

地層処分システムと微生物 -地下研究施設における微生物影響研究の考え方-

吉田英一^{*1} 大貫敏彦^{*2} 長沼 賢^{*3}

地層処分において遭遇する地下環境は、微生物をも含む岩石と地下水との反応による複合環境の世界と言える。そして、そこでの微生物の分布や生息の様子は、堆積岩系や結晶質岩系といった岩体の形成プロセスに深く関与したものであることが示されつつある。地層処分システムは、このような地下環境との共存システムとして構築される必要がある。しかしながら、微生物の影響や安全評価に対する考え方については、欧米をはじめ様々な観点から議論されてきているものの、処分場建設から閉鎖後に至る処分環境の時系列的变化に伴う微生物活動の予測や、バリアシステムへの影響という観点からはほとんど論じられていない。地下に存在する微生物（群集）は、処分場建設～操業～閉鎖に至る化学的および物理的な地下環境の変化に伴って、大きくその様相を変化させる可能性がある。これらは、地下水 鉱物（材料）微生物の経時的複合反応によってもたらされるものである。したがって地下研究施設においては、我が国の地質環境下での微生物が活動する「場（地下空洞掘削によってもたらされる時系列変化と複合環境）」を意識した微生物影響に関する研究を進めることが不可欠と考えられる。

Keywords: 地層処分, 地下環境, 経時変化, 微生物影響

The current concept for the functioning of high-level radioactive waste repositories assumes that redox conditions will remain reducing even after repository closure. Oxidizing conditions may, however, develop in and around the waste cavern due to inorganic and/or organic redox reaction during the construction and the operational phase. Within the redox reaction, several kinds of oxides and hydroxides are inevitably formed and believed to have a strong influence on elemental migration and retardation through adsorption and/or co-precipitation in the near-filed (NF) environment, where their formation is certainly influenced by microbial activity. Such oxidized zones can be formed at the interface between the engineered barrier system and surrounding host rock and will affect the efficiency of the safety barrier after closure of the repository.

The influence of the interaction between microbes, water and rock around waste caverns is therefore important in understanding long-term chemical stability, elemental migration, and hence the safety of proposed sites for deep geological isolation of radioactive waste. However, the complex reaction among groundwater, rock/minerals including synthetic materials and microbes under deep geological environments is not well understood and is thus not sufficiently taken into account in present safety case development. Here, we therefore try to describe the role of microbes in the repository system in our orogenic geological regime and deep geological environment for both cases of sedimentary and crystalline rocks. This kind of discussion can also be used for the planning of Underground Research laboratory's (URL) study relevant to microbial influence in NF environment for the development of realistic long-term safety of radioactive waste repositories in Japan.

Keywords: HLW disposal, Underground environment, Long-term processes, Microbial influence

1 はじめに

地下はもはや岩石と地下水のみの無生物の世界ではなく、数千メートルにおよぶ地下深部にまで微生物の存在することが認識されるに至っている[1-3]。またこれら微生物の生息環境の多様性について、極限的な温度・圧力、あるいは極度なアルカリ性や酸性といった水質条件下においても生息可能な微生物が存在することが報告されつつある（例えば[4,5]）。

とくに地下深部に生息する微生物は、地質時代において堆積物とともに埋積し続成作用を受けてきた、あるいは続成作用に関与してきたものもあれば（例えば[6]）、断層や割目を通して地下水の流れとともに地下深部にまで運ばれたものもあると考えられる（例えば[7]）。とくに後者の場合、いろいろな時代の地質環境を反映した様々な微生物

群が運び込まれたと考えられる。地層処分で我々が将来遭遇する地下環境は、これらの微生物をも含む岩石と地下水によって織りなされる複合環境の世界と言える。したがって地層処分システムは、このような地下環境との共存システムとして構築される必要があり、セーフティケースの構築にも複合環境における現象をどのように取りいれるかが不可欠となってきている[8]。

地層処分システムにおける微生物の影響や安全評価に対する考え方については、欧米をはじめ様々な観点から議論されてきている（例えば[9,10]）。これらには、人工バリア材として用いられるホウ珪酸ガラスの溶解[11]や緩衝材として用いられるベントナイト中の微生物活動の可能性に関するものがある（例えば[12,13]）。また安全評価に直結するもの以外に、実際の地下環境中にどのような微生物が存在するのか、とくに鉄や硫黄などの酸化・還元に関与する微生物の種類や量に関する研究報告例も最近ではなされつつある（例えば[14-16]）。しかしながら、これまでの人工バリアと微生物との反応に関する研究についても、また地下環境の微生物の事例報告においても、処分場建設から閉鎖後に至る、処分環境の時系列的变化に伴う微生物活動やバリアシステムへの影響について論じているものではない。

地下には必ず微生物が存在する。これら微生物（群集）

Microbes in geological disposal system of high-level radioactive waste in Japan -Studies of microbial influence for safety assessment in Underground Research Laboratories- by Hidekazu Yoshida (dora@num.nagoya-u.ac.jp), Toshihiko Ohnuki, Tsuyoshi Naganuma

* 1 名古屋大学博物館資料分析系

Nagoya University Museum Material Research Section/Graduate School of Environmental Studies

〒464-8601 名古屋市千種区不老町

* 2 (独)日本原子力研究開発機構 先端基礎研究センター

JAEA Advanced Science Research Center

〒319-1194 茨城県那珂郡東海村村松 4-33

* 3 広島大学大学院生物生産学科

Hirosima University Graduate School of Biosphere Science

〒739-8528 広島県東広島鏡山 1-4-4

は,処分場建設~操業~閉鎖に至る人的活動をも含めた地下環境の変化に伴って,大きくその様相を変化させることが考えられる.これらはまさに地下水・鉱物(材料)・微生物の複合反応であり,この経時変化を意識した上での研究テーマ・課題の設定を行うことが今後の研究開発にとっては不可欠である.そのために,例えば後述する地下研究所(underground research laboratories; URL)においては,地下環境にどのような微生物が存在するのかという理解はもちろんのこと,微生物が活動する「場(地下水や鉱物と人的活動によってもたらされる時系列変化と複合環境)」を常に想定しつつ,焦点を絞った研究を行っていくことが必要と思われる.

本論ではこのような背景に基づいて,地下環境微生物の役割について概観するとともに,将来の地層処分システムにおいておおよそ想定される微生物の役割や影響に関して,現在建設中の超深地層研究所や地下備蓄サイトなどの地下環境の知見も併せて,処分システムの時系列的变化に対応させた将来行われるべき研究内容の抽出を試みた.

2 地層処分分野での地下微生物研究例

地下微生物の生息領域が地下数千メートルにまで及ぶという,いわゆる「深部地下生物圏」の存在が認識されつつあり,わが国においても,陸域の地下深部における微生物生態学的および生物地球化学的研究が進められている.その中でも地下深部からの直接的な採取試料に基づいた研究がなされつつあるのは,岐阜県土岐市に分布する東濃ウラン鉱山(古第三紀堆積岩:地下約130メートル[17])や,また同瑞浪市周辺に分布する土岐~苗木花崗岩体(白亜紀花崗岩:地下約1000メートル[18])での超深地層研究所ならびに北海道北部の幌延地域(新第三紀堆積岩:地下約500メートル[19])での深地層研究所を中心とした研究においてである.

