

放射性廃棄物地層処分における微生物影響研究 - 現状と核種移行に及ぼす影響 -

長岡 亨*

放射性核種の移行挙動に及ぼす微生物影響評価は重要なテーマの一つである。地下環境に生息する微生物群集は、利用可能な基質を酸化還元することによりエネルギーを獲得して生育している。そのため、処分環境の酸化還元状態などの化学条件を変化、あるいは直接的に核種の化学形態を変化させることで、核種の移行挙動に影響を及ぼす。また、核種移行評価の高精度化に向けて、地下水中の移行経路に形成しているバイオフィームと核種の相互作用の解明も重要な課題となると考えられる。

Keywords: 高レベル放射性廃棄物, 地層処分, 微生物, 核種移行

Microorganisms in the subsurface environment can directly and/or indirectly change the chemical form of radionuclide by microbial metabolism and by-products, resulting in an influence on the migration behavior of radionuclide. Also, the occurrence of biofilm formation on rock surface in the groundwater could affect the migration behavior of radionuclide by sorption and desorption. Therefore, it would be essential to access microbial effects on radionuclide migration for HLW disposal.

Keywords: high-level radioactive waste, geological disposal, microorganism, radionuclide migration

1 はじめに

近年、地下環境の微生物生態に関する研究の進展は著しく、深部地下数百m～数kmにおける地下微生物圏の存在も確認されている[1-3] (Fig.1)。そのため、地下300m以深に計画されている放射性廃棄物地層処分の施設周辺に地下微生物が存在することは明らかであり、それら微生物が処分システムに及ぼす影響に対する関心が高まっている現状にある。

一方、地下微生物の生態と役割(機能)に関しては、分子生物学的手法等を取り入れた分析・解析技術など飛躍的に向上しているものの、難培養性微生物の存在など未解明な部分が数多く残されており、現時点では、処分システムに及ぼす微生物影響を完全に網羅することは困難な状況にある。そのため、現時点において微生物影響を評価するためには、これまでに蓄積されてきた知見をもとに、処分環境において想定される生物的反応を整理し、影響評価モデルを構築した上で、今後新たに得られる知見を取り込み拡充させながら、評価手法を高精度化させていくことが重要となると考えられる。

