

人工バリア材料における微生物の透過性及び  
核種の吸着性の評価

(核燃料サイクル開発機構 研究概要)

2000年2月

石川島播磨重工業株式会社

本資料の全部または一部を複写、複製、転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松 4-49

核燃料サイクル開発機構

技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:

Technical Cooperation Section,

Technology Management Division,

Japan Nuclear Cycle Development Institute

4-19 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1184,

Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)

2000

2000年2月

人工バリア材料における微生物の透過性及び核種の吸着性の評価

福永栄\* 横山英一\* 荒井和浩\*\* 朝野英一\*\* 千手隆史\*\*\* 工藤章\*\*\*\*

要旨

100% (乾燥密度 $1.6\text{g/cm}^3$ ) のNa型ベントナイト成型体における微生物透過は、これまでの試験結果から想定されるように、微生物の移動は検知されなかった。100% (乾燥密度 $1.6\text{g/cm}^3$ ) のCa型化ベントナイト成型体における微生物透過試験も大腸菌は導入部以外には検知されず、菌の移動は検知されなかった。

強い還元性環境下 ( $E_h = -500\text{mV}$ ) でのベントナイトと Np、Pu との分配係数( $K_d$ )への滅菌処理による影響は見られなかった。Pu と Np は共に酸性側とアルカリ側で  $K_d$  値が上がる傾向を示した。特に Pu は、 $\text{pH}=3\sim 6$  付近では、 $K_d$  値が  $100\text{ ml/g}$  程度なのに対し、 $\text{pH}=13$  付近では、生菌条件で  $40\text{ 万 ml/g}$  以上の値を示している。このように、非常に高い  $K_d$  値を示した理由として、Pu が水酸化物沈澱を形成したことが考えられる。

---

本報告書は、石川島播磨重工業株式会社が核燃料サイクル開発機構の委託により実施した研究成果に関するものである。

契約番号 : 110D0130

機構担当部課室 : 東海事業所 環境保全・研究開発センター 処分研究部

システム解析グループ

- \* 石川島播磨重工業株式会社 技術研究所 開環境部
- \*\* 石川島播磨重工業株式会社 原子力事業部 原燃技術部
- \*\*\* 石川島検査計測株式会社 計測事業部
- \*\*\*\* 京都大学 原子炉実験所 バックエンド工学部門

Study on Microbial Transport and Adsorption Behavior on Engineering Barrier  
for Geological Disposal of Radioactive Wastes

Sakae Fukunaga\*, Hidekazu Yokoyama\*, Kazuhiro Arai\*\*,  
Hidekazu Asano\*\*, Takafumi Senju\*\*\*, Akira Kudo\*\*\*\*

Abstract

It is easy to assume from the past data that microbial transport do not find at 100%-sodium bentonite. Microbial transport do not find at 100%-calcium bentonite too. There are no effects to distribution ration (Kd) of Neptunium (Np) and Plutonium (Pu) with bentonite by sterilizing on low Eh condition (Eh=-500mV). Kd values of Np and Pu show behavior, which are increasing on the hard acidic and alkali conditions. Especially, Kd values of Pu shows one of Kd value is about 100 ml/g on pH=3~6, but the other of Kd value is about 400,000 ml/g on pH=13. Precipitating plutonium hydrates occurred the large Kd value on alkali condition

---

This work was performed by Ishikawajima-Harima Heavy Industries Co., Ltd. under contract with Nuclear Cycle Development Institute.

Contract No. : 110D0130

JNC Liaison : Repository System Analysis Group, Waste Isolation Research  
Division, Waste Management and Fuel Cycle Research Center,  
Tokai Works

\*Ishikawajima-Harima Heavy Industries Co., Ltd. Nuclear Power Division Nuclear  
Fuel Cycle Development Dept.

\*\*Ishikawajima-Harima Heavy Industries Co., Ltd. Industrial Machine and Plant  
Development Environmental Process Development Dept.

\*\*\*Ishikawajima Inspection & Instrumentation Co., Ltd. Instrumentation divisions

\*\*\*\*Research Reactor Institute Kyoto University

## 目次

	項
1.はじめに .....	1
2.試験 .....	2
2.1圧縮ベントナイト中での透過性に関する研究 .....	2
2.1.1試験方法 .....	4
2.1.2試験結果 .....	5
2.2微生物と核種の吸着性の調査研究 .....	9
2.2.1試験方法 .....	12
2.2.2試験結果 .....	13
3.まとめ .....	28
3.1圧縮ベントナイト中での透過性に関する研究 .....	28
3.2微生物と核種の吸着性の調査研究 .....	29

## 図表リスト

	項
図2.2-1 Puと微生物のKd値とpHの関係（強い還元性環境： - 500mV）	14
図2.2-2 Puと微生物のKd値とpHの関係（弱い還元性環境： - 85mV）	14
図2.2-3 Npと微生物のKd値とpHの関係（強い還元性環境： - 500mV）	17
図2.2-4 Npと微生物のKd値とpHの関係（弱い還元性環境： - 85mV）	17
図2.2-5 PuとベントナイトのKd値とpHの関係（弱い還元性環境： - 85mV）	20
図2.2-6 NpとベントナイトのKd値とpHの関係（弱い還元性環境： - 85mV）	20
図2.2-7 PuとベントナイトのKd値とpHの関係（強い還元性環境： - 500mV）	22
図2.2-8 NpとベントナイトのKd値とpHの関係（強い還元性環境： - 500mV）	22
図2.2-9 Puとベントナイト、微生物共存下におけるKd値とpHの関係（強い還元性環境： - 500mV）	24
図2.2-10 Puとベントナイト、微生物共存下におけるKd値とpHの関係（弱い還元性環境： - 85mV）	24
図2.2-11 Npとベントナイト、微生物共存下におけるKd値とpHの関係（強い還元性環境： - 500mV）	26
図2.2-12 Npとベントナイト、微生物共存下におけるKd値とpHの関係（弱い還元性環境： - 85mV）	26
表2.1-1 試験体の各層の切片における菌数測定結果（平成7年度～平成10年度）	7
表2.1-2 試験体各層の切片における菌数測定結果(100wt%Na型ベントナイト、乾燥密度 1.6g/cm <sup>3</sup> )	7
表2.1-3 試験体各層の切片における菌数測定結果（100wt%—pH調整Ca型化ベントナイト、 乾燥密度1.6g/cm <sup>3</sup> ）	8
表2.1-4 試験体各層の切片における菌数測定結果（100wt%Ca型化ベントナイト、乾燥密 度1.6g/cm <sup>3</sup> ）	8
表2.2-1 研究実験計画の経過	9
表3.1-1 試験体の各層の切片における菌数測定結果（平成7年度～平成11年度）	29

## 1.はじめに

再処理工程から発生するTRU廃棄物の化学的性状は多種多様であり、アスファルト固化体等、固化材料または廃棄物中に有機物を含むものがある。廃棄体中に有機物が存在する場合、天然環境中に存在する微生物によってそれらの分解が促進され、核種の溶解度上昇、ガスの発生など、核種の移行挙動に影響を与えることが懸念されている。また、微生物に核種が吸着するなどの相互作用により、核種の移行特性が変動する可能性がある。このため、処分場内部への微生物の移行の可能性及び核種との相互作用を調べることで、TRU廃棄物の処分システムの安全性を評価する上で重要な課題となっている。

これまでの研究では、蒸留水を用いたベントナイト系材料に対する微生物の透過性に関する研究を実施してきたが、処分システムの安全評価においては、セメント環境に晒されたベントナイト系材料における研究が必要である。

本研究では、ベントナイトの環境条件がベントナイト中の微生物の透過性に与える影響を明らかにするとともに、微生物と核種の吸着性に関する研究を実施し、その成果を取りまとめた。

## 2.試験

### 2.1圧縮ベントナイト中での透過性に関する研究

#### (1) 平成10年度までの試験概要

圧縮ベントナイト中での微生物移行の可能性を調べるため、平成7年度から大腸菌を用いて、ベントナイトの乾燥密度およびケイ砂の混合比をパラメータとした透過試験を実施してきた。平成7年度から平成10年度までの試験結果を表2.1-1に示す。なお、表中、底面と表示してある部分は、平成7年度にIとして菌数測定したが、平成8年度以降、壁面回り込みによる菌の検出が懸念されたので菌数測定を中止した部分である。なお平成7年度のデータにおけるベントナイト層のI、II、III、IV、V、VIの表示（平成7年度および9年度の報告書の一部でも使用）を、本報告書では底面、I、II、III、IV、Vと改め、平成8年度以降の表示と合わせた。以下、平成7年度から10年度までの試験経過を記す。

平成7年度に、乾燥密度 $1.2\text{g}/\text{cm}^3$ と $1.8\text{g}/\text{cm}^3$ の条件で、ケイ砂混合率80wt%（Na型ベントナイト混合率20wt%）のベントナイト成型体について水で膨潤後、微生物（大腸菌）の透過試験を実施し、乾燥密度に係わらず、微生物が透過することを示した。

平成8年度は、乾燥密度  $1.8\text{g}/\text{cm}^3$ ：ベントナイト100wt%の成型体と、乾燥密度  $1.2\text{g}/\text{cm}^3$ ：ケイ砂混合率 50wt%のベントナイト成型体で大腸菌の透過試験を実施した。この場合では3週間後に透過がみられず、ケイ砂50wt%では3回試験のうち1回で2週間後に5mmの菌の移動が検知された。ケイ砂50wt%は菌の透過について微妙な領域であることが示された。

平成9年度は、乾燥密度 $1.2\text{g}/\text{cm}^3$ ：ケイ砂混合率0wt%及び30wt%のベントナイト成型体と、乾燥密度 $1.8\text{g}/\text{cm}^3$ ：ケイ砂混合率50wt%のベントナイト成型体の計3条件について、大腸菌による透過試験を実施した。3週間後に前記の2条件では透過がみられず、ケイ砂混合率50wt%ベントナイトでは3回試験のうち1回で5mmの菌の移動が検知された。ケイ砂50wt%は菌の透過について微妙な領域であることが示された。

平成10年度は、これまで用いてきたNa型ベントナイトでは乾燥密度 $1.6\text{g}/\text{cm}^3$ ：ケイ砂の混合率 50wt%のベントナイト成型体を、新たに用いたCa型化ベントナイトでは