超深地層研究所および深地層研究所のURLとしての主たる目的は,site-specificではなくgenericな研究開発を目指したオフサイト[20-22]として地下環境の理解と,将来,他の場所で実施されるときに必要となるサイト調査技術,処分技術の開発や既存技術の適応性の確認にある[18,19].両URLが研究対象とする地質環境は,地層(岩石)と地下水からなる.海に囲まれ,かつ湿潤な気候のわが国では,天水による地下水の浸透のみならず,沿岸域での塩水の浸透も含め地下水の存在しない地域はない.地下水は割目や断層を介し移動しつつ,地層(岩石)中の鉱物の隙間をも浸潤・飽和させ鉱物と化学的な反応を繰り返す.地下水の動きは,運動エネルギーとなる動水勾配(地下水の高低差など)と,断層や割目分布など地下水が移動しやすい経路,いわゆる「水みち」となる巨視的な地質構造,あるいは岩石の透水性(透水係数)を規制する微視的な空隙組織の空間的分布に左右される.ここで述べる「水みち」とは,

鉱物粒界のようなミクロンオーダーの空隙から,割目や断層などといった数メートルから数百メートル規模の断裂構造まで,地下水が移動可能な岩石中の空隙すべてを指す.

このような水みちの構造をも含めた岩石・岩体ごとの地下環境の特徴,あるいはわが国の変動帯として地質環境の特徴や性質を,処分の実施に先立って理解すること[23]がわが国のURLの意義と言える.そしてこの地下環境において,微生物はその活動の影響のあるなしにかかわらず,今やその構成要素の1つと認識すべき段階に至っている.地下環境は,岩石(鉱物)と地下水との反応に伴う物質循環によってもたらされる.したがって,その反応に何らかの影響を及ぼすかもしれない微生物の存在も,地下環境を理解する上では避けることのできない研究対象の1つであることはまちがいない.

以下に,これまでの知見から示されるわが国の堆積岩系と結晶質岩系の地下微生物について,その地質媒体としての特徴も含めた上での微生物の生息環境と,現在考えられつつある地下環境形成における役割について述べる.

2.1 微生物環境としての堆積岩系の特徴

堆積岩は地表での堆積サイクルによって形成される.堆積サイクルとは,風化作用~運搬作用~堆積作用~続成作用(diagenesis)による物質循環を言う.このプロセスは,地球に海が形成されて以来変化していないと考えられる.つまり地球上の物質循環に伴う風化した原岩の碎屑粒子が,多くは河川などの水による運搬作用によって堆積し,続成過程を経て堆積岩となる.したがって,その「素材」には,石英,長石や岩片といった微細な構成鉱物粒子の他に,粘土鉱物や有機物などが含まれる.地表付近で「水」の循環による碎屑物で形成されるということは,その過程で地球表層に生息している微生物も,堆積物の堆積とともに地層中に「トラップ」される可能性のあることを意味している.

堆積物は,堆積が進行すると同時に,堆積当初は60-70%もの間隙水を有する堆積物も被圧され徐々に固結していく(例えば[24]).この過程が続成過程であり,一般に現世の堆積物から年代が古くなるにしたがって,圧密作用(compaction)あるいは膠結作用(cementation)によって空隙率は低下する.後述する古第三紀層である瑞浪層群(約1600万年前の堆積物)の例では,30%前後の空隙率[25]を示し,さらに本邦中生代の続成作用の進んだ堆積岩では数%まで低下する(例えば[26]).しかしこれだけの地質時間と物質的变化(圧密作用)を経ても,多くの堆積岩内部には,数十~数ミクロンオーダーの微小空隙が無数に存在する(例えば[27]).これらの空隙は孤立したものではなく,染色試験などの結果から,それぞれの空隙がネットワーク状に連結しているものであると考えられる.したがって,これらの空隙を満たしている空隙水の成分は,周辺岩石を構成する鉱物種や有機物などの「素材」との反

応によって形成される。

堆積当初, 堆積物中に含まれる空隙水は, その多くは酸素を含んだ状態にあると考えられる。しかし堆積物が厚く堆積するにしたがって, 空隙水中の酸素は鉱物や有機物との反応で消費され, およびその場合還元的な環境へと堆積後変化すると考えられる。またさらに, もしその環境に微生物, 例えば硝酸や硫酸を活用することのできる還元菌, あるいは鉄水酸化物などを活用することのできる鉄還元菌などが存在すれば, 堆積物堆積後の環境は急速に変化する可能性がある[28]。

このような堆積物堆積後の微生物の‘影響’について, 堆積後の統成過程も含めた一連の結果として存在する堆積岩(地層)から, なにを理解することが可能なのだろうか。その一例として, 以下に東濃ウラン鉱床での研究事例について述べたい。

東濃ウラン鉱床は, 瑞浪層群の土岐挟炭累層中に胚胎する砂岩型の鉱床である(例えば[29,30])。砂岩型というのは, 堆積物が堆積したのち, 地下水によってウランが運ばれ沈殿・濃集するタイプの鉱床のことを言う[31]。その理由は, ウランの濃集状態を調査すると, ウランは碎屑性の重鉱物としてではなく, 碎屑物(鉱物粒子)の粒子境界や堆積岩基質を埋める粘土鉱物に選択的に濃集していること[32], またウラン系列核種の放射非平衡分析結果からも, 碎屑物を取り囲む粘土鉱物中のウランほど非平衡状態にあり, 堆積後においてもウラン系列核種の移動があったと考えられることから推定される[33]。

ではこのウランの濃集は, どのように形成されたと考えられるのだろうか。例えば堆積物の圧密作用と並行して, 地下水によって運ばれたウランが無機的な化学反応によってのみ濃集したのであろうか。この点について, まだ最終的な解答は得られていない。しかし, 最近の微生物研究の結果から1つの具体的な仮説が示されつつある。それはウランの濃集メカニズムにおける微生物の関与を示唆するものである[34,35]。またその仮説が示す内容は, 従来の研究成果と併せて, ウラン鉱床成因に関するもっとも基本的と言える疑問の1つである, 「何故この場所にウランが濃集し, また1000万年という長きに渡って保持されてきたのか」という問い合わせに対する答えにも関わるものと思われる。

ウランは, 酸化状態で移動しやすくなる。砂岩型のウラン鉱床は, 酸化状態で地下水中に溶解した六価のウランが, 還元状態の地質環境や還元剤と遭遇することによって, 四価のウランへと還元されることによって沈殿し, 鉱物粒界などに濃集すると考えられている。その還元剤の1つとして考えられるのが, 東濃ウラン鉱床の場合は有機物(炭質物)である。おそらく堆積当初, これらの堆積物中の有機物の分解・酸化反応によって急速に嫌気的な地質環境に変化していくものと推測される。その過程で, 地下水流動とともに酸化的なウランを溶解させている地下水が還元

領域に浸透すれば, 酸化還元フロントが堆積物中に形成される。自然界にみられる酸化還元の反応フロントでは, 地下水中の元素が酸化されたり, あるいは還元されたりすることによって溶解度が変化し, フロント周辺に様々な元素の沈殿・濃集が生じることが広く知られている(例えば[36])。砂岩型ウラン鉱床でのウランの濃集も, 酸化還元フロントの形成および移動によってウランが地層内に濃集していったというシナリオを描くことが可能である。

