラゲが細胞および細胞外基質の両方でストロンチウムおよびセシウムを吸収・蓄積していることを知り、自重の30倍の質量の水を吸収することのできるイシクラゲを用いて現在も問題となっている原発敷地内に残る汚染水処理に活用できないかと考え、研究を開始した。

現在、10年前の福島第一原子力発電所の事故により、放射性物質を含む大量の汚染水が発生し、ALPS等の浄化設備を用いて処理しているが、トリチウムは取り除くことが出来ず、残されたトリチウムを含むALPS



図1 ミカヷキモ
(*Closterium moniliferum*)



図2 シャジクモ
(*Chara braunii*)



図3 イシクラゲ
(*Nostoc commune*)

処理水が敷地内のタンク (図4) に貯蔵されている。現在も、1日に約140トンもの汚染水が増え続け、それに伴い処理水も増え続け、敷地内のタンクも1061基存在している。政府により、2021年4月13日に正式に海洋放出による汚染水の処理が決定された。決定に至るまでの多核種除去設備等処理水の取扱いに関する小委員会では、海洋放出と水蒸気放出が、前例があるとの理由で現実的とされ、実績より海洋放出の方が確実に実施可能とされた。また、水蒸気放出による風評被害

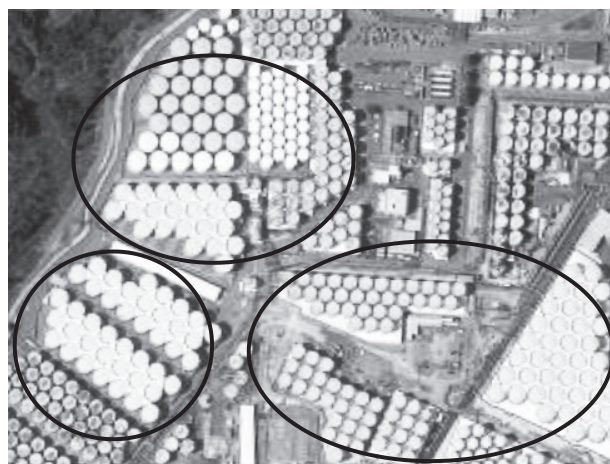


図4 処理水タンクの様子 (Google earth)

は海洋放出より風評被害が幅広いと結論づけられている。海洋放出については、地元の漁業関係者を中心に海洋放出による風評被害を懸念し、反対の声が上がっている。2021年1月3日の朝日新聞による海洋放出決定前の世論調査においても処理水の海洋放出については、反対55%、賛成32%であった。近隣諸国においても韓国、中国は反対の立場を表明している。

そこで私たちは、現在、原発敷地内にあるタンク内の処理水を藻類の力で減少させたいと考えている。先輩方の研究で、シャジクモがストロンチウムを吸着する現象を観察した。そこで、より効率の良い吸着条件の解明を目指し研究に取り組んだ。また、ミカヅキモについては、先輩方の研究にて、Srの吸収において赤色LEDが有効であることが明らかとなったので、Srの吸収に光合成が関係しているのか調べた。イシクラゲについては、吸収した水の挙動を調べようと、容器にイシクラゲを入れ、水を加えてその質量変化を測定し、容器内に目視できる水が減少するとともに全体の質量が減少していくことを確認した。トリチウム水の処理にこの現象を応用できないかと考え、この一日当たりの減少量を増やす条件の解明に取り組んだ。

2. 本研究の目的

本研究では、藻類を活用して敷地内のタンクに貯蔵される処理水からALPS等の浄化設備でも回収できなかった放射性物質を回収し、残ったトリチウム水を減少させるシステムを考案するために、3種類の藻類による溶液中の Sr^{2+} の吸着・吸収、溶液全体の重量の減少について検証した。まず、シャジクモでは、光の波長や光量子量を変化させ、Srを細胞壁外に吸着させる条件について調べた。次に、ミカヅキモでは光合成阻害剤を用いて Sr^{2+} の吸収と光合成の関係について調べた。最後に、イシクラゲでは、トリチウム水の処理を想定して、イシクラゲに水を加え、イシクラゲ、水を含む全体の質量の減少量と加えるイシクラゲの乾燥重量の関係を調べた。

3. 本研究

(1) シャジクモを活用したSrの吸着

【先行研究】

文献のシャジクモのCaの吸着現象をもとに、Srを吸着する際のメカニズム(図5)を予想した。まず、シャジクモは HCO_3^- を利用して光合成を行い、特定の場所

から OH^- を排出している($\text{HCO}_3^- \rightarrow \text{CO}_2 + \text{OH}^-$)。これにより、シャジクモ周辺が $\text{pH}7 \sim 9$ と塩基性になり、細胞表面にてアルカリバンドが形成される。このアルカリバンド内で、環境中の① Sr^{2+} と HCO_3^- 、又は② Sr^{2+} と CO_2 が結合し、細胞壁外に SrCO_3 が吸着すると考えた(① $\text{Sr}^{2+} + \text{HCO}_3^- \rightarrow \text{SrCO}_3 + \text{H}^+$) (② $\text{CO}_2 + \text{Sr}^{2+} + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{SrCO}_3 + 2\text{H}^+$)。

