

理工学研究科;福

GD
0
127
静岡大学附属図書館

0006506331 R

学位論文

放射性廃棄物地層処分における微生物影響



福永 栄

平成17年12月

## 要旨

原子力発電で発生する放射性廃棄物は、長期にわたり人の生活圏から隔離する必要がある、そのため各国で地層処分が計画されている。しかし、処分場の安全評価にあたり、地下圏にも生息する微生物およびそれが及ぼす影響については従来、十分に配慮されていなかった。最終的には微生物影響も組み込んだモデル化/シミュレーションのプロセスを進めるべきであるという視点に立ち、重要と考えられる以下の三つの課題を実施し、最後にこのテーマを完成させるための残された課題を整理した。

① モデル化の第一歩である概念モデルづくりに資するため、過去の文献情報整理から、微生物量に影響を及ぼす要因の抽出、微生物量の予測、微生物が安全性能に及ぼす影響項目の抽出、およびその重み付けを行い、廃棄体からの距離ならびに処分場開設時からの時間別に図に表した。これらの要素の定量化に必要な試験研究として、

- ・現在の岩盤の微生物調査、
- ・人工バリアに類似した天然の系であるナチュラルアナログの調査、
- ・バイオフィームによる核種の収着・取り込みとその剥離によるコロイド形成など微生物が安全側に働くか安全性を損なう方向に働くかの評価のための物理モデル試験

などを提唱した。釜石鉱山の 100~500m の深度の地下水には硫酸塩還元細菌などの細菌が全菌数として最大  $10^5/\text{mL}$  存在するという著者らの微生物調査結果を紹介した。

② 地層処分場で廃棄体を囲むように設置が計画されている緩衝材の主成分であるベントナイトには微生物活動を抑え人工バリアの構造への悪影響を防ぐ効果が期待されているが、ベントナイト中の微生物の長期的な挙動を把握するため、ナチュラルアナログとしてベントナイト鉱床のボーリング調査を行った。水で湿った孔口から最大 1 m 余りまで掘削水を使わずにコアを採取し、深さ別にコアの中心部を切り出して、平板培養法による好気性および嫌気性従属栄養細菌数と CFDA-AM (Carboxyfluorescein diacetate acetoxymethyl ester) で染色される生きた細胞数を測定し、ベントナイトの物性と比較した。孔口から深くなるにつれ細菌数が減少しベントナイトが微生物に対し抑制的であることがわかった。細菌数は乾燥密度と負の相関があったこと、同じ乾燥密度でも深いほど細菌数が少ない場所があったことなどから、高い乾燥密度とフィルトレーション効果が微生物抑制の原因である可能性が示唆された。

③ 物理モデルとして、断面積  $90\text{cm}^2$ 、長さ  $14\text{cm}$  の砂の充填層二つを直列に並べ、各砂層の入り口・出口で pH と Eh のモニタや水質分析用サンプリングができるようにした帯水層模擬試験装置を製作した。これを雰囲気制御グローブボックス内に設置して、硝酸塩、硫酸塩などの電子受容体を加えた地下水（または酢酸塩にこれらを加えた模擬地下水）を通算 400 日間通水し、アクリジンオレンジ染色の全菌数による微生物量、その分布、溶解性有機炭素や電子受容体の濃度のプロファイル解析による反応速度測定などを試みた。その

結果、

- ・砂の間隙水あたり  $10^8/\text{mL}$  前後の全菌数が存在し、その大部分は砂に付着し、1~10%程度が浮遊している、即ちコロイドとなりうること、
- ・酢酸塩からの脱窒を優占させると空隙閉塞傾向が見られること、
- ・硝酸塩濃度と酸化還元電位 (Eh) の関連性

などが示された。様々な微生物影響の基礎となる反応速度に関するパラメータ（微生物量と DOC 量あたりの DOC 分解速度で表示）を求める手順を立案し、酢酸塩添加の脱窒において  $10^{-6} \sim 10^{-5}/(\text{cell}/\text{mL})/\text{y}$  という値を得た。

これらの結果により微生物影響解明の糸口が得られたが、現象記述面などで課題が残っている。今後それらを解決し、別途開発されている微生物用の数値モデル（解析コード）に応用することによって、今まで充分には手がつけられていなかった地層処分における微生物影響の定量的評価に寄与すると考える。

## Outline of Thesis

Course : Environmental Science

Name : Sakae FUKUNAGA

Title of Thesis : Microbial influence in geological disposal of radioactive waste

It is necessary to consider impact of microorganisms in geological disposal of radioactive wastes, but knowledge is still very limited. To a conceptual model of microbial influences, literature survey, anticipated microbial abundance, factors affecting it, and microbial actions to safety barrier systems and radionuclide transport were studied throughout the process of radioactive waste disposal. Bacteria in bentonite deposits were investigated as a natural analogue to study microbial distribution in the buffer material. Bacterial numbers declined with distance from the drilling mouth, which indicates that the bentonite environments are not favorable for bacterial growth and survival. It may be attributable to factors such as high dry density or bacterial filtration properties of bentonite. A model experiment simulating an aquifer made of sand particles was conducted to know microbial population dynamics appeared in response to given nutrient perturbation. The model system was consisted of natural or artificial groundwater containing natural organic matter or acetate as an electron donor and nitrate or sulfate as an electron acceptor, and operated for a total of more than 400 days. Bacteria amounted to ca.  $10^8$  mL<sup>-1</sup> pore water in the sand bed. One to 10% of them were free-living and discharged. Specific reaction rates of microorganisms per cell and organic matter were obtained for denitrification using acetate. These results would contribute to quantification of microbial influences by further investigation and application of the results to numerical models.

## 目次

1. はじめに	1
2. 地層処分における微生物の関わりと課題	
2.1 原子力発電と放射性廃棄物	3
2.2 地層処分の概念	7
2.3 地層処分場の安全評価の考え方	10
2.4 地層処分における微生物影響の整理・モデル化の考え方	12
2.5 高レベル廃棄物処分における微生物量の見積り	16
2.6 高レベル廃棄物処分における微生物影響の見積り	27
2.7 TRU 廃棄物処分における微生物量の見積り	35
2.8 TRU 廃棄物処分における微生物影響の見積り	40
2.9 予備概念モデルの活用	45
3. ベントナイト鉱床の微生物調査	
3.1 序	49
3.2 材料および方法	50
3.3 結果	53
3.5 考察	59
3.6 結論	62
4. 微生物影響評価のための帯水層模擬試験	
4.1 目的	63
4.2 試験装置	63
4.3 試験方法	67
4.4 分析計測方法	69
4.5 結果および考察	72
5. 残された課題	90
6. 謝辞	92
7. 参考文献	93
8. 索引	109

## 図リスト

図 2.1	原子力発電から発生する放射性廃棄物	3
図 2.2	各種放射性廃棄物の放射能と廃棄物表面の放射線量の分布	6
図 2.3	高レベル廃棄物地層処分概念	8
図 2.4	モデル化プロセスの一例と本章で検討する部分	13
図 2.5	我が国における地層処分場の概念の例	14
図 2.6	高レベル廃棄物処分における微生物量見積りに関わる予備概念モデル	25
図 2.7	高レベル廃棄物処分における微生物影響見積りに関わる予備概念モデル	33
図 2.8	TRU 廃棄物処分における微生物量見積りに関わる予備概念モデル	39
図 2.9	TRU 廃棄物処分における微生物影響見積りに関わる予備概念モデル	43
図 3.1	ベントナイト鉱床調査における調査地点(site)の概況と試錐の状況	51
図 3.2	A,B,C および D 地点(site)で得られたコアの写真	53
図 3.3	A,B,C および D 地点で得られたコアの状況	54
図 3.4	A,B,C および D 地点の細菌数の試錐機の軸に沿った分布	56
図 3.5	強熱減量、含水率、飽和度、乾燥密度と細菌数の間の関係	60
図 3.6	各地点の乾燥密度と細菌数との関係	60
図 4.1	帯水層模擬試験装置のフロー概要	64
図 4.2	帯水層模擬試験装置の外観写真	64
図 4.3	島須れき層の砂の粒径分布	65
図 4.4	島須れき層の露頭の状況	66
図 4.5	トレーサー試験結果	67
図 4.6	帯水層模擬試験装置における微生物量の推移	73
図 4.7	Run1 における付着性細菌と浮遊性細菌の割合	74
図 4.8	Run 1 の 176 日目における全菌数の挙動	74
図 4.9	帯水層模擬試験装置における pH の推移	76
図 4.10	帯水層模擬試験装置における Eh の推移	77
図 4.11	帯水層模擬試験装置における硝酸イオン濃度と Eh との関係	78
図 4.12	酢酸塩からの酸化還元反応における基質濃度の流下方向プロファイル	80
図 4.13	地下水からの酸化還元反応における基質濃度の流下方向プロファイル	81
図 4.14	硝酸塩と硫酸塩が共存する系の酸化還元反応における基質濃度の流下方向プロファイル	82
図 4.15	酢酸塩を電子供与体とした脱窒における DOC の最大比消費速度 $k^{OC}$ と最大半飽和定数 $K^{OC}$ の試算例	83
図 4.16	微生物あたりの DOC 消費速度 ( $R^{OC}/P$ ) と DOC 濃度 ( $[OC]$ ) との関係	87
図 4.17	$k^{OC}/K^{OC}$ 値の分布とそれが得られたときの DOC 濃度	88

## 表リスト

表 2.1	TRU 廃棄物の一例（ハルエンドピース＝燃料棒被覆）と高レベル廃棄物モデルが含有する主要な放射性核種と放射能	5
表 2.2	地層処分場のバリアに期待される安全機能	9
表 2.3	極限環境の中で微生物が増殖できる可能性のある範囲	15
表 2.4	含水率の異なる Na 型ベントナイトといろいろな材料の水分活性、およびそこで繁殖する微生物	19
表 2.5	釜石鉱山の掘削井等から採取した地下水の水質と細菌数	21
表 2.6	微生物の生成物による錯体形成の例	27
表 2.7	好アルカリ性の微生物の例	36
表 2.8	セルロースからの嫌氣的ガス発生試験	42
表 2.9	微生物研究を実施している地下実験施設の例	47
表 2.10	微生物研究を実施しているナチュラルアナログの例	48
表 3.1	コア試料の物理化学的性質	57
表 3.2	孔口近くの水の性質と細菌数	58
表 4.1	試験装置の仕様および文献との比較	65
表 4.2	試験装置に投入した砂の物性	67
表 4.3	帯水層模擬試験における流入条件	68
表 4.4	地下水および水道水の水質	68
表 4.5	脱窒細菌用の改変 14-1 培地の組成	70
表 4.6	帯水層模擬試験装置の透水係数（流量はポンプ稼動時の流量である）	75
表 4.7	各[OC]条件ごとの $R^{OC}$ の計算	85
表 4.8	各試験における脱窒または硫酸還元速度の計算	86
表 4.9	帯水層模擬試験装置の結果概要	89

## 1. はじめに

放射性廃棄物地層処分における微生物影響の解明は大変大きな課題であるが、その糸口の部分を本研究で実施した。研究は、放射性廃棄物処分における微生物影響に関する基礎的なものであるが、本論では、研究が目指す最終目標をタイトルとしている。

原子力発電で発生する放射性廃棄物のうち放射能レベルの高いものは、人の生活圏から長い期間にわたり隔離しておく必要がある。そのため、日本を含む各国は、廃棄物を金属製容器に収納し、低透水性・コロイドろ過等の機能を持つベントナイトなどの緩衝材に囲んで（人工バリア）、地下数百メートルの岩盤（天然バリア）内に埋設するよう計画している。日本における計画では、廃棄物内の放射性核種は約 1000 年の間、人工バリア内に閉じ込められ、その後放出されても天然バリアで移行が遅延されると想定している。未来にわたる人の生活圏の安全性については、実証が難しいため、天然の類似体を用いるナチュラルアナログの研究やモデル化／シミュレーションに頼りながらの長期予測が試みられている。しかしながら、この予測は主に水理学や地球化学をベースに行われたものである。微生物は、地下数百メートルの場にも存在し、人工バリアの劣化や核種移行に及ぼす影響を示唆する多くのデータが報告されているにもかかわらず、少なくとも我が国における予測に充分組み込まれているとは言い難い。微生物が及ぼす影響が有意なのか、そうだとすれば生物圏での被曝線量などにどの程度のインパクトを与えるかを定量的に評価する道筋をつけることが、この分野では強く求められている。

第2章では、これに応える第一ステップとして概念モデルの基礎となる資料を作るため、現在まで蓄積されてきた微生物に関する情報を整理した。そして、高レベル廃棄物、TRU（ウランより大きな原子番号の核種を含有する）廃棄物ごとに、また処分場開設からの年代と廃棄物収納容器からの距離ごとに、微生物量ならびに注目すべき微生物影響（微生物が安全性能に及ぼす影響）を予測して図示した「予備概念モデル」と称する図の作成を試みた。内容はオリジナルであり、地層処分における微生物影響の現状と課題を総括する意味も持つ。

予備概念モデルのうち微生物量については、いろいろなサイトで調査・蓄積される微生物に関するデータが天然バリアの微生物量予測のための重要な根拠となる。著者は共同研究者とともに釜石鉱山の地下水中の微生物調査を実施して、4地点5ポイントの細菌数や硫酸塩還元細菌の存在を示し（Ishii, K., Takii, S., Fukunaga, S. & Aoki, K., 2000, *J. Gen. Appl. Microbiol.* Vol.46, pp.85-93.）、第2章中に引用した。

第3章では、人工バリアの微生物量に着目した。これは微生物腐食など、廃棄物近傍の微生物による悪影響の評価のためには重要であるが、その長期予測は容易ではない。例えば、地下に設置された、締め固めたベントナイト主体の緩衝材が数百年後にどのような状態になるかは、なかなか試験で明らかにすることはできない。著者は、天然の類似体であるナチュラルアナログのデータが参考となると考え、ベントナイト鉱床の微生物調査を実施した。内容は論文として発表したものである（Fukunaga, S. et al., 2005, *Geomicrobiology*



J. Vol.22, pp.1-10.)。

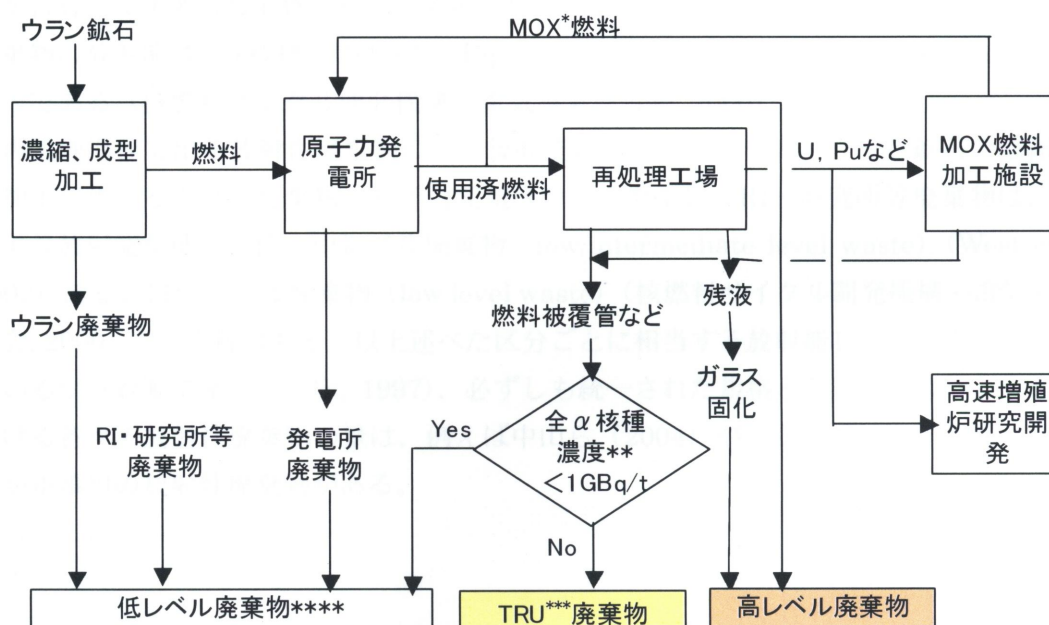
第4章では、予備概念モデルのうち微生物影響の定量的評価につなげるための試験の結果である。微生物影響については、ナチュラルアナログを使えるケースは少なく、モデル化に頼る面が大きい。モデル化のためには、予備概念モデルを概念モデルとして確定させ、また数学モデル、数値モデルへと展開させシミュレーションを行うのが一般的な道筋であるが、そのためには数値モデルに入力する微生物活性等にかかわるパラメータを設定する必要がある。その数値は、フラスコ培養のような栄養十分な系ではなく処分場環境を模擬した系で取得する必要がある。著者は、生物圏の被曝線量にインパクトが大きいと考えられる天然バリアでの核種移行に焦点を当て、そこにおける微生物影響の定量的把握のための第一段階として、砂の堆積物からなる帯水層を模擬した物理モデルを構築した。これに地下水を通水して、微生物活性等に関わる数値を取得した。内容はオリジナルであり、学術誌に投稿中である。

これらの研究結果をシミュレーションに繋げるには、さらにいくつかの段階を踏んでいかなければならないが、地層処分における微生物影響を長期予測するための道筋に第一歩を踏み出した意義があると考え、以下、報告する。

## 2. 地層処分における微生物の関わりと課題

### 2.1 原子力発電と放射性廃棄物

原子力発電は、 $^{235}\text{U}$  などの核分裂によって生じる熱エネルギーを蒸気に変換し蒸気タービンによって発電する技術である。ウラン鉱石を精錬・濃縮・成型加工して発電用燃料として用いる場合と、使用済燃料から U および Pu を抽出（再処理）して発電用燃料に用いる場合とがある。発電においては化石燃料を消費せず、再処理・廃炉までを含めた  $\text{CO}_2$  排出量は 2~6g-C/kWh 程度と試算されている（日本原子力産業会議,2003）。これは、天然ガス火力発電の  $\text{CO}_2$  排出量 178 g-C/kWh より遥かに小さい。原子力発電は、すでに 2000 年現在、我が国の発電電力量の約 35%、一次エネルギー供給量の約 12%を占めているが、このような特質から、地球温暖化対策技術の一つとして位置づけられ、今後の石油代替エネルギーの供給目標の約 30%を担うことが期待されている（日本原子力産業会議, 2003）。一方、原子力発電は、安全性および放射性廃棄物の発生という二つの問題を抱えている。国の原子力委員会は、その長期計画策定にあたって「原子力に対する国民の不安や不信が高まっている厳しい状況の中で、今後の原子力政策を進めるに当たっては、国民・社会及び国際社会の理解と信頼を得ていくことが大前提であるとの立場に立ち、云々」と述べている（日本原子力産業会議, 2003）。



MOX\*: Mixed Oxide Fuel=ウラン・プルトニウム混合酸化物燃料  
 $\alpha$ 核種\*\*:  $\alpha$ 粒子(2個の陽子と2個の中性子)を放出して崩壊する核種  
 TRU\*\*\*: 超ウラン元素(ウランよりも大きい原子番号を持つ元素)  
 低レベル廃棄物\*\*\*\*: 低・中レベル廃棄物という表現もある

図 2.1 原子力発電から発生する放射性廃棄物(日本原子力会議,2003; 核燃料サイクル開発機構・電気事業連合会,2000; 資源エネルギー庁, 2005 より作成)

原子力発電から発生する放射性廃棄物は、図 2.1 に示す過程で生まれる。その特性は、使用済燃料(spent fuel)をどう扱うかによって異なってくる。米国などでは、使用済燃料をとくに精製することなく処分するが、日本などでは硝酸、有機溶剤によりウランおよびプルトニウムを抽出し再利用するための再処理(reprocessing)を行い、残りの部分を処分する計画である。燃料として再利用の際は、プルトニウムの軍事利用を防ぐためウランと混合して MOX 燃料(mixed oxide fuel)とする。再処理工程中、ウラン、プルトニウムの抽出に用いた残液をガラス固化したものは放射能レベルが高い。このガラス固化体および使用済核燃料は、原子力発電で生じる半減期の長い放射性核種を含有し、高レベル廃棄物(high level waste)として扱われる。我が国で想定しているガラス固化体の放射能は、 $0.15\text{m}^3$ の固化体 1 本あたり  $10^{15}\text{Bq}$  のオーダーである(核燃料サイクル開発機構, 1999)。

再処理が行われる場合、ガラス固化体以外の廃棄物(燃料被覆管など)の放射能レベルは高レベル廃棄物ほど高くはない。しかし半減期の長い放射性核種を含有し、その中にはウランより大きな原子番号の核種も含まれるので(必ずしもそれらが主要な問題元素でない場合もあるが)、とくに TRU 廃棄物(transuranic element containing waste)と呼ばれる。我が国の TRU 廃棄物の一例(ハルエンドピース=燃料棒被覆)と高レベル廃棄物モデルが含有する主要な放射性核種と放射能の値を表 2.1 に示した。我が国で想定している TRU 廃棄物の放射能は、 $\alpha$ 核種が  $10^6\sim 10^{12}\text{Bq/t}$  のオーダー、 $\beta$ - $\gamma$ 核種が  $10^8\sim 10^{15}\text{Bq/t}$  のオーダーである(核燃料サイクル開発機構・電気事業連合会, 2000)。

再処理過程で出る放射性廃棄物のうち放射能レベルの低いもの、ウラン鉱石の濃縮・成型加工で生じるウラン廃棄物、原子力発電所からの廃棄物、RI・研究所等廃棄物は、これらより放射能が低く、低・中レベル廃棄物(low/intermediate level waste)(West et al., 2002)あるいは低レベル廃棄物(low level waste)(核燃料サイクル開発機構・電気事業連合会, 2000)などと呼ばれる。以上述べた区分ごとに相当する放射能レベルの表は作成されているが(資源エネルギー庁, 1997)、必ずしも統一された規格となっていない。我が国における各々の放射性廃棄物の量は、例えば中山ら(2004)がまとめている。海外ではこのほか軍事用の放射性廃棄物がある。

表 2.1 TRU 廃棄物の一例（ハルエンドピース＝燃料棒被覆）と高レベル廃棄物モデルが含有する主要な放射性核種と放射能（Bq＝ベクレル＝毎秒の崩壊数が1個であるときの放射能の量。1gのラジウムの放射能に相当する1キュリー（Ci）は $3.7 \times 10^{10}$ Bqである。）

原子番号	核種	元素記号	原子量	半減期（年）	廃棄物中の放射能(Bq)	
					TRU廃棄物の一例(JNC再処理ハルエンドピース1tあたり)	再処理からのガラス固化体(0.15m <sup>3</sup> )モデル(1000年後1本あたり)
6	炭素	C	14	5,730	5.3E+10	
17	塩素	Cl	36	301,000	1.1E+09	
27	コバルト	Co	60	5	6.6E+14	
28	ニッケル	Ni	63	100	5.3E+13	
34	セレン	Se	79	65,000	1.3E+07	1.6E+10
38	ストロンチウム	Sr	90	29	2.4E+12	
40	ジルコニウム	Zr	93	1,530,000	7.2E+09	7.4E+10
42	モリブデン	Mo	93	3,500	8.1E+10	
41	ニオブ	Nb	94	20,300	8.1E+10	1.8E+08
43	テクネチウム	Tc	99	213,000	5.0E+08	5.1E+11
46	パラジウム	Pd	107	6,500,000	2.5E+06	4.2E+09
50	スズ	Sn	126	100,000	2.1E+07	3.0E+10
53	ヨウ素	I	129	15,700,000	8.9E+05	
55	セシウム	Cs	135	2,300,000	1.2E+07	1.8E+10
62	サマリウム	Sm	151	90		4.7E+09
82	鉛	Pb	210	22		2.1E+06
88	ラジウム	Ra	226	1,600		2.2E+06
89	アクチニウム	Ac	227	22		9.0E+05
90	トリウム	Th	230	77,000		9.2E+06
91	プロトアクチニウム	Pa	231	32,800		9.0E+05
92	ウラン	U	234	245,000	3.4E+05	8.1E+08
			235	704,000,000	1.1E+06	2.7E+06
			236	23,400,000	9.7E+06	5.9E+07
			238	4,500,000,000	1.1E+07	3.9E+07
93	ネプツニウム	Np	237	2,140,000	8.4E+06	2.3E+10
94	プルトニウム	Pu	239	24,100	1.0E+10	8.8E+10
			240	6,540	1.4E+10	3.6E+11
			241	14	2.9E+12	1.1E+10
			242	387,000	2.8E+07	3.8E+08
95	アメリシウム	Am	241	432	4.8E+09	5.8E+12
			243	7,380	1.9E+08	7.2E+11
96	キュリウム	Cm	244	18	1.4E+10	
			245	8,500		1.1E+10
			246	4,730		2.3E+09
引用文献				核燃料サイクル開発機構・電気事業連合会(2000), 核燃料サイクル開発機構(1999)	核燃料サイクル開発機構・電気事業連合会(2000)	核燃料サイクル開発機構(1999)

これらの放射性廃棄物は発熱する上、図 2.2 に示すような放射能と放射線量の値を示す。そこで放射性廃棄物は、冷却しつつ、隔離、遮蔽され、放射能の低減を待つことになる。しかし、原子力発電所から発生する放射性廃棄物が含有する放射性核種の中には半減期が長いものが多く、人や生物への影響がなくなるまで地上保管することは、用地の確保の問題のほか保管容器や設備の耐久性の面でリスクがある。高レベル廃棄物と TRU 廃棄物の処分の問題は、他の放射性廃棄物の処分以上に関心を集めることとなった。

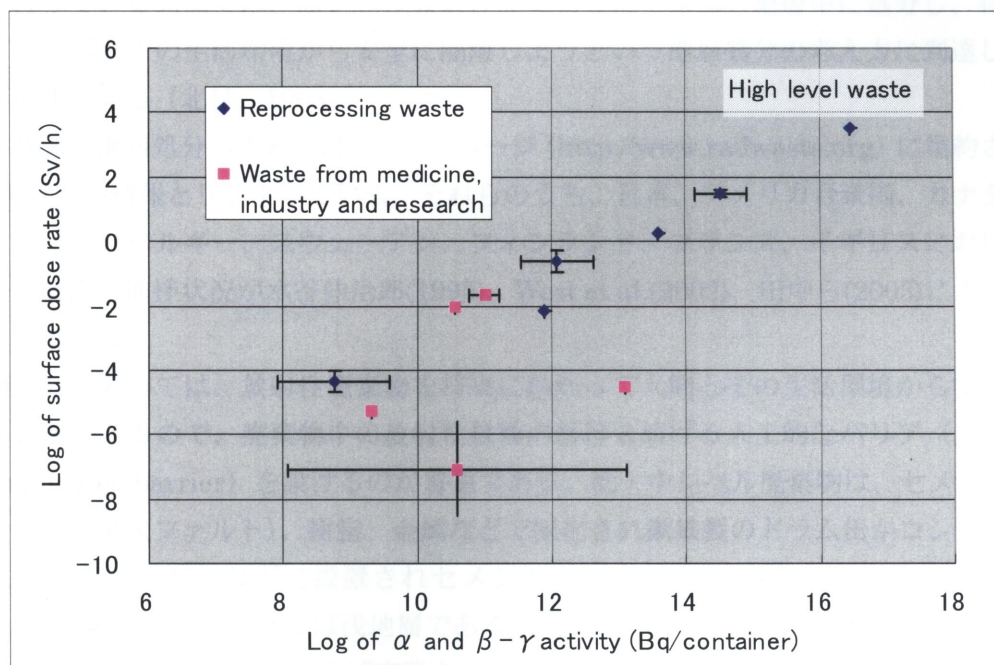


図 2.2 各種放射性廃棄物の放射能 ( $\alpha$  and  $\beta$ - $\gamma$  activity) と廃棄物表面の放射線量 (Surface dose rate) の分布 (Alder & McGinnes, 1995 のデータをまとめた West et al, 2002 の表より、作図した。High level waste : ガラス固化体。High level waste 以外の Reprocessing waste : TRU 廃棄物。放射線量は、 $\gamma$  線主体であったので、 $1\text{Gy}=1\text{Sv}$  とした。なお、 $\text{Gy}=\text{グレイ}=1\text{kg}$  あたり  $1\text{J}$  のエネルギーが放射線から物質に与えられるときの吸収線量。 $1\text{rad}=10^{-2}\text{Gy}$ 。 $\text{Sv}=\text{シーベルト}=\text{Gy}$  に生物的な影響の係数を乗じた吸収線量。 $\gamma$  線では係数 1 であるが  $\alpha$  線では 20 である。)

## 2.2 地層処分の概念

放射性元素の危険性は 20 世紀初頭から察知され、1928 年には ICRP (International Commission on Radiological Protection) が発足して安全性検討を開始し、1957 年には国際的な機関として IAEA(International Atomic Energy Agency)が発足した。放射性廃棄物の処分も討議され、1970 年頃には海洋投棄が検討された。その後、宇宙空間への投棄や極地域の氷の中への廃棄なども提案された (水谷伸治郎, 1995; 田中ら, 2003)。しかし、1982 年に経済協力開発機構/原子力機関(OECD/NEA)がとりまとめた報告に基づいて、原子力発電を行っている諸国では、高レベル放射性廃棄物を地下深部の地層中に処分し、将来にわたって人間とその生活環境から安全に隔離しようという地層処分の考え方に到達しているのが現状である (北村, 1995)。

世界各国の地層処分の方針等は、ホームページ (<http://www.radwaste.org>) に集約され、50 カ国以上の情報とリンクしている。それらのうち、日本、アメリカ合衆国、カナダ、スイス、ドイツ、ベルギー、スウェーデン、フィンランド、フランス、イギリスにおける地層処分の概念と進捗状況が水谷伸治郎(1995)、West et al.(2002)、田中ら(2003)により、まとめられている。

地層処分においては、放射性廃棄物を将来にわたって人間とその生活環境から安全に隔離する必要があるので、廃棄物中の放射性核種の移行を妨げる人工的なバリア (人工バリア=engineered barrier) を設けるのが普通である。低・中レベル廃棄物は、セメント、ビチューメン (アスファルト)、樹脂、金属などで固化され鋼鉄製のドラム缶かコンクリート容器に入れられて洞穴などに設置されセメント質の素材で埋め戻される (West et al., 2002)。その埋設場所はしばしば浅地層である。我が国では、低レベル廃棄物の放射能が原子炉等規制法施行令基準内 (例えば容器内に固形化したものなら  $^{14}\text{C}$  は  $3.7 \times 10^{10} \text{Bq/t}$  以下等々の基準を満たすこと) であれば浅地層への埋設が可能とされており、基準を超える場合は他の処分方法が検討されることとなる。

TRU 廃棄物や高レベル廃棄物の場合は、一層慎重な対応が必要となる。人工バリアにはより高い閉じ込め性能が求められる。また処分場は地下数百mの位置に計画され、処分場を囲む母岩 (host rock) などにも天然バリア (natural barrier) として隔離の機能を持たせている。即ち、多重バリア (multiple barrier principle) が原則となっている。高レベル廃棄物の場合の多重バリアの概念を図 2.3 に示す。また各バリアに期待される安全機能を表 2.2 に示す。

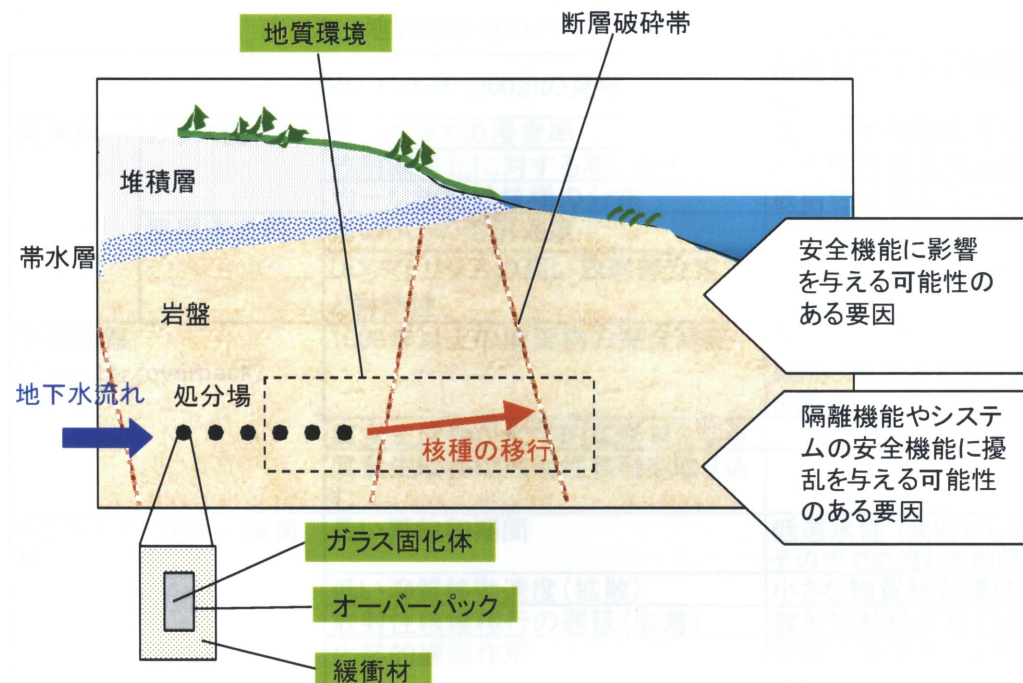
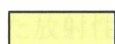


図 2.3 高レベル廃棄物地層処分の概念（核燃料サイクル開発機構，1999 より改変）

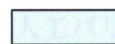
高レベル廃棄物の人工バリアでは、鋼鉄、銅、チタンなど腐食に耐える容器（canister）やそれを収納する容器（overpack）が廃棄体を包む。その外側には、粘土（clay）／ベントナイト（bentonite）を主成分とする緩衝材（buffer）と埋め戻し材（backfill）が設置される。更にその外側は地質バリア（geological barrier）となる。Canister／Overpack の寿命は約 1000 年となるよう設計され、その間、高い放射能を持つ半減期の短い核種の崩壊が起きる。粘土／ベントナイトは水により膨潤するので、可塑性（plasticity）、低透水性（low hydraulic conductivity）、pH などの化学的緩衝性（chemical buffering）、放射性核種の収着（sorption＝吸着された物質が固溶体や化合物を作る場合を含む）、コロイドのろ過（filtration）といったバリアとしての重要な機能を果たす。TRU 廃棄物に対するバリア機能は高レベル廃棄物ほどでなくても許容されるので、セメントやコンクリートがより多く使われる。（以上、West et al., 2002 参照。）我が国でもほぼ同様の概念で、高レベル廃棄物と TRU 廃棄物の処分方法が検討されている（核燃料サイクル開発機構，1999；核燃料サイクル開発機構・電気事業連合会，2000；北山ら，2004）が、実施は 2030 年以降となる見込みである。バリアに要求される性能は村岡ら（2003）が概略述べているが、具体的内容を表 2.2 に示した。

表 2.2 地層処分場のバリアに期待される安全機能

		West et al. (2002)の見解	核燃料サイクル開発機構(1999)の見解
廃棄体	ガラス固化体	低いガラスの浸食率 放射線劣化に対する高い抵抗性 均一な放射性核種の分布	高い化学的耐久性により地下水への放射性核種の溶出を抑制 放射性核種を均一かつ安定に固定
	使用済燃料	低いUO <sub>2</sub> の溶解速度 UO <sub>2</sub> マトリクスの高い放射線安定性と耐熱性	
処分容器 (Canister/overpack)		1000年以上の廃棄物の完全隔離  腐食生成物が化学的緩衝材となる 腐食生成物は放射性核種を取り込む	ガラス固化体の発熱や放射能が高い期間、地下水とガラス固化体の接触を阻止
ベントナイト埋設／緩衝材		長い再飽和期間  低い溶質移動速度(拡散) 放射性核種移行の遅延(収着) 化学的緩衝作用  浸出水中の低い放射性核種溶解度  コロイドのろ過  可塑性(物理的な擾乱の後の自己修復)	低透水性(周囲からの地下水の浸透やその中での流れを制限) 小さな物質移動速度(拡散) 放射性核種の移行遅延(収着) 化学的緩衝性(緩衝材、オーバーパックおよびその腐食生成物と地下水との反応による還元性の維持) 間隙水中での低い溶解度(溶解度制限) コロイド、微生物および有機物のろ過(緩衝材の微細な間隙構造が高分子の物質の移行を抑制) 膨潤性と可塑性  緩衝材中を移行する間に放射性核種は崩壊により減衰
地質バリア	処分場設置環境	小さな地下水流束	小さな地下水流束
		好ましい地下水化学	好ましい地下水化学(還元性など)
		力学的安定性	力学的安定性
	地層／天然バリア機能	放射性核種移行の遅延(収着、マトリクス拡散)	放射性核種の移行抑制(小さな地下水流束による移流あるいは拡散、および岩盤基質部へのマトリクス拡散、収着)
放射性核種濃度低下(希釈、放射性核種崩壊による放射能減衰)		放射性核種の希釈・分散(複雑な間隙構造により、地下水中の放射性核種はいろいろな方向に分散・希釈) 岩盤中を移行する間に放射性核種は崩壊により減衰	
人工バリアの物理的保護(氷河侵食などから)			



: 第3章に関連する部分



: 第4章に関連する部分

(West et al., 2002; 核燃料サイクル開発機構, 1999 より)



## 2.3 地層処分場の安全評価の考え方

放射性廃棄物の地層処分システムの安全評価（放射性核種の閉じ込め性能の評価）は大変重要な課題である。しかし処分後、極めて長い時間にわたる安全を評価しなければならない本ケースでは、他の工業システムのように試験設備の稼動によって安全性を実証するという直接的な方法をとることはできない（梅木・木村, 2004 参照）。そこで考えられる手法が将来予測のためのモデル化である。地下水の分野では、以下の手順でモデル開発を行う例が紹介されている（ヘルミック, 2004）。

- ・ 概念モデル（conceptual model）：  
系や系で生じるプロセスを適切に再現するために、系を物理的、化学的、微生物学的に抽象化したもの。
- ・ 数学モデル（mathematical model）  
概念モデルを数学的に定式化したもので、系に依存する状態方程式と同様に、連続性と運動量、エネルギー保存方程式を含んでいる。
- ・ 数値モデル（numerical model）  
より現実的な問題に対応するため、数学モデルを数値計算アルゴリズムに移行したもの。

ここで、数値モデルは、初期条件／境界条件を設定することにより数学モデルの解析解で検証（verification）されるとしているが、解析解は少数の特殊な問題に限り存在する。数値モデルはさらに実験データにより確認（validation）されなければならない。（ヘルミック, 2004 では validation は検証と訳されているが、ここでは区別のため確認という翻訳を採用する。）数値モデルを実際の自然界に適用するにあたっては、将来予測に耐えうると検証／確認されることが必要（ヘルミック, 2004）、わずかなデータや質の悪いデータを使って印象的にみえる結果をたやすく創作することができる（Anderson & Woessner, 1994）などの点に注意が喚起されている。

さて、日本では、核燃料サイクル開発機構（1999）による高レベル廃棄物に関する技術的信頼性の検討において、次のようなアプローチが考えられている。

まず処分システムを設定し、その安全性能に影響を及ぼすと考えられるシステムの特質（feature）、そこで生じる事象（event）や過程（process）を抽出したリスト（FEP リスト）を作成し、それらの相互関係を把握した上で、地層処分システムの将来像の幅を安全評価上十分にとらえることができるようにシナリオを作成する。現在、考えられているシナリオには、「地下水によって長期間のうちに廃棄物を収めた容器が徐々に劣化し、ついには閉じ込められていた放射性核種が地下水に溶出を始め、人工バリアや岩盤を経て人間の生活環境である地表に運ばれる」という地下水シナリオ、「地殻変動や将来の人間活動により地層処分場と人間活動の場が接近する」という接近シナリオがあるが、後者は地層処分場のサイトを適切に選ぶことによって除外することができるとしている（核燃料サイクル開発機構, 1999）。

地下水シナリオの基本シナリオにおいては、発熱するガラス固化体（廃棄体）が緩衝材の最高温度が 100℃を超えないような間隔で定置される。処分場閉鎖当初は不飽和（空隙に空気が残る）であるが数年で周辺の岩盤が、また 50 年までに緩衝材が再飽和し、溶存酸素は 1000 年までの間に消費され、また 1000 年後にはオーバーパックスの強度が周囲からの応力を下回って破損するとしている。その後の核種移行については、人工バリア内のガラス溶解、核種の沈殿・溶解、拡散、収着、放射性崩壊、周辺岩盤の亀裂中の移行、断層破碎帯や帯水層を通じての移流・分散、岩石基質部へのマトリックス拡散、生物圏への移行などを含むモデル（概念モデル）が示されている。それに基づき、数学モデルと計算プログラムのコードである解析コードを作成する。解析コードは他のモデルとの比較計算等による検証、実験や観察による確証を行う。必要となるパラメータやデータは、信頼できるデータベースまたは実験等を通じて準備する。解析コードとしては、各同位体の沈殿／溶解量や地下水流れに応じた母岩中への核種移行を考慮できる機能を有する MESHNOTE コードが開発されている（核燃料サイクル開発機構, 1999）。

安全評価解析の結果は、人間への影響を評価するため、適切な安全指標を用いて示され、指針や基準と比較することにより安全性が判断される。安全指標としては、線量やリスクを用いて安全基準が設定されている国がある（核燃料サイクル開発機構, 1999）。

しかしながら、このような解析は、考慮すべき FEP、概念モデル、パラメータの設定などの前提を変えることにより結果が変動する。複数の解析ケースをわかりやすく比較するため、1つの解析ケースを選んでレファレンスケースとして設定し、他の解析ケースは、レファレンスケースのモデルやデータを変更することにより対応できるようにするという方針がとられている。レファレンスケースの解析では、ガラスの溶解速度、緩衝材中の核種の分配係数、人工バリアの幾何形状などのパラメータ、地下水水質などが設定されて解析が行われている（核燃料サイクル開発機構, 1999; 梅木・木村, 2004）。

## 2.4 地層処分における微生物影響の整理・モデル化の考え方

このような地層処分システムの安全評価において、微生物の影響はどの程度配慮する必要があるのか。以前は、地下数百m程度の深地層は生物学的には不毛の地で、微生物影響など考える必要がないという見解が主流であった。しかし、1980年代ごろから、地下数百mはもちろん数千mの深さまで微生物が存在することを示すデータが蓄積され (West & McKinley, 1984; Pedersen, 1993; 福永, 1994 参照)、微生物の分布は多様な地下環境に及ぶこともわかってきた (例えば Parkes et al., 2003)。微生物が処分場の閉じ込め性能や環境に影響を及ぼす可能性も示唆されてきた (West & McKinley, 1984; Horn & Meike, 1995; Pedersen, 2000; West et al., 2002 など)。具体的には、微生物が生成する有機物 (シデロフォアなど) が放射性核種と錯体を作り、そのため核種の緩衝材や母岩への収着の程度が変化するとか、微生物による還元反応によって溶存酸素の消費が速まり、核種の還元と沈殿が促進されるとかである。しかし、微生物影響については多くのデータが蓄積されているものの、体系的に十分な整理が為されているとは言い難い。前述(2.3)の安全評価のプロセスにそのまま乗せられる状態になっていない。我が国のレポートでは「詳細な検討は、今後の具体的な地質環境条件での研究に依存する」という表現もされている (核燃料サイクル開発機構, 1999)。