本報告では、現時点において考えられている微生物影響について概説するとともに、特に放射性核種の移行挙動に及ぼす影響に焦点をあてた国内外の最新動向について紹介する。

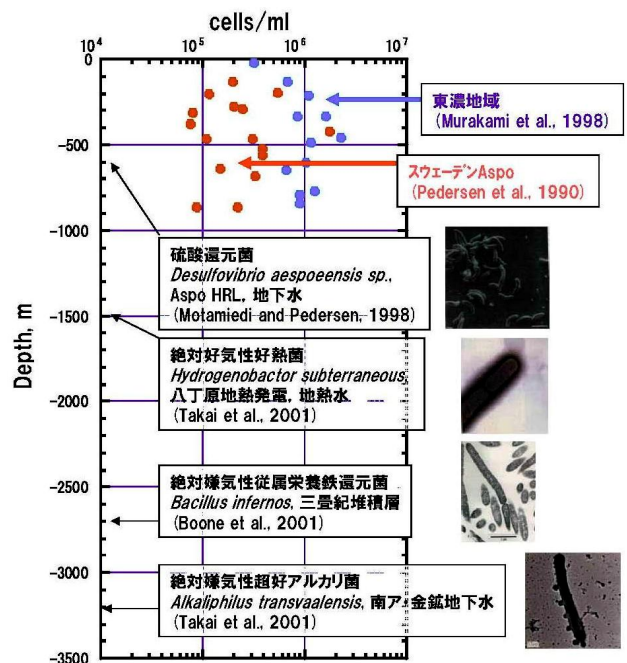


Fig.1 Microorganisms in deep groundwater

2 処分環境において想定される微生物影響

現在、国内外において、地下施設を用いたフィールド試験や放射性核種を用いた室内実験など、微生物影響に関する研究が鋭意実施されている。微生物影響研究は、スイス(Nagra)[4]、カナダ(AECL)[5]、スウェーデン(SKB)[6]等の国外において先駆的に研究が開始された。国内では、岐阜県東濃サイト[7]などにおいて研究が進められ、現在、北海道幌延サイトにおいても研究が実施されている状況にある。また、地層処分とは異なるが低レベル放射性廃棄物の余裕深度処分に係わり青森県六ヶ所サイトにおいても、研究が進められている。

Microbial effects on radionuclide migration for high-level radioactive waste disposal by Toru Nagaoka (nagaoka@criepi.denken.or.jp)

本稿は、2007年春の年会「バックエンド部会企画セッション」放射性廃棄物地層処分における微生物研究の最前線」における講演内容に加筆したものである。

* (財)電力中央研究所 環境科学研究所 バイオテクノロジー領域
Biotechnology sector, Environmental Science Research Laboratory, Central Research Institute of Electric Power Industry
〒270-1194 千葉県我孫子市我孫子 1646

Table1 Microbial effects on HLW repository

対象箇所	影響	現象
人工バリア	物理的な封じ込め 性能に及ぼす影響	バリア材の劣化・変質（オーバーバック，ベントナイト）
		ガス生成・消費
		その他
人工／天然 バリア	核種の漏洩や移行 挙動に及ぼす影響	処分環境の化学条件変化（pH及び酸化還元状態など）
		核種の吸着・取り込み（生物膜捕捉，コロイド様挙動）
		核種の化学形態変化（核種の不溶化・可溶化）
		有機・無機キレーターの生成・分解
		コロイドの生成
		その他

Table1 に処分環境において想定されている微生物影響について取りまとめた。詳細については、既刊レビュー等[8-11]を参考にさせていただきたい。

人工バリア内は、高温、高圧、放射線、水分活性低下（乾燥）など、微生物にとって生育し難い過酷な環境となることが予想される。そのため、微生物影響の有意性を評価するためには、はじめに微生物活性の程度を評価することが不可欠となる。微生物活性が小さいと評価された場合、人工バリア近傍における処分システム性能に及ぼす微生物影響は評価対象から除外される。一方、活性が大きいと評価された場合には、微生物影響の有意性の評価が必要となる。これまでの知見から想定される人工バリア近傍における微生物影響には、ベントナイトの変質溶解やオーバーバック腐食などのバリア材の劣化、有機物分解等によるガス生成及び消費、バイオフィーム等の形成による間隙閉塞（地下水移行経路の閉塞）などがあげられている。

一方、天然バリア（人工バリア近傍含む）では、地下水中における核種の移行挙動に及ぼす微生物影響を評価することが重要となる。人工バリアから漏洩した核種は、岩盤間隙水（地下水）中を、地下水の化学状態に応じて化学形態を変化させながら移行する。そのため、核種の化学形態を規定する地下水のpHや酸化還元電位などの化学状態を特定することが重要となってくる。地下微生物は、溶存酸素の消費や硫化水素の生成などの代謝活動によって地下水の化学状態の形成に影響を及ぼすと考えられている。つまり、地下微生物の影響により地下水の化学状態が変化することで、間接的に核種の化学形態が変化し、最終的に核種移行に影響を及ぼすことになる（核種の化学形態変化に及ぼす微生物の間接的作用）。また、微生物の菌体表面において酵素的に核種の化学形態を変化させることも考えられる（直接的作用）。さらに、微生物は細胞外で核種の化学形態変化を引き起こすばかりでなく、微生物が核種を吸着あるいは取り込むことも想定される。その場合、核

種移行を評価する上で、微生物が岩盤に吸着しているのか、地下水中に懸濁しているのが重要となる。微生物が吸着していれば、核種移行は遅延され、浮遊している場合、菌体のコロイド様挙動により核種移行が促進される可能性がある。他にも、核種移行を促進させる有機及び無機キレーターの生成分解などに微生物が関与すると考えられている。

