

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 3 年 2 月 8 日現在

機関番号：30108

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2017～2018

課題番号：17K14522

研究課題名(和文) 微生物または酵素反応を導入した自律浮沈機能の構築と新規吸着剤の開発

研究課題名(英文) Development of the self-migration system introducing microorganism or enzyme catalysis, and application to collectable adsorbent on the surface of water after adsorption.

研究代表者

三原 義広 (Mihara, Yoshihiro)

北海道科学大学・薬学部・講師

研究者番号：90733949

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 1,400,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、生体活動により気体を生成する微生物と、微生物の資化物質を含む自律浮沈型のゲルビーズを開発した。このゲルビーズは、水中に投与されると一旦沈降するものの、暫くするとゲルビーズ内の微生物の生体活動の過程により生成する気体が浮きとして作用することで、液面に浮上する。一方、液面付近は、水底と比べると水圧が小さいため、ゲルビーズが液面に浮上するにつれて、ゲルビーズ内の気体はゲルビーズ外に放出される。この結果、浮きを失ったゲルビーズは自重により、再度沈降する。さらにゲルビーズは水中で浮沈を繰り返し、微生物の資化により資化物質が消費されて水よりも比重が小さくなると液面に浮上し、その後回収される。

研究成果の学術的意義や社会的意義

近年、環境浄化(例えば、水質浄化)を目的として、環境汚染物質を吸着除去可能な吸着剤が使用されているほか、環境洗浄用途以外のその他の用途への粒子の応用が求められている。開発したゲルビーズは二酸化炭素の蓄積と消費を繰り返すことで、吸着剤が生き物のように水中を上下に行き来する。取水や攪拌が困難な水域や大型タンクなどに蓄えられた汚染物質を吸着しながら動き回り、最期は吸着剤が水面に浮上する回収システムを構築することができた。新奇な挙動を利用して世界各地で課題となっている水質汚染物質の除去や薬物の集中投与を目指すことができる。

研究成果の概要(英文)：For various pollutants having a different specific gravity, the adsorbent having a similar specific gravity to the target pollutant is necessary to achieve enough contact time. The purpose of this work is to introduce a repeated-vertical migration system to the adsorbent for waste water treatment. The system can be applied for the treatment of plenty amount of waste water which cannot be stirred. The adsorbent was prepared by using the alginate solution containing both of glucose and yeast. The alginate solution was added dropwisely into the solution of calcium chloride. The repetition rate of floating and sinking was controlled with the amount of glucose. The gas bubbles of carbon dioxide produced from the reaction of glucose with yeast during the fermentation process acted as a float.

研究分野：環境化学

キーワード：吸着剤 水質浄化

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

近年、環境浄化(例えば、水質浄化)を目的として、環境汚染物質を吸着除去可能な吸着剤が使用されている。たとえば、原油の比重は水よりも小さいため水面上に浮いている。一方、ニトロベンゼンの比重は水よりも大きく水底に沈降する。 Pb^{2+} 、 Cd^{2+} 、 Cs^{+} といった金属イオンの多くは水溶性であり、水中で均一に存在している。異なる比重をもつ様々な汚染物質を効率よく吸着させるためには吸着剤と汚染物質の十分な接触時間を確保する必要があり、汚染物質と同程度の比重を持つことが吸着剤に求められる。どんなに優れた吸着能力があるとしても、汚染物質を吸着した後、吸着剤を回収できなければ意味がない。吸着剤の化学的、物理的な特性を制御することで、回収操作の容易さを目的とした吸着剤の研究はすでいくつか報告されている。たとえば、カーボンナノチューブや DNA などの吸着剤をアルギン酸ゲルに内包することによって、微細な吸着剤の取り扱いの簡便化を目指した研究が行われている。しかし、従来の環境修復材料分野で用いる吸着剤は吸着特性や汚染物質の吸着能力について研究されたものが多く、汚染物質を除去する際にそれらが拡散しない対策や、攪拌ができない条件も想定しなければならなかった。マグネタイトを用いる吸着剤の磁性分離や、ドラックデリバリーシステムやナノバブルを用いる浮選分離による汚染物質の回収を目指した研究例も、実環境での材料の回収能力や汚染物質のキャリアーとなる薬剤やガスの持続的な供給が難しい。

