

地層処分における微生物影響の評価研究（ ）
（ 概要 ）

（ 核燃料サイクル開発機構 業務委託報告書 ）

2 0 0 3 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村松4番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

電話: 029-282-1122(代表)
ファックス : 029-282-7980
電子メール: jserv@jnc.go.jp

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 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)
2003

2003年2月

地層処分における微生物影響の評価研究()(概要)

(核燃料サイクル開発機構 業務委託報告書)

福永 栄* 岩田 裕美子* 菅野 毅* 工藤 章**

要旨

地層処分における微生物影響の評価に関わる次の2つの調査及び試験を実施した。

微生物影響評価に関するモデルの調査

微生物と核種の相互作用評価

微生物影響評価のためのシミュレーションモデルは、地層処分施設の性能予測の信頼性を高めるのに寄与すると期待されている。我々はガス発生に関して三つ、地球化学に関して五つ、微生物腐食と微生物量に関して各々一つの論文を調べ、モデルの概略を把握した。有機物の生分解性評価、微生物量の評価、モデルの検証等の課題が依然として残っており、今後の検討が必要と考える。

微生物と核種の相互作用評価は、嫌気性微生物を用い、酸化還元電位を最も活性である-85mVから強制的に-135mVに設定し実施した。酸化還元電位がPuの分配係数に及ぼす影響を評価した。還元性環境下(Eh=-135mV)でのPuの分配係数(Kd)への滅菌処理による影響は見られなかった。

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との委託研究契約により実施した研究成果に関するものである。

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

処分材料研究グループ

* 石川島播磨重工業株式会社

** 京都大学

Study on microbial influence assessment in geological disposal()
Summary Report

(Document Prepared by Other Institute, Based on the Trust Contract)

Sakae Fukunaga*, Yumiko Iwata*, Takeshi Kanno*, and Akira Kudo**

Abstract

We conducted the following for investigations concerned with microbial influence in geological disposal facilities.

(1) Literature survey on simulation models for the microbial-influence evaluation (2) Interaction between SRB (sulfate reducing bacteria) and Pu in a reducing environment at $E_h = -135\text{mV}$.

Simulation models for the microbial-influence evaluation are expected to make the prediction of the facilities' performance more reliable. We studied 3 papers on gas production, 5 papers on geochemistry, 1 paper on microbial corrosion, and 1 paper on microbial amount, and summarized the models. Subjects such as evaluation of biodegradability of organic matter, evaluation of microbial amount, and certification of the model are still remaining, which will be necessary to study.

The difference between distribution coefficient of $E_h = -85\text{mV}$ and $E_h = -135\text{mV}$ was evaluated. Effects of sterilization on the distribution coefficient (K_d) of Pu were not evident at $E_h = -135\text{mV}$.

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

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

* Ishikawajima-Harima Heavy Industries Co., Ltd

** Kyoto University.

目次

1 はじめに.....	1
1.1 研究開発の背景・動機.....	1
1.1.1 研究開発の背景.....	1
1.1.2 研究開発の動機.....	1
1.2 他機関やこれまでの関連研究開発の状況.....	3
1.2.1 微生物影響評価に関するモデルの調査.....	3
1.2.2 微生物と核種の相互作用評価.....	3
1.3 本研究開発の位置づけ・目的.....	4
1.3.1 微生物影響評価に関するモデルの調査.....	4
1.3.2 微生物と核種の相互作用評価.....	4
1.4 研究開発方法の概要・特徴・特記事項.....	7
1.4.1 微生物影響評価に関するモデルの調査.....	7
1.4.2 微生物と核種の相互作用評価.....	7
2 微生物影響評価に関するモデルの調査.....	8
2.1 調査の方法.....	8
2.2 調査の結果.....	8
2.3 結果の考察・検討.....	8
2.3.1 概要.....	8
2.3.2 ガス発生モデル.....	9
2.3.3 地球化学的影響モデル.....	10
2.3.4 腐食・材料劣化へのモデル.....	12
2.3.5 微生物量を求めるモデル.....	12
2.4 まとめと課題.....	14
3 微生物と核種の相互作用評価.....	17
3.1 研究開発の方法.....	17
3.1.1 試験方法.....	17
3.1.2 データの解析方法.....	18
3.2 研究開発の結果.....	20
3.2.1 結果.....	20
3.3 結果の考察・検討.....	28
3.3.1 実験結果の考察.....	28
3.3.2 本年度の実験結果を踏まえた将来の実験計画.....	29
4 おわりに.....	31
4.1 微生物影響評価に関するモデルの調査.....	31

4.2 微生物と核種の相互作用評価.....	31
4.3 今後の課題.....	32
4.4 おわりに.....	33
5 参考文献.....	34
5.1 参考文献(第1章).....	34
5.2 参考文献(第2章).....	35
5.3 参考文献(第3章).....	36

表目次

表 1.3-1	微生物と核種の相互作用評価実施状況	6
表 3.2-1	Pu と消化汚泥との分配係数	22
表 3.2-2	Pu と滅菌した消化汚泥との分配係数	23
表 3.2-3	Pu と消化汚泥 / ベントナイト混合物との分配係数.....	26
表 3.2-4	Pu と滅菌した消化汚泥 / ベントナイト混合物との分配係数	27

図目次

図 2.4-1	微生物影響のモデルの基本構成の例	14
図 3.1-1	プルトニウムを含む各種アクチノイドのアルファ線スペクトロメータ ーで計測されるエネルギーの例	19
図 3.2-1	消化汚泥とプルトニウムの分配係数 (K d)	21
図 3.2-2	消化汚泥 / ベントナイト混合液とプルトニウムの分配係数	25
図 3.3-1	平成 7、8 年度に得られた消化汚泥とプルトニウムの分配係数 (Eh=-85mV)	29

1 はじめに

1.1 研究開発の背景・動機

1.1.1 研究開発の背景

地層処分施設の性能評価において微生物の影響にどの程度配慮すべきかは、難しい問題である。1980年代に海外で、材料劣化、ガス発生、水質変化、核種移行、などに及ぼす微生物の影響が指摘されて[1][2]以来、多くの調査、研究がなされてきた。その結果は次の見解を導いている。

- ・ 地層処分施設が設置されると想定される地下環境には、地上に遜色ない、かなりの密度の微生物が生存している[2][3]うえ、処分施設操業時において地上から持ち込まれた廃棄物や処分施設構成材料等に付着し、微生物が持ち込まれると想定される[2][4]。
- ・ このような天然の微生物や持ち込まれた微生物は、廃棄物近傍での高熱や放射線によっても、処分施設全体で死滅するとは断言し難く、また時間とともに生存しやすくなる[5]。
- ・ 一方、処分施設周辺部に生存する微生物は、廃棄物処分後の長期間経過後に、核種移行等に影響を及ぼすと考えられる[6]。

以上より、地層処分施設全体において微生物の影響を定量的に評価する具体的なツールが無い場合、現状の予測は物理化学的シミュレーションのみに基づいたものとなっている。具体的に現状の問題点をまとめると以下のとおりとなる。

微生物が関与する様々な事象に関する実験的研究はあるが、地層処分への影響を長期的に評価するために組み込むべきモデルが整備されていない。

異なる酸化還元電位における核種と微生物の相互作用のデータが十分に蓄積されておらず、核種移行に及ぼす微生物の影響評価が遅れている。

1.1.2 研究開発の動機

本研究の動機は、地層処分施設における長期予測の信頼性の一層の向上のため、これらの課題に応える調査、実験のデータを蓄積し、微生物影響評価の精度を高めること、また今後必要な検討項目を抽出することである。

廃棄物が処分される深部地下環境は、低栄養かつ低酸素条件であるが、地下深部においても生息する微生物が存在することが確認されている。また、処分施設操業時において地

上から持ち込まれた廃棄物や処分場施設構成材料等にも微生物は付着・存在するため、地層処分の評価に当たって無視することは困難であるとの認識がなされている。確かに、人工バリア材料として用いられる高密度に締め固められたベントナイト中を微生物が移行しにくいことから処分場内での微生物活動は制限されると考えられる。しかしながら地質媒体中では微生物は存在することから人工バリア中を移行した核種が微生物とどのように相互作用し、地質媒体中を移行するこかを評価することが重要となる可能性もある。

本研究ではこれら微生物の放射性廃棄物地層処分に対する影響について、これまで国内外で検討されているモデルの調査を行い、そのモデルの得失、課題等の検討を行う。さらに核種と微生物の相互作用にかかわる基礎的なデータを得るための試験を実施する。

1.2 他機関やこれまでの関連研究開発の状況

1.2.1 微生物影響評価に関するモデルの調査

公開されたものとしては、中低レベル放射性廃棄物を中心に処分場における微生物影響に関するシミュレーションモデル、とりわけ影響評価項目としてガス発生に着目したモデル等が数例開発されている。

1.2.2 微生物と核種の相互作用評価

核種と微生物の相互作用については、平成7年度より福永、工藤らにより Pu、Np、I を用いた一連の試験[6][7][8][9][10][11][12][14]を実施しており、データを蓄積している。

1.3 本研究開発の位置づけ・目的

1.3.1 微生物影響評価に関するモデルの調査

微生物の放射性廃棄物地層処分に対する影響について、これまで、pHの変化、キレート形成、コロイド形成、酸化還元反応、吸着/核種取り込み、コンクリート劣化、金属腐食、アスファルト劣化、ベントナイト変質、空隙閉塞、ガス発生という項目で影響があることが定性的に示されている[13]。その一部に関しては、ある程度の実験データも提供されてきた。しかし、それらは処分環境、とくに TRU 廃棄物の処分環境で微生物影響を定量的に予測するのに充分といえるレベルには達していない。その大きな理由として、多くの実験において、微生物量、微生物にとってのエネルギー源、栄養塩などの組成・濃度が処分場におけるより微生物に好適な条件に設定されていること、これらのデータを加速試験結果と位置づけて使うにしても、処分環境における長期予測に適用するためのツールが整備されていないことの二点が挙げられる。