ではこのウラン濃集と微生物活動に, 何らかの因果関係が存在するのだろうか? それを理解するためには, ウランの濃集している地層から, 採取に伴う外部からの微生物の混入をできるだけ排除した方法[15]で地下水を採取し, 微生物種を同定することがまず必要である。このような方法を用いて, 近年の調査結果から *Desulfotomaculum guttoidaeum* という *Clostridium* 属に近縁のグラム陽性型硫酸還元菌[34]や, *Pseudomonas stutzeri* に近縁な鉄還元菌などがウラン濃集部分の地下水から報告されている[37]。またこの種で代表される硫酸還元菌は從属栄養菌であり, 地表からの深度別微生物分布調査においても, 瑞浪層群下部のウランが濃集している土岐挟炭累層中に選択的に多く存在することが確認されている[38]。もちろんこれら硫酸還元菌の存在が, ウランの濃集した当時も同様に生息し, ウラン濃集に直接的あるいは積極的に寄与したという証拠ではない。しかし, 堆積物の堆積とともにこれら硫酸還元菌が岩石空隙中にトラップされ, 統成過程での還元化と相まって活動を活発化させ, 急速に還元環境を形成させた可能性は否定できない。このような生物活動に伴う還元状態での反応生成物と考えられる球顆状黄鉄鉱が, 土岐挟炭累層中からは多数確認されており[34], その黄鉄鉱周辺によりウランの選択的濃集状態が確認されている(Fig. 1)。

また硫酸還元菌が‘現在’のウラン濃集層から確認されたことは, 地下水が-300~-400mV程度という強還元状態を維持していること(例えば[39]), ひいてはウラン鉱床がなぜ長期に渡ってこれまで保持してきたのかということとも密接に関係している可能性がある。從属栄養菌としての硫酸還元菌の繁殖には, 空隙水中の硫酸イオンの存在と栄養源となる有機物の存在が必要である。土岐挟炭累層中には, リグナイトなどの炭質物が多く含まれる。このリグナイトは, 炭質物としては比較的安定なものであり, これまであまり微生物の栄養源とはなりにくいと考えられてきたが, リグナイトを含む岩石と地下から採取した微生物の添加実験から, リグナイト自体も栄養源となることが最近確認された([35]: Fig. 2)。

これらの知見から, 以下のようなウランの長期保持システムを描くことができる。土岐挟炭累層の堆積後, 圧密作用も含め瑞浪層群下部では還元状態が形成される。おそらくこの段階で, すでに硫酸還元菌などの還元菌が還元環境形成に作用した可能性は高い[34]。ウランの濃集は, 還元状態の形成の後に, 流入した地下水中のウラニルイオンが

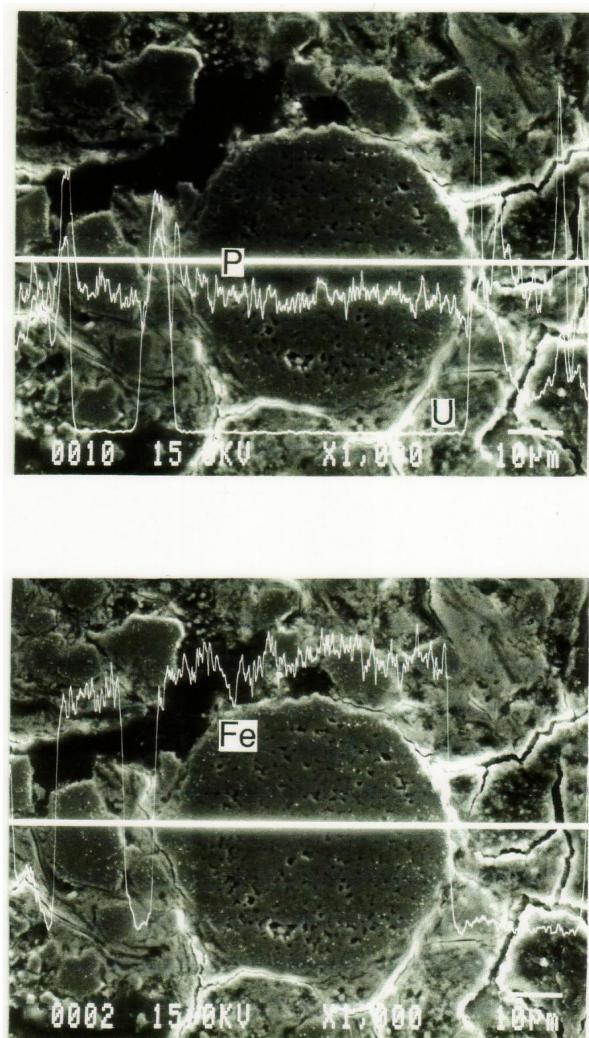


Fig. 1 Scanning electron microscopy photograph around frambooidal pyrite formed in Toki lignite bearing formation with line profiles of abundance of P, U and Fe determined by energy dispersive spectroscopy. White solid line shows a measured line, and P, Fe and U lines show the abundance of each element in and around the pyrite. The abundance shows in arbitrary unit. High intensity in line profile shows high abundance of each element.

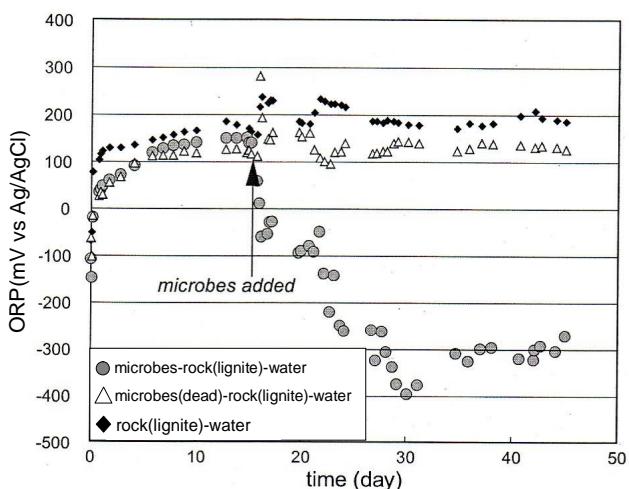


Fig. 2 Time course of oxidation reduction potential (ORP) in water-rock (including lignite) with and without microorganisms (after Sasao et al., 2006).

黄鉄鉱により還元されることによって生じた可能性が高い。一方、地層全体は約30%といった高い空隙率を有したままであるものの、火山灰や火山ガラスの続成過程に伴って形成される粘土鉱物などの細粒鉱物によるセメント効果も重なって[30]、ウラン濃集部分の透水性は $10^{-7} \sim 10^{-10}$ cm/sオーダーと非常に低くなる[40]。このことは、地層内での物質移動は、動水勾配が高くてペクレ数が小さくなることから、基本的に拡散で進行することを意味する[40]。またこのような低透水環境が形成された後には、周辺からの地下水も含め物質の供給・移動はほとんど拡散現象が主となり、層内の地質環境が隔離された状態になると考えられる。このような拡散支配の環境による隔離現象は、ベルギーの地下研究所で研究対象としているBoom clay層や、スイスでの研究対象となっているOpalinus clay層といった、透水性の低い粘土層の水質が周辺と異なることや、時代的にも古い年代の地下水が採取されるなどの結果としても同様に確認されている[41,42]。

月吉ウラン鉱床中には、ウランの鉱体部分を切る落差が約30メートルの月吉断層が存在する。この断層によって、ウラン鉱床もずれていることからこの断層は、鉱床形成後に活動したと考えられている。しかしながら、この断層を介したウランの二次的な移動は確認されていない[43]。これは断層破碎帯が、断層運動によって形成された‘粘土状’ガウジで充填されており、遮水効果を有していること[44]に起因すると考えられる。

またウラン鉱床を胚胎する土岐挟炭累層の直下には、土岐花崗岩が分布する。この花崗岩中の地質環境(とくに地下水の性質)は、瑞浪層群より下部に位置するものの堆積岩ほど還元状態ではない[45]。また瑞浪層群堆積前に形成された基盤花崗岩上部の風化部は一部地表に露出しており、透水性も高い。このことは、酸化的な天水起源の地下水が、ウラン鉱床直下の風化した基盤岩中を循環しているにもかかわらず[46]、ウラン濃集部分の地層は酸化されることなく現在に至っていることを示している。

