

COLFRACを利用した性能評価に及ぼす 微生物の影響に関する評価

(研究報告)

2004年7月

核燃料サイクル開発機構
東海事業所

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)
2004

COLFRAC を利用した性能評価に及ぼす微生物の影響に関する評価

(研究報告)

黒澤進¹、佐々木良一²、上田真三³、吉川英樹¹

要 旨

本研究は、微生物の核種移行への影響評価に関して、コロイドー核種移行計算コード COLFRAC を利用して微生物の挙動評価を行うため、地下環境中での微生物と核種の相互作用やバイオフィーム形成に関する情報を収集、整理した。得られた情報に関しては、COLFRAC で計算可能とするためのデータ変換を実施した。

COLFRAC による計算の結果、核種が微生物に取り込まれるような場合には、核種移行が大幅に促進される可能性があることがわかった。また、その際の核種移行率は、微生物濃度に支配されることが示された。

-
- 1: 東海事業所 環境保全・研究開発センター 処分研究部 処分バリア性能研究グループ
2: 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
3: 三菱マテリアル株式会社

Evaluation in an Effect of Microorganism on Performance Assessment by COLFRAC

(Research Document)

Susumu KUROSAWA¹, Ryouichi SASAKI²,
Shinzo UETA³ and Hideki YOSHIKAWA¹

Abstract

In order to evaluate the impact of microorganism by COLFRAC, which simulates colloid-facilitated contaminant migration, the microorganism - radionuclide sorption data and microbial films data in deep geological environment were surveyed. After the survey, the data conversion to be able to calculate the effects of them on performance assessment in COLFRAC has been performed.

As the results of calculation by COLFRAC, the transport behavior of radionuclide may be enhanced, when radionuclide will be taken in the microorganism. Furthermore, the results indicated that the transport rate of radionuclide depends on microbial concentration.

-
- 1: Barrier Performance Group, Waste Isolation Research Division, Waste Management and Fuel Cycle Center, Tokai Works
 - 2: Materials Research Group, Waste Isolation Research Division, Waste Management and Fuel Cycle Center, Tokai Works
 - 3: Mitsubishi Materials Corporation

目 次

1. はじめに.....	1
2. 微生物に関する情報収集.....	2
2.1 情報の収集.....	3
2.2 既往の研究の概要.....	4
2.2.1 深部地下水中での微生物の生息.....	4
2.2.2 核種－微生物の収着性.....	4
2.2.3 バイオフィルムの形成.....	5
2.2.4 COLFRAC による計算のためのデータ変換.....	5
3. COLFRAC による微生物の影響を考慮した核種移行解析.....	11
3.1 計算体系.....	11
3.2 核種－微生物の収着による核種移行促進の可能性の検討.....	14
3.3 微生物生息量の核種移行への影響の検討.....	16
4. おわりに.....	18
参考文献.....	19
添付資料.....	22

図 目 次

図 2.2-1 フィンランド Palmottu U-Th 鉱床中の微生物濃度	8
図 2.2-2 微生物濃度に関する調査結果のまとめ	10
図 3.1-1 計算モデルの概念図	12
図 3.1-2 AECL における核種移行試験の結果と COLFRAC による計算結果の比較	13
図 3.2-1 COLFRAC による微生物共存下での Am の移行に関する計算結果	15
図 3.3-1 微生物への不可逆な収着を考慮した母岩中の Am の移行率	17

表 目 次

表 2-1	微生物挙動に関する COLFRAC での計算の可能性.....	2
表 2.2-1	WIPP Culebra および Grimsel サイトにおける地下水組成.....	8
表 2.2-2	WIPP Culebra および Grimsel サイトにおける 微生物濃度、セル長さおよび体積.....	9
表 2.2-3	地下深部における微生物濃度のまとめ.....	9
表 3.1-1	COLFRAC の入力パラメータ設定値一覧.....	12
表 3.2-1	微生物共存下での Am の移行計算に関するパラメータの設定.....	15
表 3.3-1	第 2 次取りまとめを参考とした Am の 母岩中の移行計算に用いたパラメータ.....	17

1. はじめに

高レベル放射性廃棄物の地層処分システムの性能評価（核種移行評価）においては、環境中に存在するコロイド、有機物および微生物の影響を考慮する必要がある。しかしながら、有機物および微生物に関しては、環境中分析や核種との相互作用に関する研究は行われているものの、核種移行評価の観点からモデルにどのように組み込むかについての検討が行われていない。

本研究では、処分環境中のとくに微生物に関する情報を整理し、コロイドの影響を考慮した核種移行計算コード COLFRAC を用いて、微生物をコロイド相当と見なすことにより核種移行評価が行い得るかを検討した。その結果、核種移行に及ぼす微生物と核種の相互作用やバイオフィーム形成の影響に関しては COLFRAC により評価が行い得ることがわかった。そこで、地下環境下における微生物と核種の相互作用およびバイオフィーム形成に関する現象に着目して情報を収集し、それら影響を評価するのに適切な値を設定することにより、COLFRAC により核種移行に及ぼす微生物の影響について評価を行った。

2. 微生物に関する情報収集

現行の COLFRAC を利用した核種移行に及ぼす微生物の影響評価に関しては、微生物の挙動をコロイド相当として扱うことが可能な場合に、その影響評価が可能である。本研究では、表 2-1 に示すように、COLFRAC では微生物と核種の相互作用およびバイオフィーム形成の影響に関して評価が行い得ると考えられる。そこで、微生物と核種の相互作用およびバイオフィーム形成に関する現象に着目して情報を収集し、その結果をもとに COLFRAC によりそれら影響を評価するのに適切な値を設定することとした。

表 2-1 微生物挙動に関する COLFRAC での計算の可能性

プロセス		微生物の作用	コロイド挙動との類似性	COLFRAC 計算可能性
地下水化学 の変化	pH の変化	・代謝による酸の放出	なし	×
	錯形成	・代謝にともなう分解生成物の核種との結合	なし	×
	酸化還元反応	・酸素の消費 ・地下水中物質への酸化還元作用に起因したその物質と核種の相互作用の変化 ・核種化学形態への直接作用	なし	×
微生物－核種の相互作用		・核種収着、取込み	・コロイド－核種の収着	○
バイオフィーム形成		・亀裂の開口幅変化 ・鉱物表面へのバイオフィームの被覆 ・バイオフィームの核種の収着、取込み	・コロイドろ過による局所的な透水性の変化 ・コロイドろ過効果 ・ろ過されたコロイドの核種の収着	○

2.1 情報の収集

地下環境下での微生物と核種の相互作用およびバイオフィルムの形成、その他微生物の生息（濃度）等に関して、以下の 3 誌の学会誌を対象に、最新の研究（2000 年以降の知見）について文献調査を実施した。

調査対象

1. Journal of Contaminant Hydrology
2. Radiochimica Acta
3. Journal of Colloid and Interface Science

検索キーワード

“microbial”、 “biosorption”、 “bacteria”

調査期間

2000 年以降の文献

上記条件により文献検索を行い、関連のあると思われる 35 件の文献を入手した。また、日本原子力学会誌等から、6 件の関連文献を別途入手した。

2.2 既往の研究の概要

入手した 41 件の文献のうち、本研究の参考に成り得ると考えられる 30 件^{1)~30)}の文献を次の点から整理し、その概要を述べる。また、30 件の各論文の概要については添付資料にまとめた。

- ① 深部地下水中での微生物の生息
- ② 核種－微生物の収着性
- ③ バイオフィルムの形成

2.2.1 深部地下水中での微生物の生息

図 2.2-1 には、フィンランド Palmottu U-Th 鉱床中の地下水分析で求められた微生物の生息（濃度）に関する深度依存性のデータ¹⁵⁾を示す。微生物の濃度は、深度約 40～300 m において約 $2 \times 10^4 \sim 2 \times 10^5$ cells/ml であった。なお、図 2.2-1 に示した結果からは、微生物の濃度に関する深度依存性は認められない。

また、アメリカの WIPP Culebra サイト（地下 200m のドロマイト）およびスイスの Grimsel サイト（地下 450m の花崗岩）では、表 2.2-1 に示す地下水組成下において、表 2.2-2 に示すような微生物の存在が確認されている²⁸⁾。WIPP Culebra の地下水はイオン強度 2.8M、pH7 であり、微生物は $1.51 \pm 1.08 \times 10^5$ 個/ml の濃度で存在する。一方、Grimsel の地下水はイオン強度 0.0012M、pH9.95 であり、微生物は $3.97 \pm 0.37 \times 10^3$ 個/ml の濃度で存在する。WIPP Culebra の地下水に存在する微生物は球状であり、Grimsel の地下水に存在する微生物は細長くその多くは茎状であるなどのことも報告される。

さらに、地層深部に生息する微生物の諸外国での調査をまとめた結果を表 2.2-3 に示す¹⁾。処分環境条件と類似する条件下での微生物に関する知見は少ないものの、処分環境条件として想定される高温、高放射線、高 pH などの極限環境下においても、微生物は生息し得ることを示唆する研究結果も報告される。

2.2.2 核種－微生物の収着性

WIPP Culebra サイト、Grimsel サイトの地下水中に存在する微生物を 3 種類の培地で培養した菌に対して、U および Pu の収着試験が実施された報告²⁸⁾がある。その報告によれば、WIPP Culebra サイトの地下水から分離した微生物菌では 180 ± 10 mg-U/g-dry cells、Grimsel サイトの地下水から分離した微生物菌では 70 ± 2 mg-U/g-dry cells の U が収着されることが

示される。また、Grimsel サイト地下水からの分離菌に対する Pu の収着試験では、145 pg-Pu/mg-dry cells の Pu が収着されることが示されている。ただし、Pu の収着量は添加した量に依存していることから、より多くの Pu を収着できるものと推察されている。

また、微生物の U の収着に関しては、環境修復やウラン鉱排水処理などの分野においても研究が行われており、100 mg-U/g-dry cells 以上の収着能を有するといった報告が多く見られる。この他、酵母菌に対する U の収着性に関する研究などもあり、その研究では酵母菌と U の分配係数が測定され、 $K_d = 10^4$ ml/g の値が得られている¹⁾。その一方、U を除くアクチノイドと微生物の収着性に関する知見はほとんど得られていない。

2.2.3 バイオフィルムの形成

実施した文献調査の範囲では、核種移行に及ぼすバイオフィルムの影響を直接研究する報告はなかったものの、バイオフィルムの形成と透水性の関連について検討した事例が見られたのでその概要を記述する。

サンドブラストしたガラス平行平板の表面にバイオフィルムを成長させ、その際の物質移行を評価した報告¹⁶⁾では、バイオフィルムの成長にともない平行平板により模擬される亀裂の透水係数は 0.033 倍(18 → 0.6 cm/s)に減少することが見られた。これは、バイオフィルム形成にともない亀裂の開口幅が減少した(狭くなった)ことに因るものと考えられている。

また、飽和多孔質媒体中でのバイオフィルムの成長と透水性について検討した報告¹⁹⁾もある。その報告では、ガラスビーズを充填したセル(56×44×1 cm)に硝酸およびグルコースを流した結果、バイオフィルムの形成に起因して局所的な透水係数の減少が認められている。

しかしながら、それらの実験は、酸化性雰囲気下でグルコースなどの微生物の栄養供給のある系で行われたものであり、一方、処分環境下は貧栄養状態であり、そのような条件のもとでの現象は述べられていない。また、地下水も複数の水路を流動するものと推測すると、バイオフィルムの形成が透水係数に与える影響は無視し得る程度のものである可能性もある。

2.2.4 COLFRAC による計算のためのデータ変換

COLFRAC を利用して微生物の影響評価を行うにあたっては、既述したように、①深部

地下水中の微生物の生息、②核種－微生物の収着性および③バイオフィルムの形成の情報について、COLFRAC による計算で取り扱うためパラメータ設定が必要である。ここでは、2.2.1～2.2.3 項の調査結果に基づき、COLFRAC による計算のためのパラメータ設定に際して参考となる知見を以下のように整理した。

① 深部地下水中の微生物の生息

深部地下水中の微生物の生息（濃度）については、日本をはじめ諸外国において、様々な岩種（花崗岩、凝灰岩、粘土）および深度でのデータが収集されている。本調査で得られた微生物濃度に関する深度分布を図 2.2-2 に示す。その図から、数十～1000 m の深度にわたって微生物が広く存在している。その濃度も幅広い分布を有しているが、多くは $10^2 \sim 10^6$ cells/ml の値が報告されている^{15), 28)}。

ここでは、微生物をコロイド相として扱った場合に、上記微生物の濃度がどの程度のコロイド濃度に相当し得るか、カナダ AECL が天然コロイドを測定した報告および別に微生物量を測定した報告を例に採り検討した。それらの報告では、地下水中でコロイド粒径（1～1000 nm）を有する浮遊粒子の濃度は 19.3 mg/l であり、それらは大部分が有機物から成ることが報告される。また、微生物の金属イオンの収着機構について調査した研究²⁹⁾では、微生物の表面はカルボキシ基を有していることなどが報告されることなどから、上記コロイド成分として検出された有機物が微生物をも包括した結果であると推測すれば、ここでは簡易的に地下水中で微生物は～約 20 mg/l が存在すると換算される。そこで本研究では、地下水中の微生物量は最大で約 20 mg/l 存在すると仮定して、COLFRAC により微生物の影響を検討した。

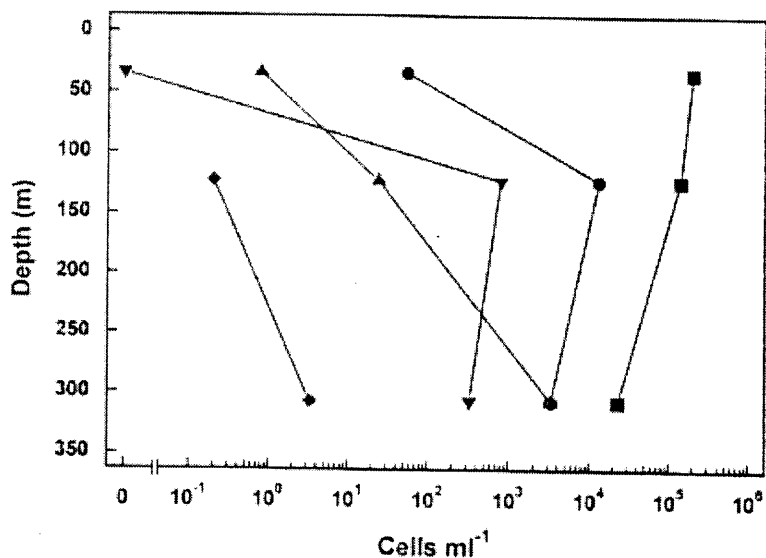
② 核種－微生物の収着性

微生物の核種の収着性については、U に関して微生物の 1 g 乾燥重量あたり 100 mg-U 以上収着することの報告が多く見られる。その一方、微生物の核種の収着性に関して分配係数を測定した研究はほとんどなく、実施した文献調査の範囲では、熱処理した酵母菌に対して U の分配係数 $K_d = 10^4$ ml/g が報告されるのみである。よって本研究では、微生物－核種の分配係数に関しては、 10^4 ml/g の値を設定して COLFRAC により微生物の影響を検討した。

③ バイオフィルムの形成

既往の研究では、酸化性雰囲気でグルコースなどの供給によりバイオフィルムが形成して、透水係数が低下する結果が示されていることを既述した。しかし、処分場が設置される地下数百mより深い環境では貧栄養状態であり、また地下水も複数の経路を通じて流動すると考えられるため、局所的な透水係数の低下が処分場全体での核種移行に影響を及ぼす可能性は低いと考えられる。したがって、本研究では、バイオフィルム形成にともなう透水係数の変化は考慮しないこととする。

また、バイオフィルム形成の核種移行への影響としては、形成したバイオフィルムに核種が収着、取り込まれる現象等も考えられ、COLFRAC ではその影響をコロイドのフィルトレーションとして取扱い評価することも可能である。しかしながら、実施した文献調査の範囲では、バイオフィルム形成とそれにともなう核種収着の挙動をコロイド・フィルトレーション挙動として代替評価し得るよう、適切なデータ設定（変換）を行うに資するための情報がなく、本研究では評価検討項目から除外した。



total cell number(■) and most probable number of IRB(●), SRB(▲), heterotrophic acetogens(▼), and autotrophic acetogens(◆)

図 2.2-1 フィンランド Palmottu U-Th 鉱床中の微生物濃度¹⁵⁾

表2.2-1 WIPP Culobra およびGrimselサイトにおける地下水組成²⁸⁾

Constituents ^a	Culobra GW (Sample H17)	GTS GW (Sample B)
Na ⁺	2300	0.31
K ⁺	28	0.012
Ca ²⁺	42	0.18
Mg ²⁺	74	< 0.001
Cl ⁻	2500	0.023
HCO ₃ ⁻	1	0.12
SO ₄ ²⁻	77	0.11
Ionic strength (M)	2.8	0.0012 ^b
Total cations (meq l ⁻¹)	2549	0.99
Total anions (meq l ⁻¹)	2675	1.0
Temp. (°C)	n/a	11.4
pH	7	9.95

a: mM except where otherwise noted

b: [29].

n/a = not analyzed

表2.2-2 WIPP CulebraおよびGrimselサイトにおける微生物濃度、セル長さおよび体積²⁸⁾

Sample	Total number of cells ml ^{-1a}	Length (μm)	Width (μm)	Volume (μm ³)	Mean cell shape ^b
Culebra	$1.51 \pm 1.08 \times 10^5$	0.75 ± 0.04	0.58 ± 0.02	0.21 ± 0.01	0.77
Grimsel	$3.97 \pm 0.37 \times 10^3$	1.50 ± 0.14	0.37 ± 0.01	0.19 ± 0.03	0.24

a: Mean $\pm$ standard error of the mean of 50 measurements.

b: Cell shape = width/length.