本研究開発では、後者のツールとして、シミュレーションモデルに関する調査を行い、微生物影響予測への適用可能性の評価や今後必要な開発の見通しを立てる。

1.3.2 微生物と核種の相互作用評価

(1) 平成 11 年度までの試験の概要

本研究の位置づけは、地層処分の埋め戻し緩衝材（ベントナイト）中に微生物が発生するシナリオを想定し、これが放射性廃棄物から地下水に溶出するアクチノイド元素と相互作用する現象を解明することにある。

この趣旨のもと、平成 7 年度から始まった微生物と核種の相互作用評価[7]の実施状況は、表 1.3-1 に示す通りである。以下にその概略と評価を示す。

平成 11 年度までは、弱い還元性環境の嫌気性微生物と強い還元性環境（硫酸還元菌）の二つの条件下で、埋め戻し緩衝材ベントナイトとプルトニウム、ネプツニウムとの相互作用の実験研究がなされた。この一連の研究により、嫌気性微生物とアクチノイド元素の相互作用について、広範な領域のデータを得ることが出来た。しかし、現状では詳細な研究を行う段階にまで到達していない。

平成 7 年から平成 11 年度までの 5 年間行われた研究[7][8][9][10][11][14]の成果を一言で総括すると、「プルトニウムとネプツニウムの地層処分場周辺での挙動は、その環境で棲息する微生物に大きく影響される場合があることを実験的に証明した」ことである。

これらの成果をより深く解明する必要性が生じたため、平成 12 年度からは新たな実験研究を行うこととなった。この研究期間の特徴は、使用した微生物が生息する特殊な還元性環境を人工的に大きく変化させ、その還元性環境のもとでアクチノイド核種(Np-237、Pu-239)の挙動の変化を調べるものである。平成 12、13 年度は、長半減期アクチノイド核種としてネプツニウム(Np - 237)の挙動に与える微生物の特異な影響研究を、さらに詳しく実験的に解明することとした[12][6]。

具体的には微生物の最も活性である生息環境のうち Eh を変化させ、微生物の影響を調査した。

表 1.3-1 微生物と核種の相互作用評価実施状況

微生物との相互作用		
	弱い還元性環境 (Eh=-85mV)	強い還元性環境 (Eh=-500mV)
プルトニウム	平成 7, 8 年度	平成 9 年度
ネプツニウム	平成 7, 8 年度	平成 9 年度
微生物とベントナイトの混合物との相互作用		
	弱い還元性環境 (Eh=-85mV)	強い還元性環境 (Eh=-500mV)
プルトニウム	平成 7, 8 年度	平成 9 年度
ネプツニウム	平成 7, 8 年度	平成 9 年度
ベントナイトとの相互作用		
	弱い還元性環境 (Eh=-85mV)	強い還元性環境 (Eh=-500mV)
プルトニウム	平成 7, 8 年度	平成 11 年度
ネプツニウム	平成 7, 8 年度	平成 11 年度
微生物の還元性 (Eh) とアクチノイド元素との相互作用		
ネプツニウム	弱い還元性環境 (Eh=-85mV)	強い還元性環境 (Eh=-135mV)
微生物種	平成 13 年度 / SRB (硫酸還元菌) 強い還元性環境を好む微生物	平成 12 年度 / 消化汚泥 弱い還元性環境を好む微生物
プルトニウム	弱い還元性環境	強い還元性環境
微生物種	将来実施予定 / SRB (硫酸還元菌) 強い還元性環境を好む微生物	平成 14 年度 / 消化汚泥 弱い還元性環境を好む微生物

(2) 本年度の試験の目的

還元性 (Eh) の程度 (-85mV および -135mV) が、微生物とアクチノイド元素との相互作用にどの程度影響を与えるのか。また、微生物の種類そのものの影響は大きいのかどうかを明らかにするため、本年度は弱い還元性環境を好む嫌気性微生物 (消化汚泥) を用い、酸化還元電位を -135mV に設定し研究を実施することとした。

1.4 研究開発方法の概要・特徴・特記事項

1.4.1 微生物影響評価に関するモデルの調査

JICST、INIS 等の文献検索システムを用いて調査した。

1.4.2 微生物と核種の相互作用評価

日本での取り扱い方法、取扱量、使用可能な施設が厳しく制限されている Pu や Np と微生物を用いた試験をカナダの CABER に委託し実施している。

2 微生物影響評価に関するモデルの調査

2.1 調査の方法

JICST、INIS等の文献検索システムを用いて、文献検索を行った。キーワードは、微生物、シミュレーション、コード、モデル等とした。

調査対象は、上記で検索した文献のうち、放射性廃棄物の処分に関連するものを中心に、入手可能な公開文献を対象とした。

入手した文献を整理するための視点として、モデルの目的、モデルの開発機関（または論文の著者）、モデルの基本構成、入力データ、出力データ、対象廃棄物、対象の場、微生物増殖の基礎式、微生物増殖シミュレーションのための実験データの有無、微生物影響として取り上げられた項目、微生物影響の基礎式、微生物影響シミュレーションのための実験データの有無、モデルの適用例、モデルの検証の有無、モデル毎の得失・課題、モデル詳細に関する資料（未入手）という16項目を選び、各論文についてリストを作成することとした。なおモデル毎の得失・課題のみ見解を記述し、他の項目については原著をレビューして記述した。

リストを作成し、論文内容を吟味し、コードの考え方が文献中に記述されているものを主体に考察を行った。

2.2 調査の結果

文献検索で入手した論文の中から、シミュレーションモデルに関する10報の論文を抽出した。その内訳は、微生物によるガス発生シミュレーションに関するもの3報、微生物による地球化学的影響に関するもの5報（地層処分に直接係わらないもの1報、微生物に直接係わらないもの1報を含む）、微生物腐食のシミュレーションに関するもの1報、微生物量（バイオマス）のシミュレーションに関するもの1報であった。

2.3 結果の考察・検討

2.3.1 概要

今回の調査では、シミュレーションモデルに関する公開されている文献に基づいてモデル式の内容、代謝反応、測定値/設定値の取扱い等に関する分析、検討を行い、既存のモデルが概略どのような趣旨で作られているか、その適用性や限界を明確にすることに主眼を置いた。その結果として、既存のモデルは、微生物が及ぼす影響によって、ガス発生、

pH変化、酸化還元、核種吸着・溶解などを含む地球化学的影響、腐食・材料劣化への影響の3つの系統に大別できた。そのほか、微生物量の推定を主体に記述された論文が一つあった。以下、各系統について微生物反応をどうシミュレーションしているかを主体に、考察・検討した結果を述べる。

2.3.2 ガス発生のモデル

低レベル廃棄物(LLW)は有機物を含有していることが多く、微生物反応が起こりやすいと想定される。微生物反応の結果として起こるガス発生(有機物分解による二酸化炭素、メタンなどの生成)は、処分容器の圧力上昇や¹⁴Cの放出の観点から処分場の安全性に影響を及ぼすと考えられる。現在まで、いくつかのモデルが提案されてきた。そこでは、外界からの物質の流入を無視できるような閉鎖系に近い場で、時間の経過に伴う廃棄物からの微生物反応によるガス発生が検討されてきた。

微生物反応では、まず微生物またはその生成する細胞外酵素による有機物の加水分解(可溶性・低分子化)、次いで酸素があれば好氣的分解、酸素が無ければ嫌氣的分解が起きる。

Yim et al.(1996)[1]のモデルでは、加水分解反応は生分解可能な有機性廃棄物濃度に比例する一次反応で、その比例定数として、水が飽和している場合の加水分解率、廃棄物の含水率(含水率により廃棄物が水に接する表面積が変化する)が設定されている。加水分解で生成した溶解性有機物の分解は死滅項の入った Monod の式で近似されており、最大比増殖速度、飽和定数、死滅係数、収率が設定されている。好氣的分解は一段階、嫌氣的分解は酢酸生成とメタン生成の2段階の反応に単純化されている。各反応ごとに係数を設定し、温度、pHなどの前提を入れて微生物の増殖速度を計算している。それから、時間を変数として微生物量が求まり、微生物量および増殖速度と収率から生産物であるガスの発生量が求まる。好氣的分解で3つ、嫌氣的分解で6つの反応式が示されている。このモデルを用いてシミュレーションした結果は、Sandia 研究所などでの1年余りのガス発生実験データと整合性があるとしている。しかしながら、このシミュレーションには初期の微生物量のインプットが必要と思われるにもかかわらず、その記述がない。Yim et al.(1996)[1]の論文はかなり明快、詳細にモデルが記述されているが、初期の微生物量をどのように設定するのかについて不明な部分が一部存在している。

Agg(1993)[2]は、Yim et al.(1996)[1]に先立って同様の趣旨のモデルを樹立している。やはり Monod の式を用い、微生物反応は加水分解1、好気1、嫌気7の計9つのタイプに分

けており、精度を高めているものと思われる。またドラム缶の廃棄物を用いて実験的にモデルを検証している。ただ、論文にモデル構成の詳細な記述がなく、信頼性の評価までは行えなかった。

Arter et al.(1991)[3]も Monod の式を用いてガス発生モデルを樹立しているが、やはり論文に詳細な記述がなかった。

以上のように低レベル廃棄物を対象としたガス発生モデルは、限定された条件ながらも実験的検証まで進展しており、微生物影響のシミュレーションモデルとしては完成度が高い。その理由は次のように考えられる。

- ・ 初期に存在する多量の有機物の分解という、処分環境としては比較的活発に進行する微生物反応が主要な反応となるので、比較的シンプルな反応を解析の対象にできる。
- ・ 微生物影響項目として取り上げたガス発生は、微生物の増殖と連動した代謝反応の重要な部分であり、微生物反応がシミュレーションできれば、それによってガス発生シミュレーションも可能となる。
- ・ モデル実験による確認が比較的容易である。

しかしながら、それでも実験によるモデル検証の期間が数年オーダーと短く、長期のシミュレーションへの適用性は不明であるため、完成したモデルと認められるものは、まだ見当たらず、今後も開発が必要と考えられる。

