

実際の地質環境における人工バリアの適用性確認

(1-1)物質移行試験について

・原位置トレーサー試験を通じた堆積岩中の物質移行特性評価手法の整備
 ・有機物、微生物の存在が核種移行挙動(特に、収着、拡散)に与える影響の把握

令和5年8月28日

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 核燃料・バックエンド研究開発部門 幌延深地層研究センター 深地層研究部 武田 匡樹・望月 陽人

説明概要

課題

- ・ 地層処分の閉鎖後長期において処分システムの健全性をより確かなものとする上では、
 ニアフィールド領域を含む母岩中の核種移行挙動を適切に評価することが重要
- 我が国に分布する岩盤に対し、幅広い地質環境特性(岩種、割れ目頻度、地下水水質)に対応可能な核種移行モデル化/解析手法が確立されているとはいえない

目的・内容

- ・幌延の泥岩(割れ目を有する堆積岩、塩水環境)を事例に、主要な水みちとなる水理 地質構造(マトリクス・割れ目)を対象とした原位置トレーサー試験を実施し、マトリクス、 割れ目双方に適用可能な物質移行モデル化手法を検討
- 安全評価あるいは性能評価に資するより広いスケール(数100m程度)に対応可能な 体系的な物質移行モデル化手法を整備

成果

 割れ目、マトリクス双方で数10cm~数m程度のスケールの物質移行特性を評価可能 なモデル化/解析手法を整備

背景·目標

(a) 研究の背景

- 一般的に泥岩中の核種移行はマトリクス中の拡散が支配的である一方で、EDZや断層帯中の割れ目も主要な核種移行経路となりうる
- マトリクスおよび割れ目が主要な核種移行経路となりうる地質環境条件においては、 これら構造中の物質移行挙動を原位置、室内試験を通じて把握した上で、その挙動 を整合的に解釈できるモデル化/解析技術が必要
- ▶ 特に割れ目を有する泥岩については、国内外を通じ原位置試験に基づく物質移行 挙動の評価事例はほとんどないため、幌延の泥岩を事例に原位置試験技術、物質 移行モデル化手法を検討し、これらを含め、体系的な物質移行特性評価手法として 整備
- (b) 研究の目標
 - ▶ 原位置トレーサー試験を通じたより広いスケールに対応可能な体系的な物質移行特 性評価手法の整備

数mスケールにおける割れ目、マトリクス中の物質 移行挙動を評価可能なモデル化・解析手法整備



地質環境特性の概要



Int J Rock Mech Min Sci

Fe. S鉱物-微生物-核種

原位置試験箇所



ダイポール試験(割れ目対象)

拡散試験(マトリクス対象)



2 80 m

試験区間

55

ボーリングコア写真(D-05孔)

2.0 m

5





● 試験区間内の濃度減衰と外側岩盤中の濃度プロファイルを同時 フィッティングすることにより、原位置試験結果を概ね再現可能



(ただし、Sr、Co、Euについては、地下水水質(酸化還元状態、pHなど)に応じた沈殿や錯形成の影響等を 考慮して評価する必要性)



S-31



● 両孔で確認された断層の透 水性、水圧応答を確認し、そ れぞれ試験区間として設定



使用トレーサー(パルス入力試験時)

トレーサー	主要溶存種/同 位体	投入濃度 (M)	地下水中のバックグ ラウンド濃度 (M)
Uranine	-	6.6 × 10 ⁻⁵	-
D ₂ O	HDO	30 %	-
Cs	Cs⁺	7.5×10^{-3}	1.5 × 10 ⁻⁸
I	ŀ	1.2×10^{-2}	1×10^{-4}
Мо	MoO ₄ ²⁻	1.0×10^{-4}	-
Со	Co ²⁺ , CoCO ₃	1.7×10^{-4}	2 × 10 ⁻⁸
Eu	$EuCO_3^+$, $Eu(CO_3)_2^-$	6.6 × 10 ⁻⁵	1×10^{-11}



使用トレーサー(定常入力試験時)

トレーサー	主要溶存種/ 同位体	投入濃度 (M)	地下水中のバッ クグラウンド濃度 (^{M)}
Uranine	-	6.6×10^{-5}	-
Cs	Cs⁺	7.5×10^{-3}	1.5 × 10 ⁻⁸
Мо	MoO ₄ ²⁻	1.0×10^{-3}	-
Со	Co ²⁺ , CoCO ₃	1.2 × 10 ⁻³	2 × 10 ⁻⁸
Eu	EuCO ₃ ⁺ , Eu(CO ₃) ₂ ⁻	2.0×10^{-4}	1×10^{-11}

● 2種類のトレーサー投入方法でトレーサー試験を実施



- 各トレーサーの収着特性に応じた破過曲線を取得
- ウラニン、HDO、I、Moと比べCs、Co、Euについてはイライト、スメクタイトといった粘土 鉱物への収着の影響により、到達時間、ピーク濃度に明瞭な差異が見られる