表 2.2-3 地下深部における微生物濃度のまとめ¹⁾

Country	Geology	Depth (m)	Bacteria count
Japan	Granite	400 - 800	$10^2 - 10^7$ cells/ml
Canada	Granite	350 - 400	$10^3 - 10^5$ cells/ml
Finland	Granite	200 - 900	$10^5 - 10^6$ cells/ml
Sweden	Granite	799 - 1240	$2 \times 10^1 - 1.3 \times 10^5$ cells/ml
	Granite	129 - 1078	$1.5 \times 10^1 - 1.8 \times 10^6$ cells/ml
Switzerland	Granite	約 350	$9.5 \times 10^1 - 9 \times 10^4$ cells/ml
UK	Granite	10 - 281	9.4×10^5 colony/ml
	Clay	165 - 331	$8.6 \times 10^3 - 3.5 \times 10^5$ colony/ml
Belgium	Boom clay	190 - 223	1.2×10^3 colony/ml
Germany	Salt	750	Not detected
USA	Tuff	60	$10^2 - 9 \times 10^3$ cells/g dry weight (not detected above water table)

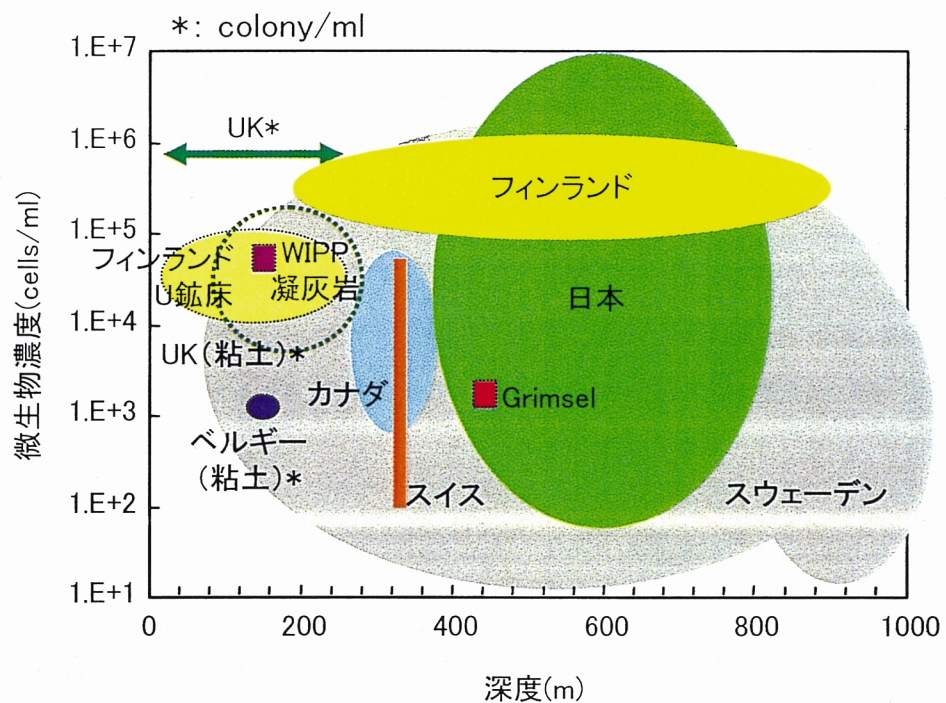


図 2.2-2 微生物濃度に関する各国の調査結果のまとめ
(岩種の記載がないものは花崗岩、日本についても花崗岩を対象とした調査結果を示す)

3. COLFRAC による微生物の影響を考慮した核種移行解析

2章において、微生物と核種の相互作用やバイオフィーム形成に関して、それをコロイドと核種の収着やコロイドのろ過効果等のコロイド相当の挙動として扱うことで、COLFRACにより核種移行に及ぼす微生物の影響評価が行い得ることを記述した。ここでは、微生物と核種の相互作用をコロイド相当の挙動として扱うに際して、適切なデータを設定して計算を実施した。

なお、COLFRAC においては核種移行に及ぼすバイオフィーム形成の影響も評価し得ることを既述したが、実施した文献調査の範囲では、COLFRAC による計算においてその影響に関して適切なデータ設定（変換）を行うに資するための情報はなく、本研究では評価検討項目から除外した。

3.1 計算体系

COLFRAC により計算を行うにあたって、天然の岩石亀裂を扱い行った核種移行試験を参照して、計算上必要な基本パラメータの値を設定した。本研究では、カナダ AECL での花崗岩ブロックの天然亀裂中の Br および Sr の移行試験を参考に、図 3.1-1 に示すよう 1 次元亀裂を設定した。表 3.1-1 には、その試験を参考に、COLFRAC による計算に必要な基本パラメータとして設定した物性値を示す。

図 3.1-2 には、その Br および Sr-85 の移行試験の結果、ならびに表 3.1-1 に示したパラメータ値に基づき解析した結果を示す。試験結果と COLFRAC による計算結果を比較すると、核種の亀裂破過時間や破過曲線のピーク位置は良好に一致していることがわかる。しかしながら、核種移行率を表すピーク高さ (C/C_0) は試験結果の方が低く、そのあとのテーリングも大きくなっている。ただし、本研究では、微生物の影響により核種の移行が促進されるか否かに関する検討が主眼であるため、破過時間や破過曲線のピーク位置に関する評価が重要と考えられ、それについては上述したように良好に再現し得ることから、後述の計算では表 3.1-1 に示した各パラメータ値を踏襲した。

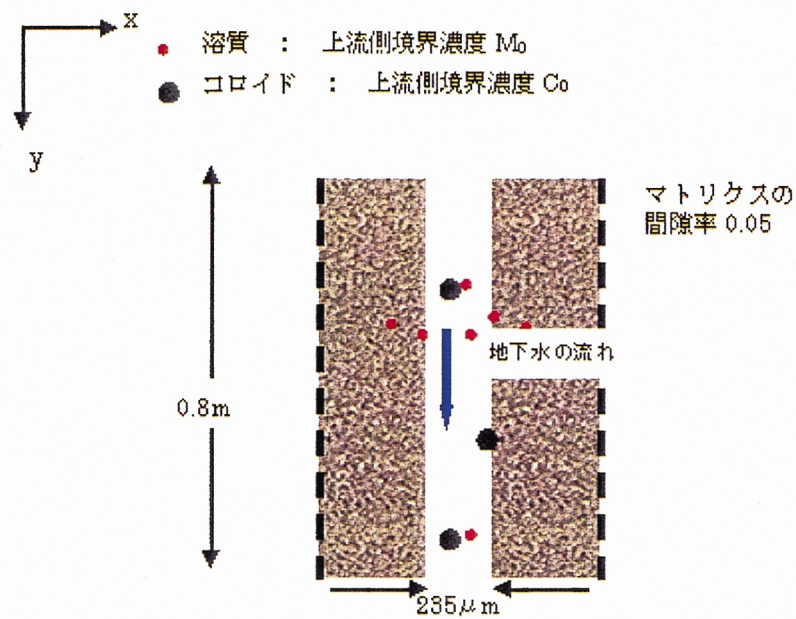


図 3.1-1 計算モデルの概念図

表 3.1-1 COLFRAC の入力パラメータ設定値一覧

パラメータ		設定値	単位
マトリクス部	間隙率(θ)	0.05	—
	透水係数(K)	1.00×10^{-10}	m/s
	縦方向の分散係数(α_l)	0	m
	横方向の分散係数(α_t)	0	m
	遅延係数(R)	1	—
	実効拡散係数(τD_d)	9.00×10^{-10}	m ² /s
亀裂部	評価距離(x)	0.8	m
	亀裂開口幅(b)	2.35×10^{-4}	m
	コロイド流速(q_m)	地下水流速と等しい	m/s
	遅延係数(R_f)	Br : 1 Sr : 3.7	—
	自由水中の拡散係数(D_d)	1.50×10^{-9}	m ² /s

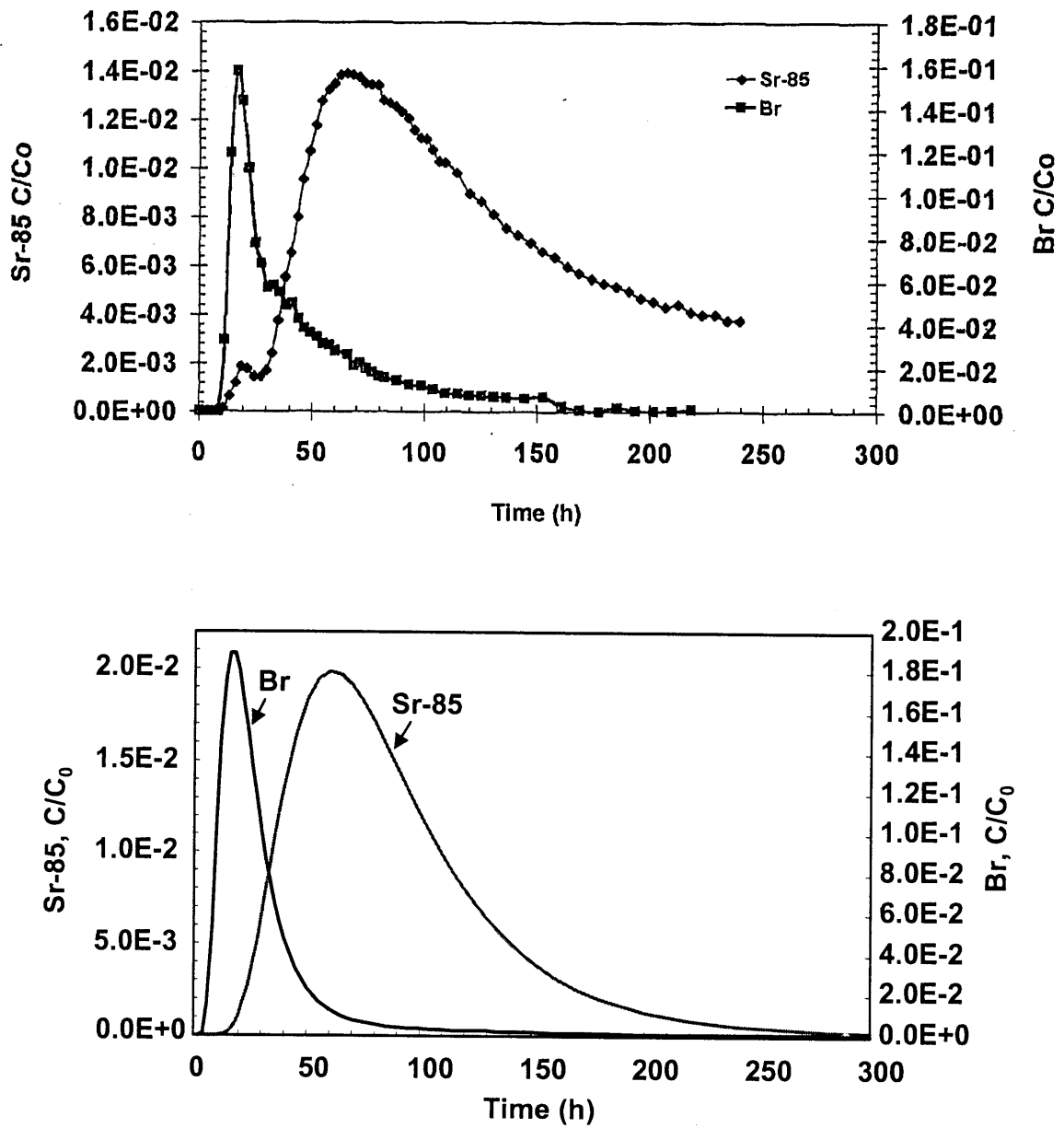


図 3.1-2 AECL における核種移行試験の結果と COLFRAC による計算結果の比較

(上図: 試験結果、下図: 計算結果)

3.2 核種－微生物の収着による核種移行促進の可能性の検討

岩石亀裂中で微生物が共存する場合の核種移行促進の可能性に関して、COLFRAC により評価を行った。ここでは、高レベル放射性廃棄物の地層処分システムでの核種移行評価において、評価対象核種としてあげられている Am を例に採り計算を実施した。表 3.2-1 に、この際の微生物共存下での Am の移行計算に関して設定したパラメータ値を示す。核種－微生物間の分配係数は文献調査の結果に基づき設定した $K_d = 10^4 \text{ ml/g}$ ($= 10 \text{ m}^3/\text{kg}$ 、2.2.4 項参照) の値を基調に、幅をもって設定した。その他、基本パラメータの設定に関しては、表 3.1-1 に示した値を踏襲した。

図 3.2-1 には、COLFRAC によるその計算結果を示す。核種と微生物の収着反応を平衡論に基づき解析したケースでは、核種－微生物の分配係数を $10^3 \text{ m}^3/\text{kg}$ に設定した場合でも Am が亀裂中を破過するといった結果は得られなかった。これは、微生物に収着した Am は亀裂中を移行する過程で速やかに脱着し、亀裂面に分配（収着）して遅延されることに因ると考えられる。それに対して、核種と微生物の収着反応を速度論により扱い脱着速度が遅いものと仮定した解析のケースでは、Am の速い破過が見られる。その結果は、微生物が核種を取り込んだ場合の核種移行を示唆するものであり、核種移行をきわめて促進させる微生物の挙動としてあげることができる。

