

促進ファイトリメディエーション法による POPs 浄化試験

研究代表者 早稲田大学理工学術院 教授 榊原 豊
共同研究者 早稲田大学理工総研 研究員 稲垣 嘉彦
共同研究者 ハノイ農業大学 講師 Vo Huu Cong
共同研究者 ハノイ科学大学 講師 Tran Dinh Trinh
共同研究者 ハノイ工科大学 講師 Dang Minh Hieu

1. 緒論

ストックホルム条約により、12 種類の残留性有機汚染物質(POPs)に対する取り組みが 2001 年から始まった。POPs は農薬、工業化学物質などであるが、途上国で注目を集めているのが、農地などの土壤中に含まれる残留農薬である[1]。ジクロロフェニルトリクロロエタン(DDT)とその代謝産物 DDD および DDE で汚染された土壌、地下水や地表水は、世界中で報告されている[2, 3]。また、残留性が高いため、魚類や鳥類から高濃度の DDT とその代謝産物が検出されている[4]。ベトナムでは、2015 年までに 240 の深刻な POPs 汚染箇所を、また 2020 年までに 95 の環境汚染箇所を修復する計画を立てている (Decision 1946/QĐ-TTg)。図 1 に汚染箇所[5]を示した。これら汚染箇所のモニタリング調査から主要な汚染物質は DDT およびリンデンであり、これらの最大閾値濃度および改善目標値がそれぞれ 0.01 mg/kg 乾燥土壌 (QCVN 15:2008/BTNMT) および 1.1 mg/kg 乾燥土壌 (QCVN 54:2013/BTNMT) と設定されている。

DDT 汚染箇所の修復プロセスは、汚染物質濃度に基づいていくつか提案されている。その中の一つである焼却プロセスは、DDT が高濃度である場合に適用される。汚染土壌をキルンに投入すると、DDT

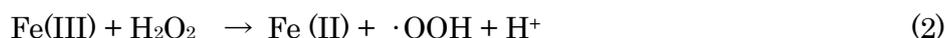


図 1 ベトナムの POPs 汚染サイト (ベトナム天然資源環境省, 2015)

や DDE が放出され、酸化分解される[6]。焼却法は、高濃度で蓄積する POPs 汚染土壌を処理する場合に有効であるが、700°C以上の高温場が必要であり、初期および操作コストが高い。研究者らは常温で処理する方法として、植物が産生する過酸化水素と鉄触媒（二価鉄）を用いてフェントン反応を起こし、式(1)で示される酸化力の強いヒドロキシルラジカル($\cdot\text{OH}$)を生成する方法を提案している[7]。



上式で生成された鉄 Fe(III)は、過酸化水素と反応し、式(2)によって二価鉄と $\text{HOO}\cdot$ ラジカルを生成する。この反応は、フェントン様反応と呼ばれている[8]。



ベトナム Bac Giang 県で研究者らが実施した先の浄化試験では、鉄触媒としてマグネタイト粒子を用いることにより DDT 除去性能が向上することを確認した[1]。しかし、汚染土壌中の細菌群集への影響の解明や、式(1)および(2)の活性酸素種である過酸化水素をより多く産生させる試みは実施されていない。

キチンは天然の多糖であり、カニやエビなどの甲殻類の外殻に含まれている。キトサンは、キチンの酵素脱アセチル化によって形成される生体高分子である。キトサンオリゴ糖はキチンやキトサンよりも水溶性が高く、キチンやキトサンの脱重合により生成され、重合度が 20%未満、平均分子量が 3900Da 未満の物質である[9]。これらの化合物は、高い生体適合性および生分解性を示し、薬物送達や食品添加物として用いられている[10]。ポリマー鎖上のアミノおよびヒドロキシル官能基は重金属との複合体を形成する結合部位としても機能する。キトサンおよびその誘導体は、植物により汚染土壌から重金属を除去する際に浄化性能を向上させる [11, 12, 13]。また、浄水過程での凝集剤や、排水処理過程での重金属、染料、農薬、抗生物質などの汚染物質を除去するための吸着剤として使用されている[10]。

農業分野では、キトサンとそのオリゴ糖が潜在的な生物刺激物質および誘発剤として適用されている。細菌、真菌および線虫による生物的ストレスや、水不足、熱ストレスおよび重金属毒性などの非生物的ストレスの影響を軽減し、同時に活性酸素種(ROS)を産生させる[14]。例えば、Wang ら[15] はキトサンオリゴ糖の添加によって、タバコ細胞懸濁液培養中の過酸化水素の蓄積を観察している。しかし一方で、過剰な ROS 生成はタンパク質、脂質、および核酸に損傷を与える可能性がある[16]。なお、活性酸素種に対する防御システムとして、植物は酵素および抗酸化物質による抗酸化システムを有している [14, 17]。