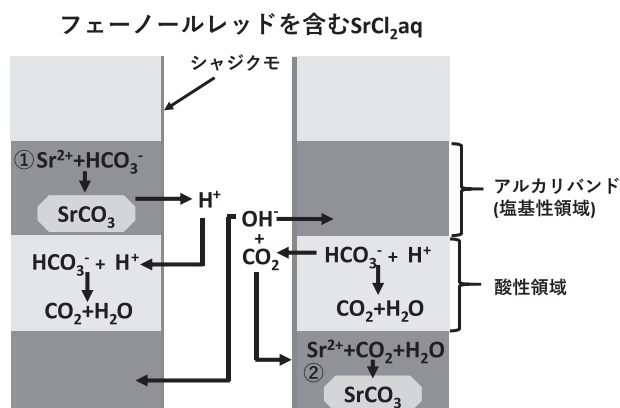


図5 Srを吸着するメカニズム

そこで、文献に記載されているアルカリバンドを観察した(図6)。その結果、アルカリバンドを形成しやすいのがシャジクモの先端部分であること、赤色、白色、青色、緑色のLEDを用いて観察を行ったところ、赤色が最もアルカリバンドが形成されやすいことが確認された。



図6 シャジクモのアルカリバンド(赤色LEDを照射)

(1) -I. 赤色LEDを用いたシャジクモ表面に吸着したアルカリ土類金属を含む結晶の観察

文献によると、光合成阻害剤を加えた寒天培地(CaCl_2aq 10mM, NaHCO_3aq 0.2 mM, アガロース0.5%)にシャジクモを移して観察したところ、炭酸カルシウムの結晶が形成されにくいとの記述があっ

た。そこで、光合成を活発にさせることにより、吸着量が増加すると予想し、赤色LEDを用いて、前記の寒天培地とCaCl₂aq (10mM)をSrCl₂aq (10mM)に替えた寒天培地を作製し、観察を行った。

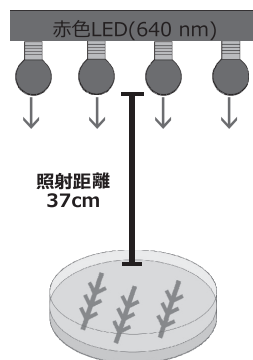


図7 照射波長と照射距離

【実験方法】

- ① 100mLのスクリー管に精製水87mL投入し、スターラーを入れて攪拌を行った。
- ② 攪拌をしながらアガロスを0.5g投入した。
- ③ ラップをかけ、電子レンジで沸騰をするまで加熱した。(600wで約1分40秒)
- ④ ③を再度攪拌し、フェノールレッド (10mM) を10mL、NaHCO₃ (0.2mM) を1mLを加えた。
- ⑤ ④にCaCl₂aq (10mM)、SrCl₂aq (10mM) を添加した。
- ⑥ シャーレに③を加え、固まった後に先端から5cmに切ったシャジクモを埋め込んだ。
- ⑦ 赤色LEDを37cmの距離で明期：暗期12時間：12時間で照射し (図7)、実体顕微鏡を用いて毎日、同じ部分の観察を行った。

【結果・考察】

光学顕微鏡での観察の結果、CaCl₂aq (10mM) の寒天培地に埋め込んだシャジクモからは、7日目に結晶が観察された (図8)。また、18日目に分枝が集まっている部分に多くの結晶が観察された (図9)。さらに、28日目の細胞状態は、良好であった (図10)。

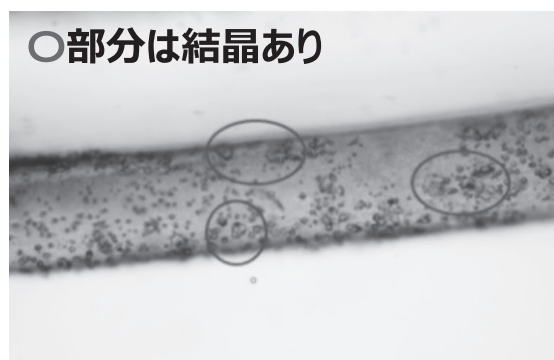


図8 7日目の状態

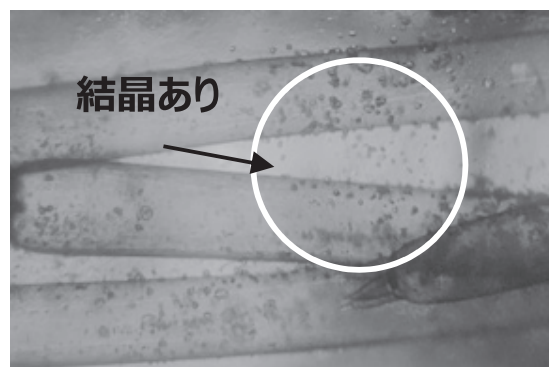


図9 18日目の状態

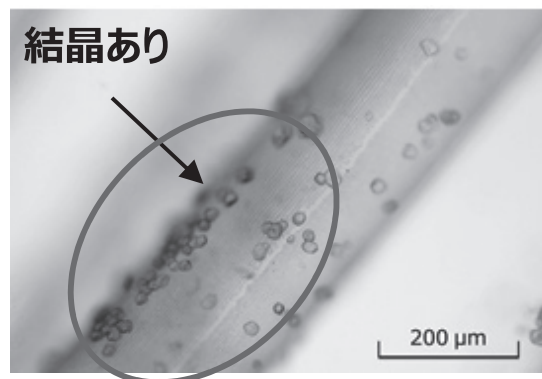


図10 28日目の状態

SrCl₂aq (10mM) の寒天培地に埋め込んだシャジクモからは、6日目に結晶が確認 (図11) され、16日目になると6日目に観察された結晶が大きくなっていることを確認した (図12)。さらに、分枝が集まっている部分に結晶が多く観察された。その後も継続して観察すると、SrCl₂aq (10mM) のシャジクモは26日目には図13のような細胞状態の悪化が見られた (図13)。