表 3.2-1 微生物共存下での Am の移行計算に関するパラメータの設定

パラメータ	設定値	備考
Am の亀裂での遅延係数 (-)	2.1×10^4	第 2 次取りまとめで設定した Am の分配係数 $5 \text{ m}^3/\text{kg}$ 、計算体系上設定した亀裂開口幅 $2.35 \times 10^{-4} \text{ m}$ に基づき算出(遅延係数 $= 1 + K_d / b$ より)
Am-微生物間の分配係数 (m^3/kg)	10 100 1000	2.2.4 項の文献調査の結果を基調に、幅を持って設定
Am-微生物の収着反応の速度定数 (-)	10×10^{-5}	移行時間に対して十分小さく設定

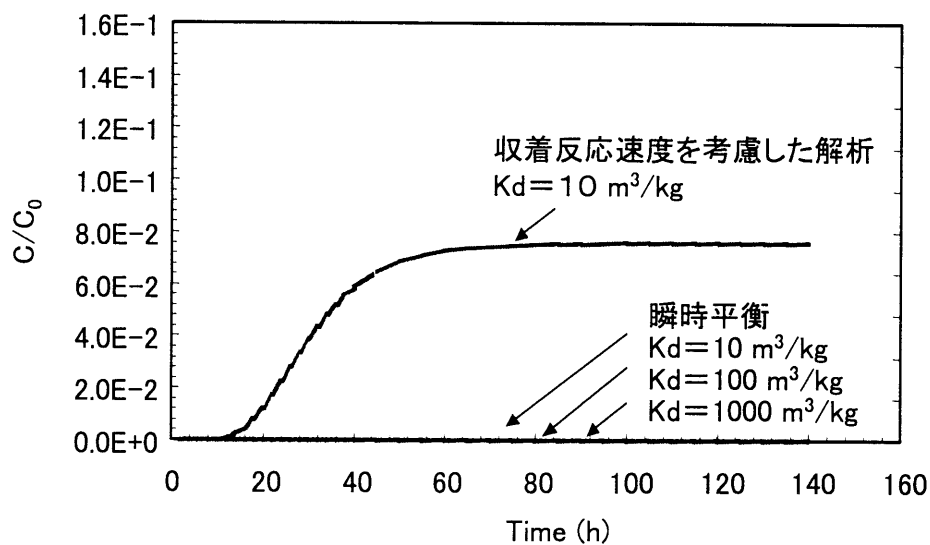


図 3.2-1 COLFRAC による微生物共存下での Am の移行に関する計算結果
 (C_0 : 亀裂入口での Am 濃度、 C : 亀裂出口での Am 濃度)

3.3 微生物生息量の核種移行への影響の検討

前項では、核種が微生物に取り込まれた場合、核種の移行は促進される可能性があることを示した。本項では、核種が微生物に取り込まれる場合、地下水中の微生物の生息量（濃度）に依存して核種移行はより促進されると考えられることから、核種移行に及ぼす微生物濃度の影響の程度を検討した。

本計算では、前項で評価した A_m をまた例に採り、性能評価結果に与える微生物の影響をより体系的に評価するため、第2次取りまとめにおけるレファレンスケースの計算条件を基調に基本パラメータを設定した。微生物濃度に関しては、文献調査の結果に基づき、設定し得る 20 mg/l ($= 2 \times 10^{-2} \text{ kg/m}^3$ 、2.2.4 項参照) の値を基調に幅をもって設定した。表 3.3-1 に、この際の COLFRAC による A_m の移行計算で設定したパラメータ値を示す。

設定したパラメータ値に基づく母岩中の A_m の計算結果を図 3.3-1 に示す。本計算においては、第2次取りまとめで考慮された 1000 年間のオーバーパック寿命および緩衝材中での移行遅延は考慮しておらず、計算開始とともに核種が一定濃度で放出される設定である。その結果、地下水中の微生物濃度に依存して早い時期での核種移行率が大きくなる可能性が示され、微生物が核種を取り込み、微生物が遅延されることなく岩盤中を移行する場合には、処分開始早期の核種移行率に有意な影響を及ぼす可能性があると考えられる。

表 3.3-1 第2次取りまとめを参考とした Am の母岩中の移行計算に用いたパラメータ

パラメータ	設定値	備考
評価距離	100 m	第2次取りまとめ参照
亀裂開口幅	9.3×10^{-5} m	〃
地下水流速	5.0×10^{-1} m/y	〃
岩-核種の遅延係数	5.28×10^4	第2次取りまとめで設定した Am の分配係数 $5 \text{ m}^3/\text{kg}$ 、および亀裂開口幅 9.3×10^{-5} m に基づき算出(遅延係数 = $1 + K_d/b$ より)
コロイド-核種の分配係数	$10 \text{ m}^3/\text{kg}$	2.2.4 項の検討結果より設定
コロイド濃度	$2.0 \times 10^{-2} \text{ kg/m}^3$ $2.0 \times 10^{-1} \text{ kg/m}^3$ 2.0 kg/m^3	2.2.4 項の文献調査の結果を基調に、幅を持って設定
Am-微生物の収着反応の速度定数	10×10^{-5}	移行時間に対して十分小さく設定

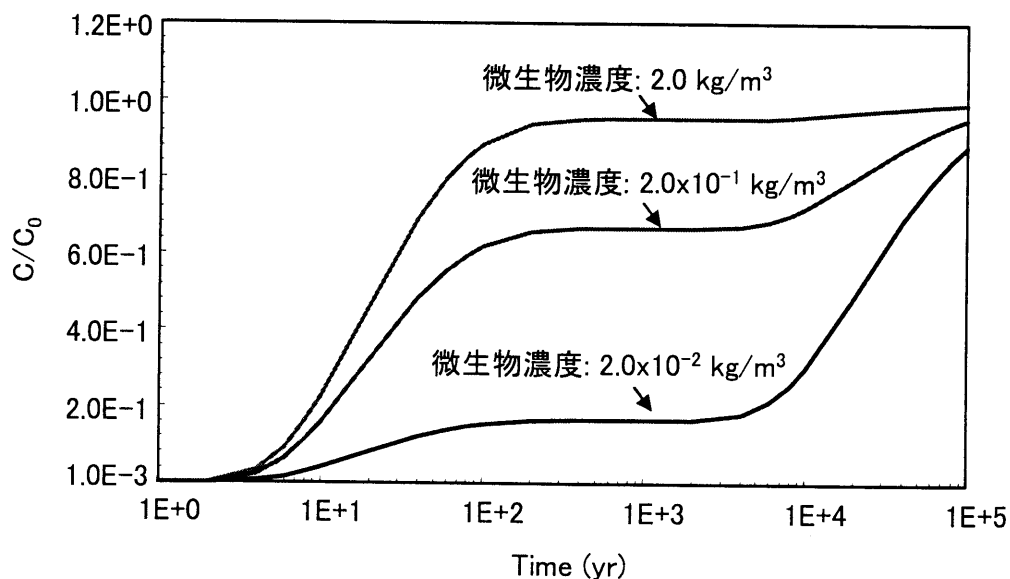


図 3.3-1 微生物への不可逆な収着を考慮した母岩中の Am の移行率

(C_0 : 亀裂入口での Am 濃度、 C : 評価距離 100 m(亀裂入口から)の Am 濃度)

4. おわりに（性能評価結果への影響の程度の検討）

文献調査によって得られた情報に基づいてパラメータを設定し、COLFRAC による微生物の影響評価を実施した結果、核種が微生物に取り込まれるような場合には、核種移行が大幅に促進される可能性があることがわかった。また、その際の核種移行に関するピークの出現時期は、微生物濃度および核種－微生物の収着の脱着反応の速度に支配される。

高レベル放射性廃棄物の地層処分システムの性能評価（核種移行評価）では、地下水中の核種濃度は、核種の溶解度および岩盤との分配平衡によって制限される。微生物の影響に関しては、核種の取り込みなどの作用によって見かけの溶解度が大きくなり、岩盤での遅延が小さくなることによって核種移行を促進させると考えられる。このため、核種移行評価上は、溶解度制限が考えられている核種や岩盤での遅延が大きい核種が、微生物の影響により核種移行促進が有意になると考えられる。その代表的な核種として、U、Np、Pu、Am などが挙げられる。

ただし、ベントナイト系緩衝材においては、微生物はろ過されると考えられることから、微生物に取り込まれた場合には核種移行率が小さくことも考えられる。したがって、人工バリアが設計通りの性能を発揮している場合には、最大線量に影響を与えることはなく、性能評価結果への影響は小さいとも考えられる。

今後は、微生物が核種を不可逆に取り込む事象、バイオフィルムが核種移行に及ぼす影響、さらには微生物が共存する地下水中でアクチニドがどういった化学形態を取りうるかといった詳細な現象を把握し、COLFRAC により微生物の影響を評価する場合にはそれら挙動をパラメータとしてどのように設定するかが重要である。また、biomass growth と redox も考慮した計算を実施することにより、微生物の挙動が性能評価に及ぼす影響をより具体的に評価することが可能になると考えられる。

参考文献

- 1) 大貫敏彦: “地層処分における微生物の影響 研究の現状と今後の課題”, 原子力バックエンド研究, vol.9, p.35, (2002).
- 2) 鈴木義規, 榎田洋一, 山本一良, 吉田崇宏, 尾崎卓郎, 大貫敏彦: “Eu(III)-クエン酸錯体と微生物との相互作用”, 日本原子力学会 2003 年春の年会要旨集(第Ⅲ分冊), p.924, (2003).
- 3) 大貫敏彦, 香西直文, 坂本文徳: “ランの酵母への収着挙動”, 日本原子力学会 200 年春の年会要旨集(第Ⅲ分冊), p.692, (2002).
- 4) 大貫敏彦, 香西直文, 坂本文徳, 尾崎卓郎, 吉田崇宏: “酵母によるウランのリン酸塩鉱物化機構”, 日本原子力学会 2003 年春の年会要旨集(第Ⅲ分冊), p.923, (2003).
- 5) 大貫敏彦, 坂本文徳, 香西直文, Sammdfam M., 神谷富裕, 酒井卓郎, 及川将一, 佐藤隆博: “陰イオンの移行に及ぼすバイオマットの影響”, 日本原子力学会 2001 年秋の大会予稿集(第Ⅲ分冊), p.935, (2001).
- 6) 村上由記, 岩月輝希, 浜克宏, 長沼毅: “東濃ウラン鉱床における地下微生物の酸化還元緩衝能力に関する評価”, 日本原子力学会春の年会要旨集(第Ⅲ分冊), p.952, (2003).
- 7) B. Elberling, A. Schippers and W. Sand: “Bacterial and chemical oxidation of pyritic mine tailings at low temperatures”, Journal of Contaminant Hydrology, vol.41, p.225, (2000).
- 8) M. J. Conboy and M. J. Goss: “Natural protection of groundwater against bacteria of fecal origin”, Journal of Contaminant Hydrology, vol.43, p.1, (2000).
- 9) K. M. Rathfelder, J. R. Lang and L. M. Abriola: “A numerical model (MISER) for the simulation of coupled physical, chemical and biological processes in soil vapor extraction and bioventing systems”, Journal of Contaminant Hydrology, vol.43, p.239, (2000).
- 10) P. Vilks and M. H. Baik: “Laboratory migration experiments with radionuclides and natural colloids in a granite fracture”, Journal of Contaminant Hydrology, vol.47, p.197, (2001).
- 11) Y. Wang and H. 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, p.297, (2001).
- 12) M. H. Schroth, J. Kleikemper, C. Bolliger, S. M. Bernasconi and J. Zeyer: “In situ assessment of microbial sulfate reduction in a petroleum-contaminated aquifer using push-pull tests and stable sulfur isotope analyses”, Journal of Contaminant Hydrology, vol.51, p.179, (2001).

- 13) R. W. Pickup, G. Rhodes, M. L. Alamillo, H. E. H. Mallinson, S. F. Thornton and D. N. Lerner: "Microbiological analysis of multi-level borehole samples from a contaminated groundwater system", *Journal of Contaminant Hydrology*, vol.53, p.269, (2001).
- 14) Barbara A. Bekins, Isabelle M. Cozzarelli, E. Michael Godsy, Ean Warren, Hedef I. Essaid and Mary Ellen Tuccillo: "Progression of natural attenuation processes at a crude oil spill site: II. Controls on spatial distribution of microbial populations", *Journal of Contaminant Hydrology*, vol.53, p.387, (2001).
- 15) S. A. Haveman and K. Pedersen: "Microbially mediated redox processes in natural analogues for radioactive waste", *Journal of Contaminant Hydrology*, vol.55, p.161, (2001).
- 16) D. D. Hill and B. E. Sleep: "Effects of biofilm growth on flow and transport through a glass parallel plate fracture", *Journal of Contaminant Hydrology*, vol.56, p.227, (2002).
- 17) S. Bhattacharjee, J. N. Ryan and M. Elimelech: "Virus transport in physically and geochemically heterogeneous subsurface porous media", *Journal of Contaminant Hydrology*, vol.57, p.161, (2002).
- 18) J. F. Schijven, S. M. Hassanizadeh and R. H. A. M. de Bruin: "Two-site kinetic modeling of bacteriophages transport through columns of saturated dune sand", *Journal of Contaminant Hydrology*, vol.57, p.259, (2002).
- 19) M. Thullner, L. Maucclair, M. H. Schroth, W. Kinzelbach and J. Zeyer: "Interaction between water flow and spatial distribution of microbial growth in a two-dimensional flow field in saturated porous media", *Journal of Contaminant Hydrology*, vol.58, p.169, (2002).
- 20) S. B. Kim and M. Y. Corapcioglu: "Contaminant transport in dual-porosity media with dissolved organic matter and bacteria present as mobile colloids", *Journal of Contaminant Hydrology*, vol.59, p.267, (2002).
- 21) D. M. Jolley, T. F. Ehrhorn and J. Horn: "Microbial Impacts to the Near-Field Environment Geochemistry: a model for estimating microbial communities in repository drifts at Yucca Mountain", *Journal of Contaminant Hydrology*, vol.62/63, p.553, (2003).
- 22) S. Wang, P. R. Jaffé, G. Li, S. W. Wang and H. A. Rabitz: "Simulating bioremediation of uranium-contaminated aquifers; uncertainty assessment of model parameter", *Journal of Contaminant Hydrology*, vol.64, p.283, (2003).
- 23) M. Chu, P. K. Kitanidis and P. L. McCarty: "Effects of biomass accumulation on microbially

- enhanced dissolution of a PCE pool: a numerical simulation”, *Journal of Contaminant Hydrology*, vol.65, p.79, (2003).
- 24) W. Songkasiri, D. T. Reed and B. E. Rittmann: “Bio-sorption of neptunium(V) by *Pseudomonas fluorescens*”, *Radiochimica Acta*, vol.90, p.785, (2002).
- 25) A. Abdelouas, M. Fattahi, B. Grambow, L. Vichot and E. Gautier: “Precipitation of technetium by subsurface sulfate-reducing bacteria”, *Radiochimica Acta*, vol.90, p.773, (2002).
- 26) P. J. Panak, R. Knopp, C. H. Booth and H. Nitsche: “Spectroscopic studies on the interaction of U(VI) with *Bacillus sphaericus*”, *Radiochimica Acta*, vol.90, p.779, (2002).
- 27) P. J. Panak, C. H. Booth, D. L. Caulder, J. J. Bucher, D. K. Shuh and H. Nitsche: “X-ray absorption fine structure spectroscopy of plutonium complexes with *Bacillus sphaericus*”, *Radiochimica Acta*, vol.90, p.315, (2002).
- 28) J. B. Gillow, M. Dunn, A. J. Francis, D. A. Lucero and H. W. Papenguth: “The potential of subterranean microbes in facilitating actinide migration at the Grimsel Test Site and Waste Isolation Pilot Plant”, *Radiochimica Acta*, vol.88, p.769, (2000).
- 29) S. Markai, Y. Andres, G. Montavon and G. Grambow: “Study of the interaction between europium (III) and *Bacillus subtilis*: fixation sites, biosorption modeling and reversibility”, *Journal of Colloid and Interface Science*, vol.262, p.351, (2003).
- 30) D. Santhiya, S. Subramanian and K. A. Natarajan: “Surface Chemical Studies on Sphalerite and Galena Using *Bacillus polymyxa* II: Mechanisms of Microbe-Mineral Interactions”, *Journal of Colloid and Interface Science*, vol.235, p.298, (2001).