乾燥密度 $1.6\text{g/cm}^3$ ：ケイ砂の混合率 $30\text{wt}\%$ 及び $50\text{wt}\%$ のベントナイト成型体と、計3条件の大腸菌による透過試験を実施した。3週間後にNa型ベントナイトでは3回試験のうち1回で3週間後に $5\text{mm}$ の菌の移動が検知され、ケイ砂 $50\text{wt}\%$ は菌の透過について微妙な領域であることが示された。

Ca型化ベントナイトは3週間後にケイ砂混合率 $50\text{wt}\%$ では最下層（ $20\text{mm}$ ）まで菌の移動が検知され、ケイ砂混合率 $30\text{wt}\%$ では3回試験のうち1回で $15\text{mm}$ の距離の菌の移動が検知された。Ca型化ベントナイトは同条件のNa型ベントナイトより微生物が透過しやすいことが示された。

## (2) 本年度の試験目的

平成11年度は、Na型ベントナイトとpH調整液で膨潤処理したpH調整Ca型化ベントナイトとCa型化ベントナイトとの3種類のベントナイト成型体で、乾燥密度 $1.6\text{g/cm}^3$ ：ケイ砂の混合率 $0\text{wt}\%$ の条件で大腸菌による透過試験を実施した。また、新たに用いたpH調整Ca型化ベントナイトは菌の移動とpHの相関を見るため用いた。

pH調整Ca型化ベントナイトは、平成10年度の試験において、Na型ベントナイトに比べてCa型化ベントナイト中の微生物の方が透過しやすいことが分かり、この原因として、Na型ベントナイトの透過液のpHが $9.0\sim 10.0$ であったのに対し、Ca型化ベントナイトでは、pHが $8.0$ 前後と中性に近い値を示していたため、Ca型化ベントナイト中の微生物がpH条件による活性抑制を受けなかった可能性があり、pHによる影響によって、ベントナイト中の微生物の透過性が影響されるかどうか確認するために実施した。

## (3) 試験材料

### (a) 透過試験用微生物及び培地

透過試験用微生物には、大きさの点及び好気嫌気増殖可能な菌の代表として、アンピシリン耐性大腸菌を使用した。大腸菌の形状は桿菌で、その大きさは $0.5\phi\times 1.0\sim 3.0\mu\text{m}$ 程度である。培地はEMB培地又は、LB培地（ニッスイ製薬）を用いた。

### (b) ベントナイト成型体

本試験に用いた圧縮ベントナイト成型体の製作条件を（表2.1-3）に示す。

ベントナイト成型体は、所定のベントナイトを冷間プレス（CIP）にて成型した。

Na型ベントナイトはクニゲルV1（核燃料サイクル開発機構殿支給）を、Ca型化ベントナイトはクニゲルV1をCa型へと化学処理したもの（核燃料サイクル開発機構殿支給）を、pH調整Ca型化ベントナイトはCa型化ベントナイトをpH調整液で膨潤処理して使用した。

なお、以後は単にNa型ベントナイト、Ca型化ベントナイト、pH調整Ca型化ベントナイトと記す。

### 2.1.1 試験方法

#### (1) 試験装置

透過試験用の大腸菌は上部から滴下するが、ベントナイト成型体と容器壁面との間を流れるのを防ぐため、パッキン等に工夫がしてあり、また、容器自体をロータリースェーカー(85rpm)上で振とうさせることによって、滴下部分の菌液の分散を図っている。

#### (2) ベントナイトの膨潤処理

平成11年度も、Na型、Ca型化ベントナイト成型体に対しては膨潤処理を3週間実施した。ステンレス製の試験容器にベントナイト成型体をセットした後、加圧蒸気滅菌（121℃、20min×2回）を行い、滅菌脱塩水を3週間添加した。

pH調整Ca型化ベントナイトについてはpHをNa型ベントナイト並にするため、加圧蒸気滅菌（121℃、15min）を行ったpH調整液で膨潤処理を4週間実施した。

#### (3) 大腸菌透過試験

ベントナイト成型体を膨潤処理後、前日から前培養した大腸菌を、その培養液（EMB培地）とともに3週間試験容器中のベントナイト成型体に上部から浸透させた。

試験容器からのNa型ベントナイト成型体の取り出しは、平成7年度から菌液をピペットで除いた後に逆さにして、下側から、滅菌した治具（アルミナ製の円柱など）を用いて押し、試験容器底面に向け押し出す方法を採用している。

Ca型化ベントナイト成型体の取り出し方法は、成型体が柔らかく、かつ容器側面に粘着するので、ベントナイト成型体の両側を滅菌した治具（アルミナ製の円柱）で挟

み、形が崩れないように押さえながら押し出した。

試験容器から取り出した後の成型体は、試験培養液に含ませた色素（エオシンイエロー：テトラブromフルオレセインナトリウム： $C_{20}H_6Br_4Na_2O_5 = 691.86$ ）の移動沈着により、全ての条件で底部まで液が浸透しているのを確認した。全ての試験は、同一条件毎に3回実施した。

#### (4) 透過菌数測定

透過菌数測定は、ベントナイト成型体中の5箇所について菌移動距離の異なる切片(0.2g)を切り出し、10mlの生理食塩水に懸濁の後、さらに生理食塩水で10倍希釈した液1mlを寒天培地（LB培地）に混釈して、30℃で2～5日の培養後、各切片で3枚の寒天平板上の大腸菌コロニーを数え、その平均値とした。

また、大腸菌コロニーとベントナイト微粒子の識別は、20 $\mu$ mナイロンメッシュ布をもちいた懸濁液のろ過による微小粒子の除去、ならびに寒天平板培養前の混入微粒子のマーキングにより実施した。

### 2.1.2 試験結果

#### (1) pH調整ベントナイト成型体の調製

pH調整Ca型化ベントナイト成型体の膨潤にはpH調整液（緩衝溶液）を用いた。これは当初水酸化ナトリウム（NaOH）でpH10に調整した脱塩水で行ったところ、空気中の二酸化炭素（CO<sub>2</sub>）と反応してpHが低下するなどpH調整液のpHの維持が難しかったためである。

調整液での菌の生育阻害が懸念されたが、pH調整Ca型化ベントナイトで試験したところ、Na型で行った時より最上層での菌の生育数が同程度または多かったため、試験に支障が出る範囲ではないと判断した。

pH調製（膨潤）の期間は、pH調整液で膨潤処理を4週間実施したところ、透過液がpH9.0～9.5ぐらいであることをpH試験紙で確認できた。

#### (2) ケイ砂混合率100wt%：乾燥密度1.6g/cm<sup>3</sup>：Na型ベントナイト成型体における微生物透過試験

表2.1-2に試験結果を示す。3試験体とも大腸菌は導入部以外には検知されず、菌の

移動は検知されなかった。

成型体の構造としては、これまで実施した乾燥密度 $1.2\text{g/cm}^3$ 及び $1.8\text{g/cm}^3$ の「100wt%Na型ベントナイト成型体」と共通で、菌の透過性について最も安定して菌の移動がみられなかった。

- (3) ケイ砂混合率100wt%：乾燥密度 $1.6\text{g/cm}^3$ ：pH調整Ca型化ベントナイト成型体における微生物透過試験

表2.1-3に試験結果を示す。3試験体とも大腸菌は導入部以外には検知されず、菌の移動は検知されなかった。

- (4) ケイ砂混合率100wt%：乾燥密度 $1.6\text{g/cm}^3$ ：Ca型化ベントナイト成型体における微生物透過試験

表2.1-4に試験結果を示す。3試験体とも大腸菌は導入部以外には検知されず、菌の移動は検知されなかった。Ca型化ベントナイトとの比較結果より菌の移動とpHとの相関が見られることを予想したが、今回菌の移動は検知されなかったため比較することができなかった。

表2.1-1 試験体の各層の切片における菌数測定結果（平成7年度～平成10年度）

乾燥密度			1.8(g/cm <sup>3</sup> )			1.6(g/cm <sup>3</sup> )			1.2(g/cm <sup>3</sup> )			
ベントナイトの種類			Na			Ca		Na	Na			
ベントナイト(wt%)			100	50	20	70	50	50	100	70	50	20
ベントナイト層	底面	25mm	-	-	●	-	-	-	-	-	-	●
	I	20mm	○	○	●	○	●	○	○	○	○	●
	II	15mm	○	○	●	▲	●	○	○	○	○	●
	III	10mm	○	○	●	●	●	○	○	○	○	●
	IV	5mm	○	▲	●	●	●	▲	○	○	▲	●
最上層部	V	0mm	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●

●：透過が認められたもの

○：透過が認められなかったもの

▲：一部に透過が認められたもの

-：壁面回り込み菌検出の懸念のため測定しなかったもの

表2.1-2 試験体各層の切片における菌数測定結果

(100wt%Na型ベントナイト、乾燥密度1.6g/cm<sup>3</sup>)

試験No.	寒天培地	ベントナイト検体中の検出菌数(CFU), × 10 <sup>2</sup>					
		1		2		3	
		a	b	a	b	a	b
ベントナイト層							
	I	0	0	0	0	0	0
	II	0	0	0	0	0	0
	III	0	0	0	0	0	0
	IV	0	0	0	0	0	0
最上層部	V	1450	1490	5120	6230	4000	4300

培地a：一般生菌数用寒天培地

培地b：LB寒天培地

表2.1-3 試験体各層の切片における菌数測定結果

(100wt%—pH調整Ca型化ベントナイト、乾燥密度1.6g/cm<sup>3</sup>)

試験No. 寒天培地	ベントナイト検体中の検出菌数(CFU), ×10 <sup>2</sup>						
	1		2		3		
	a	b	a	b	a	b	
ベントナイト層							
I	0	0	0	0	0	0	
II	0	0	0	0	0	0	
III	0	0	0	0	0	0	
IV	0	0	0	0	0	0	
最上層部	V	1030	700	4000	3860	3100	2640

表2.1-4 試験体各層の切片における菌数測定結果

(100wt%Ca型化ベントナイト、乾燥密度1.6g/cm<sup>3</sup>)

