

多様なセシウム汚染廃棄物の中間・最終処分安全評価のための 機関連携による多角的研究

(受託者) 国立大学法人 北海道大学

(研究代表者) 小崎完 大学院工学研究院 (エネルギー環境システム部門)

(再委託先) 国立大学法人九州大学、国立大学法人筑波大学、

独立行政法人日本原子力研究開発機構

(研究開発期間) 平成24年度～26年度

1. 研究の背景とねらい

福島第一原子力発電所の事故によって環境に放出された放射性 Cs により広い地域が汚染された。この汚染地域を除染し環境修復を図ることは、国家的・社会的に極めて重要で緊急性の高い課題である一方、広域での除染は大量の Cs 汚染廃棄物をもたらす。この Cs 汚染廃棄物は、土壌、金属、セメント、アスファルトなどに加えて、木材や動植物などの有機物を含む多種多様な混合体であり、今まで研究対象とされてきた放射性廃棄物とは大きく性状が異なる。特に廃棄体への大量の有機物の混入は、微生物分解によるガスの発生や化学的雰囲気の変化に加え、有機物の分解による Cs の遊離化、有機分解生成物である有機酸による Cs 含有鉱物の溶解、微生物活動に伴う二次鉱物生成などを伴う可能性が高いことから、これらを安全かつ合理的に中間貯蔵あるいは最終処分するためには新しい科学的基盤を構築する必要がある。

そこで本研究では、中間貯蔵の安全性に大きな影響を及ぼす廃棄体の性状と安定性ならびに現地での Cs の移行挙動を把握するため、福島県内における現地調査を行った。一方、最終処分までを見据えた安全評価研究として、現地調査において採取した環境試料を用いた室内試験を行い、Cs の鉱物への収脱着挙動に及ぼす鉱物および有機物の影響を評価するとともに、Cs-鉱物-有機物3元系での微視的な挙動を分子動力学法により解析した。また、微生物による Cs の取込・固定化及び土壌からの溶脱の機構を評価した。さらに、Cs 汚染廃棄物の中間貯蔵および最終処分の現実的な安全評価に資することを目的として、これら一連の研究の成果を取りまとめた。

2. 研究成果

2. 1 現地調査

環境中の Cs の動態・分布を把握することを目的として、福島県南相馬市、双葉郡浪江町、大熊町、相馬郡飯舘村などで、表層土壌、土壌コア、植物、リター、鉱物などの試料を採取した。また、 ^{137}Cs の地圏の移行挙動評価のため、福島県内の地下水・湧水中の ^{137}Cs の高感度分析 (検出限界値: 0.008Bq/kg) を行った結果、すべての試料で検出限界以下であった。地下水流動を評価するための行った地下水年代測定では、阿武隈川流域の地下水盆の浅層地下水の滞留時間は涵養源に近い地点で4年のオーダー、約15kmおよび30km下流では20年および30年のオーダーという結果が得られた。さらに、 ^{137}Cs で汚染された土壌及び汚染廃棄物が集積した土壌環境中のガスの移行過程を天然放射性核種ラドンの動きを通して明らかにすることを目的とし、福島大学構内の温帯落葉樹林にてラドンガスのモニタリングを行った。ラドンガスの移行挙動は低気圧の通過などの気象条件の影響を強く受けるという結果が得られ、土壌中のガスの移行をラドンガスモニタリングによって評価する際には留意する必要があることを明らかにした。

2. 2 土壤中 Cs の収脱着挙動への有機物影響調査

(1) 鉱物影響調査

現地調査で採集した土壌を風乾した後、2mm メッシュで粗粒子を除外し、分析に用いた。顕微分析の結果、アルミノケイ酸塩と SiO₂ が大部分を占め、また、サブミクロンサイズの粒子は、層状アルミノケイ酸塩である smectite や chlorite、vermiculite が主要であることが分かった。表層土壌を段階的な濾過によってサイズ分画した後の放射能測定結果(図1)に見られるように、重量は無視できるほどの存在し

かないサブミクロン粒子が放射能に対して大きな寄与をもっている。水簸で得られるサブミクロン試料に対して選択的の化学抽出を行った結果(図2)、Cs の 8 割以上が残渣(F6)に残り、Cs が強い結合を形成している事が分かった。これらの微粒子は、SEM-EDS 元素マップに

