

# 放射性廃棄物地層処分における微生物影響の定量評価の試み

## Quantitative Evaluation of Microbial Effects in Geological Repository of Radioactive Waste

宮坂 郁 エネルギー・プラント事業本部原子力事業部原燃・環境システム部 博士（農学）  
栃木 善克 エネルギー・プラント事業本部原子力事業部原燃・環境システム部  
（現 独立行政法人日本原子力研究開発機構）  
難波 謙二 福島大学共生システム理工学類 助教授 博士（農学）

放射性廃棄物地層処分において、これまで化学的影響による長期的閉じ込め性能の評価が行われている。近年、処分場施設の設置対象となる深地層においても微生物が生息していることが示されており、化学的影響と同様に微生物の影響も評価し、閉じ込め性能に有意な影響を与えるならばしかるべき対策を講じる必要がある。本研究では微生物影響のうち、酸化還元反応による還元的環境の生成、微生物のコロイド的輸送に関するモデルの構築を実施したので紹介する。

The effects of chemical reactions in the geological environment are very important in the geological disposal program for high-level radioactive waste in Japan. However, several field surveys have found abundance of microorganisms in the geological environment, so microbial activity has also become important to assess for the effects on the performance of the geological repository. We describe the concept of a mathematical model which enables quantitative description of the consumption of organic compounds, generation of reductive environments by consumption of electron acceptors, and passive transport of microorganisms suspended in pore water.

### 1. 緒 言

使用済み燃料再処理施設から排出される高レベル放射性廃棄物を地下深部の安定した地層中に埋設し、人間の活動圏から隔離する最終処分方法（地層処分）が検討されている<sup>(1),(2)</sup>。

この最終処分の実施については、2000年6月に「特定放射性廃棄物の最終処分に関する法律」（2000年、法律第117号）が公布され、この法律に従い2000年10月に実施主体である原子力発電環境整備機構（認可法人）が設立されている。またこの実施主体によって、最終処分地選定の第1段階となる文献調査対象地区の公募が全国の市町村を対象に行われている。

地層処分では、高レベル放射性廃棄物をガラス固化し、30～50年程度冷却のための貯蔵を行った後、金属製容器に密閉し、粘土質の緩衝材に包んで地下300m以深の地層中に埋設することで人間の活動圏から隔離することが検討されている<sup>(1)</sup>。ガラス、金属容器、緩衝材などは放射性核種の周囲への移行を遅延するバリア（人工バリア）としての機能が期待されている。第1図に高レベル放射性廃棄物地層処分の概念<sup>(1)</sup>を示す。

地下深部には地下水が存在するため、地下水との相互作用

による金属容器の腐食などによってバリア機能喪失が起こる。その後地下水がガラス固化体に接触し、地下水へのガラスの溶解が徐々に進行することに伴い、放射性核種が地下水によって移行する地下水シナリオが主要な放出シナリオとされている。第2図に地下水シナリオの概念を示す。

深部地下環境は、人工バリア機能の劣化を遅延させる還元的環境であるため、放射性核種の移行遅延などのバリア（天然バリア）として期待されている。放射性核種の移行遅延のメカニズムとしては、放射性核種の還元状態の維持、周囲の岩盤への放射性核種の収着などが挙げられ、それらに関する岩盤の化学的特性についてこれまで多くの調査が実施されている<sup>(1)～(3)</sup>。

近年、深部地下に生息する微生物が無視できないことが明らかになり、岩盤の化学的特性と同様に処分場性能への影響調査が必要となっている<sup>(4)</sup>。現在予想されている影響には微生物の行う生化学反応（代謝）による化学的影響と、微生物細胞による物理的影響を挙げることができる。第1表に放射性廃棄物地層処分における微生物による影響の主要項目<sup>(3)</sup>を示す。