解析結果(ウラニン、Cs)



● 移行経路内の不均質性を考慮したモデルにより、異なるトレーサー入力条件の試験 結果を整合的に解釈

まとめ

【得られた成果】

- ➢ 溶存ガスが地下水中に含まれることや水みちとして機能しうる割れ目を有する特徴をもつ幌延の泥岩を事例として、原位置試験技術および物質移行モデル化手法を整備
- ▶ 具体的には、数m程度のスケールにおける割れ目、マトリクス中の物質移行挙動を表現 可能なモデル化・解析手法の適用性を確認
 - ・原位置拡散試験結果のモデル/解析評価により一部のトレーサー(HDO、Cs、Mo)拡 散・収着パラメータやイオン種の違いに起因した拡散特性の傾向性が室内-原位置 双方で整合的であることを確認
 - ・亀裂内や複数割れ目の寄与による移行経路の不均質を考慮した物質移行モデルにより、一部のトレーサー(ウラニン、Cs)の移行挙動を解釈可能

【残された課題】

より広い空間スケール(数10m~数100m程度)へ適用可能な物質移行特性評価手法の整備(拡散、収着メカニズムが複雑なトレーサーに適用可能なモデルの検討も含む)

本資料には、以下の経済産業省資源エネルギー庁受託事業の成果の一部を利用した。

- ・ 平成28年度 地層処分技術調査等事業(処分システム評価確証技術開発)
- ・ 平成29年度 地層処分技術調査等事業(処分システム評価確証技術開発)
- 令和4年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業(JP007597)(ニアフィ ールドシステム評価確証技術開発)

HIPでの取り組み

▶ 幌延国際共同プロジェクト(Task A: Solute transport experiment with model testing)では幌延の泥岩(新第三紀堆積岩)を対象に、原位置トレーサー試験によって核種移行に寄与する構造(割れ目、マトリクス)の特性データを取得し、その結果に基づき、より広いスケール(10m³程度の岩盤領域)を対象とした核種移行モデルの検証を実施する。

換気立坑 HD9-6 SAB-1 原位置調査/原位置トレーサー試験① 南西 白立抗 PB-V01 北東 eristaltic pum Field_Constant
 Model_Constant
 Field_Pulse Uranine Rock sample C/C_0 未固結堆積物 (620 x 5-20mm 0.8 Pulse injection C/C₀ Model Pulse Rock matrix 0.7 ontinuous injection 0.02 ompariso 0.6 a /a 0.5 100-Inlet Outlet 0.4 reservoir reservoir 001 声問層 0.3 Sorption sites (180mL) (180mL) 0.2 Flow-paths 0.1 200-Additional inlet reservoir O-ring Resin Seal 400 600 800 (2L for sorbing tracers) 崔内層 Time(min) 遷移帯上部 室内試験 Determination Determination 300 **深度**(m) 稚内層 核種移行パラメータの取得 核種移行経路の推定/評価 遷移帯下部 400 <2 500-稚内層 Input DI > 2'主部 600-100 m Stagnant 70 Path length Flov Comparison 地質断面図 Output 稚内層を力学的検討に基づ き,割れ目が開きやすい 0.6m 0.3 (隙間ができやすい)浅部 核種移行解析モデルの構築 原位置トレーサー試験②の予測解析 原位置トレーサー試験2(公募外) 領域(DI<2)と割れ目が 開きにくい(隙間ができに Determination くい) 深部領域 (DI>2) に区分(DI=平均有効応力 より現実的な核種移行解析モデ ÷引張強度) (Ishii, 2015, ル・コードの開発および検証 2016)

幌延の泥岩を対象とし た物質移行の調査・評

価技術を、体系的評価

や安全評価への反映の

視点を含めて提示

実際の地質環境における人工バリアの適用性確認

(1-1)物質移行試験について

・原位置トレーサー試験を通じた堆積岩中の物質移行特性評価手法の整備

・有機物、微生物の存在が核種移行挙動(特に、収着、拡散)に与える影響の把握

説明概要

課題

- 高レベル放射性廃棄物から漏出した放射性核種が、深部地下水中の有機物・微生物・コロイドと相互作用(収着・錯形成・濃集など)する可能性が指摘されている。
- ・ 核種とこれら物質との相互作用による、核種の移行促進・遅延の影響を評価することが重要。

目的·内容

- 有機物・微生物・コロイドとの相互作用が核種の移行挙動に与える影響を評価するため、地 下深部の場を利用して、有機物・微生物・コロイドの特性(量、種類、サイズ、核種との反応性 など)に関する研究を実施。
- 得られた結果から、有機物・微生物・コロイドの影響評価を行うためのフローチャートを整備し、
 実施すべき調査や評価基準などを整理。最終的に、評価手法の体系化につなげていく。

成果

- ・ 有機物・微生物・コロイドの特性に関する評価手法を検討・整備し、実際の地下水に適用。
- 適用結果の例として、瑞浪・幌延の地下水における有機物・微生物・コロイドの特性に関する 情報を取得。
- ・ 得られた結果をふまえ、影響評価に関するフローチャートを整備し、今後の課題を抽出。