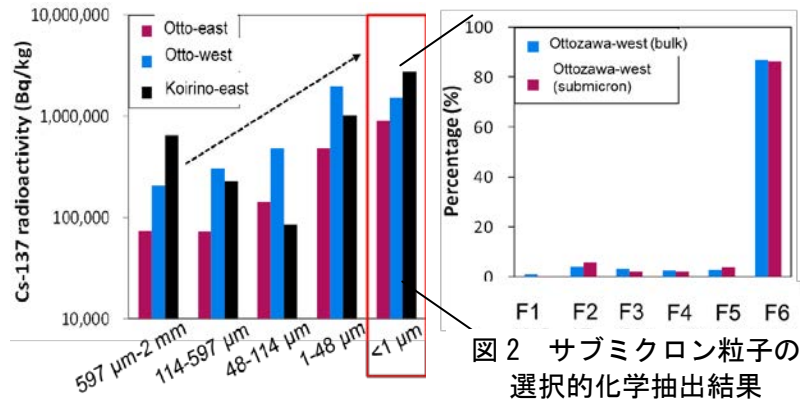


図1 粒径ごとの Cs 濃度

図2 サブミクロン粒子の選択的の化学抽出結果

F1:水溶性、F2:イオン交換性、F3:炭酸塩、F4:金属酸化物、F5:有機物、F6:残渣

よる分析をした結果、Si, Al, Fe を主要な元素としたアルミノケイ酸塩、パーミキュライト、黒雲母、緑泥石か黒雲母の微粒子であることが示された(図3)。サブミクロンサイズの粒子は、比表面積が大きい上に、Cs を強固に収着するフレイドエッジサイトの存在が考えられることから、Cs の環境移行プロセスにおけるこれらの粘土粒子の寄与が高いことが示唆された。

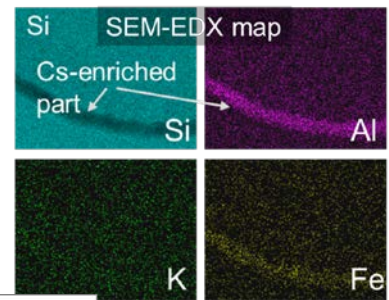


図3 微粒子の組成

(2) 有機物影響調査

汚染落ち葉-汚染土壌 - 非汚染土壌を図4に示すようにカラムに充填し、連続溶出試験を行った。試験後のカラム及び流出液中の¹³⁷Cs の存在割合を図4に示す。落ち葉、土壌に付着した¹³⁷Cs は、土壌試料を通過せず、土壌からの溶出液中のCs 濃度は検出限界以下であった。このことから、有機物を多く含む水中でも¹³⁷Cs は土壌に捕捉されること、

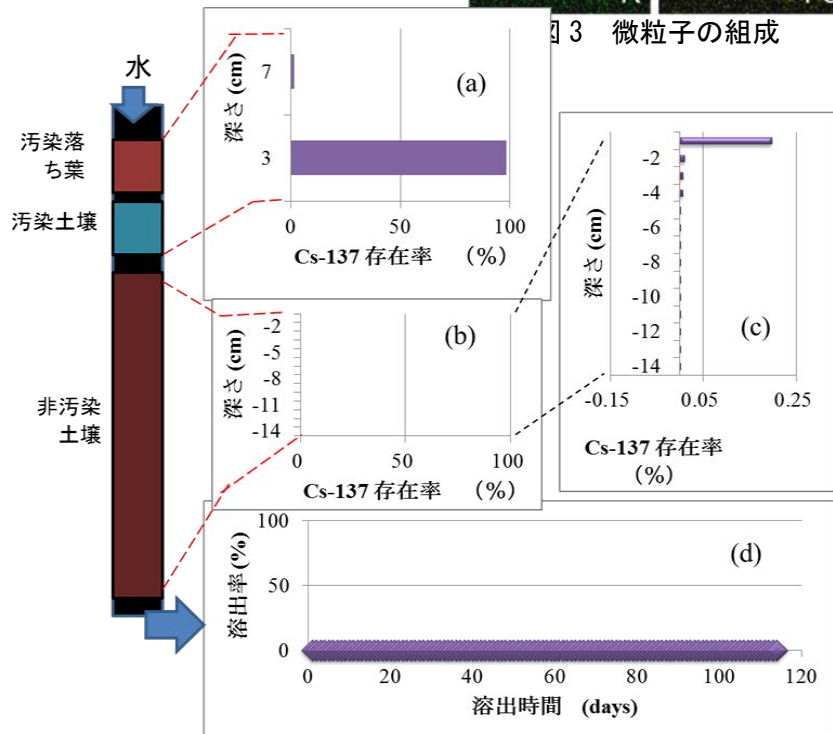


図4 連続カラム溶出試験結果
(試験後のカラム及び流出液中の¹³⁷Cs の存在割合)