研究代表者は、吸着剤全体の比重を制御することで水底または水中に存在する汚染物質との接触時間を確保し、最後に水面上に浮上する吸着剤の開発を試みてきた。そのプロトタイプとして、多糖類ゲルのアルギン酸ゲルビーズの中に「重り」と「浮き」の両方を導入し、これらの量的関係を調節することで、水底で一定時間滞留し、その後浮上する吸着剤の基本設計を検討してきた。この吸着剤は「重り」として炭酸カルシウムがアルギン酸ゲルビーズに内包されている。炭酸カルシウムが水に溶解することでゲルビーズの内部に炭酸ガスが蓄積する。吸着能を有するアルギン酸ゲルビーズを水底に移行させ(ビーズ内に導入した炭酸カルシウムにより比重を大きくする)吸着後、ビーズ内に内包された炭酸ガスの浮力によって水面上に浮上させることにより、水底(湖底や海底等)に沈殿する汚染物質を効果的に除去し、汚染物質の水面上での回収できる可能性を見出した。しかし、上述したシステムでは1度だけの浮沈に限られる。そこで、マトリックス形成材料(母材)の中に、生体活動により気体や油脂を生成する微生物や微小生物と、それらの資化物質を導入することで、水中での自律浮沈が可能な材料および自律浮沈方法を考案し、吸着剤の比重と浮力を制御することで、回収操作の容易さを目指した吸着剤を開発することとなった。

2. 研究の目的

本研究では、アルギン酸ゲルビーズ内部での炭酸ガスの蓄積過程の様子やゲル表面上の炭酸ガスの消失過程の様子を顕微鏡の観察から考察することを目的とした。アルギン酸ゲルビーズに、イーストとグルコースからなる発酵システムを導入し、発酵で発生する二酸化炭素の気泡を浮きとして、浮上と沈降を繰り返す鉛直回遊性を有する前駆粒子を構築する。前駆粒子に内包または固定された吸着剤が汚染水中を上下に行き来しながら、能動的に汚染物質を吸着し、その後吸着剤が水面上に浮上する。吸着剤の投与と回収を考慮した新たな吸着システムの構築では、上述した挙動を吸着剤の機能として仕上げるための前駆粒子への吸着剤の固定方法も確立する。また、上記吸着剤の使用条件は、どのような温度や pH であっても、材料の浮力や比重を自己制御でき、吸着剤が汚染箇所での汚染物質の吸着または分解を促進することを明らかにすることを目的とした。すなわち、公共水域または大型タンクに対応しうる水温や pH であれば、吸着剤の支持体に発酵や分解反応を導入することで、気体あるいは気泡の発生と消失が吸着剤の内部で繰り返され、吸着剤の浮力が短期間で変化することで自律浮沈機能を証明できることになる。また、具体的な水質汚染物質として、鉛イオン、セシウムイオン、カドミウムイオンの吸着回収を目標とする。

このような浮き沈みを自律的に行う吸着材料は、攪拌が困難な水環境や大型のタンクなどの汚染物質を効率よく吸着回収でき、従来の廃水処理方法に関連する諸問題を解決し、再生処理が簡便であり、廃水処理槽から容易に流出せず、効率的な攪拌と回収とを可能にする廃水処理剤を提供できる。しかし、本研究を実際の水質浄化材として活用する場合には、ゲル内部のグルコース濃度が一定であり、かつグルコースが外部に漏出するのを防ぐ必要がある。この解決手段として米麹の糖化による自律浮沈が有効であるかを確認することが重要なので、グルコースの溶出を防ぐ手段としてタンパク質に固定したグルコアミラーゼによるデンプンの分解から得たグルコースによってゲルビーズの浮上を確認する。

アルギン酸ゲルビーズの比重や浮力の制御機能を評価するために 10 L (高さ 2 m) の筒型容器を用い、イーストやグルコースの濃度や、pH や水温の外部環境の変化またはゲルビーズ投入時間の変化に伴うゲルビーズの浮沈回数の変化を動画観察で測定した。さまざまな微生物や酵母を導入したゲルビーズの粒子径をミリサイズで均一に製造する方法を検討した。さらに、ゲルビーズの浮沈の挙動を考察するために、アミノフェロセンをゲルに内包し、プレート電極と接することで得られる電流応答を測定した。