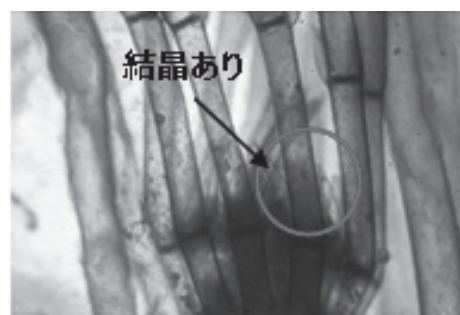


図11 6日目の状態

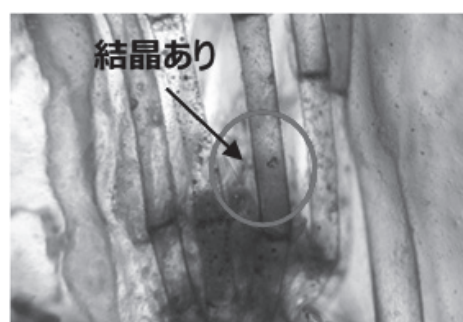


図12 16日目の状態

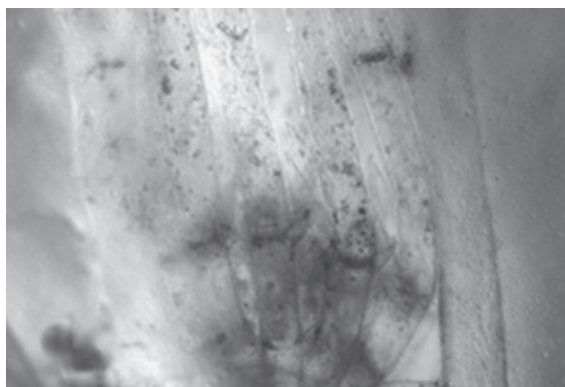


図13 26日目の状態

赤色LED照射することで光合成が活発に起こり、仮説の通り吸着量の増加が観察された。また、先端部分の分枝の集まっている部分に多くの結晶が観察されていることから、先端部分でアルカリバンドが形成されやすいこととも関係していることが明らかとなった。CaとSrによる結晶の形成については、4週間毎日観察した結果、Caのシャジクモは何層も重なるような形で結晶が形成されていくのに対し、SrのシャジクモはCaのような層状のような結晶は観察されず、観察された結晶が徐々に大きくなった。Caのシャジクモは4週間細胞状態が良好であったが、Srのシャジクモは2週間前後から細胞の一部で劣化が始まり、4週間後は細胞状態がさらに悪化していた。Srがシャジクモに対して有害な物質である可能性が示された。

(1) -II. Caを含む結晶を吸着させたシャジクモをSrCl₂aqに浸漬後の細胞表面の観察

シャジクモの細胞表面にCaを吸着させ、吸着させたCaCO₃を核にして溶液中のSrを除去できるのか調べるために、CaCO₃を吸着させたシャジクモをSrCl₂aqに加え、さらに細胞表面にSrを含む結晶が生成されていくのか観察した。

【実験方法】

- ① CaCl₂aq (10mM) + NaHCO₃aq (①2.0mM, ②5.0mM) を含む寒天培地にシャジクモの一番先端の節を加え、1週間観察し、結晶の有無を確認した。
- ② 結晶を吸着したシャジクモを寒天ごと切り出した。
- ③ ②のシャジクモをSrCl₂aq (10mM) + NaHCO₃aq (①2.0mM, ②5.0mM) に加えた。
- ④ 赤色LEDを照射距離10cm(光量子量16μmolm⁻²s⁻¹)で明期:暗期 12時間:12時間で照射し、実体顕微鏡、光学顕微鏡を用いて観察を行った。