このような地層および地質環境の‘隔離化’によって、空隙内ではさらに硫酸還元菌の働きが進行し、その結果非常に還元的な状態が形成・保持されることになる。東濃ウラン鉱床内での10年近い地下水モニタリングの結果でも、先に述べた還元状態は安定的に維持されており、土岐挟炭累層のものと安定的な水理学的、地球化学的状態を示している[47]。また東濃ウラン鉱床/鉱山は、掘削後30年以上を経ている。この間、絶え間なく数百m³/日以上の揚水を行ってきているものの、ウラン濃集部分の還元状態はほとんど変化していない。これは後述する結晶質岩の場合の緩衝作用とは大きく異なる。つまり、もし土岐挟炭累層自体の透水性が高かったり、あるいは割目などの選択的な水みちが多数存在していたりしたならば、ウラン(地下水)を運ぶことが容易であった反面、溶解・移動も容易であることとなり、ウラン鉱床として残ることもなかったであろう。

うと考えられる。

東濃ウラン鉱床での微生物活動と酸化還元反応の指標であるウランの移動、濃集との相関から学べることは、有機物を碎屑物として含む堆積岩では、堆積物と同時にたらされる微生物活動が続成過程に寄与する可能性が高く、また堆積後の地球化学的变化にも十分に影響を与えると考えられるということである。もちろん現状の知見だけでは、堆積物の堆積後にどのような微生物群集が時系列的に繁殖し、環境形成に寄与するかについては、碎屑物を構成する‘素材’とも密接にかかわることであり、一義的に判断することは難しい。しかし、微生物の生息できる空間が維持され、栄養源が存在し水理的にも隔離された環境であれば、その地質環境はその地質条件が大きく変化しない限り保持されることを示している。とくに活断層や過去の断裂構造が集中するような岐阜県東濃地域に、ウラン鉱床を胚胎する第三紀層の瑞浪層群が存在するという事実は、わが国のような変動帯であっても堆積岩中の地質環境が長期にわたって保持される可能性を示唆する1つの証拠とも言えるものである。

2.2 微生物環境としての結晶質岩系の特徴

花崗岩で代表される結晶質岩は地下深部で形成される。これは先に述べた堆積岩と決定的に異なる特質である。結晶質岩には、割目(帯)が必ず存在する。わが国の変動帯で形成された花崗岩中の割目頻度は、欧米の安定陸塊に見られる花崗岩のそれよりもおおよそ一桁が多いと考えられる[48]。これらの割目の多くは、地下においてマグマが冷却する過程、あるいはその後の上昇過程(応力解放の過程)で形成される。地表付近に露出した岩体中の割目は、さらにその後の応力解放や造構造運動に伴って割目充填鉱物の成長をもたらす[49]。そして、このような割目(帯)や断層を介して結晶質岩中には地下水が入り込み、水みち近傍の造岩鉱物との反応を繰り返す。また沿岸地域に分布する結晶質岩中には、海水の浸透・循環も水みちとなる割目(帯)などを介して生じることとなる。これらの地下水成分との反応によって、割目など水みち周辺には二次的な鉱物の変質(溶解や沈殿、鉱物の再結晶)が進行する。例えばこのような二次的に形成された充填鉱物の充填組織や構造を詳細に調査することで、地下水との反応に伴う変質履歴が解析可能であることが示されつつある[50]。

花崗岩中の微生物は、したがってこのような岩体形成後の地表付近への上昇過程において、地下水の循環に伴ってそのほとんどがもたらされたものと思われる[51]。これまでの瑞浪超深地層研究所における花崗岩を対象とした研究においても、微生物は基本的に地表付近から地下深部(約800メートル)まで、ほぼ 10^6 個レベルで採取されている([52]; Fig. 3)。その中の微生物群集の種類としては、*Comamonas* sp.などの鉄関連菌が主として確認されており、一部硫酸還元菌も認められる。このことは結晶質岩体に、

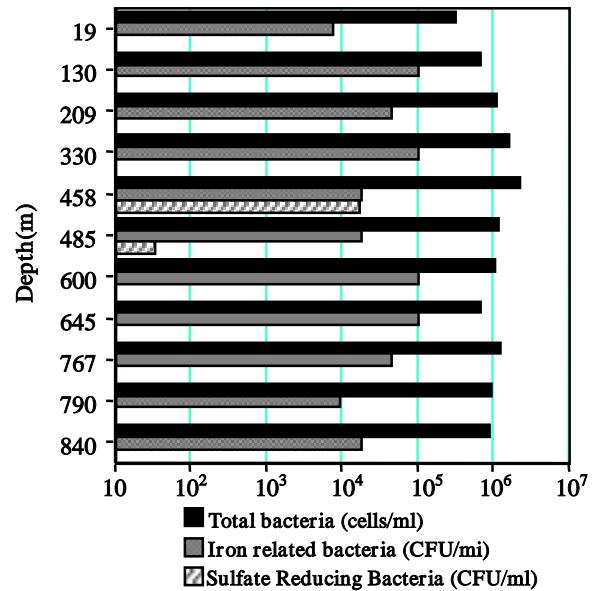


Fig. 3 Microbes distribution at different depths in granitic rock in Tono area (After Murakami, 2003). CFU is colony forming unit.

ほぼ全体に地下水との循環に伴った微生物の存在が認められることを示している。微生物の分布範囲については、深度に伴う温度情報、つまり地温勾配にもよるとと思われるが、多くの微生物はおおよそ120℃を超えると生息できないと考えられる[53]。したがって、土岐花崗岩体の場合、地温勾配は約3℃/100メートルであり[23]、地表温度と併せて考えるとおおよそ3000~4000メートル程度までは、地下水循環に伴う微生物の存在を予測することが可能であろう。

では、結晶質岩中の微生物(群)は、どのように生息しているのであろうか。先にも述べたが花崗岩で代表される結晶質岩は空隙率が非常に低く、また栄養源となる有機物は元来含まれていない。これらの栄養源については、地表、とくに表土中の有機物が分解過程でフミン酸やフルボ酸となったものが、地下水とともに運ばれることによってもたらされると考えられる。スウェーデンのÄspö地下研究所での事例でも、バルト海のTOCを豊富に含む海水起源の地下水が微生物の生息に重要な役割を果たしていることが報告されている(例えば[16])。しかし、そのような栄養が豊富に存在するような状況においても、酸化菌や還元菌が同様に活動的で、常に地下環境において生息できるわけではない。地表付近の土壤を浸透した雨水は、土壤中で酸素が消費され、基本的には還元的な地下水として基盤岩である花崗岩などの結晶質岩中に浸透する。このときに土壤を通過した地下水には、酸化菌も還元菌も両方が含まれることになるだろう。これらが、地下深部まで到達し、地下水流动的にも緩慢な流れの場に移行したのちに、これらの微生物の活動を支えるに十分な栄養源が備わっていれば、その環境に即した微生物群集が形成されると考えられる。東濃地域の花崗岩においても、部分的に硫酸還元菌

が採取されることは、このような水みちの地質構造との相関を示唆している。とくに先に述べた堆積岩の場合と同様に、花崗岩の場合でも酸化還元フロントの部分では、酸化菌にとっても還元菌にとっても栄養源（有機物）と電子受容体となる分子やイオンが双方で利用できる環境となりやすく、より微生物活動が活発化することが知られており（例えば[54,55]）、結晶質岩体においても大局的には同様の酸化還元フロントが形成されているものと思われる。