本研究では、ファイトフェントン法の性能向上を目的とし、汚染土壌中の DDT と Lindane の除去に対して、1)ベチバーにマグネタイトを添加したファイトフェントン法、2)キチンオリゴ糖及びキトサンオリゴ糖を誘導因子剤（エリシター）として添加し酸化バースト反応を起こした場合の浄化効果について検討を行った。

2. 浄化試験および方法

2.1 試薬および材料

OCP 標準液(2000 µg/mL)には p,p'-DDE, p,p'-DDD, p,p'-DDT, 内部標準の 1,2,3,4,5-pentachloro-6-(2,3,4,5,6-pentachlorophenyl) benzene (PCB-209)など 16 の成分が含まれており, AccuStandard から購入した。アセトン, n-ヘキサン, 塩化ナトリウム, 硫酸無水ナトリウム, 硫酸, 塩酸, フロリシル, 活性銅などの他の化学物質および溶媒は, シグマ・アルドリッチおよびメルクから購入し, 追加の精製なしで使用した。実験で使用したマグネタイト(Dp < 5 µm)は, 市販のマグネタイト材料(シグマ・アルドリッチ, CAS 1317-61-9)である。ベチバー株 (*Vetiveria zizanioides L.*) はベトナム・ベチバー・ネットワークから入手し, 実験サイトへ植栽した。ベチバーはイネ科の植物で発達した道管により蒸散能力が高く, 汚染物質を土壌中から集積する能力に優れている。また, H₂O₂を高濃度で産生する[1, 28]。さらに, 上記の株は根圏が他より発達することから, 供試植物とした。キチンオリゴ糖 (NA-COS)とキトサンオリゴ糖 (COS-Y) は焼津水産化学工業(株)から購入し, 酸化バースト反応の誘導因子剤として使用した。

2.2 試験サイトおよび試験条件

本研究の試験サイトは, 図 1 に示した POPs 汚染サイトの一つである。ベトナム Ha Thin 県の Cam 地区にあり, Decision 1946/QG-TTg により優先順位の高い汚染サイトとしてリストされている。表 1 は事前フィールド調査の結果であり, 異なるサンプリング場所における DDT およびリンデン濃度である。なお, 表中には Nam Dinh(ND)県および Bac Ninh 県(DL)の調査結果も合わせて示した。試験サイトの DDT とリンデン濃度は, それぞれ 62~129 µg/kg と 1.11µg/kg であった。これらの濃度は, QCVN 15:2008/BTNMT (0.01 mg/kg)規制値の 6.2~12.9 倍に相当する。

表 1 汚染土壌中の有機塩素農薬の濃度

Chemical type	CB01	CB05	ND15	DL
DDT (µg/kg)	62.27	128.9	301.54	68.90
DDD (µg/kg)	2.76	4.38	47.69	2.74
DDE (µg/kg)	9.26	15.66	15.43	10.82
Lindane (µg/kg)	ND	1.11	323.20	ND

注:CB01: 貯蔵庫の中心部; CB05: CB01 から 5m の地点; ND15: Nam Dinh 県の貯蔵庫から 15m の地点; DL:Bac Ninh 県 Doi Lim のサンプリング地点。Cam 地区の貯蔵庫は 1970 年代に建てられ, 主に DDT, Lindane, Wofatox の保管場所として用いられ, 1990 年代に閉鎖された。現在も 10m²の建物基礎は残ったままである。Ha Thin 県の天然資源環境部局は, 貯蔵庫が建てられている

エリアを中規模 POP ホットスポットと指定している。

浄化試験は、Bac Giang 県で行った試験[1]と同様である。準備段階で敷地を整備し、8m² (200cm×400cm)の面積を確保した(図 2-I)。100cm の表層土を掘削し、ターポリンシート上で作業を行った(図 2-II)。汚染土壌約 9,600kg (湿潤重量) を、最初によく混合し、表 2 の条件に従って調整した。土壌中の水分量は約 40~45%であった。

表 2 実験条件

Treatment	Vetiver	Magnetite	Oxidation burst	Nutrients (NPK fertilizer)	Treated weight
A1	16 trains	—	—	—	1600 kg
B1	16 trains	0.2 g/kg	—	—	1600 kg
C1	16 trains	0.2 g/kg	NA-COS: 0.25 g/kg COS-Y: 0.25 g/kg	—	1600 kg
A2	16 trains	—	—	100 g/m ² (NPK)	1600 kg
B2	16 trains	0.2 g/kg	—	100 g/m ² (NPK)	1600 kg
C2	16 trains	0.2 g/kg	NA-COS: 0.25 g/kg COS-Y: 0.25 g/kg	100 g/m ² (NPK)	1600 kg