【結果・考察】

どちらのサンプルでも、投入時にできていたCaの結晶が大きくなることは確認されなかった (① 図14, 15, 16) (② 図17, 18, 19)。

- ① SrCl₂aq (10mM) + NaHCO₃aq (2.0mM) に加えたサンプル

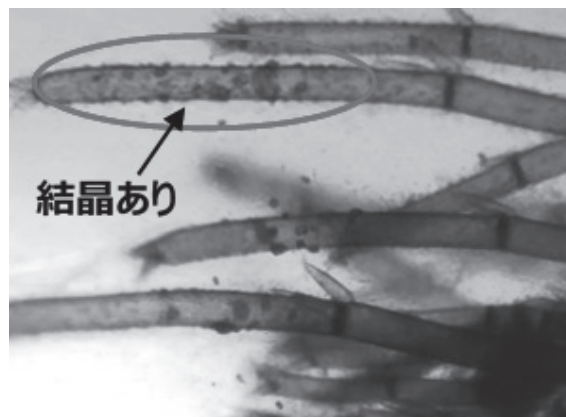


図14 0日目の細胞状態

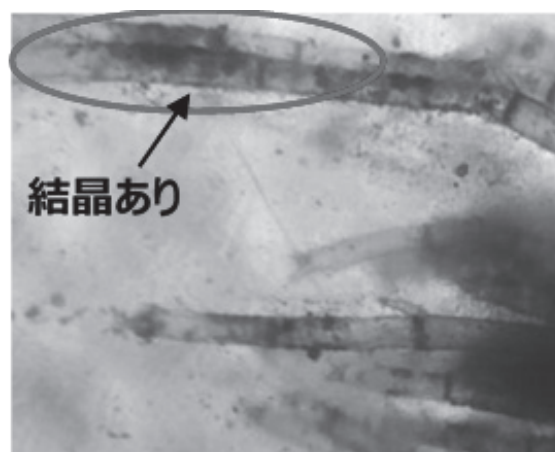


図15 11日目の細胞状態

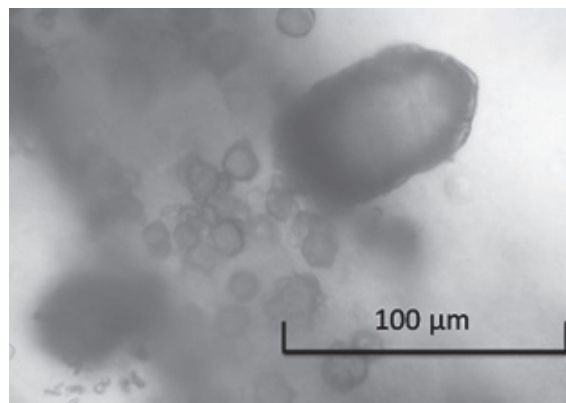


図16 16日目の結晶の様子

② SrCl_2aq (10mM) + NaHCO_3aq (5.0mM) に加えたサンプル

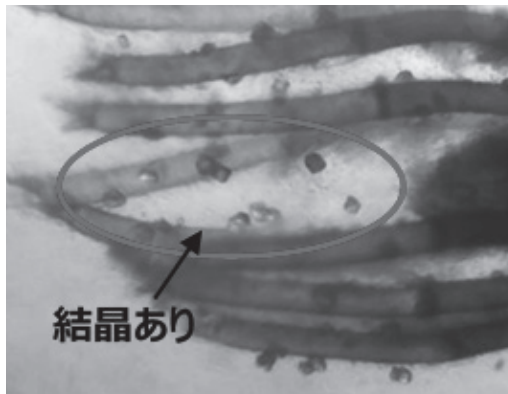


図17 0日目の細胞状態

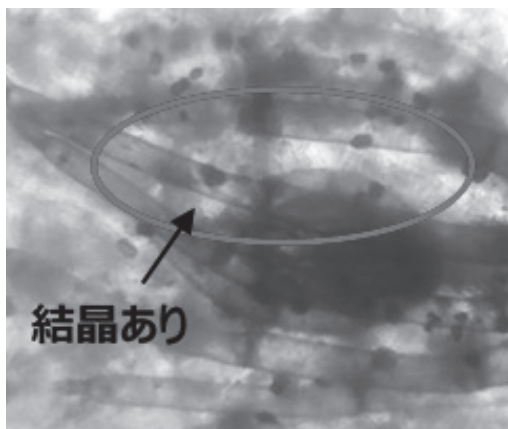


図18 7日目の細胞状態

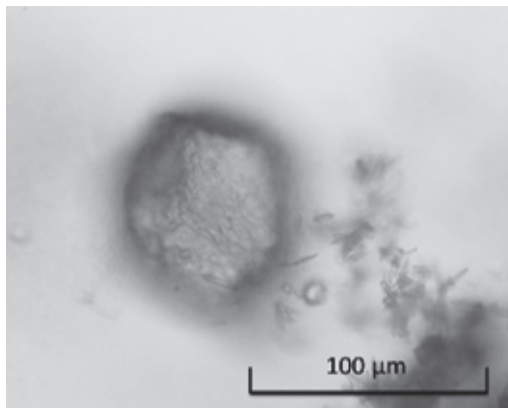


図19 16日目の結晶の様子

このことから、Caを含む結晶を核にしてSrを含む結晶が生成されないことが明らかとなった。また、観察していた SrCl_2aq (10mM) + NaHCO_3aq (5.0mM) に加えたサンプルの中に、図20のような寒天培地中に未成長の部分を持つシャジクモがあり、日数が経つにつれ図21のような成長が見られた。結晶の有無についても調べたが、結晶を確認することはできなかった。この部分はさらに成長し、寒天培地の外まで成長した。そ

の部分を観察すると6日目に細胞表面に結晶が観察された(図22、23)。寒天培地内で結晶が観察されず、また、寒天培地外に成長してすぐ結晶が観察され、結晶が観察されるまでの時間が最も短かったことから、この原因について考えた。成長するまでは CaCl_2aq (10mM) + NaHCO_3aq (5.0mM) の寒天培地中にこの部分はあり、寒天培地を突き破って出てきた環境は、寒天培地からの距離が近く、寒天培地の影響と寒天培地の外を満たしている SrCl_2aq (10mM) + NaHCO_3aq (5.0mM) の影響を直接受ける環境にあることが結晶を生成させたのではないかと考えた。