微生物による代謝はその種類と環境によって異なり、例えば微生物活性は、pHの上昇と下降のいずれにも働く可

### 地質環境

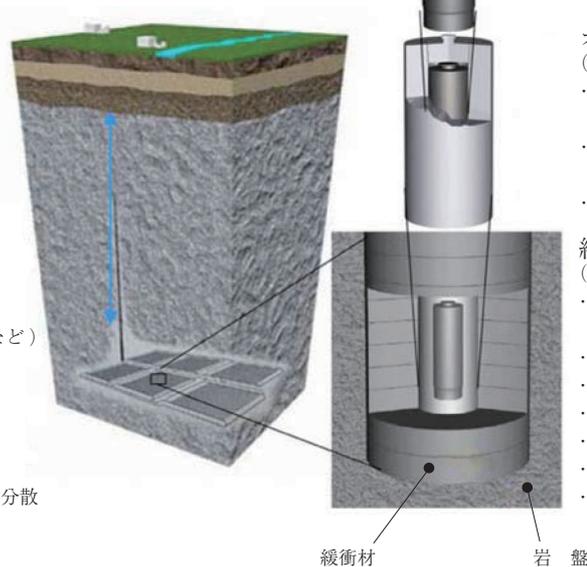
- 長期的な安定性
- ・火山活動がない
- ・活断層が存在しない
- ・著しい隆起・浸食が生じない
- ・気候変動によって著しい影響を受けない
- ・資源が存在しない

### 人口バリアの設置環境

- ・好ましい地下水化学（還元性など）
- ・小さな地下水流束
- ・力学的安定性
- ・人間環境からの物理的障壁

### 天然バリアとしての機能

- ・放射性核種の移行抑制と希釈・分散



### 人口バリア

#### ガラス固化体

- （スレンレス鋼製キャニスタに充填されたもの）
- ・放射性核種を均一かつ安定に固定
- ・高い化学的耐久性によって地下水への放射性核種の溶出を抑制
- ・熱や放射線に対する安定性

#### オーバーパック

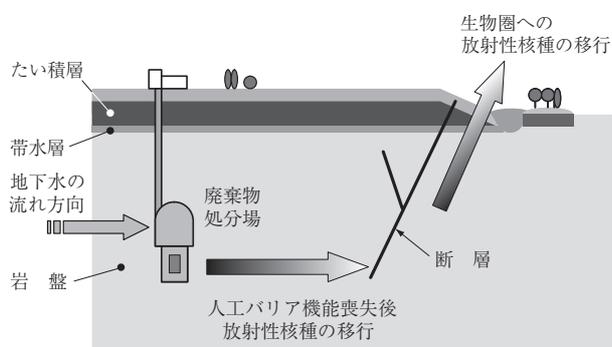
- （炭素鋼）
- ・ガラス固化体の発熱や放射能が高い期間、地下水とガラス固化体の接触を阻止
- ・地下水との反応によってガラス固化体近傍の還元性を維持
- ・放射性核種の腐食生成物への収着

#### 緩衝剤

- （ベントナイトを主成分とする）
- ・低透水性（オーバーパックと地下水の接触抑制）
- ・小さな物質移動速度
- ・放射性核種の移行遅延（収着）
- ・膨潤性と可塑性
- ・化学的緩衝性
- ・空げき水中での低い溶解度
- ・コロイド、微生物、有機物の移動に対するフィルタ効果

第1図 高レベル放射性廃棄物地層処分概念（参考文献（2）から改変）

Fig. 1 Conceptual sketch of geological disposal of high-level radioactive waste (modified from reference (2))



第2図 地下水シナリオの概念

Fig. 2 Conceptual sketch of groundwater scenario

能性がある。また放射性核種移行についても、微生物が収着した核種とともに移動しなければ抑制、反対に収着核種とともに移行すれば促進する可能性がある。後者では、地下水中で懸濁状態の微生物が放射性コロイドとなる。これらによって、処分場性能への微生物影響については、長期にわたる微生物活性の定量評価が不可欠である。

本稿では微生物活性の多様性と放射性核種の相互影響に着目し、定量評価を可能とするモデルを構築した<sup>(5)</sup>ので報告する。

第1表 放射性廃棄物地層処分における微生物による影響の主要項目（参考文献（3）から改変）

Table 1 Possible microbial effects on geological disposal (modified from reference (3))

項目	プロセス	現象	影響
化学的影響	pH変動	酸/塩基の生成/消費	N, P
	錯体生成	錯化剤の生成/消費	N, P
	コロイド生成	コロイド粒子の生成/消費 バイオコロイドの生成	N
	酸化還元	還元的雰囲気生成 放射性核種の還元	N, P
	放射性核種の同化と収着	放射性核種の細胞内への取込み 放射性核種の細胞表面への収着	N, P
物理的影響	間げき閉そく	微生物バイオマスによる地質中の空げき閉そくによる透水係数の減少	P
	ガス生成	生物的ガス生成/消費	N, P