2.3.3 地球化学的影響のモデル

ガス発生モデルが処分施設内を主な対象としているのに対し、pH変化、酸化還元、核種吸着・溶解などを含む地球化学的影響のモデルはむしろ処分場の周辺が対象となる。そこではガス発生原因となる有機物濃度は、処分施設内に比べて低下していると予想されるので、ガス発生場としての重要度は処分施設内に比べると低いかもしれない。しかし、そこに生育している微生物およびその作る環境が、処分場から移行してくる放射性核種の更なる周辺への拡散を促進するのか、逆にバリアとなるのかを決める重要な場となる可能性がある。ガス発生モデルが時間を変数として検討されていたのに対し、処分施設周辺における地球化学的影響のモデルでは空間軸も重要となる。場のある地点からある物質が供給され続けるとき、その物質やその微生物反応生成物、pH、Ehなどの空間的な分布がどうなるかを、時間経過に伴う変化とともに予測するようなモデルである。

Humphreys et al.(1995)ら[4]は、Agg(1993)らと同じように LLW を対象としながら、その地球化学的影響を検討している。とくに微生物反応による pH や Eh の変化による U や Pu[10]などの放射性核種の沈殿・溶解を計算して核種の分布を予測している。その手法は、地下水の流れのある浅い土地を複数のセルに分割するものである。セルロースを含むセルにウランが流入すると、その低 pH、低 Eh 条件で U が沈殿するというデモの例が紹介されている。微生物による pH、Eh 変化のシミュレーション方法は、Agg(1993)らと同じく代謝の形式ごとに整理した Monod の式を基本としている。このデモでは、最初に LLW を設置して出発しているので、LLW 中の有機物の時間経過に伴う微生物による分解と微生物増殖が計算できたため可能となったのであろう。このモデルは他の研究者[8]にも使用されている。

しかし地層処分では、有機物が多く半減期の短い核種の多い LLW を対象とした比較的短期間の予測と異なると考えられる。HLW 処分場の緩衝材や TRU 廃棄物のアスファルトなどから地層中に少しずつ連続的に低濃度の有機物が溶出していくような場合に、こういう手法の適用は困難であるだろう。そういう場合はむしろ、上方から有機物（プランクトンの死骸など）が連続的に沈殿し、微生物反応を受けながら下方の砂へと拡散していく湖沼や内湾の底泥に類似している。これを直接モデルの構築に結び付けられないが、そういう場を natural analogue として検討することによってモデル構築の参考にはなると思われる。

Wang & Cappellen(1996) [5]は、底泥の上方の水塊からの沈殿速度や水（ここでは海水）中の物質濃度を前提として与え、底泥中での電子受容体や電子供与体の鉛直分布を計算するモデルを作成した。底泥では上方からの物質の供給や環境条件が時間的に変化しないと考え、底泥内の物質の鉛直分布も定常になっているとしてその空間的分布を求めるモデルと思われる。これは処分場をターゲットとしている訳ではないが、処分場における微生物の地球化学的影響モデルの参考になる。ただし、インプット項目として、シミュレーションする地点の有機物分解速度の鉛直分布や硫酸塩還元速度の鉛直分布を挙げており、その実測が必要である。これは、おそらく微生物量の把握が難しいため有機物分解速度で代用したものと思われる。

Wang & Papenguth (2001) [6]は、やはり低栄養条件の環境ながら、処分場近傍を想定した帯水層の微生物影響シミュレーションを試みた。帯水層の一端から有機物とウランが供給されるという設定で、地下水流速、空隙率、初期の水質、流入する地下水水質などを設定して、微生物の反応による酸化還元化学から pH、DOC、各種電子受容体、ウランなど

の一定時間後の一次元の空間的分布を計算した。微生物反応は電子受容体の濃度によって6種類の代謝が順次起こるとして有機物分解速度を求めている。有機物分解速度の計算に必要な微生物量は、微生物量が大きくなるほど微生物は死滅しやすくなるという前提を立てて、有機物濃度が決まれば一定の値に収束していくとして計算している。その前提が正しいかどうかは議論のあるところであるが、裏づけデータが揃えばスマートな方法の一つであろう。

以上のように地球化学的影響のモデルでは、ガス発生モデルに比べて場が複雑だったり低栄養で微生物反応が遅いためかモデルの検証が難しく検証例も見当たらない。そこで今後の課題として、モデル検証のための試験装置として SKB で開発された Chemlab (Jansson, M. & Eriksen, E. 1998) [7]を紹介する。これは、Co-57, Sr-85, Cs-134 の bentonite 中の拡散の予測と実証のための装置であるが、微生物影響試験にも使用できそうである。

2.3.4 腐食・材料劣化へのモデル

腐食や材料劣化に関する微生物影響に関する論文はいろいろ出されているようであるが、モデルとなると King et al.(1999) [8]のモデルが信頼性が高いように思える。これは、高レベル廃棄物を対象としたもので、廃棄物からの熱などによって処分容器表面の微生物は一旦死滅するから処分容器表面での微生物繁殖による腐食 (MIC) は無視できるという前提で考えている。すると微生物腐食の最大要因は、処分容器から離れた部分で起きる硫酸塩還元で生成した硫化物が拡散して容器表面に到達して腐食を促進するというメカニズムだとしている。その前提で硫酸塩の供給源を定量化し、それからの硫酸塩還元反応を修正された Monod の式で計算し、処分容器の腐食の深さを求めている。限られた条件でのシミュレーションであるが、筋道だっており合理的である。ただし検証されていない。また、TRU 廃棄物に適用するにあたっては大部分の微生物が死滅するような温度上昇は考えられず、モデルの改良が必要である。

2.3.5 微生物量を求めるモデル

今まで紹介してきたモデルでも微生物 (バイオマス) 量を求めているものがある。基質の供給量が特定できる場合、例えば最初に大量の有機物が投入され、その後の投入量が相対的に小さい場合などには、有機物の生分解性などの前提を入れれば微生物量の計算は可

能となろう。Mckinley,I.G. & Grogan,H.A(1991) [9]は微生物量に焦点を当てたシミュレーションを行い、微生物量の求め方には、投入される栄養塩またはエネルギー源が最大限微生物菌体に変換されると考えて計算する方法と、動力学的に求める方法（Monod の式などで時間的な微生物量の変化を求める）とがあるとしている。彼らはコンクリート固化した L/ILW からの微生物生成量を、前者の方法で廃棄物組成と流入地下水のデータを用いて算出している。しかし、基質が長期にわたり連続的に供給され、かつ場からの流出がある場合、算定が難しくなることが予想される。

2.4 まとめと課題

本研究では、地層処分における微生物影響に関するモデルのうち論文として公表されているものを検索・調査しレビューした。各モデルとも微生物反応に関する共通のパラメータと、廃棄物組成や地下水流速などサイト特有のパラメータとを入力し、ガス発生量、核種の分布、腐食量などのアウトプットを出している。その意味ではシミュレーションの形は出来ている。しかし、モデルの信頼性は必ずしも検証されているとは言いがたい。確かにガス発生モデルでは、実測値と比較評価しシミュレーションを検証した結果が報告されているが、それはそのケースに合うように微生物反応のパラメータを設定したため合致したとも考えられる。いろいろなサイトに対応できるという汎用性は確認されていない。またモデルの組み方についても、いくつかの方法が試みられており、決定的な手法は見出されていない。微生物影響に関するモデルはまだ開発途上と考えられる。では、その適用性を高めるには、どういう方向の研究が必要であろうか。

文献中の記述を参考に微生物影響のモデル構成の代表例を図 2.4-1 にまとめた。

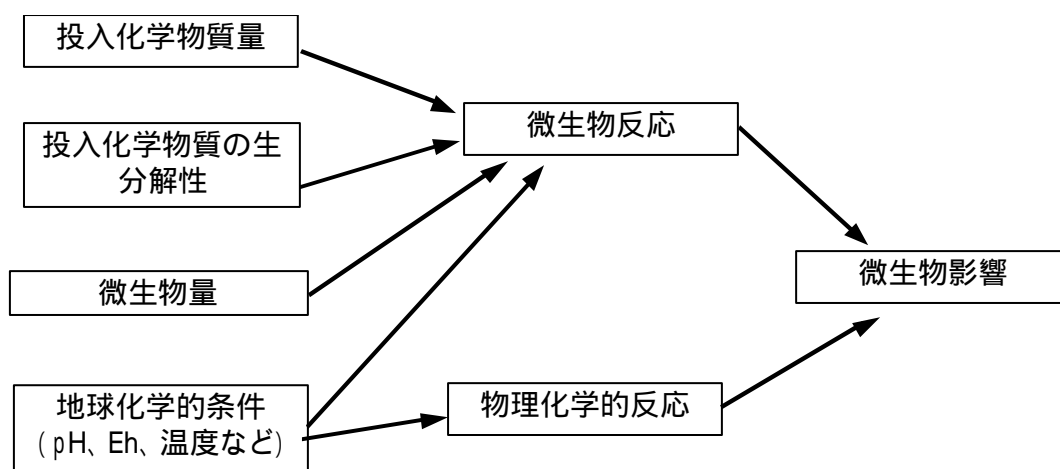


図 2.4-1 微生物影響のモデルの基本構成の例

微生物影響は、ガス発生のように微生物の反応が直接働いて、あるいは核種の酸化還元、微生物が生成する硫化水素による腐食、微生物細胞表面への核種の吸着のように微生物反応と物理化学的反応との組み合わせにより現れる。微生物反応は、時間軸、空間軸ごとの反応速度で表すことになると思うが、それは廃棄物、地下水などから場に投入される化学物質の量または濃度とその生分解性、また温度、pH、含水率、微生物量などの影響を受

けて決まる。これらのプロセスの中で現時点で数値の決定が困難であるパラメータとして、化学物質の生分解性、微生物量、微生物細胞表面への核種の吸着性などが考えられる。以下、現在、課題と考えられる事項を列記する。

投入化学物質の生分解性が不明確

例えばガス化のモデル (Yim et al.,1996) [1]では、廃棄物中のCの何%がガス化しうるという前提を入れているが、その前提が不正確な場合、シミュレーションされたガス発生量の信頼性は低くなる。微生物反応において、酸素、硝酸塩などの電子受容体の利用性は比較的明確であるが、電子供与体としては多種多様なもの(廃棄物中の有機物、ペントナイトなど持ち込み材料からの有機物、地下水中の有機物など)が考えられ、その微生物による利用性(生分解性)が不明なものも多い。予想される廃棄物やサイトの地下水中の有機物については、その生分解性を明らかにしておくことがシミュレーションのために必要となる。また、岩体からの水素の供給を組み込んだモデルの開発も長期予測のためには必要となろう。