処分場の安全評価における微生物影響の扱いは、無視できるほど小さいことを示した上で除外するか、あるいはモデル化のプロセスに乗せるかどちらかと考えられる。どちらを選ぶかの判断は、時間的 (処分場開設からどのくらい経過した時点を考えるか)、空間的 (廃棄体からどれくらい離れた場を考えるか)、そして微生物影響の項目 (核種移行に影響する微生物の作用として何を考えるか) によって違ってくるが、無視できることが明確でない限り、モデル化のプロセスに乗せるべきであろう。

ここでは、各々のケースごとに既存情報を整理し、その上で 2.3 で述べた概念モデルの下敷きになるような図 (予備概念モデルと称する) の作成を目指すこととした。その過程においては、まず「微生物量 (微生物現存量) とそれに影響を及ぼす要因」をまとめ、次いで「人工バリアの構造や核種移行に及ぼす微生物影響の種類と大きさ」をまとめた。微生物量をまず評価するのは、無菌であることが確実なら微生物影響に配慮する必要がないこと、および微生物影響の大きさについて速度論的な考察をするには微生物量がベースとなることの二つの理由による。この分野の先駆者たちに属する West & McKinley (1984) も、微生物影響を、a. 深地層中に土着の (autochthonous / indigeneous) 微生物は存在するか、b. 外来性の (allochthonous) 微生物は生き残るか、c. 処分場という極限環境は微生物にどのような影響を及ぼすか、d. 微生物は人工バリアの構造・核種移行にどのような影響を及ぼすか等の視点に分けて議論してきた (a~c は前者、d は後者の視点)。

既存情報の整理は次の視点に立って行った。微生物量については、各バリアごとに最初に存在している微生物を評価し、次いでその後の微生物量に影響を及ぼす要因として、温度、放射線量、酸素、pH、地下水中の基質 (酵素の作用で変化する物質) 濃度、栄養塩濃

度、周辺からの微生物侵入などを調査した。これらは、地質などサイトの特性によるものと、処分の工程に起因するものがある。微生物影響については、TRU 廃棄物対象にまとめられている項目（核燃料サイクル開発機構・電気事業連合会, 2000; 電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, 2005）を参考に項目分けした。ここでは微生物影響が、安全性を損なう可能性のあるものと安全側に働く可能性があるものとに分けて記載されている。これらを含め、核種移行に直接的または間接的に影響を及ぼす微生物の作用として、錯体形成・消費、コロイド形成、pH の変化、酸化還元反応、核種収着／取りこみ、セメント系材質変質、金属腐食、アスファルト変質、ベントナイト変質、空隙閉塞、ガス発生、ガス消費、廃棄体の浸食、そして岩石の風化について、できるだけ定量的なデータを主体に文献を整理した。

予備概念モデルの作成では、既存情報が充分か不十分かにこだわらず、各要因の相互関係が現われる図を作成するよう努めた。これは、今後さらにデータを加え複数分野の専門家の検討を経て概念モデルへと進展する基礎となり得る。また、微生物に対応可能な解析コードがあれば、これらの要因をパラメータとして変動させて感度解析し、重要視すべき微生物影響項目や安全評価のために今後取得しなければならないデータの絞込みにつながることも可能である。図 2.4 は、モデル化プロセスの概要図（Anderson & Woessner, 1994; ヘルミック, 2004 参照）に、本章での検討内容を追記したものである。今後迎えるべきプロセスも示されている。

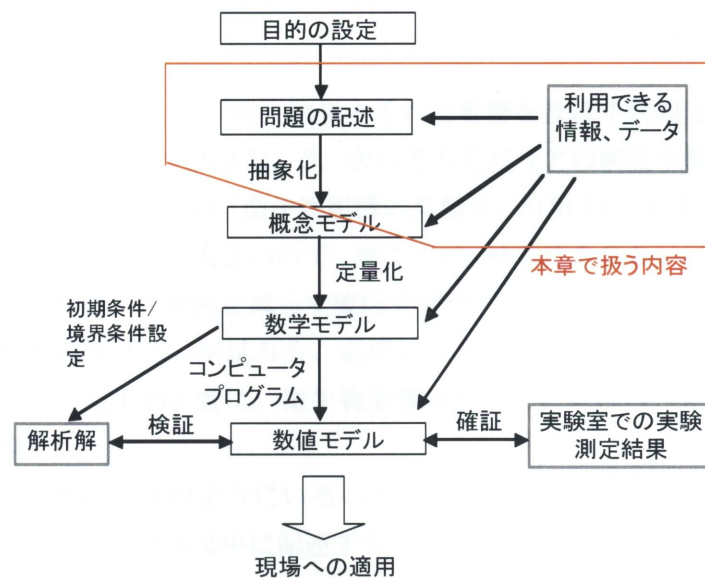
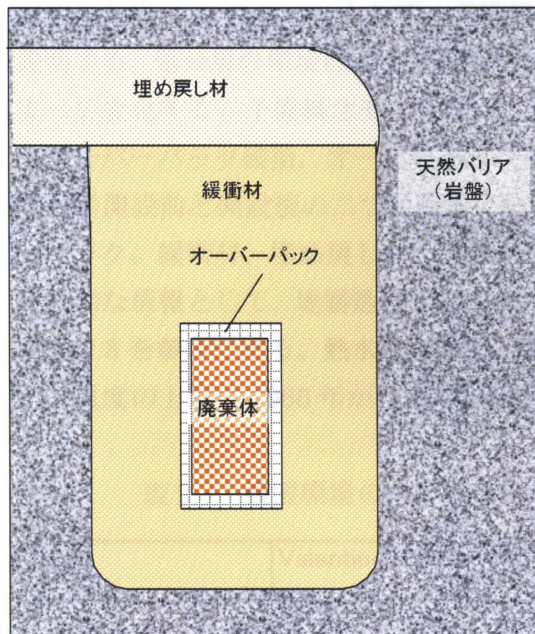


図 2.4 モデル化プロセスの一例と本章で検討する部分

以下、問題の記述と抽象化の作業を行うにあたって設けた前提を記す。

- ① 最初に高レベル廃棄物処分場を想定して整理を行い、次いでTRU廃棄物処分について、高レベルとの相違点を主体に整理する（図 2.5 参照）。

a. 高レベル廃棄物処分場構造の例



b. TRU廃棄物処分場構造の例

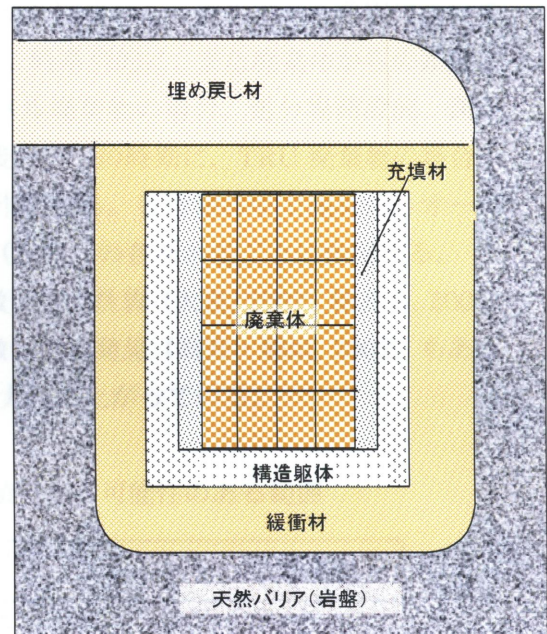


図 2.5 我が国における地層処分場の概念の例（廃棄体＝廃棄物をガラス固化などにより安定化させたもの）

- ② 高レベル、TRU ごとに、まず微生物量とそれに影響を及ぼす要因について「微生物量の見積り」の項（2.5 および 2.7）で、次いで人工バリアの構造や核種移行に及ぼす微生物影響の大きさについては「微生物影響の見積り」の項（2.6 および 2.8）で述べる。微生物量は場による差異が大きいので、場ごとに、持ち込みあるいは土着の微生物量、および微生物量を増やす要因と減らす要因を整理する。「現時点での評価」として、微生物量の予測も精度は悪いが試みる。必要に応じ、配慮すべき微生物の多様性についてコメントする。微生物影響は、微生物影響項目ごとに核種移行に促進的か抑制的かの視点で整理する。
- ③ データ取得の方法は、次のようにいろいろなレベルがあるが、どういう手段で得られたデータかをできるだけ本文中に記述する。
- ・ 材料やフィールドの調査：処分場開設前のデータ取得に有効。
  - ・ 実験室規模の試験：処分場開設後の様々な環境変化が微生物量や微生物影響項目に及ぼす影響を調べる試験を、制御された条件下で行える。
  - ・ 地下実験施設等の試験：上記の試験を、実際の処分場を模擬した大規模スケールで実施できる。
  - ・ ナチュラルアナログ：天然の廃棄物等の類似体を見出し、この類似体からの長期に

わたる複合的な物質移動のプロセスとメカニズムについての研究を行う（鹿園,1995より）。試験では取得困難な、長期経過時の状態を推測するデータが得られる。

- ④ 記述の最後に、「まとめ」として、予備概念モデル図を示し、重視すべき要因について説明する。処分場の環境は 2.3 で述べたように、時系列的に、また廃棄体からの距離によって変化する。予備概念モデル図は、高レベル廃棄物の場合、処分場開設前、開設～オーバーパック破損、オーバーパック破損後の三つの時期に、TRU 廃棄物の場合、処分場開設前と開設後の二つの時期に分けて作図する。各時期の中で廃棄体、オーバーパック、緩衝材、埋め戻し材、天然バリア（岩盤）の各々の場ごとに作図する。
- ⑤ 共通的な情報として、地層処分で配慮すべき微生物の性質（大貫, 2002; 難波ら, 2004）や表 2.3 を参考にする。熱水鉱床からの好熱微生物の発見（高井・稲垣, 2002）もあって、温度の上限は 1966 年から 2002 年の間に大幅に上がっている。

表 2.3 極限環境の中で微生物が増殖できる可能性のある範囲

要因		Valentine(1963)/Brock(1966)の見解	West(1995,2002)の見解
温度	上限	104°C(1000気圧下の硫酸塩還元細菌)	250°C(26.9MPaのBlack smokerの細菌)
	下限	-12°C(カビ、細菌)	-20°C( <i>Sporotrichum carnis</i> )
Eh	上限	+850mV(pH3での鉄細菌)	
	下限	-350~-450mV(pH8~9.5での硫酸塩還元細菌)	
pH	上限	13(?)( <i>Plectonema</i> )	12(硝化細菌)
	下限	0( <i>Acontium velatum</i> , <i>Thiobacillus thiooxidans</i> )	0( <i>Thiobacillus ferrooxidans</i> )
水圧	上限	1400気圧(深海の細菌)	180MPa( <i>Desulfovibrio desulfuricans</i> )
	下限	基本的に0	
浸透圧	上限	飽和食塩水( <i>Dunaliella</i> 属, 好塩性細菌)	50%(W/W)( <i>Halobacterium halobium</i> )
	下限	2段蒸留水(有機栄養細菌)	70ppbの溶解性塩( <i>Salmonella oranienburg</i> )
放射線	上限		5000Gy 1回( <i>Deinococcus radiodurans</i> )
	下限		
引用文献		Brock (1966)	West et al. (2002)

(Brock,1966; West et al., 2002より、まとめた。範囲とは、いずれの総説でも limit of growth の意味で書かれているが、これはこの環境に置かれた微生物がこの環境中で増殖したことを意味するのか、この環境中に培養できる微生物が存在したことを意味するのか、不明である。例えば、Wang & Francis, 2005 は、微生物が前者の意味で増殖できる温度は 120°Cとしている。)

## 2.5 高レベル廃棄物処分における微生物量の見積り

### (1) 廃棄体

#### ・微生物の持ち込みまたは土着微生物

高レベル廃棄物は、少なくとも温度 300℃以上となる原子炉あるいはガラス固化の過程を経てくるので、表 2.3 より、冷却後の持ち込みがなければ、処分場開設時には微生物は生存できないと判断される。

#### ・微生物の増殖を促進する要因

高レベル廃棄物の組成は、ガラス、使用済燃料、廃棄物からの分離物 (waste isolation material) などから成る (West et al., 2002)。その中から、あるいはガラスの劣化により、微生物の増殖を促進する物質が生成して供給される可能性は完全には否定できない。しかし、ガラスの微生物分解のためには有機物混入 (contamination) が前提という記述 (West et al., 2002) もあり、オーバーパック破損後の外部からの有機物等の拡散までは、微生物増殖促進の要因はほとんど無いと考える。

#### ・微生物を抑制または死滅に導く要因

廃棄体の温度は Yucca Mountain では最高 200℃と言われるが、一般には 50~100℃と予想されている (West et al., 2002)。日本では、ガラス固化体中心部で最大 105℃、緩衝材内側で最大 100℃以下という試算が為されている (核燃料サイクル開発機構, 1999)。温度 95℃では生存していた微生物の大部分は死ぬだろう (Stroes-Gascoyne & West, 1996) とか、94℃で微生物数は 2 桁減少するが、脂肪酸組成を見ると芽胞形成菌への生物相の移行が見られる (Horn & Meike, 1995) とか言われている。しかしながら、この温度で全ての微生物が死滅するとは考えにくい。

一方、放射能に対しては、微生物の栄養細胞は 0.3~0.4kGy の、芽胞は 3~4kGy の放射線量で 1 桁減少 (Horn & Meike, 1995) とか、放射線量 0.34~1.68kJ で一桁減少 (Stroes-Gascoyne & West, 1996) とかいわれる。また 10 年冷却した廃棄体のチタン容器表面の放射能に相当する 52Gy/h の照射で、緩衝材の容器表面の微生物数は 9 日間で 7 桁減少したという報告がある (Stroes-Gascoyne & West, 1995)。しかし、米国牛肉缶詰工場で 5kGy の  $\gamma$  線滅菌した缶詰の中で増殖してきた細菌 *Deinococcus radiodurans* の報告により放射線抵抗性細菌の存在が明らかになり、そのメカニズム (DNA 修復機能) も解明されつつある (鳴海, 2003)。West et al.(2002)は放射線抵抗性微生物のデータを、文献 (カッコ内) を引用しながら以下のようにまとめている。

- ・ 米国 Yucca Mountain や Nevada の微生物は、10kGy (1.63Gy/min) の  $\gamma$  線に耐え、照射終了後、培養できる状態に復活した (Pitonzo et al.)。
- ・ シアノバクテリアの 1 種は、15kGy の X 線では死滅しなかったが、20kGy で死滅した (Billi et al.)。
- ・ 硫酸塩還元細菌の 1 種は、1000Gy (40 分間) の照射に耐性があった (West)。
- ・ Three Mile Island では H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> の存在と 10Gy/h の照射下でも微生物が存在した (Booth)。

これに対し廃棄体表面の放射能は  $3 \times 10^3$  Sv/h ( $\gamma$ 線としての値なので  $3 \times 10^3$  Gy/h 相当) という見積りがある (図 2.2)。このレベルであれば、現在報告されている放射線抵抗性微生物も生存し得ないと予想される。しかし、放射能が 2 ~ 3 桁ほど低下する 1000 年後 (核燃料サイクル開発機構, 1999) には、廃棄体でも放射線抵抗性の微生物が生存しうることが示唆される。

#### ・現時点での評価

高レベル廃棄物の廃棄体は、約 1000 年後と予想される処分容器破損時までは、無菌と考えるのが現実的であろう。それ以降は、外から微生物が侵入し生き残ることも考えられるが、緩衝材など他のバリアの微生物量よりも高密度になる要因は考えにくい。

### (2) オーバーパック

#### ・微生物の持込みまたは土着微生物

とくにオーバーパックを殺菌しない限り、微生物は持ち込まれると考えるべきであろう。

#### ・微生物の増殖を促進する要因

ほかに阻害要因がなければ、オーバーパック等の腐食により発生する水素を電子供与体とし、持ち込まれた酸素や周囲から拡散する電子受容体および栄養塩を利用して、オーバーパック表面で微生物が繁殖する可能性はある。圧縮成型された緩衝材中でも、他の構造物との境界面には細菌数が多かったという報告もある (Stroes-Gascoyne et al., 2002)。

#### ・微生物を抑制または死滅に導く要因

廃棄体の温度および放射能は微生物にとって厳しい条件だが、日本で計画されている 190mm 厚の炭素鋼オーバーパックの外側の放射線は 0.1Sv/h 程度という報告もあり (核燃料サイクル開発機構, 1999)、これなら放射線抵抗性の微生物は生存しうる。温度も 100℃ 以下であれば、好熱性微生物は生存しうる (表 2.3)。一方、廃棄体と反対側にあたる緩衝材側からは、後述(3)で述べるように乾燥という微生物抑制要因が働く。

次に例えば 1000 年後にオーバーパックが破損した場合を考えると、廃棄体の放射能が  $10^{13}$ Bq 程度 (核燃料サイクル開発機構, 1999)、それに対応する放射線量が最大 1Sv/h (図 2.2) とすれば、前述(1)より放射線抵抗性微生物以外の微生物にはダメージとなる可能性が強い。

#### ・現時点での評価

オーバーパック内面については、廃棄体の項で述べたように、放射線によって無菌に近い状態となろう。外面については乾燥などにより廃棄物容器を囲む緩衝材に数十 cm の微生物活性が無いまたは抑制された領域を作りうるという見解が出されている (後述(3)参照)。

### (3) 緩衝材

#### ・微生物の持込みまたは土着微生物

緩衝材は粘土/ベントナイトを主成分とし、砂が混入される場合とされない場合がある。



緩衝材に用いる粘土／ベントナイトは微生物繁殖に適した環境ではないが (Musslewhite et al., West et al., 2002)、乾燥重量あたり  $1.1 \times 10^2 \sim 3.5 \times 10^4$ /g DW の生菌数が確認されている (Haveman et al., 1995)。乾燥密度を  $1.5 \sim 2.0$  g/cm<sup>3</sup> 程度に圧縮成型したときの生菌数は  $10^2 \sim 10^4$ /cm<sup>3</sup> のオーダーであろう。微生物は緩衝材製造の過程で減少するが、無菌とはならない (Fukunaga et al., 1993)。

なお、ベントナイト中の全菌数の測定は粘土粒子によって妨害される (Haveman et al., 1995) が、CFDA-AM (Carboxyfluorescein diacetate acetoxymethyl ester) で染色すれば計数可能であった。ベントナイト鉱床の 1 m の深さのサンプルにこの方法を適用した結果は、乾燥重量あたり  $10^6$ /g DW (容積あたり  $10^6$ /cm<sup>3</sup>) のオーダーかそれ以下であった (Fukunaga et al., 2005)。全菌数、生菌数の意味については、後述(5) 天然バリア (岩盤) を参照いただきたい。

#### ・微生物の増殖を促進する要因

処分場開設時に持ち込まれる酸素は微生物の増殖を促進する要素である。一方、後述の理由により微生物は廃棄体の近くで一旦減少すると予想されるが、その後、緩衝材の亀裂、変形が起きたり、Ca 型化が起きると微生物の侵入が可能となる状況が考えられる (核燃料サイクル開発機構・電気事業連合会, 2000; West et al., 2002)。一方、ベントナイトからは有機物が溶出し、微生物の増殖が促進されるという実験結果が得られている (福永, 1992; Fukunaga et al., 1993)。有機物溶出が廃棄体からの熱や放射線により促進しうることも確認された (Stroes-Gascoyne et al., 1997a)。これらベントナイト由来の有機物は電子供与体として働いていると思われる。オーバーパックスの腐食による水素の供給、岩盤からの電子受容体、電子供与体や栄養塩の供給も、微生物増殖促進に働く。またベントナイトが毒性物質から微生物細胞を保護する作用も示唆されている (Ueshima et al., 2000)。

#### ・微生物を抑制または死滅に導く要因

ベントナイトを主成分とする緩衝材は圧縮成型される。その結果として、乾燥およびフィルトレーションという微生物に抑制的な作用が働く。カナダ AECL の地下実験施設 URL (表 2.9) では、圧縮成型されたベントナイト 50% の緩衝材の中央に模擬廃棄体としてのヒータを設置して緩衝材中の微生物挙動を調べる BCE(Buffer/Container Experiment) を実施した。ヒータから離れた含水率 (moisture content) 20% のサンプルでは生菌数が検出されたものの、ヒータ近くの含水率 13% のサンプルでは不検出だった。砕石 75% - 粘土 25% の埋め戻し材では含水率 6.7% でも生菌数が検出されたので、この微生物抑制現象は圧縮ベントナイトの水分活性 ( $a_w$ =water activity) の低さによると判断された (Stroes-Gascoyne et al., 1996, Stroes-Gascoyne et al., 1997b)。青木ら (2003) も日本の釜石鉱山でカナダ URL と同様の試験を行い、含水比 12% 以下では培養法による微生物が検出されないという、カナダと同様の結果を得ている。含水率 15% が微生物生存のボーダーラインとするとこれは  $a_w=0.96$  に相当する (Stroes-Gascoyne et al., 1997b)。しかしながらボーダーラインは  $a_w=0.9$  という記述 (Horn & Meike, 1995) もあり、また、表 2.4 に示すように、食品中

などには更に乾燥に強い微生物もいる。

表 2.4 含水率の異なる Na 型ベントナイト(MX-80)と色々な材料の水分活性(純水に対する水蒸気圧の比)、およびそこで繁殖する微生物

水分活性 (water activity)	材料	この水分活性で増殖する微生物の例
1.000	純水	<i>Caulobacter</i> 属, <i>Spirillum</i> 属
0.995	人の血液	<i>Streptococcus</i> 属, <i>Escherichia</i> 属
0.990	地下水(500m)	<i>Bacillus</i> 属, 硫酸塩還元細菌, <i>Pseudomonas</i> 属
0.980	海水	
0.960	MX-80、水25%	<i>Pseudomonas</i> 属, 硫酸塩還元細菌, <i>Vibrio</i> 属
0.950	パン	大部分のグラム陽性かん菌
0.920	MX-80、水20%	
0.900	メープルシロップ、ハム	グラム陽性球菌
0.850	サラミ	<i>Saccharomyces rouxii</i> (酵母)
0.800	フルーツケーキ、ジャム	<i>Saccharomyces bilii</i> , <i>Penicillium</i> 属 (カビ)
0.780	MX-80、水15%	
0.750	Salt lake, Salt fish	<i>Halobacterium</i> 属, <i>Halococcus</i> 属
0.700	Cereal, Dried fish	<i>Xerophilic fungi</i> (カビ)

(Stroes-Gascoyne et al., 1996 を一部改変)

Pedersen et al.(2000a)は、地層処分場環境に適応できそうな、いろいろな微生物を圧縮ベントナイト(100%)中に接種した。その結果、15 カ月では芽胞形成菌のみ生き残った。圧縮ベントナイト(100%)中に接種された硫酸塩還元細菌は、乾燥密度 1.5g/cm<sup>3</sup>以下でのみ生存した(Pedersen et al., 2000b)。乾燥などにより廃棄物容器を囲む緩衝材に数十 cm の微生物活性が無いまたは抑制された領域を作りうる(Stroes-Gascoyne & West, 1997)という見解が出されている。しかしながら、処分場開設時に入った酸素が残っている時期に、乾燥に強いカビなどが繁殖できる条件まで aw が上昇すれば、このシナリオどおりにならない可能性もある。

次に、緩衝材のフィルトレーションについては、ベントナイトの孔径(porosity)が細菌の大きさより小さいこと(Stroes-Gascoyne et al., 1999)から、外部からの微生物侵入防止効果が期待されている。ある種の微生物を用いた圧縮緩衝材中の移行試験では、ベントナイト含有率が 50%であれば 3~20 週間で 5mm 以上の顕著な移行は無い(Stroes-Gascoyne et al., 1999, Fukunaga et al., 2001)、またベントナイト含有率を 70%以上とすれば 3 週間で全く移行が認められない(Fukunaga et al., 2001)という結果が得られた。ただし、前述のように長期的には亀裂形成などの可能性もあり、このフィルトレーション効果がどれだけ持続するかは直接的証明が難しい。

オーバーパック破損時の放射線の影響は、オーバーパックの項を参照いただきたい。

#### ・影響不明の要因

ベントナイトの pH は微生物に影響を与えることは考えられる(長沼ら, 1999 参照)が、促進的か抑制的かを判断することはできない。

#### ・現時点での評価

ベントナイトを主成分とする緩衝材中の微生物量は、処分場開設後しばらくは、乾燥やフィルトレーション効果によって低いレベルに抑えられることが示唆されている。模擬廃棄体近辺では生菌数不検出というデータもある。しかし無菌とまで言い切っている論文は見当たらない。このような微生物抑制要因は徐々に作用が弱まってくるので、やがて緩衝材の微生物量は増加に転ずると予想されるが、長期的にどの程度のレベルになるかの予測は難しい。その点、下記論文が参考になるだろう。

Stroes-Gascoyne et al.(2002)は、カナダ AECL の URL において、BCE(Buffer/Container Experiment)とは別に 2.4m<sup>3</sup>の粘土主体の緩衝材 (moisture 18%) を花崗岩中に埋める ITT (Isothermal Test) を実施した。6.5 年ののち、緩衝材サンプルの微生物量やガスを測定した。緩衝材中の好気性菌 10<sup>4</sup>/g DW (乾燥重量)、嫌気性菌 10<sup>2</sup>/g DW、緩衝材中よりもコンクリート等との境界面の方が 1 桁菌数が多いこと、PLFA (リン脂質の脂肪酸組成) から推定した菌数は 10<sup>7</sup>/g DW であったこと (培養できない菌が多いのではないか)、酸素消費や硫酸還元活性は低く、底部でのメタンや水素濃度は僅かに上昇しただけであったこと等の結果を得た。

Fukunaga et al.(2005)は、日本のベントナイト鉱床において、2~30 年の間攪乱されていない湿った場所で、深さ方向の細菌の分布を調べた。その結果、コンタミネーションの恐れなくコア採取できた 3 地点における 1m の深さのコアでは、好気性菌、嫌気性菌とも 10<sup>2</sup>/g DW 以下、CFDA-AM 染色菌数は 10<sup>6</sup>/g DW 以下となった。孔口には概略、10<sup>5</sup>/g DW 以上の好気性菌、10<sup>4</sup>/g DW 以上の嫌気性菌、10<sup>7</sup>/g DW 以上の CFDA-AM 染色菌数が測定されていたので、ベントナイト層が微生物に対し抑制的であることがわかる。その原因は、ベントナイトの乾燥密度の高さか、あるいはフィルトレーション効果だと考察した (詳細は第 3 章に記載する)。

#### (4) 埋め戻し材

##### ・微生物の持込みまたは土着微生物

埋め戻し材は緩衝材に較べると粘土より砂の比率が大きいため微生物活性はより高くなる条件を備えている (Musslewhite et al., 2003 参照)。微生物相も多様という (Pedersen, 2000)。人、建設資材、換気システムを通しての持ち込み (Horn & Meike, 1995) とともに、埋め戻し材は、処分場に持ち込まれる微生物の持込みルートとして重要であろう。

##### ・微生物の増殖を促進する要因

緩衝材と同じような状況が考えられる。また、使用済燃料を花崗岩中に処分する際、掘削した岩を埋め戻し材として使用すると、埋め戻し材とともに大量の栄養塩が持ち込まれるだろうという予測 (West et al., 2002) もある。

##### ・微生物を抑制または死滅に導く要因

乾燥・フィルトレーション効果は緩衝材ほどは強くないだろう。

・現時点での評価

情報が少ないため、評価を差し控える。

(5) 天然バリア (岩盤)

・微生物の持込みまたは土着微生物

岩盤には土着の微生物が存在する。その量や微生物相は、処分場開設に伴う環境変化によって一旦変化しても長期的に環境がもとに戻ってくれば、再現される可能性もある。それを考えると、サイトごとの岩盤の微生物の現状把握は大変重要となる。

岩盤の微生物量測定においては当初、掘削に伴う地上からの微生物混入（コンタミネーション）と試料を地上に引き上げる過程で微生物が受ける環境変化等のテクニカルな問題が懸念されていたが、掘削水へのトレーサー添加とそのサンプル中の濃度測定などの対応が為され（例えば、McKinley et al., 1997）、データの信頼度も上がってきた。以下、微生物量の測定結果をレビューするが、測定法（アクリジンオレンジ、DAPI などの蛍光色素で微生物細胞を染色し顕微鏡下で計数する全菌数、寒天培地や液体培地での菌の増殖から判断する生菌数など）の詳細は各論文で異なり、結果が一律に評価は出来ない点に配慮が必要である（なお前述(3)緩衝材の項も同様の前提で記述した）。

Pedersen (1997) はコンタミネーションの無いことを確認しつつ、岩盤内の地下水の微生物調査を実施している。スウェーデンとフィンランドで実施された多くの掘削井の微生物調査によれば、全菌数は  $1 \times 10^3 \sim 5 \times 10^6/\text{mL}$  の範囲のデータが得られ、各サイト内の平均値は  $10^5/\text{mL}$  のオーダーであった。生菌数/全菌数の比は、0.1%以下～10%、平均 1.7% であった (Pedersen, 2000)。日本の釜石鉱山の掘削井等では、表 2.5 に示すとおり、全菌数は  $2 \times 10^4 \sim 2 \times 10^5/\text{mL}$ 、生菌数/全菌数の比は 0.02%～3.5% であった。また 1 つの掘削井(KH-1)の 2 箇所の深度の地下水を各々フィルタ上に濃縮し、核酸抽出、PCR (Polymerase chain reaction) による増幅、DGGE (Denaturing gradient gel electrophoresis) を経て得た 13 種類の 16SrRNA 遺伝子断片の塩基配列は、その半分がある種の硫酸塩還元細菌 (*Desulfotomaculum* 属) と相同性が高いことがわかった (Ishii, Fukunaga et al., 2000)。

表 2.5 釜石鉱山の掘削井等から採取した地下水の水質と細菌数

試料採取地点	温度 (°C)	pH	電気伝導度 (mS/cm)	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (mg/L)	TOC (mg/L)	全菌数 (No./mL)	好気性従属栄養細菌	嫌気性従属栄養細菌
KH-1-5		10.23		9.6	0.7	$1.2 \times 10^5$	$4.6 \times 10^3$	<10
KH-1-2	14.2	10.22		14.6	1.5	$1.5 \times 10^5$	$3.6 \times 10^2$	<10
W-20	12.6	8.54	65.8	6.6	0.9	$4.6 \times 10^4$	$1.0 \times 10^1$	<10
TK-14	11.2	8.99	51.6	5.9	0.8	$1.7 \times 10^4$	<10	<10
TK-24	15.1	9.68	99	17.5	1.2	$4.3 \times 10^4$	$1.0 \times 10^1$	<10

\*: 現地に設置されたメーターの読み値

(Ishii, Fukunaga et al., 2000 より)

亀裂内面の付着微生物量は直接的な測定が困難であるが、地下環境に設置した固体（岩石または人工的な物質）表面の微生物測定では、全菌数として $(0.1\sim 7)\times 10^6/\text{cm}^2$  (Pedersen, 2000)、 $\text{max. } 5\times 10^5/\text{cm}^2$  (Stroes-Gascoyne et al., 2000) という報告がある。全菌数、生菌数のほか、 $^{14}\text{C}$  取り込み速度による活性測定、遺伝子解析、単離同定なども行われている。Pedersen(2000)は、活性測定結果から、幅 0.1mm と仮定した亀裂中では付着性微生物の活性は浮遊性微生物の活性より 5 桁大きいと推定した。加藤ら(未発表)は、帯水層コアにて付着性微生物の菌数は浮遊性微生物の菌数より 2 桁大きいという結果を得た。

岩盤の微生物を直接測定した例として、米国 Yucca Mountain の凝灰岩の微生物が、乾燥重量あたりの全菌数で  $7\times 10^5\sim 5\times 10^7/\text{g DW}$ 、生菌数では  $3\times 10^1\sim 4\times 10^4/\text{g DW}$  という報告 (Haldeman et al., 1993)、また全菌数  $3\times 10^4\sim 2\times 10^5/\text{g DW}$ 、生菌数  $1\times 10^1\sim 3\times 10^3/\text{g DW}$  (Kieft et al., 1997) という報告がある。しかし Lehman et al. (2004) は、米国アイダホ州の玄武岩で微生物不検出（コア、地下水とも）と報告した。Horn et al. (2004) はやはり Yucca Mountain でリン脂質の脂肪酸分析から微生物量を乾燥重量あたり  $10^4\sim 10^5/\text{g DW}$  と報告した。結晶質岩と堆積岩の違いかもしれないが、データがばらついている。

岩石マトリックス、亀裂の中の地下水中、亀裂内面の付着物の間の微生物量の比較は核種移行評価の上で重要となってくるが、亀裂に当たるコアが取れるかどうかという制限や方法の困難さからか、まだまだデータが少ない。

一方、水域の底泥では多くの微生物が検出されている。例えば米国 South Carolina の底泥の帯水層では 200m あまりの深いところまで、多様な微生物が存在し (Balkwill et al., 1989)、 $1\times 10^6\sim 5\times 10^8/\text{g DW}$ 、生菌数  $1\times 10^3\sim 4\times 10^7/\text{g DW}$  (Hazen et al., 1991) であった。湖底泥由来の地層ではメタン生成古細菌、硫酸塩還元細菌、および鉄還元細菌が検出された (McKinley et al., 1997)。一方、粘土層の底泥では深くなるにつれて（古い時代になるにつれ）細菌が大幅に減少している (Rothfuss et al., 1997)。底泥は、処分場を囲む岩盤とは状態が違うかもしれないが、廃棄物から有機物が供給されたケースに近い環境かもしれない、そのデータは捨てがたい。

処分場開設前の岩盤中の微生物量に影響する要因としては、温度、岩石の種類、亀裂の状態、地下水条件、とくに栄養塩、電子受容体、電子供与体の供給などが考えられる。Pedersen(2000)はスウェーデン、フィンランドで調査した地下水水質 (pH 7.0~10.2, Eh -334~+205mV, TOC 75~1050  $\mu\text{M}$  など) やガス組成 (水素 0.005~78 mL/L, メタン 2~10,500 mL/L, 二酸化炭素 0.5~670 mL/L) などのパラメータと全菌数との相関を論じ、TOC (全有機炭素) と全菌数の相関以外には明確な相関性は確認されていないと報告した。とすると地下水中の有機物濃度が微生物量を決めるのかという議論が出る。しかし昨今、水素を利用した生物圏 (hydrogen-driven biosphere) の重要性が指摘されている (Pedersen, 2000)。非生物的水素発生の条件検討や発生量の報告も為されている (Stevens & McKinley, 2000)。地下深部から供給される水素ガスと二酸化炭素とで微生物が増殖し TOC

を増やす可能性を考えると、TOCは微生物増殖の原因か結果か解らない。

では現場ではどのような微生物がどのような活性を有し、活性や増殖を制限している要因は何か。現場の水質データ解析のほかには、同位体解析からメタンの成因などを調べる方法（水谷義彦, 1995）、分析生物学的手法による微生物の系統解析（Pedersen, 1997）から現場で優占している代謝を推定する方法がある。Kieft et al. (1997), Horn et al.(2004)やMurakami et al.(2003)は、現場から採取したサンプルを実験室で培養することによって、増殖制限因子を解明しようとしている。Kieft et al. (1997)は、岩盤中の微生物が水分またはCの添加により、Horn et al.(2004)は、CまたはPの添加により対照より大幅に増殖することから、これらが現場で微生物の増殖を制限しているとした。Murakami et al.(2003)は日本の東濃において地層中の lignite（褐炭）を破碎して添加することにより微生物が急速に増殖することを示した。一方、Stroes-Gascoyne et al. (2000), Kato et al.(2003)らは、微生物が増殖できるチャンバーを現場に沈める方法を行っている。Kato et al.(2003)は、海洋ではあるが、現場で増殖する微生物と増殖しない微生物をこの方法で識別した。

岩盤の微生物で注目すべきことは、これだけ貧栄養の環境であるのに、水が保持されていれば微生物はほとんどの試料で検出されることである（West et al., 2002）。多くのデータが蓄積しているスウェーデンでも掘削井の全菌数は最低  $10^3/\text{mL}$  でそれ以下というデータは無い（Pedersen, 2000）。石井（未発表）は帯水層の微生物を、有機物も栄養も供給されない条件に置いて容易に死滅しないことを確かめている。発酵工学や排水処理分野で用いる微生物の死滅係数で試算すれば、岩盤の微生物はすぐ絶滅してもよいはずなのに、なぜゼロにならないのか。この理由としては、微生物の大部分が不活性で貧栄養に耐えているという説明と、岩盤でも基質が供給されているという説明とがある（Parkes, 2003）。後者の説明としては、岩盤の微生物は、深部から供給される水素を利用しているという説（Pedersen, 1999; Morita, 2000）、熱により生成する酢酸が関わっているという説（Parkes, 2003）、酸化的雰囲気では黄鉄鉱（pyrite）をエネルギー源として微生物が有機炭素を作る（Pedersen & Karlsson, 1995）という説がある。

このように知見は蓄積されつつあるので、サイトが与えられれば調査を実施し、以上のデータと比較評価することができる。調査の際は、微生物量のみならず、環境条件や微生物の分布、群集構成、集塊化したバイオフィームとして岩石に付着して動かない微生物と浮遊性で地下水流に乗って動く微生物との比なども重要となる。主要な微生物の代謝様式や水化学から現場での微生物反応が推定できるし、付着／浮遊微生物の比は放射性核種の移行に関わってくる。

#### ・微生物の増殖を促進する要因

地層処分場の開設によって微生物の増殖が促進される要因としては、有機物および酸素の持ち込みが考えられる。有機物は前述(3)(4)のようにベントナイトや埋め戻し材から供給される。また深地層はもともと Eh が低いことが多いが、酸素が供給されればより収率（Yield）の大きい好気性微生物（処分場開設時に持ち込まれる）が繁殖し、微生物量が増

えることが考えられる。しかし人工バリア由来の有機物と酸素は、処分場が閉鎖されれば供給が止まると考えられるので、この増殖の期間には限りがある。

一方、廃棄体の熱による温度上昇が、水とともに栄養塩を移動させたり (Horn & Meike, 1995)、好熱性微生物の増殖を招く可能性がある。日本では、人工バリアの最外層にあたる緩衝材外側の温度が、処分場開設数十年後に最大 80℃、1000 年後に 50~60℃という試算がある (核燃料サイクル開発機構, 1999)。その前提に立つと、処分場に接する岩盤では、好熱性微生物の増殖が促進される可能性がある。

#### ・微生物を抑制または死滅に導く要因

地層処分場の開設によって、熱による乾燥や放射能が、天然バリア (ニアフィールド母岩) の微生物の一部を抑制または死滅に導くことは充分考えられる。しかし、その条件に適応できる微生物は生存するであろう。

#### ・影響不明の要因

処分場開設による、例えば熱による岩石の変質 (鹿園, 1995) が微生物に及ぼす影響についての情報は、現在のところ得られていない。人工バリアの pH 等の水化学の影響も不明である。

#### ・現時点での評価

岩盤における微生物量は、処分場の閉じ込め性能評価の上で重要な部分を占める。現時点の情報から、仮に次のような推定をした。

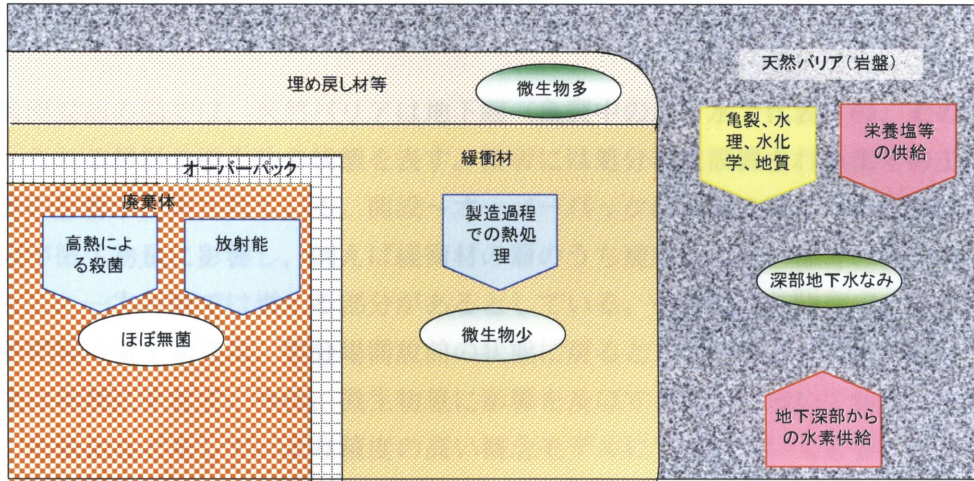
- ・ 処分場開設前の岩盤では、大部分のサイトで微生物が存在する。
- ・ 処分場開設直後には、微生物量を増加させる要因の方が大きいように考えられる。
- ・ 長期的な微生物量の上限は、岩盤中の C 量や栄養塩量によって決まるという考え方があり (McKinley & Grogan, 1991)、実際にそれより超えることは考えにくい。
- ・ 長期的な微生物量が現在 (処分場開設前) の岩盤の微生物量と大幅に違うことを示唆する要因は見出されない。

これらの推測 (とくに 2, 3 番目) を裏付けるには、試験やナチュラルアナログの調査等が考えられる。Crozier et al. (1999) は、10 億年前に臨界に達した天然の原子炉と言われる Oklo (ガボン) で微生物の系統解析を実施し、その多様性を示した。また Oklo の掘削井の微生物量が他の深地層掘削井の微生物量と同じレベル  $10^4 \sim 10^6$ /mL であったこと (Pedersen & Karlsson, 1995) は、4 番目の推測を裏付ける。とすれば、現在の岩盤の微生物の調査が長期予測のためにも有用といえる。