3. 研究の方法

1) 製造方法

アルギン酸水溶液は、アルギン酸ナトリウム粉末を秤量し、蒸留水を加えて調製した。炭酸水素ナトリウムとドライイースト又は微生物、グルコース又は微生物の資化物質を(5、10、30 w/w%)の範囲で秤量し、これらをねじ口試験管に移してから攪拌混合した。次いで、水中にて、アルギン酸水溶液をねじ口試験管に加えたのち、全体がよく混ざるように攪拌した。この試料をペリスタポンプで送液して、0.1 M 塩化カルシウム水溶液 (pH5.0、5) に滴下し、アルギン酸ゲルビーズを作製した。上記製造物はゲルの前駆粒子に相当する。前駆粒子は、微生物に資化される資化物質を含む。前駆粒子のグルコース濃度を一定にする手段として、デンプンとグルコアミラーゼ、ドライイースト、炭酸水素ナトリウムをそれぞれ内包したアルギン酸ゲルビーズを作製した。

2) 吸着剤の固定方法

活性炭、樹脂、鉱物などの粒子または粉末である吸着剤の前駆粒子への固定方法は特に制限されず、微生物、資化物質を含む前駆粒子の形成時に一緒に内包する方法(方法A)がある他、前駆粒子の外側領域のみにコア部非含有成分を導入し、複合粒子を形成する方法(方法B)が挙げられる。なお、方法Bにおいては、前駆粒子の外側領域のみに、コア部非含有成分を形成し得る成分を導入して、前駆粒子の外側領域においてコア部非含有成分を形成できる。例えば、前駆粒子非含有成分がプルシアンブルー ($\text{Fe}_4[\text{Fe}(\text{CN})_6]_3$) である場合、まず、微生物、資化物質、及びマトリックス成分を含む前駆粒子と鉄イオンを含む溶液とを接触させて、前駆粒子の外側領域のみに鉄イオンを浸透させる。次に、得られた前駆粒子とヘキサシアノ鉄(III)酸塩を含む溶液とを接触させて、ヘキサシアノ鉄(III)酸塩を外側領域に浸透させて、鉄イオンとヘキサシアノ鉄(III)酸塩とを外側領域において作用させて、プルシアンブルーを前駆粒子の外側領域に形成させた。

3) 浮上または沈降を繰り返す吸着剤の性能評価

浮沈条件の確認のため、本研究では分析用セルのほか、10 L (高さ 2 m) の筒型容器を新たに作製し、pH や水温を変えた溶液中をゲルビーズが浮沈する様子を動画記録した。ゲルビーズのコア部に内包させるグルコースやイーストの量を変えることで、ゲル内に生じる炭酸ガスの量やゲルビーズの浮力も異なる。自律浮沈の変化を解析し、ゲルビーズの水底での滞留時間、水面への浮上時間および比重の時間変化を確認した。ゲルビーズの浮力を制御できる方法を最適化した。アルギン酸ゲルビーズに内包したグルコアミラーゼによってデンプンをグルコースに分解できるのかを確認した。

さらに、汚染物質が吸着されることで酵素反応や分解によって生じる気体をゲル内に蓄積させ、ゲルビーズを浮上させるメカニズムを構築し、浮力制御のシステムを発展させる。アミノフェロセンまたはプルシアンブルーを含むアルギン酸ゲルビーズはミリサイズで均一にゲルビーズを製造することができる。このゲルビーズにCV計のプレート電極上に設置し、ゲルの内包物の電極電位を直線的に掃引し、応答電流を測定した。発酵機能を導入したゲルビーズの炭酸ガスの生成量と自律浮沈の関係を検証するために、ゲルに蓄積された二酸化炭素の蓄積と消失の変化を観察しながら、底部でのアルギン酸ゲルビーズ内部での炭酸ガスの蓄積過程の様子や水面上でのゲル表面上の炭酸ガスの消失過程の様子を考察した。グルコースの発酵速度定数は温度条件によって異なることが考えられる。発酵速度はゲルビーズの鉛直回遊時間に影響するので、ゲルビーズ中または表面に付着している炭酸ガスの気泡の様子も顕微鏡などを用い、グルコース発酵によってゲルの内部に炭酸ガスが蓄積されていく様子を経時観察しながら、ゲルビーズの沈降と浮上のメカニズムを探る。このとき、フェノール-硫酸法で発酵に関わるグルコースの量を測定し、グルコース発酵による最適温度を検討する。水底または水面でゲルビーズ内に発生する炭酸ガスの体積を推定することで深度や水圧にどの程度対応できるのかを検討した。その際、温度やイーストの量、またはグルコースの量の変化によるゲルビーズの滞留時間、浮沈回数とその時間、浮上速度の関係について調査した。