微生物量(バイオマス)量の扱いが不明確

シミュレーションモデルにおいて、微生物量の求め方は、McKinley & Grogan,1991[9]のように流入栄養塩などから推定される微生物量の上限值を採用している例、Wang & Cappellen, 1996[5]のようにフィールドでの微生物量の指標となる測定結果を基にしている例、King et al.,1999[8]のように初期微生物量のみ入力している例、Wang & Papenguth,2001[6]のように定常状態で収束する微生物量を基質濃度から計算する工夫をしている例など様々である。記述の無い文献も多い。これは、すなわち、誰もが認める良い方法がないことを示している。その原因は 微生物量とくに活性のある微生物量を精度よく求める技術が未成熟であって、ようやく最近核酸(遺伝子)の解析による方法が開発されてきたものの地層処分への適用が遅れていること、シミュレーションモデルに微生物量をどう取り込むかの検討が不十分なことの二つが考えられる。微生物量の値が不正確であるとモデル全体の信頼性が低下するので、上記二点の検討は重要である。

微生物反応と物理化学的反応との組み合わせ

微生物反応と物理化学的反応との組み合わせをシミュレーションするためのデータがまだ不足している。例えば、処分場模擬環境での微生物量あたりの核種吸着量、そういう環境でのバイオフィームと浮遊性微生物との存在比率などはシミュレーションでは重要である。

モデルの検証

微生物影響モデルとして最も必要と考えられる地球化学モデルの検証はほとんど実施されていない。それは容易ではないが、例えば物質収支が測定しやすく、かつ定常状態となっている natural analogue について、化学物質挙動と微生物量の実測データを蓄積し、これとシミュレーションモデルとを比較することによってモデルの信頼性を向上できると考えられる。TRU 処分場の全ての環境を一度に表現できるナチュラルアナログサイトを探すことは困難であるが、アスファルト固化体の近傍のような部分的な条件を満たすサイトとして、底泥、窒素肥料の流入のある石油汚染土壌などが考えられる。また、処分場環境を模擬した条件を再現する室内模擬実験も考えられる。

3 微生物と核種の相互作用評価

弱い還元性環境を好む微生物を含む消化汚泥を対象とし、強い還元環境におけるブルトニウムの吸着挙動（分配係数）に及ぼす微生物の影響に関する試験を実施した。

3.1 研究開発の方法

3.1.1 試験方法

（1）試験用微生物

嫌気性微生物として、弱い還元性環境を最適棲息領域とするパルプ排水の生物処理槽から採取した嫌気性菌（以下 AnB とする）を用いた。

（2）微生物の確認作業

微生物を利用する実験は、その微生物の生存・存在確認作業から始まる。本実験でも、顕微鏡によりその作業を実施した。次に、微生物集団の生理的状态の確認が行われた。

本実験では、深層の地層処分場を想定した栄養源の少ない環境で生息する微生物の状態にするため、色々な工夫を実施した。

（3）還元性環境の設定方法

微生物としてパルプ排水の生物処理槽から採取した嫌気性菌（以下 AnB または弱い還元性環境を好む嫌気性微生物と言う）を使用しているが、この AnB の本来の最適棲息 Eh（-85mV）を、還元剤（チオグリコール酸ナトリウム）を最大限に使用することで、その Eh 値をできるだけ低くすることとした。この手法を用いてネプツニウムを対象核種として、Eh=-135mV まで還元した。

（4）pH の選定

既存の試験データと比較しやすいこと、セメント系材料の使用を前提としている TRU 廃棄物処分の環境条件を考慮し、アルカリ性側のデータを中心に 2.0、5.0、7.0、8.5、11.1、12.5、13.2 の 7 点のデータを取得することとした。

（5）微生物の滅菌処理

微生物の影響を調査する場合に使用される一般的な方法に基づき、対象微生物をそのまま培養してその影響を確認する調査、対象微生物をオートクレーブで滅菌してそ

の滅菌された微生物の影響を確認する調査を実施し、両者の影響の差を比較することとした。

(6) 試料の調製・攪拌

放射性核種プルトニウムの実験廃棄物の量を最小限にし、実験精度を受け入れられる誤差の範囲にするため、嫌気性微生物（または微生物とベントナイトの混合溶液）とプルトニウムの混合溶液（pH と Eh を調整後）の総量を 3.00ml とした。また、嫌気性微生物（または微生物とベントナイトの混合溶液）の濃度は、乾燥重量で、0.1%に設定した。

調製した試料は、攪拌恒温機にて 35 度、4 時間攪拌した。

(7) 物理的分離

上記の混合溶液から、プルトニウムの分配係数（Kd）値を得るためには、嫌気性微生物（または微生物とベントナイト）とプルトニウムを物理的に分離しなければならない。この目的のため、微生物（または微生物とベントナイトの混合溶液）を、0.22 μm のメンブレンフィルターで濾過した。このとき用いられた 0.22 μm のメンブレンフィルターは、滅菌された使い捨てのフィルターで、プラスチック容器内に密封されている。

0.22 μm のメンブレンフィルターで濾過された嫌気性微生物（または微生物とベントナイト）の固形物は、その密封プラスチック容器を機械的に開封して、取り出さなければならない。密封プラスチック容器の周辺を削り取る方法が採用され、0.22 μm のメンブレンフィルターの密封を開放した状態から、固形物である嫌気性微生物（または微生物とベントナイト）を取り出した。

3.1.2 データの解析方法

(1) 分配係数（Kd）値の取得方法

上記のように嫌気性微生物（または微生物とベントナイト）の固形物とプルトニウムを物理的に分離した後、固液両相に含まれるプルトニウムの量を計測し、単位重量・容積あたりのプルトニウム量を算出することで、プルトニウムの分配係数（Kd）値を得ることができる。その分配係数（Kd）の値の算出は、下記の式で示されている。

$$Kd = \frac{\text{固相において単位重量あたりに吸着した濃度}}{\text{液相において単位容積あたりに吸着した濃度}} \quad [\text{ml/g}]$$

この分配係数 (Kd) を得るためには、プルトニウムの量を実測する必要がある。本実験では在庫量が豊富であったPu240を使用した。プルトニウムの量を計測するために、プルトニウム240から放出されるアルファ線を、高分解能(しかも低バックグラウンド)のアルファ線スペクトロメーターで計測した。上記で得られた固液両相に含まれるプルトニウム240は、化学抽出・濃縮・精製・分離された後、研磨されたステンレスディスクに電着され、測定された。

プルトニウムを含む各種アクチノイドのアルファ線スペクトロメーターで計測されるエネルギーの例は、図3.1-1で示されている。

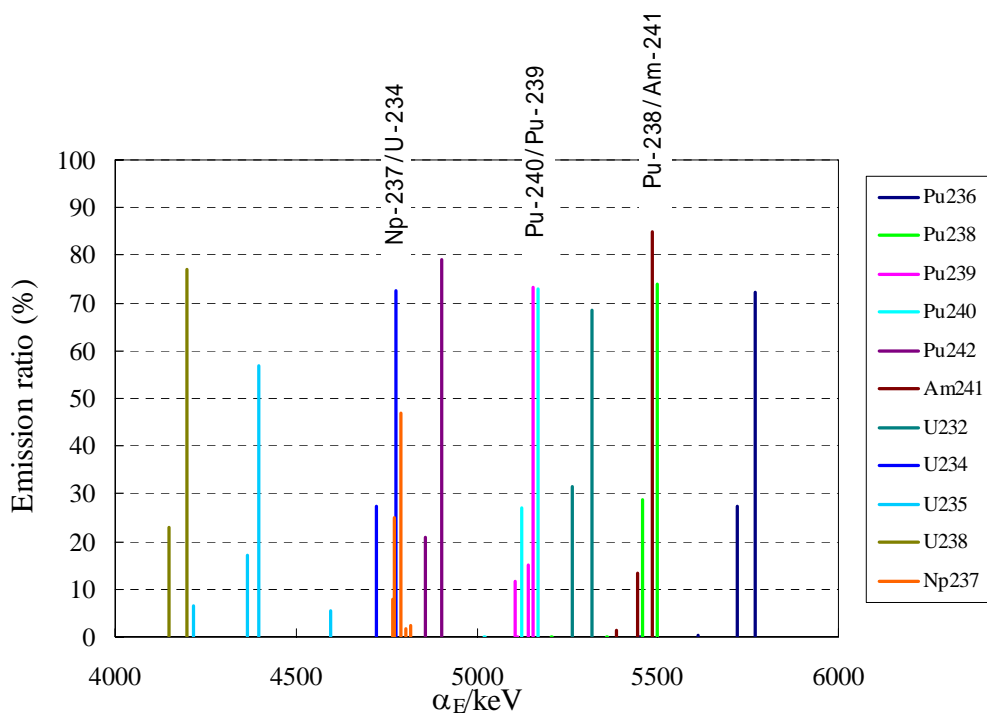


図 3.1-1 プルトニウムを含む各種アクチノイドのアルファ線スペクトロメーターで計測されるエネルギーの例

3.2 研究開発の結果

3.2.1 結果

(1) 弱い還元性環境を好む嫌気性微生物(消化汚泥)を $E_h = -135\text{mV}$ に還元した場合のプルトニウムとの分配係数(K_d)

プルトニウムと滅菌していない消化汚泥との分配係数実験結果を表 3.2-1 に、滅菌した消化汚泥とのそれを表 3.2-2 に示す。なお、分析中に Pu-240 の回収率が変化することから、内部標準試料として Pu-236 を添加しその回収率をもとに Pu-240 の値を補正したので、Pu-236 の測定データも表中に併記した。また、図 3.2-1 にはこれらの実験結果をまとめて pH と分配係数との関係を整理した。プルトニウムと消化汚泥微生物(最適 $E_h = -85\text{mV}$)との分配係数(K_d)は、その周辺環境の E_h を薬品(チオグリコール酸ナトリウム)でさらに還元した場合も、周辺環境の pH に大きく影響を受ける(図 3.2-1)。滅菌していない消化汚泥微生物とプルトニウムの分配係数(K_d)は、464 (pH=1.95) から 55,600 (pH=8.50) と、100 倍以上の違いがあった(表 3.2-1 および図 3.2-1)。分配係数が低いのは、強酸性側だけでなく、強アルカリ側 (pH = 13.2) でも起こり、その値は 685 と強酸性側と同じ程度の値になる。