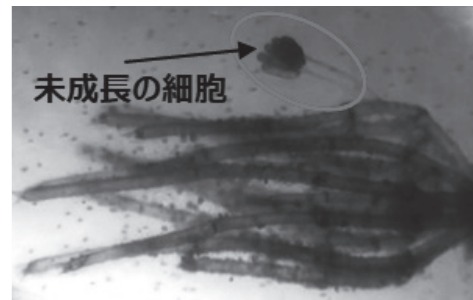


図20 0日目の細胞状態

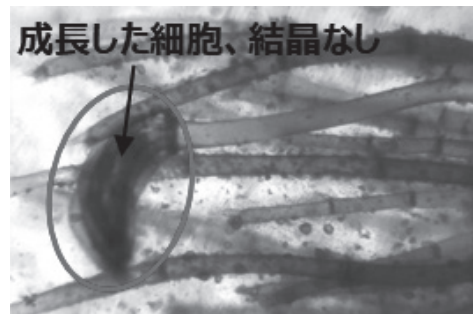


図21 2日目の細胞状態

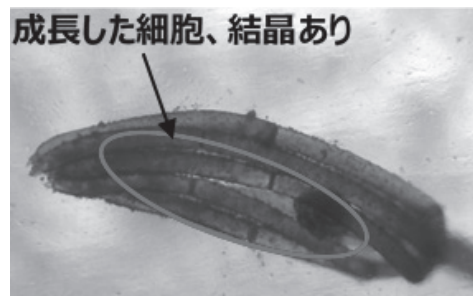


図22 6日目の細胞状態

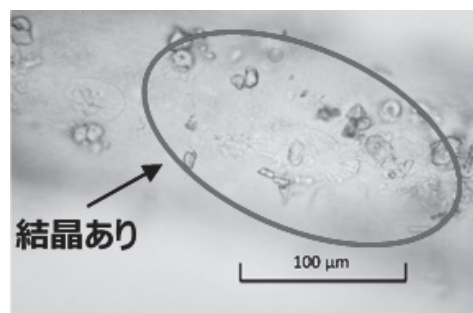


図23 16日目の結晶の様子

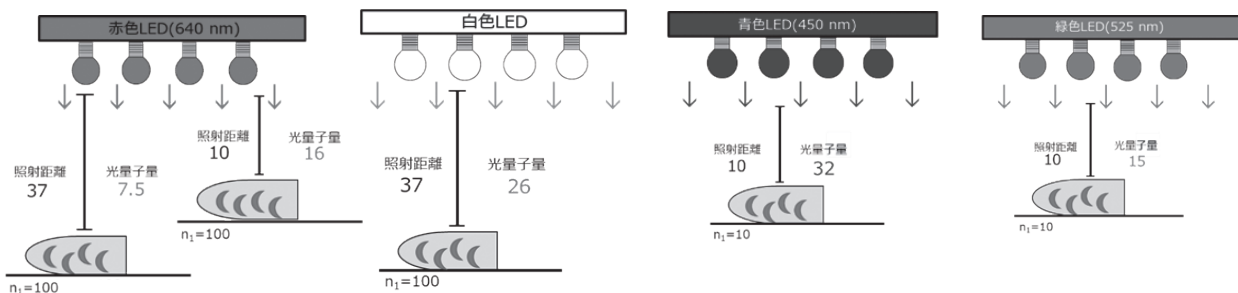


図24 照射したLEDの波長と、その照射距離 (cm)、光量子量 ($\mu \cdot \text{molm}^{-2}\text{s}^{-1}$)

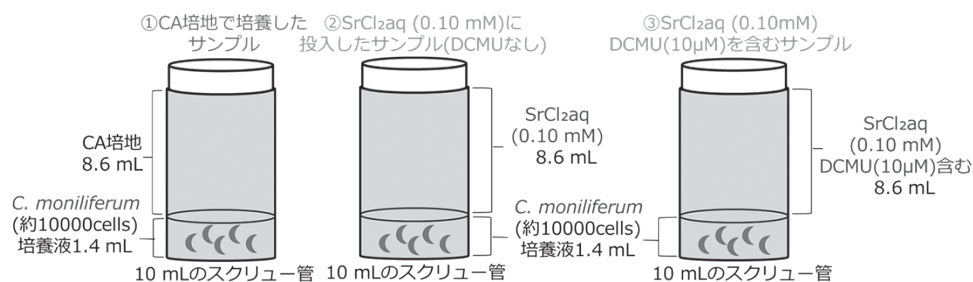


図25 実験に使用したサンプルとコントロールに投入する条件

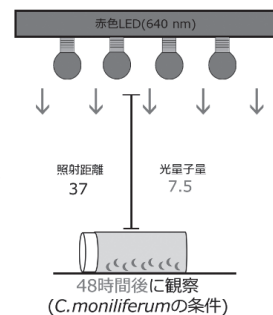


図26 実験条件
照射距離 (cm) と
光量子量 ($\mu \cdot \text{molm}^{-2}\text{s}^{-1}$)

(2) ミカヅキモを活用した Sr^{2+} 吸収

本研究では、ミカヅキモが Sr^{2+} を効率よく吸収する方法や条件を明らかにするために、高分解能走査型電子顕微鏡 (SEM-EDX) による光合成阻害剤 (DCMU) を用いたミカヅキモの観察を行った。

【先行研究】

先輩方は、ミカヅキモを用いたLEDの波長の違いによる Sr^{2+} 吸収量の比較を行い、赤色 (640nm)、白色、青色 (450nm)、緑色 (525nm) の4色のLEDの照射距離を変え、どの波長で最もSrを吸収するのか調べた (図24)。

その結果、赤色で吸収量が最大となった。そのため、多くの Sr^{2+} 吸収には赤色の波長が関係していることが明らかとなった。

(2) -I. 高分解能走査型電子顕微鏡 (SEM-EDX) による光合成阻害剤 (DCMU) を用いたミカヅキモの観察

ミカヅキモの効率の良い Sr^{2+} 吸収には光合成が関係するのか検証するために、光合成阻害剤 (DCMU) を用いて作製したサンプル (図25) を福島大学に依頼し、高分解能走査型電子顕微鏡 (SEM-EDX) によるミカヅキモの観察を行った。また、高分解能走査型電

子顕微鏡 (SEM-EDX) での観察を行う前に、光学顕微鏡を用いてミカヅキモの細胞の観察を行い、ヨウ素溶液に染色されない顆粒が確認されるのか検証した。

【実験条件】

先行研究の結果を踏まえ、 SrCl_2aq にミカヅキモを加え、赤色LED (640 nm、照射距離 37cm、光量子量 $7.5\mu \cdot \text{molm}^{-2}\text{s}^{-1}$ 、 $20^\circ\text{C} \pm 3^\circ\text{C}$ 、明: 暗12時間: 12時間) を照射し、48時間静置した (図26)。