添付資料
(文献情報の整理)

参考文献番号：1

著者および文献名：

大貫敏彦：“地層処分における微生物の影響 研究の現状と今後の課題”，原子力バックエンド研究, 9, 35(2002).

目的：

廃棄物処分、地質、環境分野で議論されている微生物の影響評価に関する6つの報告を参考として、これまでの研究を整理し、今後の課題を探ることを目的としている。

微生物の種類：

- ・ 微生物のエネルギー獲得法により微生物が生息できる範囲が限られる。地表近くの酸素が存在する場所では好気性の、地中の深度の増加とともに、酸素濃度あるいは供給速度の減少により嫌気性の微生物種が増加する。
- ・ 地層深部に生息する微生物の各国での調査結果を以下のようにまとめる。核種移行への影響を評価するためには、局所的な酸化還元電位への変化への微生物の関与を明らかにする必要がある。したがって、硫酸還元菌、硫黄酸化細菌、鉄還元菌やメタン細菌などの微生物の代謝活動の解明が重要である。
- ・ 処分施設付近での微生物に関する知見は少ないが、処分施設で想定される高温、高放射線、高 pH などの極限環境下においても、微生物は生存しうるとの研究成果がある。今後は、このような微生物にとって厳しい条件下でどの程度生存できるのか研究が必要となってくる。
- ・ 処分施設材料と微生物の相互作用に関する研究は少ないが、以下の例がある。ガラス固化体や使用済み燃料に対しては、真菌類の代謝産物によるガラスの溶解が報告されており、その影響を考慮する必要がある。セメント材料については、酸化的条件では微生物による直接的な劣化が起こる可能性がある。圧密ベントナイト中においては、全ての微生物に対して議論できるわけではないが、圧密度の増加とともに生存が制限される可能性が高い。ベントナイトの中央に熱源をおいた試験からは、廃棄体の発する熱による微生物菌体の減少が期待される。

Country	Geology	Depth (m)	Bacteria count
Japan	Granite	400 - 800	$10^2 - 10^7$ cells/ml
Canada	Granite	350 - 400	$10^3 - 10^5$ cells/ml
Finland	Granite	200 - 900	$10^5 - 10^6$ cells/ml
Sweden	Granite	799 - 1240	$2 \times 10^1 - 1.3 \times 10^5$ cells/ml
	Granite	129 - 1078	$1.5 \times 10^1 - 1.8 \times 10^6$ cells/ml
Switzerland	Granite	約 350	$9.5 \times 10^1 - 9 \times 10^4$ cells/ml
UK	Granite	10 - 281	9.4×10^5 colony/ml
	Clay	165 - 331	$8.6 \times 10^3 - 3.5 \times 10^5$ colony/ml
Belgium	Boom clay	190 - 223	1.2×10^3 colony/ml
Germany	Salt	750	Not detected
USA	Tuff	60	$10^2 - 9 \times 10^3$ cells/g dry weight (not detected above water table)

研究内容：

総説であり、廃棄物処分、地質、環境分野で議論されている微生物の影響評価に関する 6 つの論文を参考として研究を整理したもの。

結果と考察：

- ・ アクチニドの可溶化について、鉄還元菌が、錯形成能を有する有機物の存在下で PuO_2 を可溶化する、鉄キレート物質の一つであるシデロフォアが PuO_2 の溶解度を増すとの報告がある。また、 Pu(VI) を含む培地中で培養した微生物は Pu を易動化するクエン酸に似た代謝産物を排出し、 Pu が還元されている可能性が高いとしている。しかし、相互作用は培養条件、 Pu の化学形態、微生物の種類、 pH 等により異なるため、今後の検討が必要としている。
- ・ アクチニドの不溶化について、 U については多くの報告があり、 $\text{pH}4$ で $K_d=10^4 \text{ ml/g}$ との報告がある。 Pu に関しては、WIPP、Grimsel の好塩菌などで $145\text{ng-}^{241}\text{Pu} / \text{乾燥 g}$ 、 $351\text{ng-}^{241}\text{Pu} / \text{乾燥 g}$ 収着したとの報告がある。鉍物化については、 U 、 Np の報告例があるが、 Np では酸化状態を明らかにするには至っていない。また、硫酸還元菌や地衣類での研究から、地球表層における Pu の化学状態には微生物が大きく関与している。
- ・ 微生物が処分の安全確保の観点から、保守側に働くのか、移行を促進させるように作用するかは、現在までの研究からは判断できない。
- ・ 核種移行への影響については、還元菌- U を除くアクチニドとの相互作用に関する知見が不足している。
- ・ アクチノイドコロイドの移行への微生物の影響を明らかにすることが重要。微生物の代謝産物がコロイドを可溶化する、微生物がコロイドを摂取する、 nm スケールのアクチノイド鉍物がコロイド化するといった可能性がある。

COLFRAC への応用可能性：

微生物の影響としては、移行を遅延する可能性、移行を促進する可能性ともにあるため、幅を持ったパラメータ設定を行う必要がある。

参考文献番号：2

著者および文献名： 鈴木義規，榎田洋一，山本一良，吉田崇宏，尾崎卓郎，大貫敏彦：“Eu(III)-クエン酸錯体と微生物との相互作用”，日本原子力学会 2003 年春の年会要旨集(第Ⅲ分冊)，924(2003).
目的： 微生物が放射性核種の化学形態に変化を及ぼすことから、地層中における放射性核種の挙動に影響を与える可能性がある。本研究は、Am(III)の類似元素として Eu(III)-クエン酸錯体と微生物の接触実験を行い、微生物の代謝活動の影響を考察した。
微生物の種類： 土壌などに多く見出される微生物の一種である <i>P.fluorecens</i>
研究内容： 栄養素が含まれた A 培地と栄養素が含まれない B 培地について、菌体を加えて攪拌し、数時間ごとに採取して濾過した後、溶液中の Eu(III)及びクエン酸の濃度をそれぞれ測定した。
結果と考察： 24 時間後、溶液中の Eu(III)残存量は、A 培地: 20%、B 培地:80 %であり、クエン酸残存量も変化も同様の傾向であった。Eu(III)よりもクエン酸残存量が多い意向を示したことから、微生物との接触により錯体の解離、Eu(III)の菌体への吸着、クエン酸の分解が進むと考えられる。A 培地と B 培地の比較から、代謝活動が活発な微生物は、環境中でクエン酸と錯形成した Eu(III)及び Am(III)の移行を遅延させる可能性がある。
COLFRAC への応用可能性： 現バージョンでは、錯体の形成を考慮した計算は実施していない。コロイドー核種の Kd 設定の際に参考とすることができる。

参考文献番号：3

著者および文献名： 大貫敏彦, 香西直文, 坂本文徳: “ランの酵母への収着挙動”, 日本原子力学会 200 年春の年会要旨集(第Ⅲ分冊), 692(2002).
目的： 地下数百 m の地層でも微生物活動が確認されているが、これまで、微生物の存在が放射性廃棄物に含まれるアクチノイドなどの元素の移行を加速するか、減速するか不明である。原核生物、真核生物、古細菌の 3 種類の微生物のうち、今回は真核生物の酵母への U(VI) の収着挙動を検討した。
微生物の種類： 酵母 X2180-1B
研究内容： 培養し、遠心分離と洗浄を行った酵母を所定の pH にした U(VI) 溶液(25ml、25℃)と接触させた。試料は採取後、遠心分離した溶液中の U 濃度を測定し、固相は SEM 観察と EDS 元素分析を行った。
結果と考察： 分配係数は時間とともに増加しており、pH が 3.8～5.8 まではほぼ同じ傾向であった。 溶液から分離した酵母の SEM 観察からは酵母表面に針状の沈殿物が観察された。EDS からは、U が観察される付近のピークカウントが高く、接触時間とともに増加する傾向にあることから、沈殿物はウラニルリン酸鉍物であると考えられる。 酵母表面における U の鉍物化が、主たる収着機能の一つであると考えられる。
COLFRAC への応用可能性： 現バージョンでは、水化学と連成した核種の溶解・沈殿は取り扱えない。今後の課題と考える。

参考文献番号：4

著者および文献名： 大貫敏彦, 香西直文, 坂本文徳, 尾崎卓郎, 吉田崇宏: “酵母によるウランのリン酸塩鉱物化機構”, 日本原子力学会 2003 年春の年会要旨集(第Ⅲ分冊), 923(2003).
目的： 酵母細胞の表面では、ウランが鉱物化するとの報告があるが、その機構は明らかでない。鉱物化機構を明らかにするために鉱物の同定及び熱力学的な計算による鉱物化条件の検討を行った。
微生物の種類： 酵母(X-2180-1B)
研究内容： 培養した酵母をウラン溶液と接触させ、酵母を溶液と分離した後イオン交換水で洗浄し、顕微可視分光装置により反射スペクトルを測定した。熱力学的検討は、EQ3NR を用いて鉱物の飽和度指数を求めた。また、SEM-EDS による分析も行った。
結果と考察： 可視光反射スペクトルから、接触後 24 時間では鉱物化が起こっていないこと、96 時間後にはウラニルリン酸鉱物が生成していることがわかった。一方、熱力学的な計算からは、pH4 以下では全ての鉱物が不飽和であり、例えば、酵母細胞表面が局所的にバルク溶液と化学組成が異なるなどの可能性があることを示している。
COLFRAC への応用可能性： 現バージョンでは、水化学と連成した核種の溶解・沈殿は取り扱えない。今後の課題と考える。

参考文献番号：5

著者および文献名： 大貫敏彦, 坂本文徳, 香西直文, Sammdfam M., 神谷富裕, 酒井卓郎, 及川将一, 佐藤隆博: “陰イオンの移行に及ぼすバイオマットの影響”, 日本原子力学会 2001 年秋の大会予稿集(第Ⅲ分冊), 935(2001).
目的： 陰イオン核種は、陽イオン核種に比べて地下水とともに移動しやすく、鉍物などの無機物との収着研究が行われてきたが、微生物などを対象とした研究は少ない。本研究は、弱酸性-中性領域において陰イオンとして存在すると素の移行に関するバイオマット(微生物の集合体)の影響を検討する。
微生物の種類： 群馬県の下仁田町に位置するヒ素鉍山跡のバイオマット
研究内容： 採取したバイオマットをカラムに設置し、現地の湧水を所定量通水し、流出水の pH、元素濃度を測定した。バイオマットは元素分析、SEM 観察を実施し、ミクロンオーダーにおける元素分布を求めた。
結果と考察： 流水中の元素濃度測定の結果、バイオマットにより As、V、Fe が除去されたことが示された。バイオマット中の元素分布の分析結果から、As と Fe が同じ領域で検出され、その形状が鉄酸化細菌の代謝生成物の形に似ているものがある、Fe の化学形が β-FeOOH を構成する Fe(III)と同じであることから、As は鉄酸化細菌の生物活動により生成した鉄(III)鉍物に収着した可能性が高い。
COLFRAC への応用可能性： 地表で酸化性雰囲気下の試験結果であり、還元環境下での核種移行評価では適用範囲外と考える。

参考文献番号：6

著者および文献名： 村上由記, 岩月輝希, 浜克宏, 長沼毅: “東濃ウラン鉱床における地下微生物の酸化還元緩衝能力に関する評価”, 日本原子力学会春の年会要旨集(第Ⅲ分冊), 952(2003).
目的： ウラン鉱床周辺の微生物による硫酸還元反応に着目し、生物化学的な緩衝能力の評価を試みた。
微生物の種類： 硫酸還元菌
研究内容： ウラン鉱床が存在する堆積岩中の試錘孔の異なる深度(79,95,132,177m)の地下水を採取し、硫酸イオンを添加した状態で硫酸還元菌の天然群集の培養試験を行った。硫酸イオン濃度から硫酸還元反応速度を、反応が平衡に達した後の S₂-濃度から硫酸還元菌の還元緩衝能力を考察した。
結果と考察： 地下水中の硫酸還元反応は、約 60～90 日で平衡状態に達し、最大 17.5 mg/l の硫化物イオンが生成した。試料により硫化物イオン生成量、利用される有機物等に差があり、震度により微生物の種類、還元能力に差があると考えられる。硫酸イオン濃度の経時変化から、硫酸還元速度は $0.18 \sim 3.1 \times 10^{-2} \mu\text{mol/l/d}$ であり、東濃ウラン鉱床周辺では硫酸イオンの供給速度の 10～100 倍で硫酸還元反応が進んでいた。
COLFRAC への応用可能性： 地下環境において酸化的反応を起こすイベントが発生したとしても、微生物活動による還元環境の形成・維持の緩衝材として機能しうる可能性があるが、パラメータとして反映するものではない。

参考文献番号：7

著者および文献名： B. Elberling, A. Schippers and W. Sand: "Bacterial and chemical oxidation of pyritic mine tailings at low temperatures", Journal of Contaminant Hydrology, 41, 225(2000).
目的： Nanisivk 鉱山において、黄鉄鋼鉱山のテーリングにおける微生物的及び化学的な硫化物の酸化能力と酸素消費を調査した。
微生物の種類： 鉄(II)、硫化物、チオ硫化物酸化溶解バクテリア
研究内容： Nanisivk 鉱山において、黄鉄鋼鉱山のテーリングにおける微生物的及び化学的な硫化物の酸化能力と酸素消費を調査した。鉱山から試料を採取し、微生物の代謝能力及び化学的な黄鉄鋼の酸化能力を測定した。その結果、テーリング中にバクテリアが存在しており、酸化の約 1/3 に寄与していることがわかった。
結果と考察： これらのバクテリアは北極圏にも生息しており、北極圏に廃棄されたテーリングによる汚染の拡がりが起こることをしめした。
COLFRAC への応用可能性： 特になし

参考文献番号：8

著者および文献名： M. J. Conboy and M. J. Goss: "Natural protection of groundwater against bacteria of fecal origin", Journal of Contaminant Hydrology, 43, 1(2000).
目的： カナダ農村部の地下水水質調査結果によると、一部がバクテリアに汚染されていることがわかっている。この研究の目的は、井戸に影響を及ぼすような分布の特性や、微生物汚染に対する対策を提供することである。
微生物の種類： 地下水中の微生物
研究内容： 土壌、地文学、母岩の地質学的情報が、井戸掘削者の記録の層序図といった情報で補いつつ、調査を実施した。Ontario の古い高いリスクの井戸は、古い石灰岩やドロマイトの母岩で粘土あるいは粘土ロームの土壌中に多かった。井戸は、位置する場所の土壌と母岩の組み合わせに大きく影響を受けており、薄い土壌、浅い帯水層は影響を受けやすかった。肥料の使用は、耕作といった農作業よりも、井戸の汚染に対する影響が大きい。
結果と考察： 地勢図と表面水の簡単な評価により、水の流れの方向を示す情報を得ることができ、これがその場所で影響を受けやすい井戸か否かを知る情報となる。
COLFRAC への応用可能性： 特になし

参考文献番号：9

著者および文献名： K. M. Rathfelder, J. R. Lang and L. M. Abriola: "A numerical model (MISER) for the simulation of coupled physical, chemical and biological processes in soil vapor extraction and bioventing systems", Journal of Contaminant Hydrology, 43, 239(2000).
目的： 不飽和層の土壌に対する土壌ガス吸引法(SVE)、通気生物処理(BV)の有効性は、複雑な物理的、化学的、生物学的要因の組み合わせに支配されているため、フィールドスケールでのSVE、BVの有効性を検討するための2次元数値モデルシミュレータでの検討を実施した。
微生物の種類： 土壌中の微生物
研究内容： SVEでは、微生物分解の役割は小さいものであり、BVの性能に対しては、効果的な酸素の供給だけが唯一の有効性の基準ではない可能性が示された。微生物の成長率、物質移行率、空気インジェクション率などが独立に影響していた。
結果と考察： 不飽和条件における微生物プロセスの定量的な研究が求められる。
COLFRACへの応用可能性： 特になし

参考文献番号：10

著者および文献名：

P. Vilks and M. H. Baik: "Laboratory migration experiments with radionuclides and natural colloids in a granite fracture", Journal of Contaminant Hydrology, 47, 197(2001).