3 原位置における微生物影響評価 ～スウェーデン・エスポ地下研究施設の事例～

地下環境に生息する微生物の生態と機能に関しては未解明な点が多く、地上の実験室で地下水中に生息する全ての微生物の活性を保持したまま試験をすることは困難である。そのため、現地地下水を直接使用する原位置試験は非常に有効であると考えられる。

スウェーデン・エスポの地下研究施設の地下深度-450m地点では、2000年にMicrobe 450-m siteが建設された[12]。Fig.2にその模式図を示す。

岩盤内に掘削されたポアホールには、滅菌した樹脂製パッカーが装填され、耐圧チューブ(PEEK製)を介して原位置条件の被圧地下水(微生物含む)がコンテナ内の耐圧フローセル(Fig.3)に導入されている。リアクター内は、原位置地下水と同圧力(約2.5～3.1MPa)及び同温度(約15～18℃)に保持され、耐圧ギアポンプにより、ポアホールに還流される。この原位置条件が保持されたフローセルを用いることで、まさに“生(なま)”の地下水を用いた試験が可能となる。そのため、培養することが困難な難培養性微生物の影響も加味した可能な限り原位置に近い実験が可能である。また、被圧状態であることから、微生物の生育等に重要な溶存ガスを逸脱させることなく、実験可能である点は、大きなメリットである。実際に、現場に赴き、目前で地下水をサンプリングしてみると、炭酸飲料をコッ