（注）N：処分システムの安全性を損なわせる可能性がある。  
P：処分システムの安全性を向上させる可能性がある。

## 2. モデルの構築

### 2.1 地層中有機物と微生物活性の記述

放射性核種の地層中移行に対する微生物影響を定量的に評価するモデルを構築するに当たって、前述のとおり微生物代謝の多様性に留意する必要がある。生物のエネルギー獲得反応は、電子供与体の酸化と電子受容体の還

元との共役である。ヒトを例にとると、有機物（電子供与体）を酸素（電子受容体）によって酸化することでエネルギーを獲得し、水と二酸化炭素を排出する。

微生物の場合、電子供与体（有機物、メタン、水素、鉄(II)など）と電子受容体（酸素、硝酸イオン、鉄(III)、硫酸イオン、有機物など）の組合せが多数存在する。環境中では、代謝に必要な基質を十分獲得可能な微生物群が活動し、環境が変化すればそれに対応して活性微生物群の交代（遷移）が生じる。放射性廃棄物処分場においては、本来還元的な地下深部が掘削されて処分場が建設され、酸化環境になる。その後埋設されて還元的な環境に戻っていく過程では、酸化還元環境の変化によって活性微生物の遷移が起こると予想される。

ここでは、有機物を電子供与体とする従属栄養細菌を評価対象とし、利用する電子受容体によって六つの代謝群（第2表）に分類した。これらの代謝群は、酸化環境から還元的環境に向かって並んでおり、エネルギー獲得効率と環境中の電子受容体の濃度によってこれらの代謝群の遷移を記述した<sup>(6),(7)</sup>。また放射性核種の微生物によるコロイド的輸送をモデルに反映するため、地下水中の懸濁態微生物移動、さらに懸濁態微生物に収着された放射性核種の移行を評価可能にした<sup>(8)</sup>。以下、本モデルを概説する。

溶存有機物  $i$  の分子式を  $C_{a_i}H_{b_i}O_{c_i}N_{d_i}$  とする。このとき、有機化合物  $i$  が第  $j$  代謝群（第2表参照）によって消費される速度  $R_{ij}^{OC}$  を次のように記述した<sup>(6)</sup>。

$$R_{ij}^{OC} = \frac{k_{ij}^{OC} [OC_i]}{K_{ij}^{OC} + [OC_i]} P_j f_j \quad \dots\dots\dots (1)$$

- [OC]<sub>*i*</sub> : 溶存有機炭素濃度
- $k_{ij}^{OC}$  : 有機物分解速度係数
- $K_{ij}^{OC}$  : 有機物分解速度に対する有機物の飽和濃度

$P_j$  : 第  $j$  代謝群のバイオマス（生物量）密度

$f_j$  : 第  $j$  代謝群の相対寄与率

また  $f_j$  を以下の式で記述し、十分な電子受容体濃度をもち代謝群のうち、エネルギー獲得効率の高いものから順に有機物を消費することとした<sup>(6)</sup>。

$j=1$  の時

$$f_1 = \frac{[EA]_1}{[EA]_1 + k_1^{EA}} \quad \dots\dots\dots (2)$$

$j=2, 3, 4, 5$  の時

$$f_j = \left( 1 - \sum_{i=1}^{j-1} f_i \right) \frac{[EA]_j}{[EA]_j + k_j^{EA}} \quad \dots\dots\dots (3)$$

$j=6$  の時

$$f_6 = 1 - \sum_{i=1}^5 f_i \quad \dots\dots\dots (4)$$

[EA]<sub>*j*</sub> : 第  $j$  代謝群微生物の利用する電子受容体濃度

$k_j^{EA}$  : 電子受容体の相対寄与率に対する半飽和定数

第  $j$  代謝群微生物の増殖速度  $R_j^{syn}$  を次のように記述した。

$$R_j^{syn} = \frac{dP_j}{dt} = \sum_{i=1}^{n_{DOC}} \phi Y_{ij} R_{ij}^{OC} - \beta_j P_j \quad \dots\dots\dots (5)$$

- $n_{DOC}$  : 溶存有機物の数
- $\phi$  : 帯水層の間げき率
- $Y_{ij}$  : 第  $j$  代謝群微生物が有機物  $i$  を消費する際の細胞収率
- $\beta_j$  : 第  $j$  代謝群微生物の死滅率
- $t$  : 時刻

ここから第  $j$  代謝群微生物による電子受容体消費速度  $R_j^{pr}$  を以下のように記述する。 $R_j^{syn}$  の係数 20 は、微生物バイオマスの組成を  $C_5H_7O_2N$  と仮定し、そのバイオマスの合成に必要な電子の数から設定した。