4. 研究成果

1) アルギン酸ゲルビーズの特徴

たとえば、内径 5.0 mm のノズルを用いると、試料 25 g につき、直径 5.0 ± 0.1 mm のアルギン酸ゲルビーズが約 125 粒作製できた。また、注射針で作製を試みると、約 0.1 mm 径のゲルビーズを作製できた。得られたアルギン酸ゲルビーズの比重はグルコースの添加それぞれ 1.065、1.092、1.162 であった。アルギン酸ゲルビーズに、イーストとグルコースからなる発酵システムを導入し、発酵で発生する二酸化炭素の気泡を浮きとして、浮上と沈降を繰り返す鉛直回遊性を有する吸着材料を構築した。これはアルギン酸ゲルビーズ内でイースト菌 (*Saccharomyces cerevisiae*) がグルコースを二酸化炭素に変換する発酵現象を引き起こすことで、生成された二酸化炭素よりアルギン酸ゲルビーズの比重が 1 未満となり浮上するというものである。ゲルビーズの浮上あるいは沈降の感度は重り材及び浮き材による制御が重要であることがわかった。重り材とは、ゲルビーズを水中へ投与した直後においては重りとして寄与し、ゲルビーズが鉛直回遊挙動を示す間に水中へ溶解され得る成分、又は、微生物により資化される成分が望ましいと考える。重り材としては、例えば、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、グルコース、デンプン、グリセロール、及び麦芽糖等が挙げられる。浮き材とは、ゲルビーズの溶液内での浮沈過程において浮きとして寄与し得る成分であり、例えば、炭酸水素ナトリウムが挙げられる。炭酸水素ナトリウムを添加する理由は、イースト発酵による発生した二酸化炭素(化学反

応により生じる気体)を内包するための空洞を設けることができた。本製造方法での浮力の確認では、浮き材を添加しない場合での浮上する時間の区間が20分間隔であったのに対し、浮き材を添加することで1分間隔まで感度が向上している。

本研究では、アルギン酸ゲルビーズ内部での炭酸ガスの蓄積過程の様子や水面上でのゲル表面上の炭酸ガスの消失過程の様子を、顕微鏡の観察から考察した。アルギン酸ゲルビーズの自律浮沈(回遊)時間は、グルコース濃度が5(w/w%)のときに、約6時間であったのに対し、グルコース濃度が10(w/w%)、30(w/w%)になるにつれ、12時間、48時間と変化した。温度条件が20のとき、アルギン酸ゲルビーズ投下後12時間までの浮沈回数は9回であった。しかし、浮沈回数は水温によって大きく異なった。この理由として、イーストは温度の低い条件でも発酵する。しかし、アルギン酸ゲルビーズの浮力に変化を与える炭酸ガスの生成量は少ないためと考えられる。一方、水温30では、イーストの活性が高くなり、アルギン酸ゲルビーズの浮力に変化を与える炭酸ガスの生成量も増加するが、ゲル内に蓄積される炭酸ガスも増加するために、水面上に浮いている時間が長くなった。このため、グルコース発酵に関するイーストの活性は、アルギン酸ゲルビーズの浮沈回数にも影響を与える。一方、アルギン酸ゲルビーズに内包したグルコースが直接外部へ溶出することを防ぐためにグルコースから米麹に切り替えたところ、ゲル内部のグルコース濃度を安定化させることに成功した。