注：—は無添加を示す。



図 2 フィールド試験の様子 I：実験レイアウト，II：土壌掘削の様子，III：混合土壌とマイクロマグネタイト，IV：植栽されたベチバー（初期），V：ベチバー成長の様子

フィールド試験の様子を図 2 に示す。表 2 の各条件あたり 100cm×100cm×100cm (1m³)の区画を確保し、土壌の混合を防ぐためポリプロピレンシートで各区画を隔離した。A1 にはベチバーを植栽し、B1 はベチバーを植栽するとともに 0.2 g/kg でマグネタイトを添加した。C1 はベチバー植栽の他、0.2 g/kg マグネタイト、および各 0.25 g/kg でキチンオリゴ糖 (NA-COS) とキトサンオリゴ糖 (COS-Y) を添加した。A2, B2, C2 は、A1, B1, C1 の条件に栄養素(100 g/m² NPK 肥料)をさらに添加した区画である。D にはマグネタイトのみを添加し、E にはマグネタイトおよびキチンオリゴ糖 (NA-COS) とキトサンオリゴ糖 (COS-Y) のみを添加した。残りの部分は植栽および化学物質の添加がない区画である。実験サイトは動物の侵入回避および安全を確保するために鋼鉄網によって囲った。

2.3 試料採取および分析

2020 年 12 月から 2021 年 4 月まで、2 ヶ月おきに各区画から土壌試料 (各 500g) を採取した。ここで、土壌試料は区画内の 5 地点の土壌を混合して収集した。試料採取手順は、既往研究[1]と同様に行った。試料採取後、保冷ボックスで保管し、12 時間以内に実験室に持ち込んだ。その後、試料を粉碎し、石と残留植物を除去した後、0.150 mm メッシュスクリーンでふるいにかけた。DDT およびその代謝産物は、液液抽出法によって抽出した。DDT 分析手順は、既往研究[1]と同様に行った。また、土壌からの Fe 抽出は、ISO 14869-1:2001 規格に基づいて、土壌サンプル中の Fe 分析は、EPA7000B に基づいてそれぞれ行った。

ベチバーの成長について、毎週(16 株×6 区画)の植物高さを測定した。土壌 pH, 有機炭素(OC%), 陽イオン交換能力(CEC), 窒素(%)およびリン(%)含有量について、実験開始時および 4 ヶ月後に測定した。土壌 pH は ISO 10390:2005 規格に従って測定した。OC, CEC, N, および P₂O₅ は、それぞれ国家基準(TCVN)9294:2012, TCVN 8568:2010, TCVN 6498:1999, TCVN 8940:2011 に従って測定した。

2.4 微生物群集解析

微生物群集は、Czapek 寒天培地(CZA)(ショ糖 30g/L, 硝酸ナトリウム 2g/L, リン酸二カリウム 1g/L, 硫酸マグネシウム 0.5g/L, 塩化カリウム 0.5g/L, 硫酸第 0.5g/L, アガロース 20g/L, pH7.3±0.2)および MRS 寒天培地(メルク, ドイツ)を用いて解析した。Czapek 培地は、実験室で真菌およびその他微生物を培養するための培地であり、腐生菌, 土壌細菌, および他の微生物の培養のために使用が推奨されている。一方、MRS 寒天培地は乳酸菌のすべての種の単離および成長のために最適化され、使用が推奨されている。

3. 試験結果および考察

3.1 実験サイト土壌中の DDT, DDD, DDE 濃度

DDT, DDD, および DDE の初期濃度を各区画で測定した。図 3 は、これらの存在率 (%) を 6 区画 (A1-A3 および B1-B3) で示したものである。ほとんどの区画には DDT のみが含まれていたが、A1 と C1 には DDT, DDD, DDE が含まれていた。リンデンは、すべての区画で検出されなかった (検出下限: 0.005 mg/kg)。DDT は、約 77% の p,p'-DDT, 15% の o,p'-DDT, および微量の DDE と DDD の混合物であり [18], DDT の半減期は土壌中で 15 年と推定されている [19]。環境中では、DDT は、より安定な DDE および DDD に時間をかけて分解される [1]。本研究では、A1 と C1 の初期組成では p,p'-DDE および p,p'-DDD を 10% 程度含んでいた。これは、土着微生物や植物に起因する自然な変換と考えられる [20]。