しかも中性領域で、高いプルトニウムの分配係数を示す pH の範囲は、かなり広い。高いプルトニウムの分配係数を示す pH の範囲は、大体 pH = 5 ~ 12 の範囲で、この事実だけから判断しても、高いプルトニウムの分配係数が、微生物活動だけによるとは考えにくい。一方、強酸性、強アルカリ性領域で低い分配係数を示す理由は、微生物が中性領域で、まず活発に生きていることによると考えられるが、これだけでは全ての実験結果を説明出来ない。

何故なら、滅菌(オートクレーブ)された微生物も、各 pH に対して、同じ様な分配係数を示すからである(図 3.2-1)。

本年度の実験研究結果で興味深い点は、微生物の環境を最適 E_h 領域からわずかに変化させただけで、滅菌(オートクレーブ)された微生物も、非滅菌微生物も、各 pH に対して同じ様な分配係数を示した事である。この点は、次節の実験結果の考察で述べるが、微生物とその環境の還元状況だけでは説明できない。

Distribution Coefficients (Kd) of Pu for Anaerobic Bacteria

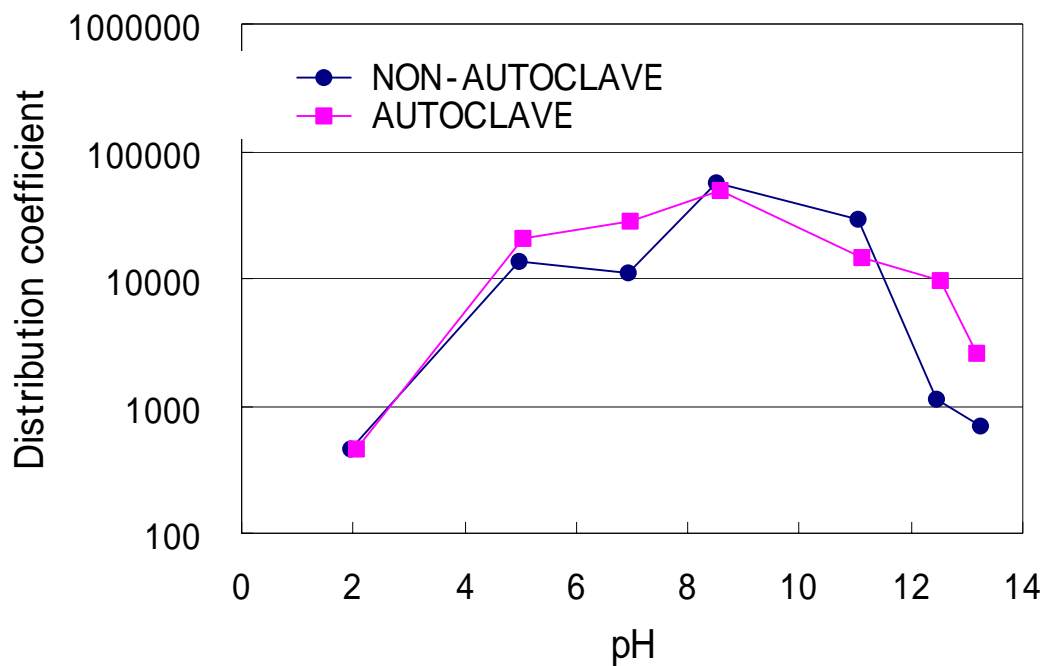


図 3.2-1 消化汚泥とプルトニウムの分配係数 (K d)

表 3.2-1 Pu と消化汚泥との分配係数

Distribution Coefficients (Kd) of Plutonium for Anaerobic Bacteria (AnB) for Kd Calculation

Sample ID	Dry weight G	Liquid MI	pH	pH	Eh	Chbr	Count Time sec	Pu-240 counts	Pu-240 cpks	Pu-236 counts	Pu-236 cpks	Pu-240 activity	Pu-240 cps/g	Pu-240 cps/ml	Kd (ml/g)
AnB, NON-AUTOCL, LIQUID PHASE															
1D1LWHA	3.00E-03	3.00E+00	2	1.95	-134	2	1.75E+05	8.73E+02	4.99E+00	3.79E+02	2.17E+00	2.30E+00		7.68E-01	4.64E+02
1D2LWHB	3.00E-03	3.00E+00	5	4.99	-136	1	2.50E+05	8.40E+01	3.36E-01	5.20E+02	2.08E+00	1.62E-01		5.38E-02	1.39E+04
1D3LWHB	3.00E-03	3.00E+00	7	6.93	-136	1	2.50E+05	3.65E+02	1.46E+00	4.02E+02	1.61E+00	9.08E-01		3.03E-01	1.12E+04
1D4LWOB	3.00E-03	3.00E+00	8.5	8.5	-136	2	2.50E+05	9.40E+01	3.76E-01	5.21E+02	2.08E+00	1.80E-01		6.01E-02	5.56E+04
1D5LWOA	3.00E-03	3.00E+00	11.1	11.04	-135	8	2.50E+05	2.23E+02	8.92E-01	8.49E+02	3.40E+00	2.63E-01		8.76E-02	2.92E+04
1D6LWOB	3.00E-03	3.00E+00	12.5	12.44	-132	2	1.75E+05	4.53E+02	2.59E+00	2.32E+02	1.33E+00	1.95E+00		6.51E-01	1.12E+03
1D7LWOA	3.00E-03	3.00E+00	13.2	13.26	-135	6	1.75E+05	1.50E+03	8.55E+00	6.31E+02	3.61E+00	2.37E+00		7.91E-01	6.85E+02
AnB, NON-AUTOCL, SOLID PHASE															
1D1SWHA	3.00E-03	3.00E+00	2	1.95	-134	6	8.00E+04	6.81E+02	8.51E+00	6.37E+02	7.96E+00	1.07E+00	3.56E+02		
1D2SWHB	3.00E-03	3.00E+00	5	4.99	-136	1	8.00E+04	1.22E+03	1.52E+01	5.44E+02	6.80E+00	2.24E+00	7.47E+02		
1D3SWHB	3.00E-03	3.00E+00	7	6.93	-136	6	2.88E+04	1.25E+03	4.34E+01	1.23E+02	4.28E+00	1.01E+01	3.38E+03		
1D4SWOB	3.00E-03	3.00E+00	8.5	8.5	-136	2	8.00E+04	1.37E+03	1.71E+01	1.36E+02	1.70E+00	1.00E+01	3.35E+03		
1D5SWOA	3.00E-03	3.00E+00	11.1	11.04	-135	8	1.75E+05	6.76E+02	3.86E+00	8.80E+01	5.03E-01	7.68E+00	2.56E+03		
1D6SWOB	3.00E-03	3.00E+00	12.5	12.44	-132	8	8.00E+04	6.49E+02	8.11E+00	2.98E+02	3.73E+00	2.18E+00	7.26E+02		
1D7SWOA	3.00E-03	3.00E+00	13.2	13.26	-135	6	8.00E+04	4.32E+02	5.40E+00	2.66E+02	3.33E+00	1.62E+00	5.41E+02		

表 3.2-2 Pu と滅菌した消化汚泥との分配係数

Distribution Coefficients (Kd) of Plutonium for Anaerobic Bacteria (AnB) for Kd Calculation

Sample ID	Dry weight G	Liquid MI	pH	pH	Eh	Chbr	Count Time sec	Pu-240 counts	Pu-240 cpks	Pu-236 counts	Pu-236 cpks	Pu-240 activity	Pu-240 cps/g	Pu-240 cps/ml	Kd (ml/g)
AnB, AUTOCL, LIQUID PHASE															
1D1LAHA	3.00E-03	3.00E+00	2	2.07	-133	1	8.00E+04	2.54E+03	3.18E+01	3.86E+02	4.83E+00	6.59E+00		2.20E+00	4.62E+02
1D2LAHA	3.00E-03	3.00E+00	5	5.05	-135	2	1.75E+05	3.21E+02	1.83E+00	6.79E+02	3.88E+00	4.73E-01		1.58E-01	2.07E+04
1D3LAHA	3.00E-03	3.00E+00	7	6.98	-133	2	1.75E+05	2.08E+02	1.19E+00	6.18E+02	3.53E+00	3.37E-01		1.12E-01	2.79E+04
1D4LAOA	3.00E-03	3.00E+00	8.5	8.58	-231	3	1.75E+05	2.21E+02	1.26E+00	5.49E+02	3.14E+00	4.03E-01		1.34E-01	5.00E+04
1D5LAOA	3.00E-03	3.00E+00	11.1	11.13	-136	3	1.75E+05	9.40E+01	5.37E-01	1.97E+02	1.13E+00	4.77E-01		1.59E-01	1.49E+04
1D6LAOA	3.00E-03	3.00E+00	12.5	12.54	-132	4	1.75E+05	1.33E+03	7.58E+00	8.48E+02	4.85E+00	1.56E+00		5.21E-01	9.63E+03
1D7LAOA	3.00E-03	3.00E+00	13.2	13.18	-133	6	1.75E+05	1.66E+03	9.47E+00	8.05E+02	4.60E+00	2.06E+00		6.86E-01	2.58E+03
AnB, AUTOCL, SOLID PHASE															
1D1SAHA	3.00E-03	3.00E+00	2	2.07	-133	1	8.00E+04	8.21E+02	1.03E+01	2.70E+02	3.38E+00	3.04E+00	1.01E+03		
1D2SAHA	3.00E-03	3.00E+00	5	5.05	-135	2	8.00E+04	1.99E+03	2.49E+01	2.03E+02	2.54E+00	9.79E+00	3.26E+03		
1D3SAHA	3.00E-03	3.00E+00	7	6.98	-133	5	8.00E+04	2.96E+03	3.70E+01	3.16E+02	3.95E+00	9.38E+00	3.13E+03		
1D4SAOA	3.00E-03	3.00E+00	8.5	8.58	-131	3	8.00E+04	3.85E+03	4.81E+01	1.91E+02	2.39E+00	2.01E+01	6.71E+03		
1D5SAOA	3.00E-03	3.00E+00	11.1	11.13	-136	3	4.00E+04	1.29E+03	3.23E+01	1.82E+02	4.55E+00	7.09E+00	2.36E+03		
1D6SAOA	3.00E-03	3.00E+00	12.5	12.54	-132	4	4.00E+04	2.65E+03	6.63E+01	1.76E+02	4.40E+00	1.51E+01	5.02E+03		
1D7SAOA	3.00E-03	3.00E+00	13.2	13.18	-133	6	4.00E+04	1.76E+03	4.41E+01	3.32E+02	8.30E+00	5.31E+00	1.77E+03		