目的：

花崗岩の亀裂中における放射性核種の移行に及ぼすコロイドの影響について、実験的に明らかにするため、大きな花崗岩ブロック中の亀裂における核種と天然コロイド共存系における実験室規模の試験結果を記述する。

微生物の種類：

AECL の URL で採取した天然コロイドであり、微生物を直接用いた研究ではない。
コロイドは、主に粒径 1~10 nm で構成されており、10~450 nm のものを若干含む、有機物とアルミニシケイトである。

研究内容：

核種は、適度に収着するものとして ^{85}Sr を、強く収着するものとして ^{241}Am を用いている。コロイドへの分配係数は、Sr で 300~1000 ml/g、Am で $7 \times 10^4 \sim 7 \times 10^5$ ml/g であり、Sr の収着は可逆であった。

試験は、Whiteshell で得られた花崗岩ブロック(83×90×60 cm)の水平な亀裂に 2 本のボーリングを設け、その間に流れを作っておこなった試料は、15ml/h で 5 時間注入し、その前後は地下水を通水した。

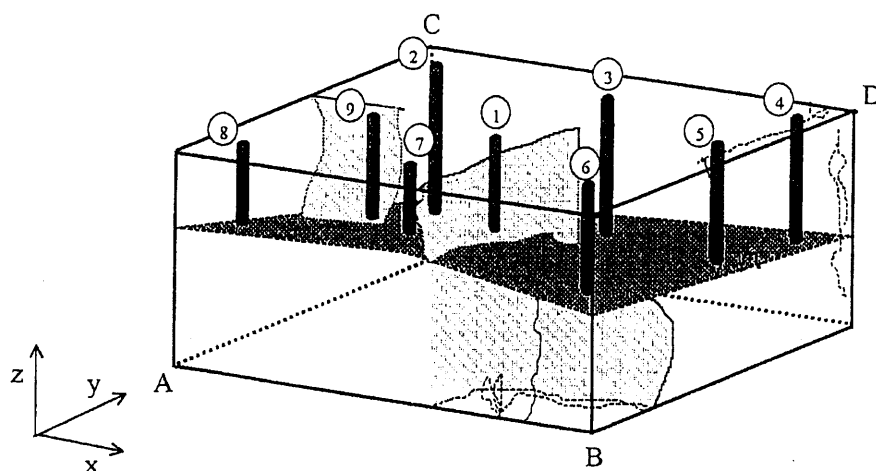


Fig. 1. Schematic diagram of fractured large granite block (LB-4), showing the main fracture, the nine boreholes, and the orientations of the inferred vertical fractures.

結果と考察：

天然コロイドへの核種の収着

Sr 及び Am のコロイドへの収着試験結果を表 1 に示す。Am の分配係数は Sr よりもかなり大きい分配係数を示した。また、Sr は、地下水中の天然コロイドよりもベントナイトコロイドに強く吸着していた。

脱着試験の結果から、Sr の収着は可逆であることが示されたが、Am は溶解している量が測定下限のため、この点を確認できなかった。

Sr の天然コロイドに対する分配係数の値は、グリムゼルのコロイドでの報告値($5 \times 10^2 \sim 8 \times 10^5$ ml/g)と同様であり、花崗岩に対する Sr の分配係数値(1ml/g)よりも明らかに大きい。ベントナイトコロイドに対する Sr の分配係数の値は、粘土に対する分配係数($46 \sim 2 \times 10^4$ ml/g)の範囲内であった。

一方、Am の天然コロイドに対する分配係数は、花崗岩($3.9 \times 10^2 \sim > 1.8 \times 10^3$ ml/g)やモンモリロナイト($8.9 \times 10^2 \sim > 2.2 \times 10^3$ ml/g)よりも明らかに大きかった。

核種及びコロイドの移行試験

移行試験結果のまとめを表 2 に示す。コロイドなしの場合、Sr は適度に収着しており、一方、Am は亀裂表面に完全に吸着し、移行が観察できなかった。コロイドありの場合は、少量の Am の移行が観察され、溶解度の低い核種の移行促進が起こることを実証した。Sr に対しては、ほとんど影響が見られず、別途実施したコロイド濃度を大きくした試験では、Avonlea ベントナイトから模擬コロイドが生成した。これらの模擬コロイド濃度が相対的に高くなることにより、Sr の移行が減少した。これは、天然コロイドと比較してベントナイトコロイドが Sr を強く吸着し、かつ亀裂中を移行しにくいことによる。

Table 2
Summary of tracer migration tests given in the order in which they were performed

Test	Purpose	Duration (h)	Tracers	First arrival, ml (h) ^a	Peak arrival, ml (h) ^a	Percent recovery after 2000 ml	Percent total recovery
KTT-1	Characterize Sr migration under low colloid concentrations	128	⁸⁵ Sr (Co = 2966 Bq/ml) Br (530 mg/l)	470 (31.3) 188 (12.5)	979 (65.3) 249 (16.6)	13.5 ^b 60 ^b	13.5 60
KTT-2	Characterize Am migration under low colloid concentrations	142	Am-241 (Co = 1.11 Bq/ml) Br (242 mg/l)	— 147 (9.8)	— 330 (22.0)	— 31	— 31
KTT-3	Characterize the impact of colloids on Am transport: natural colloids (19.3 mg/l)	200	Am-241 (Co = 9.21 Bq/ml) Br (503 mg/l)	225 (15.0) 147 (9.8)	286 (19.1) 290 (19.3)	1.2 100	1.2 101
KTT-4	Characterize the impact of colloids on Sr transport: natural colloids (19.3 mg/l)	159	⁸⁵ Sr (Co = 2000 Bq/ml) Br (506 mg/l)	225 (15.0) 141 (9.4)	1673 (111.5) 282 (18.8)	18 98	24 99
KTT-3-2	Characterize the impact of colloids on Am transport: Repeat KTT-3, natural colloids (19.3 mg/l)	177	Am-241 (Co = 6.13 Bq/ml) Br (620 mg/l)	143 (9.5) 147 (9.8)	286 (19.1) 282 (18.8)	7.9 58	8.2 59
KTT-6	Determine whether a high concentration of bentonite colloids could enhance Sr transport: bentonite colloids (3164 mg/l)	190	⁸⁵ Sr (Co = 5294 Bq/ml) bentonite colloids (3164 mg/l)	469 (31.3) 270 (18.0)	898 (59.9) 539 (35.9)	7.2 1.6	10.4 1.6
KTT-1-2	Repeat KTT-1	239	⁸⁵ Sr (Co = 5123 Bq/ml) Br (481 mg/l)	184 (12.2) 151 (10.1)	979 (65.3) 212 (14.1)	22.5 86.5	33 91

^aError on arrival times is 21 ml or 1.4 h.

^bExtrapolated to 2000 ml.

COLFRAC への応用可能性：

Am への分配係数は、パラメータ設定の際の参考になると考えられる。また、実験結果は、昨年度の COLFRAC による検討と傾向がよく一致しており、計算の妥当性を裏付けるものである。

参考文献番号：11

著者および文献名：

Y. Wang and H. W. Papenguth: "Kinetic modeling of microbially-driven redox chemistry of radionuclides in subsurface environments: coupling transport, microbial metabolism and geochemistry", Journal of Contaminant Hydrology, 47, 297(2001).

目的：

地下環境における微生物代謝、酸化還元化学及び放射性核種の移行を扱う一般的な反応－移行モデル化を実施した。

微生物の種類：

研究内容：

モデルで扱った事象は次の通りである。

- ・ バイオマスの蓄積
- ・ 主要な生物学的プロセスとしての放射性核種の酸化還元反応

バイオマスの蓄積は擬似的な定常状態に達していると考え、従来の微生物増殖に関する速度論式を修正して定常状態で扱った。その上で、このモデルを炭酸鉱物の地層中の酸化性帯水層へのウランの放出について適用した。モデルシミュレーションは、微生物の分解により無酸素のゾーンが形成され、そこではウランは還元されて固定化されることを示した。

モデル中のバイオマスの蓄積速度に関する基本的な式は次の通りである。

$$R_j^{syn} = \sum_i \phi Y_{ij}^{DOC} R_{ij}^{DOC} + \sum_i \phi Y_{ij}^{SOC} R_{ij}^{SOC} - b_j P_j^n$$

R_j^{syn} : j番目の群の微生物のバイオマスの蓄積速度

R_{ij}^{DOC} : j番目の反応に寄与する溶存有機物の分解速度

R_{ij}^{SOC} : j番目の反応に寄与する固体状有機物の分解速度

Y_{ij}^{DOC} 、 Y_{ij}^{SOC} : 細胞の収束係数

b_j : 個々の死亡速度

ϕ : 空隙率

P_j^n : j番目の微生物の群の活動中のバイオマス濃度

上式において、擬似的定常状態では次式を考慮して解く。

$$\frac{P_j}{dt} = R_j^{syn} = Y_j^{DOC} R_j^{DOC} - b_j P_j^n = 0$$

またこれらの微生物挙動と合わせて二次的に生成する酸化還元反応と鉱物の溶解／沈殿反応を考慮している。

結果と考察：

これらを考慮した計算コード BIORXNTRN version2.0 (Hunter et al.) を用いて、仮想的条件でUの移行をシミュレーションしている。前提としたシナリオでは、ウラン及び錯形成し得

る有機配位子を含む酸化性の水が炭酸塩地層中の酸化性帯水層に放出することを想定した。計算に係わる初期条件や境界条件を Table3 に、計算結果の例を Figure 2 に示す。ウランは微生物及び Fe^{2+} などにより還元され、 UO_2 系の鉱物を形成する。

Table 3
Model input parameters used in the simulation

Rate constant for biodegradation reaction (year^{-1})	0.1
Dissociation constant for Reaction (39) in Table 2	0.001
η in Eq. (10)	5000
Rate constants for secondary U redox reactions (M year^{-1})	1000
Rate constants for non-redox U mineral precipitation ($\text{mol dm}^{-3} \text{ year}^{-1}$)	5×10^{-4}
Rate constants for non-redox U mineral dissolution (year^{-1})	10^{-4}
Number of sorption sites on background minerals (mol/dm^3 bulk sediment)	0.01
Equilibrium constant for U adsorption on background minerals	10
Sorption site density of Mn and Fe oxyhydroxides (mol/mole oxides)	0.5
Equilibrium constant for U adsorption on Mn and Fe oxyhydroxides	100
Porosity	0.4
Flow velocity (m/year)	15
Dispersion (m^2/year)	3

	Boundary condition	Initial condition
DOC (mM)	1	0
ΣUXVI (μM)	50	0
O_2 (μM)	200	200
NO_3^- (μM)	10	10
Mn^{2+} (μM)	0	0
Fe^{2+} (μM)	0	0
SO_4^{2-} (μM)	20	20
CH_4 (μM)	0	0
Ca^{2+} (μM)	0	0
TS (sulfide) (μM)	0	0
TIC (mM)	1	1
pH	6	7.5

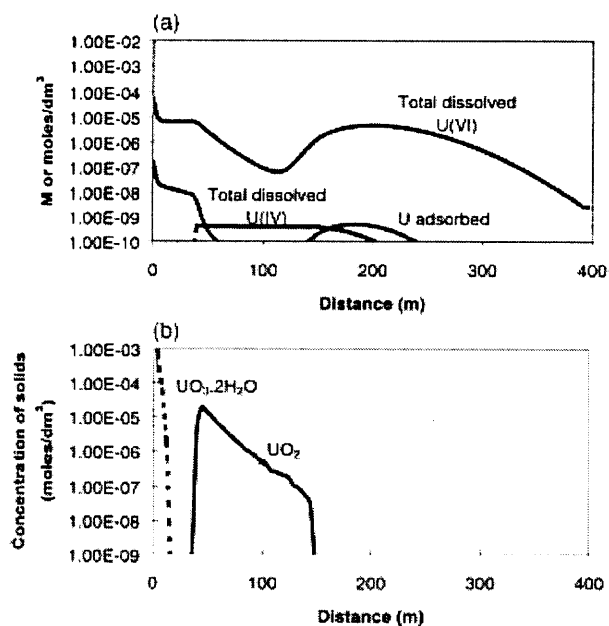


Fig. 2. Concentration profiles of uranium species along the flow path after 15 years. U(VI) is immobilized within the anoxic zone induced by microbial reactions.

COLFRAC への応用可能性：

特になし

参考文献番号：12

著者および文献名： M. H. Schroth, J. Kleikemper, C. Bolliger, S. M. Bernasconi and J. Zeyer: "In situ assessment of microbial sulfate reduction in a petroleum-contaminated aquifer using push-pull tests and stable sulfur isotope analyses", Journal of Contaminant Hydrology, 51, 179(2001).
目的： 嫌気性硫酸還元菌といった嫌気性微生物活動は、石油炭化水素(PHC)で汚染された帯水層の分解に重要である。ここでは、微生物による硫化物の還元を定量的に評価するために安定同位体分析を組み合わせた井戸の push-pull 試験のフィージビリティを評価することを目的とする。
微生物の種類： 還元能力を評価したものであり、微生物の種類に関する記述はなし
研究内容： PHC で汚染されたスイスの Studen の井戸において、まず硫化物の挙動を把握した上で、0.5mM の Br⁻と 1mM の硫酸イオン SO₄²⁻を添加した溶液 1000l を注入した。その後、溶液を回収し、Br⁻, SO₄²⁻及び S₂-濃度及び安定同位体元素 ³⁴S 濃度を測定した。
結果と考察： 試験から、井戸周辺の硫化物還元能力が明らかとなった。計算によると、硫化物還元率は、0.043±0.013～0.13±0.015 であった。PHC で汚染された帯水層における微生物による硫化物の還元能力を in-situ で評価するために、安定 S 同位体測定と組み合わせた push-pull 試験が有効であることを示した。
COLFRAC への応用可能性： 帯水層における硫酸還元能力の測定方法に関する研究であり、応用すべき項目はない。

参考文献番号：13

著者および文献名： R. W. Pickup, G. Rhodes, M. L. Alamillo, H. E. H. Mallinson, S. F. Thornton and D. N. Lerner: "Microbiological analysis of multi-level borehole samples from a contaminated groundwater system", Journal of Contaminant Hydrology, 53, 269(2001).
目的： フェノールやその他のタール酸で汚染された地下水中の微生物分解の可能性を評価するために、様々な細菌学的、地質化学的なプロセスに関連した技術、分子化学的技術が使用された。
微生物の種類： 培養と DNA 分析により評価した。
研究内容： 汚染プルームを垂直に横切る 2 本のボーリング孔から、multi-level sampler (MLS) でサンプルを採取し、微生物集団の活動の度合いを調べた。
結果と考察： 微生物の活動は、プルームの影響を受けており、フェノールの微生物分解能は、微生物のセル数よりも汚染物質濃度に影響されていた。ただし、汚染物質濃度が最も高い領域では、セル濃度が明らかに影響していた。ボーリング孔の様々な深度において、微生物の集団やメタン生成、硫酸還元、脱窒素といった主要な地質化学的作用が観測された。微生物の集団は、多様であり、MLS によってプルームの拡がり天然の作用を把握することができた。
COLFRAC への応用可能性： 比較的浅い深度の調査結果であり、直接応用する知見ではない。