アルギン酸ゲルビーズに米麹とドライイーストを内包した場合や、デンプン、グルコアミラーゼ、ドライイースト、炭酸水素ナトリウムを内包するときにアルギン酸ゲルビーズの自律浮沈現象を確認することができた。米麹に含まれる麹菌はデンプンを分解できるアミラーゼを豊富に生成する菌であり、中性条件下においても糖の生成を行うことができることによってイースト菌に糖を供給でき、二酸化炭素が発生したことが起因していると思われる。しかし、米麹に含まれるデンプンの量や麹菌の個体数などを一定にすることが難しく、生成する糖の量にばらつきが見られた。よってアルギン酸ゲルビーズの浮沈回数や浮上開始時間、沈降開始時間に影響を及ぼすと考えられたため、新たな内包物質の選定を行った。

2) 微生物と資化物質

上記微生物には、酵母菌、腸内菌、乳酸菌、好気性芽胞菌、嫌気性菌、カビ、藻類、及びプランクトンからなる群より選ばれる1種以上が含まれていればよい。上記微生物が行なう化学反応によって二酸化炭素、酸素、水素、窒素、及びメタンなど気体が発生し、ゲルビーズに蓄積されると浮力として機能すると考えられる。資化物質は、微生物の種類に応じて適宜選択される。微生物は、資化により、気体を生成する。微生物が酵母菌である場合、資化物質としては、例えば、グルコース等の糖類、及び、グルコース等の糖類の原料となるデンプンとデンプンを分解して糖類を生成する酵素との混合物を使用することが本研究で証明した。微生物が乳酸菌である場合、資化物質としては、例えば、グルコース、及びデンプン等が挙げられる。微生物が麹カビである場合、資化物質としては、例えば、デンプン、及びセルロース等固体有機物が挙げられる。なお、微生物がカビである場合、カビは固体の有機物に担持されていることが好ましい。微生物が藻類である場合、資化物質としては、例えば、有機酸、アルコール類、ビタミン、及び栄養塩が挙げられる。微生物がプランクトンである場合、資化物質としては、例えば、植物プランクトン、及び栄養塩等が挙げられる。上記微生物のなかでも、サッカロミセス属に属する微生物は比較的入手が容易である。特に、二酸化炭素の生成能力がより優れる点で、*Saccharomyces cerevisiae*が更に好ましい。

3) 浮沈のメカニズム

例えば、生体活動により気体を生成する微生物と、微生物の資化物質を含む自律浮沈型のゲルビーズを開示している。このゲルビーズは、水中に投与されると一旦沈降するものの、暫くすると、ゲルビーズ内の微生物の生体活動の過程により生成する気体が浮きとして作用することで、水中-空気界面(以下「液面」ともいう。)に浮上する。一方、液面付近は、水底と比べると水圧が小さいため、ゲルビーズが液面に浮上するにつれて、ゲルビーズ内の気体はゲルビーズ外に放出される。この結果、浮きを失ったゲルビーズは自重により、再度沈降する。ゲルビーズは、水中で上述した浮沈を繰り返し、微生物の資化により資化物質が消尽されて水よりも比重が小さくなった後、液面に浮上し、その後回収される。例えば、微生物が酵母菌であり、且つ資化物質が糖類(例えばグルコース)である場合、二酸化炭素が気体として発生する。微生物の資化により資化物質が消尽され水よりも比重が小さくなった後、液面に浮く。研究代表者はゲルビーズが浮沈を繰り返す挙動を「鉛直回遊挙動」とも呼んでいる。

顕微鏡による観察では、ゲル内での気泡の発生による浮上と、水面上での気泡の消失による沈降を繰り返すゲルビーズの様子を観察したところ、生成した気体はゲルビーズ内部に溜めること及び溜まった気体の一部をゲルビーズ表面に出すことができることがわかった。ゲル内にイースト菌とグルコース、炭酸水素ナトリウムを内包させることで、繰り返し浮き沈みができることがわかった。これは、炭酸水素ナトリウムがゲルビーズ調製の際に水が存在するために分解してゲルビーズ内で二酸化炭素を生成(発泡)し、生成したガスの一部はビーズ内部に留まるとともに、ゲルの表面に気体を移させる孔が形成したためと考えられる。この成果は比重と浮力の制御により繰り返しの自律浮沈を示すことが可能になったのは炭酸水素ナトリウムによって前駆粒子内に形成した空洞の存在が重要であった。