背景

- 高レベル放射性廃棄物から漏出した放射性核種が、深部地下水中の有機物・微生物・コロイドと 相互作用(収着・錯形成・濃集など)する可能性が指摘されている
- ・ 核種とこれら物質との相互作用による、移行促進・遅延の影響を評価することが重要



・ 幌延・瑞浪の地下水を対象とした有機物・微生物・コロイドの特性(量、種類、サイズ、核種との反応性など)評価に関する研究、および評価方法の検討・整備に関する研究を行ってきている

コロイド(有機物)影響の評価に関するフローチャート

● コロイド(有機物)



微生物影響の評価に関するフローチャート

)微生 物		評価に必要な パラメータ	手法の整備	評価基準および 関連する知見など	
NO	 	①微生物密度 (M [kg/m ³])	・蛍光顕微鏡による微生物 量の測定 ・菌類の細胞当たり重量を 用いた微生物重量への換算	 ・核種移行計算にもとづけ ば、「KdM (KdとMの 積) >1」の場合、移行促進 が顕在化しうる (久野・笹本, 	
NO	YES ②微生物コロイドは 核種の収着/取込みを おこなうか? YES	②核種の微生物へ の分配係数 (Kd [m ³ /kg])	・地下水への元素添加試験 を応用した分配係数の算出 (滅菌→差分から算出)	2009) ・幌延の結果: ①1-5 x 10 ⁻⁵ ②0.00076 (Se)、 ~3.5 x 10 ⁵ (REE)	
NO	③微生物コロイドは核種移 行を促進させるレベルの密 度,分配係数,取込み反応 活性を有するか?	 ③-1 微生物によ る核種の取込み速 度(不可逆性) 	収着試験、培養法、ゲノム 解析	・一部の核種が特定の微生 物によって取り込まれるこ とを試験で確認 ・核種移行計算では、「微 生物からの核種の脱離速度	
微生 促進	E物コロイドによって核種移行が Éされた場合、天然バリアの安全			<1 (1/y) 」の場合に促進が 顕在化 (久野・笹本, 2009)	
│ ↓ ↓	(成能が損なわれるか? NO オコロイドは処分システムの に有意な悪影響を及ぼさない	③−2 微生物の走 化性	・蛍光顕微鏡観察などにも とづく運動様式と移動速度 の評価 (Eisenbach et al., 2004)	 移動速度:0.015-200 μm/s (Eisenbach et al., 2004) 「KdM=0 or 1の条件下で 流速>100 m/y」の場合に促進が顕在化 (久野・笹本, 2009) 	

・ 微生物コロイドのほか、バイオフィルムおよび微生物代謝活性の評価フローも整備(参考資料)

コロイド(有機物)の特性評価に関する成果例



幌延地下水中(10 kDa濾過)の U·Thの溶解度計算 (Sasaki et al., 2017) $UO_2(CO_3)_3^{4-}$ Ca₂UO₂(CO₃)₃⁴⁻

UO₂(CO₃)₂²⁻ U(OH)₂(CO₃)₂²⁻

U(OH)₃(CO₃)⁻ U(OH)₄⁰

U(OH)(CO₃),5

 $UO_2(CO_3)^0$ $U(OH)_3^+$

Th(CO₃)₄⁴

 $\log[CO_3^{2-}]$

コロイド(有機物)の特性評価に関する成果例

✓ 幌延の地下環境では、コロイド・有機物のサイズが亀裂開口幅 (µmオーダー)よりも小さい → 亀裂を通じて移行しうる

コロイド(有機物)の特性評価に関する成果例

微生物の特性評価に関する成果例

微生物の特性評価に関する成果例

● 地下水中の微生物と核種との反応性 微生物コロイド/全コロイドへの希土類元素の分配係数評価: γ線照射により微生物コロイドを死滅させたところ、希土類元素 **の分配係数が全コロイドの場合よりも低下**(JAEA・RWMC, 2023) コロイドの核種収着能の大部分を微生物コロイドが占める可能性 \checkmark 6 -∎--140_ 全コロイド (a) 1 dav | Kd(m3/kg) → 140 無機コロイド ━━ 140_ バイオコロイド ■ 250 全コロイド ━━━ 250 無機コロイド ―●―250 バイオコロイド ----185 全コロイド × ² ━━ 185_ 無機コロイド ---185 バイオコロイド -■-350 全コロイド 0 --- Tanaka et al (2010)_pH6.91_100ppb La Ce Nd Sm Eu Gd Tb Dy Ho Er Tm Yb Lu Y 幌延地下水中コロイドへの希土類元素の分配係数評価 (JAEA・RWMC. 2023) (a) 140m (b) 250m 深度350m地下水中コロイ 2.5 60 1 ppb ratio 1 ppb ratio 10 ppb_ratio 10 ppb_ratio 50 ドへの希土類元素の分配 2 100 ppb ratio 40 C.L Batio 係数は相対的に低い 30 ✓ 350m地下水では微生物 20 0.5 コロイドの割合が低く、希土 10 0 類元素の添加により代謝 2 72 260 0 1 0 1 2 3 7 17 28 212 Time(davs) Time(days) が活性化される微生物が 希土類元素により代謝が活性化される 少ないためと考えられる 微生物量の対初期値比 (JAEA・RWMC, 2023)