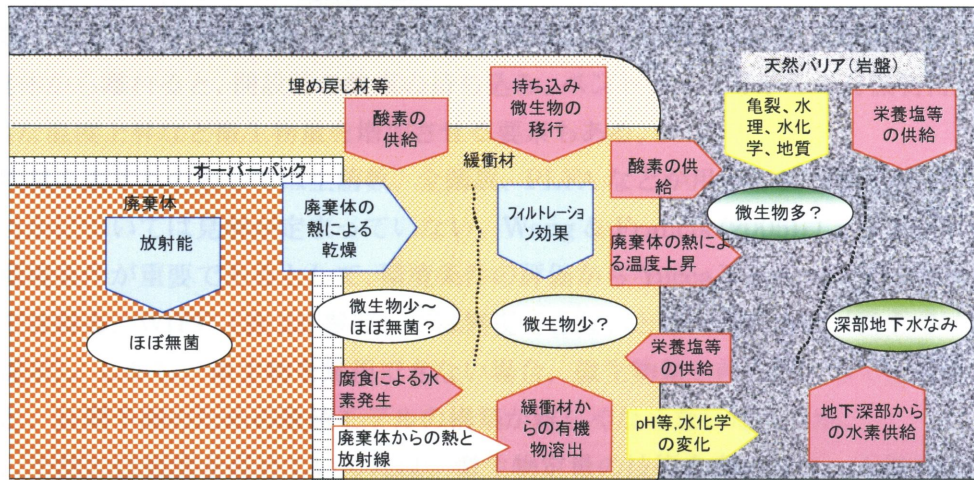
#### (6) まとめ

以上のレビューから微生物量の見積もりに関する予備概念モデルを作成し、図 2.6 に示した。微生物量と、それに影響を及ぼす要因 (実質的に影響が小さいと判断される要素は図から除外) とを図示してある。天然バリア (岩盤) の微生物量は、亀裂内の量として表した。根拠が十分でない微生物量には ? マークを付した。

a. 処分場開設前



b. 開設～オーバーバック破損前



c. オーバーバック破損後

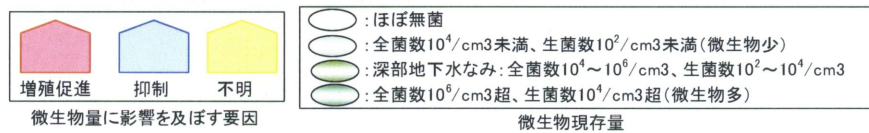
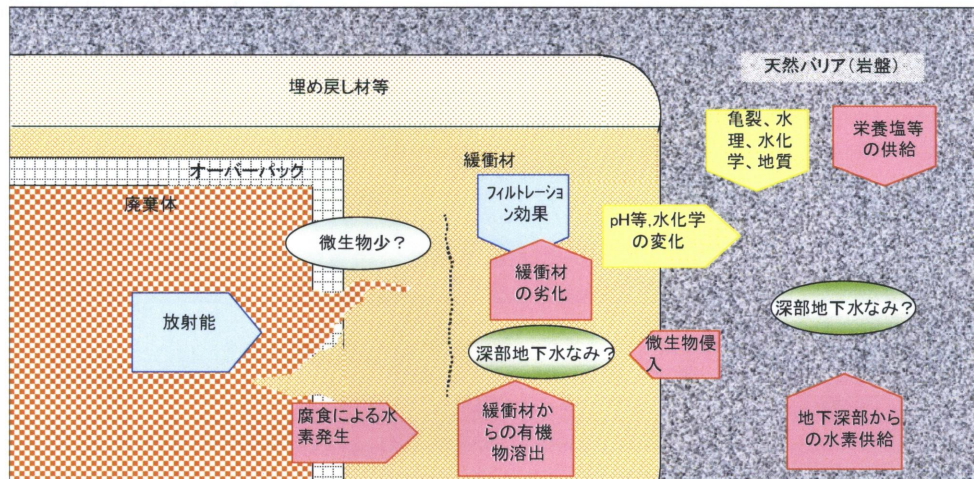


図 2.6 高レベル廃棄物処分における微生物量見積りに関わる予備概念モデル



処分場開設前の図では、天然バリアは地下圏（亀裂中の地下水で代表）の、その他は処分に用いられる材料の微生物の状態を表す。後者には処分場に設置されるまでの工程による殺菌等の影響が反映されている。開設～オーバーパック破損前の図では、処分に伴い生じる要因が微生物量に影響し、例えば緩衝材の層のうち廃棄体に近い部分は微生物現存量が減るとし、一方岩盤では増える部分があるとしている。それに続く時代であるオーバーパック破損後の微生物量は、処分場開設前の状態に戻るとしている。いずれも図示された微生物量は推測にすぎず、今後、微生物量に影響を及ぼす各要因について情報の充実、感度解析、定量化などをして、より精度の高い概念モデルにつなげていく必要があるが、敢えて結論的なことを言うとするれば、次の予測が可能であろう。

- ・ 処分場開設後しばらくは、廃棄体近傍は、放射線や熱による乾燥により、微生物量が少なく、ベントナイトのフィルトレーション効果により外部からの侵入も抑制される。
- ・ 廃棄体から離れると、開設時の酸素の持ち込み、ベントナイト等からの有機物持ち込み、適度な温度上昇など微生物量を増加させる要素もある。

微生物量を表すものとしては生菌数、全菌数、PLFAなどが用いられてきたが、何で表すのが適当かについては見解が定まっていない。Wang & Francis (2005)は、微生物活性を制限する環境条件が重要であるとして、環境条件の評価から Yucca Mountain では微生物影響を無視でき得る、WIPP（表 2.9 参照）では無視できないとコメントした（後者では実験データも提示）。しかし、微生物を無視できない場合、微生物量を何らかの形で定量化していないと、長期予測のための数値モデルの構築が難しくならないだろうか。

今後、予測の信頼度を高めていくには、微生物定量の技術を高めつつ、天然バリアについては現在の岩盤の微生物挙動の把握、人工バリアについてはナチュラルアナログの調査などを深めていくべきと考える。

## 2.6 高レベル廃棄物処分における微生物影響の見積り

微生物影響（微生物が処分場の閉じ込め性能に及ぼす影響）は、結局のところ放射性核種の移行に及ぼす影響であるが、そこに至る過程は多岐にわたる。前述(2.4)の微生物影響項目のうち TRU 特有の項目は除き、以下に文献情報を整理した。

### (1) 錯体形成・消費

深地層の地下水中にはフミン酸、フルボ酸など金属と錯体を作る有機物が存在する。放射性核種とも錯体を形成して（例えば、Nagao et al., 1998; Tochiyama et al., 2000）、放射性核種が固体表面に収着する量を低下させる可能性が考えられる。一方、炭酸など他の配位子との競合を考慮すると、溶存化学種の変化は大きくないという報告もある（核燃料サイクル開発機構, 1999）。

微生物による有機物分解産物や生合成生成物の中には、金属と錯体を作るものがある。代表的なものに、微生物が分泌し  $Fe^{3+}$  を細胞に取り込む機能を有するシデロフォア（Takahashi & Igarashi, 2000; 大貫, 2002; Aiken et al., 2003）があるが、その他報告例を表 2.6 に示す（Horn & Meike, 1995）。West et al. (2002) は、isosaccharinic acid やフルボ酸、フミン酸など、より高分子の物質の生成も重要視している。このような金属との錯体形成はキレート形成とも言われた（核燃料サイクル開発機構・電気事業連合会, 2000）が、これはシュウ酸などキレート環を持つ錯体の形成の総称である。

表 2.6 微生物の生成物による錯体形成の例

微生物由来の生成物	作用
トリカルボン酸	マンガンの錯体形成
クエン酸	プルトニウムの錯体形成
カテコール	ゲルマニウムの細胞取り込みに随伴するアクチニド核種
シュウ酸、サリチル酸、酢酸、乳酸、ピルビン酸の塩、ポリペプチ	ウランの可溶化
浸出水中の未同定の低分子陰イオン	テクネチウム、コバルト、ウランの可溶化
モリブデン欠乏培地で <i>Bacillus thuringiensis</i> により生成された未同定の低分子陰イオン	モリブデンの錯体形成
アルカリ性の塩湖中の未同定の有機配位子	通常不溶性のトリウム、プロトアクチニウム、ウラン、プルトニウムのイオンの高濃度溶解の維持
シデロフォア	ガリウム、クロム、アルミニウム、スカンジウム、インディウム、プルトニウムと結合
<i>Metallothioneins</i>	カドミウム、銅、亜鉛、水銀、鉛、ストロンチウム、インディウム、セリウム、パラジウムと結合
多糖類、膜および細胞壁	金属の非特異的吸着部位

(Horn & Meike, 1995 より一部改変)

一方、微生物は錯体形成をする有機物を消費する作用も持つ（例えば、Jacquot et al., 1997）。これは核種閉じ込めの点からみて安全側に働く作用となる。地下水中の錯体濃度は微生物によって増加するのか減少するのか、錯体と核種との関係はどうかなど、研究途上の課題が残っている。

## (2) コロイド形成

後述の吸着・核種取り込みでも述べられるように、バイオフィルムの微生物細胞表層の多糖類などは金属と結合する。それが剥がれて間隙水中を移動すると、核種移行を促進することになる（Horn & Meike, 1995）。これらの剥離した微生物は radiocolloid と呼ばれ地下水の流れに乗って移動するが、イオンより大きいので岩石基質部の隙間に拡散しにくい。ため、拡散による移行遅れが利かず、溶解性核種より動きやすくなる（West et al., 2002）。

カナダ AECL では地下水中のコロイドの調査を行っている（Vilks & Bachinski, 1997）。0.01~0.45mm の自然のコロイドは 1mg/L とのことであるが、そのどの程度が微生物由来かがわかると、貴重な情報となろう。

## (3) pH の変化

一般に微生物による還元性物質の酸化は pH を低下させる（Horn & Meike, 1995）。しかし酸素以外の電子受容体による酸化還元反応においては、pH を上昇させることが多い（後述(4)酸化還元反応の項参照）。微生物代謝による pH の変化は確かにあるが、鉱物との相互作用とか、他から拡散してきた硫化水素の酸化による硫酸生成とかがあり、各々の場での微生物反応のみを取り出して評価するのは難しい。

## (4) 酸化還元反応

微生物による酸化還元反応は多様であり、各種の有機物や水素、硫化水素などの電子供与体と、酸素、硝酸塩などの電子受容体との組み合わせはおそらく無限に近い。さらに共生の関係（鎌形,1992）、AOM（Anaerobic Oxidation of Methane）（Hinrichs et al., 1999 Treude & Boetius,2003）や ANAMMOX（Anaerobic Ammonium Oxidation）（Strous, 2000）など近年発見された重要な反応もある。また実際にそれで微生物がエネルギーを獲得しているかどうかは別として、ウランの還元（ $U^{6+} \rightarrow U^{4+}$ ）（Suzuki et al., 2003）、プルトニウムの還元（大貫, 2002）、クロムの還元（ $Cr^{6+} \rightarrow Cr^{3+}$ ）、金・銀の還元（Horn & Meike, 1995）、セレンや砒素の還元（Yamamura et al., 2003）も微生物によって進行するといわれる。

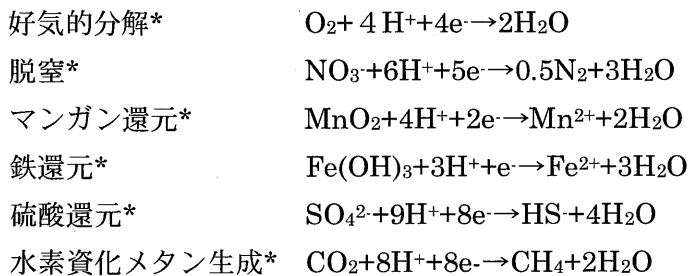
このような酸化還元反応を解析コードに乗せるため、真実を脱落させない範囲でいかに単純化するか、いくつかのアプローチがあった。処分場に持ち込まれる微生物の最大活性を予測しようとした McKinley & Grogan (1991)は、28 種類の代謝反応をリストアップしている。低レベル廃棄物からのガス発生モデル化を試みた。Agg (1993)は、加水分解 + 8 種類の反応で整理しようとした。これに対し、帯水層への有機物やウランの流入を想定し

て微生物挙動の解析を行った Humphreys et al. (1995)や Wang & Papenguth (2001)は、電子受容体の種類で微生物反応を分類した。前者が酢酸生成 (Acetogenesis) と酢酸からのメタン生成と水素からのメタン生成を分けているのに対し、後者はこれらすべてを CO<sub>2</sub> からのメタン生成に包括している (酢酸生成の生成物はやがてメタンに変換されるとか、酢酸が CO<sub>2</sub> と水素に分解し CO<sub>2</sub> の半分が水素全量と反応するというような設定と推測する) ように見えるなどの差異があるが、基本的には同じ整理方法である。以下、Wang & Papenguth (2001)による整理を示す

<有機物酸化>



<一次的還元>



(\* : 著者注。硫酸還元は、英語では硫酸塩還元であるが、慣用的に硫酸還元とする。)

実際の処分場環境ではそこに含有あるいは供給される電子供与体である有機物に対して、微生物による有機物酸化と一次的還元が一体となって起こり、その際、一次的還元の対象となる電子受容体の存在状況によって、一次的還元で挙げた6種類の反応のうち特定の反応が (原則として上段が優先して) 起きると考えられる。高レベル廃棄物の処分場では、電子受容体としては、処分場開設直後に持ち込まれる酸素、それにより生成されるものも含む鉄 (III)、地下水中に含まれることの多い硫酸イオンが重要なように思われる。花崗岩の掘削井における微生物調査では、鉄還元細菌と硫酸塩還元細菌の重要性が示唆された (Chappele & Lovley, 1992; Pedersen & Karlsson, 1995)。

酸素を電子受容体とする酸化還元反応は、処分場開設直後に重要な役割を果たす。スウェーデン (SKB)、フランス (ANDRA など)、イギリス (BGS など)、日本 (JNC) の 11 機関は協力して、地下に開設された処分場における岩盤による酸素消費を検討する REX プロジェクトを実施してきた。酸素は容器腐食や岩との反応などにより処分場性能に影響を及ぼすことが考えられる。微生物は、地下水経由で坑道に送られる硫化物、鉄 (II)、マンガン (II)、地下深部からの水素、メタンなどをつかって酸素を消費することが明らかにされてきた。例えば、微生物による 0.31~4.5 μM/day の酸素消費速度が実験的に得られている (Puigdomenech et al., 2001)。酸素が地下に入ることによりとくに注目されるのが鉄の酸化還元サイクルである (Pedersen, 2000; Sobolev & Roden, 2002; 福永ら, 1999)。また核種移行において、U、Pu の微生物による還元の重要性が指摘されている (大貫, 2002)。

#### (5) 核種収着・取りこみ

貧栄養環境ではバイオフィームが出来やすく、バイオフィームは地質学的な収着サイトへの核種収着（吸着+吸収+両者の区別がつかない現象）の妨げとなる一方、新たな収着サイトを用意する。これは地質学的な収着サイトに通常収着しにくい核種に対しては効果的である(West et al., 2002)。

U、Pu などアクチノイドの収着濃集については大貫(2002)がレビューしている。また Eh、pH、ベントナイトの有無、滅菌の有無など条件を変えて微生物培養液と核種とを接触させ、フィルタでろ過して分配係数(Kd)を求める一連の試験が行われた（工藤，2000；Sasaki & Kudo, 2001）。Pu、Np はベントナイトにも収着するが、微生物が存在すると更に Kd が増す場合があった。

微生物による核種収着・取りこみは、岩石等に収着しにくいヨウ素（後述の TRU 廃棄物で重要）に対して、その移行を抑え安全性を高めることを期待する見解もある。ヨウ素は還元環境で I<sup>-</sup>として溶出するが、好気的な場に移行してくると、微生物によって CH<sub>3</sub>I として揮発したり、吸着されたりすることが示された（Amachi et al, 2003）。一方、嫌気的条件下のままでどうなるか。Pu、Np と同様の手法で分配係数(Kd)が測定されたが、微生物により Kd が上昇するケースがあった（工藤，非公開）。また、土壌を滅菌することにより I<sup>-</sup>の吸着が低下した例（Bors & Martens, 1992）は微生物による I<sup>-</sup>吸着の可能性を示す。

Pu、Np、I に関するデータは、微生物がこれらの核種の移行を遅らせる可能性を示唆する。他の核種と微生物との関係も論じられている（上條ら，1999；大貫，2002）。

しかしながら、カナダ AECL や米国 Yucca Mountain における試験（微生物作用が核種収着／取り込みだけであったかどうかは不明）では、バイオフィームが核種移行を遅らせられなかったり逆に促進した例も報告されている（West et al., 2002）。

#### (6) 金属腐食

金属表面に微生物が付着してバイオフィームができると酸素濃淡電池によって微生物腐食（MIC=Microbially Induced Corrosion）が起きるといわれる。細菌数は 1m<sup>2</sup>あたり百万程度であっても金属にダメージを起こしうる（Horn & Meike, 1995）。金属腐食に及ぼす微生物影響は金属の種類による。炭素鋼であれば硫酸塩還元細菌が腐食を促進する。チタンの MIC の報告はない（West et al., 2002）。Little and Wagner (1996)は、鉄鋼、ステンレス、銅合金、ニッケル合金、アルミニウム合金の MIC の Case history をまとめている。

MIC の事例としては硫酸塩還元細菌によるものが有名で、Postgate(1979)以来、多くの調査が実施されてきた。放射性廃棄物関連では最近、Savannah River Site の使用済燃料処分場においてクーボンを用いて MIC の調査が行われた（Santo Domingo, 1998; Kovacova et al. 2005）。我が国では、菅野(1961)、梶山(1994)らの先駆的な研究があり、腐食防食協会(2004)による教科書もある。西村ら(1999)は、ベントナイト中における炭素鋼の腐食に及ぼす微生物の影響の研究を行った。解析コードによる微生物腐食量の予測も行われている

(核燃料サイクル開発機構・電気事業連合会, 2000)。

しかし、オーバーパック表面が無菌となる可能性ある高レベル廃棄物処分場の場合は、金属表面の微生物繁殖によるMICはあまり重要でないかもしれない。むしろ、緩衝材や母岩中の微生物が生成する硫化水素などの腐食原因物質がオーバーパックまで拡散してきて腐食を起こす可能性の方がより重要ともいわれる。King et al.(1999)は硫化水素による銅の腐食を、谷口ら(2001)は飽和条件下における硫化水素による炭素鋼の腐食を検討したが、いずれも影響は軽微という結論に至っている。

#### (7) ベントナイト変質

West et al.(2002)は、微生物はベントナイトのミネラルを変化させる可能性はあるが致命的ではない、微生物による直接的な分解は問題とならないだろうと述べている。アミン系などの有機性カチオンがベントナイトの主要構成鉱物であるスメクタイト(モンモリロナイト等)の隙間に入り込みベントナイトの特性を変える可能性は示唆されている(電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構 2005)。

#### (8) 空隙閉塞

岩盤中の核種の移流・分散に及ぼす微生物影響は、固相の溶解による流れの促進と、詰まりやバイオフィームによる流れの抑制と考えられる。空隙の小さい人工バリアにおける影響は一層大きい。空隙閉塞に関する実験報告としては、2日間で目詰まりしたというものや180日間で目詰まりしなかったというものがある(West et al., 2002)。

焼結ガラスに飢餓細胞または増殖させた栄養細胞を注入し透水性を調べたところ栄養細胞の場合のみ透水性が低下した(MacLeod et al., 1988)。またLappin-Scott et al. (1988)は飢餓細胞を滅菌した砂岩のコアに注入し、更に有機物を注入する試験を行い、透水性が低下したことから空隙がブロックされたと判断して、石油回収への利用を提案している。

微生物による空隙閉塞の程度は条件によって変化するが、水理に影響を与えることは明らかである。しかし、それが核種移行に促進的か抑制的かの判断は、Horn & Meike (1995)もWest et al.(2002)も慎重に避けている。

#### (9) ガス発生

微生物によるガス発生の検討がされているのは、主として低レベル廃棄物やTRU廃棄物である(例えば、Francis et al., 1997)。高レベル廃棄物でも、オーバーパックの微生物腐食(MIC)により発生するガスを含めれば(West et al., 2002)微生物影響を無視できないが、そのとき発生する水素ガスは微生物により消費される可能性が高いと考えられる。

Stroes-Gascoyne et al. (2002)は、6.5年間埋設したベントナイト系緩衝材からのガス発生を測定したが、顕著なガス発生は観察されなかった。

ガス発生の影響としては、圧力上昇のほか、埋め戻し材に短絡通路ができることによる

核種移行促進がある (West et al., 2002)。

#### (10) ガス消費

腐食などで発生する水素は、メタン生成古細菌、水素を消費する細菌などの微生物により利用される (Horn & Meike, 1995)。

#### (11) 廃棄体 (ガラス固化体) の浸食

有機酸生成による細菌コロニー下の pH 変化やキレートによりガラスが溶解しうる (Horn & Meike, 1995)、カビによる有機酸生成がガラスを溶解しうるが、それには有機物が混入する必要がある (West et al., 2002) などの見解はある。しかし、一方、微生物は放射線分解で生じる酸化剤を、その場に存在するであろう水素や鉄を使って消費するという浸食抑制の作用も持つ (West et al., 2002)。

#### (12) 岩石の風化

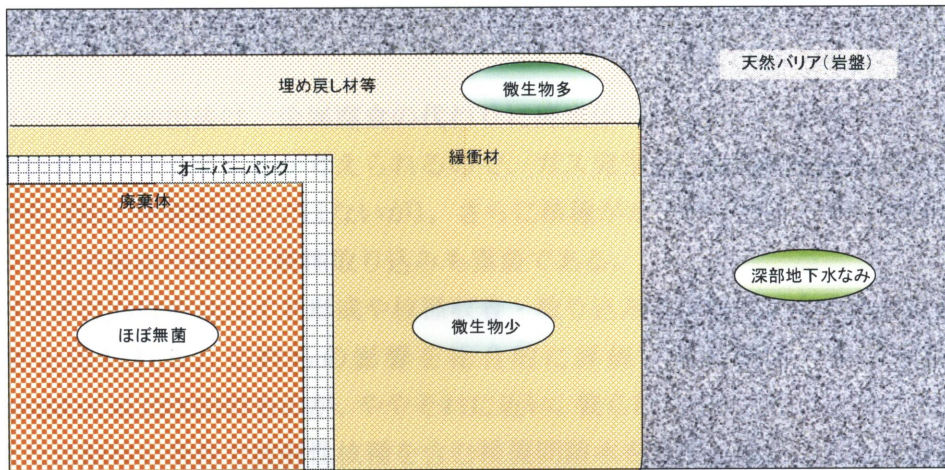
微生物は岩石の風化を促進し、粘土を生成して地下水の流れを変え、核種収着に影響を及ぼす (Puigdomenech et al., 2001)。風化で出来た鉱物は岩盤の亀裂を埋めることが考えられる。Kawano & Tomita (2001) は、火山灰の調査から、火山灰中には透過型電子顕微鏡 (TEM) 観察から計算すると  $10^8/g$  台、生菌数で  $10^6/g$  台の微生物が存在したこと、そして細胞が allophane や smectite (montmorillonite) に見える物質に覆われているという TEM 観察や培養実験から、微生物は無機化に寄与していることを示唆した。

#### (13) まとめ

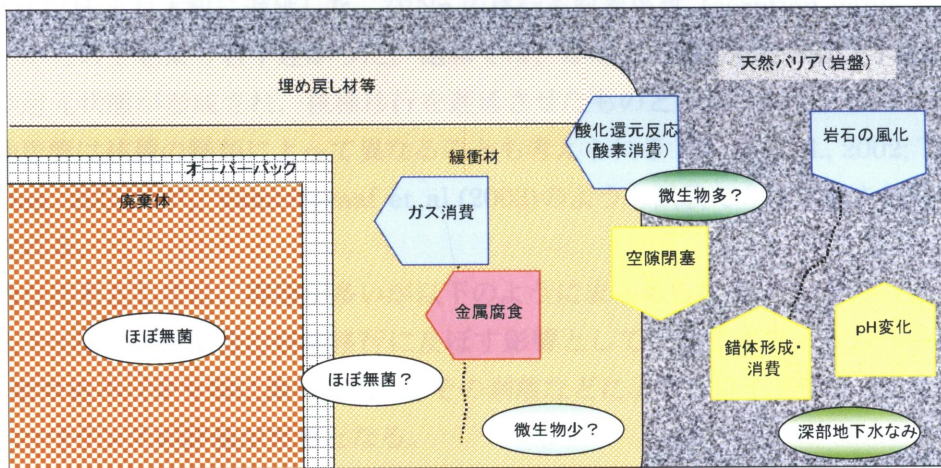
以上のレビューから図 2.6 をベースに、微生物影響の見積もりに関する予備概念モデルを図 2.7 に示した。図 2.6 における各要素の表示は消してあるが、その作用の結果としての微生物量は図 2.7 にも残してある。処分場開設前 (a) には放射性核種は持ち込まれていないので、微生物影響は図示されていない。

処分場開設後、廃棄物が持ち込まれるが、シナリオではオーバーパック内に閉じ込められている。そこで、放射性核種に対する微生物の直接的な作用はこの時期には除外する。また廃棄体の浸食は、廃棄体内が無菌と考えられるので除外する。微生物影響としては、廃棄体の近傍では、金属腐食というマイナス効果 (核種移行促進) が考えられるが、一方微生物によらないものも含めた金属腐食で発生する水素ガスを微生物が消費したり、放射線により生成する酸化物の還元や酸素消費による還元環境の形成といったプラス効果 (核種移行抑制) も予期される。これらがどの程度作用するかは、廃棄体近傍の微生物量の見積りにも依存する。天然バリアや緩衝材・埋め戻し材においては、空隙閉塞、錯体形成・消費、pH 変化という影響が予想されるが、それらはプラスに働くかマイナスに働くか不明である。これらの影響は、処分場開設による微生物増殖が顕著であれば大きくなると予想

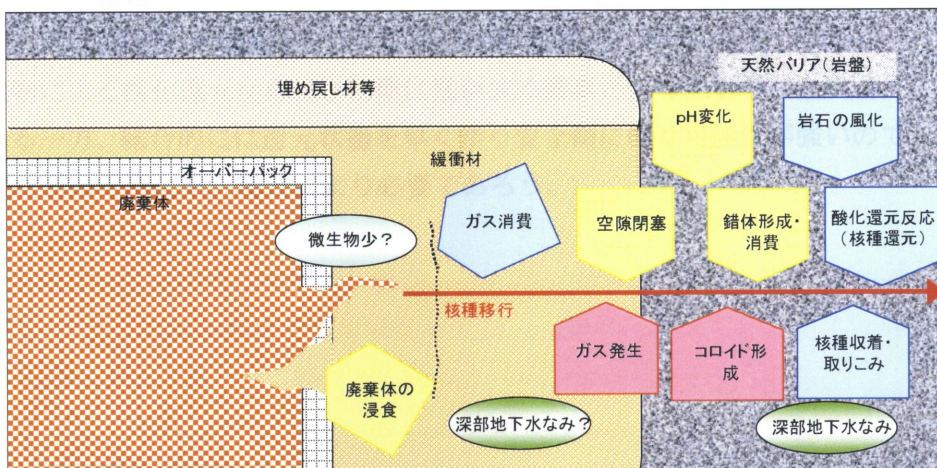
a. 処分場開設前



b. 開設～オーバーバック破損前



c. オーバーバック破損後



移行促進	移行抑制	不明	ほぼ無菌
閉じ込め性能に影響を及ぼす要因			
			全菌数 $10^4/cm^3$ 未満、生菌数 $10^2/cm^3$ 未満 (微生物少)
			深部地下水なみ: 全菌数 $10^4 \sim 10^6/cm^3$ 、生菌数 $10^2 \sim 10^4/cm^3$
			全菌数 $10^6/cm^3$ 超、生菌数 $10^4/cm^3$ 超 (微生物多)
微生物現存量			

図 2.7 高レベル廃棄物処分における微生物影響見積りに関する予備概念モデル



される。

オーバーパック破損後は、金属腐食の代わりに廃棄体の浸食という影響が浮上する。また酸素が消費され尽くすことが考えられるので、ガス発生という影響も浮上する（低レベル廃棄物や TRU 廃棄物ほどではないが）。さらに核種がオーバーパック外に移行し始めるので、コロイド形成や吸着・核種取り込みも重要である。

天然バリアにおけるコロイド形成や核種吸着・取り込みの影響は、安全評価にとってとくに重要と思われる。これらの影響を総合的に評価する試験データは少ないが、Vandergraaf et al.(2003)のものが、ややそれに近い。彼らは、凝灰岩の1mのブロックに、不飽和または飽和の条件で放射性核種を含む模擬間隙水を流す実験を、とくに飽和の場合は600日間行った。その結果、不飽和では Tc は  $^3\text{H}$  より移行が若干速かったが、飽和では Tc の移行は  $^3\text{H}$  より大幅に遅延した。 $^{237}\text{Np}$  の移行も吸着係数 (sorption value =  $K_d$  と同じ概念) からの予想より若干遅かった。飽和では、かなりの微生物が検出されたので、それにより還元状態が形成され、核種移行を遅延させたものと考えられる。核種移行に及ぼす微生物影響は核種の種類によって異なることも考えられる (West et al., 2002; Tanaka & Nakayama, 2004) が、Vandergraaf et al.(2003)のような試験で今後解明されていくものと期待される。

結論的なこととしては、課題が多いが以下のようにまとめられる。

- ・ オーバーパック破損後の核種移行に及ぼす影響として、バイオフィームへの核種の吸着・取り込み（安全側に働く要因）とその剥離などによるコロイド形成（安全性低下要因）のバランスの評価が重要となる。
- ・ 微生物による空隙閉塞の程度、錯体を形成する有機物濃度を微生物が増やすのか減らすのかなども課題である。
- ・ これらは、後述(2.9)の物理モデルによる試験で解明していく必要がある。
- ・ 微生物による酸化還元反応は、初期に残存する酸素による悪影響（金属腐食）の可能性がある一方、総合的には還元状態を早く作り安全側に働く可能性が強いので、酸素消費速度などの定量化も、場合により必要であろう。

## 2.7 TRU 廃棄物処分における微生物量の見積もり

TRU 廃棄物処分においては、高レベル廃棄物に比べて廃棄体の放射能が低い、人工バリアの構成が異なるなどの違いがある（図 2.5-b 参照）。以下、その違いによって微生物が影響を受ける点を主体に述べる。

### (1) 廃棄体（容器／Canister も含む）

#### ・微生物の持込みまたは土着微生物

TRU 廃棄物は、高レベル廃棄物のような滅菌条件を経ていないので、微生物の持ちこみは考えられる。

#### ・微生物の増殖を促進する要因

TRU 廃棄物は様々なものから構成されるが、その中には、セルロース、アスファルト（放射性廃液の固化マトリクス）、TBP (tributylphosphate) および分解生成物である DBP、MBP など、固化マトリクス等として多用されるセメント系材料に使用されるセメント混和剤（電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, 2005）の有機物が含まれ、微生物にとっての基質（電子供与体）となる可能性がある。また、硝酸塩（PUREX 法による再処理プロセス廃液由来）が含まれることがある（電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, 2005）ので、これが溶出すれば、脱窒細菌にとっての電子受容体を提供することになる。

#### ・微生物を抑制または死滅に導く要因

TRU 廃棄物は発熱するが、岩盤サイトで条件にもよるが最高 85℃と試算されている（核燃料サイクル開発機構・電気事業連合会, 2000）。また、放射線は微生物に抑制的であるが、その量は廃棄体の種類によって異なると思われるので、放射線抵抗性微生物の耐性の上限である 10,000Gy 前後（前述 2.5(1)）に配慮すると、完全に微生物を殺菌できるとは言い切れないであろう（図 2.2 参照）。

廃棄体には、セメントまたはビチューメン（アスファルト）が充填されることがある。これらが充填されると廃棄体の pH は上昇する。高 pH が微生物量に及ぼす影響は、「(2) 充填材および構造躯体」の項参照のこと。

#### ・現時点での評価

TRU 廃棄物は組成が多様である。温度、放射線、高 pH という微生物を抑制する要素があり、ものによっては無菌となる可能性もある。しかし、すべてにおいて無菌であることを示すのは難しい。

### (2) 充填材および構造躯体

#### ・微生物の持込みまたは土着微生物

微生物の持ちこみは考えられる。

#### ・微生物の増殖を促進する要因

セメント系材料に使用されるセメント混和剤が微生物にとっての基質となる可能性がある

る（電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, 2005）

・微生物を抑制または死滅に導く要因

充填材および構造躯体にはセメント系材料が用いられるので、高 pH となる。間隙水の pH は処分場開設後、数千年の間 12.5~13 程度に維持されると予想されている（核燃料サイクル開発機構・電気事業連合会, 2000）。

大部分の微生物の至適 pH は中性であり、このような高アルカリ条件では少なくとも増殖しない（表 2.3）。各代謝形式の微生物群は、Eh の制限も受け、pH と Eh に対する Active range（活性のある領域）がある（Fukunaga et al., 1995; 吉川ら, 1995）。しかし、地球上には、Soda lake や Ca(OH)<sub>2</sub> に富んだ地下水などアルカリ性の環境もあり、そこでは好アルカリ性の微生物が繁殖しており（Grant et al., 1990; Ulukanli & Digrak, 2002）、それらが混入すれば僅かな pH の低下で増殖が始まる可能性もある。表 2.7 は高い pH で増殖できることが報告されている微生物のリストである。実際、硫酸塩還元細菌用の通常の培地を用いた土壌の集積培養により、pH11 で増殖できる菌の培養が比較的短期間で得られた（IHI, 未発表）。

表 2.7 好アルカリ性の微生物の例

分離源	現場の環境		微生物					文献	
	pH	カチオン	栄養	至適温度	代謝形式	至適pH	増殖上限pH		名称
米国Nevada州のSoda lakeの底泥	9.7	Dissolved solids 87g/L	メタノール		メタン発酵	9.7	12.7	集積培養	Oremland et al. (1982)
エジプト Wadi el Natrun湖の底泥	8.3-9.3	Dissolved solids 24g/L	水素、またはトリメチルアミ	35-40、または45°C	メタン発酵	8-9	9.7*	単離株	Boone et al. (1986)
ケニアのSoda lake (Magadi湖)の底泥			水素、蛋白、セルロースなど		硫酸還元、メタン発酵を含む嫌気		10+/-0.2	各種単離株	Zhilina & Zavarzin (1994)
南アフリカ Carletonville近くの金鉱山のdam	11.63	Na <sup>+</sup> 391 g/L	酵母エキスなど	45°C	嫌気	10	12.5	<i>Alkaliphilus transvaalensis</i>	Takai et al. (2001)
ヨルダン Maqarinの地下水	11.4	Ca(OH) <sub>2</sub> rich					11	各種単離株	Tiago et al. (2004)
米国CaliforniaのBorax社の浸出水貯留池底泥	アルカリ性		酢酸、酵母エキス等	35°C	鉄還元	9.5	11	<i>Alkaliphilus</i> と高い相同性	Ye et al. (2004)
マリアナ海溝のserpentine mud	アルカリ性		炭化水素など	30-35°C	嫌気	8.5-9	10.8-11.4	<i>Marinobacter alkaliphilus</i>	Takai et al. (2005)

\*: pH上限10.2と読み取れる図もある。

TRU 廃棄物処分場の pH12.5 以上の環境で活性を維持できる微生物がいるかどうかは、微妙である。pH12.5 以上で増殖すると報告されているのは、この表の中でも 2 例のみであるし、こういう高 pH の試験では、微生物活動がなくても培地の pH が下がることがある（Fukunaga et al., 1996; Ulukanli & Digrak, 2002）ので初期 pH をもって微生物が増殖できた pH としてよいかという問題もある。微生物細胞内の生化学的な検討（小林, 1996）、*Alkaliphilus transvaalensis* など好アルカリ性の微生物を用いた調査、不飽和の時期(前述 2.3)の微細環境（pH が局所的に低下しないか）などが、今後の課題として考えられる。

・現時点での評価

セメント系材料による高 pH のため、微生物活性は強く抑えられる。数千年間 pH12.5 以上という予測が正しければ、微生物活性はゼロという判断に至る可能性もある。

(3) 緩衝材

・微生物の持込みまたは土着微生物

微生物の持ちこみは考えられる。

・微生物の増殖を促進する要因

高レベル廃棄物の項 (2.5 (3)) で述べたことのほか、本項の「(1) 廃棄体」や「(2) 充填材および構造躯体」の項で述べたように、廃棄体、マトリクス、セメント系材料などから供給され拡散してくる有機物や硝酸塩が微生物の基質として働く可能性がある。

・微生物を抑制または死滅に導く要因

高レベル廃棄物の項 (2.5 (3)) で述べたことのほか、本項の「(2) 充填材および構造躯体」で述べた pH 上昇の影響が考えられる。緩衝材中央部での間隙水中の pH は処分場開設後数十年から数千年の間は 12 以上になると予測されている (核燃料サイクル開発機構・電気事業連合会, 2000)。

・現時点での評価

セメント系材料による高 pH のため、微生物活性は強く抑えられる。数千年間 pH12 以上という予測が正しければ、その間の微生物活性はゼロという判断に至る可能性もある。

(4) 埋め戻し材

・微生物の持込みまたは土着微生物

高レベル廃棄物の項 (2.5 (4)) で述べたように、微生物の持ちこみは考えられる。

・微生物の増殖を促進する要因

緩衝材と同じような状況が考えられる。また、使用済燃料を花崗岩中に処分する際、掘削した岩を埋め戻し材として使用すると、埋め戻し材とともに大量の栄養塩が持ち込まれるだろうという予測 (West et al., 2002) もある。

・微生物を抑制または死滅に導く要因

緩衝材の項で述べたように pH 上昇の影響が考えられる。

・現時点での評価

セメント系材料による高 pH のため、微生物活性は強く抑えられる。数千年間 pH12 以上であれば、その間の微生物活性はゼロという判断に至る可能性もある。

(5) 天然バリア (岩盤)

・微生物の持込みまたは土着微生物

高レベル廃棄物の項 (2.5 (5)) で述べたように、土着微生物が存在する。

#### ・微生物の増殖を促進する要因

緩衝材と同じように、廃棄体、マトリクス、セメント系材料などから供給・拡散される有機物や硝酸塩が微生物の基質として働く可能性がある。岩盤では人工バリアほど pH が上がらないと考えられるので、場所によって有機物と硝酸塩からの脱窒（福永ら、2002）や、他の電子受容体による有機物の酸化が進行する可能性がある。高レベル廃棄物の項(2.5(5))で述べたような酸素による微生物増殖は、酸素が残存する間の pH が高いことが予想されるので、さほど顕著には進行しないかもしれない。

#### ・微生物を抑制または死滅に導く要因

緩衝材の項で述べたようにアルカリ性の間隙水の影響がある。しかし、人工バリアほど pH が上がらないと考えられる。

#### ・影響不明の要因

アルカリ性の間隙水のため、岩盤が変化する可能性がある。それが微生物にどう影響を及ぼすかは不明である。

#### ・現時点での評価

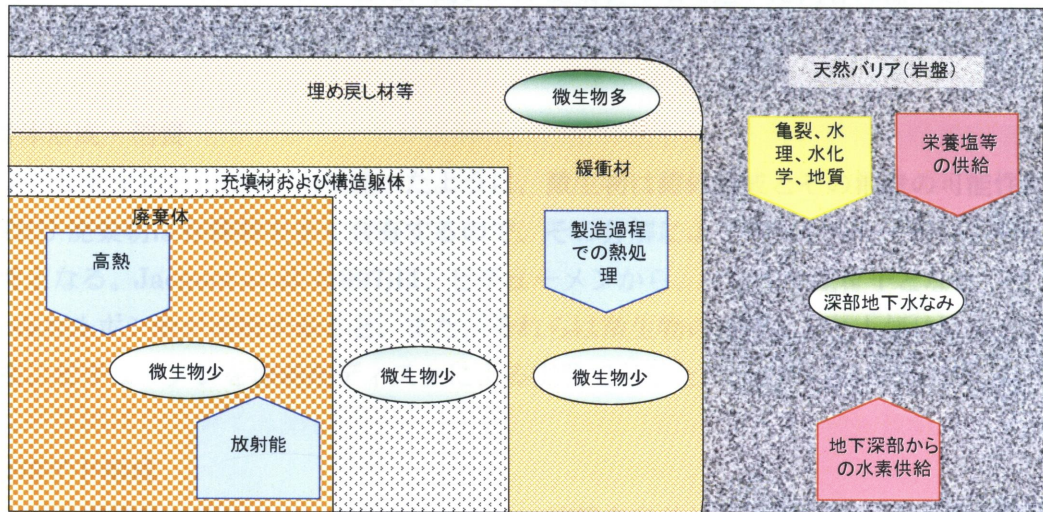
TRU 廃棄物の廃棄体、マトリクス、セメント系材料などから供給される有機物のうち、セルロースやアスファルトの分解性に関する試験データはあるが、それにより微生物量がどれだけ増加するかは不明である。他の有機物に関する試験、岩盤に TRU 廃棄物由来の有機物が流入した場合のモデル試験などが望まれる。またアルカリ性の間隙水の広がり（アルカリプルーム）よりも有機物や硝酸塩の広がりが大きければ、微生物の処分場開設前よりも微生物が増加する可能性もある。

### (6) まとめ

以上のレビューから微生物量の見積もりに関する予備概念モデルを作成し、図 2.8 に示した。表示方法は図 2.6 に準じている。微生物影響項目の中で高レベル廃棄物との違いは、有機物を多く含むことと pH が高いことである。結論的なことを言うのであれば、次の予測や課題が考えられる。

- ・ TRU 廃棄物の場合、廃棄体近傍の微生物量は、高 pH により抑制されるが、その範囲や抑制の程度は充分明らかになっていない。
- ・ 電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構(2005)は、今後の課題の一つに「有機基質代謝スキームの解明」を挙げている。
- ・ 微生物量が pH および有機物によりどう変化するかは、今後の課題である。

a. 処分場開設前



b. 開設後

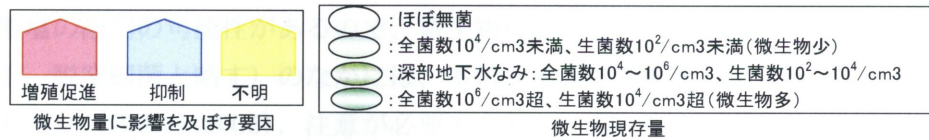
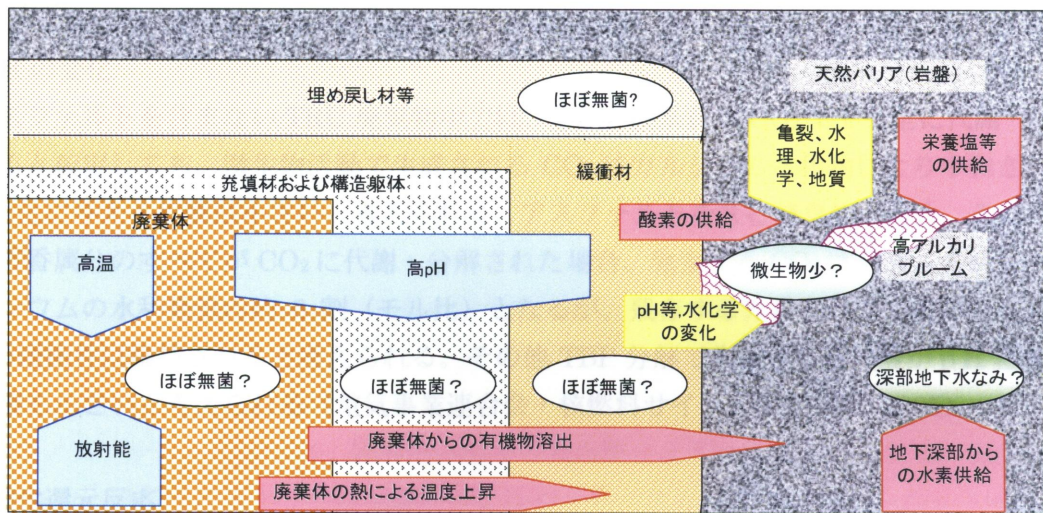