【実験方法】

- ① ミカヅキモを SrCl_2aq (0.10mM) に加え、48時間静置した。
- ② メンブランフィルターでミカヅキモをろ過し、精製水で数回洗った。
- ③ ②のフィルターを時計皿にのせ、シャーレの中に入れ乾燥機 ($40 \sim 50^\circ\text{C}$) で十分乾燥させた。
- ④ 白金でコーティングし、高分解能走査型電子顕微鏡 (SEM-EDX) で観察した。

【観察結果】

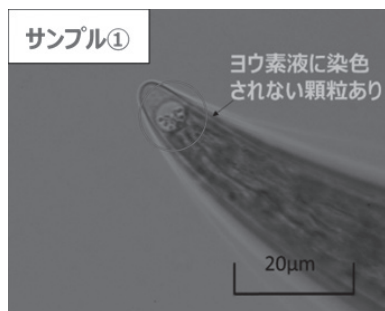


図27 サンプル①の光学顕微鏡写真

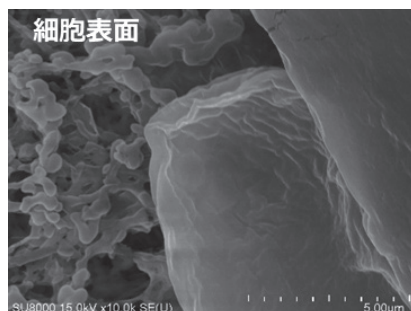


図28 サンプル①の電子顕微鏡写真

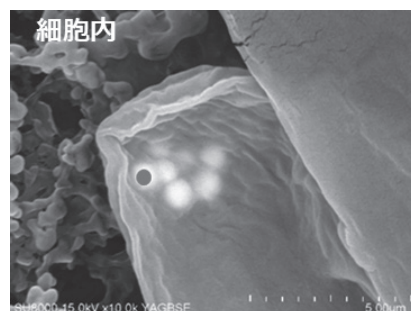


図29 サンプル①の電子顕微鏡写真

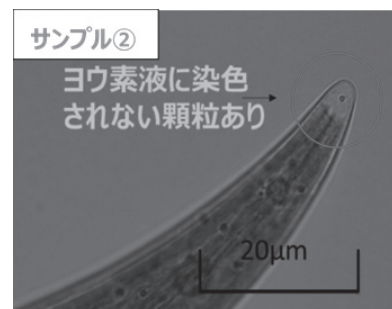


図30 サンプル②の光学顕微鏡写真

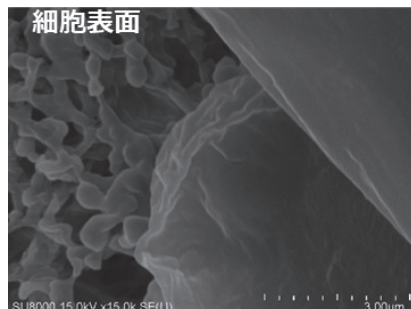


図31 サンプル②の電子顕微鏡写真

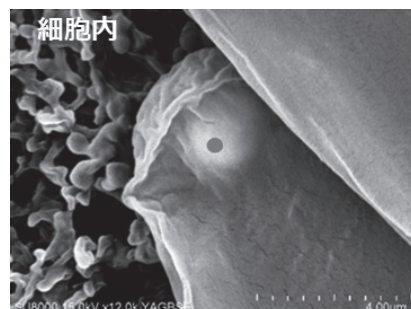


図32 サンプル②の電子顕微鏡写真

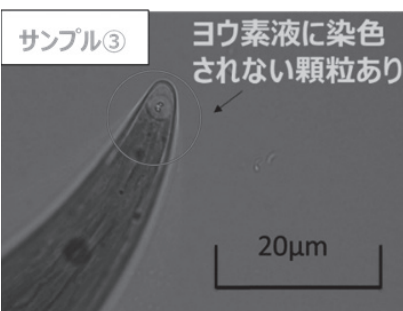


図33 サンプル③の光学顕微鏡写真

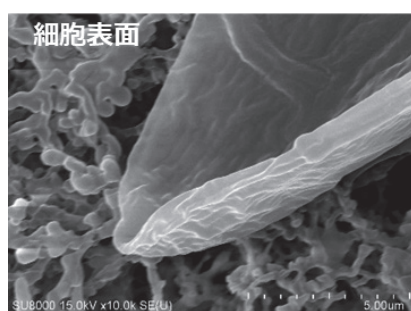


図34 サンプル③の電子顕微鏡写真

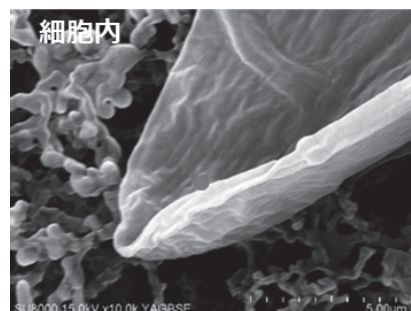


図35 サンプル③の電子顕微鏡写真

観察の結果、サンプル①（図27～29）のミカヅキモからは末端空胞部分でBaが確認され、サンプル②（図30～32）のミカヅキモとサンプル③（図33～35）のミカヅキモからは、末端空胞部分でSrが確認された。また、サンプル②のミカヅキモ（図32）よりサンプル③のミカヅキモ（図35）の方が確認されたSrの割合が少なく、Baの割合については大差はなかった（図36）。これは、光合成阻害剤（DCMU）の影響だと予想される。また、光合成阻害剤（DCMU）を添加したサンプルのミカヅキモから確認されたSrの割合が少なかったため、 Sr^{2+} の吸収には光合成が関係していることが明らかとなった。