微生物の特性評価に関する成果例

0%

initial

Seなし

 地下水中の硫酸還元菌の中には、Se(IV)を還元して細胞内に濃 集する種が存在することを、室内試験により確認

Seあり

微生物群集組成の変化

まとめと今後の課題

- 地下水中の有機物・微生物・コロイドについて、
- ・ 量、種類、サイズ、核種との反応性などに関する評価手法
- ・核種移行への影響評価に必要な情報
 が整備されつつある。
- 影響評価の実施にあたり不足している情報として、以下が挙げられる。
- ✓ コロイドの種類の評価手法に関する汎用性確認
- ✓ コロイド形成が核種の見かけ溶解度に与える影響の評価手法の整備
- ✓ 微生物代謝と核種との相互作用に関する現象理解と評価手法の整備
 ✓ 未知微生物の代謝機能の評価手法の整備

謝辞:本資料には、経済産業省資源エネルギー庁受託事業「平成25年度~平成29年度 高レベル 放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業(JPJ007597)(処分システム評価確証技術開 発)」および「平成30年度~令和4年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事 業(JPJ007597)(ニアフィールドシステム評価確証技術開発)」の成果の一部を利用した。

溶存ガス環境下でのトレーサー試験手法の開発

【試験結果】

・注水流量を揚水流量よりもやや高く設定することで,脱ガスの発生を低減しつつ,可能な限り高い トレーサー回収率を達成可能であることを確認

・ 注水流量>揚水流量の条件で脱ガスの発生が低減する傾向

バックグラウンド濃度の影響評価

【試験結果】

バックグラウンド濃度の影響が最大となるSrにおいても、バックグラウンド濃度の影響はごくわずかであることを確認

バックグラウンド濃度の影響評価(CsとSrの例):(a)解析法、(b)トレー サー減衰曲線、(c)岩石中濃度プロファイル

研究成果の概要

割れ目沿いの分散長の評価結果

【試験結果】

・割れ目内の主要な水みち沿いの分散長を評価した結果、試験スケールと分散長との関連性について既存の研究成果と概ね整合

L: Scale (m)

Gelhar et al. (1992)に追記

- 破過曲線の初期の挙動に着目し、平行平板モデル
 を仮定したフィッティングにより分散長を評価
- 2経路(Path1、Path2)を仮定した重ね合わせ手法
 により、良好なフィッティング(図中赤線)が可能

掘削状況

≻試験区間(2.55~2.80 m)に は天然の割れ目がなく、低透 水性を示すことを確認

透水試験結果

S-31

図2 S-31孔から50 (mL/min) 注水時の水圧応答

 >S-30およびS-31孔で断層を確認
 >両区間の孔間の透水量係数は5.0×10⁻⁷ (m²/s)であるとともに、両断層を含む区間の 水圧応答が明瞭であることを確認

図1 ボーリングコア

室内トレーサー試験に基づくモデル検討結果

【試験結果】

・割れ目内の選択的な流れを考慮したモデルにより、割れ目内の不均質な流れにおけるトレーサーの 移行挙動を整合的に解釈可能

X線CT像から評価された割れ
 目開口幅をモデルに設定する
 とともに、割れ目内の不均質な
 流れを表現したモデルにより破
 過データの解析を実施

不均負な読れを想定しモデル形状を不の読れる 方向に対して分割し、割れ目内の読れる部分と stegnentな部分(拡散・収着は考慮)の割合を変 化させて解析

流れを1/8にしたモデルによる解析結果が最も整合的(左上図)であるとともに、流れのない領域(d層)における濃度プロファイルと最も近い傾向(右下図)

モデル形状 複数経路(3経路)を仮定しトレーサーの移行 経路分布の不均質性を表現

	流路長 (mm)	割れ目幅 (mm)	開口幅 (mm)
1経路目	1755.5	337.2	1.3
2経路目	3497.0	319.1	0.6
3経路目	4985.7	288.7	1.0

□ フロー領域 □ スタグナント領域

フロー/スタグナントモデル フロー(移流・分散を考慮)、スタグナント(拡散のみ を考慮)領域を仮定し、経路内の不均質性を考慮

	De (m²/s)	Kd (m²/s)
ウラニン	$4.8 \underset{10}{\times} 10^{-10}$	-
Cs	$9.5 \underset{10}{\times} 10^{-10}$	0.0345