試験No. 寒天培地	ベントナイト検体中の検出菌数(CFU), ×10 <sup>2</sup>						
	1		2		3		
	a	b	a	b	a	b	
ベントナイト層							
I	0	0	0	0	0	0	
II	0	0	0	0	0	0	
III	0	0	0	0	0	0	
IV	0	0	0	0	0	0	
最上層部	V	1450	1490	5120	6230	4000	4300

## 2.2 微生物と核種の吸着性の調査研究

### (1) 平成10年度までの成果

平成11年度は、平成7年度から始まった微生物影響研究の最終年度にあたる。これまでに行われてきた実験研究計画とその概略は以下の通りである。

表2.2-1 研究実験計画の経過

項目	対象元素	環境	実施年度
1. 微生物との相互作用	Pu、Np	弱い還元性環境 (Eh = -85mV)	平成7、8年度
		強い還元性環境 (Eh = -500mV)	平成9年度
2. 微生物とベントナイト混合物との相互作用	Pu、Np	弱い還元性環境 (Eh = -85mV)	平成7、8年度
		強い還元性環境 (Eh = -500mV)	平成9年度
3. ベントナイトとの相互作用	Pu、Np	弱い還元性環境 (Eh = -85mV)	平成7、8年度
		強い還元性環境 (Eh = -500mV)	平成11年度

注) 平成10年度は、ヨウ素と微生物との相互作用実験研究

表2.2-1に示されているように、平成11年度は、強い還元性環境（硫酸還元菌）条件下で、ベントナイトとPu、Npとの相互作用の実験研究に力点を置いた。

強い還元性環境（硫酸還元菌）条件下でおこなった実験結果からは、下記のことがいえると考えられる。

- ①強い還元性環境（硫酸還元菌）条件下では、滅菌と非滅菌との違いが、Pu、Npとも明確に表れない。
- ②強い還元性環境（硫酸還元菌）条件下では、生物的要素より、化学的要素の方がより強く表れる。
- ③PuのKd値は、100 ml/gから10,000 ml/gの間で、pH依存性があるような傾向を示す。
- ④NpのKd値は、10,000 ml/g以下で、pH依存性があるような傾向を示す。

## (2) 嫌気性還元菌培養装置の試運転・培養液の作成・保存の検討

地層処分が行われる深層地下の極端に嫌気性の強い環境で繁殖する、嫌気性還元菌の純粋菌 (*Desulfovibrio desulfuricans* ATCC7757) を米国のNIST (標準・技術局) から購入した。購入したこの嫌気性還元菌の量は3mg (乾燥重量) 前後で、この量では、本実験研究のための色々な調査項目を実証することは出来ない。少なくとも購入した量の1~3万倍 (30~90g) は、確保しなければならない。このため、嫌気性還元菌を純粋培養する装置 (各2,000ml) 二基の制作をした。

嫌気性還元菌培養装置の試運転は、3ヶ月の長期にわたって行った。この間、培養装置の恒温性 (35℃)、窒素ガスによる陽圧のチェック、培養液の注入、培養装置内の外からの磁石による混合効率のチェック、老廃物の排出、そして嫌気性 (Eh) の度合いの安定性 (-485mVから-500mV) 等を、一ステップずつ行った。

注入される窒素ガスは、高純度のものを使うが、これだけでは、不十分で、ガスから酸素、炭酸ガス、微生物、エアロゾル、微量ガスを取り除く装置を通して、より完全なものとした。また、本培養装置の嫌気性還元菌が、他の実験に使われている色々な微生物を汚染しないように、この嫌気性還元菌だけを扱う専用のグローブボックスを設け、その中で全ての実験を行う仕組みにした。このグローブボックスは、カナダ政府が規制しているFume Hood基準の内では、最も厳格なAグループ、有害物質取り扱い用の基準に合致するものを制作せねばならなかった。嫌気性還元菌培養装置の試運転は、3ヶ月の長期にわたって行われたが、予定した全ての試験に合格した。

## (3) 米国NISTの標準嫌気性還元菌の培養装置を使った大量増殖

嫌気性還元菌の種を添加された培養液を純粋培養器内で緩やかに攪拌しながら、恒温 (35℃)、酸化還元電位 (-485mVから-500mV)、暗室の下で2週間培養し、攪拌を48時間中止し、古い培養液を新しい培養液で入れ替えた。この繰り返しを行い、少しずつ増殖して行った。

## (4) 嫌気性還元菌とPu, Npの相互作用実験調査とPu, Np分析方法の確立

### (a) Pu - 239の分析法

Puの分析は、まず、環境サンプルからのPu抽出、濃縮、分離、精製、そしてアルミナで磨かれたステンレス・ディスクへの電着 (電気メッキ) などの、長い (通常一



人の分析補助者が6サンプルを分析するのに1週間必要) 化学分析工程がある。もちろん、環境サンプルからPuを抽出する前に、環境Puの抽出効率を正確に知るために、内部標準トレーサーとして、Pu同位体 - 236の既知量を環境サンプル中に混入しなければならない。このPu - 236は、原子炉などの通常方法では出来ない同位体で、しかも、その濃度は、内部標準試料とするため正確でなければならない。

本研究では、このPu - 236は、イギリスのハウエル原子力研究所が製造し、その濃度を保証したものを、カナダ原子力安全局の輸入許可を得た上で購入した。

嫌気性還元菌のPuの相互作用試験調査となる分析手順は、下記の順番で行った。

- ①嫌気性還元菌集合体を含む水溶液（溶存酸素ゼロ、pH調整前）にPu - 239を窒素雰囲気下で混入し、4時間攪拌する。
- ②水溶液①を、0.22  $\mu$ mのメンブレンフィルターで、5気圧の圧力をかけ濾過する。
- ③ろ過水とフィルターを、別々のエーレンマイヤー・フラスコに入れ、何れのサンプルにも内部標準トレーサーとしてPu - 236を既知の量入れる。それらのサンプルに8mol/lの硝酸溶液100ml入れ、Puをイオン状にして抽出する。
- ④抽出されたPuは、イオン交換樹脂で、分離、精製する。
- ⑤精製されたPuは、磨かれたステンレスのデスクに電着する。
- ⑥電着されたPu - 239は、 $\alpha$ 線計測器で、Pu - 236の収率を考慮して分析定量する。

#### (b) Np - 237の分析法

Np - 237は、半減期214万年で、 $\alpha$ 線と $\gamma$ 線を放出しつつ、Pa - 233へと崩壊する。ただ、Np - 237の崩壊で出来た娘核種Pa - 233は、半減期がNp - 237に較べると極端に短く（27日）、 $\alpha$ 線と $\gamma$ 線を放出してTh - 229に崩壊する。

Npの環境サンプルの分析測定は、 $\gamma$ 線スペクトルで行われている、本研究では、比較的新しいNp - 237を、イギリスから輸入購入した。Np - 237を定量的に分析するためには、Np - 237とPa - 233の $\gamma$ 線のエネルギースペクトルで、分析する方法が、最も簡便と考えられる。ただ、この場合、両核種の $\gamma$ 線エネルギーは、非常に接近しているものが多く、例えば、Np - 237の86.49keVとPa - 233の86.61keVのピークは、通常の $\gamma$ 線検出器では分離できない。このため収率が少しでも高いNp - 237の

92.29keV(1.82%)のピークを使うことを考えた。なお、本研究の場合は、サンプルが酸性であるため、 $\gamma$ 線検出装置を腐食させないように、注意する事が重要である。

### 2.2.1 試験方法

NISTから、購入した純粋硫酸塩還元菌の増殖にしばらく時間がかかるので、平成7、8年度は、パルプ排水の嫌気性処理に使用した硫酸塩還元菌を含む微生物（以下、嫌気性還元菌と記す）を使い、Pu - 239と嫌気性還元菌との収着実験、さらにNp - 237と嫌気性還元菌との収着実験を行った。この嫌気性還元菌にとって、最適となる酸化還元電位は、約 - 85mVであった。一方、平成9年度で利用した、純粋な硫酸塩還元菌にとって最適となる酸化還元電位は、約 - 500mVである。

試験を行うにあたって、ベントナイトを用いる場合は、ベントナイト中の溶存酸素を窒素ガスで取り除いた後に用いた。試験溶液は、純水に脱酸素した窒素ガスを供給することにより、所定の酸化還元電位(Eh)に調整し、必要に応じて微量の還元剤を加えた。

ベントナイト及び微生物は、試験溶液(3~30ml)に乾燥重量で溶液の0.1wt%を添加し、分散させた。これらの操作の後、溶液のpH調整を行い、Pu - 239またはNp - 237を、それぞれ $1.0 \times 10^{-6}$ mol/l、 $1.0 \times 10^{-7}$ mol/l加え、4時間攪拌して、0.22 $\mu$ mのメンブレンフィルターで固相と液相を分離した。

分離された固体相と液体相には、Puの場合は、Pu - 236の内部標準トレーサーを一定量添加し、Puの化学分離分析を行った。この内部標準トレーサー量を分析することによって、各相のPuの収率を算出した。

微生物の滅菌は、オートクレーブ（湿式）法によって行った。

各核種の収着の程度を示す指標として、Kdの値を利用した。なおKdの定義は（Puの場合）、下記に示す。

$$Kd \text{ (ml/g)} = \frac{\text{Puが、固体の単位重量中に含まれる量(Bq/g)}}{\text{Puが、液体の単位体積中に含まれる量(Bq/ml)}}$$

## 2.2.2 試験結果

### (1) 微生物と核種の相互作用

#### (a) 微生物とPuの相互作用

図2.2-1（平成9年度）に硫酸塩還元菌とPuの相互作用の試験結果を示す。Puの収着される量は、pHに大きく影響を受け、高pH側で硫酸塩還元菌に良く収着されることが分かった。この傾向は、滅菌したものと滅菌しなかったものの双方で共通していた。

Kdの値でいえば、100 ml/g前後から80万ml/gと1万倍程度の広い範囲にまたがっており、pHが酸性側からアルカリ側へ移行するに従い大きなKd値が実測されている。この傾向が、滅菌した条件と滅菌しなかった条件の双方で同じ傾向をしていることから、強い還元性環境（-500mV）では、Puの水酸化物の生成りによって見かけ上、Kd値が大きな値を示した可能性があり、微生物の生滅よりもPuの化学形態の方が、Kd値に影響する可能性がある。このpHとKd値の関係を図2.2-2(平成7、8年度)に示す弱い還元性環境（-85mV）における条件と比較すると本試験条件の強い還元環境（-500mV）の結果と大きく異なることが分かった。