(3) イシクラゲを活用した容器内の水の減少条件の検証

(3) -I. 予備実験

イシクラゲは乾燥状態であれば自重に対して約30倍の水を吸収する性質を持つ。この性質を利用して、

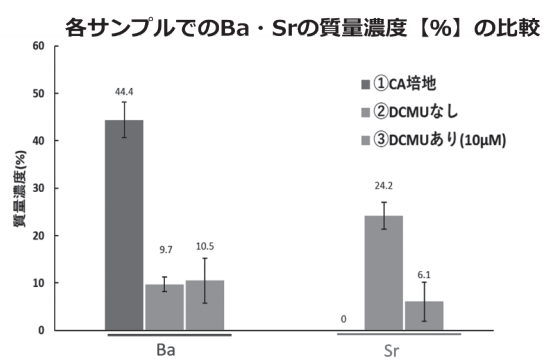


図36 各サンプルでのBa・Srの質量濃度【％】の比較

水30gにイシクラゲ（乾燥状態）1.0gを加えるサンプルと加えないサンプルを用意し、自然光のあたる場所に放置して、毎日イシクラゲ、水を含む容器全体の質量を測定し、水の減少していく様子を観察した。容器内の水の質量については、前日の全体の質量から測定した全体の質量の差とした。また、赤色LEDと青色LEDを連続照射し、前記同様に観察した。

【結果・考察】

イシクラゲ有りのサンプルはイシクラゲ無しのサンプルより4日程早く水の質量が0gとなり、その後、重量変化は見られなくなった（図37）。この結果より、イシクラゲを用いれば、原発敷地内にあるタンク内の処理水を減少させることができるのではと考えた。さらに、LEDの連続照射実験により、青色LEDが有効であることが明らかとなった。

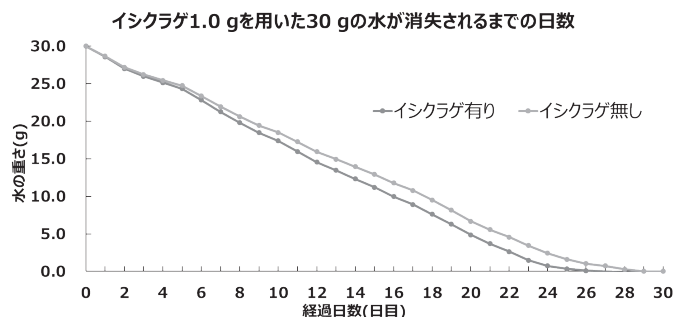


図37 イシクラゲの有無による日ごとの水の質量

(3) -Ⅱ. イシクラゲの乾燥重量と容器全体の質量

(イシクラゲ、水含む)の累計減少量の変化

予備実験より、イシクラゲに水を加えて容器全体の質量変化を調べると、青色LEDを連続照射することで容器全体の質量が早く減少し、質量が一定となることが明らかとなった。そこで、この容器全体の質量の一日当たりの減少量をさらに増やすための条件を検討することにした。検討するに当たり、予備実験の際に、イシクラゲの一部が浮いてきたりしたサンプルがあったため、最初に、ステンレスの網をイシクラゲの上に置き、イシクラゲを完全に沈めたサンプルとステンレスの網を置かないサンプルの容器全体の質量の累計減少量の変化を調べた。また、加えるイシクラゲの乾燥重量を増やせば、一日当たりの減少量が増えると予想し、加えるイシクラゲの乾燥重量を0.1g、0.2g、0.3g、0.4g、0.5gと変化させ、イシクラゲを水に完全に沈め、容器全体の質量変化を調べ、イシクラゲの乾燥重量と容器全体の質量の累計減少量の変化を調べた。

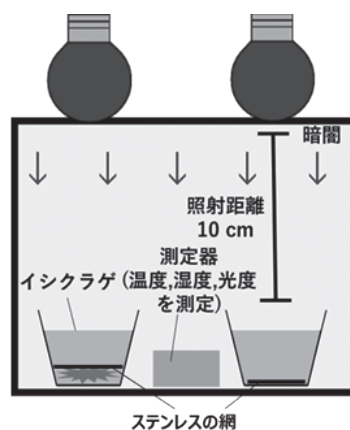


図38 (3) -Ⅱの実験条件

【実験方法】

- ① 容器に乾燥状態のイシクラゲ0.1gと精製水30gを加え、水中に沈めるサンプルにはステンレスの網をイシクラゲの上に置いた。
- ② 図38のように青色LEDを照射距離10cmで連続照射し、7日間、毎日容器全体の質量を測定した。
- ③ 容器に乾燥状態のイシクラゲを0.1g、0.2g、0.3g、0.4g、0.5gを測り取り、精製水をそれぞれ30g加え、ステンレスの網をイシクラゲの上に置いた。
- ④ 図38のように青色LEDを照射距離10cmで連続照射し、5日間、毎日容器全体の質量を測定した。

【結果・考察】

図39より、イシクラゲ有りと無しのサンプルで比較すると、イシクラゲ有りのサンプルがすべて一日当たりの減少量がイシクラゲ無しより多かった。また、イシクラゲを完全に沈めたサンプルと一部浮いていたサンプルとの容器全体の質量の累計減少量を比較すると、グラフのようにほぼ一致し、7日目の値についても20.4g、20.2gとほぼ一致していた。このことから、イシクラゲが水中内、一部水中外にあっても質量の減少量がほとんど変化しないことが明らかとなった。