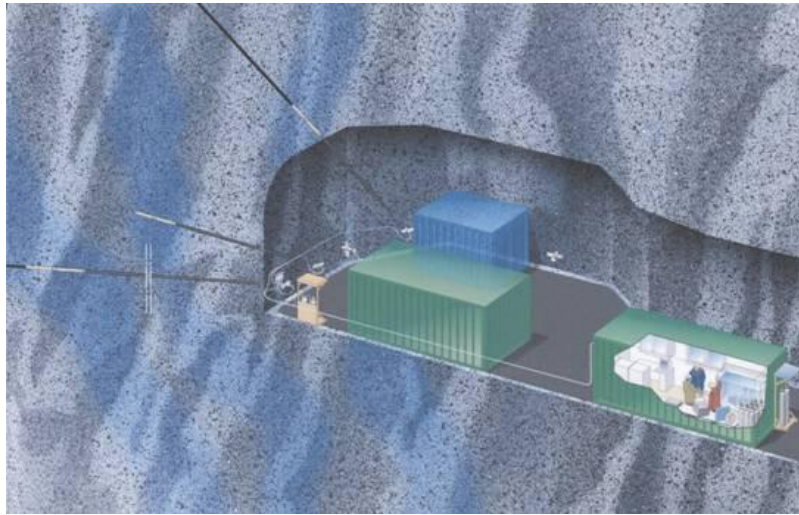


Fig.2 MICROBE 450-m site

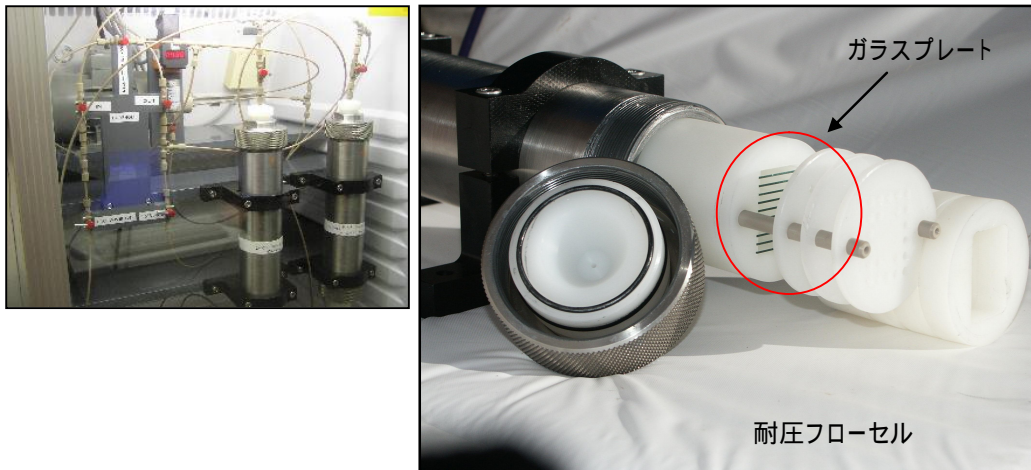


Fig.3 Pressure-resistant flow cell

ブに注いだ時のように、微細な気泡が発生し、硫化水素ガスのような異臭を放っていた。現在、フローセル内にガラスや花崗岩薄片プレートを装填し、微生物を含んだ原位置地下水を導入して、プレート上にバイオフィーム(生物膜)を形成させ、バイオフィームにおける放射性核種の収着実験を実施中であった。

4 核種移行に及ぼす微生物影響

放射性核種の移行挙動は、地下水中での核種と岩盤との収着性に依存し、その収着性は、核種の化学形態に強い影響を受けていると考えられている。

一方、地下に棲息している微生物は、利用可能な物質を酸化還元することによりエネルギーを獲得して生育しているため、処分環境における地下水等の酸化還元状態の形成に大きく関与していると考えられている。そのため、核種の化学的形態を間接的に変化させ、その吸着挙動に大きな影響を与える可能性がある。また、微生物は、直接的(酵素的)に核種と反応し、化学的形態を変化させる可能性もある。

これまでに、ウラン[13]、プルトニウム[14,9]、ネプツニウム[15]などのアクチノイド元素を対象に、化学形態変化に及ぼす微生物の影響について、実験的な検討がなされている。また、TRU 処分及び余裕深度処分において安全評価上重要である炭素 14[16]やヨウ素 129[17]の化学形態変化に係わる検討も行われている。

4.1 微生物による核種移行の遅延 - 当所の研究の紹介 -

当所では、高レベル放射性廃棄物処分において安全評価上重要な放射性核種であるネプツニウム($Np-237$)および地下に棲息する代表的な微生物として、硫酸還元菌(*Desulfovibrio desulfuricans*)を用いて、同核種のペントナイトへの吸着挙動に及ぼす微生物の影響について実験的検討を行った[18](Fig.4)。

好気性条件下において、 Np は幅広い pH 範囲において、ペントナイトへはほとんど吸着せず、溶液中に溶存することが明らかとなった。これは、 Np が溶存態である NpO_2^+ イオンとしてペントナイト懸濁液中に存在しているためであると考えられた。一方、硫酸還元菌が生育する還元環境を、硫化ナトリウムを用いて化学的に模擬した条件下に

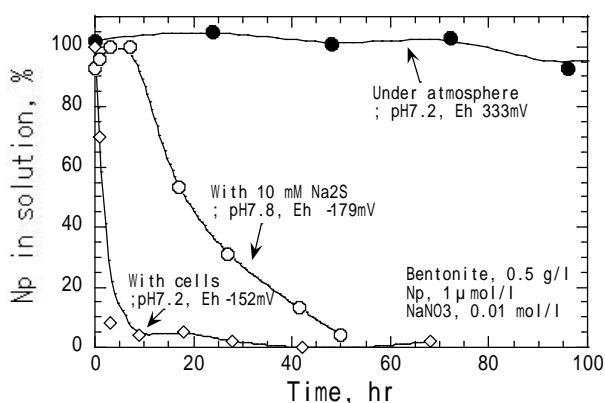


Fig.4 Microbial immobilization of Np by *Desulfobvibrio desulfuricans*

においては、液相から固相へと移行した、これは Np(V)が Np(IV)に還元され、 NpO_2 や $\text{NpO}(\text{OH})_2$ などの酸化物あるいは水酸化物として固相へ吸着あるいは溶液中に沈殿しているものと推察された。また菌体が存在すると還元速度が増大することから、同菌が直接的に核種を還元できる能力を有していることが示唆された。