相違点としては、弱い還元性環境（-85mV）条件では、滅菌しない場合、PuのKd値が中性で大きく、極端な酸性とアルカリ側で小さくなる。一方、滅菌した場合は、pHによる影響を受けないことが挙げられる。また、Kd値も中性付近で最大値を示し、10万ml/g程度と強い還元環境の結果より小さくなっている。

これらの相違点が生じた理由としては、下記の3点が上げられる。

- ①試験溶液のEhの違いにより、Puの価数ならびに化学形が異なったため。
- ②微生物の種類が異なるため、微生物表面状態が異なったため。
- ③上記の①と②が共に影響したため。

現時点での結果のみでは、どの影響によって、Kd値とpHの関係が大きく影響を受けているのか明確でない。これらの影響を明確するためには、微生物の種類を変えずにEhの条件を変えた試験を行い、pHとEhの関係に、微生物の種類とEhのどちらの影響が大きく出ているか判断する必要がある。

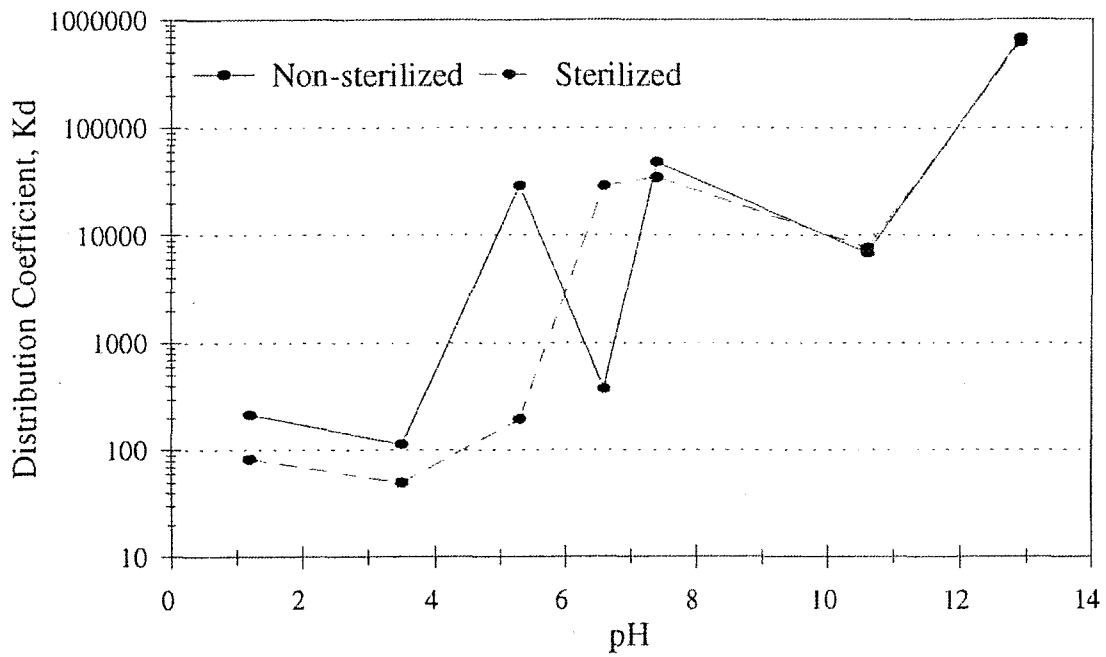


図2.2-1 Puと微生物のKd値とpHの関係 (強い還元性環境：-500mV)

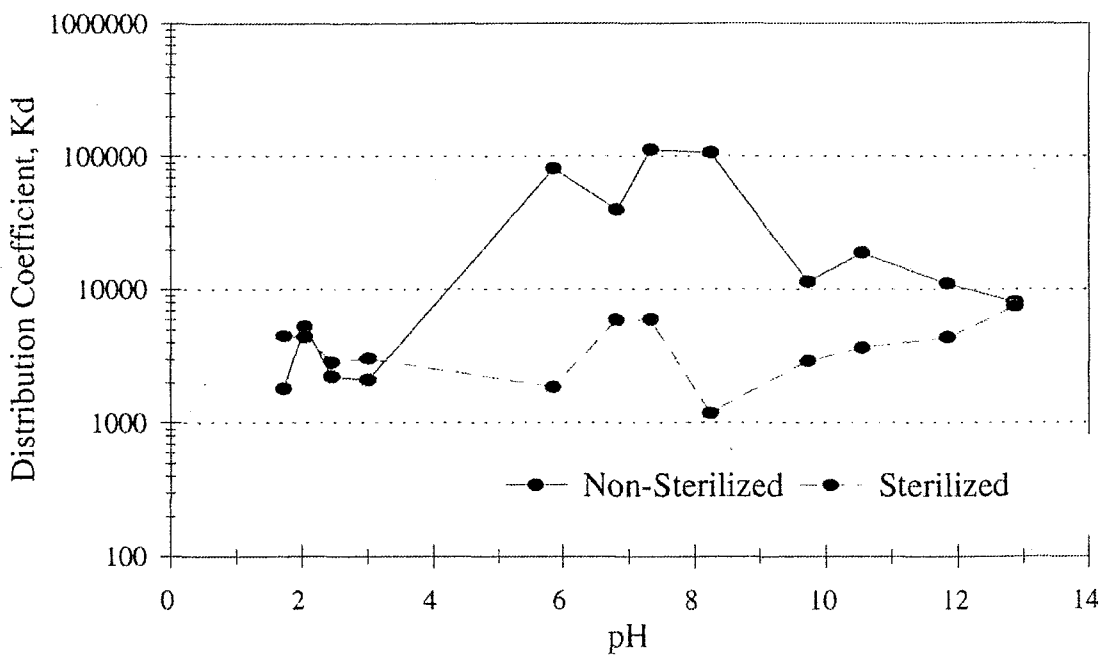


図2.2-2 Puと微生物のKd値とpHの関係 (弱い還元性環境：-85mV)

(b) 微生物とNpの相互作用

図2.2-3（平成9年度）に強い還元性環境条件（-500mV）での微生物とNpの相互作用の試験結果を示す。この結果から下記の2点が明らかになった。

- ①NpのKd値は、Puに比べ大幅に小さくなる。
- ②Puと異なりpHと強い相関性を示さない。
- ③Puと異なり滅菌した条件と滅菌しない条件でKdの値に違いが見られる。

NpのKd値は、Puに比べるとpHの小さい側（酸性側）でPuよりも大きな値を示しており、生菌条件で約100倍、滅菌条件で約十倍大きな値を示している。逆に、pHの大きい側（アルカリ性側）では、PuのKd値よりも100倍近く低い値になっている。Puの場合は、pH=3のあたりからKd値が大きくなるが、Npは、pH=7までKd値に大きな変化はなく6,000~8,000 ml/g付近で安定している。さらに、生菌条件では、全ての範囲のpHでKd値が安定しているが、滅菌状態では、pHが大きくなるほど（アルカリ側に行くほど）Kd値が大きくなる傾向にある。このようにアルカリ側でKd値が大きくなる傾向は、図2.2-1に示す強い還元環境におけるPuの挙動に類似しており、Npもアルカリ側で水酸化物等の形成により、見かけ上、Kd値が大きくなっていることが考えられる。

図2.2-3の結果と図2.2-4（平成7、8年度）に示す嫌気性還元菌の弱い還元性環境条件（-85mV）の結果を比較すると、強い還元性環境の方が、生菌条件、滅菌条件共にKd値が高くなっていることが分かった。また、弱い還元性環境では、pHが大きくなるほどKd値が大きくなる傾向を示すが、強い還元性環境では、アルカリ側でのみKd値の上昇が観測されるなどの相違点がある。

生菌条件と滅菌条件で、Kd値に大きな違いが生じていることは、生菌の活動によって、Kd値が大きくなったと考えられるが、強酸性側においても生菌条件の方が、滅菌条件よりも高いKd値を示しており、Puの試験結果と大きく異なる。Puを用いた試験結果（図2.2-1、図2.2-2）では、強酸性側と強アルカリ性側での生菌条件と滅菌条件でのKd値に大きな違いが出ていないことから、このような極端な条件では、生菌条件であっても実際には、微生物が死滅または活動できない状態になっていると考えていたが、Npの結果からは、微生物の活動による影響のみでは説明できないため、強酸性条件や強アルカリ条件における微生物の状態を顕微鏡観察等によって

確認していく必要がある。

弱い還元性環境（-85mV）条件と強い還元性環境（-500mV）条件の結果に相違がある点については、Puの場合と同様にEh条件と微生物の種類による影響によるものと考えられる。