微生物影響の評価に関するフローチャート

● バイオフィルム

微生物影響の評価に関するフローチャート

● 微生物代謝活性

地下環境中の多くの微生物は代謝機能の未解明 な未知微生物である。 核種移行に及ぼす微生物代謝反応は 不確実性要因となる

未知微生物群の代謝活性機能の評価手法開発が今後の課題

(1)有機物

● 地下水中の有機物量 TOC計による測定

- ・幌延:12~28 mg/L (Terashima et al., 2020: 望月ほか, 2020)
 → 瑞浪より高く、国外堆積岩の1/10~同程度
- 0.45 µm濾過の有無で濃度に変化なし(望月ほか, 2020)
 → 全量が溶存態として存在

● 地下水中の有機物の種類
 樹脂(DAX-8, XADなど)を利用した分画手法

国内外の地下水中のDOC濃度

岩石/地域	DOC濃度(mg/L)
土岐花崗岩/瑞浪	<0.5~5.7 (林田ほか, 2017)
瑞浪層群堆積岩/瑞浪	<0.5~2.4 (林田ほか, 2017)
Boom Clay/Belgium	40~270 (Durce et al., 2015)
Opalinus Clay/ Switzerland	16 (Courdouan et al., 2007a)
Callovo-Oxfordian Clay/ France	57 (Courdouan et al., 2007b)

- ・ 幌延の場合、腐植物質(核種との錯形成能が相対的に高いと考えられる)の割合が60%

1)有機物

- 地下水中の有機物の種類(続き)
- 日本国内の2ヶ所8地点の堆積岩深部地下水において、DOC濃度と腐植物質濃度に正の相関

(Terashima et al., 2020) 100 (b) River waters [25] (a) Sediemntary groundwater (This study) Horonobe boreholes Selenga River basin in Mongolia 80 0 Niigata observation wells 80 Selenga River basin in Russia 30 SH % SH % Horonobe boreholes 0 Niigata observation wells 40 4(25 Ŷ (mg-C/L) 20 20 河川水 堆積岩地下水 20 RMSE = 3.197 (n = 8)RMSE = 5.519 (n = 28)0.1 10 0.1 100 10 100 $C_{\rm nom} \,({\rm mg-C}\,{\rm dm}^{-3})$ $C_{\rm DOM}$ (mg-C dm⁻³) **蘙植物質**濃度 15 100 100 (d) Bog waters [23] (c) Lake waters [23] $C_{\rm HS} = 0.615 \text{ x } C_{\rm DOM}$ ▼ Kita-dobu in Nagano Clear waters in Japan 10 ▼ Nakaikemi in Fukui 80 Brown water in Scotland 80 $R^2 = 0.971$ Brackish water in Japan P < 0.00160 SH % **SH %** 5 -5 10 15 20 25 30 35 40 45 40 40 DOC濃度 (mg-C/L) 20 20 . 地下水中のDOC濃度と腐植物質濃度の関係 湖水 湿地水 RMSE = 12.86 (n = 9)RMSE = 8.612 (n = 25)(Terashima et al., 2020) 0.1 0.1 10 10 100 100 $C_{\rm DOM}$ (mg-C dm⁻³) $C_{\rm DOM}$ (mg-C dm⁻³)

> 地下水・地表水中のDOC濃度と腐植物質割合の関係 (Terashima et al., 2020)

→ 地下水ではDOC濃度をもとに腐植物質濃度を推定できる可能性; モデル構築の際に有用

1)有機物

- 地下水中の有機物のサイズ
- <u>サイズ排除クロマトグラフィー、流動場分画法</u>
- 幌延地下水中の腐植物質は地表土壌中に比べて分子量が小さい(~6 kDa) (Kimuro et al., 2018)

<u>三次元蛍光分析</u>

・ 地下水と地表水とでスペクトルが異なる (望月ほか, 2020)

> 幌延地下水(左)および地表河川水(右)中の 三次元蛍光スペクトル (望月ほか, 2020)

→ 核種移行に対する有機物の影響評価には、実地下水中の腐植物質を使用する必要がある

(1)有機物

- 地下水中の有機物と核種との反応性
- 1. 天然の存在状態
- ・ 幌延・瑞浪地下水を0.22 µmおよび10 kDaで濾過すると、溶液中のU・Th濃度が半分程度に減少
 → UおよびThが有機物コロイドや擬似コロイドとして存在 (Sasaki et al., 2017)
- サイズ排除クロマトグラフィー/UV/ICP-MS
- ・ 幌延地下水中の有機物コロイドは見かけ分子量が約4 kDa
 Se, Sr, I, Cs, Th, Uは含まない (Kozai et al., 2013)
- 2. 核種との反応に関する試験
- ・ 蛍光の消失に着目した、金属イオンと地下水中の天然有機物の結合反応 および有機物の性質・起源等に関する研究(斉藤ほか、2022)

ntensity (a.u.