この現象は、地下微生物が核種の移行挙動に影響を及ぼしていることを示唆しており、Np を用いた本研究の場合、移行が遅延する方向へ働き、地層処分施設の安全性を高める効果があることを示唆していると考えられる。

4.2 微生物による核種移行の促進

前節のように、微生物による核種の還元作用は安全側に働くと考えられてきたが、近年、ウランが嫌気性条件下で酸化され、移行しやすくなるという研究結果も得られている[19,20]。嫌気性条件下の場合には、微生物はウラン酸化のために、酸素の代わりに電子受容体として硝酸イオンを利用することでエネルギーを獲得していると報告されている[21]。特に、硝酸塩を大量に含む TRU 廃棄物処分において、重要な課題であると思われる。また、プルトニウムに関して、微生物の作用により、Pu(IV)から Pu(III)にまで還元されることにより、溶存イオンとなり易動化する可能性も指摘されている[9]。

5 今後の課題 ~ 微生物影響研究の必要性 ~

放射性廃棄物の地層処分における微生物影響の有意性に関しては、地下微生物の生態と機能などに関する知見が乏しく、これまで棚上げされてきたが、近年の研究の進展により、地下環境の酸化還元状態変化など、処分環境に対して微生物が有意に影響を与えることが明らかとなってきている。処分環境の酸化還元状態が変化すれば、核種移行等に影響を及ぼすことは明らかである。

特に重要となるのは、人工バリア性能が失われ核種が移行を開始する時点における処分環境の化学条件の特定であると思われる。この化学条件は、人工バリアを構成する各種バリア材および岩盤中の各種鉱物・地下水・微生物が

相補的に作用しながら形成していると考えられる。近年、国内においても精力的に研究が推し進められてきており、より高精度な評価が可能になることを期待したい。

また、核種の移行挙動を評価するために重要なパラメータである収着分配係数の測定は、これまで岩石表面に対する核種の収着性に基づき測定がなされてきた。しかし、地下水と接触している岩盤表面には微生物が付着し、バイオフィルムを形成している可能性が高い。そのため、バッチ式による収着分配係数測定のように、元々地下水に触れていない岩石の新規表面を粉砕することで露わにし、その岩石表面に対する核種の収着性を測定する方法では、真の収着分配係数を測定していることにはならず、バイオフィルムと核種との間の収着分配係数の測定も注目に値すると思われる。今後、微生物表面と核種との相互作用の解明に向けた研究の進展が望まれると同時に、原位置に生息する全ての微生物影響を考慮可能な収着分配係数の測定技術（原位置における測定技術）の開発などが急務になってくると思われる。

以上のように、放射性廃棄物の地層処分における微生物影響は重要な課題であり、今後、安全評価の高精度化に向けて、ますますその必要性は大きくなると思われる。

謝辞

本セッションにて講演する機会を頂き、座長を務めて頂いた日本原子力研究開発機構の中山真一氏、内藤守正氏をはじめ、本稿をまとめるにあたりたくさんの方々にご意見を頂いた。ここに記し、心より深謝の意を表する。