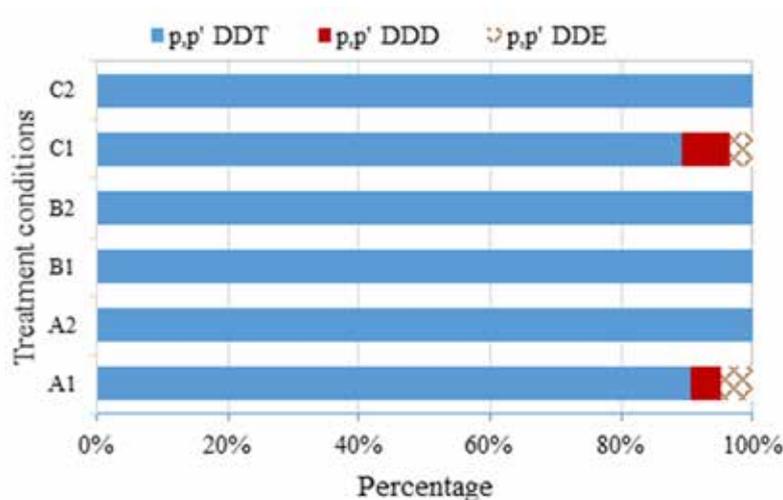


図 3 実験開始前の土壌中 DDT (A1, A2, B1, B2, C1, C2 の詳細は表 1 参照)

3.2 ファイトフェントン法による DDTs の除去

DDT の除去を 6 つの区画で比較した (図 4)。図 4-A1 と図 4-A2 によると、ベチバーのみの系では実験開始 4 ヶ月以内に DDT と DDD が除去された。しかし、DDE はほとんど除去されなかった。マグネタイト (Fe_3O_4) および酸化バースト (キチンオリゴ糖およびキトサンオリゴ糖添加系) による処理では、実験開始 2 ヶ月以内に非常に高い除去効率が達成された。B1 はファイトフェントン法が適用された区画であり、DDT および DDD の濃度は、実験開始 4 ヶ月後に検出されなくなった。DDE は除去が遅いが、最終的な濃度は規制値よりも低い 0.009 mg/kg であった。

酸化バースト反応を組み入れることで、DDT と DDE は実験開始 2 ヶ月以内に除去率 90% 以上を達成した。しかし、DDE の濃度は実験後半にかけて上昇することが確認された。酸化バースト反応では、大量の活性酸素種を一時的に産生し、病原菌等から植物本体