しかし一方で、割目の発達する結晶質岩中における微生物の生息領域を考える場合に重要なことは、現在我々が原位置からパッカーシステムなどを用いて、直接得ることのできる地下水情報は、割目（帯）などの相対的に地下水が移動しやすい水みちからのものであるということである。つまり、我々が認識している割目（帯）の発達する結晶質岩体中の微生物の分布が、割目ない岩体内部（マトリクス）での微生物を示しているとは必ずしも言えないということである。もちろん、結晶岩基質（マトリクス）内部に微生物が棲息しているという確実な報告も未だなされていない。しかし、もしかりに生息していたとしても、それはやはり岩体形成後、地表付近の地下水による物質循環によってもたらされたものであることにはまちがいないであろう。このような考え方は、その他の玄武岩や流紋岩などといった火山岩累に対しても同様に適用することが可能と考えられる。例えば中部地域に広く分布する濃飛流紋岩では、一部ではその厚さは数千メートルにも達し（例えば[56]）、花崗岩と同様の水みちとなる割目（帯）が岩体内部に普遍的に分布することが確認されている[57]。

さらに広義的には、西南日本を中心に広く分布する中生代付加帯の固結堆積岩中の微生物についても同様の考え方が適用できるかもしれない。付加帯堆積物は、海洋プレート運動によって付加された堆積物が、統成過程を経て固結した後に地表に露出したものである。この統成過程で、堆積物は数キロメートル以深の圧力・温度環境を経てきており、付加当時の微生物（群）がそのまま地層内に生存し続ける可能性は完全に否定できないもの[58]、その存在は未だ確認されていない。また一方で、付加過程での構造運動を被ることにより、堆積物が統成作用に伴って固結すると供に、脆性破壊による割目（帯）も形成される。したがって、現在地表に露出している付加帯堆積岩中には、これらの割目（帯）を水みちとして、天水や海水の循環・反応に伴う地下環境が形成されることになる。つまりこのような地質構造・システムは、結晶質岩系と同様に割目（帯）を介した地下水と物質循環、そしてそれに伴う微生物環境の拡大という考え方が適用できることを示唆している。付加帯は、そのものの自体が変動帯地質の特徴の1つであり、付加帯地質環境中の微生物（群）と地下環境への影響の理解は、わが国独自の研究課題となることはまちがいないであろう。

これまで述べてきたように、花崗岩で代表される割目

（帯）の発達した岩石系での微生物環境の特徴として、もっとも重要なことは、地下水流动系とも密接に関連する割目（帯）などの水みちに関すること、つまり微生物の移動経路ともなる構造とその分布に規制される可能性があるということである。岩体内に発達するこの大小の水みちが微生物の移動・生息空間であり、地球化学的な環境の変化と表裏一体となって、岩体の二次的変質や地下水の流动系に寄与していると考えることができる。後述するように、地下水が流动する割目の透水状態が、地下空洞掘削に伴う地質環境変化によって閉塞したりする現象が後述する液化天然ガスの備蓄サイトで確認されつつある[59]。また東濃における研究では、岩体中の鉄コロイドの分布と鉄関連微生物の分布がよく一致しているとの報告もある[52]。このことは、核種移行に関しても地下微生物の影響が間接的に生じる可能性を示すものであり、地下環境の総体を理解する上で今後さらに分析や調査手法の開発も含めて進めて行くべき課題と言える。

3 処分システムの時系列状態変化に伴う微生物影響と地下研での研究方法について

堆積岩系と結晶質岩系において、その地下環境の形成と微生物の分布やその相関についてこれまでの研究事例をもとに述べてきた。ここでは、このような地下環境に地層処分を行うにあたって、微生物の影響をどのように考えるのか、またそれに対する将来的な研究開発をどのように行っていけばいいのか、について論じてみたい。

ここまで述べてきて分かるように、地下環境において微生物の存在を排除することは難しい。堆積岩（地層）にしろ、結晶質岩（岩体）にしろ、微生物の存在量に大小の差はあるものの、間隙中や水みちとなる地質構造には微生物が存在することはほぼ間違いない。したがって、地層処分においては次に示すように、このような地下環境を対象にどのような処分システムが組み立てられるのかを念頭におきつつ、微生物の影響を考えることが必要と思われる。

3.1 処分場掘削・建設による影響

地層処分を行うためには、地下を掘削しなければならない。しかし、この掘削を行うことで地下環境は擾乱されるだけでなく、循環している地下水が地下坑道やボーリング孔によって混ざり合うことが予想される。これは微生物においても同様であろう。地層や岩体の形成の後、地質構造や水みちとなる構造によって、それぞれがある程度隔離された状態で統成作用を受けてきた地質環境が、ボーリングや坑道掘削によって乱されることにより、地下水成分やそこに封じ込められていた微生物の混在が生じることは容易に推定される。もちろん、掘削以前に地下水流动系の循環により、全体に微生物が均一的に拡散していく状態も皆無ではないかもしれない。しかし様々な堆積物や岩体にお

いても岩体内部の地質構造が異なることから,どのような地層・岩体であっても地下環境が均一と考えるのは難しい。例えば岡山県倉敷地域の花崗岩体の,地下約200メートルに建設されているLPG(Liquefied Petroleum Gas)備蓄サイトにおいては,断層や割目(帯)によって地下水の地球化学的性質や地下水流动系が数百メートル規模で分断され,異なった地下環境であることが明らかとなっている[59]。そこでは,間隙水圧も透水割目(帯)の分布に依存し,同じ花崗岩体であっても数十メートル規模での水理学的不均一性を示す。つまり,割目(帯)や断層などといった水みちとしての地質構造が,地下環境の‘熟成’には非常に重要な役割を担っていることが示されつつある。

将来,我々が遭遇する処分場掘削・建設において,したがって問題となるのは,地質時間において形成された地質環境が,掘削によって地球化学的に変化を生じさせることであり,その環境に微生物が存在する以上,坑道掘削に伴って分子状酸素(O_2)を含む酸化的な大気と触れることによって,例えば酸化菌が活性化し酸化物を沈殿させ,水みちを閉塞させたり地下水流动系を変化させたりするというような,物理的影響を及ぼす可能性があるということである。とくに地下環境が長年の反応の結果として還元状態である場合,地下水には鉄やマンガンがとけ込みやすくなる。それらは坑道掘削によって坑道に湧水することによって,酸素と反応し,酸化物としての沈殿を形成することは容易に推定できる。もしそこに酸化菌が存在すれば,酸化反応は促進され沈殿物の成長速度は加速されるだろう。このような反応によって酸化物が沈殿し,それによって水みちが閉塞される事例は,先に述べたLPG備蓄サイトでも実際に確認されている現象である(Fig. 4)。LPGサイトでは酸素を含んだ水封水を循環させることから,湧水割目中に鉄やマンガンなどの水酸化物の沈殿が生じ,掘削後,



Fig. 4 Photographs of wall of cavern just after excavated and several months later. Red color shows presence of Fe(III) minerals, indication rapid changes of underground environment after excavation. An example from LPG site at the depth of about 200m in granitic rock, Shikoku, Japan.