2)微生物

● 地下水中の微生物の種類 メタゲノム解析による微生物代謝機能の推定

・ 窒素・硫黄・炭素・水素・鉄の代謝に寄与する、多量かつ多種多様な微生物が生息

(Hernsdorf et al., 2017; Ino et al., 2018; Meheust et al., 2020など)

- 他の環境から検出されていない未知微生物群の存在を確認 (Hernsdorf et al., 2017; Amano et al., 2018; Jaffe et al., 2021など)
 - → 未知微生物群の活性・代謝機能の評価手法が課題

その他、新種のメタン生成菌(Shimizu et al., 2015)や嫌気的硫酸還元菌(Ueno et al., 2021)、
 世界最大レベルのゲノムサイズを有するバクテリオファージ(Al-Shayeb et al., 2020)なども発見

2 微生物

- 地下水中の微生物の種類(続き)
- ・ 坑道やボーリングの掘削により地下水中の微生物の存在量・種組成は変動するが、1~2年程度で概ね掘削前の状態に回復する (Ise et al., 2018)
- ・ 坑道壁面近傍では微生物存在量の変動が長期化
 → 掘削影響によるものと考えられる (JAEA, 2016, 2017)
- 地下水中の微生物のサイズ
- ・幌延地下水中の微生物のサイズは約0.2~1 µm
- ・ 花崗岩中の微生物に比べて大きい
 →有機物量が多く、代謝活性が高いことに起因すると考えられる
- ・ 岩石中の割れ目や粒子間空隙など、微生物に適したサイズの空間に存在
- 地下水中の微生物と核種との反応性
- 1. 天然の存在状態
- <u>微生物コロイド重量の推定</u>
- 微生物量と大腸菌1細胞あたりの重量から、微生物コロイド重量を推定
- ・ 幌延地下水中のコロイドのうち、微生物コロイドの割合は0.6~22% (JAEA, 2017)
 - → 大部分は無機コロイドまたは微生物細胞以外の有機コロイド

幌延地下水中の微生物全菌数の経時変化

(JAEA, 2017) 字在

5 mm

2微生物

● 地下水中の微生物と核種との反応性(続き)

バイオフィルム中微生物の蛍光顕微鏡観察、元素濃度分析

 地下水採取用のチューブ内部に形成されたバイオフィルム(密度~18.8 kg/m³)への元素(希土 類元素, Th, Uなど)の濃縮 (分配係数:2.1×10¹~1.5×10² m³/kg: JAEA・RWMC, 2019)

地下施設操業期間の長期化に伴い、バイオフィルム の形成種の経時変化を確認 ニアフィールド環境における化学的変遷の実環境デ ータを拡充

幌延地下水中での微生物種の空間分布と バイオフィルム形成種の広がり (JAEA・RWMC, 2023)

3コロイド

● 地下水中のコロイド量 重量測定法 $0.091 \sim 1.66 \text{ mg/L}$ (>200 nm; JAEA, 2017) 動的光散乱法 0.05~1.5 mg/L (>100 nm: Sasamoto and Onda, 2018) → 複数の方法で整合的な結果 → 結晶質岩より堆積岩で高濃度 幌延は国内外堆積岩の1/100~同程度

● 地下水中のコロイドの種類 SEM/EDS

- 瑞浪:地下水中のコロイドを定性的に分類 (lwatsuki et al., 2017) → 幌延の地下水には未適用:実施を検討
- 微生物コロイドは0.6~22% (再掲: JAEA, 2017)

国内外の地下水中のコロイド濃度

岩石/地域	コロイド濃度(mg/L)
土岐花崗岩/瑞浪	0.001~0.015 (Iwatsuki et al., 2017)
Forsmark Granite/Sweden	0.002~0.14 (Nilson and Degueldre, 2007)
瑞浪層群堆積岩/瑞浪	1~1.5 (核燃料サイクル機構, 1999)
Gorleben Salt dome/Germany	158 (Dearlove et al., 1990)

(b) Suspended particles in the CTD

Organic matter

10ur

③コロイド

0.8

0.6

0.4 0.2

0.8

0.6

0.2

0

2

concentration

Vormalized

- 地下水中のコロイドと核種との反応性
- 1. 天然の存在状態
- <u>サイズ排除クロマトグラフィー/UV/ICP-MS</u>
- ・ 幌延地下水中のUは金属元素を含まない低分子シリカに 結合 (USiO₄?: Kozai et al., 2013)
 流動場分画法/ICP-MS
- 幌延では、Ca, Mn, Laは粒径1.5~2 nmの有機コロイド、 Sr, Uなどは粒径2.5 nmの無機コロイドに分配 (Saito et al., 2015)
- 2. 核種との反応に関する試験 <u>嫌気条件を保持した地下水への希土類元素添加試験</u>

Uは炭酸錯体形成のためほぼ粒子へ移行せず (Kirishima et al., 2022)
 → リン酸濃度の高い地下水では、リン酸イオンとの反応を考慮することの重要性が示唆

(a) Granitic

(b) Sedimentary

8

10

6

4

流動場分画法/ICP-MSによる

瑞浪・幌延地下水中のコロイドの元素分布 (Saito et al. 2015)

 d_{μ} (nm)