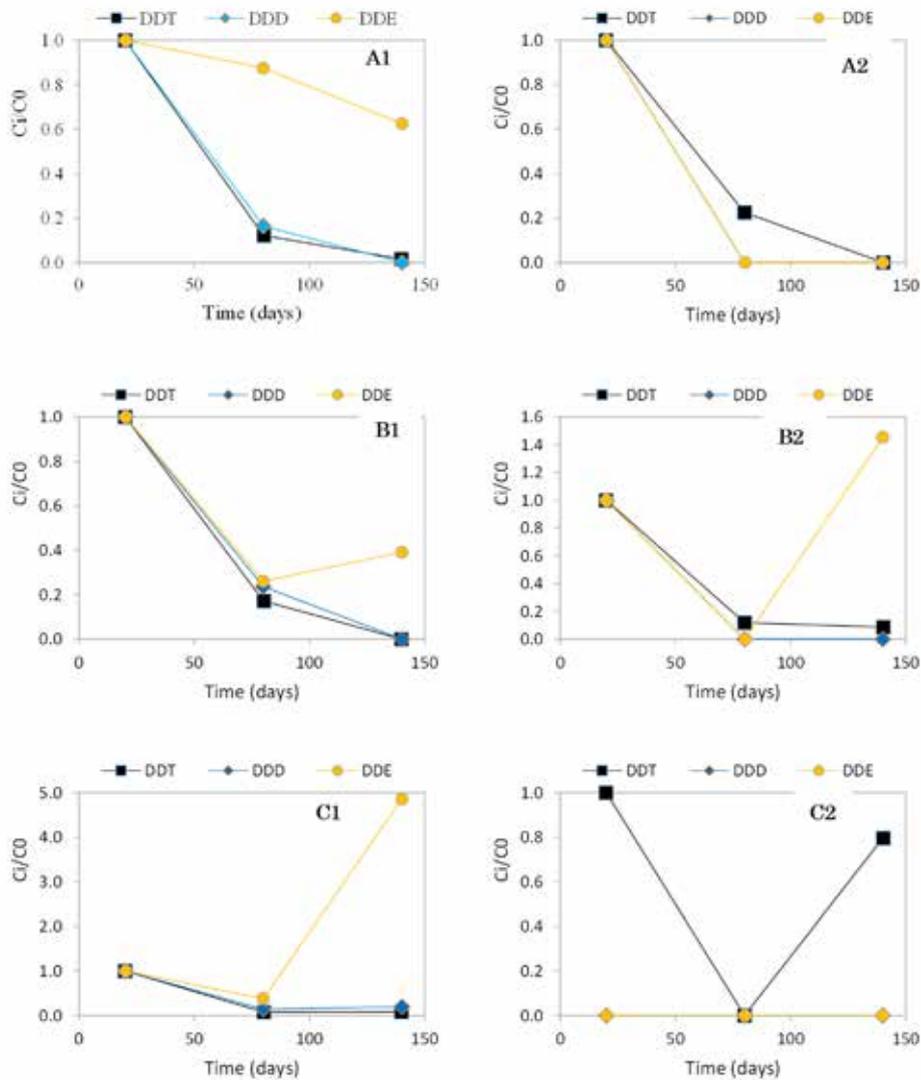


図4 DDTの除去 (A1, A2, B1, B2, C1, C2の詳細は表1参照)

を防御する戦略の1つである[21]。嫌気性および好気性条件下での DDT の減少は、代謝産物 DDD および DDE の生成につながる[22]。DDE は DDT および DDD よりも残留性の高い代謝産物であり、嫌気性条件下での DDE の蓄積は好ましくない。Zhao ら[17]によれば、エリシター処理下で、植物は NADPH オキシダーゼおよびアポプラプラスチックペルオキシダーゼなどの酵素からより多くの活性酸素を生成する。これは活性酸素の捕捉システムを弱めることにつながり、酸化ストレスを引き起こし、結果として汚染物質の解毒作用を低下させる。Schroder ら[23]は、重金属が酸化バーストを引き起こし、植物が有機化合物を解毒させる能力を妨げることを報告している。酸化バーストは、エリシター処理下でも起こるので、キトサンオリゴ糖の添加によって植物による DDT 処理が抑制されたかもしれない。キトサンオリゴ糖の添加が効果的でなかったもう一つの理由としては、

キトサンに含まれる豊富なヒドロキシルおよびアミノ基が活性酸素と反応して、OH ラジカルを捕捉した可能性が考えられる[14]。

3.3 土壌特性

標準的なフェントン法は、pH 2.8～3.5 の強酸性条件下で OH ラジカルを生成する[24]。強酸の添加、鉄系触媒および過酸化水素の使用は、処理後の土壌及び微生物群集を大幅に劣化させる。本研究では、pH、有機炭素、陽イオン交換能力、窒素及びリン量について、実験開始時および 4 ヶ月後に評価した(表 3)。pH は、実験開始時と 4 ヶ月後でそれぞれ 7.54～7.84 および 7.97～8.08 の範囲であった。本研究では、Fe(II)と Fe(III)の両方を含むマグネタイト(Fe₃O₄)を用いており、式(1)および(2)で表されるフェントン反応とフェントン様反応が起こっていると考えられる。フェントン反応を中性域で行うと二価鉄の過剰消費および三価鉄の蓄積が起こるが、マグネタイトの使用はこのような欠点を克服することができる。研究者らの既往研究では、pH 7.5±0.3 でファイトフェントン反応が進行することを確認している[25]。また、市販の Fe(II, III)触媒を用いて、pH 7.0±0.3 でフェントン反応およびフェントン様反応によってフェノールが分解されることが報告されている[26]。

表 3 各区画における土壌特性

Treatment	pH _{KCl}		OC (%)		CEC (Cmol/kg)		N (%)	P ₂ O ₅ (%)
	Initial	Apr-21	Initial	Apr-21	Initial	Apr-21	Apr-21	Apr-21
A1	7.54	8.01	0.47±0.02	0.65±0.03	13.37	11.24	0.08	0.07
A2	7.76	8.08	0.54±0.02	0.78±0.02	14.25	12.06	0.09	0.12
B1	7.63	7.97	0.44±0.03	0.70±0.02	13.18	11.34	0.08	0.07
B2	7.84	8.08	0.51±0.03	0.79±0.01	14.35	12.84	0.09	0.09
C1	7.66	8.04	0.54±0.02	0.70±0.02	11.47	10.74	0.10	0.07
C2	7.69	7.98	0.60±0.02	0.71±0.02	12.12	12.92	0.10	0.10