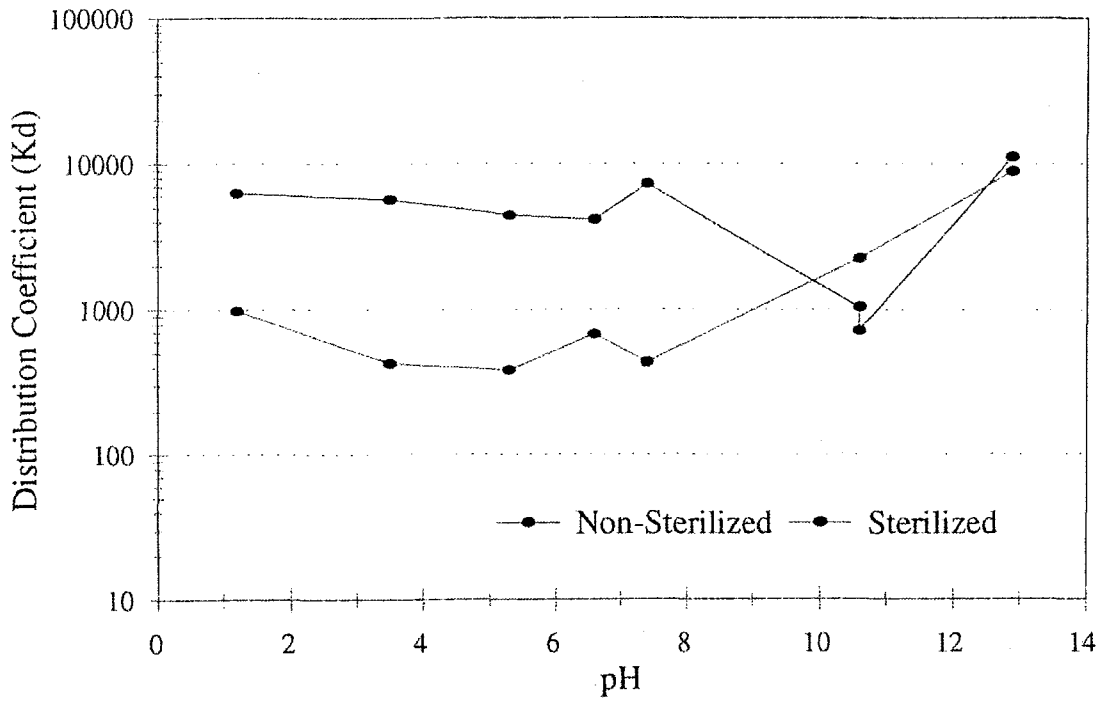


図2.2-3 Npと微生物のKd値とpHの関係（強い還元性環境：-500mV）

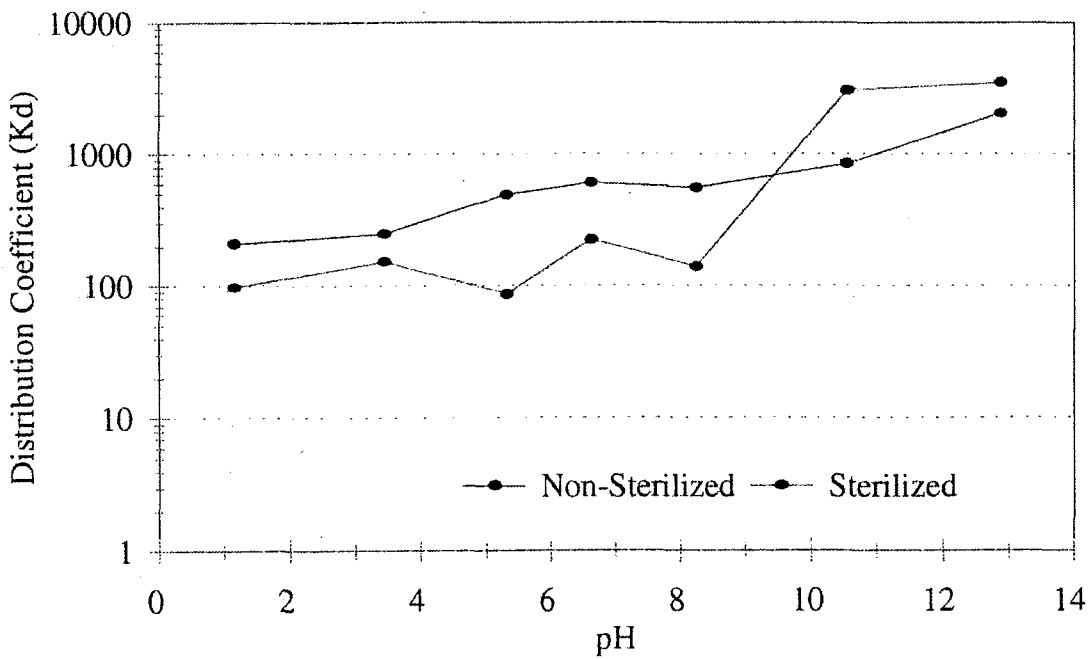


図2.2-4 Npと微生物のKd値とpHの関係（弱い還元性環境：-85mV）

## (2) ベントナイトと核種の相互作用

人工バリアの一つであるベントナイト（クニゲルV1）とPu-239とNp-237との還元状態での相互作用実験を行った。地層処分の安全確保には、長期的時間を想定した実験条件で行わねばならず、本試験は、その極端なケースの一つとしてベントナイトの粒子が地下水に完全に接触している状況を想定しての実験である。

### (a) 弱い還元性環境における相互作用

弱い還元性環境（-85mV）におけるベントナイトとPuならびにNpとの相互作用の試験結果を図2.2-5及び図2.2-6（平成7、8年度）に示す。この結果、PuとNpの双方とも滅菌処理の有り無しによる明らかな影響は確認されなかった。つまりこのことは、滅菌処理によってKd値に影響を及ぼすような因子が、ベントナイト中にはないことを示しており、想定される処分場（高レベル廃棄物）の温度条件（100℃以下）において、ベントナイトのKd値が温度による影響を受けないことを意味している。

Puは、pH=1付近以外は、pH及び滅菌処理の有無に関わらず10,000 ml/g前後のKd値になっており、微生物と核種の相互作用の結果とは大きく異なっている。特に着目すべき点は、pH=6~8付近で、生菌条件の場合、微生物との相互作用での結果（図2.2-2）ではKd値が10万ml/g近くになっており、ベントナイトとの相互作用の結果（図2.2-5）よりも大きくなっている。一方、滅菌条件では、逆にベントナイトの方が高いKd値を示している。

つまりこのことは、量比的なことを除けば、地下水が中性領域付近であれば、PuのKd値は、微生物によって、大きく影響されることを意味している。一方、地下水が高アルカリ条件となれば、PuのKd値は、ベントナイトとの相互作用によって支配されることを意味する。

Npは、Puと異なり、アルカリ性側になるにつれてKd値が少しずつ大きくなる傾向にある。この傾向は、微生物との相互作用の結果でも同じ傾向を示している。また、ベントナイトに対するKd値よりも微生物に対するKd値の方が高アルカリ側で高い値を示しているが、全体としては、ほぼ近い値を示している。このことは、NpのKd値に対する微生物とベントナイトの影響の度合いが、ほぼ同じであることを示している。

PuとNpの間では、全てのpH条件でPuのKd値の方が高い値を示している。つま



り、PuのKd値は、弱い還元性環境（-85mV）におけるpH条件、微生物やベントナイトの存在に大きく影響されるが、NpのKd値は、PuほどpH条件、微生物やベントナイトの存在に影響されないことを示している。

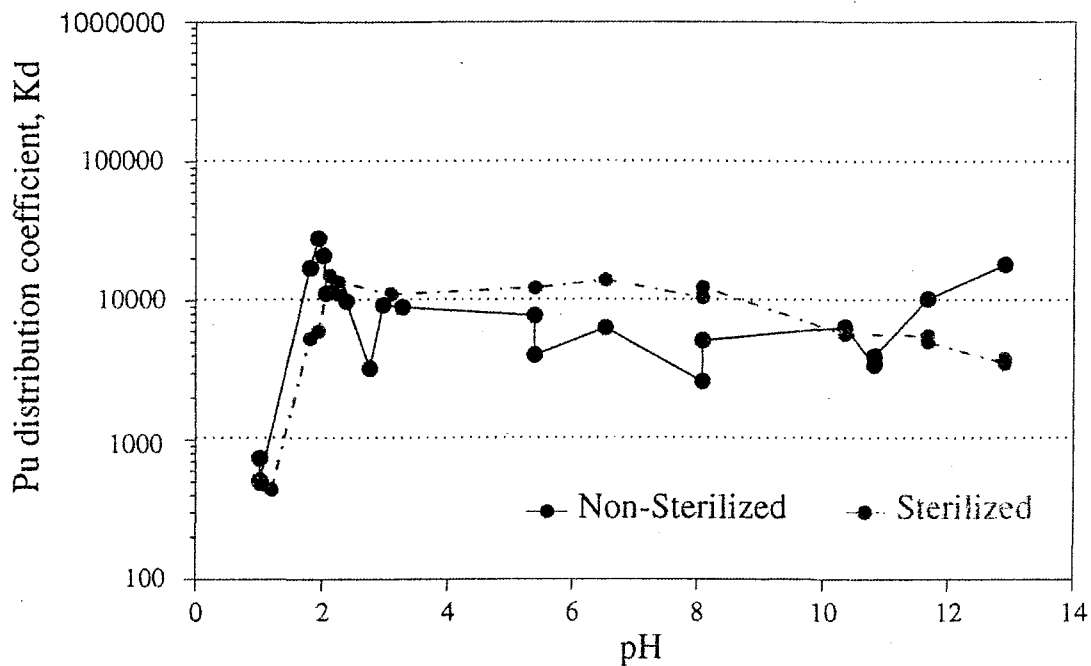


図2.2-5 PuとベントナイトのKd値とpHの関係 (弱い還元性環境：-85mV)

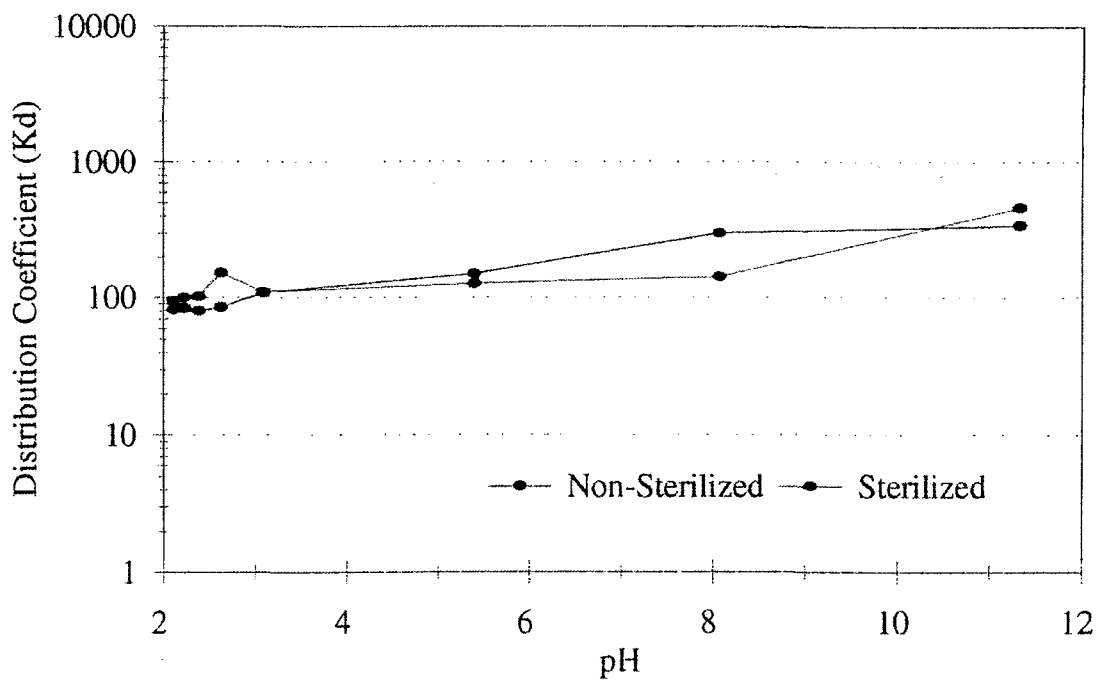


図2.2-6 NpとベントナイトのKd値とpHの関係 (弱い還元性環境：-85mV)