参考文献番号：14

著者および文献名： Barbara A. Bekins, Isabelle M. Cozzarelli, E. Michael Godsy, Ean Warren, Hedef I. Essaid and Mary Ellen Tuccillo: "Progression of natural attenuation processes at a crude oil spill site: II. Controls on spatial distribution of microbial populations", Journal of Contaminant Hydrology, 53, 387(2001).
目的： 原油で汚染された帯水層に関する研究結果から、微生物種の生理学的分類の分布は、帯水層の特性と、原油の位置に大きく依存することが明らかとなっている。 ここでは、4つの生理学的分類について、透水性、間隙水化学、非水相油含有量、可溶性の堆積物中 Fe を分析した。
微生物の種類： 4つの生理学的分類
研究内容： 汚染された帯水層の還元性の部分に対する3つの垂直方向分布は、鉄還元からメタン生成まで進行がみられた。この領域では、鉄還元菌の数は減少し、メタン生成を伴う酵母の数が増加していた。メタン生成状態は、非水相油で汚染された部分とともに、その下部の部分的に透水性が高く、炭化水素濃度が高い部分の両方でみられた。
結果と考察： メタン生成状態になるのは、高濃度の汚染物質が、移流あるいは拡散で移動することが重要な役割を担っていることがわかった。もう一つの要因は、帯水層の近くに鉄(□)を含む堆積物が存在することである。
COLFRAC への応用可能性： 特になし

参考文献番号：15

著者および文献名： S. A. Haveman and K. Pedersen: "Microbially mediated redox processes in natural analogues for radioactive waste", Journal of Contaminant Hydrology, 55, 161(2001).
目的： ナチュラルアナログは、実験室での時間が限られた実験で行えないような長期間経過後に処分場で起こりうる微生物化学的なプロセスを検討することを可能にする。 フィンランドの Palmottu U-Th 堆積層と、ガボンの Bangombe 天然原子炉は、地下放射性廃棄物処分場のナチュラルアナログと考えることができるため、微生物に関する検討を行う。
微生物の種類： 鉄還元細菌、硫酸還元細菌
研究内容： 微生物群は、地下水中で酸化還元状態に対して、即ち核種の溶解度や移行に影響を及ぼす。ここでは、上記の 2 サイトの地下水のサンプル中の微生物群について調査した。
結果と考察： 全セル数は、$10^4 \sim 10^6$ セル/ml の範囲であった。Palmottu の地下水では、鉄還元菌が、最も存在する微生物群であり、1.3×10^5 セル/ml であり、硫酸還元菌、酢酸菌もみられた。Fig.3 にウランの濃度と鉄還元バクテリア (IRB) 及び硫酸還元バクテリア (SRB) の相関を示す。鉄還元菌、硫酸還元菌ともに、地下水中ウラン濃度の最も低いところに多く存在していた。溶存 U(VI) の除去は、鉄還元菌の豊富な存在と鉄の還元に伴って起こっていた。Palmottu の酸化還元フロントは、鉄とウラン種によって生じており、どちらにも鉄還元菌が作用していた。 Bangombe では、鉄還元細菌と従属栄養生物が培養で得られ、ここでは鉄と有機 C により酸化還元電位が緩衝されていた。 以上のように、微生物活動によって酸化還元電位が低くなり核種が動きにくくなることにより、廃棄された放射性核種が安定化される可能性があることがわかった。

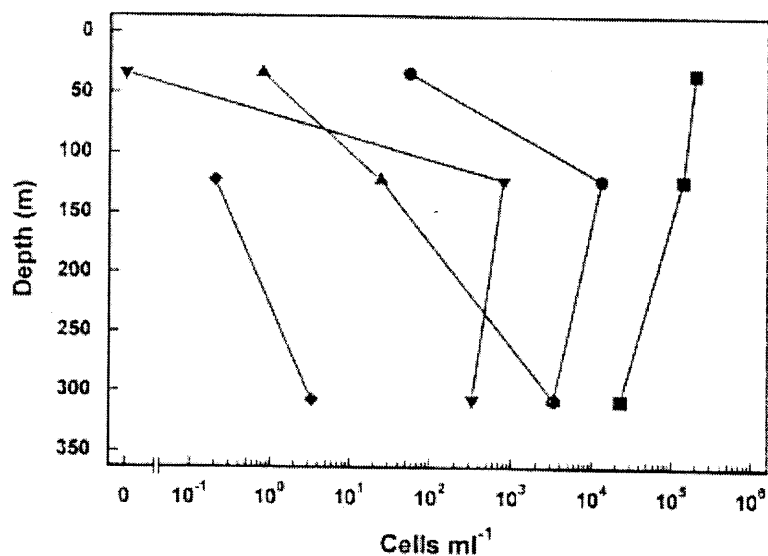


Fig. 2. Total cell numbers (■) and most probable number of IRB (●), SRB (▲), heterotrophic acetogens (▼), and autotrophic acetogens (◆) in groundwater samples from Palmetto borehole R387.

COLFRAC への応用可能性：

還元環境下における微生物濃度の一例。

参考文献番号：16

著者および文献名名： D. D. Hill and B. E. Sleep: "Effects of biofilm growth on flow and transport through a glass parallel plate fracture", Journal of Contaminant Hydrology, 56, 227(2002).
目的： サンドブラストしたガラス平行平板において、バイオフィルムの生長による流れと物質移行への影響を検討した。
微生物の種類： 土壌の微生物
研究内容： 亀裂には、予め土壌の微生物を塗布しておき、グルコース、酸素及び他の栄養物質を供給した。
結果と考察： 微生物は、最初、ガラス表面に不連続なクラスタを形成し、やがて連続なバイオフィルムとなった。亀裂の透水係数は S 字カーブ状に減少し、透水係数が 0.033 倍(18→0.6cm/s)、透水性亀裂開口幅に換算すると 72%減少(500→140μm)となった。一方、マスバランスとしての開口幅はほとんど変化しておらず、実効間隙率に対する影響は、透水係数に対する影響よりも小さいことがわかった。透水係数の減少とともに、マクロ分散は対数的に大きくなっていった。
COLFRAC への応用可能性： 酸化性雰囲気での実験であるため、現段階で評価に反映する程の知見ではないと考えるが、透水係数、亀裂開口幅への影響があり得る点に留意することが重要である。

参考文献番号：17

著者および文献名名：
S. Bhattacharjee, J. N. Ryan and M. Elimelech: "Virus transport in physically and geochemically heterogeneous subsurface porous media", Journal of Contaminant Hydrology, 57, 161(2002).
目的：
不均質な多孔質媒体中における微生物の移行に対する2次元モデルを示す。
微生物の種類：
モデルによる試計算
研究内容：
溶液中での微生物の不活性化、亀裂表面への収着による除去、放出、不活性化を考慮した移流-分散方程式の解を有しているモデルである。不均質性としては、地質化学的な層状の不均質性と、物理的なランダムな不均質性を両方考慮可能である。
結果と考察：
計算の結果、不均質性の導入により、卓越した流路が形成され、明らかに微生物の移行が影響を受けていた。溶液中の微生物の不活性化は、移行に顕著な影響を与える一方で、現実のフィールドの条件における固相表面での不活性化は無視できる程の影響であった。大きな放出率で微生物が供給された場合には、下流側の広い範囲に微生物が広がりうることが示された。これは、単純な収着・脱着モデルでは、水理地質学的に“感度が高い”地下環境での微生物の移行に対して誤った認識を与える可能性がある。
COLFRAC への応用可能性：
微生物の不活性化は、現バージョンの COLFRAC では取り扱えない現象である。具体的なパラメータがそろう場合には、コロイドの分配係数やその時間変化を組み込むことにより、同様の評価を実施することが可能となると考えられる。

参考文献番号：18

著者および文献名： J. F. Schijven, S. M. Hassanizadeh and R. H. A. M. de Bruin: “Two-site kinetic modeling of bacteriophages transport through columns of saturated dune sand”, Journal of Contaminant Hydrology, 57, 259(2002).
目的： ウイルス、微生物、原生動物やコロイド粒子を注入した多孔質媒体中の移行に係る破か曲線は、しばしば大きくゆがんでおり、ゆっくり上昇したあと、長いテーリングを呈する。1 サイト速度論モデルでは、破か曲線の上昇とテーリングを十分にフィッティングすることができない。平衡論的な収着の導入ではシミュレーション結果を証明することはできない。これは、フィールドスタディにおけるバクテリオファージ MS2 と PRD1 の丘砂中の除去の例で遭遇した問題である。本研究では、この問題に対する実験室規模での試験結果について報告する。
微生物の種類： MS2, PRD1, X174
研究内容： 上記の3つのバクテリオファージを用いて、1D カラムでの試験を行った。これに対して、1 サイト及び2 サイトの速度論的モデルが、破か曲線のフィッティングに用いられた。
結果と考察： 1 サイトモデルではよく近似することができず、不活性化係数を大きく見積もる結果となった。これに対して、2 サイトモデルによって、破か曲線をよく近似することが可能であった。1 つ目のサイトでは、速い吸着とゆっくりとした脱着、2 つ目では、両方とも速く起こるものとして特徴づけられた。不活性化と2 つ目のサイトは除去にあまり寄与していなかった。X174 は、他の2 種よりもよく吸着しており、これは負の帯電が小さいためと考えられる。
COLFRAC への応用可能性： 現バージョンで評価する場合には、1 つ目のサイトに相当する現象に着目した評価を行うことにより、妥当な結果が得られると考えられる。

参考文献番号：19

著者および文献名： M. Thullner, L. Mauclaire, M. H. Schroth, W. Kinzelbach and J. Zeyer: "Interaction between water flow and spatial distribution of microbial growth in a two-dimensional flow field in saturated porous media", Journal of Contaminant Hydrology, 58, 169(2002).
目的： 飽和多孔質 2 次元媒体における微生物の成長と水との反応が検討された。
微生物の種類：
研究内容： セル(56×44×1cm)にガラスビーズを満たし、電子受容体として硝酸を流した。インジェクションポートからグルコースを流し、点ソースの汚染源を模擬した。31 日経過後、分解して回収し、バクテリアの全セル及びアクティブセル数を分析した。
結果と考察： バクテリアの生長は、セルの長さ方向に沿って 2 つの帯状を呈した。出発点はインジェクションポートであり、ここで最も高いバイオマスが生じていた。微生物の活動は硝酸とグルコースの横断的な混合で規定されており、両者が混合した場所で最も高い活動がみられた。バイオマスの活動により、水の流路が影響を受けており、バイオマスが局所的に透水係数を減少させることが示された。局所的に透水係数が減少しても、水はそこを迂回して流れることができるため、平均の透水係数はバイオマスの影響を受けていなかった。インジェクションの周りであっても、バイオマス自体が占める間隙に対する堆積割合は 0.01%以下であり、微生物による閉塞に寄与しているとは考えにくかった。しかし、微生物によって大量の細胞外液重合物質(EPS)が形成されており、これが寄与していると考えられる。
COLFRAC への応用可能性： 多孔質媒体中の移行においては、微生物による透水性の低下は局所的なものにとどまる可能性が示されている。この点を考慮したパラメータ設定を行う。

参考文献番号：20

著者および文献名： S. B. Kim and M. Y. Corapcioglu: “Contaminant transport in dual-porosity media with dissolved organic matter and bacteria present as mobile colloids”, Journal of Contaminant Hydrology, 59, 267(2002).
目的： 移動性のコロイドとして溶存有機物(DOM)と微生物を考慮した二重間隙媒体中の汚染物質移行を評価するための数学的モデルを開発した。
微生物の種類： コロイドと見なし、移行に係るパラメータを設定
研究内容： 多孔質媒体部は、移動性と非移動性の 2 つの領域に分け、移動性領域での物質移行は移流・分散で、非移動性領域では拡散で起こることを仮定した。移動性と非移動性領域間の物質移行は拡散で起こる。移動性領域では、2 種類のコロイド、水相及び固相マトリクスの 4 相系を考えている。モデルでは、この支配方程式を陰解法の有限差分法で解いている。
結果と考察： モデルによる評価結果から、DOM 及びバクテリアの存在により、汚染物質の移行が促進されることが示された。感度解析の結果からは、二重空隙媒体において移動性領域の割合が小さくなると、汚染物質の破かが早くなった。移動性-非移動性領域間の物質移行率は、主として破か曲線のテーリングに寄与していた。また、破か曲線は DOM 及び微生物への吸着係数及び脱着係数に対して高い感度を示した。 このように、DOM やバクテリアが存在する二重空隙媒体の系に汚染物質が放出された場合には、コロイド及び非移動性領域の存在による移行の促進に伴う早い破かとテーリングがみられる。
COLFRAC への応用可能性： パラメータ設定一覧が載っているが、COLFRAC への応用が可能なものではない。

参考文献番号：21

著者および文献名：

D. M. Jolley, T. F. Ehrhorn and J. Horn: "Microbial Impacts to the Near-Field Environment Geochemistry: a model for estimating microbial communities in repository drifts at Yucca Mountain", Journal of Contaminant Hydrology, .62/63, 553 (2003).

目的：

ユッカマウンテンにおいて、微生物の生息数及び地質化学に及ぼす影響の程度を評価するために、地質化学的及び微生物学的モデル化を行った。

微生物の種類：

研究内容：

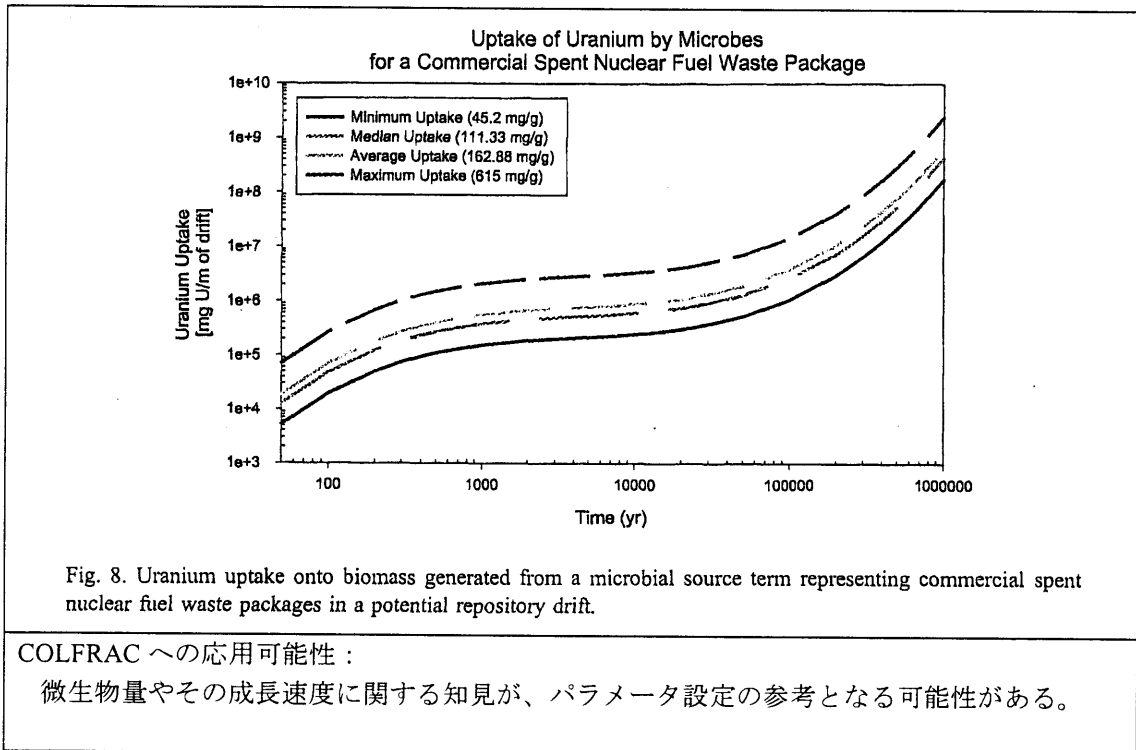
地下深部の不飽和な岩の中で、水、地中の栄養物質及び廃棄物容器材料の導入によって微生物の成長が引き起こされる。100 万年間を見通したシミュレーションが、新しく開発した計算コード (MING) によって実施された。このコードは、温度 120℃以下、坑道中の相対湿度 90%以上の条件における微生物成長の評価に用いる。