図 2.8 TRU 廃棄物処分における微生物量見積りに関わる予備概念モデル

## 2.8 TRU 廃棄物処分における微生物影響の見積もり

前述(2.4)の微生物影響項目ごとに、高レベル廃棄物の項で述べた内容は繰り返しを避け、TRU 廃棄物特有の問題を主体に、文献情報を整理してまとめた。

### (1) 錯体形成・消費

高レベル廃棄物の項(2.6 (1))で述べたように、微生物は錯体形成とその消費の可能性がある。TRU 廃棄物は有機物を多く含有するので、その分解による錯体形成の可能性への配慮が必要となる。Jacquot et al. (1997)は、ピチューメンから、核種への配位子となりうる C3～C9 のカルボン酸が溶出すること、また、それらは微生物の存在により大幅に除去されることを、ピチューメンを埋めたディスクによる実験で示した。

### (2) コロイド形成

高レベル廃棄物の項(2.6 (2))で述べたように、核種を収着した微生物はコロイドとなって移行する可能性がある。

### (3) pH の変化

アスファルトを含まない TRU 廃棄物中では、その有機基質が CO<sub>2</sub>まで完全に代謝・分解されると仮定しても、微生物活動で生成される CO<sub>2</sub>はカルシウム水和物により中和され、pH 変化に与える影響は小さいと考えられる。アスファルトを含む廃棄物の場合、その飽和分と芳香属分のすべてが CO<sub>2</sub>に代謝・分解された場合、発生する CO<sub>2</sub>はセメント系材料のカルシウムの水和物量の約 6 割 (モル比) となるが、残存するカルシウムの水和物により pH の緩衝性は維持されると考えられる。その他 TBP 分解で生成するリン酸が pH に及ぼす影響も小さいと考えられる (電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構 2005)。

### (4) 酸化還元反応

高レベル廃棄物の項(2.6 (4))に記載したとおりであるが、TRU 廃棄物の場合、前述(2.7(1))のように硝酸塩の溶出の可能性があるので、微生物反応のうち「脱窒」が重要となる。脱窒細菌 (以下、脱窒細菌と略す) のなかには、不溶性の U<sup>4+</sup>を酸化して移行しやすい形態にするものもあり (Beller, 2005)、注意が必要である。

### (5) 核種収着／取りこみ

高レベル廃棄物の項(2.6 (5))に記載したとおりであるが、とくにヨウ素は TRU 廃棄物に含まれ鉱物に収着しにくい核種なので、重要である (電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構 2000 参照)。

#### (6) セメント系材料変質

嫌気的な場と好気的な場が隣接している場合、嫌気的な場で硫酸塩還元細菌が繁殖して硫化水素を生成し、それが好気的な場に移行すると、硫黄酸化細菌が繁殖して硫化水素を酸化して硫酸を生成する。好気的な場が不飽和であると僅かな水分に硫酸が溶けるので pH が下がる。このような現象がセメント系材料の表面で起きると変質の原因となりうる。コンクリート製の下水管路はこの現象によりしばしば重大な被害を受けた（森, 1989）。処分場開設後の酸素が残存している時期に硫酸塩還元細菌による有機物の分解が進むことがあれば、この問題が起きる可能性がある。その意味から、酸素の挙動は重要である。

Kovacova(2005)は、微生物が生成する有機酸によるセメント劣化の可能性を示唆したが、データは示していない。有機物分解により生成した CO<sub>2</sub> によるセメント系材料の変質については、核種移行に対する影響は小さいとされている（電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構 2005）。

#### (7) 金属腐食

微生物が金属の腐食に関わることがあることは、前述（2.6 (6)）した。TRU 廃棄物処分場では、高レベル廃棄物ほどの乾燥（による微生物抑制）は無いが、充填材や構造躯体で使われるセメントのために処分場開設後も長期間 pH が高い状態に維持されると予想されるので（2.7 (2)）、金属腐食が問題になる時期の微生物影響は小さいと予想される。

#### (8) アスファルト変質

アスファルト（広範な高級炭化水素の混合物）は便宜上、飽和分、芳香族分、アスファルテン分、カラム残渣分に分けられる。飽和分と芳香族分は微生物により分解されやすく（村上ら, 1985）、アスファルテン分は比較的分解されにくい（Ait-Langomanino et al., 1991）。アスファルトの変質は、固形物の溶出と微生物による分解に分けられる。微生物による分解は、嫌気条件下よりも好気条件下で進むようである（Wolf & Bachofen, 1991; 藤原・川崎, 2002）。また、pH 11 (Wolf & Bachofen, 1991)あるいは pH 12.5 (藤原・川崎, 2002)としたアスファルトも微生物により分解される可能性があることが示唆された。その他、多くの研究があるが、むしろガス発生など別の視点からの試験が多いので、ガス発生の項で述べる。なお日本では、アスファルトに核種閉じ込め性能を評価上期待していない（電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構 2005）。

#### (9) ベントナイト変質

高レベル廃棄物の項(2.6 (7))に記載したとおりである。

#### (10) 空隙閉塞

高レベル廃棄物の項(2.6 (8))に記載したとおりである。



### (11) ガス発生

TRU 廃棄物が含有する有機物のうちセルロースからのガス発生は、他に阻害要因がなければ一般に起きるとされている。Fukunaga et al. (1996)は、2.5Lの密閉型反応器を用い、いくつかの条件でセルロースからのガス発生を試験し、表 2.8 の結果を得た。Molecke et al. (1980)は、TRU 廃棄物からの微生物によるガス発生量を試算した。Agg (1993)は、廃棄物を充填したドラム缶からのガス発生量を実測し解析コードによる予測と比較した。表 2.8 のうち最も現実的な条件と思われる Run 2 および 3 における CO<sub>2</sub> 発生量を、容器容積の 5%(W/V)をセルロースが占めるとして廃棄体あたりに換算すると、彼らの結果とほぼ一致する。しかし表 2.8 の CH<sub>4</sub> 発生量はより大きかった。おそらく密閉性や嫌気度によりメタン発生は影響を受けるのであろう。なお、pH12.2 ではガス発生は検出されなかった。

表 2.8 セルロースからの嫌氣的ガス発生試験

Run	廃棄物	微生物	水分	栄養塩	pH	ガス発生量(mL/g廃棄物/y)	
						CO <sub>2</sub>	CH <sub>4</sub>
1	セルロース	土壌からの集積培養	満水	添加	6.8	44~67	31~40
2	セルロース	土壌からの集積培養	満水	無添加	6.2	0.7~3.5	0~1.4
3	セルロース	土壌からの集積培養	無添加	無添加	—	0~0.4	0.7
4	セルロース	土壌からの集積培養	満水	無添加	12.2	不検出	不検出

(Fukunaga et al., 1996 より一部改変した。)

アスファルト（ピチューメン）から発生するガスは、セルロースからと異なり、CH<sub>4</sub> は全く含まれないか、含まれてもごく僅かである(Fukunaga, 未発表)。アスファルトを含む TRU 廃棄物（あるいは模擬廃棄物）から発生するガスとして主に報告されているのは、CO<sub>2</sub> のみか、あるいは CO<sub>2</sub> と N<sub>2</sub> (Jacquot et al.,1997) である。Caldwell et al. (1988) によれば CO<sub>2</sub> 発生量は好気で 2 μg/g/d、嫌気で 3 μg/g/d であった。Wolf & Bachofen (1991)によれば 1.5L の培養液から好気で 15~40L の CO<sub>2</sub> が発生した。日本では、英国 AEA Technology 社の解析コード GAMMON コードにピチューメン分解によるガス発生モデルを追加して改良された GAMTEC コードを用いて、アスファルトからのガス発生が評価されたが、結論は「金属腐食による水素発生が支配的」であった（核燃料サイクル開発機構・電気事業連合会, 2000）。また硝酸塩から脱窒によりガス発生が起きる条件についてレビューされた（福永ら, 2002）。

TRU 廃棄物では、材料中の窒素不純物に由来する <sup>14</sup>C が含まれる。微生物の代謝活性（2.6(4)参照）により、これから放射性のガス、即ち <sup>14</sup>CO<sub>2</sub> および <sup>14</sup>CH<sub>4</sub> が生成することが知られている（Francis et al., 1980）。電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構（2005）はとくに <sup>14</sup>CH<sub>4</sub> の生成を重視している。

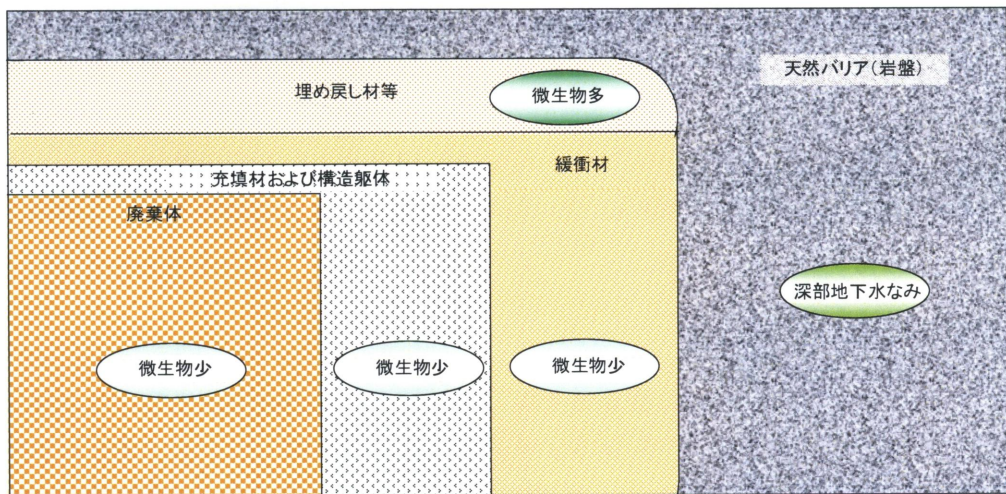
(12) ガス消費

高レベル廃棄物の項(2.6 (10))で述べたことのほか、酸素または硫酸塩 (2.5 (5)の AOM 参照) によるメタンの微生物による酸化も考えられる。これはメタンが  $^{14}\text{C}$  を含むことを考えると核種移行遅延にとって重要である。

(13) 岩石の風化

高レベル廃棄物の項(2.6 (12))に記載したとおりである。

a. 処分場開設前



b. 開設後

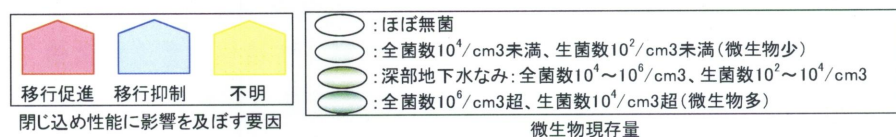
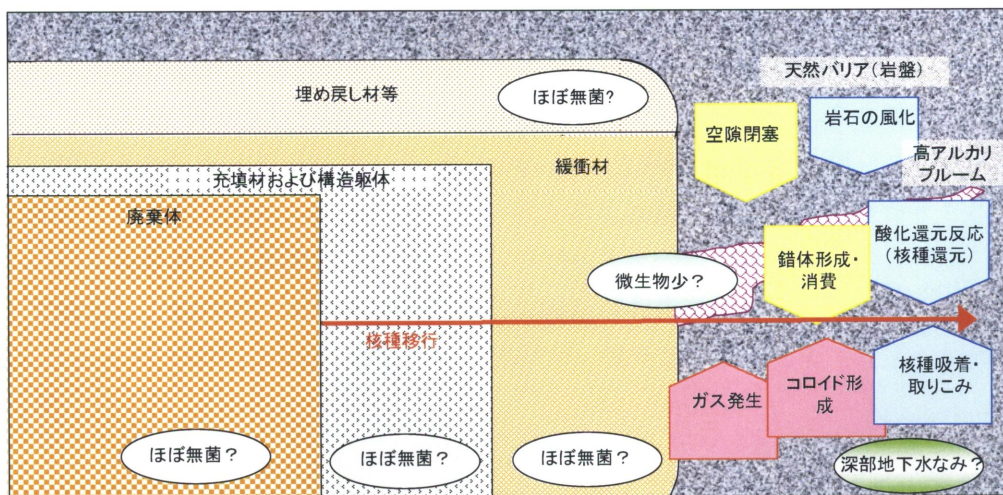


図 2.9 TRU 廃棄物処分における微生物影響見積りに関わる予備概念モデル

(14) まとめ

TRU 廃棄物の場合の微生物影響見積りに関わるモデルを図 2.9 に示した。

TRU 廃棄物処分場が長期間にわたり高 pH 条件になると予想されることから、微生物影響として重要なのは岩盤におけるものであろう。微生物影響項目の中で高レベル廃棄物との違いは、 $^{14}\text{C}$  やヨウ素が含まれることである。

今後重要視すべき課題は次のとおりであろう。

- ・  $^{14}\text{C}$  を含むガス発生
- ・ ヨウ素の収着／取り込みまたはコロイド形成によるヨウ素の挙動
- ・ これらは、後述(2.9)で提案される物理モデルの試験で解明していくことが考えられる。

## 2.9 予備概念モデルの活用

以上、文献情報、データなどから、図 2.4 における問題の記述（微生物影響を考えるにあたり配慮しなければならない特質、事象、過程）を行い、それをもとに予備概念モデルを作成してきた。今後、現場への適用に向けて、次の課題が残っている。

### (1) 抽象化・概念モデル完成

一層の情報・データの充実を経て、また複数の視点からの議論を経て、より客観的な概念モデルへと発展させていく必要がある。その際、微生物影響項目のリストに落ちのないようにするとともに、項目によっては微生物影響を無視することも考えられる。後者のためには、微生物影響が最悪の場合と同等の前提を設けて全体の安全評価を行う、例えば TRU 廃棄物から放射性核種の瞬時放出を想定することによって微生物が人工バリア構造に及ぼす影響を除外する方法（電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構, 2005）や、微生物影響項目ごとに、その影響の大きさの変動幅で解析コードに入力してモデルに与える影響（ここでは生活圏における被曝線量など）を感度解析して（Anderson & Woessner, 1994 参照）選別していく方法がある。

### (2) 定量化

概念モデルから数学モデルに移行するには、微生物影響の定量化が必要である。そのため今まで述べてきたように、現場を模擬した条件で定量的データを得ようとするいくつかの試みが為されてきた。微生物量把握のための、現場への測定器具設置(2.5 (5))、地下実験施設 (2.5 (3))、ナチュラルアナログ (2.7 (2)など) による調査、微生物影響把握のための実験室規模試験 (2.6 (13)) などである。地下実験施設の調査事例を表 2.9 に、ナチュラルアナログの調査事例を表 2.10 に示す。今後もそういう調査データを充実させていく必要があるが、より効率的な物理モデルの開発も求められる。例えば、水域の微生物挙動を理解するために開発されたマイクロコズム（「何らかの人工的制御環境下で、単一生物種あるいは生物群集を、長時間にわたり維持・発展させるための装置」あるいは「対象とする一生物種あるいは生物群集を、生物過程の時間および空間スケールを満足しうるような制御環境条件下で維持し、物理的・化学的環境要因と生物過程との係わり合いを再現させる実験系」）のようなもの（岡田, 1988）を駆使した実験が、地下圏においてもっと実施されるべきであろう。

### (3) 数値モデル化

定量化と並行して、数学モデルの作成とコンピュータプログラミングによる数値モデル化が必要になる。微生物影響の分野でも解析コードの開発は行われている。低レベル廃棄物からのガス発生の解析、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解析、腐食・材料劣化の解析、微生物量の解析などが行われている（福永ら, 2003 より）。

しかしながら、これらは、微生物影響項目のすべてを扱っているわけではない。本来、微生物影響は複数の項目が同時に作用すると考えられるので、解析コードもその総合的な評価ができる必要があり、そのためには開発が必要である。地層科学研究（中嶋,1995, 水谷義彦,1995, 新藤・井伊,1995, 渡辺・田中,1995 など）や既存の地球化学コード、核種収着のコード（例えば Harvey, 1997）との連携も重要となろう。

#### (4) 検証・確証

数値モデルは実験データにより確証されなければならない（ヘルミック, 2004）。実験には(2)で述べた様々な系が使用可能と考える（野外における放射性核種の使用は制限されるが）。それをを用いれば、例えばバイオフィームによる核種収着というプラス効果（核種移行抑制）とコロイド形成というマイナス効果（核種移行促進）のバランス、錯体形成というマイナス効果と錯体形成する有機物の消費というプラス効果のバランスが、評価できることも期待される。

表 2.9 微生物研究を実施している地下実験施設の例

国名	名称	実施主体	プロジェクト名称	研究概要	文献
Canada	URL(Underground Research Laboratory)	AECL(Atomic Energy of Canada Limited). SKB(スウェーデン)、ANDRA(フランス)が協力。	BCE(Buffer/Container Experiment), ITT(Isothermal Test)	BCEは花崗岩内に設けられたベントナイト50%+砂50%の圧縮成型緩衝材内に廃棄体と同サイズのヒータを設置し、ベントナイト中の微生物を測定。ITTはヒータなし。	Stroes-Gascoyne et al. (1996), Stroes-Gascoyne et al. (2002)
米国	WIPP(Waste Isolation Pilot Plant)			WIPPを想定したTRU廃棄物からのガス発生(SNL)	Francis et al.(1997)
	Deep Underground Science and Engineering Lab. (計画)	National Science Foundation (NSF)		Homesatake Mine, South DakotaとHenderson Mine, Coloradoで地下圏の実験事業	Cho (2005)
スウェーデン	Aspo HRL tunnel	SKB	REX projectなど	岩盤の微生物調査、微生物による酸素消費	Pedersen (2000)
スイス	Mont Terri Rock Lab.	Mont Terri Project (NAGRA, JNCなど)	地球化学など		Pearson et al.(2003)
日本	釜石鉱山内、PNC釜石事業所(現在、閉鎖)	動力炉・核燃料開発事業団	熱-水-応力連続試験	カナダBCEと同様の目的。また、別途地下水の微生物遺伝子解析実施。	青木ら(2003), Ishii et al. (2000)
	東濃地化学センター	核燃料サイクル開発機構		ウラン鉱山の微生物調査(結晶質岩主体)	村上ら(2003)
	幌延深地層研究センター	核燃料サイクル開発機構		ポーリングによる微生物調査(堆積岩主体)	Aoki et al. (2003)

(これは微生物研究を実施している例であるが、水谷伸治郎(1995)が各国の地下実験施設を紹介している。)

表 2.10 微生物研究を実施しているナチュラルアナログの例

国名	名称	課題	調査結果概要	文献
カナダ	Cigar Lake ウラン鉱山	微生物によるウランの還元	ウラン鉱床内の掘削井に、全菌数で $5 \times 10^2 \sim 5 \times 10^7$ /mLの微生物が存在する。 $U^{6+}$ を還元できる硫酸還元菌も存在した。	Pedersen & Karlsson (1995)
フィンランド	Palmottu		溶解性ウラン濃度が還元状態と相関する。還元状態のコントロールには鉄還元細菌が働いている。	Pedersen & Karlsson (1995)
ガボン	Oklo(自然の核分裂の形跡あり)	コロイドおよび腐植による核種移行	全菌数で $10^4 \sim 10^6$ /mLの微生物が存在する。鉄、硫黄酸化菌も含め微生物の多様性あり。重金属やI、S、Seを含むコロイド検出。ウランの8~67%は腐植とともに存在した。	Pedersen (1996), Pedersen & Karlsson (1995)
ヨルダン	Maqarin(高pH)	最大pH 12.9における微生物の存在	pH12.9の井戸で $10^6$ /mL、pH12.5の井戸で $10^4$ /mLの全菌数が検出された。	Pedersen & Karlsson (1995)
ブラジル	Pocos de Caldas(ウラン鉱山)	栄養で制限される微生物増殖モデルの確証	$0.01 \sim 0.1$ gDW/m <sup>2</sup> のバイオマス増殖、硫黄サイクルに係る微生物の存在、有機錯体による微量元素の移動不検出などの結果が得られた。	West et al.(1992)
日本	月布鉱山、川崎鉱山(ベントナイト鉱床)	ベントナイト中の微生物生存、移動	水に接するベントナイト鉱床では、深くなるほど微生物量が減少した。	Fukunaga et al. (2005)

(鹿園, 1995; Ulukanli & Digrak, 2002 らがナチュラルアナログを紹介しているが、その中で、微生物研究を実施している例をまとめた。)

### 3. ベントナイト鉱床の微生物調査

#### 3.1 序

放射性廃棄物の地層処分に関連し、(地下水化学への影響やガス発生を介して)放射性核種移行に及ぼす微生物影響を理解することの重要性が、近年、明らかになってきた (Francis et al., 1980; West & McKinley, 1984; West, 1994; Pedersen, 2000)。とくに、ニアフィールド母岩とともに、廃棄体を囲む人工バリアの微生物活性に着目することへの必要性がいられている。ベントナイト主体の緩衝材は、いまや高レベル廃棄物の地層処分場の大部分の設計に採用されており (West et al., 2002)、研究のターゲットとなってきた。緩衝材はとくに、天然の地下水の細菌との接触による微生物の浸透 (Stroes-Gascoyne & West, 1997)、やベントナイト原料中の細菌の混入 (Fukunaga et al., 1993; Stroes-Gascoyne & West, 1997) にさらされ、そして緩衝材中の微生物活性は処分容器を腐食する可能性もある (Pedersen, 2000)。

ベントナイト主体の緩衝材は、高密度に圧縮され放射性廃棄物処分後しばらくは熱と放射線にさらされると予想される。そのような条件は微生物の生存と増殖を阻害すると考えられる。例えば、高純度のベントナイトを水分活性 0.96 のレベルまで圧縮することは硫酸塩還元細菌のいくつかの種類に対し致命的であった (Motamedi et al., 1996)。圧縮ベントナイトに接種された色々な種類の胞子を形成しない硫酸塩還元細菌は数ヶ月ないし 15 カ月の間に著しく除去された (Pedersen et al., 2000a, 2000b)。胞子を形成する細菌は数は減少したが 15 ヶ月後に完全には除去されなかった。カナダ AECL での照射実験と緩衝材容器実験では、熱と放射線が、緩衝材中に天然に存在する微生物相に及ぼす有害な影響を及ぼすことが指摘された。その結果、緩衝材内に向かって最大で数十 cm におよぶ微生物活性が無いか減衰した領域を生じることが示唆された (Stroes-Gascoyne & West, 1997)。

ベントナイト主体の緩衝材は、また、外部からまたは外部への微生物移動の阻止または遅延を導くと考えられ (Stroes-Gascoyne & West, 1997)、実験検討が為されてきた。カナダでの 20 週間の実験の間、圧縮緩衝材を詰めた栓 (50% のナトリウム系ベントナイトと 50% の珪砂の混合物) の最初の 0.5 cm を除くすべての部分で *Pseudomonas stutzeri* の移動は確認されなかった (Stroes-Gascoyne et al., 1999)。圧縮緩衝材表面に置いた大腸菌の移動は、ベントナイト含有率が 70% 以上の場合、3 週間後に緩衝材中に向かって 5 mm 未満であった (Fukunaga et al., 2001)。この、ベントナイトのろ過特性も、微生物活性が無いか減衰した領域の維持に寄与すると考えられる。

他方、ベントナイトと微生物の共役的な相互作用がいくつか報告されてきた。ベントナイト懸濁液中のベントナイトで覆われた微生物細胞壁の観察は、ベントナイトが毒性物質に対して細胞を保護する役割を果たしていることを示した (Ueshima et al., 2000)。他の研究では、ベントナイト懸濁液中での有機物供給と細菌増殖の促進が観察された (Fukunaga et al., 1993)。廃棄物からの熱と放射線はベントナイト中の複雑な有機物をより低分子の、より微生物に利用されやすい物質に分解しうること (Stroes-Gascoyne et al., 1997a) がわ



かってきたが、これはベントナイト自体が微生物増殖に寄与する可能性を示す。

ここまで述べてきたように、蓄積された実験データはベントナイト主体の緩衝材の微生物学に資するものである。しかし、これらのどの実験も長期ではなく、その結果、このような緩衝材中の長期の微生物挙動の評価には限界があった。そこで、緩衝材として使われるベントナイト中の微生物挙動を予測するための類似システムとして天然のベントナイトを評価することを目的に、ベントナイト鉱床の微生物研究を行った。研究結果は、地下水とニアフィールド母岩の微生物に接触した圧縮緩衝材の理論的な長期の性能を把握するのに貢献できる。こういう最終目的のもと、ベントナイト層の表面が乱されず、かつ湿った状態で長期間放置されてきたサイトを選定して掘削を行い、微生物混入を最小限とする手法でコアサンプルの物理化学的および微生物学的分析を実施した。結果をここに記す。

### 3.2 材料および方法

#### (1) コア採取地点の状況

日本のベントナイト鉱床の中で、4つの地点が掘削のために選定された。A地点およびB地点は、25~30 mの厚さのカルシウム型ベントナイト層を有する露天掘り鉱山（宮城県内の川崎鉱山）に位置する。これらの地点のベントナイトは、凝灰岩由来であり、100~200万年以上前に熱の影響を受けたと推定された（伊藤ら, 1999）。A地点およびB地点の海拔高度は各々275mと285mであった。A地点は、最大6mの水深で部分的に水草に覆われていた池の底から試錐された。試錐時（2001年11月26日）、A地点の水深は1.8 mであった。試錐の軸は鉛直線から40°の角度であった。B地点は、やはり2001年11月26日に、少量の藻類が繁殖する湿地表面から鉛直に試錐された。池と湿地は各々、6年間および2年間乱されずに放置されていた。A地点の池の底泥には厚さ10 cmの黒色の層があり、B地点の表面直下には厚さ1 cmの黒色の層があったので、両地点は嫌氣的と推定された。

C地点とD地点は最大7mの厚さのナトリウム型ベントナイト層が頁岩の層の間に挟まれて存在する鉱山（山形県の月布鉱山）の坑道内に位置する。これらの地点のベントナイトは凝灰岩に由来し数十万年以上前に熱の影響を受けたと推定された（伊藤ら, 1999）。C地点およびD地点の海拔高度は各々93mと187mであった。C地点とD地点の坑道は各々、試錐日（2001年12月17日）の5年前と30年前に開設された。肉眼では生物は見られなかった。両地点の坑道壁は地下水で湿っており、試錐はそこからほぼ水平に実施された。コア採取地点の概況および試錐の状況を図3.1に示す。

#### (2) コア採取および試料の処理

コア採取には、A、C、およびD地点では伝統的な試錐機（福岡の東邦地下工機製D1-B）が、B地点ではプラスチックで覆われたコアを取れる機械（東京の利根製エコプローブ）が用いられた。コア採取のための試錐は、すべて掘削水を使わずに実施された（図3.1）。各地点では2つないし4つのコアが得られた。各コアの直径と長さは、各々75 mmと30~90

cm であった。各地点のコアの全体の長さは 140 cm と 170 cm の間であった。A 地点では、手で抜き出せなかったため、コアはケーシングから水圧により押し出した。

各地点からのコアは実験室に運ばれ、採取から 3 時間以内に、3~5 cm の長さの 4 つのセグメントを取るために切断された。セグメント試料の孔口（試錐を開始した地表面等）からの距離は、0~5 cm、20~30 cm、45~60 cm、および 90~110 cm に設定した。しかし、コアの対象部分がクラッシュ（破碎）状態だったり亀裂が入っている場合、この設定距離はいくらか変えてもよいこととした。セグメントの中央部は微生物学的試験のためのものであり、コンタミネーション（外部の微生物混入）の可能性あるこれらのセグメントの表面は火炎で処理したナイフで剥ぎ取った。表面の微生物の除去を確実にするため、この操作は繰り返された。これらのセグメントに接するコアの部分は物理化学的試験に提供された。A 地点の二つ目のコアの最上部（図 3.3 の A-0）は底泥試料として同様に処理された。上記の手順は大気中で実施された。

各地点の水環境を記録するため、各々の孔口の近くの水の試料を採取した。A 地点は池の水、B 地点は近くの斜面からの湧水、C 地点と D 地点は坑道壁からの地下水である。これらの試料は物理化学的および微生物学的試験に供された。

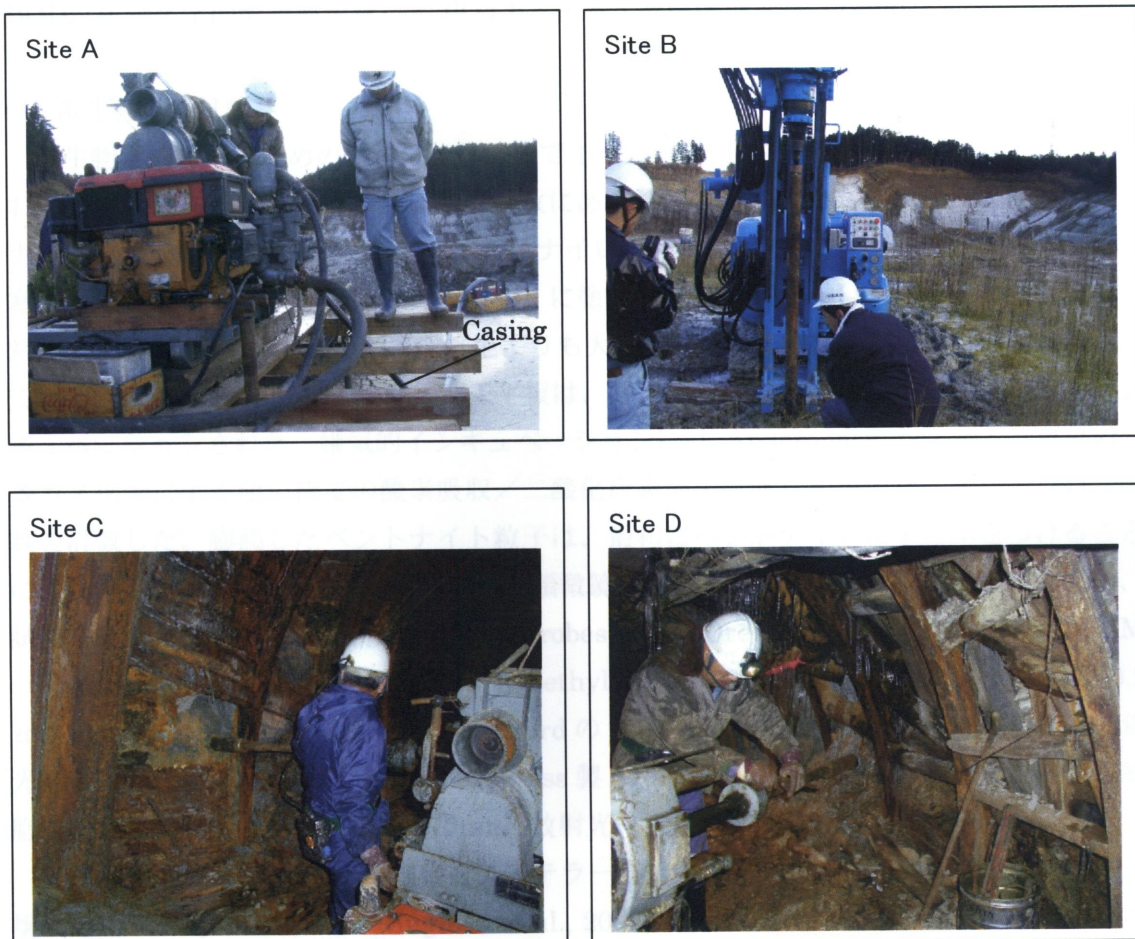


図 3.1 ベントナイト鉱床調査における調査地点(site)の概況と試錐の状況

### (3) 物理化学的試験

物理化学的試験は、標準法（日本ベントナイト工業会，1977）に従い、次に述べるように実施した。含水率（湿重量あたりの水分％）と含水比はセグメント試料の内部を微粉状に破碎したのち 105℃で 24 時間乾燥させて測定した。乾燥密度は、正確な目盛り付きの水槽に乾燥重量既知の試料を浸漬し、水位の上昇を測定することにより求めた。モンモリロナイト含量は、ベントナイトの乾燥重量 100g あたり 140mmol のメチレンブルー吸着量がモンモリロナイト 100%を意味するという前提で、メチレンブルー吸着量により測定した。陽イオン交換容量(CEC)は酢酸アンモニウムによるイオン交換法で測定した。浸出陽イオン(LC)組成は、酢酸アンモニウム抽出液の原子吸光分析で求めた。有機物含量の指標としての強熱減量の測定は 550℃、30 分で実施し、pH は破碎試料の 2 g を 100mL の蒸留水に懸濁させたのち測定した。底泥試料の A-0 については、含水率、含水比、強熱減量、および pH のみ測定した。

水質は次の方法により測定した。温度と pH：携帯用計器 PH81-11（東京の横河）。電気伝導度：携帯用計器 SC51（横河）。DOC（溶解性有機炭素）および IC（無機炭素）：TOC-500（京都の島津）。COD（化学的酸素要求量）：DR-2000 型 COD 計（米国 Colorado の Hach）。BOD（生物化学的酸素要求量）と PO<sub>4</sub>-P：日本工業標準調査会（1998）。

### (4) 微生物学的試験

微生物学的試験のための試料は、分析まで 10 日以内の期間、2～4℃で保存した。好気性および嫌気性従属栄養細菌の平板培養計数にあたり、試料は破碎、希釈し、大きなベントナイト粒子を除去するため無菌の 20 μm ナイロンメッシュでろ過した。次いで試料を R2A 寒天培地（Reasoner & Geldreich, 1985）に塗抹した。R2A 培地は、ベントナイト試料に対し PTYG、あるいは 1:100PTYG 培地よりも大きなコロニー計数値が得られると報告されている（Haveman et al., 1995）。寒天平板は、好氣的または嫌氣的に 7 日間、20℃でインキュベーションされた。嫌氣的インキュベーションには Anaeropack システム（東京の三菱ガス化学による使い捨ての酸素吸収／二酸化炭素発生試薬）を用いた。次いでコロニー数を計数した。膨潤したベントナイト粒子は、最初にベントナイト粒子に印をつけることにより本当のコロニーと識別した。一方、顕微鏡によって生きている細胞を計数するため、試料を懸濁、破碎、希釈し、Molecular Probes（米国 Oregon, Eugene）製の CFDA-AM（Carboxyfluorescein diacetate acetoxymethyl ester）で染色した。試料は次いで孔径 0.2 μm のメンブレンフィルタ（英国 Brentford の Whatman 製 Anodisc 25）上に濃縮し、蛍光顕微鏡（ドイツ Oberkochen の Carl Zeiss 製 AXIOVERT 135）を用いて蛍光を発する細胞を計数した。励起光波長は約 470nm、放射光（蛍光）波長は 530nm であった。

CFDA-AM は、生きている細胞をエステラーゼ活性で検出するため開発され、すでに土壌に応用（Tsuji et al., 1995; Sugiura et al., 2003）されてきたブローブ群に属する。アクリジンオレンジや DAPI(4',6'-diamidino-2-phenylindole dihydrochloride)を用いた直接計

数法に影響を与える土壌粒子の妨害 (Haveman et al., 1995) を避けるため、ベントナイト試料に採用された。土壌粒子あるいは上記の操作の間に混入する細菌による誤った結果 (artifact) をチェックするため、1つのセグメント試料を3回オートクレーブし同じ手順で試験した。この negative control の細胞数はゼロであり、本法の信頼性が示された。

### 3.3 結果

4つの地点で得られたコアの写真を図 3.2 に示す。また、それらの組成、および分析されたセグメント試料の位置の図を、図 3.3 に示す。

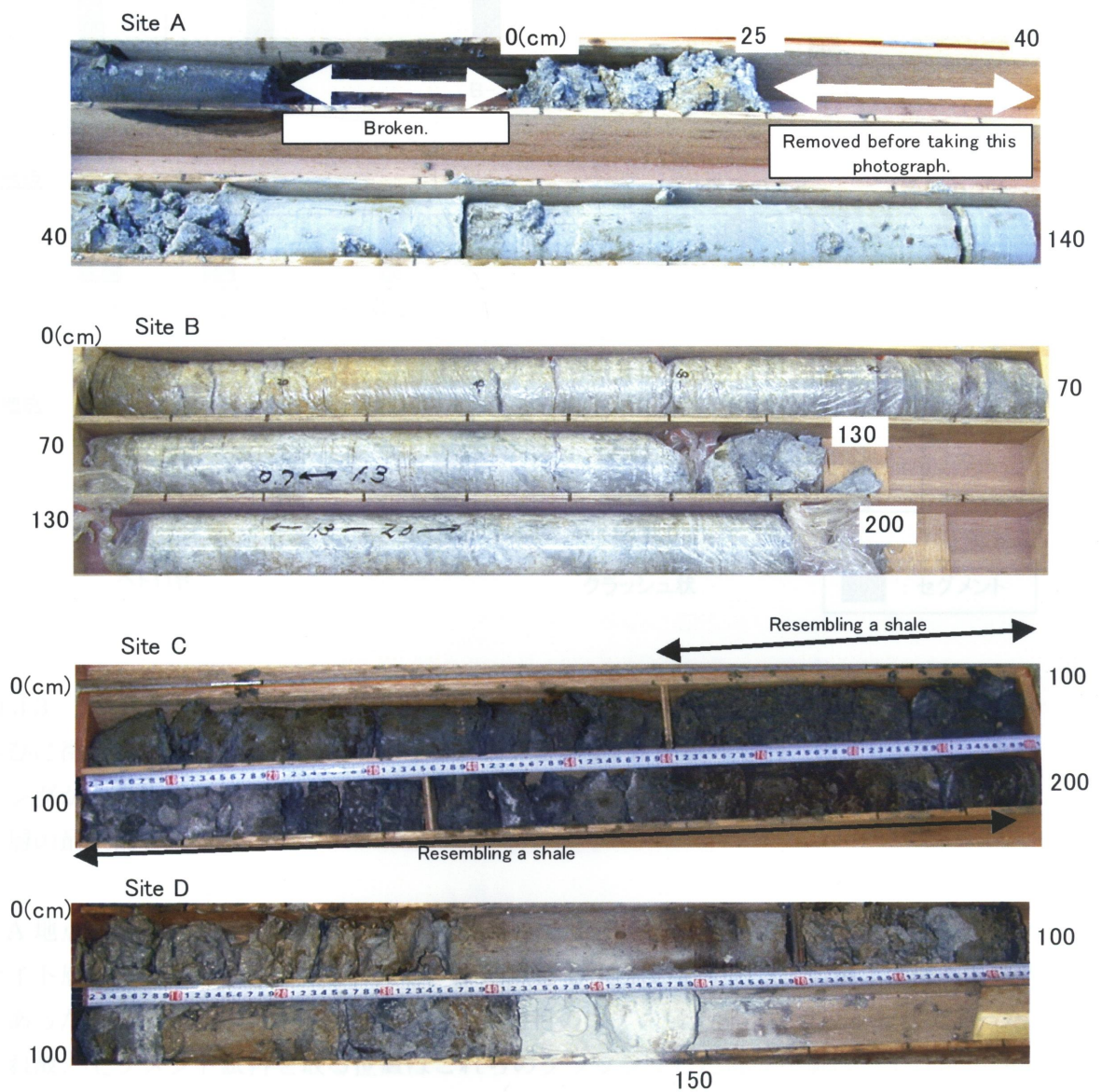
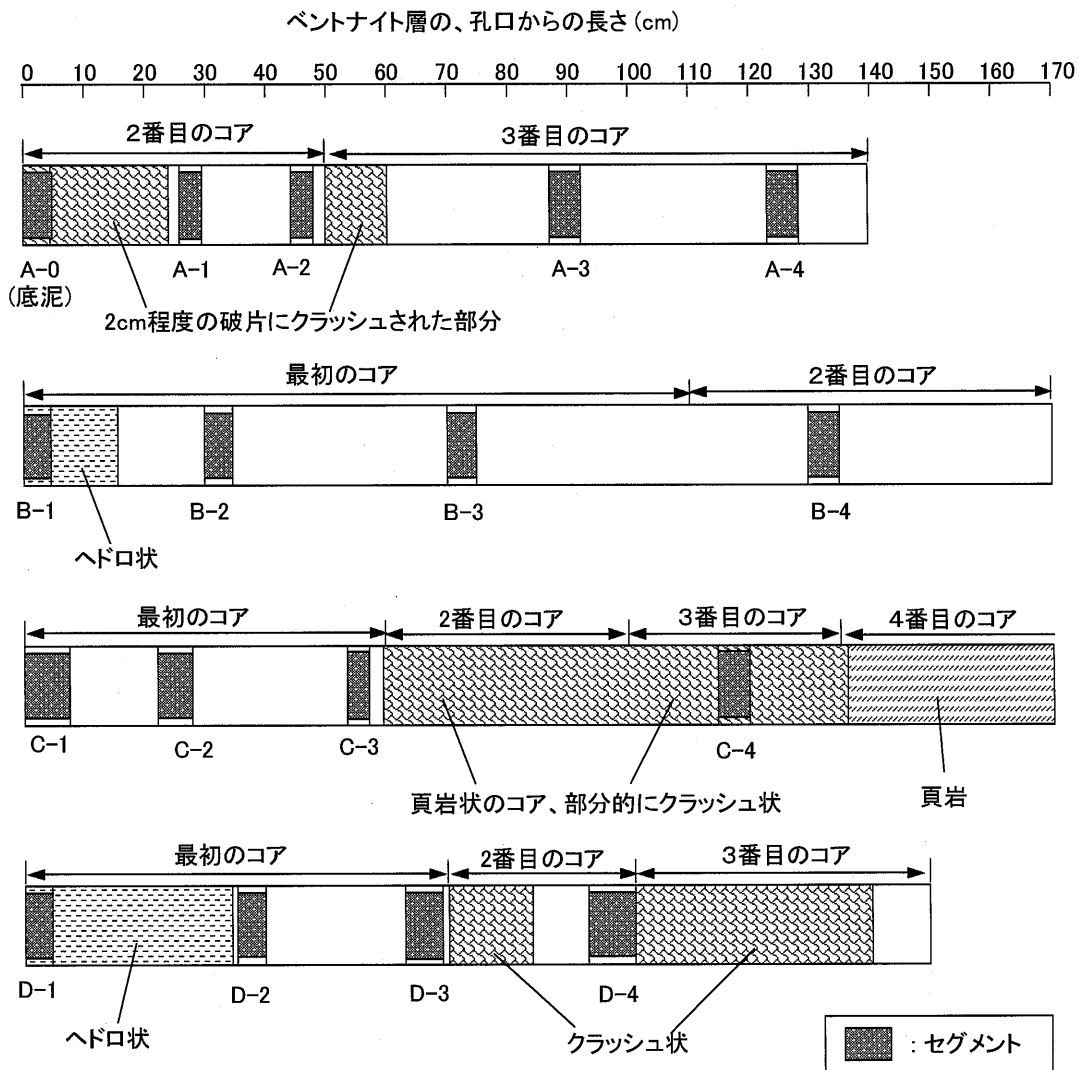