本研究の進歩性を示す内容は、沈降と浮上を再現性良く繰り返す機能の開発にある。これはゲルの浮上機構にイースト発酵で発生した二酸化炭素の内包と消失が秩序良く再現されている

ことである。ゲルは水底で二酸化炭素が蓄積（内包）され、水面では水圧の変化による膨張したガスがゲルの表面に出てくると同時に外系に放出され、ゲルの比重が大きい限り再び沈降する。また、グルコース、イーストの発酵が存在している限り浮上と沈降を繰り返す。最後はグルコースの「重し」が消失し、ゲル内部の二酸化炭素の空洞が存在し限り、水面でゲル浮上したままで存在する。ゲルビーズが浮上するためには相当量の気泡を内包する必要があるが、それには時間を要する。本研究で製造されたゲルビーズには、ゲルビーズに内包される気体に加えて多くの気体がゲルビーズ表面に移行してゲルビーズに付着した気泡となる。そのため比較的短時間にゲルビーズを浮上させるに十分な浮力が生じるものと推察される。さらに浮上後は、ゲルビーズ表面に付着した気泡が、容易に消失するので比較的短時間の内に再びゲルビーズは沈降する。本研究のゲルビーズのこのような比較的短時間の内に浮上及び沈降を繰り返せる機能はこれまで発見されておらず、本研究のゲルビーズが有する繰り返し浮上沈降できる効果はこれまでにない有利な効果である。

4) ゲルの多層構造

本研究の粒子は、自律浮沈に寄与する機能を有するだけでなく、各用途に応じて要求される機能を前駆粒子およびその外側領域に付与することで、様々な用途への応用が可能となる。

例えば、前駆粒子がプルシアンブルー ($\text{Fe}_4[\text{Fe}(\text{CN})_6]_3$; PB) を含む場合、PB は選択的にセシウムを吸着するため、上記粒子は、セシウム吸着用自律浮沈粒子として機能し得る。つまり、上記構成の粒子は、鉛直回遊挙動により、水中内に存在する被除去成分であるセシウムを効率よく吸着し、最終的に液面に浮くことで回収可能となる。なお、方法 A で得られた粒子 A を輪切りにして拡大鏡で観察したところ、粒子 A は、その断面観察から、5 - 30 μm 範囲の PB 粒子が前駆粒子内で不均一に存在している。一方、方法 B では、得られた粒子を輪切りにして拡大鏡で観察したところ、粒子 B は、コア部と、コア部の周囲に配置されたプルシアンブルーの被覆層（シェル部に該当する。被膜層の厚みは、約 0.8 mm である。）からなる構成であることを確認した。このように、前駆粒子のコア部と、コア部の周囲に配置されたプルシアンブルーの被覆層（シェル部）が層状に存在していることを確認し、プルシアンブルーを前駆粒子の外側領域にのみ形成させることに成功した。さらに、粒子 B に存在するプルシアンブルーの結晶構造は、XRD 回折パターンより $\text{Fe}(\text{III})_4[\text{Fe}(\text{II})(\text{CN})_6]_3$ と同定し、1 μm 以下の PB 微粒子が被覆層に分散していることがわかった。製造方法の異なる粒子 A と粒子 B の吸着能力を比較すると、セシウムの吸着容量は PB の内包量に依存するために大きな違いがみられなかったものの、粒子 B によるセシウムの吸着速度は粒子 A のそれより速くなった。したがって、アルギン酸ゲルビーズの PB の分散性とセシウムイオンとの接触効率の向上は、セシウムの迅速な吸着処理という点で重要な役割を持っている。

5) アルギン酸ゲルビーズの電流応答

ゲルビーズは直径約 0.1 mm 径のミリサイズで均一に製造することができた。このゲルビーズにアミノフェロセンまたはプルシアンブルーを内包し CV 計のプレート電極上にこのゲルを設置したところ、ゲルの内包物の酸化還元電位と思われる電流応答の変化を測定した。