この条件に達すると、MING はマスバランスと熱力学的アプローチを拡張し、2 つの独立したマスバランス計算を時間の関数として計算するために、設定された材料からの成分の供給率、鉱物中への岩の成分の溶出分を含む成分のフラックスを得るために速度論用いた手法を行う。まず第 1(栄養分制限)に、利用可能な栄養分(C,N,P,S)を評価し、微生物の生成可能量を計算する。第 2 に(エネルギー制限)、その時間での温度、pH に対する酸化還元対から利用可能なエネルギーを計算する。得られたエネルギーを 6 4 MJ ごとに 1kg のバイオマスとして換算していく。この 2 つの計算結果のうち、値の小さい方が、対象とする時間に生成可能な微生物量である。

結果と考察：

MING は、飽和-不飽和環境や実験室規模における微生物成長限界を検討することに応用できる。また、天然の減衰の観測やや光学的微生物分解が行われている汚染地域の調査といった目的にも使用できる。

処分坑道中の使用済み燃料パッケージに存在しうる微生物量を MING で計算し、別途試験によって得られた微生物への U 吸着量のデータ(平均 162.88±133.05mg/g、45.2～615mg/g)を用いて、微生物が収着できる U 量を計算した。これは、微生物吸着の影響や、コロイド移行のモデル化に利用可能である。計算からは、処分場近傍の pH が酸性あるいはほぼ中性である限り、人工バリア中に生成した微生物は、1m の坑道あたり 178-2423kg のウランが吸着できる程の量が生成することが示されている。ただし、これによって生じたコロイドが、地下水移行という観点からどういう影響を持つのかは、さらなる研究が必要である。



参考文献番号：22

著者および文献名：

S. Wang, P. R. Jaffé, G. Li, S. W. Wang and H. A. Rabitz: "Simulating bioremediation of uranium-contaminated aquifers; uncertainty assessment of model parameter", Journal of Contaminant Hydrology, 64, 283(2003).

目的：

遷移金属および放射性核種による地下水汚染の微生物環境修復では、炭素源の供給による酸化還元条件の操作が必要になるかもしれない。例えば、硝酸が還元された後、可溶性の U(VI)は他の電子受容体(Fe(III)、硫酸)と同時に U(IV)に還元され、uraninite として沈殿する可能性がある。

ここでは、遷移金属に汚染された帯水層の微生物環境修復プロセスを模擬するため、時間依存の1次元-反応-移行モデルを開発した。このモデルは、マスバランス方程式、移流、分散、有機物や電子受容体、対応して還元される化学種及び関心のある遷移金属に影響する微生物学的あるいは化学的な変化に対する速度論反応式を一式考慮する。これらを有限差分法で解き、酸化還元電位は支配的な電子受容体と還元された化学種濃度に基づいて pe を推定して決定する。これを MINTEQA2 コードに入力して speciation/sorption, 沈殿/溶解を平衡状態で解く。

微生物の種類：

微生物を直接扱った研究ではない。

研究内容：

上記コードを用いて、RS-HDMR というツールにより網羅的な不確実性解析を実施し、様々な結果に対してどの入力がどのような影響を与えるのか、最大の影響を与えるのはどの入力かを特定した。

結果と考察：

飽和帯水層において U の受けうる影響、U の微生物環境修復を計画する際に、最も優先的に高い精度で特定すべき過程を明らかにするための計算を実施した。

COLFRAC への応用可能性：

水化学に重点を置いた検討であり、本検討で注目している、微生物-核種に関連する物質移行パラメータに結びつく知見は特になし。

参考文献番号：23

著者および文献名： M. Chu, P. K. Kitanidis and P. L. McCarty: "Effects of biomass accumulation on microbially enhanced dissolution of a PCE pool: a numerical simulation", Journal of Contaminant Hydrology, 65, 79(2003).
目的： 最近の研究により、脱塩素細菌がテトラクロロエテン(PCE)を含む重量非水相液体(DNAPL)の溶解を促進することが明らかになってきた。 我々は、PCE を張ったプールの表面を流れる地下水に関する 2 次元の移流-分散-反応モデルを示した。
微生物の種類：
研究内容： 本検討では、既報にあるバイオフィルムの成長とプラグ様の成長に関して、バイオマス濃度と透水係数に相関があることを適用している。PCE が高効率で微生物変化を起こすと、溶解が促進されつつ、水-DNAPL 界面における PCE 濃度勾配が大きくなる。電子受容体の濃度が大きくなると、溶解はさらに促進されていた。電子受容体に制限がないときの最大比速度の値に基づく、微生物が水-DNAPL 境界面付近に堆積し、微生物反応はプールの溶解を顕著に増加させた。定常状態における溶解率は、1/2 乗則で近似できた。しかしながら、微生物による目詰まりのために、水-DNAPL 界面付近の透水係数が局所的に減少したため、溶解率を減少させる要因となっていた。 一方、電子受容体の供給律則の場合には、微生物は界面から離れた場所に堆積した。これにより、活動的な微生物と界面との間に不透水領域が形成され、結果として電子受容体の供給が妨げられることにより濃度勾配と界面付近の洗浄が減少していた。
結果と考察： このような微生物による目詰まりを考慮していないモデルによる溶解予測と比較すると、目詰まりの影響により大きく溶解率が減少することになる。
COLFRAC への応用可能性： 特になし

参考文献番号：24

著者および文献名： W. Songkasiri, D. T. Reed and B. E. Rittmann: "Bio-sorption of neptunium(V) by <i>Pseudomonas fluorescens</i> ", <i>Radiochimica Acta</i>, 90, 785(2002).
目的： <i>Pseudomonas fluorescens</i> による NpO_2^+ の微生物吸着について検討した。本検討は、ネプツニウムと土壌の微生物間の重要な反応を特定し、地下と関連のある条件下におけるこれらの効果をモデル化することを目的とする。
微生物の種類： <i>Pseudomonas fluorescens</i>
研究内容： ネプツニル(NpO_2^+)は、一般に非吸着性と考えられているが、本研究の全ての試験条件において、よく吸着していた。初期濃度 $4.75\mu\text{M}$、$\text{pH}=7$ において、85%までの Np が大気雰囲気下において収着していた。速度論的な検討からは、最初の 15 分において速やかに収着することが確認された。また、収着量は、pH の増加とともに大きくなっていた。収着した Np は、Xanes によって、4 価に還元されておらず、ネプツニル(NpO_2^+)であることを確認した。これらの収着データを用いて、Langmuir 型及び Freundlich 型でのモデル化を試みた。
結果と考察： モデル化の結果は、freundlich 型のモデルが、明らかに良い一致を示した。この結果から、微生物吸着は、Np のスペシエーションや地下表層の移動性全体に大きな役割を担っていることがわかった。
COLFRAC への応用可能性： 特になし

参考文献番号：25

著者および文献名：
A. Abdelouas, M. Fattahi, B. Grambow, L. Vichot and E. Gautier: "Precipitation of technetium by subsurface sulfate-reducing bacteria", Radiochimica Acta, 90, 773(2002).
目的：
Tc と地下のバクテリアの反応について研究するため、土壌と地下水あるいは殺菌、脱イオン水を用いてバッチ試験を行った。
微生物の種類：
脱硝酸菌、硫酸還元菌
研究内容：
土壌と水の中に、栄養分としてラクテートとフォスフェートを添加し、硝酸塩及び硫酸塩を添加した。
結果と考察：
脱硝酸が起こっている間は、Tc 濃度は変化しなかった。硫酸還元菌が存在する場合には、Tc(VII)の還元と TcO_2 and/or TcS_2 の沈殿が生じる反応が起こる水中で反応し、Tc 濃度が減少した。生成した鉄硫化物は Tc の除去に寄与していると考えられた。U と Tc を用いた試験では、硫酸還元菌により還元されることが模擬的に示された。 本試験から、1) 脱硝酸菌は、U の場合と異なり、Tc を除去する効果がない、2) 硫酸還元菌は、Tc を還元し、水溶液中から除去する。そのため、このようなバクテリアを用いて地下水及び土壌を微生物で浄化することが可能である。
COLFRAC への応用可能性：
特になし

参考文献番号：26

著者および文献名： P. J. Panak, R. Knopp, C. H. Booth and H. Nitsche: "Spectroscopic studies on the interaction of U(VI) with <i>Bacillus sphaericus</i>", <i>Radiochimica Acta</i>, 90, 779(2002).
目的： U(VI)と <i>Bacillus sphaericus</i> の栄養細胞、熱処理細胞、孢子細胞及び分解した細胞との反応について研究を行った。生成した錯体の同定は、TRLFS(time-resolved laser fluorescence spectroscopy)と EXAFS(extended X-ray absorption fine structure spectroscopy)で行った。
微生物の種類： <i>Bacillus sphaericus</i> の栄養細胞、熱処理細胞、孢子細胞及び分解した細胞
研究内容： 大気雰囲気中、22℃で成長させた細菌を用いて、pH4.5の0.9%NaCl溶液中で、24時間 U(VI)と反応させた。添加する微生物量は複数条件を設定している。その結果、pH4.5におけるバイオマス量に対するUの収着量のグラフを得た。
結果と考察： 栄養細胞、熱処理細胞への収着については、明確な違いはみられなかったが、孢子細胞については乾燥重量あたりのU(VI)の収着量が大きかった。表面錯体の形成は、代謝活性によらず起こっていることが確認できた。<i>sphaericus</i> 自体は、栄養細胞や熱処理細胞に対して、相対的に高い収着量を示したが、ウラニル錯体に関する EXAFS 像は、ほとんど同一であった。8週間後には、<i>sphaericus</i> は完全に分解されており、細胞壁の溶解と酵素の活動によって、様々な分解生成物が放出されていた。大量の H_2PO_4 が生成しており、$\text{UO}_2(\text{H}_2\text{PO}_4)_2$ としてバクテリアーU(VI)が多量に沈殿していた。このラマン分光結果は、バクテリア表面のU(VI)生成物表面のものとは全く異なっていた。
COLFRAC への応用可能性： 特になし

参考文献番号：27

著者および文献名： P. J. Panak, C. H. Booth, D. L. Caulder, J. J. Bucher, D. K. Shuh and H. Nitsche: "X-ray absorption fine structure spectroscopy of plutonium complexes with bacillus sphaericus", Radiochimica Acta, 90, 315(2002).
目的： バクテリアの細胞とプルトニウムが生成する錯体に関する知見は、環境中のアクチニドの移行挙動における微生物反応の影響を予測するために必要である。この研究では、Pu(VI)と土壌中の好気性細菌 <i>bacillus sphaericus</i> との反応について述べる。
微生物の種類： <i>bacillus sphaericus</i>
研究内容： 大気雰囲気中、22℃で成長させた細菌を用いて、0.01M の NaOH による電位差滴定により細胞壁表面のリン酸及びカルボキシル基の量を定量した。また、XAFS, EXAFS により、バクテリアと Pu(VI)の界面における錯体を同定した。
結果と考察： Pu(VI)は細胞表面のリン酸塩と結合しており、カルボキシル基との錯体は検出されなかった。これは、U(VI)での試験と同様の結果であった。実際の環境中では、代謝活性を有するバクテリアだけでなく、死んだものや分解生成物が存在しており、これらとの反応が重要になってくる。
COLFRAC への応用可能性： 特になし

参考文献番号：28

著者および文献名：

J. B. Gillow, M. Dunn, A. J. Francis, D. A. Lucero and H. W. Papenguth: "The potential of subterranean microbes in facilitating actinide migration at the Grimsel Test Site and Waste Isolation Pilot Plant", *Radiochimica Acta*, 88, 769(2000).

目的：

微生物は、地下深くに埋設された放射性核種の長期間の安定性及び移動性に影響すると考えられている。特に、地下の微生物細胞と放射性核種の結合及びこれに引き続いて起こるバイオコロイドとしての移行が重要と考えられている。

処分場の環境においても、スイスのグリムゼル、スウェーデンのストリバ鉱山、アメリカの WIPP 及びユッカマウンテンにおいて、微生物が存在している。微生物が、放射性核種のニアフィールドあるいはファーフIELD環境において、放射性核種の移動化や非移動化にどう影響するかについては、限られた情報しかない。微生物は、直接的あるいは間接的に、地下水に溶解しているアクチニドの移行と遅延に影響を及ぼす。

コロイドによる核種の移行は、核種移行を促進する現象として知られており、鉱物のかけら、腐植物質、真性コロイド及び微生物が含まれている。微生物は、このうちコロイド径が $1\text{nm} \sim 1\mu\text{m}$ のものに相当し、地下水の流れによって移行しうるものである。

これに加えて、地下の表面に微生物がバイオフィルムとして蓄積し、これが脱着することにより、バイオフィルムとなりうる。微生物表面は、リン酸基、カルボキシル基、水酸基といった親水性の負の官能基によって、負に帯電したペプチドグリカン/techoic 酸の層から成っており、これが、微生物にアクチニドを捕獲する能力を与えている。活性のフリーな微生物は、周りの鉱物よりも高い放射性核種吸着能力を有する移動性粒子である。

本研究では、WIPP サイトとグリムゼルサイトの 2 カ所において、地下水中の微生物濃度を測定し、これらの地下水を用いた U の微生物吸着挙動を評価するとともに、グリムゼルサイトにおける微生物による Pu の取り込みに関する評価を実施する。

微生物の種類：

WIPP の Culebra 層、グリムゼルサイトの花崗岩層に存在する微生物を 3 種類の培地で培養したもの

研究内容：

WIPP は、アメリカ NM の Carlsbad の北東 23km に位置しており、岩塩層の地下 658m に建設されている。アクチニドの主要な移行経路として考えられるのは、Rustler 層の Culebra ドロマイトである。Culebra は、地下 200m に 14m の厚みで広がっている。グリムゼル試験サイト(GTS)は、NAGRA によって運営されている施設であり、スイスアルプスの花崗岩層中の地下 450m にある。

Culebra H19B 孔から、澄んだ地下水を、予め殺菌消毒した 160ml 容器(ホルマリン処理用)及び 1 l 容器に採取している。GTS では、BOMI86.004 孔から、 $\sim 300\text{ml/min}$ の流れがあるサンプルポートから地下水が採取された。処理済み及び処理なしの地下水は氷とともに封入し、BNL に夜を徹して輸送され、 $4\pm 1^\circ\text{C}$ で貯蔵された。

ホルマリン処理試料は、室温に持ち込んで、部分試料を染色した。微生物は計数し、50 セルは、1250-2000 倍に拡大して計測、画像解析を行った。

WIPP 及び GTS の試料について微生物の成長性を検討するため、未処理試料に、i) 従属栄

養菌、ii) 発酵性、iii) 脱窒素性 での成長を模擬して異なる種類の栄養素を添加した。pH は7に保ち、全ての操作は窒素雰囲気中で行った。温度は $30 \pm 2^\circ\text{C}$ に保ち、1～12 日間計数を行った。さらに、GTS の試料については、DNA 分析を実施している。