図 3.2 A、B、C、および D 地点 (site) で得られたコアの写真



、 A、 B、 C、 および D 地点で得られたコアの状況。A-1 などの記号は、物理化学的な微生物学的試験に用いられたセグメントを示す。B 地点の最初のコアの長さは、ケーブからの抜き出しの際 1.57 倍に伸びたあとの長さである。A 地点の孔口は、ベントナイトの最上部を示す。

地点の最初のコア（図 3.3 には示されない）とおそらく 2 番目のコアの最上部はベントナイト層を含まずむしろ底泥といえる。B 地点と D 地点の最初のコアの最上部はヘドロ状だった。A、 C および D 地点の 2 番目と 3 番目のコアの最上部はクラッシュ状であった。なお、セグメント試料を取る位置はこれらのクラッシュした部分を避けるよう修正された。B 地点の最初のコアはケーシングからの抜き出しの際 1.57 倍伸びたが、図 3.3 に示された長さは伸びたあとのものである。A 地点と B 地点からのコアの色は青灰色であった。C 地点からのコアは灰色であった。D 地点からのコアは灰白色で、孔口から離れるほど硬く

なった。

セグメント試料の物理化学的性質を表 3.1 に示す。A 地点 (A-0 を除く) では、pH 値とモンモリロナイト含量はどちらも高く、Ca<sup>2+</sup>の LC (浸出陽イオン) 量は Na<sup>+</sup>のそれと近い値であった。深さとともに含水率は低下し乾燥密度は上昇した。B 地点では、B-1 で pH とモンモリロナイト含量が低かった点を除けば、物理化学的性質は A 地点と同様であった。C 地点の坑道内では、Ca<sup>2+</sup>の LC 含量は C-4 を除き Na<sup>+</sup>のその半以下であった。強熱減量の値は概して A および B 地点より低かった。C-3 と C-4 のセグメントでは、C-1 および C-2 と比べて、含水率はより低く、乾燥重量はより高く、pH 値は中性かやや酸性で、モンモリロナイト含量はより低かった。これらのコアは頁岩のように見えた。坑道が 30 年前に開かれた D 地点からのコアは、孔口では高い含水率と低い乾燥密度を示した。しかし、孔口から離れるにつれ、含水率は低下し乾燥密度は顕著に増加した。C 地点と同様、Ca<sup>2+</sup>の LC 含量は概して Na<sup>+</sup>のそれよりずっと小さかったが (D-1 を除く)、モンモリロナイト含量と強熱減量は C 地点の典型的データ (C-1, C-2) より低かった。

コア試料の細菌数のプロファイルを図 3.4 に示す。A 地点および B 地点の湿った孔口において、好気性従属栄養細菌の平板培養による計数値は 10<sup>5</sup>~10<sup>7</sup> CFU (コロニー数) /g DW (乾燥重量) であり、嫌気性従属栄養細菌のそれは 10<sup>3</sup>~10<sup>6</sup> CFU/g DW であり、CFDA-AM で染色した細胞数は 10<sup>8</sup>~10<sup>9</sup> /g DW であった。CFDA-AM 染色細胞数は深いセグメントほど低下する傾向があった。B-4 (深さ 90~95cm) では、好気性と嫌気性の従属栄養細菌のどちらも検出されないばかりか、CFDA-AM 染色細胞数も不検出であった。

C 地点の坑道内では、孔口 (C-1) において、好気性従属栄養細菌の平板培養による計数値は 10<sup>5</sup>~10<sup>6</sup> CFU/g DW であり、嫌気性従属栄養細菌のそれは 10<sup>4</sup>~10<sup>5</sup> CFU/g DW であり、CFDA-AM 染色細胞数は約 10<sup>7</sup> /g DW であった。しかし、これらの計数値のすべては孔口から離れたセグメント (C-2, C-3, C-4) のいずれでも同様に低くなった。D 地点の孔口 (D-1) の細菌数は C-1 のそれと同様であり、その数は孔口から離れるほど減少する傾向があった。しかし、好気性従属栄養細菌の数と CFDA-AM 染色細胞数は C 地点より高かった。

孔口の近くの水の性質を、表 3.2 に示す。pH 値は D 地点を除き、コアにおける値とほぼ同程度であった。B、C および D 地点の水試料について、好気性従属栄養細菌の平板培養法による計数値は 1×10<sup>4</sup> と 3×10<sup>4</sup> CFU/mL の間であり、嫌気性従属栄養細菌のそれは 2×10<sup>2</sup> と 2×10<sup>4</sup> CFU/mL の間であった。A 地点から採取した池の水の平板培養法による計数は行わなかった。

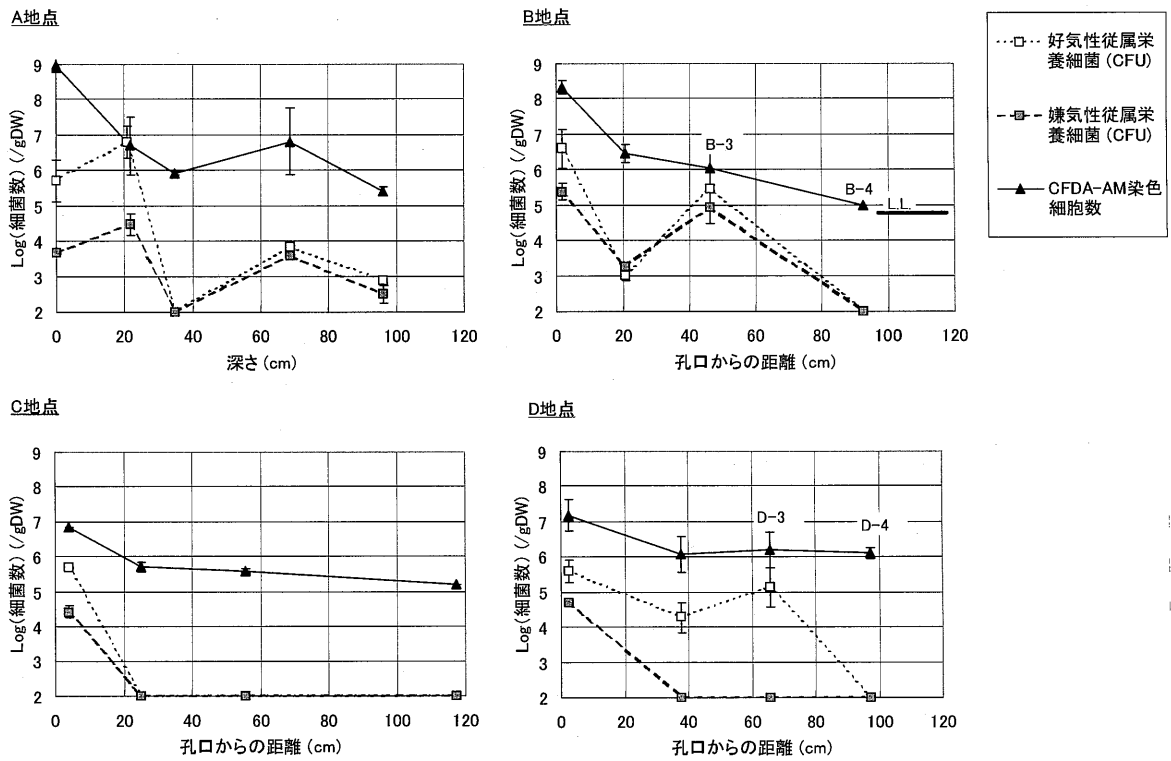


図 3.4 A、B、C、および D 地点の細菌数の試錐機の軸に沿った分布。各点は平均値であり、標準偏差を示すエラーバーとともに示した。A 地点の深さは、試錐機の軸の鉛直線からのズレを反映させたものである。LL は CFDA-AM 染色細胞数の検出下限を示す。検出限界（好気性および嫌気性従属栄養細菌では  $10^2$  CFU/g DW、CFDA-AM 染色細胞数では  $10^5$  以下の細菌数はそれらの検出限界値の位置にプロットした。

表 3.1 コア試料の物理化学的性質

地点-セグメント	孔口からの距離(cm)*	含水率 (g/100g WW)	含水比 (g/100g DW)	乾燥密度 (gDW/cm <sup>3</sup> )	モンモリロナイト (mmol-methylene blue /100g DW)	CEC (meq/100g DW)	LC (meq/100gDW)				強熱減量 (g/100g DW)	pH
							Na	Ca	Mg	K		
A-0	0-5 (0-4)	83.5	506.4	ND <sup>b</sup>	ND <sup>b</sup>	ND <sup>b</sup>	ND <sup>b</sup>	ND <sup>b</sup>	ND <sup>b</sup>	ND <sup>b</sup>	5.9	7.9
A-1	27-30 (21-23)	43.4	76.5	0.852	103.5	81.7	44.7	35.5	7.0	3.2	3.3	9.8
A-2	44-47 (34-36)	41.3	70.2	0.892	97.0	76.4	42.5	42.9	6.9	2.2	4.2	9.8
A-3	87-92 (67-70)	34.7	53.1	1.056	107.0	82.3	46.5	35.7	7.3	2.5	4.5	9.9
A-4	123-128 (94-98)	33.5	50.3	1.157	111.0	89.0	47.5	38.0	7.2	4.2	4.4	10.0
B-1	0-3	40.3	67.4	0.901	54.5	47.3	22.3	27.1	7.1	2.5	4.5	9.4
B-2	19-22	32.0	47.1	1.071	105.0	60.2	46.6	39.4	7.2	3.3	4.9	9.8
B-3	44-48	30.4	43.7	1.126	102.0	93.0	42.3	38.0	6.1	4.3	5.1	9.9
B-4	90-95	31.3	45.5	1.151	101.5	83.4	44.9	36.9	7.0	3.9	4.1	9.9
C-1	0-8	42.6	74.2	0.930	105.5	86.6	67.8	25.2	6.9	4.2	4.8	9.8
C-2	22-28	30.7	44.3	1.166	113.5	96.7	59.6	22.1	10.2	3.7	2.8	9.5
C-3	54-57	23.0	29.8	1.371	59.0	48.1	30.0	12.3	9.2	2.0	3.6	5.7
C-4	115-120	22.5	28.9	1.498	76.0	64.0	39.2	33.2	20.7	2.5	3.3	6.6
D-1	0-5	72.8	267.6	0.320	68.5	61.0	38.6	55.0	9.9	3.2	2.8	9.7
D-2	36-40	53.0	112.5	0.738	73.5	60.5	45.4	22.5	5.4	2.6	2.0	9.7
D-3	63-69	26.6	36.2	1.385	70.0	57.4	47.2	19.9	3.6	3.2	1.7	9.9
D-4	93-102	17.4	21.0	1.546	71.0	59.5	51.3	18.0	3.5	1.6	2.0	10.0

<sup>a</sup> B地点における孔口からの距離は、コアが伸びた分の補正を反映している。A地点では、試錐機の軸が鉛直線からズレていることに配慮し、池底(ベントナイト上面)からの深さも計算して、カッコ内に示した。

<sup>b</sup> データなし。

略語: WW=湿重量。DW=乾燥重量。CEC=陽イオン交換容量。LC=浸出陽イオン。



表 3.2 孔口近くの水の性質と細菌数

地点	温度 (°C)	pH	電気伝導度 (mS/cm)	ORP (mV)	COD (mg/L)	BOD (mg/L)	DOC (mg/L)	IC (mg/L)	PO <sub>4</sub> -P (mg/L)	好気性従属栄養 細菌数の平板培 養計数値 (CFU/mL)	嫌気性従属栄養 細菌数の平板培 養計数値 (CFU/mL)
A <sup>a</sup>	11.7	9.45	0.78	ND <sup>e</sup>	10	4	7.6	38	0.016	ND <sup>e</sup>	ND <sup>e</sup>
B <sup>b</sup>	12.6	9.33	0.21	38	7	2	2.9	10	0.039	2.1x10 <sup>5</sup>	7.8x10 <sup>2</sup>
C <sup>c</sup>	8.7	9.36	0.77	33	6	<1	3.3	91	0.147	2.8x10 <sup>4</sup>	2.2x10 <sup>3</sup>
C <sup>d</sup>	11.4	8.30	0.76	75	9	ND <sup>e</sup>	ND <sup>e</sup>	ND <sup>e</sup>	ND <sup>e</sup>	1.0x10 <sup>4</sup>	1.6x10 <sup>2</sup>
D <sup>c</sup>	2.4	3.85	0.39	383	5	ND <sup>e</sup>	4.0	<1	0.026	2.8x10 <sup>4</sup>	2.0x10 <sup>4</sup>

<sup>a</sup> 池の水。温度を除くすべての分析は2002年2月22日に採取された試料に対して行われた。

<sup>b</sup> 湧水。

<sup>c</sup> 坑道内の地下水の流れ。

<sup>d</sup> 坑道の天井から滴下する地下水。

<sup>e</sup> データなし。

略語: ORP=酸化還元電位I (比較電極は塩化銀電極)。COD=化学的酸素要求量。

BOD=生物化学的酸素要求量。DOC=溶解性有機炭素。IC=無機炭素。

### 3.4 考察

我々の調査では、孔口に存在する微生物が深いセグメント試料に混入する可能性が完全に排除されたわけではなかった。しかし、この可能性は、B、CおよびD地点では、掘削水なしの試錐と火炎で処理したナイフによるコアのセグメントの無菌的な剥ぎ取り手法により、最小になったと考える。調べられた細菌数が検出限界以下であった試料 (B-4) の存在は、微生物混入の影響が小さかったことの裏づけとなる。

調査の結果、孔口から離れるほど細菌数が低くなる傾向があった。これは、ベントナイト層の環境が細菌の存在に抑制的であることを示唆する。表 3.1 中の要因が図 3.4 中の細菌数に及ぼす影響を、最小 2 乗法を用いて検索した。モンモリロナイト、CEC、LC 含量、および pH が細菌数に及ぼす影響は有意でないことが、相関係数(R)により示された。R<sup>2</sup>値は 0.2 以下であった。その結果、有機物含量の低さか水分の低さが細菌の生存をコントロールし得る要因として挙げられた。図 3.5-a に示されるように、ベントナイト試料における強熱減量 (有機物含量の指標) と細菌数の間には顕著な相関は見られなかった。もし、ベントナイト中の大部分の有機物が細菌の増殖を促進するものでないとするならば、この弱い相関関係は予期されることである。実際、緩衝材や埋め戻し材の粘土中に天然に存在する有機炭素は難分解かもしれない (Stroes-Gascoyne & West, 1996)。一方、含水率の低下により細菌数が減少する傾向は実証された (図 3.5-b)。R<sup>2</sup>値は 0.25 と 0.35 の間であった。それ故、低い水分が細菌の生存をコントロールする要因である可能性がある。

次に、細菌の生存に及ぼす水分の影響を解析するため、細菌数は、飽和度ならびに乾燥密度 (空隙の指標) と比較された。G<sub>s</sub>=ρ<sub>s</sub>=2.7 と仮定して次式から飽和度が求められる (Ishikawa et al., 1990)。

$$S_r = (1/0.01n - 1) \cdot \omega \cdot G_s$$

$$n = (1 - \rho_a / \rho_s) \cdot 100$$

ここに、S<sub>r</sub> は飽和度、n は空隙率(%), ω は含水比 (g/g DW)、G<sub>s</sub> は土壌粒子の比重、ρ<sub>a</sub> は乾燥密度(g/cm<sup>3</sup>)、そしてρ<sub>s</sub> は土壌粒子の密度(g/cm<sup>3</sup>)である。図 3.5-c より、飽和度と細菌数の間には弱い相関関係しか存在しないことが示される (R<sup>2</sup> は嫌気性従属栄養細菌数については 0.15、他の菌数については 0.02 以下)。反対に図 3.3-d より、細菌数は乾燥密度の上昇に伴って低下することが示され (R<sup>2</sup>は 0.29~0.37)、これは含水率とも相関した。各地点ごとのこれらの相関関係も確認された (図 3.5-d)。細菌への水分の利用性あるいは栄養塩の拡散がベントナイトの高い乾燥密度 (低い空隙率) と小さな孔径 (Stroes-Gascoyne et al., 1999) によって制限され、これがベントナイト層の細菌の増殖と生存を抑制しているのかもしれない。

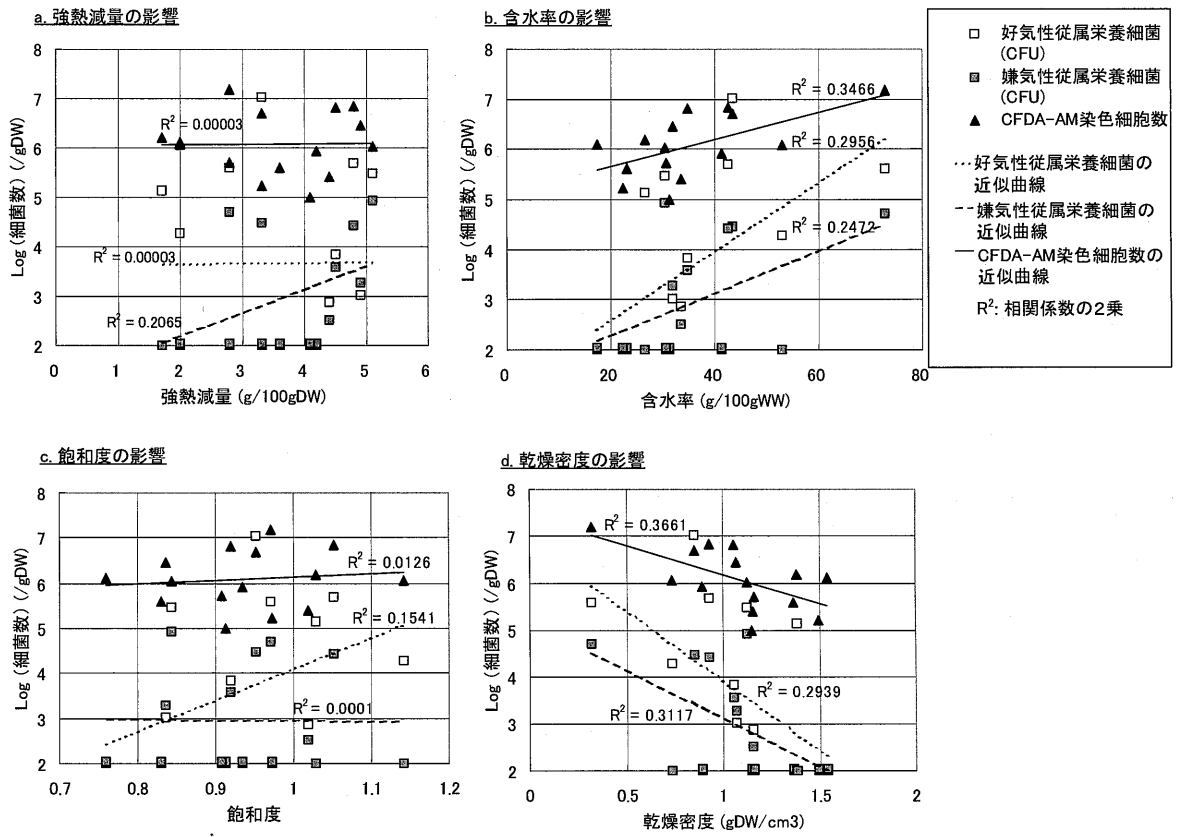


図 3.5 強熱減量、含水率、飽和度、乾燥密度と細菌数との関係。最小 2 乗法による近似曲線は、周辺環境から細菌が容易に移行し得る A-0 と B-1 のデータを除いて記載した。検出限界（好気性および嫌気性従属栄養細菌では  $10^2$  CFU/g DW、CFDA-AM 染色細胞数では  $10^5$  CFU/g DW）以下の細菌数はそれらの検出限界値の位置にプロットし、近似曲線と  $R^2$  の計算にも取り入れた。

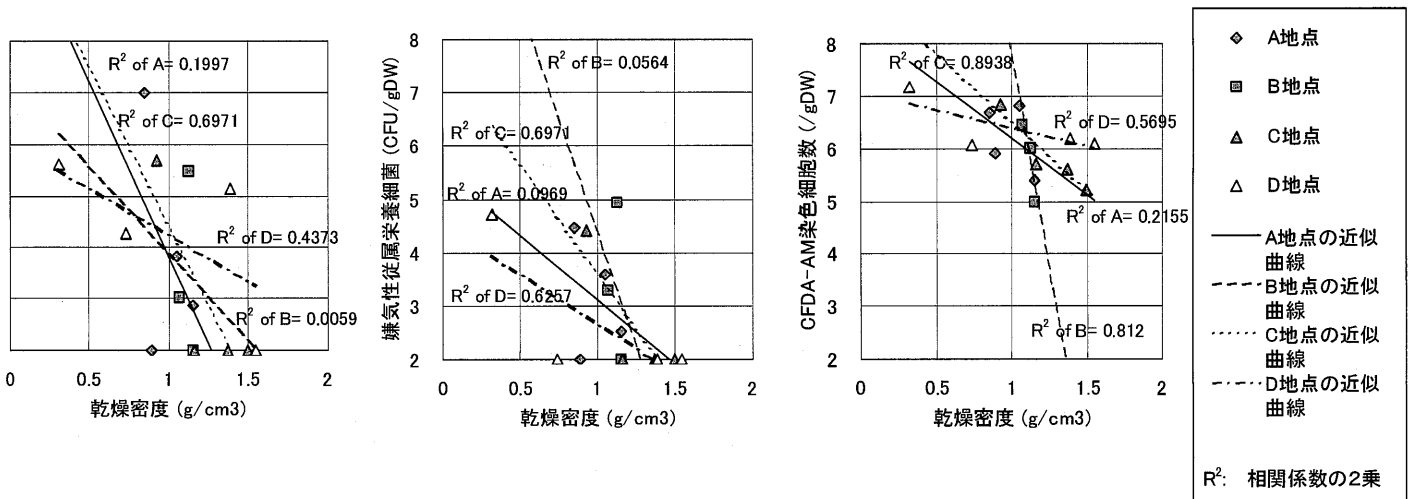


図 3.6 各地点の乾燥密度と細菌数との関係。近似曲線は図 3.5 と同様に描いた。検出限界以下の細菌数は、図 3.5 と同様にプロットした。

しかし、少なくとも1つの重要な矛盾が残る。CFDA-AM 染色細胞数は、乾燥密度が  $1.15 \text{ g/cm}^3$  であったセグメント B-4 において検出限界( $10^5/\text{g DW}$ )未満であった。逆に、乾燥密度が  $1.39$  と  $1.55 \text{ g/cm}^3$  であって環境が細菌に一層抑制的と思われた D-3 で  $1.6 \times 10^6/\text{g DW}$ 、D-4 で  $1.3 \times 10^6/\text{g DW}$  の CFDA-AM 染色細胞数を記録した (図 3.4、表 3.1)。地点 B と地点 D の細菌群の乾燥条件に対する感受性の違いによるかもしれない (Pedersen et al. 2000a; Pedersen et al. 2000b; Stroes-Gascoyne et al. 2002 参照)。

ベントナイト層の低い細菌数のもう 1 つの理由として、微生物移行のしにくさが挙げられる。B-4 での乾燥密度は B-3 のそれと同等であった。しかし、B-4 では細菌は検出されず (好気性および嫌気性従属栄養細菌  $<10^2 \text{ CFU/g DW}$ , CFDA-AM 染色細胞数  $<10^5/\text{g DW}$ )、これに対し B-3 では各々、 $3.0 \times 10^5 \text{ CFU/g DW}$ 、 $8.4 \times 10^4 \text{ CFU/g DW}$ 、 $1.1 \times 10^6/\text{g DW}$  であった。もしこれが距離によるものとすれば、ベントナイトは細菌の有効なフィルタとして働くといえる。ベントナイト主体の緩衝材の孔径分布 (Stroes-Gascoyne et al., 1999) と圧縮ベントナイトを用いた細菌の移行試験結果 (Stroes-Gascoyne et al., 1999; Fukunaga et al., 2001) は、この可能性を支持する。

これらの地点で乾燥密度が細菌数をコントロールしたのか、あるいはろ過がより重要なのかは、依然として明白でない。深さ 1m のコア試料 4 つのすべては、低い数の細菌しか含んでいなかった (図 3.4)。つまり、好気性および嫌気性従属栄養細菌の両方が池底(A-4)を除いて  $10^2 \text{ CFU/g DW}$  以下であり、CFDA-AM 染色細胞数は  $10^6/\text{g DW}$  以下であった。この結果は、いくつかの他の研究で見出されたことと符合する。R2A 培地で測定されたベントナイト製品の好気性従属栄養細菌数は、カナダの Avonlea site で  $3.48 \times 10^4 \text{ CFU/g DW}$ 、米国の Wyoming site で  $1.07 \times 10^2 \text{ CFU/g DW}$  以下であった (Haveman et al., 1995)。Musslewhite et al.(2003)は彼らの総説の中で、粘土中の微生物活性は砂の底泥中よりも低いことを報告した。本研究は、これらの過去の研究のデータを、平板培養法だけでなく CFDA-AM による細胞計数法によって確かめた。天然のベントナイト層の微生物活性は土壌や水域の底泥より低いようであり、砂漠の環境で得られた値と同等のようであった。エジプトの Western 砂漠の表面(約 2 cm の深さ)における CFDA-AM 染色細胞数として  $10^5/\text{g DW}$  という値がある (Tsuji & Hon-nami, 三菱化学生命研究所による“砂漠の耐熱性細菌”、未発表)。更に、コアの軸に沿った細菌の分布は、湿った孔口の細菌がベントナイト層内部に容易に移行しないことを示唆する。

放射性廃棄物地層処分のための緩衝材における微生物の挙動を予測するためのナチュラルアナログシステムとしてのベントナイト鉱床についての我々の研究を評価するにあたり、次のことには配慮しなければならない。例えば、本調査のコアの乾燥密度は  $1.4 \text{ g/cm}^3$  未満 ( $1.55 \text{ g/cm}^3$  であった D-4 を除く) であるのに対し、緩衝材で想定される乾燥密度の値は  $1.6 \text{ g/cm}^3$  である (核燃料サイクル開発機構, 1999)。調査は各地点で 1 回しか実施されず、Eh の影響も確認できなかった。緩衝材中の微生物の長期的な挙動を評価するためには、上

記の限界を説明するための更なる調査が求められる。

### 3.5 結論

本調査に基づき、次のことが言える。

- ベントナイト層の環境は細菌の増殖と生存にとって好ましいものではない。
- この特性は、高い乾燥密度（低い空隙率）か、またはベントナイトによる細菌の過作用などの要因に起因するであろう。
- 細菌は、ベントナイトの湿った表面からベントナイトの内部に容易に移行しない。

## 4. 微生物影響評価のための帯水層模擬試験

### 4.1 目的

前々章で述べたように、微生物影響のモデル化の課題の一つに、物理モデルの開発と活用が挙げられる。物理モデルには、数値モデルに入力するため微生物に関するパラメータを現場に近い条件で把握すること、そして確証のための実験系を提供することという二つの活用法があると考えられる。ここでは前者に絞って、ただし後者にも使えるような物理モデルの開発と試験を行った。対象とする場合は、岩盤を対象とした試験（例えば Vandergraaf et al., 2002）ほどニーズは大きくないが、それに向けての基礎データが得られ、また透水性が大きく比較的短時間で結果が得られる「砂の堆積物層」とした。これに連続的に地下水を流入させて飽和状態とし、雰囲気は処分場閉鎖から長期間経過後を想定して嫌氣的とする装置を製作した。これを帯水層模擬試験装置と称する。

帯水層模擬試験装置で運転中に人為的にコントロールできる項目は、温度、流入地下水流速、流入地下水水質である。アウトプットとして測定できる項目は、微生物量、コロイドとして流出する微生物量、pH、Eh、酸化還元反応の基質と生成物、ガス発生、および空隙閉塞である。分析方法が確立すれば測定できる項目は、錯体と核種である。測定を計画していない項目は、金属腐食、ベントナイト変質、ガス消費、および廃棄体の浸食である。この設定により、天然バリアに応用可能な試験ができると考えた。

### 4.2 試験装置

砂を充填した帯水層模擬試験装置は、まず嫌氣的雰囲気に保つことが必要とされる。そのためには最低限、砂充填部を密閉すればよいが、流入水や流出水は好氣的になってしまう。流入水槽や流出水槽の気相への嫌氣性ガスの連続通気という手段もあったが、より安定な嫌氣性維持のため全体を雰囲気制御グローブボックス内に設置することとした。装置には地下水を連続的に通水するが、実際的な流速を極端に越える流速を避けつつ水質分析用のサンプルを一定量以上得たかったので、装置もある程度以上の大きさにする必要があった。流れ方向は鉛直と水平とが考えられた。流れの均一性の点では鉛直流が好ましいが、グローブボックス内に設置する点と流れ方向の水質プロファイルを取りたい理由から水平流とした。水平流なら流れの途中で水のサンプリングをしたり、pH、Eh をモニタできる。

このようなコンセプトで試験装置を組み立てた。類似のコンセプトの装置としては、Hama et al.(2001)がある。図 4.1 に試験装置のフロー概要を、図 4.2 に写真を、表 4.1 に試験装置の仕様を示す。本体は有効容積約 3.6L の直方体で、水は 80mesh のスクリーンで仕切られた水槽（図 4.1 に流入水、中間水、流出水と表示した 3 箇所）と砂層（図 4.1 に上流砂層、下流砂層と表示した 2 箇所）を順次、横方向に流れる。水槽には pH 計と ORP 計のセンサーを挿入し、砂層の上面にはガス採取用のゴムパッキン（ガスクロ用）を設置した。装置は温度 30℃ に制御されたインキュベータ内に設置し、そのインキュベータを雰囲気制御グローブボックス内に設置した。雰囲気制御グローブボックスは Ar 置換により酸素濃度

300ppm 以下となるようにした。さらに酸素濃度を下げるにはアルゴンガス循環精製装置（図 4.1）を稼動させなければならないが、そのためには電子供与体として微生物に利用される可能性のある水素を注入しなければならないので、使用しなかった。原則として週 1 回、新しい地下水または模擬地下水を外部に出した地下水貯槽に調製して、Ar 置換後、サイドボックスからグローブボックス内に入れた。平行して流出水貯槽の液をグローブボックス外に排出した。

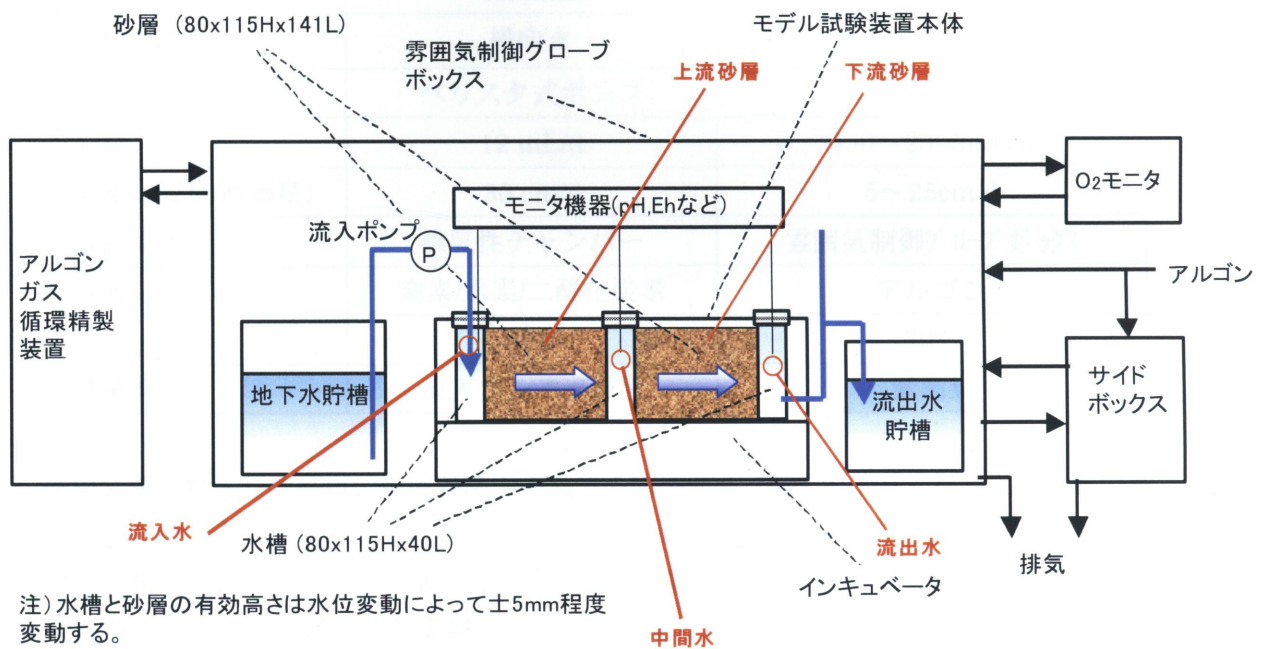


図 4.1 帯水層模擬試験装置のフロー概要

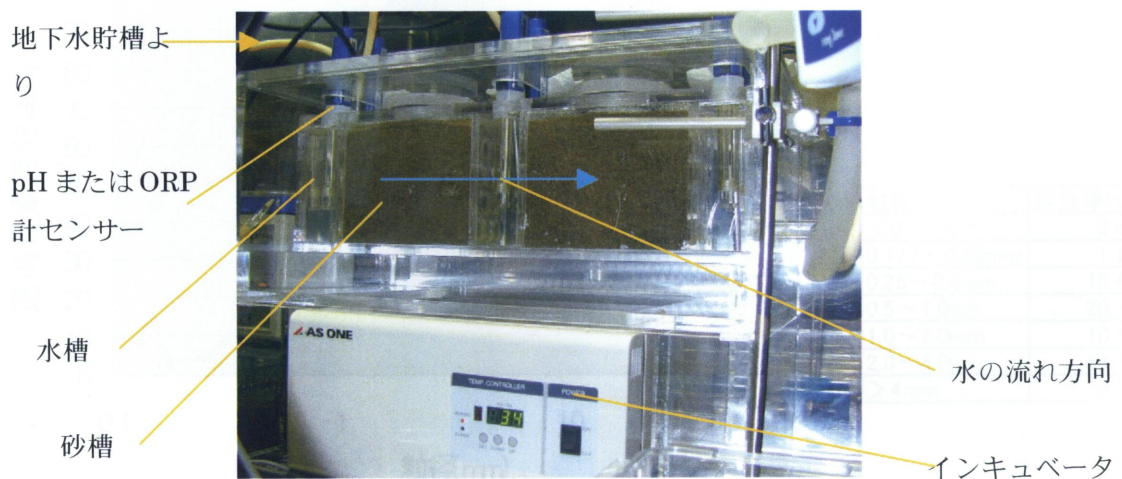


図 4.2 帯水層模擬試験装置の外観写真

表 4.1 試験装置の仕様および文献との比較

	Hama et al.(2001)	本研究
部材質	Polyetheretherketone	アクリル
部断面積	0.38 cm <sup>2</sup>	92 cm <sup>2</sup>
部中の充填長さ	30 cm	28.2 cm
部空塔容積	11.4 mL	2594 mL
方向	横向き	横向き
方法	ペリスタ式ポンプ	ペリスタ式ポンプ
	12 mL/d	450~2300mL/d
(流量/断面積)	30 cm/d	5~25cm/d
場所	嫌気性チャンバー	雰囲気制御グローブボックス
気	窒素/水素/二酸化炭素	アルゴン
	30℃	30℃
性	流入水をろ過滅菌	滅菌無

置に投入した砂は、茨城県潮来市島須の露頭から 2002 年 9 月に採取した。この地れき層と考えられる。その砂の、篩による粒度分布 (図 4.3) を見ると、段丘れき粗いものであり (岩田進午ほか, 1997)、鉄の色が目立つ。露頭の状況を図 4.4 にお、本装置に通水した実際の地下水は、同じく島須れき層の別の場所から採取しある。

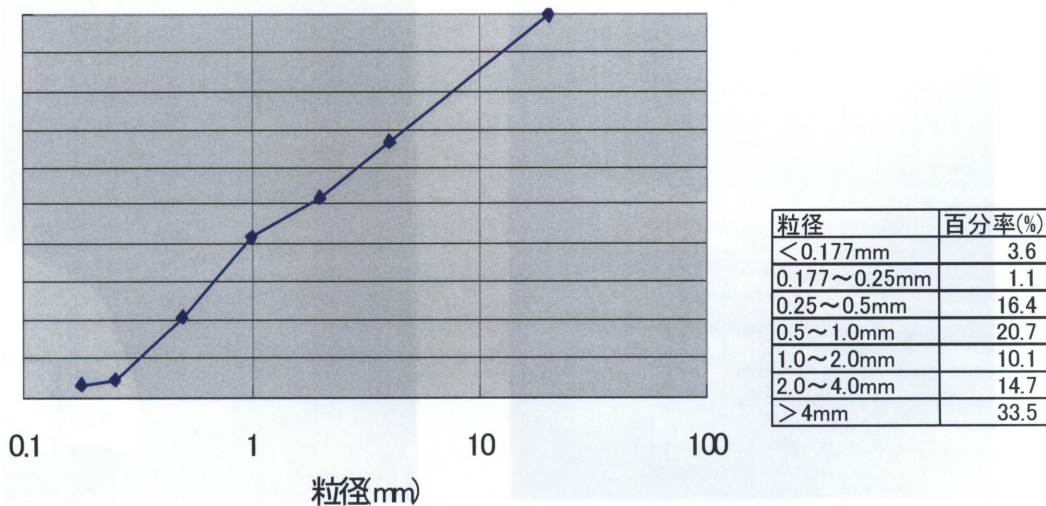


図 4.3 島須れき層の砂の粒径分布



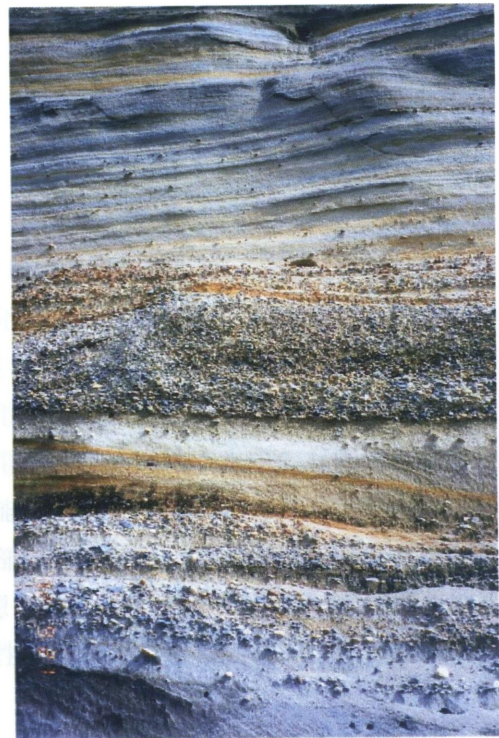
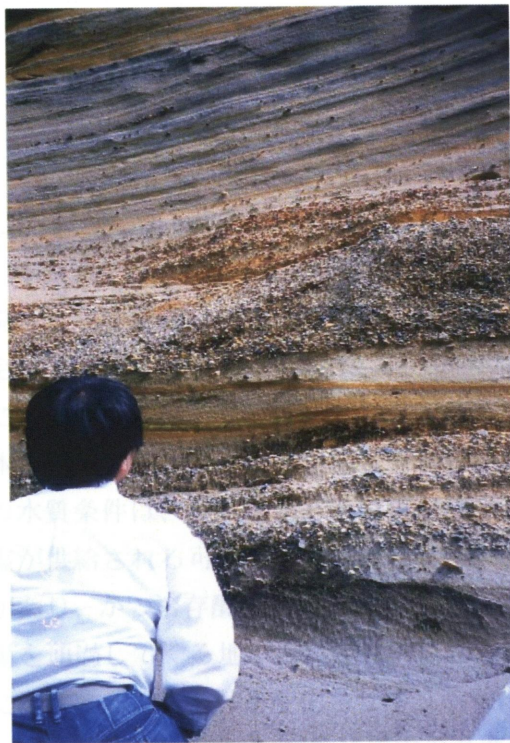


図 4.4 島須れき層の露頭の状況

以上のように採取した砂は、篩分けを行い、粒度 0.25~0.5mm のものを集めた。その真比重をピクノメータで、表面積を比表面積計（島津製フローソープⅡ 2300）による BET 一点法で、空隙率をピクノメータで測定した結果を表 4.2 に示す（椿ら, 2002 参照）。

試験装置には、この砂を深さ 115mm まで充填した。図 4.1 の流入水の地点に、トレーサーとして硫酸イオンをパルス投入し（塩素イオンは結果が不安定であったので硫酸イオンを用いた）、その流出状況を測定した結果を図 4.5 に示す。硫酸イオンのピークの時間は、流量、空隙率から推定した理論値とほぼ一致しており、短絡流は認められなかった。

表 4.2 試験装置に投入した砂の物性

真比重	2.69 g/cm <sup>3</sup>
比表面積	6.8 m <sup>2</sup> /g
空隙率	46 %
有機物含量	0.86 %

有機物含量 = 強熱減量 / 固形物量

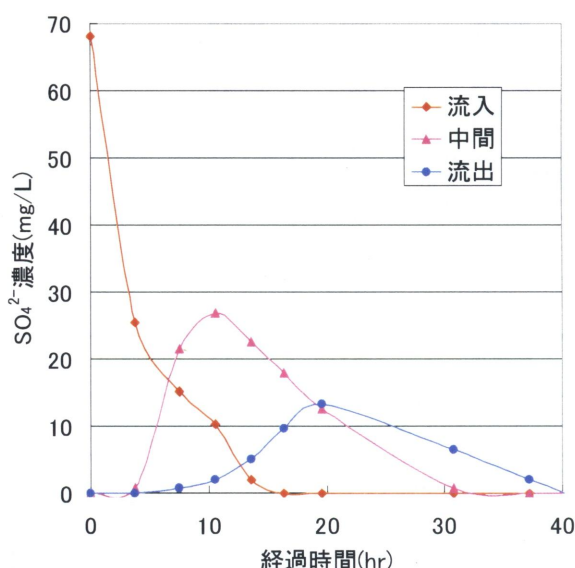


図 4.5 トレーサー試験結果

### 4.3 試験方法

本試験では、想定される 6 種類の電子受容体を用いる微生物反応（前述 2.6 (4)）のうち、脱窒、硫酸還元、またはその他の反応（メタン発酵または鉄還元）が進行するケースを想定した。試験計画を表 4.3 に示す。流入水は水道水または地下水（水質は表 4.4）をベースに、人為的に電子受容体（硝酸塩、硫酸塩）と電子供与体（酢酸塩）を、または電子受容体のみを添加して用いた。後者の場合、主たる電子供与体は地下水中の有機物となる。この水質条件は、廃棄物から硝酸塩が流出する可能性があり、地下水または廃棄物から硫酸塩が供給される可能性があり、ピチューメンが部分的に分解した有機物が流出する可能性があり、かつ溶存酸素が消費され尽くすと予想される、開設数千年後の TRU 廃棄物処分場を通過してくる地下水に定性的には近い可能性がある。主として、これらの物質が砂層に流入する濃度条件を変化させて試験を行った。

表 4.3 の試験期間中、試験装置内の温度は 30±2℃、他の条件は表 4.1 のとおりであった。微生物について Hama et al. (2001)は滅菌した閃緑岩に 10<sup>7</sup>/g の単離した細菌を接種した。それに対し本試験では、砂は滅菌せず、微生物の接種も行わなかった。砂に存在する土着

の微生物から地下水等の流入によって形成される生物相の活性が評価されることになる。投入した砂の微生物量は、全菌数  $5.7 \times 10^6/\text{gDW}$ 、一般細菌数  $4.1 \times 10^5/\text{gDW}$  であった。全菌数は試験中に  $10^7/\text{gDW}$  台まで増加した。(後述図 4.6 および 4.7 の間隙水あたりの細菌数の約 1/3 が乾燥重量あたりの細菌数となる。)

表 4.3 帯水層模擬試験における流入条件

Run	砂	流入水ベース	Run-Case	通水開始後の日数	流量 (L/d)	間隙流速 (cm/d)	流入水への添加物			主な電子受容体	主な電子供与体		
							KNO <sub>3</sub>	K <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	酢酸塩				
1	2002年9月採取	水道水	1-1	0~29	0.8	19	1mM		1mM	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	酢酸塩		
			1-2	29~33	0.8	19	1mM						
			1-3	33~39	0.8	19	1mM		0.8mM	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	酢酸塩		
			1-4	39~43	2.3	54	1mM		0.2~1.6mM	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	酢酸塩		
			1-5	47~67	0.8	19	1mM		0.8mM	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	酢酸塩		
		地下水 (2003年1月採取)	1-6	67~71	0.4	9	1mM		0.8mM	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	酢酸塩		
			1-7	71~88	0.4	9							
			1-8	88~114	0.45	11	0.25mM			NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	地下水有機物		
			1-9	114~139	0.45	11		0.25mM		SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	地下水有機物		
			1-10	139~150	0.3	7							
			1-11	150~166	0.45	11			0.8mM	CO <sub>2</sub> 、酢酸塩	酢酸塩		
					(4ヵ月中断)								
		水道水	1-12	168~176	0.4	9							
			1-13	176~230	0.75	18			0.125mM	0.8mM	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	酢酸塩	
	1-14	230~290	0.4	9			0.125mM	0.8mM	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	酢酸塩			
2	2004年10月採取	地下水 (2004年10月採取)	2-1	0~26	0.5	12							
			2-2	26~78	0.5	12	0.25mM	0.125mM	0.8mM	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> 、SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	酢酸塩		
			2-3	79~100	0.5	12	0.25mM	0.125mM		NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> 、SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	地下水有機物		
			2-4	100~134	0.25	6	0.25mM	0.125mM		NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> 、SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	地下水有機物		

注) Run 1は2002年12月14日に試験開始。Run 2は2004年10月22日に試験開始。  
Run 1における上流砂投入量は湿重量2.5kg、下流砂投入量は湿重量2.3kg。砂の含水率は26%、強熱減量は6.35g/kgであった。  
Run 2における上流砂投入量は湿重量2.3kg、下流砂投入量は湿重量2.2kg。砂の含水率は28%、強熱減量は6.65g/kgであった。  
地下水は、茨城県潮来市茨城大学広域水圏環境科学教育研究センター内の深さ10mの井戸より採取したもの。  
間隙流速とは、流量(mL/d)/断面積(92cm<sup>2</sup>)/空隙率を指す。

表 4.4 地下水および水道水の水質

試料	pH	EC	CODCr	DOC	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	NO <sub>2</sub> <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	P	Fe(II)	T-Fe	Mn	K	Na	Ca	Mg	Cl
		mS/m	mg/L	mgC/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L	mg/L
地下水	6.55	41.9	27.2	8.6	<0.18	<1	<1	0.28	0.07	33.4	約30	1.18	4.9	16.9	27.3	19.3	10.4
					<0.01	<0.02	<0.02	0.003	0.002	0.599		0.021	0.125	0.735	0.681	0.794	0.293
水道水	7.00	20.0	4.3	2.8	<1	8.3	25.8	0.32				<0.01	1.2	8.7	19.6	6.0	9.43
					<0.02	0.13	0.269	0.010			<0.001	0.031	0.378	0.489	0.247	0.266	
備考					sup.	sup.	sup.	sup.				sup.	sup.	sup.	sup.	sup.	sup.