6) 浄化処理試験

本研究の浄化処理方法は、上述した粒子を用いて、粒子よりもその比重が小さく、且つ、被除去成分を含む水を浄化する浄化処理方法であって、上記粒子を水中に投与する工程と、上記粒子が、上記微生物の生体活動により生成した気体の作用によって上記水性媒体内において自律して沈降と浮上を繰り返しながら、上記被除去成分を吸着する工程と、水性媒体の液面に浮上した上記粒子を回収する工程を含む。例えば、上記粒子をセシウム吸着用自律浮沈粒子として用いる場合、コア部非含有成分としてはプルシアンブルー ($\text{Fe}_4[\text{Fe}(\text{CN})_6]_3$) が好ましい。また、上記粒子 A 及び上記粒子 B を用いて、セシウムイオンの濃度が 100 ppm に調製された汚染水の洗浄処理試験を実施した。なお、汚染水は、セシウムイオンと水とを含む溶液に該当する。上記粒子 A 及び上記粒子 B は、その比重が汚染水よりも大きいため汚染水に添加した直後には沈降したが、いずれの粒子についても複数回の浮沈を繰り返し（鉛直回遊挙動を示し）その後、液面に浮上した。液面に浮上した粒子 A 及び上記自粒子 B を回収した後、汚染水中のセシウムイオンの濃度を原子吸光光度法にて求めたところ、粒子 A 及び粒子 B を汚染水に添加する前と比べて、セシウム濃度が大幅に低減していることが確認された。通常、水素イオン濃度や塩濃度の増加に伴い、PB 粉末へのセシウムの吸着能力は大きく低下するとされている。しかし、粒子 A および粒子 B では、鉄イオンを豊富に有しているため、塩や有機酸の影響による PB のセシウムの吸着能力の低下を緩和した。

本研究のゲルビーズは、pH2-8 の範囲で温度（10 ~ 30 の範囲）や水圧（水深 1 m 以下の範囲）の条件にもよるが、上記の条件範囲内では自律浮沈を繰り返すことを確認できた。さらに、回収した粒子 A および粒子 B を室温で乾燥させると、その重量は乾燥前の 3% 未満まで減少した。

本研究は、上記粒子を用いた浄化処理方法を提供することに貢献するだけでなく、環境洗浄用途以外のその他の用途への粒子の応用が期待できる。特に、さまざまな機能を 1 つのゲル粒子に付与するための多層構成の検討を発展的に行い、浄化処理方法の基本構造を特徴とする特許出願を行なった。現在、自律浮沈粒子の各種分野への応用を検討しており、各種用途に適用させるための更なる実用化研究を進めている。

5 . 主な発表論文等
(研究代表者は下線)

[雑誌論文] (計 1 件)

Kazuharu Sugawara, Toshihiko Kadoya, Hideki Kuramitz, Yoshihiro Mihara, Design of carbohydrate/electron-transfer peptides for human histocytic lymphoma cell sensing. Analytica Chimica Acta 983 (29) 198-205 (2017).
<https://doi.org/10.1016/j.aca.2017.06.028>

[学会発表] (計 1 件)

三原義広、伊藤慎二、田中俊逸、水底と水面の間を鉛直回遊する吸着材料の開発、第 78 回分析化学討論会、2018 年 5 月 27 日 (山口大学)

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

出願状況 (計 1 件)

名称 : 粒子、浄化処理方法
発明者 : 三原義広、佐野恵一、薬袋博信、羽田典久
権利者 : 同上
種類 : 特許
番号 : 特願 2018-092235
出願年 : 2018
国内外の別 : 国内

取得状況 (計 0 件)

名称 :
発明者 :
権利者 :
種類 :
番号 :
取得年 :
国内外の別 :

[その他]

ホームページ等

https://www.hus.ac.jp/upload/files/pdf/cooperation/ind_det/seeds_2019.pdf

6 . 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名 :

ローマ字氏名 :

所属研究機関名 :

部局名 :

職名 :

研究者番号 (8 桁) :

(2) 研究協力者

研究協力者氏名 :

ローマ字氏名 :

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。