ウランの微生物吸着

ウランの微生物吸着は、WIPP の iii) のコハク酸と硝酸塩で培養された菌株、GTS の地下水から分離された *Acetobacterium* sp(硫酸還元培地のもの) で実施された。比較のために、好塩菌と非好塩菌でも試験を行った。菌株は $30 \pm 2^\circ\text{C}$ で培養した後遠心分離で回収し、pH5 の NaCl 電解質で2回洗浄した。セルは、pH5 の電解質中で、600nm の光学濃度 (OD) で 0.4～1.4 に再撹拌し、窒素を封入した。これに、濃度が 0.2MU(50 $\mu\text{g/ml}$) となるように、硝酸ウラニル(8mMUO₂ (NO₃) $\cdot$ 6H₂O)、pH5.0 を加えた。セルとウラニル溶液は、室温で 90 分間窒素雰囲気下に保持されたのち、0.45 μm のシュリンジフィルタで濾過され、0.1ml の濃塩酸を加えた。ウラニルは ICP-AES で分析した。その後、10ml の溶液は、10%ホルマリンで処理し、細菌数を計数した。セルの乾燥重量は、 $90 \pm 2\%$ で一晩乾燥した後に決定した。菌を添加しない参照試料も同様に操作を行い、添加したウラニル全量が回収されたことを確認した。

プルトニウムの微生物吸着

²⁴¹Pu の標準試料を $1.8 \times 10^{-8}\text{M}$ (0.4 $\mu\text{Ci/ml}$) となるように希釈した。²⁴¹Pu は、液体シンチレーションカウンタ(LSC)で、精度良く (10^{-10}M) 測定できるために採用された。Pu の酸化状態は同定していないが、このような希薄溶液中、中性付近の pH かつ α 崩壊核種がない状態では 5 価で存在していると考えられる。Pu の吸収実験は、*Acetobacterium* sp(OD0.4)において、濃度 $1 \sim 10 \times 10^{-10}\text{M}$ 、0.1%重量%濃度の NaCl 溶液中で、15-20 分平衡状態を保って行われた。全ての操作は、グローブボックス中で自動滴定機を用いて行われた。平衡時間の後、1ml の溶液を回収し、0.2 μm のシュリンジフィルタで濾過/濾過なしでの試料を LSC で分析した。菌を入れない試料も分析し、化学吸着を評価した。

結果と考察：

Table1 に Culebra と GTS の地下水組成をそれぞれ示す。Culebra の地下水は、イオン強度 2.7M、pH7 であり、GTS は 0.0012M、pH9.95 であった。表 2 には、それぞれのサイトにおける微生物数、微生物の長さ、幅、個々のセルの体積を示す。Culebra の地下水には、 $1.51 \pm 1.08 \times 10^5$ 個/ml が含まれており、大きな無機物の固まり(平均長さ $3.68 \pm 0.25\mu\text{m}$ 、平均幅 $2.22 \pm 0.14\mu\text{m}$)が含まれていた。セルの大きさは、平均長さ $0.75 \pm 0.04\mu\text{m}$ 、平均幅 $0.58 \pm 0.02\mu\text{m}$ であった。GTS の地下水には $3.97 \pm 0.37 \times 10^3$ 個/ml が含まれており、セルの大きさは、平均長さ $1.50 \pm 0.14\mu\text{m}$ 、平均幅 $0.37 \pm 0.01\mu\text{m}$ であった。

Table 1. Chemical composition of Culebra and GTS ground-water [12, 23].

Constituents ^a	Culebra GW (Sample H17)	GTS GW (Sample B)
Na ⁺	2300	0.31
K ⁺	28	0.012
Ca ²⁺	42	0.18
Mg ²⁺	74	< 0.001
Cl ⁻	2500	0.023
HCO ₃ ⁻	1	0.12
SO ₄ ²⁻	77	0.11
Ionic strength (M)	2.8	0.0012 ^b
Total cations (meq l ⁻¹)	2549	0.99
Total anions (meq l ⁻¹)	2675	1.0
Temp. (°C)	n/a	11.4
pH	7	9.95

a: mM except where otherwise noted

b: [29].

n/a = not analyzed

Table 2. Enumeration of the total bacterial population and measurements of individual cell size and volume.

Sample	Total number of cells ml ^{-1a}	Length (μm)	Width (μm)	Volume (μm ³)	Mean cell shape
Culebra	$1.51 \pm 1.08 \times 10^5$	0.75 ± 0.04	0.58 ± 0.02	0.21 ± 0.01	0.77
Grimsel	$3.97 \pm 0.37 \times 10^3$	1.50 ± 0.14	0.37 ± 0.01	0.19 ± 0.03	0.24

a: Mean $\pm$ standard error of the mean of 50 measurements.

b: Cell shape = width/length.

Culebra 地下水における微生物成長について、添加物なしの試料は、好気性、嫌気性ともに菌数は増えなかった。添加したものは、いずれも 2 桁程度菌数が増加していた。

一方、GTS では、 $3.97 \pm 0.32 \times 10^3$ 個/ml が含まれており、ほとんどが細長い形態をしていた。栄養分(グルコース、塩化アンモニウム)を添加して、6 日間培養を行った。嫌気性雰囲気中でグルコースを発酵する能力がある *clostridium* sp 及び HCO₃⁻ と H₂ を成長に利用する能力がある *Acetobacterium* sp がそれぞれ、グルコース、塩化アンモニウム添加あるいはラクトース、硫酸塩添加地下水から分離できた。

表 4 は、Culebra と GTS から分離した菌及び比較のための好塩菌及び非好塩菌に対する U の微生物吸着試験結果のまとめである。pH 5 において、CDn は 32% の U を除去し、*Acetobacterium* sp は 21% を吸着した。他の菌株では、90% の U を吸着したのもあった。一般に、塩水環境においてはより多くの U が微生物により吸着される。微生物あたりの U 除去量に換算し得た 2 ケースでは、それぞれ 180 ± 10 mg-U/g-dry cells (WIPP) 及び 70 ± 2 mg-U/g-dry cells (GTS) であった。

Table 4. Uranium biosorption by groundwater and selected bacterial isolates.

Isolate	Number of cells ml ⁻¹	Uranium added μg ml ⁻¹	Uranium removed from solution by cells ^a μg ml ⁻¹	Uranium association per cell ^b pg cell ⁻¹
WIPP: <i>Culebra</i> denitrifier (CDn) (3% w/v NaCl)	$0.90 \pm 0.02 \times 10^8$	42.9 ± 1.5	13.9 ± 0.5 (32%)	0.15
<i>Halomonas</i> sp. (WIPP-1A) (20% w/v NaCl)	$2.2 \pm 0.3 \times 10^8$	39.4 ± 2.4	24.8 ± 3.2 (79%)	0.11
Grimsel: <i>Acetobacterium</i> sp. (0.1% w/v NaCl)	$3.55 \pm 0.12 \times 10^8$	56.8 ± 0.5	12.0 ± 0.8 (21%)	0.03
<i>Bifidobacterium</i> <i>arabaeus</i> (ATCC 33744) (13% w/v NaCl)	$4.8 \pm 0.2 \times 10^8$	46.4 ± 2.0	33.9 ± 1.5 (73%)	0.07
<i>Halobacterium halobium</i> (ATCC 43214) (25% w/v NaCl)	$0.75 \pm 0.01 \times 10^8$	48.0 ± 2.7	43.2 ± 2.4 (90%)	0.57
<i>Bacillus subtilis</i> (ATCC 27370) (0.6% w/v NaCl)	$8.6 \pm 0.5 \times 10^8$	32.1	28.0 (87%)	0.03
<i>Pseudomonas fluorescens</i> (ATCC 55241) (0.6% w/v NaCl)	$17 \pm 6 \times 10^8$	32.1	27.7 (86%)	0.02

a: Number in parenthesis is percent of uranium biosorbed.

b: Uranium association per cell = uranium removed from solution by cells/number of cells per ml.

c: Concentration of NaCl required for growth and in electrolyte used for biosorption experiments.

Pu の *Acetobacterium* sp による吸収については、元々80%程度の Pu が濾過されたため、疑問が残る結果となった。微生物あたりの Pu 除去量最大値は 145 pg-Pu/mg-dry cells であった。ただし、Pu の吸着量は、添加した量に依存しており、Pu の添加量を増やした場合に吸収量が減っていないため、おそらくより多くの Pu を収着できると考えられる。

両サイトの微生物の大きさは、コロイドの範囲にはいる。0.75mm のケイ砂中に微生物を流し、そのサイズと形状の効果を調べた試験によると、サイズとしては、カラムの入り口付近では 1μm 程度、出口付近では 0.5~0.7μm であり、入り口付近が大きかった。しかしながら、大きさよりもその形状が、最も重要な移行を支配する要因とされている。

本試験では、*Culebra* では球状であり、グリムゼルは細長く、多くは茎状になっており、鉱物表面に存在していたようであった。両サイトとも、貧栄養状態の地下水と考えることが可能であり、セルの大きさは栄養状態を顕著に反映していると考えられる。本試験で得られた試料は、地下水中を流れているフリーのセルであり、この 2 サイトにおける地下水中の菌数を最も良く表していると確信している。

両地下水ともに、栄養分を添加すると、微生物が速やかに増殖した。以前の GTS の評価においては、好気性細菌と脱窒素細菌及び硫酸還元菌を含む嫌気性細菌を含んでいた。GTS における微生物分布と同様な知見はスウェーデンのストリパ鉱山やエスポ HRL でも得られている。H⁺や二酸化炭素を利用する微生物は、450m より深い場所で代謝が活性化するため、有機物 C が減少する深度では重要と考えられている。

U の吸着試験の結果について、それぞれの微生物の U 吸着量が異なっている理由は不明であるが、媒質のイオン強度が全く異なっているため、セル表面の官能基の特性が違っているかもしれない。(pH5 では、セル表面のカルボキシル基が負に帯電していると考えられるため、これがカチオンであるウラニル種の吸着に寄与していると考えられる。より高い pH では、U は有機錯体あるいは無機の炭酸ウラニルとしてアニオンの形態をとるため、微生物吸着が起こら

ない。)

Puについては、希薄 Pu 溶液、pH5 における *Acetobacterium* sp の吸着について報告した。pH6~7 の好塩菌での試験の例では、2.5~9%の Pu が結合していた。また、生きている硫酸還元細菌は、死んだセルよりも多くの Pu を吸着するとの報告がある。この例からは、微生物はアクチニドを吸着する能力を有していることがわかる。セルの大きさが小さい場合は、いったんアクチニドが吸着すれば、コロイドとして移行する。

様々な pH 及びイオン強度におけるスペシエーション、生体利用効率、微生物に吸着されたアクチニドの安定性に関するより十分な知見と一体となって、微生物表面へ吸着された化学種について定量的な評価を実施することは、アクチニドのコロイドによる移行に対する微生物の役割の重要性を評価するために有用であると考えられる。

COLFRAC への応用可能性：

還元環境下における実サイトにおいて、U 及び Pu が微生物吸着されること、またその微生物濃度、吸着割合が値として示されており、パラメータ設定において参考としうる。

参考文献番号：29

著者および文献名：
S. Markai, Y. Andres, G. Montavon and G. Grambow: "Study of the interaction between europium (III) and <i>Bacillus subtilis</i> : fixation sites, biosorption modeling and reversibility", <i>Journal of Colloid and Interface Science</i> , 262, 351(2003).
目的：
金属イオンの微生物吸着の機構を明らかにするために、電位差滴定、錯体の検討及び TRLFS 測定を行い、Eu(III)と <i>Bacillus subtilis</i> の反応を検討した。
微生物の種類：
<i>Bacillus subtilis</i>
研究内容：
Eu(III)と <i>Bacillus subtilis</i> の反応の可逆性が、Chelex レジンを用いた陽イオン交換法により検討された。0.15mol/lNaCl、金属イオン及びバイオマスを用いた試験においては、濃度と pH を変化させて試験が行われた。
結果と考察：
陽イオン交換法により、微生物表面には、カルボキシル基、リン酸、ヒドロキシル基あるいはアミンが存在することが明らかとなった。試験で得られた吸着のデータは、静電効果の項を入れずに、表面錯体モデルとして定量的な評価を行った。pH5 における Eu(III)-微生物系のデータは、微生物表面の 1 つのカルボキシル基に収着する 1 サイトモデルで十分記述することができた。pH が上昇すると、リン酸結合環境を考慮したもう一つのサイトを考慮すべきである。このことは、TRLFS 測定によって部分的に確認されている。さらに、サイトの利用効率は、カチオンがプロトンなのか、Eu(III)なのかといった特性に依存していた。また、Eu(III)と <i>Bacillus subtilis</i> の反応は、pH5 の試験において可逆であることを確認した。Eu の微生物内部への拡散は、吸着と比較すると無視できることが明らかとなった。
COLFRAC への応用可能性：
重金属-微生物の反応に対しては、カルボキシル基、リン酸基が重要な役割を果たしており、その吸着は可逆であるとの知見が得られている。

参考文献番号：30

著者および文献名：
D. Santhiya, S. Subramanian and K. A. Natarajan: "Surface Chemical Studies on Sphalerite and Galena Using <i>Bacillus polymyxa</i> II: Mechanisms of Microbe-Mineral Interactions", Journal of Colloid and Interface Science, 235, 298(2001).
目的：
微生物溶解実験により、閃亜鉛鉱及び方鉛鉱からの化学種の放出を明らかにした。また、金属イオンと微生物の反応を確認するための微生物吸着試験を行った。
微生物の種類：
<i>Bacillus polymyxa</i>
研究内容：
吸着実験の部分を抜粋して記述 微生物吸着試験は、50ppm の $\text{Pb}(\text{NO}_3)_2/\text{Zn}(\text{NO}_3)_2$ に $2.5\text{-}3.5\times 10^9$ 個/mol を加え、pH の範囲を 3-11 として 1 時間ずつ実施した。試料は遠心分離の後、残りの鉛、亜鉛濃度を分析した。対照試料として、微生物なしの試料の試験も実施した。
結果と考察：
Fig2 に、pH を変化させた場合の鉛、亜鉛の微生物吸着量を示す。微生物を入れなかった場合には、鉛濃度は、pH3 で 50ppm、pH5.5 で 45ppm であり、pH7-9 の間では 3 ppm 以下となっていた。pH 9 以上では、$\text{Pb}_4(\text{OH})_4^{4+}$、$\text{Pb}_6(\text{OH})_8^{4+}$、$\text{Pb}(\text{OH})^+$ といった化学種により溶解鉛濃度が再び増加し、pH11 で約 45ppm となった。$\text{Pb}(\text{NO}_3)_2$ がセルと反応した場合には、pH3 で 45ppm、pH5 で 39ppm、pH7-9 の間では明らかに 3ppm 以下になっていた。これより高い pH では、濃度が上昇し、pH11 で約 15ppm になった。pH9-11 における鉛濃度の比較から、この pH の範囲においては、鉛と微生物は強い相互作用を生じていることが明らかとなった。 亜鉛については、pH3 で 50ppm、pH5.5 で 33ppm、pH6-7 では 2ppm 以下に低下していた。pH 7 以上では濃度が段々増加していった。中性領域においては亜鉛の沈殿が生じ始め、おそらく $\text{Zn}(\text{OH})_4^{2-}$、$\text{Zn}_2(\text{OH})_6^{2+}$ が生成しているとの報告がある。アルカリ領域において亜鉛濃度が増加するのは、亜鉛酸塩が生じているからかもしれない。亜鉛濃度も、セルと反応した場合には低下していたが、亜鉛の場合は、最もセルとの反応が活発な pH 領域が 6-9 であった。
COLFRAC への応用可能性：
特になし