第2表 本モデルで取扱う代謝群  
Table 2 Grouping of heterotrophic microorganisms

代謝群	名 称	電子受容体	半 反 応 式
1	好気性菌	O <sub>2</sub>	O <sub>2</sub> + 4H <sup>+</sup> + 4e <sup>-</sup> → 2H <sub>2</sub> O
2	脱窒菌	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> + 6H <sup>+</sup> + 5e <sup>-</sup> → ½N <sub>2</sub> + 3H <sub>2</sub> O
3	マンガン(IV)還元菌	Mn(IV)	MnO <sub>2</sub> + 4H <sup>+</sup> + 2e <sup>-</sup> → Mn <sup>2+</sup> + 2H <sub>2</sub> O
4	鉄(III)還元菌	Fe(III)	Fe(OH) <sub>3</sub> + 3H <sup>+</sup> + e <sup>-</sup> → Fe <sup>2+</sup> + 3H <sub>2</sub> O
5	硫酸還元菌	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> + 9H <sup>+</sup> + 8e <sup>-</sup> → HS <sup>-</sup> + 4H <sub>2</sub> O
6	メタン産生菌	TIC	CO <sub>2</sub> + 8H <sup>+</sup> + 8e <sup>-</sup> → CH <sub>4</sub> + 2H <sub>2</sub> O

$$R_j^{pr} = \frac{1}{e_j} (\phi R_j^{OC} (a_i + b_i - 2c_i + 3d_i) - 20R_j^{syn})$$

…………… (6)

$a_i, b_i, c_i, d_i$  : 有機物の化学式  $C_{a_i}H_{b_i}O_{c_i}N_{d_i}$  による  
 $e_j$  : 第  $j$  代謝群微生物の電子受容体還元反応で生じる電子の数 (第2表参照)

## 2.2 二次的反応の記述

ここでは、帯水層中で起こると想定される種々の非生物学的酸化還元反応と、主要な塩の溶出・析出反応として第3表に示す反応を評価した。これらの反応と2.1節に示した微生物関連反応について、化学物質ごとの反応速度を集計し、化学物質  $i$  の空間当たりの総反応速度  $R_i$  とした。

地下水中の pH を、電気的中性を示す以下の式から求めた。

$$\Delta e = \sum_i Q_i C_i + \frac{1}{\phi} \sum_i Q_i C_i^{ads} + [H^+] - [OH^-] \dots (7)$$

$\Delta e$  : モデル中で変数として扱うイオンの当量濃度  
 $Q_i$  : 物質  $i$  の荷電数

$C_i$  : 溶存態物質  $i$  の濃度  
 $C_i^{ads}$  : 収着状態の物質  $i$  の濃度

## 2.3 物質の時空間分布の支配方程式

ここでは一次元の水平方向に流れる地下水流をもつ多孔質帯水層を検討対象とし、その中に存在する微生物バイオマス、溶存物質、固体物質の分布をそれぞれ次の式で記述した。

ここで懸濁状態の微生物の移行を記述するため、微生物バイオマスは化学物質の収着と同様に付着状態微生物と懸濁状態微生物が一定の比を取っているとし<sup>(8)</sup>、次式によって記述した。

$$\left(1 + \frac{K_j^{d,att}}{\phi}\right) \frac{\partial P_j}{\partial t} = D \frac{\partial^2 P_j}{\partial x^2} - V \frac{\partial P_j}{\partial x} + \left(1 + \frac{K_1^{d,att}}{\phi}\right) R_j^{syn}$$

…………… (8)

$K_j^{d,att}$  : 第  $j$  代謝群微生物の固相への収着係数  
 $D$  : 分散  
 $V$  : 地下水流速  
 $x$  : 空間座標