(b) 強い還元性環境における相互作用

強い還元性環境（-500mV）におけるベントナイトとPuならびにNpとの相互作用の試験結果を図2.2-7及び図2.2-8（平成11年度）に示す。この結果、弱い還元性環境の結果と同様に、PuとNpの双方とも滅菌処理の有り無しによる明らかな影響は確認されなかった。つまりこのことは、強い還元性環境（-500mV）においても弱い還元性環境（-85mV）と同様に、滅菌処理によってKd値に影響を及ぼすような因子が、ベントナイト中にはないことを示しており、想定される処分場（高レベル廃棄物）の温度条件（100℃以下）において、ベントナイトのKd値が影響を受けないことを意味している。

Puは、pH=3~6付近を極小値として、酸性側とアルカリ側でKd値が上がる傾向を示した。pH=3~6付近では、Kd値が100 ml/g程度なのに対し、pH=13付近では、生菌条件で40万以上の値を示している。このように、非常に高いKd値を示した理由として、Puが水酸化物沈澱を形成したことが考えられる。しかし、pH=1付近でもKd値が高くなっている理由は不明である。

Npも酸性側とアルカリ側でKd値が上がる傾向は、Puと同じであったが、極小値を示すのがpH=3~9付近と、Puよりも範囲が広がっている。また、Npは高アルカリ側で最大値を示すが、それでも10,000 ml/g以下にしかならず、Puに比べるとかなり低い値となっている。また、pH=1付近の強酸性条件では、生菌条件では、Kd=3,000 ml/gとPuと同程度の値となっている。NpもPuと同様に高アルカリ側でKd値が上がる傾向にある。この傾向もPuと同様にNpが水酸化物沈澱を形成したためと考えられる。

NpとPuのベントナイトに対する吸着挙動は、微生物に対する吸着挙動とは異なり、各Eh条件でお互いに類似した傾向を示していることが分かった。このことは、NpとPuのKd値が、微生物の活動のような複雑な影響を受けずに、ベントナイトによる単純なイオン交換反応等に支配されている可能性を示すものと考えられる。ただし、これらのデータが、繰り返し回数1回における試験データであることから、今後、データ精度向上のための繰り返し試験の実施が望まれる。

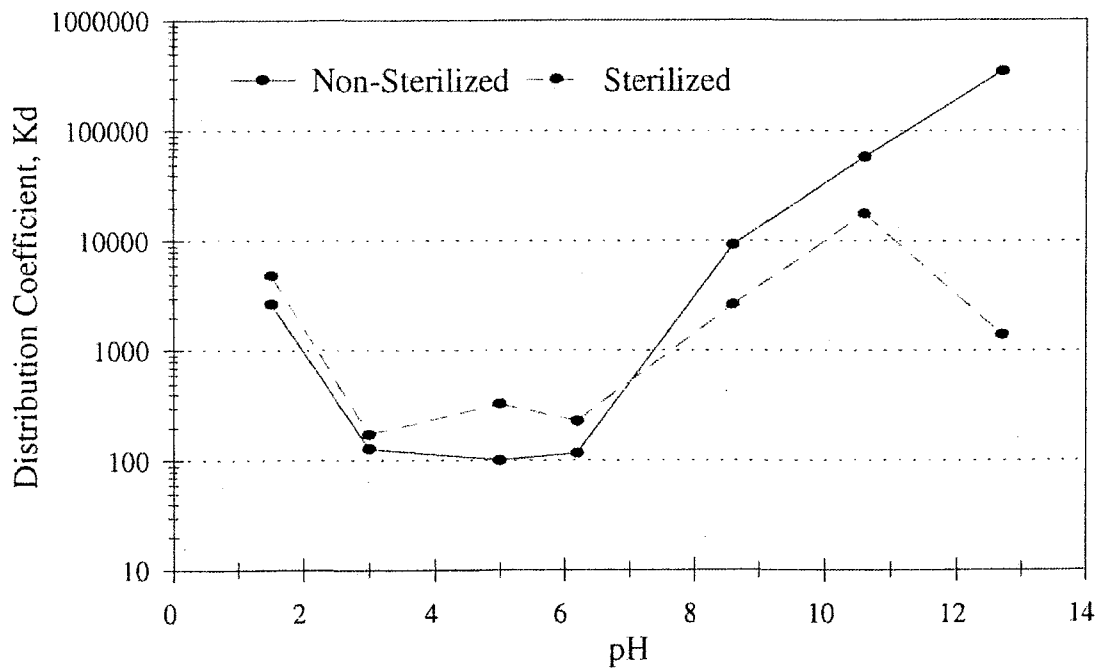


図2.2-7 PuとベントナイトのKd値とpHの関係（強い還元性環境：-500mV）

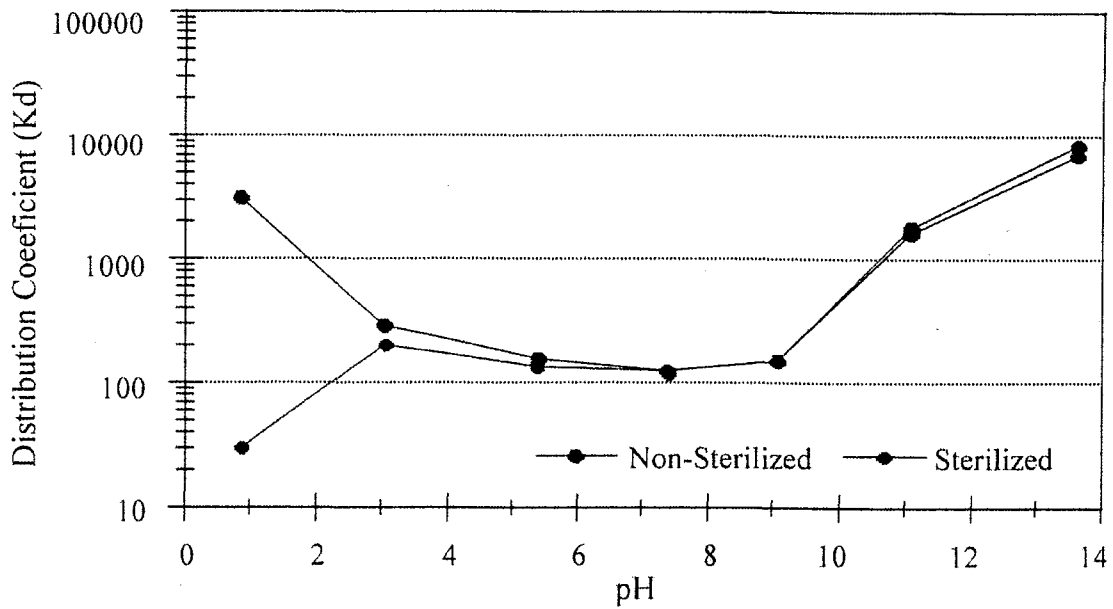


図2.2-8 NpとベントナイトのKd値とpHの関係（強い還元性環境：-500mV）

### (3) ベントナイトと微生物との混合物とPu, Npとの相互作用

地層処分場で人工バリアの一つであるベントナイトの近傍及び内側に、嫌気性還元菌が繁殖することは容易に想像される。このような場合を想定して、この想定の下でPuとNpが、どのような挙動をするのかを解明することを目的として実験を行った。

#### (a) ベントナイトと微生物との混合物とPuとの相互作用

図2.2-9（平成9年度）に強い還元性環境（ $-500\text{mV}$ ）におけるPuのpHとKd値の関係を示す。Pu-239のKdの値は、その実験条件のpHによって40~100万ml/gの広い範囲にまたがった。全体的に言えば、Kdの値は、アルカリ側に行くほど高くなる傾向を示した。このような傾向は、微生物及びベントナイトを単独で使用した試験を行った場合と一致している。ただし、ベントナイトとの相互作用においてのみ、強酸性側（ $\text{pH}=1$ 付近）でKd値の上昇が見られる（図2.2-7）。また、Kd値そのものについても100~数十万ml/gとその値の範囲も一致しており、微生物の生菌条件、滅菌条件で、挙動に大きな差がでない特徴も非常によく似ている。

微生物の共存によるPuの挙動に対する影響として明らかなのは、図2.2-7に示すように、 $\text{pH}=3\sim 6$ 付近で、ベントナイトのみの条件では、PuのKd値が100 ml/g付近で安定しているが、微生物のみ（図2.2-1参照）またはベントナイトと微生物が混在している条件（図2.2-9参照）では、Kd値が1000~10000 ml/g近い値を示していることである。つまり、強い還元性環境（ $-500\text{mV}$ ）における微生物による影響は、中性領域から弱酸性側に限られる可能性があることを示している。一方、図2.2-10（平成7、8年度）に示す弱い還元性環境（ $-85\text{mV}$ ）では、 $\text{pH}5\sim 10$ 付近で、生菌条件の場合には、明らかにKd値が高くなる傾向を示している。

この理由として、弱い還元性環境（ $-85\text{mV}$ ）においては、強い還元性環境（ $-500\text{mV}$ ）にくらべて、Puが4価以外の価数を取ることがあるため、アルカリによる加水分解が生じにくくなり、微生物との相互作用による影響の方が強く出たのではないかと考えられる。つまりこのことは、逆に強い還元性環境（ $-500\text{mV}$ ）では、PuのKd値が、加水分解によって支配される可能性を示していると言える。ただし、この傾向は、これまで実施してきた試験条件における結果から導いたものであり、他の微生物を用いた試験でも同様な結果が得られるとは断定できない。今後、様々な微生物を用いた試験を実施し、検証する必要があると考える。