参考文献

- [1] West, J. M., McKinley, I. G.: Geomicrobiology of radioactive waste disposal, In: Encyclopedia of Environmental Microbiology (Gabriel Bitton ed.), John Wiley, New York, pp.2661-2674 (2002).
- [2] 村上由記, 長沼毅, 岩月輝希: 深部地質環境における微生物群集 - 東濃地域を例として -, 原子力バックエンド研究, 5, 59-6 (1999).
- [3] Takai, K., Moser, D.P., Onstott, T.C., Spoelstra, N., Fiffner, S.M., Dohnalkova, A., Fredrickson, J.K.: *Alkaliphilus transvaalensis* gen. sp. nov., an extremely alkaliphilic bacteria isolated from a deep South Africa gold mine, International Journal of Systematic Evolutionary Microbiology, 51, 1245-1256(2001).
- [4] West, J.M., McKinley, I.G., Grogan, H.A.: An analytical overview of the consequences of microbial activity in a Swiss HLW repository, Nagra TR 85-43, National Cooperative for the Disposal of Radioactive Waste (1985)
- [5] Stroes - Gascoyne, S.: The potential for microbial life in Canadian high-level nuclear fuel waste disposal vault: A nutrient and energy source analysis, AECL-9574, Atomic

- Energy of Canada Limited (1989).
- [6] Pedersen, K.: Preliminary investigations of deep groundwater microbiology in Swedish granitic rock, SKB TR 88-01, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co.(1987).
- [7] Aoki, K., Komuro, K., Seo, T., Ota, K., Matsushima, E.: Microbiological examination of deep groundwater, Proc. of the 1st symp. on GeoEnvironments, pp.285-190 (1991).
- [8] West J M : Radioactive Waste Management, Environ. Restor, **19**, 263-283(1995).
- [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] 電気事業連合会・核燃料サイクル開発機構：TRU 廃棄物処分技術検討書, JNC TY1400 2005-002, FEPC TRU-TR2-2002-01, p.4-82 ~ 4-88(2005).
- [11] 福永栄：放射性廃棄物地層処分における微生物の影響, 静岡大学学位論文 (2005) .
- [12] Pedersen, K. : The MICROBE framework, SKB International progress report, IPR-05-05 (2005).
- [13] Lovley, D. R., Phillips, E. J. P.: Microbial reduction of uranium, Nature, **350**, 336-344(1991).
- [14] Panak, P. J., Nitsche, H.: Interaction of aerobic soil bacteria with plutonium(VI), Radiochim Acta, **89**, 499-504(2001).
- [15] Lloyd, J. R., Yong, P., Macaski, L.E.: Biological reduction and removal of Np(V) by two microorganisms, Environmental Science and Technology, **34**, 1297-1301(2000).
- [16] 宮内善浩, 佐々木規行, 大間知行, 長岡 亨, 中澤俊之, 加藤博康, 河田陽介, 野下健司, 川崎 透, 吉田拓真, : 余裕深度処分における天然バリア中の有機炭素の挙動(2/2), 日本原子力学会 2006 年秋の大会要旨集, A40(2006).
- [17] Amachi, S., Fujii, T., Shinoyama, H., Muramatsu, Y.: Microbial Influences on the Mobility Transformation of Radioactive Iodine in the Environment, Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences, **6**(1), 21-24 (2005).
- [18] Nagaoka, T.: Microbially Mediated Removal of Np(V) by *Desulfovibrio desulfuricans* -Implication of Microbial Immobilization at the Radioactive Waste Repository, Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences, **6**(1), 85-86(2005).
- [19] Senko, J.M., Istok, J.D., Suflita, J.M., Krumholz, L.R.: In-situ evidence for Uranium Immobilization and Remobilization, Environmental Science and Technology, **36**, 1491-1496(2002).
- [20] Wan, Jiamin, Tokunaga, T.K., Brodie, E., Wang, Z., Zheng, Z., Herman, D., Hazen, T.C., Firestone, M.K., Sutton, S.R.: Reoxidation of bioreduced Uranium under reducing conditions, Environmental Science and Technology, **39**, 6162-6269(2005).
- [21] Beller, H.R.: Anaerobic, nitrate-dependent oxidation of U(IV) oxide minerals by the chemolithoautotrophic bacteria *Thiobacillus denitrificans*, Applied and Environmental Microbiology, **71**(4), 2170-2174 (2004).