コロイド粒子の移行速度は、溶存態物質よりも早いことが知られている<sup>(9)</sup>が、ここでは単純化のため、懸濁態微

第3表 本モデルで取扱う反応

Table 3 Reactions considered in this model

評価項目	反応式
微生物による有機物の酸化	$C_{a_i}H_{b_i}O_{c_i}N_{d_i} \rightarrow$ $a_i CO_2 - (2a_i - c_i) H_2O + d_i NH_3 + (4a_i + b_i - 2c_i - 3d_i) H^+ + (4a_i + b_i - 2c_i - 3d_i) e^-$
二次的酸化還元反応	$Mn^{2+} + \frac{1}{2} O_2 + H_2O \rightarrow MnO_2 + 2H^+$ $Fe^{2+} + \frac{1}{4} O_2 + \frac{5}{2} H_2O \rightarrow Fe(OH)_3 + 2H^+$ $2Fe^{2+} + MnO_2 + 4H_2O \rightarrow 2Fe(OH)_3 + Mn^{2+} + 2H^+$ $NH_4^+ + 2O_2 \rightarrow NO_3^- + 2H^+ + H_2O$ $H_2S + 2O_2 \rightarrow SO_4^{2-} + 2H^+$ $H_2S + MnO_2 + 2H^+ \rightarrow Mn^{2+} + S^0 + 2H_2O$ $H_2S + 2Fe(OH)_3 + 4H^+ \rightarrow 2Fe^{2+} + S^0 + 6H_2O$ $FeS + 2O_2 \rightarrow Fe^{2+} + SO_4^{2-}$ $CH_4 + 2O_2 \rightarrow CO_2 + 2H_2O$ $CH_4 + SO_4^{2-} + 2H^+ \rightarrow H_2S + CO_2 + 2H_2O$
塩の溶解と沈殿	$Mn^{2+} + CO_3^{2-} \rightleftharpoons MnCO_3$ $Fe^{2+} + CO_3^{2-} \rightleftharpoons FeCO_3$ $Fe^{2+} + S^{2-} \rightleftharpoons FeS$ $Ca^{2+} + CO_3^{2-} \rightleftharpoons CaCO_3$ $Ca^{2+} + SO_4^{2-} \rightleftharpoons CaSO_4$
酸の電離	$H_2CO_3 \rightleftharpoons H^+ + HCO_3^-$ $HCO_3^- \rightleftharpoons H^+ + CO_3^{2-}$ $H_2S \rightleftharpoons H^+ + HS^-$ $HS^- \rightleftharpoons H^+ + S^{2-}$ $H_3BO_3 \rightleftharpoons H^+ + H_2BO_3^-$ $H_2BO_3^- \rightleftharpoons H^+ + HBO_3^{2-}$ $HBO_3^{2-} \rightleftharpoons H^+ + BO_3^{3-}$

生物の実効移流速度  $V$ 、実効拡散係数  $D$  は溶存態の物質と同じであるとした。この式では、懸濁状態、付着状態の微生物バイオマス密度  $P_j^{\text{sus}}$  および  $P_j^{\text{att}}$  はそれぞれ以下のように記述される。

$$P_j^{\text{sus}} = \frac{1}{\phi + K_j^{\text{d,att}}} P_j \quad \dots\dots\dots (9)$$

$$P_j^{\text{att}} = \frac{K_j^{\text{d,att}}}{\phi + K_j^{\text{d,att}}} P_j \quad \dots\dots\dots (10)$$

溶存態の化学物質の空間分布について、以下の式で記述した。

$$\left(1 + \frac{K_i^{\text{d,solid}}}{\phi + \phi K_i^{\text{d,aq}}}\right) \frac{\partial C_i}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C_i}{\partial x^2} - V \frac{\partial C_i}{\partial x} + \frac{R_i}{\phi} \quad \dots\dots\dots (11)$$

- $C_i$  : 物質  $i$  の地下水中濃度
- $K_i^{\text{d,solid}}$  : 物質  $i$  の固層に対する分配係数
- $K_i^{\text{d,aq}}$  : 物質  $i$  の液相に懸濁した物質に対する分配係数

これらのうち  $K_i^{\text{d,solid}}$ 、 $K_i^{\text{d,aq}}$  について、母岩・母岩中の鉱物・微生物に対する取着を考慮し、以下のように実効取着係数を求めた。

$$K_i^{\text{d,solid}} = K_i^{\text{d,back}} + \sum_j K_{ij}^{\text{d,bio}} P_j^{\text{att}} + \sum_l K_{il}^{\text{d}} C_l^{\text{solid}} \quad \dots\dots\dots (12)$$

$$K_i^{\text{d,aq}} = \sum_j K_{ij}^{\text{d,bio}} P_j^{\text{sus}} \quad \dots\dots\dots (13)$$

- $K_i^{\text{d,back}}$  : 物質  $i$  の母岩に対する取着係数
- $K_{ij}^{\text{d,bio}}$  : 代謝群  $j$  の微生物バイオマスに対する物質  $i$  の取着係数
- $C_l^{\text{solid}}$  : 固体物質の濃度

固体物質の濃度変化  $R_i$  について、以下の式で記述した。

$$R_i = \frac{\partial C_i^{\text{solid}}}{\partial t} \quad \dots\dots\dots (14)$$