数週間も経たないうちに水みちが閉塞するという事実が確認されている。このような掘削に伴う地下環境の変化は,地質条件によって大小の差こそあれ,将来の地層処分サイトにおいて十分に遭遇する可能性のある地質状態と考えられる。これらをどのようにコントロールするのか,あるいはコントロールしなくとも処分システムとしてどのように取り扱うのか,その基本的考え方を地下研究所での研究成果も含め早急に検討・準備し,核種移行シナリオなどの安全評価にどう組み込むのかを検討することが必要である。

3.2 処分場操業～閉鎖に伴う影響

次に時系列的に,処分場操業から閉鎖段階での微生物活動を考慮した現象について述べたい。この段階で将来的に重要な問題は,地表微生物の継続的な混入であろう。本来,地下環境中の微生物も,先にも述べたがもともとは地表に存在していたものと思われる。しかし,操業～閉鎖にかけては,人的活動も伴って様々な微生物が混入する可能性を否定することはできない。とくにペントナイトやバックフィル材の敷設に伴う,それらの素材に混入すると思われる微生物を排除することはほとんど不可能である。ペントナイトに関しては,その緻密性から混入した微生物も移動することができず,おおよそその影響を懸念する必要はないかもしれない(例えば[12])。しかし,バックフィルに関しては,その敷設量も膨大であると同時に,基本的に掘削ズリの再利用を検討している以上[23],地上保管中の掘削ズリの酸化と地表微生物の混入を避けることはできない。これらとペントナイトとの混合をバックフィルとして用いるならば[23],地下坑道の大半は酸化された素材で埋められることになる。これらを還元状態の地下水が再冠水によって浸すとしても,全てのバックフィルを完全に再還元させるにはかなりの時間を必要とするかもしれない。もしそれらに対して積極的に還元させることを検討するのなら,何らかの還元剤をバックフィル材と併せて埋設することが必要となるかもしれない。また,このような地下坑道およびその近傍が,閉鎖に伴った水理的に不飽和状態から飽和状態へとスムーズに移行するものかどうかの検討も例えば必要であろう[60]。

また操業～閉鎖時期にかけて,坑道周辺の掘削影響領域(Excavated Damaged Zone; EDZ)では,先ほど述べた微生物活動も含めた酸化物の付着や酸化還元フロントの形成に伴って,岩体中に酸化物の沈殿が形成される可能性が考えられる[61-63]。このような酸化物が再冠水後に再度還元されるか否かについてYoshida et al.(2006a)[64]は,還元性堆積物中に存在する微生物活動によって形成された鉄水酸化物のアナログから,簡単には再還元されにくいことを指摘している。しかし一方では,このような酸化物の水みち沿いの沈殿物が,マトリクス拡散に伴う核種移行の遅延効果に寄与する可能性が期待されることもアナログ事例

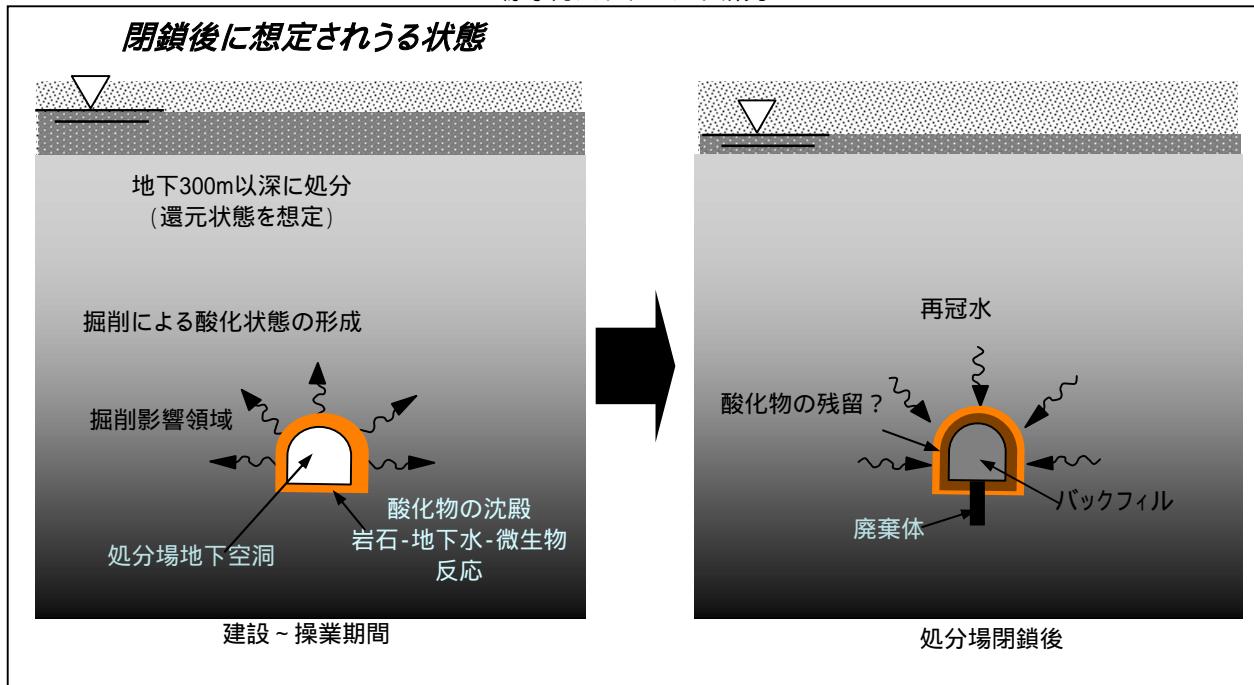


Fig. 5 An expected scenario of post-closure in and around the waste cavern with the remaining of Fe hydroxides and other by-products due to microbial activity.

として報告されている[65]。もちろん、鉄酸化物がウランなどの放射性核種を吸着することはこれまでにも報告されている事実である（例えば[66,67]）。これらの事例は、操業～閉鎖にかけて処分坑道周辺に形成される酸化物が、核種移行シナリオ上必ずしもリスクのあるものではないことを示唆している。したがって、もし将来の処分場近傍の地質環境が酸化され、それが保持されるのであれば、それらを前提とした核種移行シナリオを構築することも必要であろう。

将来の処分場における坑道内およびニアフィールドでの地球化学的変化は、微生物の影響も含めて基本的には酸化還元反応によって状態が変化していくものと思われる。坑道掘削段階から酸素の流入と地下水との酸化還元反応、その後の坑道周辺の溶解物質の濃度勾配による酸化還元フロントの進展、閉鎖後の再冠水に伴う再還元反応など、さまざまな状態変化が想定される（Fig. 5）。したがって、その状態変化に伴って微生物活動も継続的、あるいは断続的に変化することが十分に予想される。これらの処分場の経時変化に注目した微生物活動の調査については、欧米も含め未踏の領域であり、とくにわが国では、それらを明らかにするための地下研究所での研究が非常に重要となる。最終的にはこれらの知見をもとに、わが国の地下環境機能に合致した地層処分システムを構築することが、変動帯地質環境という固有の地質環境での地層処分における最も重要な課題と言えるだろう。

4まとめ

本論では、これまでの本邦での研究成果も含め、地下微

生物の地層処分における役割、あるいは安全評価に関する検討を行った。とくに、地質環境形成の一要因として、もはや排除できない要素としてその存在状態や元素移動、濃集などといった地球化学的影響からの考察を行った。これらの検討結果から示される主な内容をまとめると以下の通りである。

- 堆積岩系、結晶質岩系によらず我が国の地下数千メートルの領域において微生物は、地下水循環と共に地下環境に分散、生息している可能性のあること
- 地下環境では、基本的に嫌気的な状態によって形成された環境が期待されるものの、処分場のような地下空洞を掘削することによって、その環境は急激に乱される可能性のあること
- 地層処分システムは、微生物活動の影響も受けつつ地質時間経過で形成された現在の地下環境と、そこにバックフィル材などの人工的な酸化物の搬入に伴う、大きな意味での酸化還元反応の平衡状態、あるいは平衡状態への過程として記述し得るシステムであり、微生物機能もその酸化還元反応の一端を担う要素として、処分環境を想定した上の調査研究を展開することが重要であること