すなわち、有機物による鉱物上のCs吸着サイトへの阻害よりも¹³⁷Csの鉱物への取り込みのほうが優勢であることが示された。この溶出試験の結果は、福島県内の地下水・湧水中の¹³⁷Csが検出限界以下（検出限界値：0.008Bq/kg）であったことと矛盾しない。このことより多量の有機物を含む落ち葉やリターおよび不飽和層に降下した¹³⁷Csは不飽和層から地下水面に達しないものと考えられた。

2. 3 Csの収脱着挙動に及ぼす微生物影響調査

(1) 微生物のCs取込機構の解明

放射性Csを濃集することで知られる糸状菌と同じ真菌で単細胞である酵母をモデル微生物として放射性Cs及び安定Csの取り込み実験を行った。実験は、シャーレ内に形成した¹³⁷Csを含む寒天培地上にニトロセルロース膜をセットして、その上に酵母を植菌し、菌の増殖を行った後、増殖した菌をフィルターとともに回収してオートラジオグラフにより分析した。また、

酵母への放射性Csの濃集に及ぼす鉱物の影響を調べるため、ゼオライト、マイカ、スメクタイト等の18種類の鉱物を1g/L、5g/L及び10g/L添加した。

鉱物の代表としてクリノプチオライトを添加した場合の結果を図5に示す。オートラジオグラフ像(図5下段)で¹³⁷Csの存在を示す黒色部分は、微生物細胞の存在する部分(図5上段)と一致

しており、また、鉱物添加量の多いもの程黒色度が低下していることから、鉱物の添加により酵母への¹³⁷Csの濃集が低下したことがわかる。鉱物の種類により、酵母への¹³⁷Cs濃集への影響の度合いが異なり、図6に示すように¹³⁷Csの濃集の序列は、

スメクタイト、イライト、雲母>バーミキュライト>ゼオライト

となった。酵母への濃集の序列は、分配係数の逆数の序列とほぼ一致したことから、酵母への¹³⁷Csの濃集は培地中に添加した鉱物と競合関係にあることが明らかとなった。

(2) 放射性Cs溶脱に関与する根圏微生物種及びその産生物の解明

放射性Cs濃度が非常に高いという報告があるコシアブラ *Eleutherococcus sciadophylloides* (Franch. et Sav)を対象とし、根圏微生物の中でも根の内部に生息する内生細菌に焦点をあてて植物と根圏微生物の相互作用を介した放射性Csの吸収メカニズムの解明を目的とした実験を実施した。2013年9月に福島大学構内で採取したコシアブラ根部を表面滅菌処理に供した後、メスで10mmの大きさに切断し、597切片を1% NBA 培地、596切片を1% TSB 培地に静置し23℃暗所にて20日培養した。培養後、出現した463菌株について純粋分離を行った(図7)。463菌株に対し、培地の不溶態FeまたはAlを溶解するsiderophore産生能の有無を調査した(図8)結果、107菌株(23%)