(2) 弱い還元性環境を好む嫌気性微生物(消化汚泥)とベントナイトを $E_h = -135mV$ に還元した場合のプルトニウムとの分配係数(Kd)

プルトニウムと滅菌していない消化汚泥/ベントナイト混合物との分配係数実験結果を表 3.2-3 に、滅菌した消化汚泥/ベントナイト混合物とのそれを表 3.2-4 に示す。また、図 3.2-2 にはこれらの実験結果をまとめて pH と分配係数との関係を整理した。

プルトニウムの分配係数(Kd)は、消化汚泥とベントナイトを混合した場合も、その棲息環境の pH に大きく依存する。分配係数は、強酸側 (pH = 1.95) で 1,040 であるが、それが中性領域 (pH = 8.50) になると、73,900 にもなる。一方、強アルカリ側では、プルトニウムの分配係数は小さくなり、5,050 となる(表 3.2-3 および図 3.2-2)。

消化汚泥とベントナイトの混合物をオートクレーブで滅菌した場合の分配係数もその周辺環境の pH に大きく左右される。さらに正確に言えば、混合物の分配係数は、微生物単独の分配係数と殆ど同じ傾向を示す。

表 1.3-1 に示すこれまでの一連の実験結果と上記の実験結果から、ベントナイトのプルトニウムとの分配係数は、微生物に比べた場合のそれと比較して小さいこと、すなわち、乾燥重量で比べた場合、ベントナイトがプルトニウムを吸着する量は、微生物単独の吸着量に比べると、小さくなり、特に中性領域ではその差が顕著になる傾向があることがわかった。具体的には、1) 微生物(乾燥重量 0.1%)と核種の相互作用、2) 微生物(乾燥重量 0.05%)とベントナイト(乾燥重量 0.05%)の混合物と核種の相互作用、3) ベントナイト(乾燥重量 0.1%)と核種の相互作用、の各条件における分配係数を比較してみると、1)と2)では同様な値であるのに対し、1)と3)を比較すると、限定された実験室内での条件ではあるものの、常に1)の微生物のみと反応させた分配係数の方が、3)のベントナイトのみと反応させた分配係数よりかなり大きくなることが明らかとなった。

しかしここでもまた、微生物が、滅菌された場合と、滅菌されない場合とで、プルトニウム吸着量が同じと言う実験結果が出ている。これらの現象は、微生物の挙動だけでは説明できない。この不可思議な実験結果に現れた現象については、次節の実験結果の考察で述べる。

Distribution Coefficients (Kd) of Pu for Anaerobic Bacteria and Bentonite

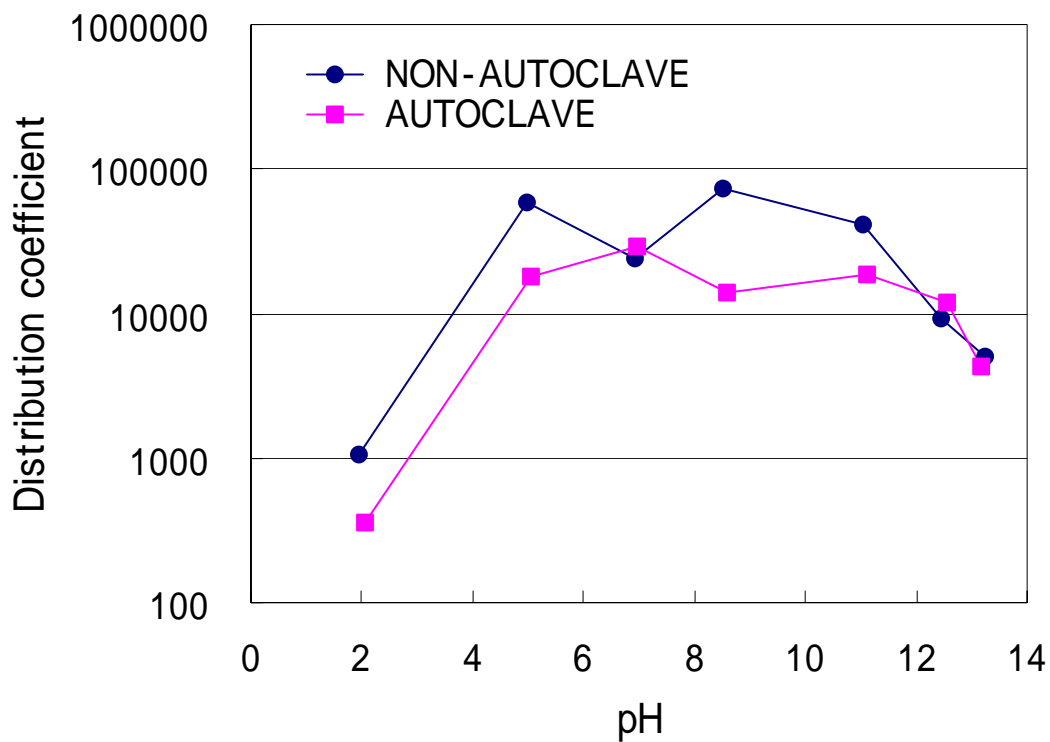


図 3.2-2 消化汚泥 / ベントナイト混合液とプルトニウムの分配係数

表 3.2-3 Pu と消化汚泥 / ベントナイト混合物との分配係数

Distribution Coefficients (Kd) of Plutonium Between Anaerobic Bacteria (AnB) and Bentonite

Sample ID	Dry weight g	Liquid ml	pH	pH	Eh	Chbr	Count Time sec	Pu-240 counts	Pu-240 cps	Pu-236 counts	Pu-236 cps	Pu-240 activity	Pu-240 cps/g	Pu-240 cps/ml	Kd (ml/g)
AnB, NON-AUTOCL, LIQUID PHASE															
1C1LWHA		3.00E+00	2	1.95	-136	2	1.78E+05	1.30E+03	7.29E-03	3.04E+02	1.71E-03	4.27E+00		1.42E+00	1.04E+03
1C2LWHB		3.00E+00	5	4.99	-136	1	1.80E+05	5.40E+01	3.00E-04	5.20E+02	2.89E-03	1.04E-01		3.46E-02	5.84E+04
1C3LWHB		3.00E+00	7	6.93	-136	1	8.30E+04	1.65E+02	1.99E-03	4.02E+02	4.84E-03	4.10E-01		1.37E-01	2.39E+04
1C4LWOB		3.00E+00	8.5	8.5	-136	2	1.80E+05	6.10E+01	3.39E-04	4.21E+02	2.34E-03	1.45E-01		4.83E-02	7.39E+04
1C5LWOA		3.00E+00	11.1	11.04	-135	8	1.78E+05	1.62E+02	9.10E-04	8.49E+02	4.77E-03	1.91E-01		6.36E-02	4.15E+04
1C6LWOB		3.00E+00	12.5	12.44	-134	2	8.30E+04	1.51E+02	1.82E-03	2.32E+02	2.80E-03	6.51E-01		2.17E-01	9.17E+03
1C7LWOA		3.00E+00	13.2	13.26	-135	6	1.80E+05	1.53E+03	8.51E-03	1.20E+03	6.69E-03	1.27E+00		4.24E-01	5.05E+03
AnB, NON-AUTOCL, SOLID PHASE															
1C1SWHA	3.00E-03		2	1.95	-136	6	1.78E+05	3.27E+03	1.84E-02	7.37E+02	4.14E-03	4.43E+00	1.48E+03		
1C2SWHB	3.00E-03		5	4.99	-136	1	7.23E+04	3.30E+03	4.56E-02	5.44E+02	7.53E-03	6.06E+00	2.02E+03		
1C3SWHB	3.00E-03		7	6.93	-136	6	2.42E+04	1.21E+03	4.98E-02	1.23E+02	5.08E-03	9.80E+00	3.27E+03		
1C4SWOB	3.00E-03		8.5	8.5	-136	2	1.52E+05	2.53E+03	1.66E-02	2.36E+02	1.55E-03	1.07E+01	3.57E+03		
1C5SWOA	3.00E-03		11.1	11.04	-135	8	1.78E+05	6.96E+02	3.91E-03	8.80E+01	4.94E-04	7.91E+00	2.64E+03		
1C6SWOB	3.00E-03		12.5	12.44	-134	8	6.09E+04	1.78E+03	2.92E-02	2.98E+02	4.89E-03	5.98E+00	1.99E+03		
1C7SWOA	3.00E-03		13.2	13.26	-135	6	7.23E+04	1.71E+03	2.37E-02	2.66E+02	3.68E-03	6.43E+00	2.14E+03		

表 3.2-4 Pu と滅菌した消化汚泥 / ベントナイト混合物との分配係数

Distribution Coefficients (Kd) of Plutonium Between Anaerobic Bacteria (AnB) and Bentonite