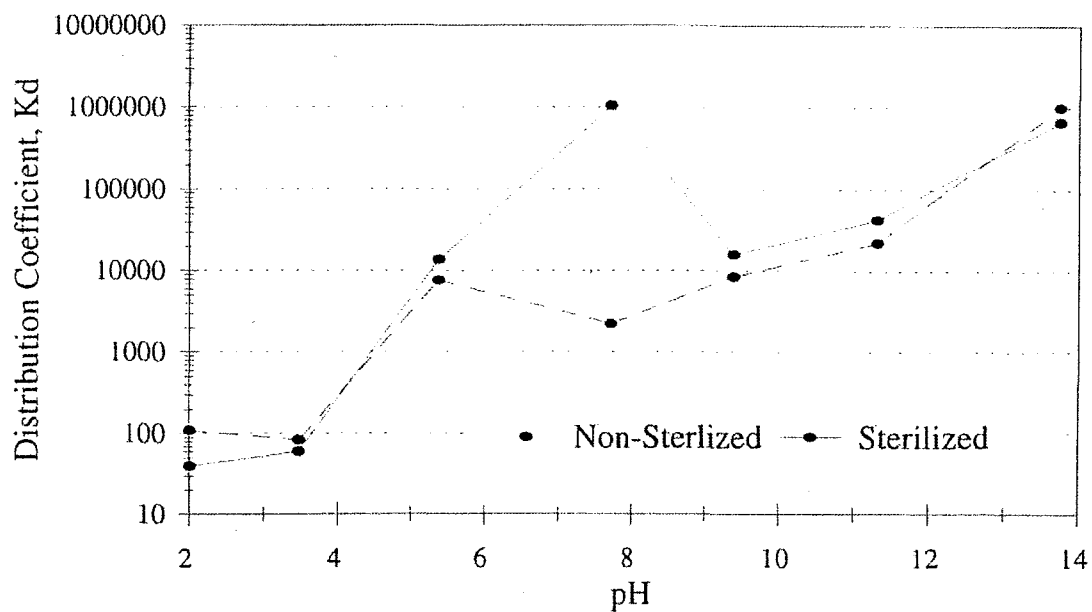


図2.2-9 Puとベントナイト、微生物共存下におけるKd値とpHの関係  
(強い還元性環境： - 500mV)

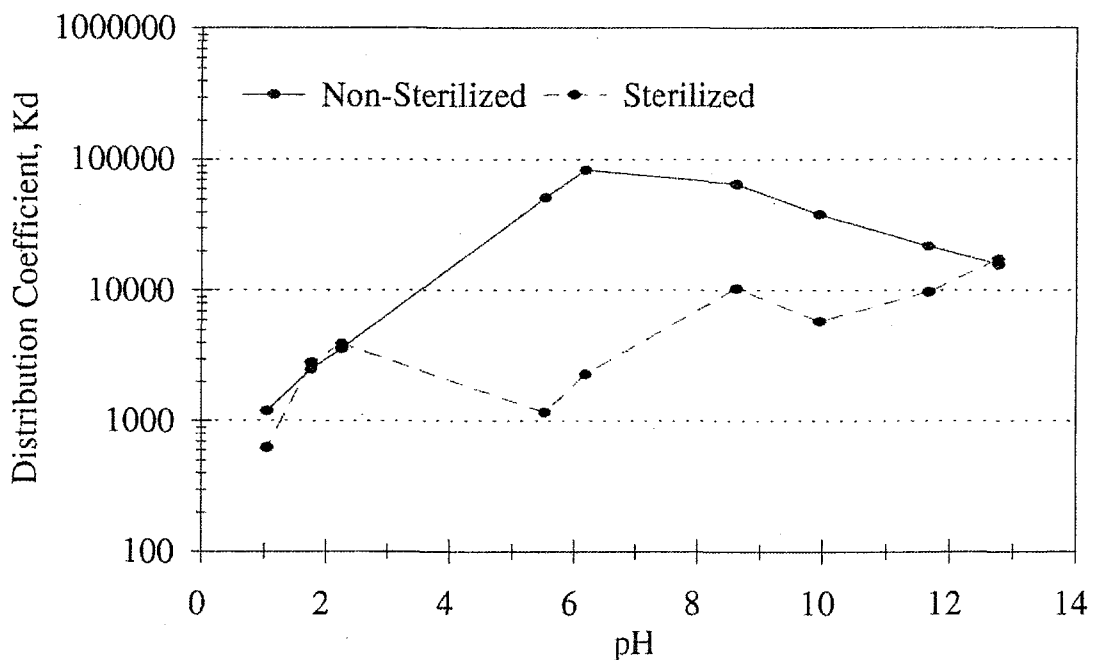


図2.2-10 Puとベントナイト、微生物共存下におけるKd値とpHの関係  
(弱い還元性環境： - 85mV)

(b) ベントナイトと微生物との混合物とNpとの相互作用

図2.2-11（平成9年度）に強い還元性環境（ $-500\text{mV}$ ）におけるNpのpHとKd値の関係を示す。Np-237のKdの値は、その実験条件のpHによって500~10,000 ml/gと、Puに比べる非常に狭い範囲にあることが分かる。Kdの値は、アルカリ側に行くほど若干、高くなる傾向を示すが、Puほど明確な傾向を示さない。この傾向は、微生物及びベントナイトを単独で試験を行った場合と一致しない点がある。特に、図2.2-3に示した微生物との相互作用に関する結果では、生菌と滅菌条件での違いがあるが、強酸性側でKd値が小さくなることはなかった。また、図2.2-8に示す、ベントナイトのみの結果でも同様である。図2.2-11の結果において新しい傾向として示されたのが、pH=6~9付近において、滅菌条件でのKd値が生菌条件に比べて小さくなることである。この傾向は、図2.2-12（平成7、8年度）に示す弱い還元性環境（ $-85\text{mV}$ ）においても同様である。つまりこのことは、Npの場合、微生物の活動が、活発な中性領域では、Npの挙動に大きく影響することを示唆していると考えられる。さらに、強い還元性環境（ $-500\text{mV}$ ）では、この中性領域でのKd値が8,000 ml/g付近までなることから、弱い還元性環境（ $-85\text{mV}$ ）に比べるとその影響度は大きいと考える。

強い還元性環境（ $-500\text{mV}$ ）においてNpのKd値が、弱い還元性環境（ $-85\text{mV}$ ）に比べて大きくなっている理由としては、一般的にイオン交換反応において、酸化状態が5価のNpのKd値が小さくなることが言われており、弱い還元性環境（ $-85\text{mV}$ ）では、Npが不均化反応によって、4,5,6価の価数を取るのに対し、強い還元性環境（ $-500\text{mV}$ ）では、主に4価の状態安定化したためと考えられる。

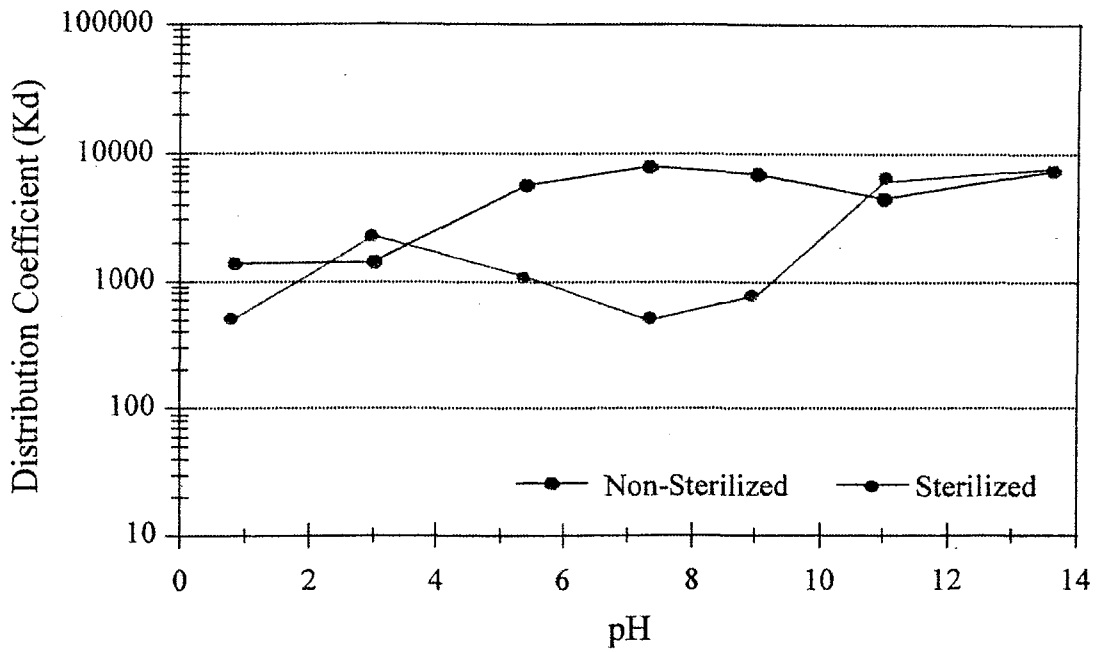


図2.2-11 Npとベントナイト、微生物共存下におけるKd値とpHの関係  
(強い還元性環境： - 500mV)