注) 地下水は、2003年1月に、茨城県潮来市茨城大学広域水圏環境科学教育研究センター内の深さ10mの井戸より採取したもの。  
水道水は、2002年12月の横浜市の水道水である。  
NH<sub>4</sub><sup>+</sup>~Clまでの分析結果の単位は、上段がmg/L、下段がmMである。備考にsup.と記してある項目は上澄液を分析したもの。  
地下水は2003年1月、水道水は2002年12月の試料を分析した。

試験における各々の Case の目的は次のとおりである。

① Run 1 の Case 1~6

微生物の反応速度が大きく、微生物影響が検出されやすいケースとして、酢酸塩を電子供与体、硝酸塩を電子受容体とする脱窒反応が起きるような条件に設定した。これらの基質は水道水に溶解して通水した。流入開始後 39 日目からの Case 4 では、流速を上げ、か

つ酢酸塩の濃度を変えて基質濃度と脱窒速度との関係のデータの取得を試みた。Case 6では基質を地下水に溶解させて違いを調べた。

#### ② Run 1 の Case 7~11

基質は地下水に溶解させ、実際の帯水層により近い条件に設定した。Case 7で残存物質の洗浄のため地下水のみ通水し、その後、Case 8で電子受容体として硝酸塩を加え脱窒の進行を、Case 9では電子受容体として硫酸塩を加え硫酸還元の進行を目指す試験を実施した。いずれも電子供与体は地下水中の有機物 (CODCr 27mg/L, DOC 9mg/L) 以外添加していない。Case 10では再び無添加条件とし、Case 11はメタン発酵の有無確認のため、酢酸塩のみを添加した。

#### ③ Run 1 の Case 13~14

再び水道水ベースに戻し、電子供与体として酢酸塩を、電子受容体として硫酸塩を添加して、酢酸資化性の硫酸還元の進行を図る条件に設定した。

#### ④ Run 2

地下水に電子受容体として硝酸塩と硫酸塩の両方を添加し、脱窒と硫酸還元の両方が起こりうる条件とした。電子供与体としては前半は酢酸塩を添加したが、後半は無添加とし地下水中の有機物の利用を図った。

### 4.4 分析計測方法

アウトプットとして期待される項目は、次のように測定した。

#### (1) 微生物量、およびコロイドとして流出する微生物量

微生物量は基本的に水槽と砂層の全菌数で評価した。砂層の試料は、試験装置の上蓋を開けて滅菌した葉さじでなるべく均一に砂を採取し、その 12g (6.2mL、間隙水 2.8mL を含む) を 300mL トールピーカー中で 30mL の滅菌ろ過水道水 (0.22 $\mu$ m メンブレンフィルタでろ過後 121 $^{\circ}$ C で 15 分間オートクレーブ) とともに、島津製超音波洗浄器 SUS-100 (周波数 42Hz、100W) にて 1 分間超音波処理した。次いで 1 分間静置し、その上澄を全菌数測定に用いた。水槽の試料はそのまま測定に用いた。なお試験装置に投入した砂の一般細菌数は 1 分間超音波処理したとき無処理の 3 倍の菌数となった。これ以上処理を行うと菌数は減少していったので、超音波処理時間は 1 分とした。

全菌数測定は須藤(1988)に準じて次のように行った。顕微鏡での計数時に菌が過密にならないよう適度に希釈した試料に、アクリジンオレンジ(AO)を 0.01%の濃度になるよう加え、0.22 $\mu$ m メンブレンフィルタで吸引ろ過し、落射蛍光顕微鏡で 400~440nm の励起光のもと、黄ないし黄緑色の蛍光を発する細胞を計数した。

Run 1-Case1~5においては、脱窒細菌数も測定した。その方法は、西尾(1992)に準じて、試料を 10 倍ずつ希釈し、各希釈段階の液を改変 14-1 培地 (表 4.5) に 3 本ずつ接種する 3-3-3MPN (Most Probable Number) 法で実施した。培地組成は、モデル試験装置流入

水の組成に近づけるため、もとの 14-1 培地に対し、硝酸カリウム濃度を 1/2 に、肉エキスとペプトン濃度を各々 1/30 と 1/50 にし、新たに酢酸ナトリウムを加え、溶媒は脱塩水を水道水に変えた。この培地を加圧培養試験管内に 9mL ずつ分注し、その気相は Ar ガスで置換し、121℃、15 分の蒸気滅菌ののち、気相に滅菌シリンジでアセチレンを 1% (V/V) 注入した。試料を接種した培地は、30℃で 2 週間培養し、濁りの有無を確認したのち、濁りの認められた試験管について気相の N<sub>2</sub>O をガスクロマトグラフ（島津製 GC-8A、Porapak Q、TCD 検出器）で分析して、N<sub>2</sub>O のピークが確認できたものを陽性とした。改変 14-1 培地と、もとの 14-1 培地とで同じ試料の脱窒細菌数を測定したとき、前者の方が高い菌数が得られた。

表 4.5 脱窒細菌用の改変 14-1 培地の組成

試薬	
無水酢酸ナトリウム	0.5 g
硝酸カリウム	0.25 g
肉エキス	0.1 g
ペプトン	0.1 g
水道水	1.0 L

砂層を前述の操作で処理して分析して得た菌数は、もとの試料の容積あたりに換算する必要がある。菌数測定結果に(2.8+30)/2.8 を乗じて砂層間隙水あたりの菌数に換算した。

## (2) 空隙閉塞

空隙閉塞の程度は透水係数で評価した。透水係数は、流入、中間、流出の各水槽を密閉したまま、そこからガラス管を立て、管内の水位差（損失水頭）を測定して、そのときのポンプ流量などから次式により計算した。

$$k = (Q/A) / (\Delta h / \Delta L)$$

ここに、k：透水係数 (m/sec)

Q：流量 (m<sup>3</sup>/sec)

A：砂層断面積 (m<sup>2</sup>)

Δh：損失水頭 (mH<sub>2</sub>O)

ΔL：砂層厚 (m)

## (3) pH

各水槽に設置したモニタ用の pH 計（東亜電波製、HM-20P）で測定した。pH 計は、Run 1-Case 1、Run 1-Case 12、および Run 2-Case 1 の最初に校正し、Run 1-Case 11、Run 1-Case 13、および Run 2-Case 4 の終了後に校正液で再びチェックした。0.5 以上の数値のズレが生じた pH 計のデータは削除した。

#### (4) Eh

各水槽に設置したモニタ用の ORP 計（酸化還元電位計、東亜電波製、RM-20P）で測定した。Run 1-Case 1、Run 1-Case 12、および Run 2-Case 1 の最初に 3 台の ORP 計の電極を清浄にし、相互のズレが 40mV 以内であることを確認してから試験装置に設置した。Run 1-Case 11、Run 1-Case 13、および Run 2-Case 4 の終了後に相互のズレをチェックしたが、最大 90mV のズレがあった。以上より、ORP の値には±50mV 程度の誤差は覚悟しなければならないと判断した。

Eh は ORP 計の指示値に、比較電極の 30℃における電位 203mV を加えて計算した。

#### (5) 酸化還元反応の基質と生成物

酸化還元反応の電子供与体の濃度として、DOC（溶解性有機炭素）および酢酸濃度を測定した。DOC は試料を 0.45 μm メンブレンフィルタでろ過し、微量の塩酸で pH5 以下にし、強く攪拌して CO<sub>2</sub> を追い出したのち TOC 計（島津製 TOC-5000：低温燃焼、非分散型赤外線ガス分析計）で分析した。別途、pH 調整しない試料についても同じ TOC 計による分析を行った。酢酸は、高速液体クロマトグラフ（島津製、LC-10A）で測定した。

電子受容体としては、硝酸塩、亜硝酸塩、および硫酸塩の濃度を測定した。やはり試料を 0.45 μm メンブレンフィルタでろ過し、イオンクロマトグラフ（東ソウ製 IC-8000：IC-Anion-PW、電気伝導度検出器）で分析した。

無機炭酸は、電子受容体にもなりうるし、有機物分解の生成物でもあるが、pH 調整しない試料の TOC 計による IC（無機炭素）分析結果から求めた。生成物は、脱窒の生成物である窒素と一酸化二窒素、メタン発酵の生成物であるメタン、硫酸還元生成物である溶存硫化物を測定した。窒素、一酸化二窒素およびメタンは、試験装置の上蓋のパッキンから注射器でガスを採取し、ガスクロマトグラフ（TCD）で分析した。メタンについては水槽の液の溶存メタンも福永・北山（1986）の方法で分析した。溶存硫化物は、荏原実業製の検たろうで簡易に測定した。

#### (6) ガス発生

試験装置の上蓋のパッキンから注射器でガスを採取し、ガスクロマトグラフ（TCD）でガス組成を分析した。ベースが Ar なので、窒素の発生などは検出できる。ただし、ガス発生量の定量はできなかった。

#### 4.5 結果および考察

##### (1) 微生物量、およびコロイドとして流出する微生物量

試験期間中、流入水の基質組成を変えずに 20 日以上（176 日目のみ長期停止後 8 日間の地下水通水で測定）、装置を運転した時点で、水槽と砂層の細菌数を測定した。結果を図 4.6 に示す。

Run 1 の試験開始時の砂の全菌数は、乾燥重量あたりで  $5.7 \times 10^6/\text{g}$  であり、天然のベントナイトの菌数（Fukunaga et al., 2005）より一桁以上多いと思われる量であった。これを砂層（砂+間隙水）の容積あたりにすると  $1.1 \times 10^7/\text{mL}$ 、間隙水容積あたりにすると  $2.4 \times 10^7/\text{mL}$  となる。これに模擬地下水や地下水を通水した試験中の砂層の全菌数はすべてのケースで増加していた。この間、流入水の基質組成は変化しているが、間隙水容積あたりの全菌数は、 $2.4 \times 10^7/\text{mL} \sim 4.8 \times 10^8/\text{mL}$  であり、試験開始時の数値も含め最大 20 倍の変動範囲内であった。

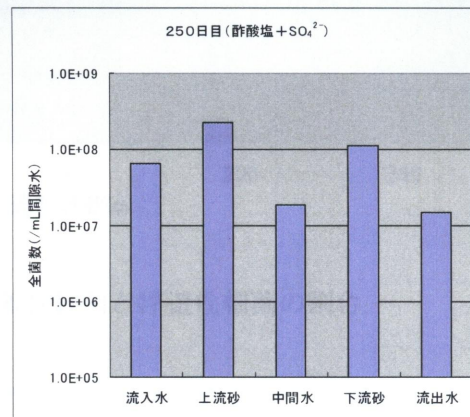
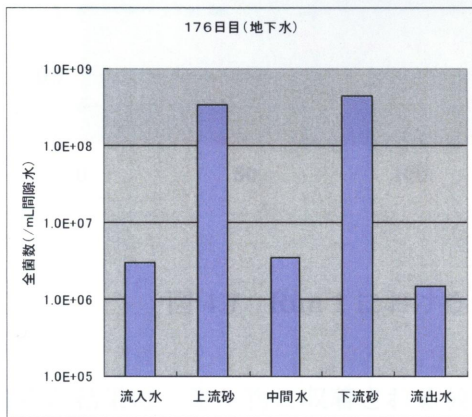
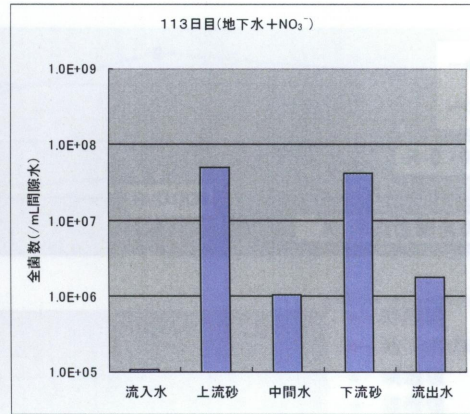
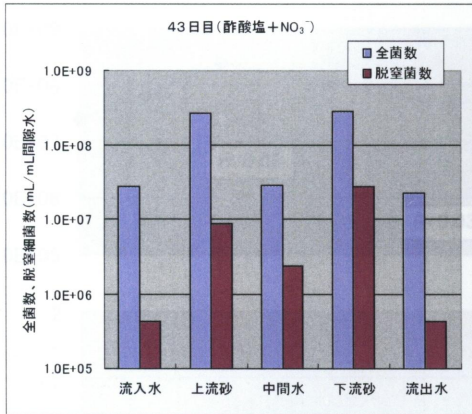
一方、流入水、中間水、流出水の水槽中の全菌数は、 $1.1 \times 10^5/\text{mL} \sim 6.5 \times 10^7/\text{mL}$  の範囲であり、とくに流入水の水槽での変動が大きかった。酢酸塩を添加した場合には流入水の水槽でかなりの微生物増殖が起きていたものと思われる。中間水と流出水の全菌数をその上流側の砂層の間隙水容積あたりの全菌数と比較すると 1 桁ないし 2 桁小さい値であった。砂の層を  $3 \sim 9 \text{cm/d}$  (Case1-4 を除く) の流速で通過する水に浮遊した状態で移動する菌数、つまりコロイドとして流出する細菌数は、この帯水層模擬試験装置という場の全体の菌数の 1~10%といえる。

脱室細菌数は Run 1 の 43 日目において、全菌数の 10%未満であった。ただし残りの 90%以上の部分にも、この培地で増殖できない脱室細菌が含まれている可能性はある。このとき以降、脱室細菌の測定は実施しなかった。

次に、浮遊性細菌と付着性細菌の量を比較するため、「(上流砂層と下流砂層の間隙水容積あたりの全菌数の平均値) - (中間水と流出水中の全菌数の平均値)」を付着性細菌数、「中間水と流出水中の全菌数の平均値」を浮遊性細菌数として、両者の比較を行った。Run 1 における結果を、流入水中の基質濃度条件とともに図 4.7 に示す。

図 4.6、図 4.7 より浮遊性細菌の割合は全細菌の 0.6~10%と評価されたが、とくに基質として酢酸塩を添加していない時期には 0.6%と 3% (Run 2 では 4%というデータあり) であった。超音波剥離により測定した砂層内の細菌数の回収率はどの程度か、水槽内でサンプリング・測定した浮遊性細菌数が砂層内に実際に存在している浮遊性細菌数と同等かなど、不確実な要素はあるが、図 4.7 の結果は帯水層における付着性細菌と浮遊性細菌の割合に関する目安の数値となろう。

a. Run 1



b. Run 2

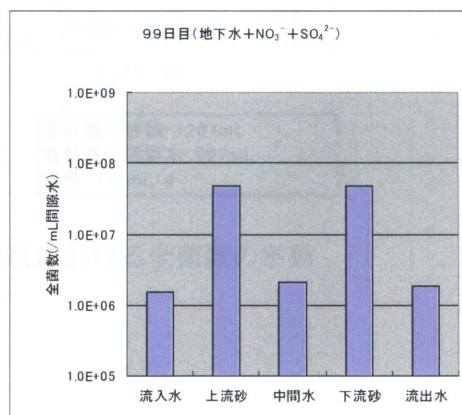
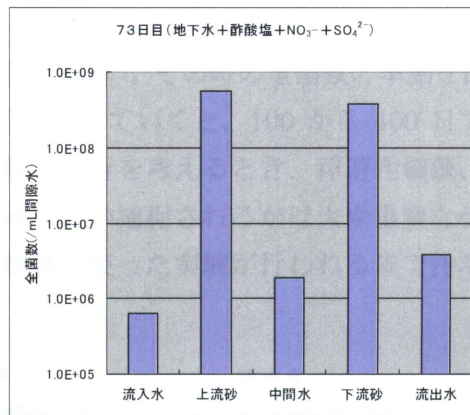
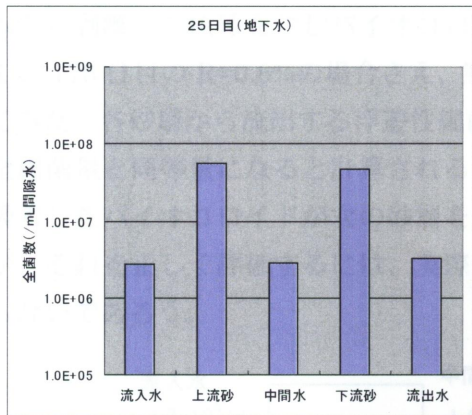


図 4.6 帯水層模擬試験装置における微生物量の推移



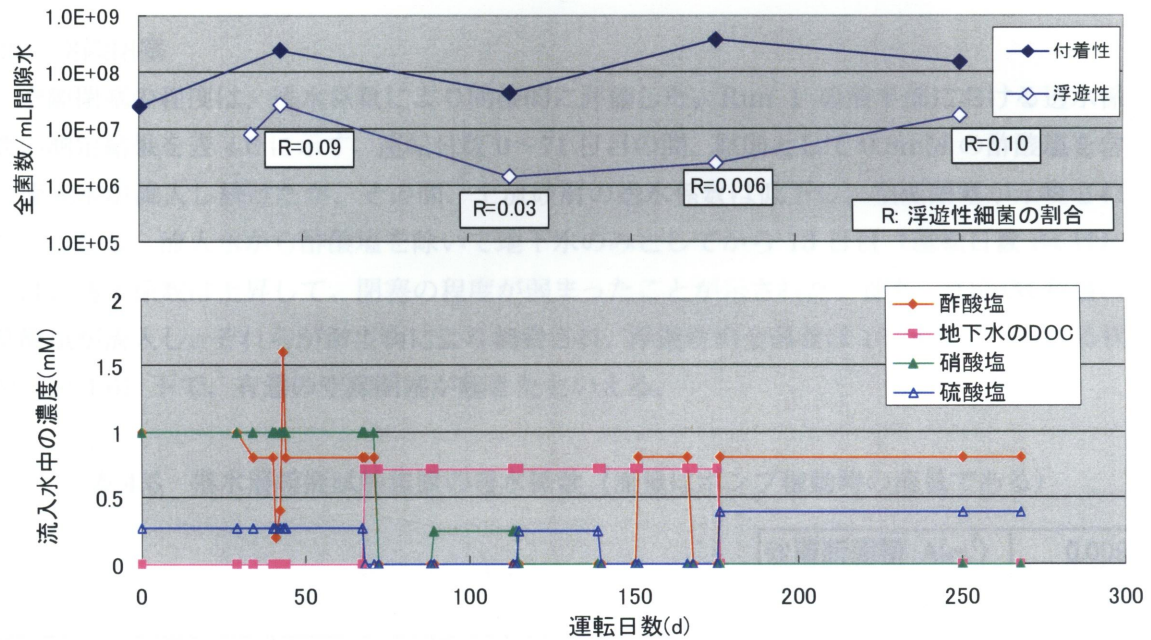


図 4.7 Run 1 における付着性細菌と浮遊性細菌の割合

これらの結果は、微生物に収着される放射性核種が流入した場合、核種が主としてバイオフィーム内に存在することを示唆する。しかし、浮遊性細菌に収着した核種やバイオフィームから剥離した核種を含むバイオコロイドが地下水の流れに乗って移行することは、Run 1 の 176 日目の  $R=0.6\%$  の場合さえ、無視できない。その時の全菌数の挙動を図 4.8 に表してみた。各砂層から流出する浮遊性細菌を累積していくと、100 から 400 日でその砂層の全細菌量と同等量になると計算される。核種移行を考えると、浮遊性細菌、即ち核種を吸着したバイオコロイドが次の砂層を通過するか捕捉されるかは大変重要なテーマとなるが、それを正しく評価するには、実際の核種を使った実験が行われるまで待たなければならないであろう。

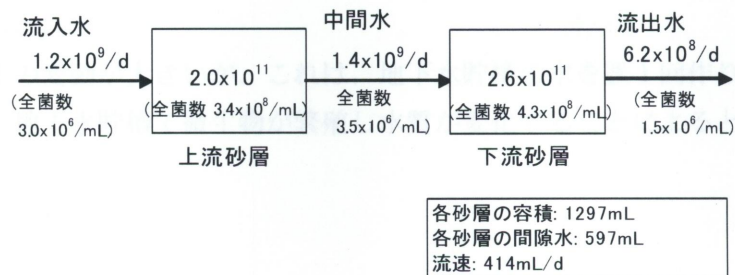


図 4.8 Run 1 の 176 日目における全菌数の挙動

## (2) 空隙閉塞

空隙閉塞の程度は、透水係数により間接的に評価した。Run 1 の前半部における透水係数の測定結果を表 4.6 に示す。運転日数 0~71 日目の間、原則として 0.8mM の酢酸塩を含む流入水が流入し続けたが、その間、上流砂層の透水係数は低下し、空隙閉塞が示唆された。しかし、流入水から酢酸塩を除いて地下水のみとしてから 13 日目（運転日数 84 日）には、透水係数は上昇して、閉塞の程度が弱まったことが示された。即ち、0.8mM 程度の酢酸塩が流入し、それらが微生物により消費され、浮遊性の全菌数は  $10^7/\text{mL}$  以上となる状況（図 4.6）下で、有意の空隙閉塞が起きたといえる。

表 4.6 帯水層模擬試験装置の透水係数（流量はポンプ稼動時の流量である）

砂層断面積: $A(\text{m}^2)$	0.0092
砂層厚: $\Delta L(\text{m})$	0.141

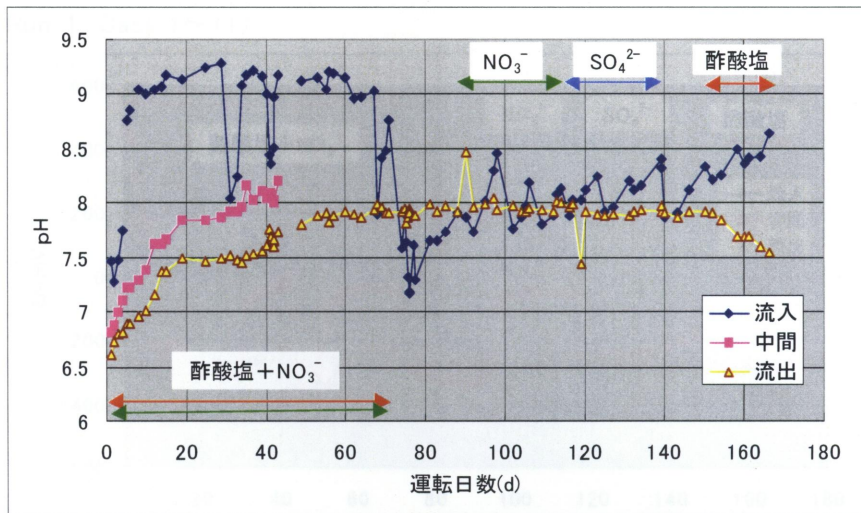
運転 日数	流量: Q		Q/A (m/sec)	損失水頭: $\Delta h(\text{m})$		$\Delta h/\Delta L$		透水係数 (m/sec)	
	(L/h)	( $\text{m}^3/\text{sec}$ )		上流	下流	上流	下流	上流	下流
0	0.209	5.79E-08	6.30E-06	0.000	0.000	0.000	0.000	—	—
13	0.205	5.69E-08	6.18E-06	0.010	0.000	0.071	0.000	8.72E-05	—
56	0.204	5.67E-08	6.17E-06	0.083	0.001	0.589	0.007	1.05E-05	8.70E-04
67	0.190	5.27E-08	5.73E-06	0.140	0.001	0.993	0.007	5.77E-06	8.08E-04
84	0.185	5.13E-08	5.58E-06	0.051	0.002	0.362	0.014	1.54E-05	3.93E-04

## (3) pH

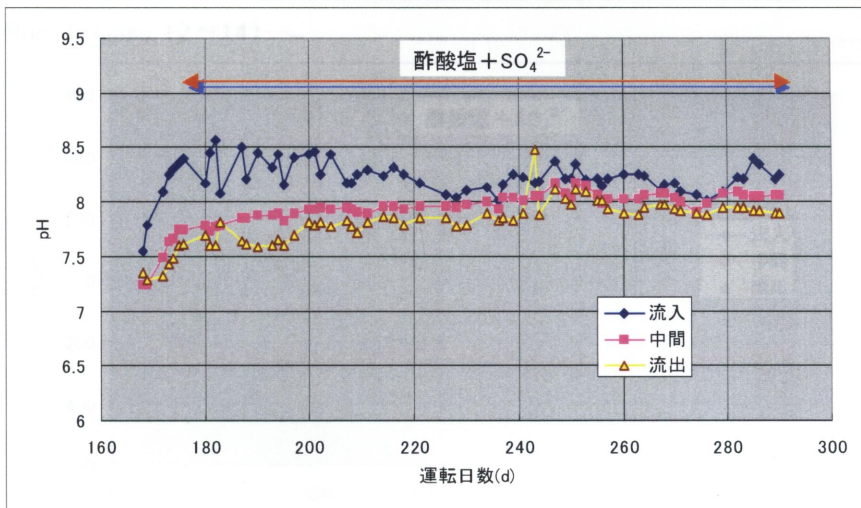
試験期間中、水槽でモニタした pH の推移を図 4.9 に示す。地下水および水道水の採取直後の pH は各々 6.6、7.0 であった（表 4.3）が、酢酸ナトリウムを添加した流入水では大幅な pH 上昇が見られた。砂層を流下するにつれて、pH は 7.5~8 の範囲に収束するようであった。酢酸を添加している場合には、流下につれて大きく pH が低下した。しかし、優占する微生物代謝反応から予想される pH 変化（前述 2.6 (4)）、地下水中の有機物の分解による pH 変化、砂のイオン交換作用など、pH に関わる各要因の影響をこの結果から解析するのは困難であった。

流入水の pH の変動が大きいが、これは、地下水貯槽の水を週 1 回作りかえていること、1 週間間に、地下水貯槽で微生物が繁殖し水質が変化することによると推定された。

Run 1 (Case 1~11)



Run 1 (Case 12~14)



Run 2

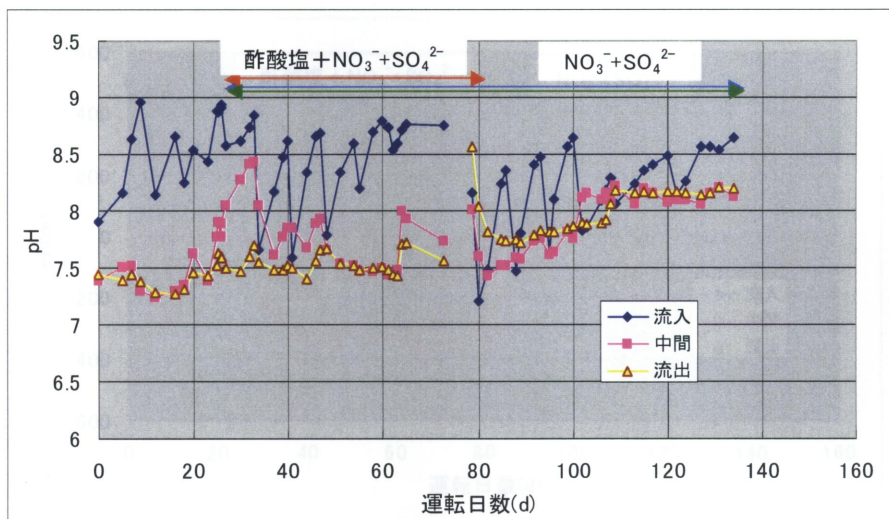
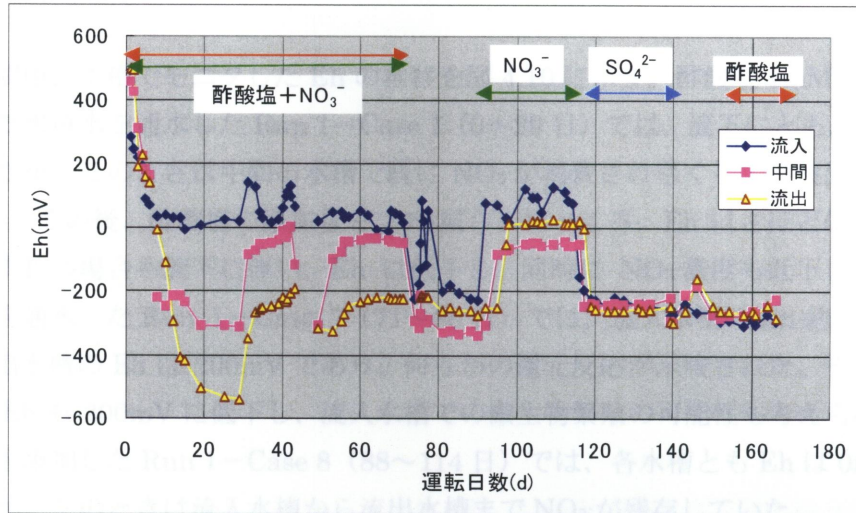
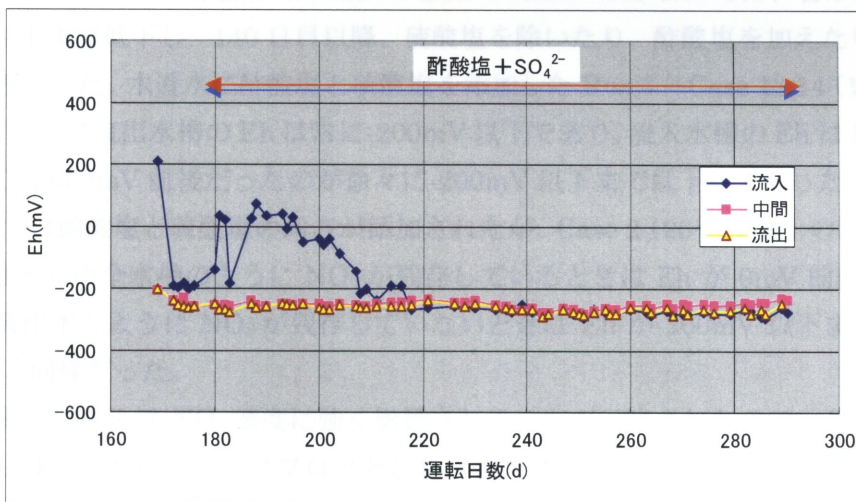


図 4.9 帯水層模擬試験装置における pH の推移

Run 1 (Case 1~11)



Run 1 (Case 12~14)



Run 2

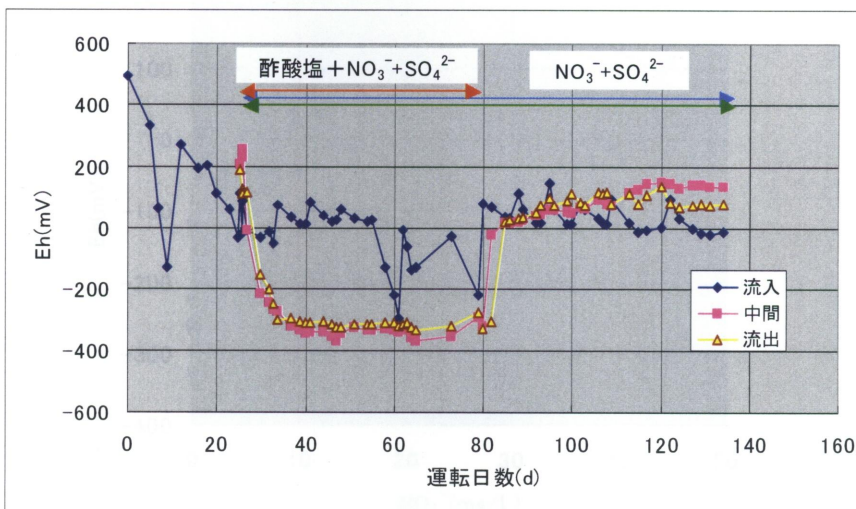


図 4.10 帯水層模擬試験装置における Eh の推移

#### (4) Eh

試験期間中、水槽でモニタした Eh の推移を図 4.10 に示す。酢酸塩 1mM、硝酸塩 1mM を添加した水道水を通水した Run 1-Case 1 (0~29 日) では、流下にともない Eh が大きく低下したが、このときは中間の水槽で既に  $\text{NO}_3^-$  が消費され尽くして不検出の状態であった (後述)。その後、酢酸塩の添加量を 20% 減らしたところ、Eh はさほど低下しなかったが、いずれの場合も流下に伴い、Eh は低下し、同時に  $\text{NO}_3^-$  濃度も低下していった。地下水のみを通水した Run 1-Case 7 (71~88 日) では、流入水槽の Eh 約 0mV に対し、中間、流出水槽の Eh は -200mV であり、何らかの還元反応が示唆された。その後数日で流入水槽の Eh も -200mV に低下し、流入水槽での微生物繁殖の可能性も考えられた。地下水に硝酸塩を添加した Run 1-Case 8 (88~114 日) では、各水槽とも Eh は 0mV 前後まで上昇したが、このときは流入水槽から流出水槽まで  $\text{NO}_3^-$  が残存していた。

次に地下水に硫酸塩を添加した Run 1-Case 9 (114~139 日) では、各水槽とも Eh は -200mV 以下まで低下し、140 日目以降、硫酸塩を除いたり、酢酸塩を加えたりしてもほとんど変化無かった。水道水に酢酸塩と硫酸塩を添加した Run 1-Case 13,14 (176~290 日) では、中間および流出水槽の Eh は常に -200mV 以下であり、流入水槽の Eh は Run 1-Case 7 と同じく当初 0mV 前後だったのが徐々に -200mV 以下まで低下していった。

Run 2 では硝酸塩と硫酸塩の両方が添加されたが、Case 2 (26~78 日) の流入水や Case 3,4 (79 日~) の全水槽のように  $\text{NO}_3^-$  が残存しているときは Eh が 0mV 前後、Case 2 の中間水、流出水のように  $\text{NO}_3^-$  が残存していないときは Eh が -200mV 以下まで下がる傾向は Run 1 と同様だった。

以上のように Eh は  $\text{NO}_3^-$  濃度に強く影響されることが示唆されたので、各水槽における  $\text{NO}_3^-$  濃度と Eh の関係を図上にプロットした。結果を図 4.11 に示す。

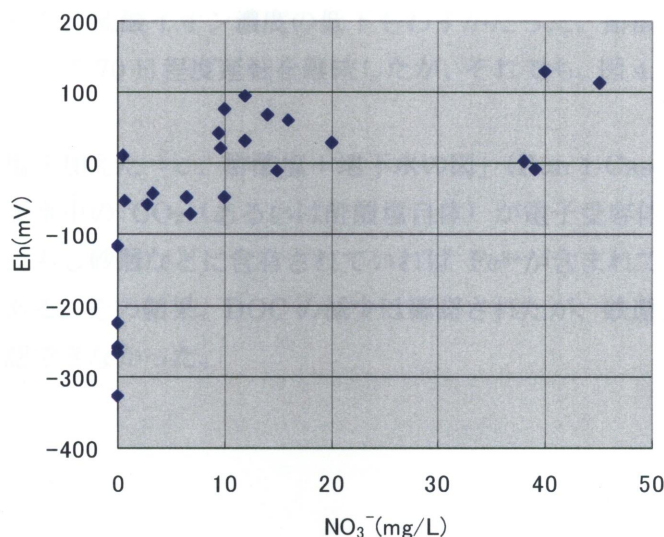


図 4.11 帯水層模擬試験装置における硝酸イオン濃度と Eh との関係 (Run 1 Case 4~8)

NO<sub>3</sub>が残存しているときは Eh は+120mV~-80mV (大部分は-50~+100mV) の範囲で NO<sub>3</sub>濃度低下につれて低下し、NO<sub>3</sub>不検出となると Eh は-110mV から最低で-320mV まで低下した。NO<sub>3</sub>濃度と Eh の関係、および微生物の作用による急速な還元状態の形成が実験的に確かめられた。

次に SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の影響についてであるが、酸素および NO<sub>3</sub>が無く SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>が存在しているときの Eh は、-200~-300mV 程度であった。SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>が消費されつくしたときの Eh は、そのケースがほとんど無く、確認できなかった。しかし、Run 1-Case 1 で Eh-500mV 以下の値が得られたときは、それに該当していた可能性はある。

#### (5) 酸化還元反応の基質と生成物

微生物による酸化還元反応は、前述の pH、Eh の変化、放射性核種の還元による移行遅延、ガス発生、腐食促進物質の生成など、多くの微生物影響の根源となりうるので、その定量的把握は重要である。ここではポイントとなる Case について、基質の減少で評価した。

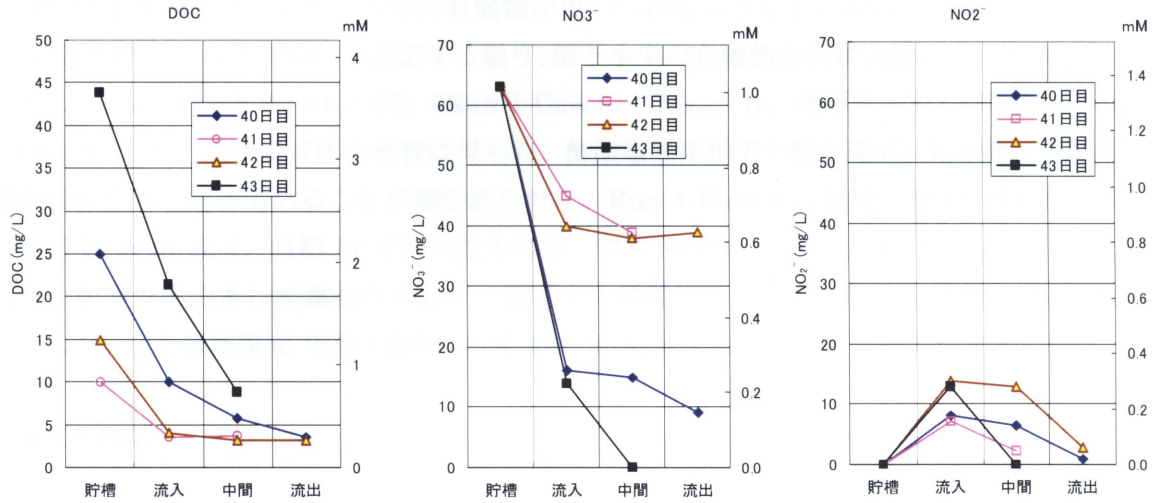
まず電子供与体として酢酸塩を添加した場合の流下方向 (図 4.1 の流入→中間→流出) の基質濃度プロファイルを図 4.12 に示した。地下水貯槽 (貯槽) から流入水槽に至る間に、急激な基質除去が見られることがあったので、貯槽の欄も設けた。

図中、「a. 酢酸塩+NO<sub>3</sub>の図」(Run 1-Case 4) では、貯槽の DOC 濃度を 1 日ごとに変動させた。DOC 濃度が高いとき (43 日目など) は、DOC とともに硝酸塩が急速に減少し、場所によって亜硝酸塩が検出されたが、それも消費された。これに対し、DOC 濃度が低いとき (41 日目、42 日目など) は、流入地点あたりでは硝酸塩が減少したが、その後減少が止まった。硝酸塩の減少速度は DOC 濃度の影響を受けるようであった。