Sample ID	Dry weight g	Liquid ml	pH	pH	Eh	Chbr	Count Time sec	Pu-240 counts	Pu-240 cps	Pu-236 counts	Pu-236 cps	Pu-240 activity	Pu-240 cps/g	Pu-240 cps/ml	Kd (ml/g)
AnB, AUTOCL, LIQUID PHASE															
1C1LAHA		3.00E+00	2	2.07	-135	1	8.47E+04	2.78E+03	3.29E-02	3.86E+02	4.56E-03	7.21E+00		2.40E+00	3.58E+02
1C2LAHA		3.00E+00	5	5.05	-135	2	1.80E+05	3.36E+02	1.87E-03	6.79E+02	3.77E-03	4.95E-01		1.65E-01	1.78E+04
1C3LAHA		3.00E+00	7	6.98	-136	2	1.54E+05	1.84E+02	1.19E-03	6.18E+02	4.01E-03	2.98E-01		9.92E-02	2.95E+04
1C4LAOA		3.00E+00	8.5	8.58	-136	3	1.80E+05	3.11E+02	1.73E-03	5.49E+02	3.05E-03	5.66E-01		1.89E-01	1.41E+04
1C5LAOA		3.00E+00	11.1	11.13	-136	3	1.54E+05	8.40E+01	5.45E-04	1.97E+02	1.28E-03	4.26E-01		1.42E-01	1.87E+04
1C6LAOA		3.00E+00	12.5	12.54	-136	4	1.50E+05	1.16E+03	7.72E-03	8.48E+02	5.67E-03	1.36E+00		4.54E-01	1.19E+04
1C7LAOA		3.00E+00	13.2	13.18	-136	6	1.50E+05	1.40E+03	9.38E-03	8.05E+02	5.38E-03	1.74E+00		5.81E-01	4.23E+03
AnB, AUTOCL, SOLID PHASE															
1C1SAHA	3.00E-03	3.00E+00	2	2.07	-135	1	6.81E+04	6.97E+02	1.02E-02	2.70E+02	3.96E-03	2.58E+00	8.60E+02		
1C2SAHA	3.00E-03	3.00E+00	5	5.05	-135	2	6.37E+04	1.79E+03	2.80E-02	2.03E+02	3.19E-03	8.79E+00	2.93E+03		
1C3SAHA	3.00E-03	3.00E+00	7	6.98	-136	5	6.80E+04	2.78E+03	4.08E-02	3.16E+02	4.65E-03	8.78E+00	2.93E+03		
1C4SAOA	3.00E-03	3.00E+00	8.5	8.58	-136	3	6.41E+04	1.92E+03	3.00E-02	2.41E+02	3.76E-03	7.98E+00	2.66E+03		
1C5SAOA	3.00E-03	3.00E+00	11.1	11.13	-136	3	4.46E+04	1.45E+03	3.26E-02	1.82E+02	4.08E-03	7.99E+00	2.66E+03		
1C6SAOA	3.00E-03	3.00E+00	12.5	12.54	-136	4	1.72E+04	1.23E+03	7.14E-02	7.60E+01	4.42E-03	1.61E+01	5.38E+03		
1C7SAOA	3.00E-03	3.00E+00	13.2	13.18	-136	6	6.41E+04	2.45E+03	3.81E-02	3.32E+02	5.18E-03	7.37E+00	2.46E+03		

3.3 結果の考察・検討

3.3.1 実験結果の考察

本年度の実験結果は、平成7, 8年度に行われた、消化汚泥とプルトニウムとの分配係数の実験結果(図 3.3-1)とpHとの関係で、かなり類似した結果が得られた。ただ、平成7, 8年度に行われた実験結果と本年度の実験結果が違う点は、

微生物(消化汚泥)の周辺環境の内、Ehを還元剤でわずか50mV低下させただけで、非滅菌と滅菌の分配係数が同じような数字になったこと。(この類似性は、微生物(消化汚泥)とベントナイトの混合物に対しても同様であった。)

さらに、本年度の実験結果は、プルトニウムと微生物(消化汚泥)だけの分配係数が、平成7, 8年度に行われた条件での実験結果より、強アルカリ側で、約10分の1に低下したこと。

の2点である。

この内、については、微生物の影響を肯定する事も、否定する事も出来る実験結果である。肯定する側の意見としては、微生物(消化汚泥)の周辺環境の内、Ehが急に变化したことにより、微生物は何らかの危険を感じ自己防衛のため「Spore = 孢子」を形成し始めたことが考えられる。このことにより、非滅菌と滅菌の影響が全く見えなくなったと考えられる。

この傾向は、平成7, 8年度に行われた実験結果の滅菌された微生物(消化汚泥)の分配係数にも、僅かにpHの中性領域(pH = 6 - 8)で現れている(図 3.3-1)。この領域で、突然分配係数が2 - 3倍突出している。

一方、否定する考え方は、「Spore = 孢子」形成も、もちろん考えられるが、平成7, 8年度に行われた実験結果と本年度の実験結果が違う点は、Ehを還元剤で低下させた事により、プルトニウムの化学形態自体に変化が起こり、これが分配係数に大きく影響を与えた(微生物(消化汚泥)自体が与えた影響より)と言う考え方である。

否定する考え方を、いくらか支持する実験結果としては、の「プルトニウムの分配係数が、平成7, 8年度に行われた条件での実験結果より、強アルカリ側で、約10分の1に低下したこと」も、プルトニウムの化学形態自体に変化が起こり、プルトニウムの化学形態自体が、分配係数に大きく影響を与えた点を示唆していると考えられる。ただこの「強アルカリ側で、約10分の1に低下したこと」は、プルトニウムと微生物(消化汚泥)だけの分配係数で顕著に現れており、微生物(消化汚泥)とベントナイトの混合物に対して

は、それほど現れていない。この理由は不明である。

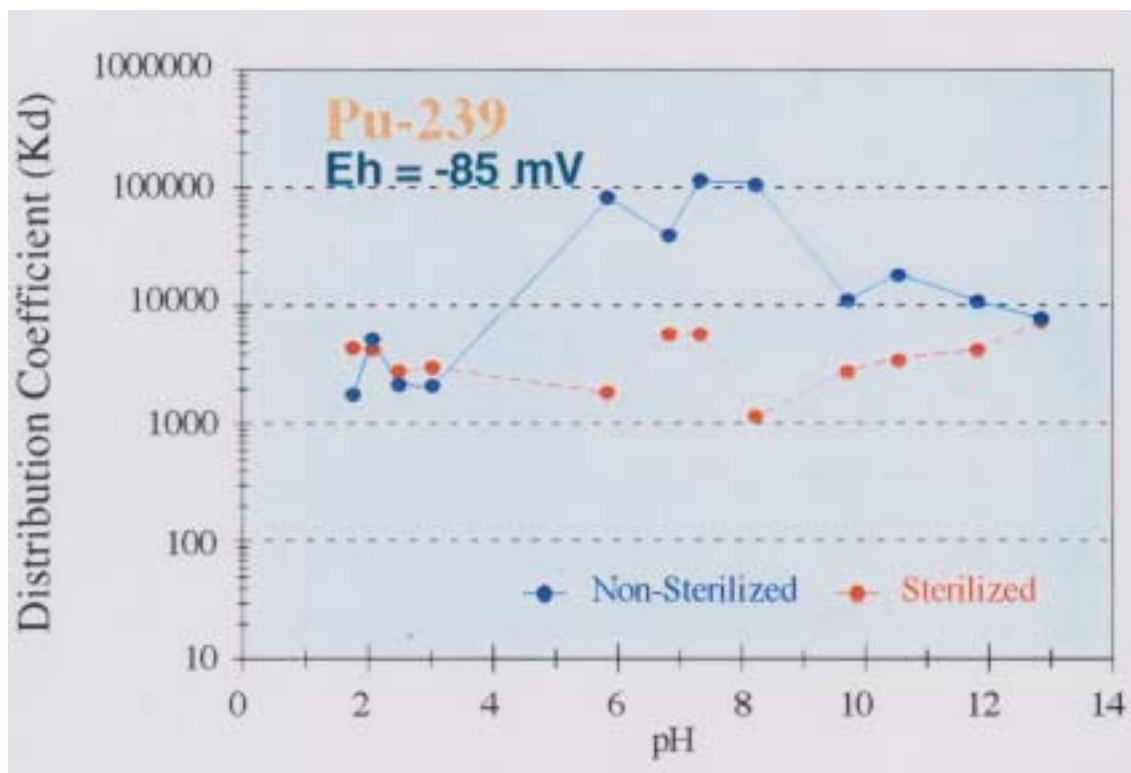


図 3.3-1 平成 7、8 年度に得られた消化汚泥とプルトニウムの分配係数 (Eh=-85mV)

3.3.2 本年度の実験結果を踏まえた将来の実験計画

本年度の実験結果は、大部分は実験計画時の予想の範囲であったが、ある一部分では、実験計画時の予想の範囲を超えたものとなった。それは、何故プルトニウムと嫌気性微生物との分配係数が、嫌気性微生物の周辺環境を僅かに還元性にしただけで、微生物学的には説明出来ない分配係数の結果が出たのかが、判らないからである。

では、どのような実験研究をすれば、これらの疑問が解明されるのであろうか？

考えられることは、生命がない均一なベントナイトを使い、その環境周辺の還元性(Eh)の値を変えて、プルトニウムの化学形態の変化を分配係数を使って実験的に確かめることである。その結果と比較することで還元雰囲気での微生物の影響が明らかになると考えられる。

この場合、嫌気性微生物から、色々な有機物が反応溶液中に分泌されないので、プルト

ニウム自体の化学形態の変化による分配係数の変動がより単純・明快に解明されるであろう。

4 おわりに

本研究の結果の概要と残された課題を以下に示す。

4.1 微生物影響評価に関するモデルの調査

微生物影響評価のためのシミュレーションモデルは、地層処分施設の性能予測の信頼性を高めるのに寄与すると期待されている。我々はガス発生に関して三つ、地球化学に関して五つ、微生物腐食と微生物量に関して各々一つの論文を調べ、モデルの概略を把握した。

- ・ ガス発生モデルでは、LLW を主体に比較的短期間のメタン、二酸化炭素などの発生がシミュレーションされている。限定されたケースながら、計算結果と実験結果が比較的一致した例も紹介されている。
- ・ 地球化学的影響モデルでは、微生物反応が核種の酸化還元状態に影響を及ぼす現象などをシミュレーションしているが、処分場周辺の有機物濃度の比較的低い場が検討対象となっているため、短期の実験で検証することが難しい。そのため本調査では、底泥などの natural analogue での微生物活動のシミュレーションの例や、微生物影響とは別に検証のため開発された装置などにも触れた。
- ・ 微生物腐食モデルとして限定された条件ながら信頼度が比較的高いと思われるもの、微生物量のモデルとして考え方がよく整理されているものをレビューした。