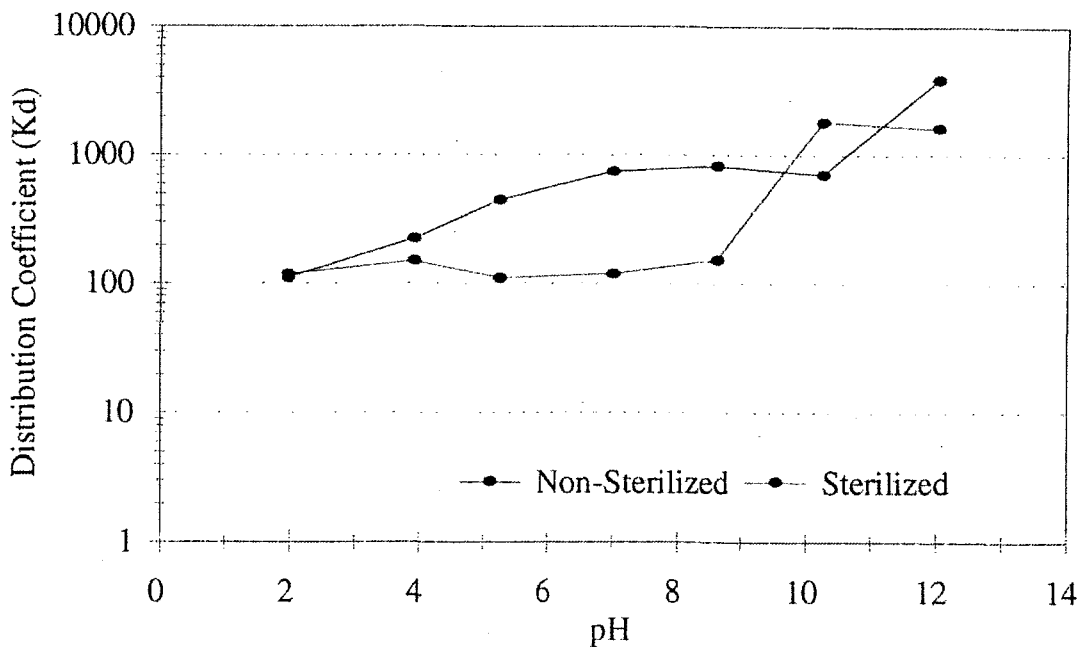


図2.2-12 Npとベントナイト、微生物共存下におけるKd値とpHの関係  
(弱い還元性環境： - 85mV)



#### (4) コロイド等とのPu, Npの相互作用の測定法に関する検討

核燃料再処理の際発生する、高レベル放射性廃棄物であるガラス固化体を地層処分し、その安全を一万年間確保するためには、この期間に発生するであろう色々なシナリオに、現在の科学技術で対処しなければならないことは、前述した通りである。そのシナリオの一つとして、炭素鋼オーバーパックの周辺を取り囲む緩衝材、ベントナイトに、地下水が侵入し、そこで嫌気性微生物、特に嫌気性還元菌が、発生することが考えられる。ただ、ここで考えなければならないことは、嫌気性還元菌の個々の菌は、一万年間生き続けるのではなく、そこには、生命の生滅が、何百、何千回も繰り返されることである。

これまで報告してきた試験結果は、いずれも微生物の生存状態と死滅した直後の挙動でしかない。微生物の影響は、死滅後に形成される様々な有機物との相互作用も視野に入れないと、本来の意味で微生物の影響全体を議論するのは難しいと考える。

そこで微生物の生滅が、PuやNpの挙動に与える影響を、検討しなければならない。この様な、深層地下環境で起こるであろう現象は、現在の科学的知見では、下記のよう整理される。

- ①嫌気性還元菌の生滅は、微少な有機物、コロイド、生化学生成物（例えば、酵素や高分子蛋白）等を生み出す。
- ②PuやNpは、これら嫌気性還元菌の生滅から発生した高分子有機物あるいは簡単なメチル基と、強く結合する可能性がある。
- ③有機物と結合したPu（有機Pu）やNp（有機Np）の環境中での挙動については、現在殆ど解明されていない。
- ④長崎市西山貯水池の底土、カナダ原子力公社のベントナイト中のPu拡散実験からは、「動きにくいPuと動きやすいPu」の二種類のPuが、発見されている。どちらのケースでも、その媒体に有機物の存在が、記録されている。

言い換えると、嫌気性還元菌の生滅によって、有機Puや有機Npが生成されることが考えられる。そして、少なくとも有機Puは、無機のPuより「動きやすい」ことを示唆する実験データが、報告されている。

この動きやすいコロイド、微生物、生化学的に微生物から生成された物質（特に有機物）と結合したPuの新しい分析方法の開発方針としては、まず、二つの方向が考えられる。いずれの方法にしても試験方法の検討ならびに確立に向けた試験を始める必要があると考える。

- ①分子分画法による前処理によって、イオン状のPuとそれ以外を分離する
- ②有機溶剤で有機性Pu、有機性Npを抽出し、イオン状のPuと分離分析する

### 3.まとめ

#### 3.1圧縮ベントナイト中での透過性に関する研究

平成7年度から微生物の圧縮ベントナイト中における移行性の試験を行ってきたが、その最終結果を表2.1-7に示す。

これらの試験条件での菌の透過傾向を見ると、Na型ベントナイトでは乾燥密度（1.2, 1.6, 1.8g/cm<sup>3</sup>の3条件）よりも、ケイ砂混合率（0, 30, 50, 80wt%の各条件）の方が菌の透過に影響が大きいことがうかがえる。特に、ケイ砂混合率50 wt%Na型ベントナイトでは、同一条件の乾燥密度で成型体により菌の透過にばらつきがみられ、個々のベントナイト成型体の性状に影響されやすい微妙な領域であるということが推測される。

また、Ca型化ベントナイト成型体は、同一乾燥密度（1.6g/cm<sup>3</sup>）のケイ砂混合率3条件（50, 30, 0wt%）しかデータを蓄積していないため評価が難しいが、同条件のNa型ベントナイトより微生物が透過しやすいことがうかがえる。この理由としては、Na型ベントナイトよりCa型化ベントナイトの成型体の粘性が低いことや、膨潤時にNa型ベントナイトにくらべて膨張しにくいいため、成型体中にケイ砂などが存在すると微細な間隙が残りやすいなどが考えられる。

以上の試験結果から、試験開始後3週間目における微生物（大腸菌）のベントナイト中の透過を抑えられる条件は、ケイ砂の混合率30wt% 以下であった。ただし、ベントナイトが劣化しCa型化した場合を想定すると、試験開始後3週間目における微生物（大腸菌）のベントナイト中の透過を抑えられる条件は、ケイ砂の混合率0wt%であった。今回の試験期間は3週間（21日）以下であるため、さらに長期の試験を行った際、各ベントナイトの変化がどのように微生物の透過に影響するのかは今後の検討課題といえる。

表3.1-1 試験体の各層の切片における菌数測定結果（平成7年度～平成11年度）

乾燥密度	1.8(g/cm <sup>3</sup> )			1.6(g/cm <sup>3</sup> )				1.2(g/cm <sup>3</sup> )					
ベントナイトの種類	Na			Ca				Na		Na			
ベントナイト(wt.%)	100	50	20	100* <sup>1</sup>	100* <sup>2</sup>	70	50	100	50	100	70	50	20
ベントナイト層底面25mm	—	—	●	—	—	—	—	—	—	—	—	—	●
I 20mm	○	○	●	○	○	○	●	○	○	○	○	○	●
II 15mm	○	○	●	○	○	▲	●	○	○	○	○	○	●
III 10mm	○	○	●	○	○	●	●	○	○	○	○	○	●
IV 5mm	○	▲	●	○	○	●	●	○	▲	○	○	▲	●
最上層部 V 0mm	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●

●：透過が認められたもの

○：透過が認められなかったもの

▲：一部に透過が認められたもの

—：壁面回り込み菌検出の懸念のため測定しなかったもの

\*1：pH調整無し

\*2：pH調整有り(pH=10)

### 3.2微生物と核種の吸着性の調査研究

微生物に対するNp及びPuのKd値は、弱い還元性環境(Eh= - 85mV)において、微生物の活動によって影響を受けることが分かった。微生物を滅菌した条件では、微生物に対する各元素のKd値は、ベントナイトに対するKd値とほぼ同じレベルになった。この死滅した微生物とベントナイトのKd値の類似性が、各元素の挙動そのものに起因するかどうかについては、現時点では分からないが、少なくとも微生物が死滅したとしてもベントナイトと同程度の核種吸着性があることになる。さらに、生菌条件では、特に、弱酸性から中性付近(pH=3~8付近)で微生物の活動によるものと考えられるKd値の上昇が観測されている。このpH領域は、微生物が活動できる領域であることと、NpとPuの存在状態に大きな変化が出ないと考えられるため、微生物の活動そのものがKd値に影響していると考えるのが妥当と思われる。pH=8以上では、各元素共に、微生物による影響の有無が不明確になっている。これは、加水分解による水酸化物の形成が無視できないためと思われる。

一方、強い還元性環境(Eh= - 500mV)においても同様の傾向が観察される。Npについては、生菌条件における微生物の影響が非常に大きくなっており、同じ生菌条件の弱い還元

性環境( $E_h = -85\text{mV}$ )の $K_d$ 値よりさらに1桁近く高い値を示している。これはNpが強い還元性環境( $E_h = -500\text{mV}$ )において、主に4価で存在するためと考えられる。

Puは、Npと同様に強い還元性環境( $E_h = -500\text{mV}$ )において主に4価で存在すると考えられる。Puの4価は、水酸化物を形成する可能性があるため、本試験の結果においてアルカリ側で $K_d$ 値が上昇する傾向が見られたと考えられる。このPuの水酸化物形成によって、微生物によるPuの $K_d$ 値への影響がわかりにくくなっていると考えられる。

本研究の成果によって、微生物によるNp、Puの挙動に対する影響が明らかになったと考える。特に、溶液条件が中性領域に近い、例えば、処分場から生物圏に至る間の天然バリア内での移行挙動に対して、微生物の活動が大きく影響することは明らかである。

以上に述べたように、本研究の結果、ある一定の条件下では、PuやNpが微生物に優先的に収着されることが明らかとなった。ただし、この結果は、特定の微生物と特定の条件下の結果であるため、普遍的なものの傾向として述べるのが難しいことである。

本研究の成果をより普遍的な傾向としてまとめて行くためには、下記の試験が必要と考える。

- ①微生物の種類による、 $K_d$ 値への影響度の違いの把握
- ② $E_h$ の条件を、より細かくし、様々な $E_h$ 条件における影響の変化を求める
- ③各 $E_h$ 条件におけるPu、Npの溶液中での化学形の調査

一方、自然環境における微生物の状況を考慮して、微生物の死滅後や代謝物との相互作用について調査し、微生物の活動全体に対する影響を調査する必要があると考える。