これらの微生物をも含めた状態変化を地下環境において把握するためには、地下研究所を中心とした調査手法（プロトコール）の開発と人材育成・情報の継承システムが不可欠であることは言うまでもない。今後、おそらく20～30年に渡って地下環境の詳細研究と処分におけるその安全性が具体的に議論されるなかで、できるだけこれらをカバーすることのできる実用的な手法と考え方を早急

に準備することが望まれる。

謝辞

本報告をまとめるにあたって、日本原子力研究開発機構地層処分研究開発部門幌延深地層研究ユニット岩月輝希博士、同機構東濃地科学センター天野（村上）由記博士には議論して頂くとともに、貴重なデータを提供して頂いた。心から感謝の意を表する。最後に、本報告内容に関しては、日本原子力機構の連携重点研究の1つである「放射性廃棄物処分研究のためのネットワーク：サブグループ3」における情報交換会において、その成果の一部として紹介したものであり、情報交換ネットワーク関係者の議論や助言に感謝の意を表する。

参考文献

- [1] Stevens,T.O., McKineley,J.P.: Lithoautotrophic microbial ecosystems in deep basalt aquifers. *Science* **270**, 450-454 (1995).
- [2] 村上由記・長沼毅:地下深部に広がる微生物ハビタット-深部地下生物圏-. *Microbes and Environments* **15**, 125-131 (2000).
- [3] Takai,K., Moser,D.P., DeFlaun,M., Onstott,T.C., Fredrickson,J.K.: Archean diversity in waters from deep South African gold mines. *Applied and Environmental Microbiology* **67**,5750-5760 (2001).
- [4] Chappelle,F.H., O'Neill,K., Bradley,P.M.: A hydrogen-based subsurface microbial community dominated by methanogens. *Nature* **415**, 312-315 (2002).
- [5] Sharma,A., Scott,J.H., Cody,G.D. Microbial activity at gigapascal pressures. *Science* **295**, 1514-1516 (2002).
- [6] Reid,R.P., Visscher,P.T., Decho,A.W.: The role of microbes in accretion, lamination and early lithification of modern marine stromatolites. *Nature* **406**, 989-992 (2000).
- [7] Pedersen,K.: Exploration of deep intraterrestrial microbial life: current perspectives. *FEMS Microbiol. Lett.* **185**, 9-16 (2000).
- [8] OECD/NEA.: Post-closure safety case for geological repositories, *Nature and Purpose*, NEA No.3679 (2004).
- [9] 大貫敏彦: 地層処分における微生物の影響-研究の現状と今後の課題-. *原子力バックエンド研究* **9**, 35-42 (2002).
- [10] West, J.M., McKinley,I.G, Stroes-Gascoyne,S.: Microbial effects on waste repository materials. in *Interactions of Microorganisms with Radionuclides*, Ed. Keith-Roach, M.J. and Livens, F.R., Elsevier Science Ltd. 255-277 (2002).
- [11] Aouad,G, Crovisier,J.-l., Geoffroy,V.A., Meyer,J.-M., Stille,P.: Microbially-mediated glass dissolution and sorption of metals by *Pseudomonas aeruginosa* cells and biofilm. *Jour. Hazardous Materials* **B136**, 889-895 (2006).
- [12] 長沼毅・木村浩之・高杉秀美・植田浩義・小山田 潔・竹ヶ原 竜大: ベントナイト微生物学-地球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, 133-138 (1999).
- [13] 嶺達也・三原守弘・大井貴夫: 微生物の緩衝剤中での移行評価研究. *サイクル機構技報* No.6 (2000).
- [14] Pedersen,K.: Diversity and activity of microorganisms in deep igneous rock aquifers of the Fennoscandian Shield. In *Subsurface Microgeobiology and Biogeochemistry*. J.K.Fredickson and M.Fletcher (eds). Wiley-Liss, Inc., New York. 120-121 (2001).
- [15] Murakami,Y., Fujita,Y., Naganuma,T., Iwatsuki,T.: Abundance and viability of the groundwater microbial communities from a borehole in the Tono uranium deposit area, central Japan. *Microb. Environ.* **17**, 63-74 (2002).
- [16] Anderson,C.R., James,E.C., Fru,E.C., Kennedy,C.B., Pedersen,K.: In situ ecological development of a bacteriogenic iron oxide-producing microbial community from a subsurface granitic rock environment. *Geobiology* **4**, 29-42 (2006).
- [17] 動力炉・核燃料開発事業団: 東濃とその周辺地域のウラン資源.PNC TN7420-95-005 (1995).
- [18] Japan Nuclear Cycle Development Institute (JNC): International Conference on JNC Underground Laboratory Projects, JNC TN7400 2004-010 (2004).
- [19] 日本原子力研究機構:幌延深地層研究計画.平成19年度調査研究計画.15pp (2007).
- [20] OECD/NEA: In situ research and investigations in OECD countries. 125pp (1988).
- [21] Savage,D.: The scientific and regulatory basis for the geological disposal of radioactive waste. John Wiley & Sons, 457p (1995).
- [22] Chapman,N., McCombie,C.: Principles and standards for the disposal of long-lived radioactive wastes. Elsevier Waste Management Series **3**. 277pp (2003).
- [23] Japan Nuclear Cycle Development Institute (JNC): H12: Project to Establish the Scientific and Technical Basis for HLW Disposal in Japan -Supporting Report 3, Safety Assessment of the Geological Disposal System. TN1410 2000-004 (2000).
- [24] Harvey,B. *Sedimentary Petrology*. W.H.Freeman and Company, New York. 514pp (1992).
- [25] 核燃料サイクル開発機構: 広域地下水流动研究年度報告書(平成14年度) JNC TN7400 2003-002 (2003).
- [26] 山口卓哉・小嶋智・矢入憲二: 美濃帯のジュラ紀メランジの室内透水試験-八百津地域および伊自良地域の例-. *応用地質* **44**, 303-312 (2003).
- [27] 與語節生・吉田英一・山本鋼志: 染色法による岩石中微小空隙構造の同定とその特徴. *名古屋大学博物館報告* **17**, 23-31(2002).
- [28] Konhauser,K. *Introduction to Geomicrobiology*. Blackwell