キトサンおよびキチン類は土壌中の鉱物や栄養素とキレート形成することによって、土壌の肥沃度を向上させる。それによって植物の栄養摂取や成長が促進されると同時に、植物中のミネラル濃度が調節される[13, 14]。Guo ら[11]は、水溶性キトサンを用いた実験において、フーリエ変換赤外スペクトル解析を用いて土壌中のアミノ基および水酸基が有意に増加することを明らかにした。この増加は鉄錯体の形成を促し、植物による土壌からの鉄の吸収を促進する。

全ての区画の有機炭素量は、実験開始 4 ヶ月後に有意に増加した。A1, B1, C1 区画では 0.44～0.54%と 0.65～0.70%増加し、A2, B2, C2 では 0.51～0.60%から 0.71～0.79%に増加した。土壌有機炭素の増加は、ベチバー根圏の成長と関連している。図 5-I は、異なる系でのベチバーの高さの遷移を示している。4 ヶ月間植栽された後に最も高い成長を示したのは、A2, B2, C2 であった。土壌中では根が広く発達しマグネタイトと接触し、

OH ラジカルを生成することでファイトフェントン反応につながる。すべての区画で、陽イオン交換能力 (CEC) は実験期間中ほとんど変化しなかった。なお、汚染土壌の修復という観点から、修復土壌を農地として活用するには表土の土壌有機炭素量として約 7 g/kg 程度必要である[27]。

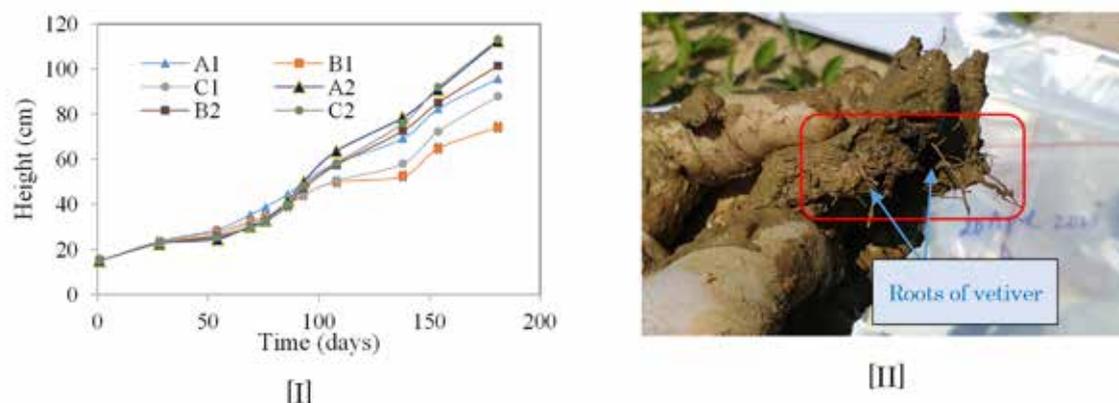


図 5 実験期間中のベチバーの成長

[I]実験過程でのベチバーの成長, [II]土壌中に広く分布するベチバー根部の様子

土壌微生物群集や微生物の活動に影響を与える要因は、温度や湿度などの天候条件に加えて、土壌成分、酸化鉄マイクロ粒子(Fe_3O_4)、肥料、エリシターなどである。試験区画内の土壌の種類と物理的条件がすべて等しいと仮定すると、土壌中の微生物群集の活動は主に植物、酸化鉄微粒子、肥料およびエリシターに依存する。本研究では、土壌微生物群集の活動の変化を微生物群集数と土壌呼吸の 2 つのパラメータで測定した。その結果を図 6 に示した。実験開始 1 ヶ月後の土壌について、Czapek 培地の微生物群集数は、全ての区画で有意な増加を示した。しかし、試験開始後 1 ヶ月および 2 ヶ月で互いに有意な差を示さなかった。これは、Czapek 培地上の各試料の微生物群集の増加は、実験条件に依存しないことを示唆している。実験を設定する際の土壌の混ぜ合わせに関する問題か、または土壌に植栽されたベチバーや添加された化学物質の存在が原因であると考えられる。後者の場合、ベチバーの存在は、土壌微生物群集の増加に関連していると考えられる。

MRS 培地の場合、実験開始 1 ヶ月後の各区画の微生物群集は、実験開始時に採取された土壌試料と比較して差がなかった。しかし、微生物群集は、特にベチバーのみの系(A1)または栄養素を添加した系(A2)またはマグネタイトと栄養素を加えた系(B2)で、実験開始 2 ヶ月後に大幅に増加した。これらの観察からいくつかの仮説が示唆される。1)微生物群集の成長は、土壌に添加された植物や化学物質の存在、つまり実験条件に依存する。2)微生物は、成長を加速させるために新たな環境条件に適応する必要がある。3) マグネタイトを添加した B1 の系から採取された試料中の微生物群集の成長は遅く、既往研究と照らし合わせると、マグネタイト粒子が何らかの形で抗菌活性を発現させたのではないかと推察