— Mn

- Ishii, E., Predictions of the highest potential transmissivity of fractures in fault zones from rock rheology; Preliminary results, Journal of Geophysical Research; Solid Earth, 120 (4), 2220-2241, https://doi.org/10.1002/2014JB011756, 2015.
- Zhang, M., Takeda, M. and Nakajima, H., Determining the Transport Properties of Rock Specimens Using an Improved Laboratory Through-Diffusion Technique, Mat. Res. Soc. Symp. Proceeding, 932 (1131), https://doi.org/10.1557/PROC-932-113.1, 2006.
- Ishii, E., Far-field stress dependency of the failure mode of damage-zone fractures in fault zones; Results from laboratory tests and field observations of siliceous mudstone, Journal of Geophysical Research; Solid Earth, 121 (1), 70–91, https://doi.org/10.1002/2015JB012238, 2016.
- Gelhar, L.W., Welty, C. and Rehfeldt, K.R., A Critical Review of Data on Field-Scale Dispersion in Aquifers, Water Resources Research, 28 (7), 1955–1974, https://doi.org/10.1029/92WR00607, 1992.
- Ishii, E., Estimation of the highest potential transmissivity of discrete shear fractures using the ductility index, International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences 100, 10– 22, 2017.

- Al-Shayeb, B., Sachdeva, R., Chen, L.X., Ward, F., Munk, P., Devoto, A., Castelle, C.J., Olm, M.R., Bouma-Gregson, K., Amano, Y., He, C., Méheust, R., Brooks, B., Thomas, A., Lavy, A., Matheus-Carnevali, P., Sun, C., Goltsman, D.S.A., Bortin, M.A., Sharrar, A., Jaffe, A.L., Nelson, T.C., Kantor, R., Keren, R., Lane, K.R., Farag, I.F., Lei, S., Finstad, K., Amundson, R., Anantharaman, K., Zhou, J., Probst, A.J., Power, M.E., Tringe, S.G., Li, W.J., Wrighton, K., Harrison, S., Morowitz, M., Relman, D.A., Doudna, J.A., Lehours, A.C., Warren, L., Cate, J.H.D., Santini, J.M. and Banfield, J.F.: Clades of huge phages from across Earth's ecosystems, Nature, 578, 2020, pp.425–431.
- Amano, Y., Anantharaman, K., Tomas, B.C., Olm, M., Burstein, D., Castell, C.J., Beppu, H., Kazuya, M., Iwatsuki, T., Suzuki, Y. and Banfield, J.F.: Sulfur and hydrogen metabolism linked to CO2 fixation by abundant Nitrospirae in the deep subsurface, 32nd Annual Meeting of Japanese Society for Microbial Ecology & 10th Asian Symposium on Microbial Ecology, Abstract 2018, P2-127.
- Hernsdorf, A., Amano, Y., Miyakawa, K., Ise, K., Suzuki, Y., Anantharaman, K., Probst, A., Burstein, D., Thomas, B. and Banfield, J.: Potential for microbial H2 and metal transformations associated with novel bacteria and archaea in deep terrestrial subsurface sediments, The ISME Journal, 2017, pp.1-15.
- Ino, K., Hernsdorf, A.W., Konno, U., Kouduka, M., Yanagawa, K., Kato, S., Sunamura, M., Hirota, A., Togo, Y.S., Ito, K., Fukuda, A., Iwatsuki, T., Mizuno, T., Komatsu, D.D., Tsunogai, U., Ishimura, T., Amano, Y., Thomas, B.C., Banfield, J.F. and Suzuki, Y.: Ecological and genomic profiling of anaerobic methane-oxidizing archaea in a deep granitic environment, The ISME Journal, 12, 2018, pp.31-47.
- Ise, K., Sasaki, Y., Amano, Y., Iwatsuki, T., Nanjo, I., Asano, T., and Yoshikawa, H.: The succession of bacterial community structure in groundwater from a 250 m gallery in the Horonobe Underground Research Laboratory, Geomicrobiology Journal, 34, 2017, pp.489-499.
- Iwatsuki, T., Munemoto, T., Kubota, M., Hayashida, K., Kato, T.: Characterization of rare earth elements (REEs) associated with suspended particles in deep granitic groundwater and their post-closure behavior from a simulated underground facility, Applied Geochemistry, 82, 2017, pp.134-145.
- Jaffe, A.L., Thomas A.D., He, C., Keren, R., Valentin-Alvarado, L.E., Munk, P., Bouma-Gregson, K., Farag, I.F., Amano, Y., Sachdeva, R., West, P.T. and Banfield, J.F.: Patterns of gene content and co-occurrence constrain the evolutionary path toward animal association in Candidate Phyla Radiation bacteria, mBio, 12, 2021, e00521-21.
- Kimuro, S., Kirishima, A., Nagao, S., Saito, T., Amano, T., Miyakawa, K., Akiyama, D. and Sato, N.: Characterization and thermodynamic study of humic acid in deep groundwater at Horonobe, Hokkaido, Japan, Journal of Nuclear Science and Technology, 55, 2018, pp.503-515.
- Kirishima, A., Kuno, A., Amamiya, H., Kubota, T., Kimuro, A., Amano, Y., Miyakawa, K., Iwatsuki, T., Mizuno, T., Sasaki, T. and Sato, N.: Interaction of rare earth elements and components of the Horonobe deep groundwater, Chemosphere, 168, 2017, pp.798-806.