与条件

流入する上流端と下流端についての境界条件は

$$C_i(x, t)|_{x=0} = C_i(0, t) \quad \dots\dots\dots (15)$$

$$\frac{\partial C_i(x, t)}{\partial x} \Big|_{x \rightarrow \infty} = 0 \quad \dots\dots\dots (16)$$

を満たすように時刻ごとに各化学物質の空間分布を求めた。(15)式は境界条件として上流端の化学物質の濃度を与えるものであり、溶存態・懸濁態物質については時刻ごとの流入地下水中の濃度を意味する。

したがって、境界条件として流入する地下水中の濃度を時刻ごとに与えることが可能であり、例えば人工バリアか

ら流出する化学物質の時系列変化などを入力データとして用いることができる。また初期条件としてシミュレーション開始時の種々の物質の濃度を全域にわたって指定することができる。

### 3. 結 言

放射性廃棄物処分場の天然バリアである地質環境における微生物影響を評価するツールとして、以下の現象を定量的に評価できるモデルを構築した。

- (1) 微生物による有機物の消費と炭酸イオンの生成
- (2) 電子受容体の消費と還元性物質の生成
- (3) 関連する鉱物の溶解・沈殿
- (4) 地下水 pH の変化
- (5) 懸濁態微生物の地下水中的移動
- (6) 微生物に対する放射性核種の取着による核種の遅延および放射性コロイドの移行による放射性核種の移行促進

一方、このモデルの検証に必要な室内試験および野外観測データセットは採取されておらず、今後の重要な課題である。また以下のパラメタに関する野外調査、室内試験による調査が必要である。

- (1) 貧栄養地下環境における微生物の有機物消費速度係数
- (2) 岩盤に付着する微生物の割合
- (3) 放射性核種の微生物の相互作用についての機構解明および微生物に対する放射性核種取着の分配係数
- (4) 活性微生物遷移のトリガーとなる電子受容体の濃度
- (5) 主要な活性代謝群となり得る従属栄養細菌以外の微生物群の調査

### — 謝 辞 —

本研究は経済産業省および財団法人エネルギー総合工学研究所による、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」の一環として、2002～2004年度に実施した成果の一部である。

本研究の遂行に当たって、静岡大学加藤憲二教授、吉備国際大学工藤章教授、独立行政法人日本原子力研究開発機構 油井三和氏から数々の有益なご助言をいただきました。ここに記し、深く感謝の意を表します。

## 参 考 文 献

- (1) 核燃料サイクル開発機構：我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性－地層処分研究開発第2次取りまとめ 日本核燃料サイクル研究開発機構 JNC TN1400 99-023 1999年
- (2) 核燃料サイクル開発機構：高レベル放射性廃棄物の地層処分技術に関する知識基盤の構築－平成17年取りまとめ－一分冊3安全評価手法の開発－ 日本核燃料サイクル研究開発機構 JNC TN1400 2005-016 2005年11月
- (3) 共同作業チーム（電気事業連合会，核燃料サイクル開発機構）：TRU 廃棄物処分概念検討書 電気事業連合会 JNC TY1400 2000-001 TRU TR-2000-01 2000年3月
- (4) Pedersen, K. and F. Karlsson : Investigation of subterranean microorganisms : Their importance for performance assessment of radioactive waste disposal SKB 95-10 (1995)
- (5) 石川島播磨重工業株式会社，核燃料サイクル開発機構，吉備国際大学，静岡大学，東京大学，サンディア国立研究所：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」成果報告書 エネルギー総合工学研究所 2005年3月
- (6) Hunter, K. S., Wang, Y. F. and Van Cappellen, P. : Kinetic modeling of microbially-driven redox chemistry of subsurface environments : coupling transport, microbial metabolism and geochemistry Journal of Hydrology 209 (1998) pp. 53 - 80
- (7) Wang, Y. F. and Papenguth, H. W. : Kinetic modeling of microbially-driven redox chemistry of radionuclides in subsurface environments : coupling transport, microbial metabolism and geochemistry Journal of Contaminant Hydrology 47 (2001) pp. 297 - 309
- (8) Corapcioglu, M. Y. and Haridas, A. : Transport and Fate of Microorganisms in Porous-Media - a Theoretical Investigation Journal of Hydrology 72 (1984) pp. 149 - 169
- (9) Prieve, D. C. and Hoysan, P. M. : Role of colloidal forces in hydrodynamic chromatography Journal of Colloid Interface Science 64 (1978) pp. 201 - 213