できる。各試料の土壤呼吸を調べることによって、土壤試料中の微生物集団変化のみならず、フィトフェントン法の条件に関係なく土壤微生物活性も把握することができる。

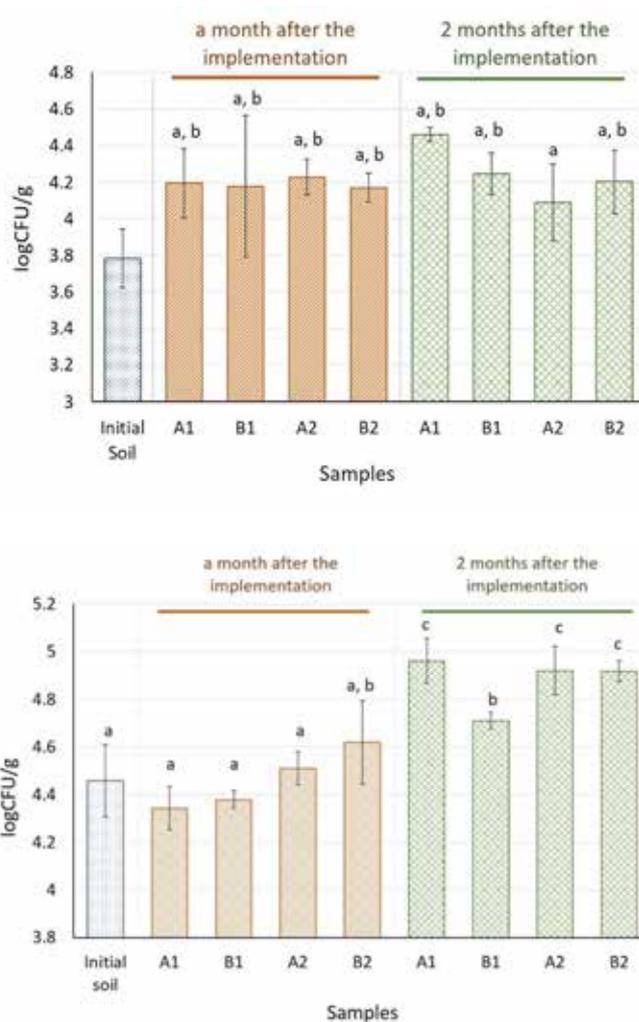


図6 Czapex 培地(左)と MRS 培地(右)を用いた場合の微生物群集数 (A1, A2, B1, B2, C1, C2 の詳しい条件は、表1を参照、文字 a と b は有意差を示す (フィッシャー LSD, $p = 0.05$), 各群集の試料数: 3~5)

3.4 浄化効率

本研究の DDT 除去率および最終濃度を表4に示した。DDT の除去効率は、82.5%から98.4%に達した。ベチバーのみの区画(A1)と栄養分を添加したベチバーのみによる区画(A2)では、97.4%と79.8%の除去効率が得られ、DDT の最終濃度は0.022~0.025 mg/kgであった。フィトフェントン法を適用した区画(B1)では 実験開始4ヶ月後に98.4%の除去効率が得られ、最終的な DDT 濃度は0.009 mg/kgであった。これは QCVN 15:2008/BTNMT によって規制されている上限閾値濃度を下回った唯一の系であった。先

行研究[1]の Bac Giang で実施した実験では、実験開始4ヶ月後に除去効率 71.8%が得られ、DDT 濃度は 20.76 mg/kg であった。これらの結果と比較すると本研究の除去効率が高らかに高いことがわかる。酸化バースト反応を組み込んだ系では除去効率が低く、最終的な DDT 濃度はファイトフェントン法の区画と比較して約 1 桁大きかった。これは、供試エリシターのキチンオリゴ糖およびキトサンオリゴ糖が酸化バースト反応の誘導因子として効果的に働かなかったことを示している。酸化バースト反応及び有効なエリシターについては、今後更に検討が必要である。

表 4 実験開始4ヶ月後の除去率

Treatment	Ha Tinh Site (2021)		Bac Giang site (2017)	
	RE (%)	Final DDTs (mg/kg)	RE (%)	Final DDTs (mg/kg)
A1	97.4	0.022		
B1	98.4	0.009*	71.8	0.021**
C1	82.5	0.210		
A2	79.8	0.025		
B2	86.3	0.035		
C2	-49.0	0.073		