- Kirishima, A., Terasaki, M., Miyakawa, K., Okamoto, Y.: Deep groundwater physicochemical components affecting actinide migration, Chemosphere, 289, 2022, pp.133181.
- Kozai, N., Ohnuki, T. and Iwatsuki, T.: Characterization of saline groundwater at Horonobe, Hokkaido, Japan by SEC-UV-ICP-MS; Speciation of uranium and iodine, Water Research, 47(4), 2013, pp.1570-1584.
- Méheust, R., Castelle, C.J., Matheus Carnevali, P.B., Farag, I.F., He, C., Chen, L.-X., Amano, Y., Hug. L.A. and Banfield, J.F.: Groundwater Elusimicrobia are metabolically diverse compared to gut microbiome Elusimicrobia and some have a novel nitrogenase paralog, The ISME Journal, 14, 2020, pp.2907-2922.
- Saito, T., Hanamoto, T., Mizuno, T., Iwatsuki, T. and Tanaka, S.: Comparative study of granitic and sedimentary groundwater colloids by flow-field flow fractionation coupled with ICP-MS, Journal of Analitical Atomic Spectrometry, 30, 2015, pp.1229-1236.
- Sasaki, T., Kogami, T., Kobayashi, T., Kirishima, A., Murakami, H., Amano, Y., Mizuno, T., Iwatsuki, T., Sasamoto, H. and Miyakawa, K.: Determination of dissolved natural thorium and uranium in Horonobe and Mizunami Underground Research Laboratory groundwater and its thermodynamic analysis, Journal of Nuclear Science and Technology, 54(3), 2017, pp.373-381.
- Sasamoto, H. and Onda, S.: Preliminary results of natural groundwater colloids in sedimentary rocks of the Horonobe Underground Research Laboratory, Hokkaido, Japan, Multiple Roles of Clays in Radioactive Waste Confinement, Geological Society, London, Special Publications, 482, 2018, 13p.
- Shimizu, S., Ueno, A., Naganuma, T. and Kaneko, K.: Methanosarcina subterranea sp. nov., a methanogenic archaeon isolated from a deep subsurface diatomaceous shale formation of northernmost Japan, International Journal of Systematic and Evolutionary Microbiology, 65, 2015, pp.1167-1171.
- Terashima, M., Endo, T. and Miyakawa, K.: Determination of humic substances in deep groundwater from sedimentary formations by the carbon concentration-based DAX-8 resin isolation technique, Journal of Nuclear Science and Technology, 57, 2020, pp.380-387.
- Ueno, A., Tamazawa, S., Tamamura, S., Murakami, T., Kiyama, T., Inohara, H., Amano, Y., Miyakawa, K., Tamaki, H., Naganuma, T. and Kaneko, K.: Desulfovibrio subterraneus sp. nov., a mesophilic sulfate-reducing deltaproteobacterium isolated from a deep siliceous mudstone formation, International Journal of Systematic and Evolutionary Microbiology, 71, 2021, https://doi.org/10.1099/ijsem.0.004683.

斉藤拓巳, 西柊作, 戸田賀奈子, 宮川和也, 天野由記: 蛍光分光測定と多変量解析を用いた深部地下水中の天然有機物の分類と錯生成能の解明, 日本地球惑 星科学連合2022年大会, 2022.

日本原子力研究開発機構(JAEA):平成30年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業処分システム評価確証技術開発報告書,2017.

日本原子力研究開発機構,原子力環境整備促進・資金管理センター(JAEA・RWMC):平成30年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業

ニアフィールドシステム評価確証技術開発報告書, 2019.

日本原子力研究開発機構,原子力環境整備促進・資金管理センター(JAEA・RWMC):令和2年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 ニアフィールドシステム評価確証技術開発報告書,2021.

日本原子力研究開発機構,原子力環境整備促進・資金管理センター(JAEA・RWMC):令和4年度 高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 ニアフィールドシステム評価確証技術開発報告書,2023.

望月陽人, 笹本 広, 馬場大哉, 生垣加代子: 少量試料に適用可能な簡易分析法に基づく深部地下水中の溶存有機物の特性評価, 陸水学雑誌, 81, 2020, pp.153-166.

望月陽人,小松一弘,笹本 広:堆積岩深部地下水中の溶存有機物の分画ならびに各画分の特性評価,第55回水環境学会年会講演要旨集,1-B-11-1,2021.