- Publishing, 235-292 (2007).
- [29] Shikazono,N., Nakata,M.: Copositional variation of pyrite, diagenetic alteration and genesis of Tono sandstone-type uranium deposits in Japan. *Res. Geol.(Special Issue)* **20**, 55-64 (1999).
- [30] Utada,M.: Smectite-Zeolite envelope surrounding the Tsukiyoshi uranium deposit, central Japan; A natural analogue study. *Resource Geology* **53**, 293-304 (2003).
- [31] Dahlkamp,F.J.: *Uranium Ore Deposits*. Springer-Verlag Berlin, Heidelberg, 459pp (1993).
- [32] Yoshida,H.: Relation between U-series Nuclide Migration and Micro-structural Properties of Sedimentary Rocks. *Applied Geochemistry* **9**, 479-490 (1994).
- [33] Yoshida,H., Kodama,K., Ota,K.: Role of Microscopic Flow-paths on Nuclide Migration in Sedimentary Rocks -A Case Study from the Tono Uranium Deposit, Central Japan-. *Radiochimica Acta* **66/67**, 505-511 (1994).
- [34] 岩月輝希・村上由記・長沼毅・濱克弘:ウラン鉱床の長期保存に関わる岩盤の酸化還元緩衝能力-東濃地域における天然環境の水-鉱物-微生物システムの研究例-.*地球化学* **37**, 71-82 (2003).
- [35] 笹尾英嗣・岩月輝希・天野由記:東濃ウラン鉱床でのナチュラルアナロジー研究からみた古水理地質研究の役割.*資源地質* **56**, 125-132 (2006).
- [36] Hofmann,B.A.: Geochemistry of natural redox fronts – a Review. *Tech. Rep. 99-05, Nagra*, 156pp (1999).
- [37] Naganuma,T., Sato,M., Hoshii,D., Murakami,Y., Iwatsuki,T., Mandernack,K.W.: Isolation and characterization of *Pseudomonas* strains capable of Fe(II) reduction with reference to redox response regulator genes. *Geomicrobiology Journal* **23**, 145-155 (2006).
- [38] 村上由記:深部地質環境における地下微生物の代謝活性およびその地球化学的役割. *JNC TN7400 2005-028* (2005).
- [39] Arthur,R.C., Iwatsuki,T., Sasao,E., Metcalfe,R., Amano,K., Ota,K.: Geochemical constraints on the origin and stability of the Tono Uranium Deposit, Japan. *Geochemistry: Exploration, Environment, Analysis* **6**, 33-48 (2006).
- [40] Yoshida,H., Yui,M., Shibutani,T.: Flow-path Structure in relation to Nuclide Migration in Sedimentary Rocks -An Approach with Field Investigations and Experiments for Uranium Migration at Tono Uranium Deposit, Central Japan-. *Jour. Nucl. Sci. Tech.* **31**, 803-812 (1994).
- [41] Nagra: FEP management for the Opalinus Clay safety assessment. *Nagra NTB02-23* (2002).
- [42] Nagra: Project Opalinus Clay; Safety Report -Demonstration of disposal feasibility for spent fuel, vitrified high-level waste and long-lived intermediate-level waste. *Nagra NTB02-05* (2005).
- [43] Tsubota,K., Yoshida,H., Hama,K., Amano,K., Milodowski,A.E., Metcalfe,R.: The Role of the Tsukiyoshi Fault as a Control on Nuclide Migration in the Tono Uranium Deposit, Central Japan. *Proc. CEC* Natural Analogue Working Group (NAWG) meeting, 87-97(2002).
- [44] Hama,K., Amano,K., Metcalfe,R., Yoshida,H., Iwatsuki,T., Milodowski,A.E., Gillespie,M.R.: Mineralogical and petrological evidence for the hydrogeological characteristics of the Tsukiyoshi Fault, Japan. *Quarterly Journal of Engineering Geology and Hydrogeology*, **35**, 189-202 (2002).
- [45] Iwatsuki,T., Furue,R., Mie,H., Ioka,S., Mizuno,T.: Hydrochemical baseline condition of groundwater at the Mizunami underground research laboratory (MIU). *Applied Geochemistry* **20**, 2283-2305 (2005).
- [46] Sasao,E., Ota,K., Iwatsuki,T., Niizato,T., Arthur,R.C., Stenhouse,M.J., Zhou,W., Metcalfe,R., Takase,H., Mackenzie,A.B.: An overview of a natural analogue study of the Tono Uranium Deposit, central Japan. *Geochemistry: Exploration, Environment, Analysis* **6**, 5-12 (2006).
- [47] Japan Nuclear Cycle Development Institute (JNC): Data book on groundwater chemistry in the Tono area. *JNC TN 7450 2003-001* (2003).
- [48] Yoshida,H., Aoki,K., Semba,T., Ota,K., Amano,K., Hama,K., Kawamura,K., Tsubota,K.: Overview of the Stability and Barrier Functions of the Granitic Geosphere at the Kamaishi Mine; Relevance to Radioactive Waste Disposal in Japan. *Jour. Engineering Geology* **56**, 151-162 (2000).
- [49] Yoshida,H., Takeuchi,M., Metcalfe,R.: Long-term stability of flow-path structure in crystalline rocks distributed in an orogenic belt, Japan. *Engineering Geology* **78**, 275-284 (2005).
- [50] 吉田英一・鶴飼恵美・山本鋼志: 地下深部花崗岩の二次的変質にみる長期的地下環境の変遷解析.第 16 回地質環境シンポジウム論文集, 135-138 (2006).
- [51] Anderson,C.R. Pedersen,K.: In situ growth of *Gallionella* biofilms and partitioning of lanthanides and actinides between biological material and ferric oxyhydroxides. *Geobiology* **1**, 169-178 (2003).
- [52] 村上由記・岩月輝希・長沼 毅: 東濃地域の地下水化学と地下微生物の相互作用.地学雑誌 **112**, 277-287 (2003).
- [53] Reysenbach,A.-L., Shock,E.: Merging genomes with geochemistry in hydrothermal ecosystems. *Science* **296**, 1077-1082 (2002).
- [54] Straub, K. L., Schonhuber, W.A., Buchholz-Cleven, B.E.E., Schink, B.: Diversity of ferrous iron-oxidizing, nitrate-reducing bacteria and their involvement in oxygen-independent iron cycling. *Geomicrobiol. J.* **21**, 371-378 (2004).
- [55] Kappler, A., Straub, L.K.: Geomicrobiological cycling of iron. *Rev. Mineral. Geochem.* **59**, 85-108 (2005).
- [56] 山田直利・小井土由光・棚瀬充史・原山智・鹿野勘次: 濃飛流紋岩 中部日本における白亜紀大規模火砕流の研究 .地団研専報 53 号 (2005)

- [57] 大嶋章浩・吉田英一:活断層周辺岩盤の割目と化学組成の変化 岐阜県付知地域の阿寺断層による事例研究 .第 14 回環境地質学シンポジウム論文集.1-10 (2004).
- [58] 長沼毅: 沈み込み帯の地下生物圏.月刊地球 / 号外 No.51, 153-156 (2005).
- [59] 前島俊雄: 波方基地 LPG 地下岩盤貯槽建設の概要. 岩の力学ニュース 1-6 (2007).
- [60] 樋利博・Harihar Rajaram・松井祐哉・長沼毅: 亀裂性堆積岩の不飽和領域における水分移動.月刊地球号外 No.36, 68-74 (2002).
- [61] 吉田英一・山本鋼志・A.E.Milodowski: 酸化還元フロントの形成と二次的物質移動現象、地質環境中汚染物質の移動と長期的固定に関するアナログ研究.地質学雑誌 **109**, 234-245 (2003).
- [62] 赤川史典・吉田英一・與語節生・山本鋼志: 花崗岩割目周辺の酸化還元反応と二次的物質移動現象—地質環境中汚染物質の移動と長期固定に関するアナログ研究—地質学雑誌 **110**, 671-685 (2004).
- [63] Akagawa,N., Yoshida,H., Yogo,S., Yamamoto,K.: Redox front formation in fractured crystalline rock: an analogue of matrix diffusion in an oxidizing front along water-conducting fractures. *Geochemistry: Exploration Environment Analysis* **6**, 49-56 (2006).
- [64] Yoshida,H., Yamamoto,K., Yogo,S., Murakami,Y.: An analogue of matrix diffusion enhanced by biogenic redox reaction in fractured sedimentary rock. *Journal of Geochemical Exploration* **90**, 134-142 (2006a).
- [65] Yoshida,H., Yamamoto,K., Murakami,Y., Matasuoka,K.: Formation of biogenic iron-oxide nodules in reducing sediments as an analogue of near-field redox reaction products. *Physics and Chemistry of the Earth* **31**, 593-599 (2006b).
- [66] Missana,T., Garcia-Gutierrez,M., Maffiotte,C.: Experimental and modeling study of the uranium (VI) sorption on goethite. *Jour. Colloid and Interface Science* **260**, 291-301 (2003).
- [67] Murakami,T., Sato,T., Ohnuki,T., Isobe,H.: Field evidence for uranium nanocrystallization and its implications for uranium transport. *Chemical Geology* **221**, 117-126 (2005).