注：*QCVN 15:2008/BTNMT によって規制される許容閾値以下の濃度、

** 既往研究[1]で得られた結果

4. 結論

本研究では、POP 汚染土壌の修復と土壌保全という観点からファイトフェントン法の除去性能を確認できた。汚染土壌には、ベトナム国家基準許容閾値レベル(0.01mg/kg)より 1 桁高い DDT が含まれていた。実験開始時には DDT が主な汚染物質であり、わずかに DDD と DDE が存在していた。なお、リンデンは検出されなかった。マグネタイト鉄触媒を用いた区画では、土壌中 DDT の 98.4%が除去され、許容値までの浄化を達成した。また、供試植物のベチバーは浄化期間中に根圏を成長・発達させていることが確認できた。土壌 pH は、植物および微生物群集にとって良好な 7.6~8.1 の範囲にあった。なお、キチンオリゴ糖とキトサンオリゴ糖をエリシターとして土壌中に添加することで酸化バースト反応を進行させ浄化性能の大きな向上を期待したが、今回の実験ではその効果を確認できなかった。今後は供試植物とエリシターの効果的な組み合わせについて検討を加え、ファイトフェントン法の更なる性能向上を目指したい。

謝辞

本研究は JFE21 世紀財団の支援を受けて実施した。また、現地浄化試験にはベトナムハノイ農業大学の Nguyen Thi Thinh, Ho Thi Thuy Hang, Tran Duc Vien 氏、ベトナム

ハノイ科学大学 Dao Thi Nhung 博士およびダナン大学 Tran Minh Thao 博士の協力を得て実施した。

引用文献

- [1] Tran T. D. et al. (2020), *Environ Geochem Health* **42**, 3597-3608.
- [2] Kantachote D. (2004), *Journal of Chemical Technology & Biotechnology* **79**, 632-638.
- [3] Chattopadhyay S. and Chattopadhyay D. (2015), *Current Pollution Reports* **1**, 248-264.
- [4] Tu B. M. et al. (2007), *Developments in Environmental Science* **7**, 515-555.
- [5] Vietnam Environment Administration, Ministry of Natural Resources and Environment (2015) (in Vietnamese).
- [6] Yan D. et al. (2014), *Sci Total Environ* 476-477, 250-7.
- [7] Reis A. R. et al. (2014), *J Hazard Mater* **265**, 79-88.
- [8] Navalon S. et al. (2010), *Applied Catalysis B: Environmental* **99**, 1-26.
- [9] Lodhi G. et al. (2014), *Biomed Res Int*, **65**, 4913.
- [10] Pal P. et al. (2021), A review. *Chemosphere* **266**, 128934.
- [11] Guo J. et al. (2020), *Carbohydr Polym* **246**, 116559.
- [12] Kamari A. et al. (2012), *Int J Phytoremediation* **14**, 894-907.
- [13] Vasconcelos M. W. (2014), *Front Plant Sci* **5**, 616.
- [14] Hidangmayum A. et al. (2019), *Physiol Mol Biol Plants* **25**, 313-326.
- [15] Wang W. et al. (2008), *Pesticide Biochemistry and Physiology* **90**, 106-113.
- [16] Bolwell G. P. and Wojtaszek P (1997), *Physiological and Molecular Plant Pathology* **51**, 347-366.
- [17] Zhao J. et al. (2005), *Biotechnol Bioeng* **90**, 621-631.
- [18] WHO (1979), World Health Organization.
- [19] EPA (1989), https://www.epa.gov/sites/production/files/2015-09/documents/rags_a.pdf. Retrieved July 2nd, 2021.
- [20] Plimmer J. R. and D. W. Von Endt (1968), *J. Agric. Food Chem* **16**, 594-597.
- [21] Wojtaszek P. (1997), *Biochem. J.* **322**, 681-692.
- [22] Lal R. and D. M. Saxena (1982), *Microbiol Rev* **46**, 95-127.
- [23] Schroder P. et al. (2009), *Environ Sci Pollut Res Int* **16**, 795-804.
- [24] Checa-Fernandez A. et al. (2021), A Review. *Catalysts* **11**, 722.
- [25] Inagaki Y. et al. (2016), *Chemosphere* **144**, 1443-1450.
- [26] Rusevova K. et al. (2012), *J Hazard Mater* 241-242, 433-440.
- [27] Wairiu M. and Lal R. (2003), *Soil & Tillage Research* **701**, 19-27.
- [28] Suzuki S. et al. (2014), The 7th International Conference on Environmental Science

and Technology, Huston, TX, USA, June 6.