Clinoptilolite

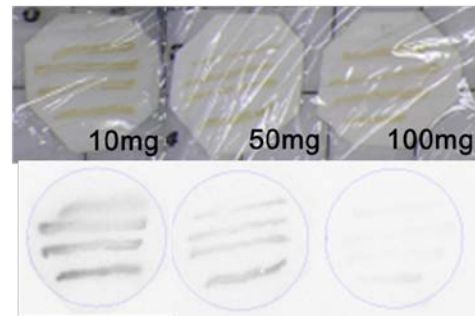


図5 鉱物を添加した寒天培地上で培養した酵母のオートラジオグラフ

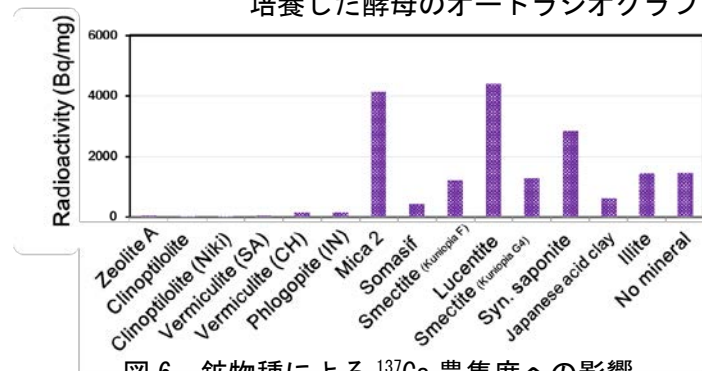


図6 鉱物種による¹³⁷Cs濃集度への影響



図7 コシアブラの根から分離した内生細菌

が siderophore を産生することがわかった。このうち高い活性を示した 8 菌株を用い、有機物分解土壌からの ^{137}Cs 、Fe、Al、Mn の溶脱試験を行った。試験に供した 8 菌株のうち、n142、n164、n1101、t142 の産生物に、高い ^{137}Cs 、Fe、Al、Mn の溶脱能及び顕著な pH の低下が確認され、また、 ^{137}Cs と Fe の溶脱量と ^{137}Cs と Al の溶脱量の間には優位な正の相関が確認された。有機物分解土壌からの ^{137}Cs の溶脱は、Fe と Al の溶脱とともに生じており、

pH の低下は大きく寄与していな

いことが明らかになった。一方、同土壌からの Mn の溶脱は Fe と Al の溶脱及び pH の低下とともに生じている。このことから、 ^{137}Cs 及び Mn を高濃度で蓄積するコシアブラの根に生息する内生細菌は、Fe や Al と錯体形成する siderophore を産生し、根圏土壌における ^{137}Cs 及び Mn の溶脱を促進させることで、本植物における ^{137}Cs 及び Mn 吸収促進に寄与する可能性が示唆された。

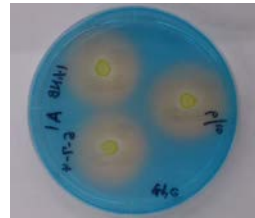


図 8 分離菌株の siderophore 産生能の解析

Al や Fe とキレートする化合物 Siderophore を産生すると培地の色が黄色に変化する。

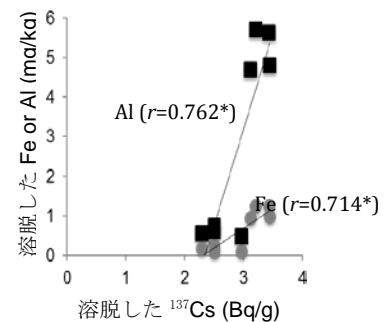


図 10 ^{137}Cs の溶脱量と Fe または Al の溶脱量との関係

3. まとめ

本研究の現地調査では、土壌中の Cs の移行が極めて遅く、研究期間の 3 年の間であっても地表面に留まっていること、また地下水への移行がないこと、リターなどからの溶出 Cs は土壌で固定されること、この固定には特にサブミクロンサイズの層状珪酸塩鉱物の寄与が大きいこと、粘土鉱物の構造に応じて微生物への放射性 Cs の移行が阻害されることが明らかになった。このことより、環境中に放出された放射性 Cs の移行性は、サブミクロンサイズの層状珪酸塩鉱物を主とする粘土鉱物への収着によって抑制されており、今後の除染活動によって発生する放射性 Cs 含有廃棄物の構成はこれまでと大きく変化しないと考えられる。

分子動力学計算では、粘土鉱物のエッジに特異的に吸着される現象をシミュレートすることで特異的に収着した Cs は水への再溶解などはほとんどなく、鉱物上で安定であること、粘土鉱物に特異収着した Cs への有機物の影響は、粘土鉱物表面の変質などによる可能性が多く、有機物そのものによる廃棄体への影響は顕著でないことが示唆された。

一方、微生物影響については、微生物が鉱物と競合して放射性 Cs を取り込む可能性があること、微生物への取り込みは Cs 濃度及び共存イオン濃度の影響を受けること、一部の根圏微生物は、Cs を固定化した粘土鉱物を代謝生成物によって溶解することが示された。また、土壌カラム実験から放射性 Cs の一部が微生物活性により非常に移動しやすい化学状態に変化した可能性が示唆されたことから、こうした微生物が廃棄体内で活発に代謝を行った場合においては、粘土鉱物による固定化の利点が十分に働かない可能性が示唆された。

処分施設の安全評価シナリオとして地下水移行シナリオを考慮する場合、放射性 Cs の移行は、有機物を多く含む系においても粘土鉱物等への収着によって遅延されることが期待される。しかし、根圏微生物による代謝生成物や、微生物活性により、放射性 Cs の移行性が変化する可能性が示唆されており、今後の課題の一つとして、廃棄体内で微生物が代謝を行う環境を長期的に考慮した上で、その影響の程度を把握する必要があると考えられる。