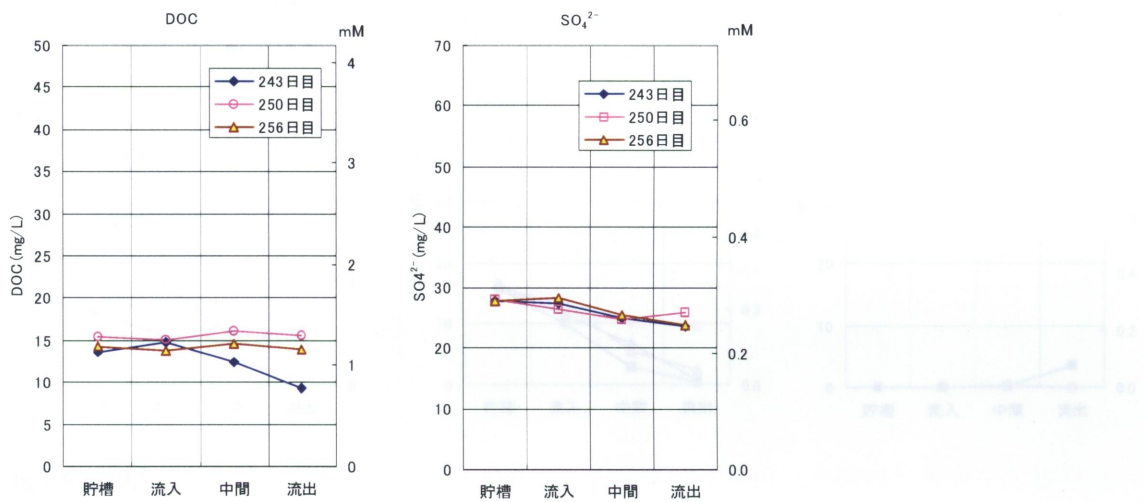
次に、「b. 酢酸塩+SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の図」(Run 1-Case 14) では、硝酸塩添加時には明確に濃度低下を起こした 15mg/L 程度の DOC が、流下方向に目立った低下がなく、微生物反応速度の低さが示唆された。硫酸イオン濃度の低下もわずかだった。酢酸資化性の硫酸還元は容易には進行しないので 70 日程度運転を継続したが、それでも、図 4.12-b の程度の活性であった。

地下水に酢酸塩を加えた「c. 酢酸塩+地下水の図」(Run 1-Case 11) では、電子受容体を添加せず、地下水中の CO<sub>2</sub> (あるいは酢酸塩自体) が電子受容体として使われるメタン発酵、あるいは、もし砂層などに含有されていれば Fe<sup>3+</sup>が含まれていれば鉄還元を想定して行った試験である。その結果、DOC の減少は確認されたが、鉄還元による Fe<sup>2+</sup>の生成もメタン生成も確認できなかった。

a. 酢酸塩 + NO<sub>3</sub><sup>-</sup>



b. 酢酸塩 + SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>



c. 酢酸塩 + 地下水

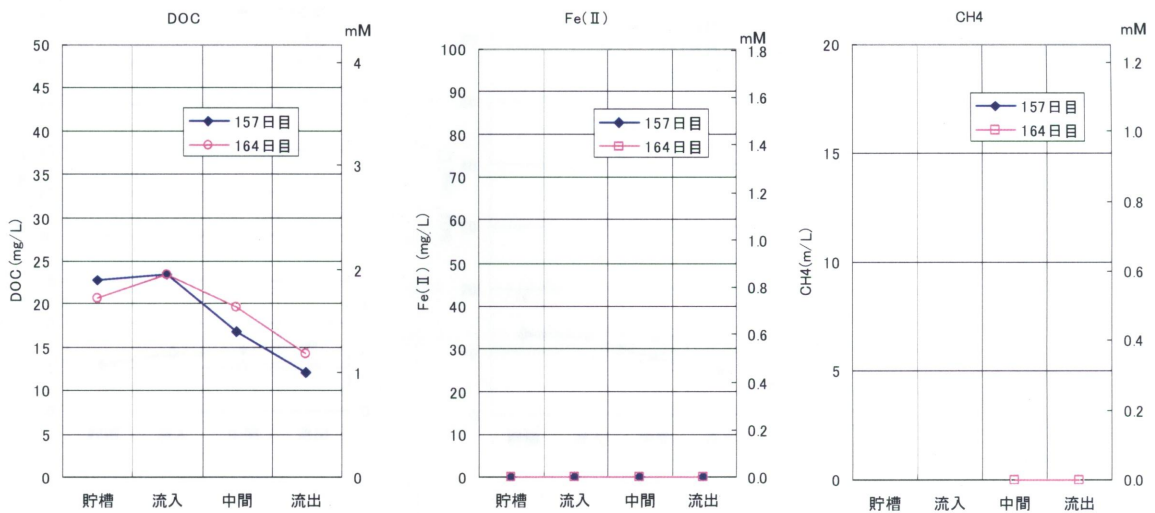
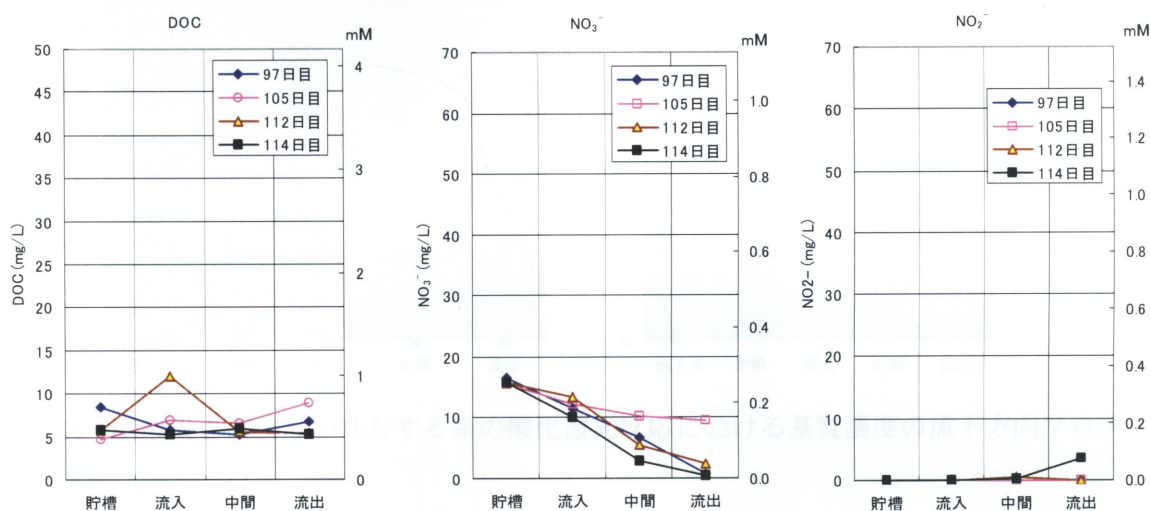


図 4.12 酢酸塩からの酸化還元反応における基質濃度の流下方向プロファイル

次に電子供与体として地下水中の有機物が用いられるようにした場合の基質濃度プロファイルを図 4.13 に示す。DOC で測定する限り、地下水中の有機物の消費は認められなかった。しかし、「a. 地下水+NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の図」(Run 1-Case8)でも、「b. 地下水+SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の図」(Run 1-Case9)でも、電子受容体の消費は見られ、酢酸塩無添加でも酸化還元反応が地下水の有機物の存在下で起きていることが確かめられた。Run 1-Case 8 の最後(114 日目)の上流砂層の気相の組成は、当初 Ar であったものが、窒素 86.9%、二酸化炭素 0.38% に変化しており、脱窒反応の進行が裏付けられた。地下水の硝酸塩減少速度は酢酸塩添加時ほどではなかった。一方硫酸還元(SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>消費)の速度は、酢酸塩添加時の硫酸還元より大きかった。

a. 地下水+NO<sub>3</sub><sup>-</sup>



b. 地下水+SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>

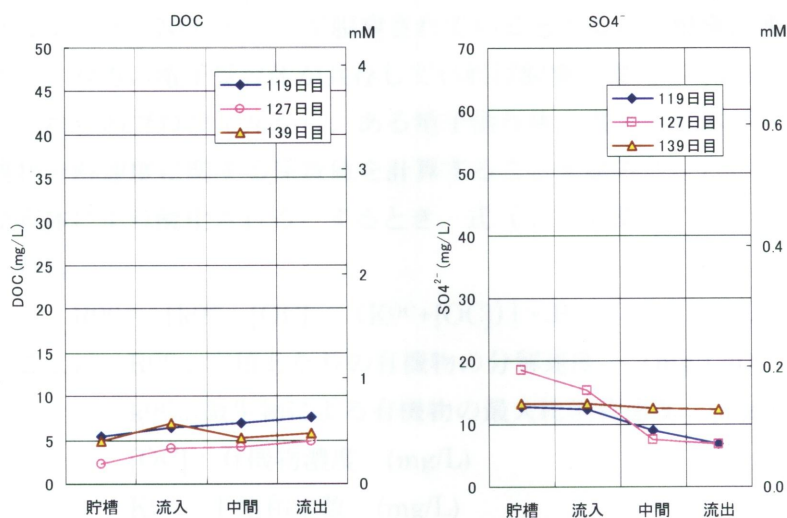


図 4.13 地下水からの酸化還元反応における基質濃度の流下方向プロファイル



地下水に硝酸塩と硫酸塩の両方を加えた Run 2 の結果を図 4.14 に示す。酢酸塩も加えた Case 2 では、流入水槽に入る前に硝酸塩が消費されてしまい、砂層の流下中は酢酸の消費と僅かな硫酸還元が進行した。酢酸の消費量は硫酸イオンの消費量からは説明できないので、気相のメタンおよび流出水の溶存メタンを分析したが不検出だった。酢酸塩を除いた Case 4 では、貯相—流入水槽—中間水槽で DOC と硝酸塩の消費が見られたが、硫酸還元は確認できなかった。

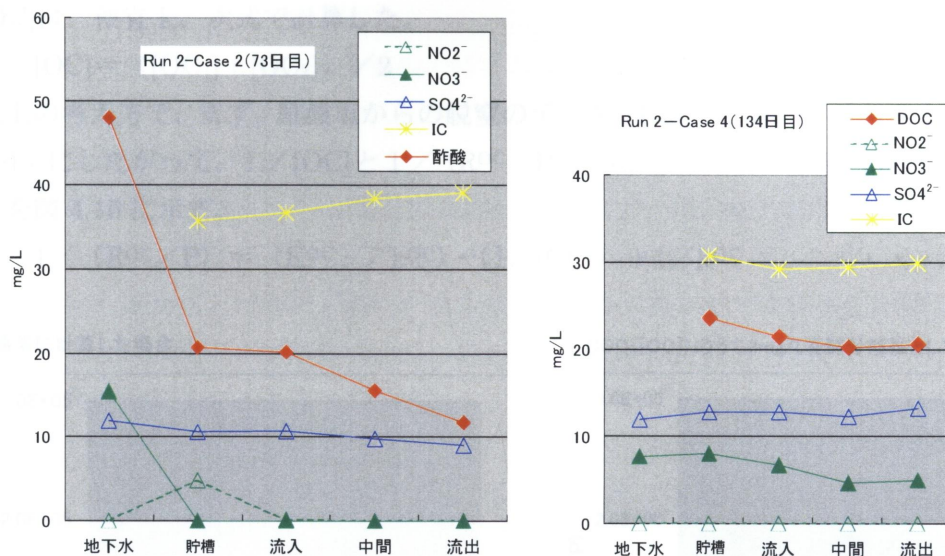


図 4.14 硝酸塩と硫酸塩が共存する系の酸化還元反応における基質濃度の流下方向プロフィール

以上の試験では NO<sub>3</sub><sup>-</sup>が減少しているとき N<sub>2</sub>の発生は定性的に確認されたが、定量はできなかった。NO<sub>3</sub><sup>-</sup>減少分が脱窒されているとすると、脱窒の速度は硫酸還元の速度より大きく、双方の電子受容体が共存していれば脱窒が優先して起きたといえる。

これらのプロフィールから、ある電子供与体と電子受容体を与えられたときの微生物の有機物分解速度に関する係数値を計算することを試みた。ところで、ある有機物がある電子受容体により酸化されるとするとき、式(1)が設定される (Wang & Papenguth, 2001より)。

$$R^{OC} = \{k^{OC} \cdot [OC] / (K^{OC} + [OC])\} \cdot P \quad \dots \dots \dots (1)$$

ここに、R<sup>OC</sup>：容積あたりの有機物の分解速度 (mg/L/d)

k<sup>OC</sup>：微生物による有機物の最大比消費速度 (mg/cell/d)

[OC]：有機物濃度 (mg/L)

K<sup>OC</sup>：半飽和定数 (mg/L)

P：微生物量 (cell/L)

この式における k<sup>OC</sup> および K<sup>OC</sup> が求められれば、個々の酸化還元反応の反応速度の概略値が得られると考えた。そのため、まず図 4.12~14 のプロフィールの中から、ある程度の基

質濃度差が見られた区画（例えば図 4-14 の Case 4 の流入水槽から中間水槽の間）を選び出し、 $R^{OC}$ 、 $[OC]$ 、および  $P$  の値の算出を試みた。

$R^{OC}$  は、上流側の水槽の DOC（溶解性有機炭素）濃度を  $[OC_1]$ 、下流側の水槽の DOC 濃度を  $[OC_2]$ 、両者間の砂層の容積を  $V$  (L)、地下水等の流量を  $Q$  (L/d) として次のように計算することとした。

$$R^{OC} = ([OC_1] - [OC_2]) \cdot Q / V \quad \dots \dots \dots (2)$$

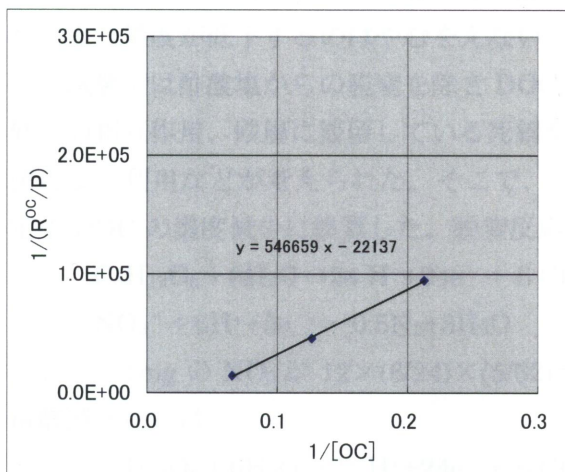
$[OC]$  は、便宜上、次式で計算した。

$$[OC] = ([OC_1] + [OC_2]) / 2 \quad \dots \dots \dots (3)$$

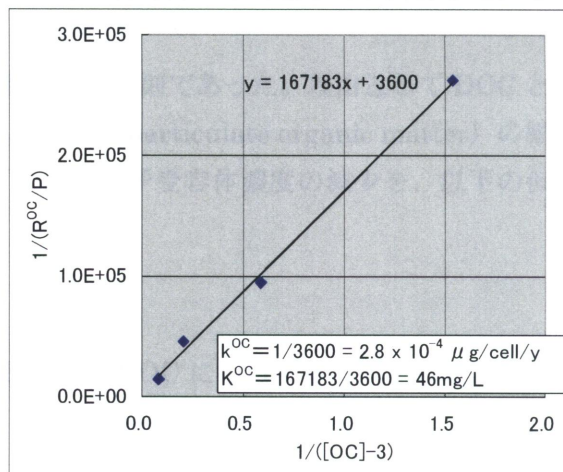
以上の考え方で、まず、酢酸塩からの脱窒のデータ (Run 1-Case 4) をリストアップし、式 (4) にしたがって、 $1/[OC]$  と  $1/(R^{OC}/P)$  の Lineweaver-Burk's plot を作図した。結果を図 4.15 に示す。

$$1/(R^{OC}/P) = (K^{OC} / k^{OC}) \cdot (1/[OC]) + 1/k^{OC} \quad \dots \dots \dots (4)$$

a. 通常に計算した場合



b. DOC([OC])のうち3mg/Lを難分解性として除外した場合



運転日数	$[OC_1]$ DOC(前) mg/L	$[OC_2]$ DOC(後) mg/L	$[OC_1]-[OC_2]$ $\Delta$ DOC mg/L	Q (流量) L/d	対象 区間	$[OC]$ $([OC_1]+[OC_2])/2$ mg/L	V (容積) L	HRT (V/Q) d	$R^{OC}$ (DOC減少速度) $\Delta$ DOC/(HRT/365) mg/L/y	$1/[OC]$ 1/(mg/L)	$1/([OC]-3)$ 1/(mg/L)	P cell/mL	$1/(R^{OC}/P)$ 1/(μg/cell/y)
40days	10	5.8	4.2	2.2	流入-中間	7.9	1.297	0.59	2600	0.127	0.204	1.19E+08	4.58E+04
	5.8	3.6	2.2	2.2	中間-流出	4.7	1.297	0.59	1362	0.213	0.588	1.29E+08	9.47E+04
42days	4	3.3	0.7	2.3	流入-中間	3.65	1.297	0.56	453	0.274	1.538	1.19E+08	2.63E+05
43days	21.4	8.9	12.5	2.3	流入-中間	15.15	1.297	0.56	8091	0.066	0.082	1.19E+08	1.47E+04

図 4.15 酢酸塩を電子供与体とした脱窒における DOC の最大比消費速度  $k^{OC}$  と半飽和定数  $K^{OC}$  の試算例 (温度 30°C)

図 4.15-a より通常に計算すると切片が負となったが、DOC のうち元々の水道水に含まれていた 3mg/L を難分解として差し引いた ( $[OC]-3$ ) をもとに計算すると、 $K^{OC}$  は 46 mgC/L、 $k^{OC}$  は  $2.8 \times 10^{-4} \mu\text{gC/cell/y} = 2.8 \times 10^{-7} \text{mgC/cell/y}$  と試算することができた。しかし、 $[OC]$  と  $R^{OC}/P$  の間に図 4.15 のような相関関係がとれたのはこのケースのみであった。他のケ

ースでは DOC 濃度範囲が狭く Lineweaver-Burk's plot がとれなかった。そこで、次の①～④の前提をおいて微生物反応速度の評価を試みた。

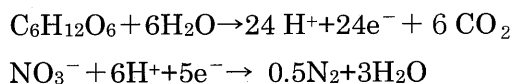
① まず、試験装置内の DOC 濃度が半飽和定数  $K^{OC}$  に対して小さい ( $[OC] \ll K^{OC}$ )、したがって次式が成り立つとした。

$$\begin{aligned} R^{OC} &= [k^{OC} \cdot [OC] \cdot (K^{OC} - [OC]) / \{(K^{OC} + [OC]) (K^{OC} - [OC])\}] \cdot P \\ &= [k^{OC} \cdot \{[OC]/K^{OC} - ([OC]/K^{OC})^2\} / \{1 - ([OC]/K^{OC})^2\}] \cdot P \\ &= (k^{OC}/K^{OC}) \cdot [OC] \cdot P \end{aligned} \quad \dots \dots \dots (5)$$

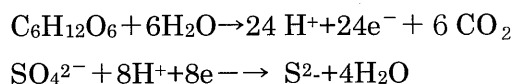
これにより、Lineweaver-Burk's plot ができない場合にも、試験で得られた  $R^{OC}$ 、 $[OC]$ 、 $P$  の値から  $k^{OC}/K^{OC}$  を計算することができる。本試験における各代謝反応の速度は、 $k^{OC}/K^{OC}$  によって比較が可能となった。

② 酢酸塩を単独の基質とする場合には問題とならないが、地下水中の有機物を基質とする場合、構成する有機成分によって難分解のものと比較的分解しやすいものがある。本来は有機物の種類ごとに  $k^{OC}/K^{OC}$  を求めなければならないのであるが、分画は困難であったので、ここでは地下水中の有機物は一定の  $k^{OC}/K^{OC}$  値を持つものとして、計算した。それにより精度が低下するのはやむをえない。

③ 試験では酢酸塩からの脱窒を除き DOC の変化が不規則であった。理由として DOC と砂との相互作用、砂層に滞留している死細胞など POC (particulate organic matter) の細菌による利用などが考えられた。そこで、流下に伴う電子受容体濃度の減少を、以下の仮定で DOC の濃度減少に換算した。脱窒反応は



として、1mg の  $NO_3^-$  が  $12 \times (6/24) \times (5/62) = 0.24\text{mg}$  の DOC に相当すると仮定した。また硫酸還元反応は、



として、1mg の  $SO_4^{2-}$  が  $12 \times (6/24) \times (8/96) = 0.25\text{mg}$  の DOC に相当すると仮定した。

④ 微生物量としては全菌数で代表させた。実際にはある代謝に関わる微生物は全菌数の一部であるが、現状ではすべての代謝群ごとの微生物量を精度よく測定するのが難しい。試験では定常運転を続け酸化還元が最大に達した時期に基質濃度変化のプロフィールを取っているため、その基質に適合する代謝群の微生物は全菌数の中である程度の割合を占めており、現場で所定の基質を含む地下水が長期間流入し続けている状態とそう違わないと考えている。

以上の前提に基づいて、図 4.12～14 のプロフィールやその他のデータをもとに、各  $[OC]$  条件ごとの  $R^{OC}$  を計算した結果を、表 4.7 に示す。さらに、このデータが得られた時期に最も近いと思われる砂層の全菌数を図 4.6 の元データ等から追記し、式 (5) に基づいて  $k^{OC}/K^{OC}$  を計算した。この結果を表 4.8 に示す。

表 4.7 各[OC]条件ごとの R<sup>OC</sup> の計算

Run 1-Case 4										
運転日数	[OC <sub>1</sub> ] DOC(前) mg/L	[OC <sub>2</sub> ] DOC(後) mg/L	[OC <sub>1</sub> ]-[OC <sub>2</sub> ] ΔDOC mg/L	Q (流量) L/d	対象 区間	[OC] ([OC <sub>1</sub> ]+[OC <sub>2</sub> ])/2 mg/L	V (容積) L	HRT (V/Q) d	R <sup>OC</sup> (DOC減少速度) ΔDOC/(HRT/365) mg/L/y	
40days	10	5.8	4.2	2.2	流入-中間	7.9	1.297	0.59	2600	1362
	5.8	3.6	2.2							
42days	4	3.3	0.7	2.3	流入-中間	3.65	1.297	0.56	453	
43days	21.4	8.9	12.5	2.3	流入-中間	15.15	1.297	0.56	8091	
Run 1-Case 5										
56days	6.7	3	3.7	0.817	中間-流出	4.85	1.297	1.59	851	
Run 1-Case 6										
70days	5.1	4.7	0.4	0.902	中間-流出	4.9	1.297	1.44	102	
Run 1-Case 8										
									以下、NO3減少速度から推定	
97days	5.8	5.3		0.441	流入-中間	5.55	1.297	2.94	141	583
	5.3	6.8								
105days	6.9	6.6		0.442	流入-中間	6.75	1.297	2.93	60	249
	6.6	9								
112days	12	5.6		0.45	流入-中間	8.8	1.297	2.88	241	995
	5.6	5.4								
114days	5.3	5.9		0.45	流入-中間	5.6	1.297	2.88	219	904
	5.9	5.3								
Run 1-Case 9 & 14										
									以下、SO4減少速度から推定	
119days	6.4	6.9		0.45	流入-中間	6.65	1.297	2.88	105	419
	6.9	7.7								
139days	6.9	5.3		0.45	流入-中間	6.1	1.297	2.88	19	76
	5.3	5.7								
243days	14.8	12.4		0.42	流入-中間	13.6	1.297	3.09	71	284
	12.4	9.3								
250days	15.2	16.1		0.36	流入-中間	15.65	1.297	3.60	41	162
256days	13.8	14.6		0.45	流入-中間	14.2	1.297	2.88	92	367
	14.6	13.9								
Run 2-Case 2										
									以下、NO3減少速度から推定	
73days				0.5	流入ホース *	37	0.014	0.03	26800	111000
Run 2-Case 4										
134days	21.5	20.3	1.2	0.25	流入-中間	20.9	1.297	5.19	DOCから NO3から	84 35
										6.76 4.71 2.05
									以下、SO4減少速度から推定	
73days				0.5	流入-中間 *	35	1.297	2.59	33	131
										10.7 9.77 9

表 4.8 各試験における脱窒または硫酸還元速度の計算 (DOC 消費で表示)

運転日数	対象区間	[OC]		V (容積) L	R <sup>OC</sup> (DOC減少速度 ΔDOC/(HRT/365) mg/L/y	全菌数		R <sup>OC</sup> /P (mg/L/y) /(cell/mL)	k <sup>OC</sup> /K <sup>OC</sup> =(R <sup>OC</sup> /P)/[OC] /(cell/mL容積)/y	
		([OC <sub>1</sub> ]+[OC <sub>2</sub> ])/2 mg/L				cell /mL間隙水	cell /mL容積**			
Run 1-Case 4における脱窒 (酢酸塩+NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> )										
40days	流入-中間	7.9	1.297	1.297	2600	2.63E+08	1.18E+08	2.20E-05	2.78E-06	
	中間-流出	4.7	1.297		1362	2.87E+08	1.29E+08	1.05E-05	2.24E-06	
42days	流入-中間	3.65	1.297	1.297	453	2.63E+08	1.18E+08	3.83E-06	1.05E-06	
43days	流入-中間	15.15	1.297	1.297	8091	2.63E+08	1.18E+08	6.84E-05	4.51E-06	
Run 1-Case 5における脱窒 (酢酸塩+NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> )										
56days	中間-流出	4.85	1.297	1.297	851	2.87E+08	1.29E+08	6.59E-06	1.36E-06	
Run 1-Case 6における脱窒 (酢酸塩+地下水+NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> )										
	中間-流出	4.9	1.297	1.297	102	2.87E+08	1.29E+08	7.90E-07	1.61E-07	
Run 1-Case 8における脱窒 (地下水+NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> )										
97days	流入-中間	5.55	1.297	1.297	141	4.94E+07	2.22E+07	6.34E-06	1.14E-06	
	中間-流出	6.05	1.297		183	4.16E+07	1.87E+07	9.78E-06	1.62E-06	
105days	流入-中間	6.75	1.297	1.297	60	4.94E+07	2.22E+07	2.70E-06	4.00E-07	
	中間-流出	7.8	1.297		18	4.16E+07	1.87E+07	9.62E-07	1.23E-07	
112days	流入-中間	8.8	1.297	1.297	241	4.94E+07	2.22E+07	1.08E-05	1.23E-06	
	中間-流出	5.5	1.297		97	4.16E+07	1.87E+07	5.18E-06	9.42E-07	
114days	流入-中間	5.6	1.297	1.297	219	4.94E+07	2.22E+07	9.85E-06	1.76E-06	
	中間-流出	5.6	1.297		72	4.16E+07	1.87E+07	3.85E-06	6.87E-07	
Run 1-Case 9における硫酸還元 (地下水+SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> )										
119days	流入-中間	6.65	1.297	1.297	105	4.94E+07	2.22E+07	4.72E-06	7.10E-07	
	中間-流出	7.3	1.297		70	4.16E+07	1.87E+07	3.74E-06	5.12E-07	
139days	流入-中間	6.1	1.297	1.297	19	4.94E+07	2.22E+07	8.55E-07	1.40E-07	
	中間-流出	5.5	1.297		13	4.16E+07	1.87E+07	6.94E-07	1.26E-07	
Run 1-Case 14における硫酸還元 (酢酸塩+SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> )										
243days	流入-中間	13.6	1.297	1.297	71	2.22E+08	9.99E+07	7.11E-07	5.23E-08	
	中間-流出	10.85	1.297		38	1.11E+08	5.00E+07	7.61E-07	7.01E-08	
250days	流入-中間	15.65	1.297	1.297	41	2.22E+08	9.99E+07	4.10E-07	2.62E-08	
256days	流入-中間	14.2	1.297	1.297	92	2.22E+08	9.99E+07	9.21E-07	6.49E-08	
	中間-流出	14.25	1.297		47	1.11E+08	5.00E+07	9.41E-07	6.60E-08	
Run 2-Case 2における脱窒 (酢酸塩+地下水+NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> +SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> )										
73days	流入ホース	*	37	0.014	26800		6.00E+10	4.47E-07	1.21E-08	
Run 2-Case 4における脱窒 (地下水+NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> +SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> )										
134days	流入-中間	20.9	1.297	1.297	84	4.80E+07	2.16E+07	3.89E-06	1.86E-07	
Run 2-Case 2における硫酸還元 (酢酸塩+地下水+NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> +SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> )										
73days	流入-中間	*	35	1.297	33	5.74E+08	2.58E+08	1.28E-07	3.65E-09	
	中間-流出	*	35	1.297	27	3.75E+08	1.69E+08		4.57E-09	

\*: 酢酸濃度からの推定値 \*\*: 容積は、砂充填部の砂+空隙の容積の和である。

前述の式 (5) より、次式が成り立つ。

$$R^{OC}/P = (k^{OC}/K^{OC}) \cdot [OC] \quad \dots \dots \dots (6)$$

そこで、表 4.8 の中で電子受容体と電子供与体がそれぞれ単独の場合の R<sup>OC</sup>/P 値を[OC] に対してプロットし傾きから k<sup>OC</sup>/K<sup>OC</sup>を求めるよう図 4.16 を作図した。酢酸塩からの脱窒の場合 (Run 1 の Case 4,5) は、[OC]のうち約 3mg/L を難分解として差し引けば R<sup>OC</sup>/P

は[OC]に比例して、式(5)と矛盾しない結果であった。しかし他のケースについては、 $R^{OC}/P$ の値のバラツキが大きく、 $R^{OC}/P$ が[OC]に比例するとは認められなかった。

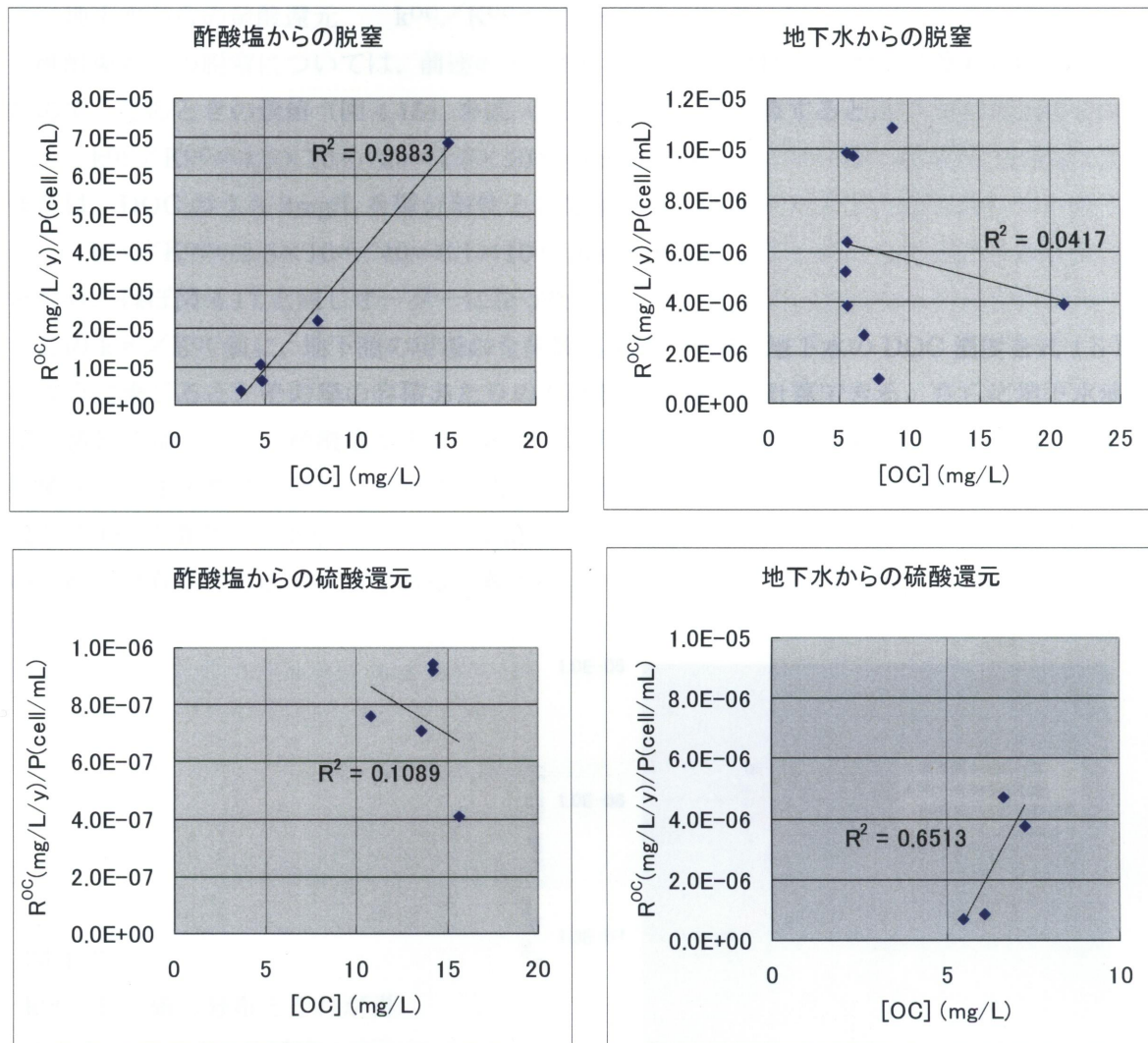


図 4.16 微生物あたりの DOC 消費速度 ( $R^{OC}/P$ ) と DOC 濃度 ([OC]) との関係

この結果では  $R^{OC}/P$  が [OC] に比例する前提で成り立つ係数  $k^{OC}/K^{OC}$  に意味を持たせるのが、酢酸塩からの脱窒の場合を除き難しくなる。しかし、より DOC 濃度の高い地下水を用いるなどして [OC] の変動幅を大きくして試験すれば、解析できる結果が得られる可能性もあり、また、少なくとも酢酸塩からの脱窒では理論どおりの結果が得られているので、各代謝反応速度の比較については、 $k^{OC}/K^{OC}$  の値で行うこととして図 4.17 を作図した。ただし、ここでの  $k^{OC}/K^{OC}$  値は、試験時の DOC 濃度を外れると意味を失う可能性があるため図 4.17 では DOC 濃度 ([OC]) を横軸にとって表示した。その結果得られた  $k^{OC}/K^{OC}$  値は次のとおりであった。なお、難分解性 DOC の濃度は地下水では不明なので、表 4.8、図 4.16、図 4.17 ではそれを差し引くという操作はしていない。

酢酸塩からの脱窒	$k^{OC}/K^{OC}=10^{-6}\sim 10^{-5}$	/(cell/mL)/y
地下水からの脱窒	$k^{OC}/K^{OC}=10^{-7}\sim 10^{-5}$	/(cell/mL)/y
酢酸塩からの硫酸還元	$k^{OC}/K^{OC}=10^{-8}\sim 10^{-7}$	/(cell/mL)/y
地下水からの硫酸還元	$k^{OC}/K^{OC}=10^{-7}\sim 10^{-6}$	/(cell/mL)/y

酢酸塩からの脱窒については、前述のとおり、Michaelis-Menten 型の計算も可能であったので、そのときの数値（図 4.15）を式（5）に代入して計算すると、

$$k^{OC}/K^{OC}=4.5\times 10^{-5}/25=1.8\times 10^{-6} \text{ /(cell/mL)/y}$$

または、DOC のうち 3mg/L を難分解性として除外した場合、

$$k^{OC}/K^{OC}=2.8\times 10^{-4}/46=6.1\times 10^{-6} \text{ /(cell/mL)/y}$$

となり、ほぼ図 4.17 と同じオーダーになった。

この  $k^{OC}/K^{OC}$  値に、地下圏の現場の全菌数実測値、現場の地下水の DOC 濃度を式（5）のように乗じると、その場の容積あたりの有機物分解速度を計算できる。さらに地下水流量の情報を加えると、硝酸塩がどこで消費され尽すかの予測も可能となる。しかし、この数値をそのまま数値モデルに活用するにはまだ課題がある。今後、様々な地下水、とくに異なる DOC 濃度の地下水でデータを蓄積していく必要がある。帯水層模擬試験装置は、そのためには有効な方法の一つであると考えている。

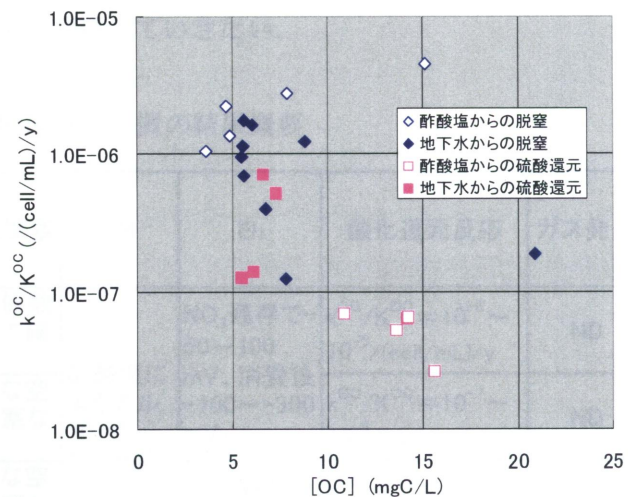


図 4.17  
 $k^{OC}/K^{OC}$  値の分布とそれが得られたときの DOC 濃度

#### (6) ガス発生

気相のガス分析および流出水の溶存ガス分析は、断片的にしか実施しなかった。結果は前項（酸化還元反応の基質と生成物）に記載した。本試験装置は、ガス発生量の定量的評価のためには不完全であった。

#### (7) まとめ、残された課題

砂の堆積する帯水層をモデル化した試験装置を用いた延べ 380 日にわたる運転の結果、主として電子供与体 2 種類（酢酸塩、地下水の有機物）、電子受容体 2 種類（硝酸塩、硫酸

塩)の組み合わせという限られた範囲であったが、流入水の基質組成ごとに微生物影響に関わる項目のデータを得ることができた。得られたアウトプットは、微生物量、コロイドとして流出する微生物量、空隙閉塞の指標としての透水係数、pH、Eh、酸化還元反応に伴う電子受容体と電子供与体の濃度変化などであった。結果の概要を表 4.9 に示す。

これらの結果から、この条件の帯水層における微生物挙動やその影響の一端に関するデータが得られ、また地下水水質による数値の違いも示された。地下環境で重要とされている鉄還元細菌の反応が進む条件での試験にもその後着手している(石井、福永ら、未発表)。しかし、酢酸塩からの脱窒以外はデータのばらつきが大きかったこと、全菌数以外の微生物観察が十分でなかったこと、地下水貯槽で微生物が繁殖してしまうなど装置自体に改良の余地があること、粒径 0.25~0.5mm の砂の充填層以外の条件(例えば、岩盤中の亀裂)で試験しなかったことなどの課題も残っている。

この試験装置は将来的には、数値モデルの確証に使用できる可能性がある。例えば、微生物影響評価における課題(前前章 2.6(13)参照)、即ち①バイオフィームによる核種収着というプラス効果(核種移行抑制)とコロイド形成というマイナス効果(核種移行促進)のバランス、②錯体形成というマイナス効果と錯体形成する有機物の消費というプラス効果のバランスを数値モデルで予測した場合、核種あるいは錯体を装置に流入させて、その挙動を調査することによって数値モデルの確証も可能となる。このような将来に向けて、試験装置および試験方法を充実させ、データも蓄積していきたい。

表 4.9 帯水層模擬試験装置の結果概要

		微生物量	コロイドとして流出する微生物量	空隙閉塞	pH	Eh	酸化還元反応	ガス発生
実測結果	酢酸塩からの脱窒	10 <sup>8</sup> /mL間隙水	浮遊/付着比 9%	透水係数低下で確認	酢酸塩によるアルカリ性が、反応に伴い中性に近づく	NO <sub>3</sub> 残存で50~100 mV、消費後-100~-300 mV	k <sup>OC</sup> /K <sup>OC</sup> =10 <sup>-6</sup> ~10 <sup>-5</sup> /(cell/mL)/y	ND
	地下水からの脱窒	10 <sup>8</sup> /mL間隙水	浮遊/付着比 3%	顕著な空隙閉塞なし		SO <sub>4</sub> 残存で-200~-300 mV、消費後更に低下可能性	k <sup>OC</sup> /K <sup>OC</sup> =10 <sup>-7</sup> ~10 <sup>-5</sup> /(cell/mL)/y	ND
	酢酸塩からの硫酸還元	10 <sup>8</sup> /mL間隙水	浮遊/付着比 10%	顕著な空隙閉塞なし		k <sup>OC</sup> /K <sup>OC</sup> =10 <sup>-8</sup> ~10 <sup>-7</sup> /(cell/mL)/y	ND	
	地下水からの硫酸還元	—	—	顕著な空隙閉塞なし		k <sup>OC</sup> /K <sup>OC</sup> =10 <sup>-7</sup> ~10 <sup>-6</sup> /(cell/mL)/y	ND	
実測結果から推測できる微生物影響		核種収着/取りこみなど	コロイド形成		核種の移行挙動	核種の還元による移行挙動変化	ガス発生、金属腐食など	

ND: データを得ることができなかったもの。



## 5. 残された課題

以上の検討・試験の結果は次のようにまとめられる。

### ①放射性廃棄物処分の現状と課題

- ・高レベル廃棄物および TRU 廃棄物の処分を想定し、人工バリアの各部および天然バリアごとに微生物量に影響を及ぼす要因を抽出し、処分場開設時からの時間別に、微生物量と影響要因を示す図を作成した（図 2.6 および 2.8）。処分場開設後、廃棄体近くでは微生物量が減少する可能性が高く、天然バリア（岩盤）では増加する要素もあると推定された。
- ・次いで、微生物が安全性能に及ぼす影響についても同様の図を作成した（図 2.7 および 2.9）が、次の課題が抽出された。高レベル廃棄物では、オーバーパック破損前の酸素残存時には還元状態形成と pH 低下とのバランス、破損後にはバイオフィームによる核種の収着・取り込みとその剥離によるコロイド形成とのバランス、また有機錯体の消費と生成のバランス（いずれも前者が安全側）がどちらに傾くかなどである。TRU 廃棄物では  $^{14}\text{C}$  を含むガス発生とヨウ素の挙動などである。
- ・最終的には数値モデル化が必要であるが、まず取り組むべきテーマとして、処分場開設から長期間経過後の微生物量の把握のためのナチュラルアナログの調査、微生物影響の課題への対応としての処分場環境を模擬した物理モデルによる微生物反応データ取得などが挙げられた。