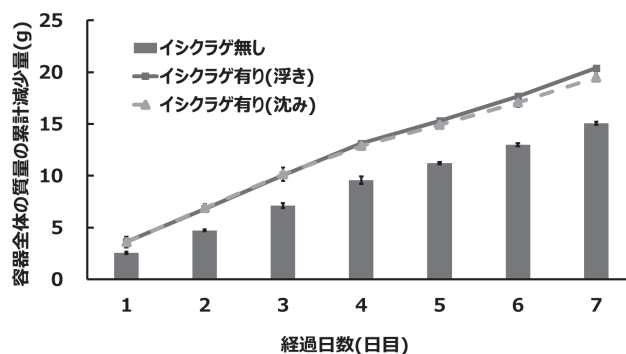


図39 日ごとの容器全体の質量の累計減少量

また、図40の5日目の結果より、イシクラゲの乾燥重量が0.2gのサンプルの容器全体の質量の累計減少量の値が最も大きく、18.5gであった。それに対して最も値が小さかったのは、イシクラゲの乾燥重量が0.1gのサンプルで16.2gであった。予想していた乾燥重量が大きいサンプルほど減少量が多くなると考えていたが、残りのサンプルについても5日目の累計減少量を示すと、乾燥重量0.3g、0.4g、0.5gの順に17.7g、16.8g、16.8gとなった。これは、0.3g以上のサンプルではイシクラゲが水を吸収して広がり、青色LEDを上からのみ照射していたので、容器の下にあるイシクラゲには十分光が当たらず、青色LEDの効果が十分得られなかったためと考えられる。

4. 展望

私たちは、先輩たちから引き継いできた研究を元に、現在、原発敷地内に大量にあるトリチウムを含むALPS処理水を、私たちの考える藻類を活用した汚染水処理システム（図41）で減少させたいと考えている。

原発事故前の福島第一原子力発電所では、トリチウムを含む処理水を海洋放出（年間約2.2兆Bq）、大気放出（年間約1.5兆Bq）で処理してきた実績がある。このことから、私たちも科学的に安全な濃度に希釈した処理水に

ついて、前記の処理をすることは現状を考えると理解できる。一方で、地元福島県民としては、海洋放出によるさらなる風評被害を考えると政府の決めた処理水の海洋放出を容認できない。私たちが現在考えているシステムにおいてもトリチウムだけを大気放出したとしても、風評被害を避けては通れない。トリチウムの半減期が12.3年なので十分減衰させれば、トリチウムについては安心して処分できる。「トリチウムの分離技術で今すぐに実現できるものはない」との報告もあるが、海洋放出による汚染水の処理はもう少し慎重に検討する必要がある。私たちが10年間代々先輩方から引き継いで行ってきた研究を継続し、さらに良い技術が考案できるように取り組みたい。

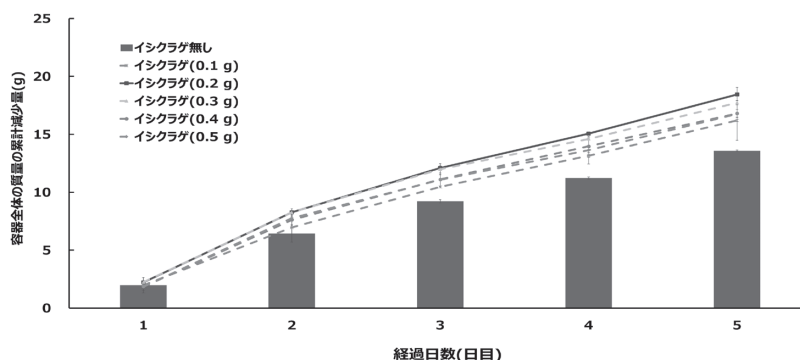


図40 イシクラゲの乾燥重量と容器全体の質量の累計減少量

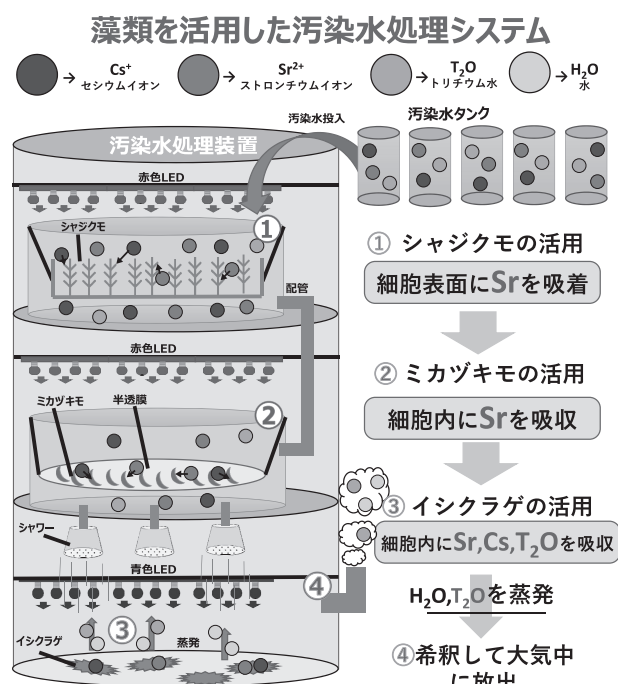


図41 藻類を活用した汚染水処理システム

謝辞

本研究は、高分解能走査型電子顕微鏡 (SEM-EDX) を使用し、観察指導をして頂いた福島大学の難波謙二先生、高瀬つぎ子先生、ミカヅキモの採取方法、培養方法、光学顕微鏡による観察方法を教えて頂いた島根大学の太谷修司先生、Srの定量に関するアドバイス、実験器具のご提供頂いた福島大学の杉森大助先生、大橋弘範先生、光合成阻害剤 (DCMU) を用いた実験のアドバイス等を頂いた東京薬科大学の都筑幹夫先生など多くの方のご協力があったて本研究を遂行いたしました。これらのご支援、ご指導に対してこの場を借りて厚く御礼申し上げます。

学校法人福島成蹊学園
福島成蹊高等学校 チームSC