以上のように、微生物影響評価のためのシミュレーションモデルとしていくつかの開発事例があるが、廃棄物や地下水に含まれる多種多様な有機物の各々の生分解性をどう評価するか、測定が難しく、またモデルにどう組み込むかの考え方も研究者によって違いがある微生物（バイオマス）量をどう評価するか、モデルの検証をどう行うか等の課題が依然として残っており、今後の検討が必要と考える。

4.2 微生物と核種の相互作用評価

平成14年度の実験研究では、

消化汚泥とプルトニウムの分配係数 (Kd)

消化汚泥とベントナイトの混合物とプルトニウムの分配係数 (Kd)

が、7つの pH 環境で各々得られた。また、各々の実験研究について、非滅菌系と滅菌系の2系統の実験研究（合計4系統の実験研究）がなされた。その結果、28個のプルトニウムの分配係数 (Kd) が、得られた。この場合、消化汚泥の周辺環境の Eh は、還元剤 (チ

オグリコール酸ナトリウム)で、人工的に-85mV から-135mV に変化させられた。その結果、以下のことが実験的に証明された。

- ・ プルトニウムの分配係数 (K d) は、pH に大きく依存し、変化する。その変化の大きさは、100 倍程度に達する。
- ・ 強酸性 (pH = 1.95) と強アルカリ性 (pH = 12.5 - 13.2) では、464 から 1,120 程度と低いが、pH = 4.99 - 11.04) の範囲では、その分配係数 (K d) は、11,200 から 55,600 へと高くなる。
- ・ 弱い還元性微生物の周辺環境の Eh を僅かに変化 (50mV 下げる) しただけで、それらの微生物を滅菌、非滅菌した場合のプルトニウムの分配係数 (K d) に、殆どの pH の領域で、違いが見られなくなった。これが、予想されなかった新しい現象である。

4.3 今後の課題

微生物影響のシミュレーションモデルについては、4.1 で述べたような問題が残っているので、次のテーマが今後の検討課題として挙げられる。

廃棄物や地下水中の各種有機物の生分解性の整理 (文献調査または実験検討)

微生物 (バイオマス) 量の測定手法の整理と処分場環境での適用方法の検討・実証

微生物 (バイオマス) 量のシミュレーションモデル内での取り扱い方法の整理と最適化

natural analogue または検証のための装置を用いた地球化学的影響モデルの検証技術の開発

これらの技術開発によって、また後述の核種と微生物との相互作用の理解が進展することによって、微生物影響シミュレーションモデルは精度が向上し、処分場の長期性能予測の信頼性を一層高めるのに寄与すると考えられる。

プルトニウムと微生物との相互作用については、還元剤のチオグリコール酸ナトリウムの化学的影響が明確になっていないことが、解釈を難しくしている。対策としては、均一なベントナイトを使い、その環境周辺の還元性 (Eh) の値を変えて、プルトニウムの化学形態の変化を分配係数を使って実験的に確かめることが考えられる。この方法であれば、環境変化が起こった場合の、プルトニウム自体の化学形態の変化による分配係数の変動が解明されるであろう。

4.4 おわりに

本研究では、新しい知見をいくつか付け加えることができた。今後これらの知見をベースに処分場特性評価に必要な試験、検討に取り組んでいきたい。

5 参考文献

5.1 参考文献(第1章)

- [1] West, J.M. & I.G. McKinkey: " The geomicrobiology of nuclear waste disposal. ",
Sci. Basis Nucl. Waste Management. pp.487-494. (1984)
- [2] 福永 栄,他:" 地層処分における微生物の影響に関する調査",PNC TN8410 92-013.
(1992)
- [3] Pedersen, K: " The deep subterranean biosphere. ", Earth Science Reviews, Vol.34,
pp.243-260. (1993)
- [4] 福永 栄、藤木 喜市、朝野 英一:" 地層処分用緩衝材として用いられるベントナ
イト中の微生物調査",日本原子力学会「1992年春の年会」C10. (1992)
- [5] Stroes-Gascoyne, S. & J.M.. West: " An overview of microbial research related to
high-level nuclear waste disposal with emphasis on the Canadian concept for the
disposal of nuclear fuel waste. ", Can. J. Microbiology Vol.42, pp.349-366. (1996)
- [6] 福永 栄、中山 衛、神徳 敬、菅野 毅、工藤 章:" 地層処分における微生物影
響の評価研究",JNC TJ8400 2002-036. (2002)
- [7] 福永 栄,他:" 人工バリア材料に対する微生物の影響評価研究()",PNC TJ1150
96-006. (1996)
- [8] 福永 栄,他:" 人工バリア材料に対する微生物の影響評価研究()",PNC TJ1150
97-004. (1997)
- [9] 福永 栄,他:" 人工バリア材料に対する微生物の影響評価研究()",PNC TJ1150
98-003. (1998)
- [10] 福永 栄、横山 英一、荒井 和浩、朝野 英一、千手 隆史、工藤 章:" 人工バ
リア材料に対する微生物の影響評価研究()",JNC TJ8400 99-025. (1999)
- [11] 福永 栄、横山 英一、荒井 和浩、千手 隆史、工藤 章:" 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",JNC TJ8400 2000-030. (2000)
- [12] 福永 栄、中山 衛、神徳 敬、菅野 毅、工藤 章:" 微生物影響評価における課
題の調査と分配係数の取得", (社内資料). (2001)
- [13] 核燃料サイクル開発機構・電気事業連合会:" TRU 廃棄物処分概念検討書",TY1400
2000-001.(2000)
- [14] 佐々木 隆之、工藤 章:" Pu, Np と嫌気性微生物の相互作用に関する基礎検討",

日本原子力学会「2000年春の年会」I62。(2000)

5.2 参考文献(第2章)

- [1] Man-sung Yim, Scott A. Simonson, Terry M. Sullivan: "Investigation of ¹⁴C Release in an Engineered Low-Level Waste Disposal Facility.", *Nuclear Technology*, Vol.114, pp.254-271. (1996)
- [2] P.J.Agg: "Modelling gas generation in radioactive waste repositories.", *Nucl. Energy*, Vol.32, No.2, pp.81-87. (1993)
- [3] H.E.Arter, K.W.Hanselmann, R.Bachofen: "Modelling of microbial degradation processes: The behaviour of microorganisms in a waste repository.", *Experienta*47, pp.578-583. (1991)
- [4] P.Humphreys, T.Johnstone, D.Trivedi, A.Hoffmann: "The biogeochemical transport code DRINK : A mechanistic description.", *Mat.Res.Soc.Symp.Proc.*, Vol.353, pp.211-218. (1995)
- [5] Yifeng Wang, Philippe Van Cappellen: "A multicomponent reactive transport model of early diagenesis: Application to redox cycling in coastal marine sediments.", *Geochemical et Cosmochimica Acta.*, Vol.60, No.16, pp.2993-3014. (1996)
- [6] Yifeng Wang, Hans W. Papenguth: "Kinetic modeling of microbially-driven redox chemistry of radionuclides in subsurface environments: coupling transport, microbial metabolism and geochemistry.", *Journal of Contaminant Hydrology*, Vol.47, pp.297-309. (2001)
- [7] Mats Jansson, Trygve E. Eriksen: "CHEMILAB – in situ Diffusion Experiments Using Radioactive Tracers.", *Radiochim. Acta.*, Vol.82, pp.153-156. (1998)
- [8] Fraser King, et al.: "Modelling the activity of sulphate-reducing bacteria and the effects on container corrosion in an underground nuclear waste disposal vault.", *Mat.Res.Soc.Symp.Proc.*, Vol.556, pp.1167-1174. (1999)
- [9] I.G.McKinley, H.A.Grogan: "Consideration of microbiology in modelling the near field of a L/ILW repository.", *Experienta* 47, pp.573-577. (1991)
- [10] S.Manton, T.Johnstone, D.Trivedi, S.M.A.Hoffmann & P.N.Humphreys: "Modelling

radionuclide migration in the near surface environment with the coupled geochemical/microbiological code DRINK”, *Radiochimica Acta* Vol.68, pp.75-79 .(1995)

5.3 参考文献 (第3章)

- [1] A. Kudo, J. Zheng, I. Cayer, H. Asano, K. Arai, H. Yoshikawa and M. Ito: “Behaviour of plutonium interacting with bentonite and sulfate-reducing anaerobic bacteria”, *Material Research Society*, vol.465, pp.879-884 (1997).
- [2] A. Kudo: “Behaviour of plutonium at the surface and in a geologic environment”, *Raiochimica Acta*, vol.82, pp.159-166 (1998).
- [3] A. Kudo: “Editorial: An opportunity for the millennium: investigating Nagasaki plutonium”, *Journal of Environmental Radioactivity*, vol.57, pp.81-85 (2001).
- [4] T. Sasaki, J. Zheng, H. Asano and Akira Kudo: Interaction of Pu, Np and a with anaerobic microorganisms at geologic repositories, In *Plutonium in the environment* Vol. 1, (Kudo, A. ed.) ELSEVIER SCIENCE, Oxford, pp.221-233 (2001).
- [5] T. Sasaki and A. Kudo: “Pu sorption to activated conglomerate anaerobic bacteria”, *Chemical Letters*, XX, pp.196-197 (2001).
- [6] A. Kudo, J. Zheng, Y. Mahara, T. Kauri, T. Sasaki, T.Kubota and S. Miyahara: ”Measurement of Nagasaki Pu global transport rate, comparing with SO₂ from historic volcanic eruptions, *Journal of Nuclear Science and Technology*, Supl., pp.537-543 (2002).
- [7] T. KUBOTA T. Sasaki, O. Tochiyama and A. Kudo: “ Interaction of neptunium with humic acid and anaerobic bacteria”, *Journal of Nuclear Science and Technology Supl.*, pp.946-949 (2002).
- [8] T. Sasaki, T. Kubota, S. Mito, T. Kauri and A. Kudo: “ Radionuclides sorption to a mixture of anaerobic bacteria in the repository environment”, *Journal of Nuclear Science and Technology,Supl.*, pp.954-957 (2002).
- [9] 石川島播磨重工業株式会社 (動力炉・核燃料開発事業団 研究委託内容報告書): “人工バリア材料に対する微生物の影響評価研究 ()”, PNC ZJ1150 98-003, (1998).

[10]福永 栄、横山 英一、荒井 和浩、千手 隆史、工藤 章：“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”，JNC TJ8400 2000-030, (2000).