### ②ベントナイト鉱床の微生物調査

- ・緩衝材における微生物の長期挙動を予測するため、ナチュラルアナログとして、表面が湿った状態で 2~30 年間放置されたベントナイト鉱床のボーリング調査を行った。
- ・コアは、表面から離れるにつれ細菌数が減少し、ベントナイト層の環境が細菌の生存と増殖に好ましいものでないことがわかった。
- ・コアの物理化学的性質と細菌数との相関関係などから、この原因は、ベントナイトの乾燥密度の高さ、またはベントナイトによる細菌のろ過作用であろうと推定された。
- ・ベントナイトには微生物活動を抑え人工バリアの構造への悪影響を防ぐ効果が期待されているが、それに関わる基礎データとなった。
- ・しかし微生物抑制に及ぼす乾燥密度、フィルトレーション以外の要素の検討、地下水の流れや Eh など現場の特性の把握など、未解決の面も残されている。

### ③帯水層模擬試験装置における微生物反応の把握

- ・物理モデルとして、砂の堆積物から成る帯水層模擬試験装置を製作し、雰囲気制御グローブボックス内に設置して、硝酸塩、硫酸塩などの電子受容体を加えた地下水（または酢酸塩と電子受容体を含む模擬地下水）を通水する試験を実施した。
- ・その結果、砂の間隙水あたり  $10^8/\text{mL}$  前後の全菌数が存在し、その大部分は砂に付着し、

1~10%程度が浮遊している、即ちコロイドとなりうることがわかった。

- ・酢酸塩からの脱窒を優先させると空隙閉塞傾向が見られること、硝酸塩濃度と酸化還元電位 (Eh) の関連性などが示された。

- ・また、様々な微生物影響の基礎となる反応速度に関し、有機物の最大比消費速度( $k^{OC}$ )と半飽和定数( $K^{OC}$ )が求められない場合のパラメータとして  $k^{OC}/K^{OC}$  (微生物量と DOC 量あたりの DOC 消費速度) による評価を試み、酢酸塩添加の脱窒において  $10^{-6} \sim 10^{-5}/(\text{cell/mL})/y$  の値を得た。地下水での脱窒、酢酸塩添加および地下水での硫酸還元に関する  $k^{OC}/K^{OC}$  値はより低い値となり、地下水中の電子受容体、電子供与体の影響が微生物反応速度に及ぼす影響が示唆されたが、いくつかの仮定が入っており、ばらつきも大きく、精度よい評価のためには更に試験が必要と判断された。

- ・この試験装置に放射性核種 (あるいは模擬する核種) や錯体を形成する有機物等を注入する試験を行えば、問題となる微生物影響を直接評価できると考える。

- ・砂の鉱物組成、表面状態、微生物との相互作用などについては検討不十分である。また試験条件は、本来岩盤である実際の処分場環境と異なっており、有機物濃度や地下水の流速も実際より相当大きい。これらのギャップを埋めるため流速や空隙率をパラメトリックに変動させる試験もまだ行っていない。こういう未実施課題を今後解決していく必要がある。

地層処分における微生物影響を長期予測し安全評価に資するためには、これらの課題を実施し、さらにベントナイト以外の人工バリアのナチュラルアナログ、岩盤の微生物の調査などを進めた上で、微生物を扱った数学モデル、数値モデル (例えば、Miyasaka et al., 2004) への発展が必要である。現場のデータやシミュレーション実験結果との整合性を評価しながらモデルを改良し (中嶋, 1995 参照)、地球化学や移流・分散のモデルとの融合も視野に入れつつ、現場への適用を図っていくべきであろう。とくに数値モデルを機械的に扱うのではなく、フィールドの微生物挙動を反映しつつ改良していくべきであり、そのためにはフィールドの情報をもっと必要となる。それにより放射性廃棄物処分の安全評価の信頼性が一層向上すると考える。また、こういう微生物影響の長期予測の道筋ができれば、やり直しの効かない様々な地下圏の開発・利用分野 (ブッカーリ & ラマ, 1991; 陶野, 1990; 水谷敏則, 1994; 国土交通省, 2005) における環境影響予測を、微生物の要素も含めた形で実施できると期待される。

## 6. 謝辞

この「放射性廃棄物地層処分における微生物影響」の研究は、1991年に、石川島播磨重工業株式会社(IHI)内で開始した。当時、国内では、地層処分の分野で微生物研究を行おうとする気運はほとんど無かった。海外の動きを察知した、いわば少数派ともいえる何人かの方が、厳しい環境の中で企画していただき、この研究に着手することができた。その後、核燃料サイクル開発機構(JNC)および原子力環境整備促進・資金管理センター(RWMC)のご指導・ご援助をいただき、また石川島検査計測株式会社(IIC)のご協力もいただきながら、少しずつ発展させることができ、国際会議での発表や雑誌への投稿を積み重ねることができた。平成13年度にはJNCの資金で「地層処分における微生物影響の評価研究」を実施させていただいた。第3章はその成果の一部である。また平成14~16年度には、経済産業省/エネルギー総合工学研究所殿による革新的実用原子力技術開発提案公募事業「地層処分に及ぼす微生物影響のシミュレーションに関する技術開発」を実施させていただいた。第4章はその成果の一部である。(JNCは、2005年10月より日本原子力研究開発機構(JAEA)となる。)

この間、微生物研究の意義を認め厳しい環境のもと調整・企画をしていただいた方、貴重な指導、助言、議論をしていただいた方、多岐にわたる資料を提供していただいた方、研究や実験を共に実施したパートナー、フィールド調査にて助力をいただいた方、IHI社内で、また社外で様々な面でサポートしていただいた方など、とても大勢の方々のお世話になった。その存在なしには、本研究は実施することはできなかった。次の方々にご心よりお礼を申し上げます次第である。

青木和弘(JNC)、朝野英一(RWMC)、荒井和浩(IHI)、石井浩介(IHI)、岩田裕美子(IHI)、加藤憲二(静岡大)、菅野毅(IHI)、工藤章(吉備国際大)、佐々木憲明(元JNC)、神徳敬(IHI)、千手隆史(IIC)、瀧井進(元都立大)、辻堯(玉川大)、栃木善克(JNC)、中山衛(IHI)、永井清(IIC)、難波謙二(福島大)、楡井久(茨城大)、布上喜一(IHI)、藤木喜市(元IHI)、藤原愛(RWMC)、本田明(JNC)、本谷益良(元IHI)、三原守弘(JNC)、嶺達也(元JNC)、宮坂郁(IHI)、三輪敬一(元IHI)、茂木賢一(クニミネ工業)、油井三和(JNC)、吉川英樹(JNC)、若松久夫(IHI)、Karsten Pedersen(Goteborg Univ., Sweden)、Simca Stroes-Gascoyne(Atomic Energy of Canada Limited)、Yifeng Wang(Sandia National Lab., USA)、Julia M. West(British Geological Survey, UK)。

なかんずく、加藤憲二教授にはこのたびの博士論文審査申請の世話人として、ここに至るまで特段のご指導と力づけをいただいた。深く感謝し、御礼申し上げます。

## 7. 参考文献

- Agg, P.J. (1993) Modelling gas generation in radioactive waste repositories. *Nucl. Energy*, Vol.32, pp.81-87.
- Aiken, A.M., Peyton, B.M., Petersen, J.N., Apel, W.A. & Camper, A.K. (2003) The influence of siderophores produced by alkaliphilic microorganisms on iron and metal contaminant speciation and solubility. American Geophysical Union, Fall Meeting Abstract, #B21B-0707.
- Ait-Langomanino, N., Seller, R., Jouquet, G. & Trescinski, M. (1991) Microbial degradation of bitumen. *Experientia*, Vol.47, pp.533-539.
- Amachi, S., Hanada, S., Kamagata, Y. Fujii, T. & Muramatsu, Y. (2003) Bacteria mediate iodine volatilization, oxidation and accumulation in the environment. deposit. 16<sup>th</sup> International Symposium on Environmental Biogeochemistry Abstracts, pp.230.
- Aoki, K., Kato, K., Hama, K. & Kunimaru, T. (2003) Preliminary microbial analysis of groundwater in Horonobe, Japan. 16<sup>th</sup> International Symposium on Environmental Biogeochemistry Abstracts, pp.201.
- 青木和弘、杉田裕、千々松正和、奥村滋子、川上泰、田崎和江 (2003) 釜石鉱山での熱-水-応力連成試験における微生物分析. 日本原子力学会 2003 年秋の大会, K48, pp.623.
- Anderson, M.P. & Woessner, W.W., 藤縄克之監訳(1994) 地下水モデル. 共立出版.
- Balkwill, D.L., Fredrickson, J.K. & Thomas, J.M. (1989) Vertical and horizontal variations in the physiological diversity of the aerobic chemoheterotrophic bacterial microflora in deep southeast coastal plain subsurface sediments. *Appl. Env. Microbiol.*, Vol.55, pp.1058-1065.
- Beller, H.R. (2005) Anaerobic, nitrate-dependent oxidation of U(IV) oxide minerals by the chemolithoautotrophic bacterium *Thiobacillus denitrificans*. *Appl. Env. Microbiol.*, Vol.71, pp.2170-2174.
- Boone, D.R., Worakit, S., Mathrani, I.M. & Mah, R.A. (1986) Alkaliphilic methanogens from high-pH lake sediments. *System Appl. Microbiol.*, Vol.7, pp.230-234.

Bors, J. & Martens, R. (1992) The contribution of microbial biomass to the adsorption of radionuclide in soils. *J. Environ. Radioactivity*, Vol.15, pp.35-49.

Brock, T.D. (1966) *Principles of microbial ecology*. Prentice-Hall, Inc.

ブックリ, V.S. & ラマ, R.D. (1991) *地下環境工学*. 海文堂.

Caldwell, D.E., Hallet, R.C., Molecke, M.A., Martinez, E. & Barnhart, B.J. (1988) Rates of CO<sub>2</sub> production from the microbial degradation of transuranic wastes under simulated geologic isolation conditions. SAND—87-7170.

Chapelle, F.H. & Lovley, D.R. (1992) Competitive exclusion of sulfate reduction by Fe(III)-reducing bacteria—a mechanism for producing discrete zones of high-iron ground water. *Groundwater*, Vol.30, pp.29-36.

Cho, A. (2005) Two mines in running for underground lab. *Science*, Vol.309, pp.682.

Crozier, R.H., Agapow, P.M. & Pedersen, K. (1999) Towards complete biodiversity assessment: an evaluation of the subterranean bacterial communities in the Oklo region of the sole surviving natural nuclear reactor. *FEMS Microbiology Ecology*, Vol.28, pp.325-334.

電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構(2005) TRU 廃棄物処分技術検討書. JNC TY1400 2005-002, FEPC TRU-TR2-2005-01.

Francis, A.J., Dobbs, S. & Doering, R.F. (1980) Biogenesis of tritiated and carbon-14 methane from low-level radioactive waste. *Nuclear and Chemical Waste Management*, Vol.1, pp.153-159.

Francis, A.J., Gillow, J.B. & Giles, M.R. (1997) Microbial gas generation under expected waste isolation pilot plant repository conditions. SAND96-2582 (UC-721).

Fukunaga, S., Fujiki, K. & Asano, H. (1993) Microbial growth enhanced when using bentonite as a buffer material for radioactive waste repositories. Abstract for 1993 International Symposium on Subsurface Microbiology (ISSM-93), Bath, UK, pp.19-24.

Fukunaga, S., Yoshikawa, H., Fujiki, K. & Asano, H. (1995) Experimental investigation on the active range of sulfate-reducing bacteria for geological disposal. *Mat Res Soc Symp Proc.* Vol.353, pp.173-180.

Fukunaga, S., Fujiwara, A., Kurashige, T. & Arai, K. (1996) Experiments on the assessment of microbial gas generation in radioactive waste disposal. Abstract for 1996 International Symposium on Subsurface Microbiology (ISSM-96), Davos, Switzerland, pp.92.

Fukunaga, S., Honya, M., Yokoyama, E., Arai, K., Mine, T., Mihara, M. & Senju, T. (2001) A study on conditions for microbial transport through compacted buffer material. *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, Vol.663, pp.675-682.

Fukunaga, S., Tsuji, T., Mogi, K., Ito, M., Sakaya, N., Jintoku, T., Iwata, Y. & Nakayama, M. (2005) Investigation of microorganisms in bentonite deposits. *Geomicrobiology J.* Vol.22, pp.1-10.

福永栄 (1992) 容器腐食や核種移行に及ぼすベントナイト起源の微生物影響について. 平成4年度「放射性廃棄物管理専門研究会」報告書 KURRI-TR-375, pp.32-36.

福永栄(1994) 1993 International Symposium on Subsurface Microbiology に参加して. 日本微生物生態学会誌, Vol.9, pp. (1)-(2).

福永栄、北山和茂 (1986) 溶存メタンの簡便測定法. 第20回水環境学会講演集, pp.215-216.

福永栄、滝井進、阿部美樹子 (1999) 地下環境における鉄還元細菌の役割. 月刊海洋, 号外 No.19, pp.139-145.

福永栄、中山衛、神徳敬、菅野毅、工藤章 (2002) 地層処分における微生物影響の評価研究. JNC TJ8400 2002-036.

福永栄、岩田裕美子、菅野毅、工藤章 (2003) 地層処分における微生物影響の評価研究(II). JNC TJ8400 2003-069.

藤原和弘、川嶋文人 (2002) 微生物の地層処分環境条件における馴化の研究. JNC TJ8400 2002-034.

腐食防食協会 (2004) エンジニアのための微生物腐食入門. 丸善.

Grant, W.D., Mwatha, W.E. & Jones, B.E. (1990) Alkaliphiles: ecology, diversity and applications. *FEMS Microbiology Reviews*, Vol.75, pp.255-270.

Haldeman, D.L., Amy, P.S., Ringelberg, D. & White, D.C. (1993) Characterization of the microbiology within a 21 m<sup>3</sup> section of rock from the deep subsurface. *Microb. Ecol.*, Vol.26, pp.145-159.

Hama, K., Bateman, K., Coombs, P., Hards, V.L., Milodowski, A.E., West, J.M., Wetton, P.D., Yoshida, H. & Aoki, K. (2001) Influence of bacteria on rock-water interaction and clay mineral formation in subsurface granitic environments. *Clay Minerals*, Vol.36, pp.599-613.

Harvey, K.B. (1997) Review of sorption models and their suitability for use in performance assessment. AECL-10883, COG-94-621-1.

Haveman, S.A., Stroes-Gascoyne, S. & Hamon, C.J. (1995) The microbial population of buffer material. Atomic Energy of Canada Ltd. Technical Record COG-94-488 (PB95-269718).

Hazen, T.C., Jimenez, L., Lopez, G. & Fliermans, C.B. (1991) Comparison of bacteria from deep subsurface sediment and adjacent groundwater. *Microb. Ecol.*, Vol.22, pp.293-304.

ヘルミック, R. 小林健一郎訳 (2004) 地下環境での多相流と輸送現象. シュプリンガー・フェアラー東京.

Hinrichs, K., Hayes, J.M., Sylva, S.P., Brewer, P.G. & Delong, E.F. (1999) Methane-consuming archaeobacteria in marine sediments. *Nature*, Vol.398, p.802-805.

Horn, J.M., Masterson, B.A., Rivera, A., Miranda, A., Davis, M.A. & Martin, S. (2004) Bacterial growth dynamics, limiting factors, and community diversity in a proposed geological nuclear waste repository environment. *Geomicrobiol. J.*, Vol.21, pp.273-286.

Horn, J.M. & Meike, A. (1995) Microbial activity at Yucca Mountain. UCRL-ID-122256.

Humphreys, P. Johnstone, T. Trivedi, D. & Hoffmann, A. (1995) The biogeochemical transport code DRINK: a mechanistic description. *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, Vol.353, pp.211-218.

Ishii, K., Takii, S., Fukunaga, S. & Aoki, K. (2000) Characterization by denaturing gradient gel electrophoresis of bacterial communities in deep groundwater at the Kamaishi Mine, Japan. *J. gen. Appl. Microbiol.* Vol.46, pp.85-93.

Ishikawa, H., Amemiya, K., Yusa, Y. & Sasaki, N. (1990) Comparison of fundamental properties of Japanese bentonite as buffer material for waste disposal. *Proc of the 9<sup>th</sup> International Clay Conference*, *Sci Geol Mem* 87:107-115.

伊藤雅和、石井卓、中島均、平田征弥 (1999) ベントナイトの成因・生成環境に関する一考察—国内4鉱床の比較—。粘土化学, Vol.38, pp.181-187.

岩田進午、岡高明、喜田大三、鈴木清 (1997) 土の環境圏。富士テクノシステム。

Jacquot, F., Libert, M.F., Romero, M.A. & Besnainou (1997) In vitro evaluation of microbial effects on bitumen waste form. In Wolfram et al. (ed.) *Microbial degradation processes in radioactive waste repository and in nuclear fuel storage areas*, Kluwer Academic Publishers, printed in the Netherlands, pp.275-283.

梶山文夫(1994) 土壤埋設管の微生物腐食とその抑制. 第100回腐食防食シンポジウム資料, 腐食防食協会, pp.55-70.

核燃料サイクル開発機構 (1999) わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼—地層処分研究開発第2次取りまとめ. JNC TN1400 99-023.

核燃料サイクル開発機構・電気事業連合会(2000) TRU 廃棄物処分技術検討書. JNC TY1400 2000-001, TRU TR-2000-01.

鎌形洋一 (1992) 絶対嫌気環境下における微生物の共生. 水環境学会誌, Vol.15, pp.21-26.

上條万一郎、鈴木徹、河合啓一 (1999) 希土類元素集積微生物. *BIO INDUSTRY*, Vol.16, pp.36-42.



Kato, K., Toth, L.G., Maruyama, T., Nishijima, M., Namba, K. Fujikura, K. & Yamamoto, H. (2003) Discovery of the very high primary production by planktonic chemolithotrophic bacteria and possible food chain at deep sea hydrothermal vent ecosystem. 16<sup>th</sup> International Symposium on Environmental Biogeochemistry Abstracts pp. 101.

Kawano, M. & Tomita, K. (2001) Microbial biomineralization in weathered volcanic ash deposit and formation of biogenic minerals by experimental incubation. *American Mineralogist* Vol.86, pp.400-410.

Kieft, T.L., Kovacik, W.P., Ringelberg, D.B., White, D.C., Haldeman, D.L., Amy, P.S. & Hersman, L.E. (1997) Factors limiting microbial growth and activity at a proposed high-level nuclear repository, Yucca Mountain, Nevada. *Appl. Env. Microbiol.* Vol.63, pp.3128-3133.

King, F., Kolar, M., Stroes-Gascoyne, S., Bellingham, P. Chu, J. & Dawe, P.V. (1999) 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.

北村信 (1995) 放射性廃棄物処分と地質科学：課題と展望., 島崎英彦, 新藤静夫, 吉田鎮男(ed.)放射性廃棄物と地質科学, 東京大学出版会, pp.1-3.

北山一美, 土宏之, 高橋美昭 (2004) わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分事業の概要と現状. *月刊地球*, Vol.26, pp.339-343.

小林弘 (1996) 環境の pH 変化に対する細菌の適応機構. *日本細菌学雑誌*, Vol.51, pp.745-753.

Kovacova, S., Lesny, J. & Sturdik, E. (2005) Recent trends in nuclear waste disposal. *HU ISSN 1418-7108: HEJ Manuscript no.:ENV-020507-A*  
(<http://heja:szif.hu/ENV/ENV-020507-A/env.020507a.pdf>)

国土交通省(2005) <http://www.mlit.go.jp/crd/daisindo/index.html>

工藤章 (2000) 微生物と核種の吸着性の調査研究., 福永ら “人工バリア材料に対する微生物の透過性及び核種の吸着性の評価, JNC TJ8400 2000-30”, pp.15-41.

Lappin-Scott, H.M., Cusack, F. & Costerton, J.W. (1988) Nutrient resuscitation and growth of starved cells in sandstone cores: a novel approach to enhanced oil recovery. *Appl. Env. Microbiol.*, Vol.54, pp.1373-1382.

Lehman, R.M., O'Connell, S.P., Banta, A., Fredrickson, K., Reysenbach, A., Kieft, T.L., and Colwell, F.S. (2004) Microbiological comparison of core and groundwater samples collected from a fractured basalt aquifer with that of dialysis chambers incubated in situ. *Geomicrobiol. J.*, Vol.21, pp.169-182.

Little, B. & Wagner, P. (1996) An overview of microbiologically influenced corrosion of metals and alloys used in the storage of nuclear wastes. *Can. J. Microbiol.*, Vol.42, pp.367-374.

MacLeod, F.A., Lappin-Scott, H.M. & Costerton, J.W. (1988) Plugging of a model rock system by using starved bacteria. *Appl. Env. Microbiol.*, Vol.54, pp.1365-1372.

McKinley, I.G. & Grogan, H.A. (1991) Consideration of microbiology in modeling the nearfield of a L/ILW repository. *Experientia*, Vol.47, pp.573-577.

McKinley, J.P., Stevens, T.O., Fredrickson, J.K., Zachara, J.M., Colwell, F.S., Wagnon, K.B., Smith, S.C., Rawson, S.A. & Bjornstad, B.N. (1997) Biogeochemistry of anaerobic lacustrine and paleosol sediments within an aerobic undonfiner aquifer. *Geomicrobiology J.*, Vol. 14, pp.23-39.

Miyasaka, I, Nanba K., Kato, K., Tochigi, Y., Fukunaga S., Kanno, T., Yoshikawa, H. & Yui, M. (2004) Numerical simulation of the interaction among geological, chemical and microbial factors and its verification by an observation dataset. The 4<sup>th</sup> International Symposium on Advanced Science Research: Advances in Heavy Elements Microbiology Research, Tokai, Ibaraki, Japan, JAERI, pp.26.

水谷伸治郎(1995)地下処分の現状：欧米諸国における研究の動向と地質環境., 島崎英彦, 新藤静夫, 吉田鎮男(ed.)放射性廃棄物と地質科学, 東京大学出版会, pp.309-340.

水谷敏則(1994) 地下空間を拓く－地下空間建設技術－. 山海堂.

水谷義彦(1995) 地下水の地化学特性., 島崎英彦, 新藤静夫, 吉田鎮男(ed.)放射性廃棄物と地質科学, 東京大学出版会, pp.123-164.

森忠洋 (1989) コンクリート構造物の微生物腐食. 用水と廃水, Vol.31, pp.391-396.

Molecke, M.A. (1980) Gas generation from transuranic waste degradation. Scientific Basis for Nuclear Waste Management, Vol.2, pp.569-575.

Morita, R.Y. (2000) Is H<sub>2</sub> universal energy source for long-term survival? Microbial Ecol., Vol.38, pp.307-320.

Motamedi, M., Karland, O. & Pedersen, K. (1996) Survival of sulfate-reducing bacteria at different water activities in compacted bentonite. FEMS Microbiology Letters Vol.141, pp.83-87.

村上昭彦ら(1985) 海洋微生物による原油の分解について. 水質汚濁研究, Vol.8, pp.373-379.

Murakami, Y. Mandernack, K., Iwatsuki, T. & Naganuma, K. (2003) Activity and electron donor utility of sulfate-reducing bacteria in groundwater of the Tono uranium deposit. 16<sup>th</sup> International Symposium on Environmental Biogeochemistry Abstracts, pp.39.

村上由記、岩月輝希、長沼毅 (2003) 東濃地域における地下水化学と微生物の相互作用. 地学雑誌 Vol.112, pp.277-287.

村岡進、佐藤正知、大江俊昭 (2003) 放射性廃棄物の処分 第1回 放射性廃棄物概論. 日本原子力学会誌, Vol.45, pp.634-646.

Musslewhite, C.L., McInerney, M.J., Dong, H., Onstott, T.C., Green-Blum, M., Swift, D. & Macnaughton, S. (2003) The factors controlling microbial distribution and activity in the shallow subsurface. Geomicrobiology J. 20, pp.245-261.

長沼毅(1999)ベントナイト微生物学－地下深部研究および地層処分研究への応用の一例－. 月刊海洋, 号外 No.19, pp.133-138.

Nagao, S., Rao, R.R., Killey, R.W.D. & Young, J.L. (1998) Migration behavior of Eu(III) in sandy soil in the presence of dissolved organic materials. *Radiochimica Acta* Vol.82, pp.205-211.

中嶋悟(1995) 岩石中の物質移動と岩石・水反応機構., 島崎英彦, 新藤静夫, 吉田鎮男(ed.) 放射性廃棄物と地質科学, 東京大学出版会, pp.186-225.

中山真一、田中知、佐藤正知 (2004) 放射性廃棄物の処分 第5回 廃棄物との共存をめざして. 日本原子力学会誌, Vol.46, pp.253-265.

難波謙二、宮坂郁、加藤憲二、福永栄 (2004) 地層処分と微生物. 月刊地球 Vol. 26, pp.469-474.

鳴海一成(2003) ラジオデュランス：放射線抵抗性細菌., 村松ら(ed.)放射線と地球環境, 放射線医学総合研究所, 研成社, pp.103-122.

日本ベントナイト工業会 (1977, 1991) 標準試験法. JBAS-105-77, JBAS-106-77, JBAS-101-77, JBAS-107-91

日本原子力産業会議(2003) 原子力ポケットブック.

日本工業標準調査会 (1998) 工場排水試験方法(JIS K0102) pp.53-58, pp.181-184.

西村務、和田隆太郎、西本英敏、藤原和雄、谷口直樹、本田明 (1999) ベントナイト中における炭素鋼の腐食に及ぼす微生物の影響. JNC TN8400 99-077.

西尾隆 (1992) 脱窒作用の測定と脱窒菌の計数、分離., 土壤微生物研究会編, 新編土壤微生物実験法, 養賢堂, pp.215-223.

岡田光正(1988) 微生物のモデル実験., 須藤隆一(ed.)環境微生物実験法, 講談社, pp.60-80.

大貫敏彦 (2002) 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, pp.35-42.

Oremland, R.S., Marsh, L. & DesMarais, D.J. (1982) Methanogenesis in Big Soda Lake, Nevada: an alkaline moderately hypersaline desert lake. *Appl. Env. Microbiol.*, Vol.43, pp.462-468.

Parkes, R.J., Wellsbury, P. & Cragg, B.A. (2003) Geomicrobiological processes in the deep sub-seafloor biosphere. 16<sup>th</sup> International Symposium on Environmental Biogeochemistry Abstracts pp.95-100.

Pearson, F.J., Arcos, D., Bath, A., Boisson, J.-Y., Fernandez, A.M., Gabler, H.-E., Gaucher, E., Gautschi, A., Griffault, L., Hernan, P. & Waber, N. (2003) Mont Terri Project at the Mon Terri Rock laboratory. BWG, OFEG, UFAEG, UFAEG & FOWG.

Pedersen, K. (1993) The deep subterranean biosphere. *Earth-Science Reviews*, Vol.20, pp.399-414.

Pedersen K. (1996) Bacteria, colloids and organic carbon in groundwater at the Bangmbe site in the Oklo area. SKB Technical Report 96-01.

Pedersen, K. (1997) Microbial life in deep granitic rock. *FEMS Microbiology Reviews*, Vol.20, pp.399-414.

Pedersen, K. (1999) Evidence for a hydrogen-driven, intra-terrestrial biosphere in deep granitic rock aquifers. *Proc. 8<sup>th</sup> Int. Symp. Microb. Ecol.* Halifax, Canada.

Pedersen, K.(2000) Microbial processes in radioactive waste disposal. SKB Technical Report TR-00-04.

Pedersen, K. & Karlsson, F. (1995) Investigation of subterranean microorganisms Their importance for performance assessment of radioactive waste disposal. SKB Technical Report 95-10.

Pedersen K, Motamedi M, Karland O, Sanden T. (2000a) Cultivability of microorganisms introduced into a compacted bentonite clay buffer under high-level radioactive waste repository conditions. *Engineering Geology*, Vol.58, pp.149-161.

Pedersen, K., Motamedi, M., Karland, O. & Sanden, T. (2000b) Mixing and sulphate-reducing activity of bacteria in swelling, compacted bentonite clay under high-level radioactive waste repository conditions. *J appl Microbiol* 89, pp.1038-1047.

Postgate, J.R. (1979) *The sulphate-reducing bacteria*. Cambridge University Press.

Puigdomenech, I., Ambrosi, J-P, Eisenlohr, L., Kartigue, J-E., Banwart, S.A., Bateman, K., Milidowski, A.E., West, J.M., Griffault, L., Gustafsson, E., Hama, K., Yoshida, H., Kotelnikova, S., Pedersen, K., Michaud, V., Trotignon, L., Perez, J.R., & Tullborg, E-L. (2001) O<sub>2</sub> depletion in granitic media (The REX Project). SKB Technical Report TR-01-05.

Reasoner, D.J. & Geldreich, E.E. (1985) A new medium for the enumeration and subculture of bacteria from potable water. *Appl. Environ. Microbiol.* Vol.44, pp.945-953.

Rothfuss, F., Bender, M. & Conrad, R. (1997) Survival and activity of bacteria in a deep, aged lake sediment (Lake Constance). *Microbial. Ecol.*, Vol.33, pp.69-77.

Santo Domingo, J.W., Berry, C.J., Summer, M. & Fliermans, C.B. (1998) Microbiology of spent nuclear fuel storage basins. *Current Microbiology* Vol.37, pp.387-394.

Sasaki, T. & Kudo, A. (2001) Pu sorption to activated conglomerate anaerobic bacteria. *Chemistry Letters*, pp.196-197.

資源エネルギー庁 (1997) 原子力発電便覧 1997 年版. (<http://mext-atm.jst.go.jp/atomica>)

資源エネルギー庁 (2005) <http://www.enecho.meti.go.jp/hokoku/html>

鹿園直建(1995)地下水・熱水シナリオとナチュラルアナログ研究., 島崎英彦, 新藤静夫, 吉田鎮男(ed.)放射性廃棄物と地質科学, 東京大学出版会, pp.147-164.

新藤静夫, 井伊博行(1995)表層における地下水流動, 島崎英彦, 新藤静夫, 吉田鎮男(ed.)放射性廃棄物と地質科学, 東京大学出版会, p.39-68.

Sobolev, D. & Roden E.E. (2002) Evidence for rapid microscale bacterial redox cycling of iron in circumneutral environments. *Antonie van Leeuwenhoek* Vol.81, pp.587-597.

Stevens, T.O. & Mckinley, J.P. (2000) Abiotic controls on H<sub>2</sub> production from basalt – Water reactions and implications for aquifer biogeochemistry. *Environ. Sci. Technol.*, Vvol.34, pp.826-831.

Stroes-Gascoyne, S. & West, J.M. (1995) Microbial considerations and studies in the Canadian nuclear fuel waste management program. *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, Vol.353, pp.165-172.

Stroes-Gascoyne, S. and West, J.M. (1996) 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. Microbiol.*, Vol.42, pp.349-366.

Stroes-Gascoyne, S., Pedersen, K., Daumas, S., Hamon, C.J., Haveman, S.A., Delaney, T.L., Ekendahl, S., Jahromi, N., Arlinger, J., Hallbeck, L. & Dekeyser, K. (1996) Microbial analysis of the buffer/container experiment at AECL's Underground Research Laboratory. AECL-11436 (SKB 96-02).

Stroes-Gascoyne, S. & West, J.M. (1997) Microbial studies in the Canadian nuclear fuel waste management program. *FEMS Microbiology Reviews*, Vol.20, pp.573-590.

Stroes-Gascoyne, S., Haveman, S.A., & Vilks, P. (1997a) The change in bioavailability of organic matter associated with clay-based buffer materials as a result of heat and radiation treatment. *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* Vol.465, pp.987-994.

Stroes-Gascoyne, S., Pedersen, K., Haveman, S.A., Dekeyser, K., Arlinger, J., Daumas, S., Ekendahl, S., Hallbeck, L., Hamon, C.J., Jahromi, N., & Delaney, T. (1997b) Occurrence and identification of microorganisms in compacted clay-based buffer material designed for use in a nuclear fuel waste disposal vault. *Can. J. Microbiol.* Vol.43, pp.1133-1146.

Stroes-Gascoyne, S., Lucht, L.M., Oscarson, D.W., Dixon, D.A., Hume, H.B. & Miller, S.H. (1999) Migration of bacteria in compacted clay-based material. 11<sup>th</sup> International Clay Conference, Ottawa, Canada, pp.117-122.

Stroes-Gascoyne, S., Haveman, S.A., Hamon, C.J. & Ticknor, K.V. (2000) Analysis of biofilms grown in situ at AECL's underground research laboratory on granite, titanium and copper coupons. AECL-12098.

Stroes-Gascoyne, S., Hamon, C.J., Vilks, P. & Gierszewski, P. (2002) Microbial, redox and organic characteristics of compacted clay-based buffer after 6.5 years of burial at AECL's underground research laboratory. *Appl. Geochem.*, Vol.17, pp.1287-1303.

Strous, M. (2000) Microbiology of anaerobic ammonium oxidation. PhD thesis. ISBN 90-9013621-5, the Netherlands.

須藤隆一(1988) 水の微生物実験法. 須藤隆一(ed.) 環境微生物実験法, 講談社サイエンティフィック, pp.81-103.

菅野照造(1961) 用水中の腐食因子となる微生物と対策. 用水と廃水, Vol.3, pp.734-740.

Sugiura, K., Kawasaki, Y., Kinoshita, M., Murakami, A., Yoshida, H. & Tazaki, K. (2003) A mathematical model for microcosms: formation of the colonies and coupled oscillation in population densities of bacteria. *Ecological Modeling*. Vol.168, pp.173-201.

Suzuki, Y., Kelly, S.D., Kemner, K.M. & Banfield, F. (2003) Microbial populations stimulated for hexavalent uranium reduction in uranium mine sediment. *Appl. Env. Microbiol.*, Vol. 69. pp.1337-1346.

高井研, 稲垣史生 (2002) 極限環境微生物生態系と特殊微生物の探索. *Bio Industry*, Vol.19, pp.7-17.

Takahashi, A. & Igarashi, S. (2000) Solid-phase extraction of high oxidation state metal ion-desferrioxamine B chelates using sulfuric acid -treated silica gel. *Analytical Sciences*, Vol.16, pp.433-434.

Takai, K., Moser, D.P., Onstott, T.C., Spoelstra, N., Pfiffner, S.M. Dohnalkova, A. & Fredrickson, J.K. (2001) *Alkaliphilus transvaalensis* gen. nov., sp. nov., an extremely alkaliphilic bacterium isolated from a deep South African gold mine. *International J. Systematic Evolutionary Microbiology*, Vol.51, pp.1245-1256.



Takai, K., Moyer, C.L., Miyazaki, M., Nogi, Y., Hirayama, H., Nealson, K.H. & Horikoshi, K. (2005) *Marinobacter alkaliphilus* sp. nov., a novel alkaliphilic bacterium isolated from subseafloor alkaline serpentine mud from Ocean Drilling Program Site 1200 at South Chamorro Seamount, Mariana Forearc. *Extremophiles*, Vol.9, pp.17-27.

田中知、田辺博三、山近英彦、稲垣裕亮、石田久洋、加藤修、倉田充之 (2003) 国内外における高レベル放射性廃棄物の地層処分事業の進捗状況. *日本原子力学会誌*, Vol.45, No.1, pp.13-40.

Tanaka, T. & Nakayama, S. (2004) Reactivity of functional groups on different carbon-structures of humic acid. The 4<sup>th</sup> International Symposium on Advanced Science Research: Advances in Heavy Elements Microbiology Research, Tokai, Ibaraki, Japan, JAERI, P-11.

谷口直樹、川崎学、藤原和雄(2001) ベントナイト中における硫酸塩還元菌の活性と硫化水素によるオーバーパック材料の腐食への影響. *JNC TN8400* 2001-011.

Tiago, I. Chung, A.P. & Verissimoo, A. (2004) Bacterial diversity in a nonsaline alkaline environment: heterotrophic aerobic populations. *Appl. Env. Microbiol.*, Vol.70, pp.7378-7387.

Tochiyama, O., Yoshino, H., Kubota, T. Sato, M., Tanaka, K. Niibori, Y. & Mitsugashira, T. (2000) Complex formation of Np(V) with humic acid and polyacrylic acid. *Radiochim. Acta*, Vol.88, pp.547-552.

陶野郁雄(1990) 大深度地下開発と地下環境. 鹿島出版会.

Treude, T. & Boetius, A. (2003) Researching anaerobic oxidation of methane: a co-evolution of knowledge and applied methods. 16<sup>th</sup> International Symposium on Environmental Biogeochemistry Abstracts, pp.86-88.

椿淳一郎、鈴木道隆、神田良照 (2002) 入門 粒子・粉体工学. 日刊工業新聞社.

Tsuji, T, Kawasaki, Y., Takeshima, S., Sekiya, T. & Tanaka, S. (1995) A new fluorescence staining assay for visualizing living microorganisms in soil. *Appl. Environ. Microbiol.* Vol.61, pp.3415-3421.

Ueshima, M., Mogi, K. & Tazaki, K. (2000) Microbes associated with bentonite. *Journal of the Clay Science Society of Japan*, Vol.39, pp.171-183.

Ulukanli, Z. & Digrak, M. (2002) Alkaliphilic micro-organisms and habitats. *Turk. Biol.*, Vol.26, pp.181-191.

梅木博之、木村英雄 (2004) 放射性廃棄物の処分 第4回 地層処分システムの安全評価. *日本原子力学会誌*, Vol.46, pp.38-51.

Vandergraaf, T.T., Drew, D.J., Ticknor, K.V., Hamon, C.J. & Seddon, W.A. (2003) Radionuclide migration experiments in tuff blocks under unsaturated and saturated conditions at a scale of up to 1 metre. *WM '03 Conference, Tucson, AZ, USA*, pp.23-27.

Vilks, P. & Bachinski, D.B. (1997) Natural colloids in groundwater from granite and their potential impact on radionuclide transport. *AECL-11635, COG-96-311-I*.

渡辺邦夫, 田中達也(1995)地層処分に関する岩盤割れ目系と浸透流解析., 島崎英彦, 新藤静夫, 吉田鎮男(ed.)放射性廃棄物と地質科学, 東京大学出版会, pp.104-122.

Wang, Y. & Papenguth, H.W. (2001) Kinetic modeling of microbially-driven redox chemistry of radionuclides in subsurface environments: coupling transport, microbial metabolism and geochemistry. *Contaminant Hydrology*, Vol.47, pp.297-309.

Wang, Y. & Francis, A.J. (2005) Evaluation of microbial activity for long-term performance assessments of deep geologic nuclear waste repositories. *J. Nucl. Radiochem. Sci.*, Vol.6, pp.43-50.

West, J.M., McKinley, I.G. & Vialta, A. (1992) Microbiological analysis at the Pocos de Caldas natural analogue study sites. *J. Geochemical Exploration*, Vol.45, pp.439-449.

West, J.M. (1994) Subsurface microbiology-Where does the biosphere end? *Biologist* Vol.41, pp.129-132.

West, J.M. & McKinley, I.G. (1984) The geomicrobiology of radioactive waste disposal. *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, Vol.25, pp.487-494.

West, J.M., McKinley, I.G. & Stroes-Gascoyne, S. (2002) Microbial effects on waste repository materials. In Keith-Roach & Livens (ed.) Interactions of microorganisms with radionuclides. Elsevier, pp.255-277.

Wolf, M. & Bachofen, R. (1991) Microbial degradation of bitumen. *Experientia*, Vol.47, pp.542-548.

Yamamura, S., Ike, M. & Fujita, M. (2003) Dissimilatory arsenate reduction by a facultative anaerobe, *Bacillus* sp. Strain SF-1. *J. Bioscience and Bioengineering*, Vol.96, pp.454-460.

Ye, Q., Roh, Y., Carroll, S.L., Blair, B., Zhou, J., Zhang, C.L. & Fields, M.W. (2004) Alkaline anaerobic respiration: isolation and characterization of a novel alkaliphilic and metal-reducing bacterium. *Appl Environ Microbiol.*, Vol.70, p.5595-5602.

吉川英樹, 福永栄, 油井三和, 三原守弘, 朝野英一 (1995) 地層処分システムにおける微生物の影響について(1)-還元環境に対する微生物の耐性に関する実験-. *放射性廃棄物研究*, Vol.1, pp.199-212.

Zhilina, T.N. & Zavarzin, G.A. (1994) Alkaliphilic anaerobic community at pH 10. *Current Microbiol.*, Vol.29, pp.109-112.

## 8. 索引

略語および一部の学術用語について、説明のあるページを表示した。

### ・略語 (abc 順)

AEA 42

AECL 18,47

ANAMMOX 28

ANDRA 29

AOM 28

aw 18

BCE 20,47

BGS 29

BOD 52

CEC 52

CFDA-AM 52

CFU 55

Ci 5

COD 52

DBP 35

DGGE 21

DOC 52

DW 55

Eh 70

FEP 10

Gy 6

IAEA 7

IC 50

ICRP 7

ITT 20

JAEA 92

JNC 29

Kd 30

LC 52

MBP 35

MIC 30

MOX 4

MPN 69

ORP 70

PCR 21

PLFA 20

POC 84

radiocolloid 28

REX 29,47

SKB 29,47

Sv 6

TBP 35

TOC 22

TRU 廃棄物 4

URL 18

WIPP 47

WW 57

### ・一部の学術用語 (あいうえお順)

Active range 36

アスファルト 41

アルカリブルーム 38

安全評価 10

インキュベータ 63

埋め戻し材 8

オーバーパック (overpack) 8

解析コード 11

概念モデル 10

確証 10

緩衝材 8

含水比 52

含水率 52

乾燥密度 52

基質 12

キャニスター (canister) 8

強熱減量 52  
 空隙率 59  
 雰囲気制御グローブボックス 63  
 嫌気性従属栄養細菌 52  
 検証 10  
 好アルカリ性微生物 36  
 好気性従属栄養細菌 52  
 好氣的分解 29  
 孔口 51  
 構造躯体 14  
 高レベル廃棄物 4  
 固化マトリクス 35  
 コロイド 28  
 コロニー 52  
 コンタミネーション (contamination) 21  
 再処理 4  
 最大比消費速度 82  
 錯体 27  
 試錐 50  
 シナリオ 10  
 充填材 14  
 収着 30  
 収着係数 34  
 使用済燃料 4  
 真比重 67  
 水分活性 19  
 数学モデル 10  
 数値モデル 10  
 スメクタイト 31  
 生菌数 21  
 セグメント 51  
 接近シナリオ 10  
 全菌数 21、69  
 代謝 28  
 帯水層 63  
 多重バリア 7  
 脱窒 29、69  
 地下水シナリオ 10  
 地質バリア 8  
 超音波 69  
 鉄還元 29  
 電子供与体 28  
 電子受容体 28  
 天然バリア 7  
 透水係数 70  
 ナチュラルアナログ 1,14  
 バイオフィルム 23  
 廃棄体 32  
 パラメータ 11  
 ハルエンドピース 4  
 半飽和定数 82  
 微生物影響 1  
 微生物腐食 30  
 比表面積 67  
 腐食 30  
 物理モデル 45  
 不飽和 11  
 分配係数 30  
 平板培養 52  
 ベントナイト 8  
 飽和 11  
 飽和度 59  
 母岩 7  
 マイクロコズム 45  
 マンガン還元 29  
 メタン生成 29  
 モデル 10  
 モンモリロナイト 52  
 予備概念モデル (本論のみの用語) 12  
 Lineweaver-Burks' plot 83  
 硫酸還元 29  
 レファレンスケース 11