

審査の結果の要旨

氏名 竹中陽子

高レベル放射性廃棄物は地下 300 メートル以深に埋設処分される。このような地下深部にも地表付近と同様に膨大な数の微生物が存在する。微生物と放射性核種との相互作用に関する基礎的知見を得ることは、環境中での放射性核種の挙動を正確に評価するために重要である。本論文は、放射性廃棄物に含まれる元素のうち Am(III), Cm(III) およびそれと類似した化学的性質を有する Eu(III) の微生物細胞への吸着におけるイオン強度, pH および金属濃度の影響を評価し、さらに基本的細胞表層特性と元素の吸着挙動との関連を解明することを目的としている。

本論文は5章より構成されている。

第1章では研究の背景と目的が述べられている。

第2章ではイオン強度が金属の吸着に及ぼす影響についての研究結果が述べられている。ここでは $^{244}\text{Cm(III)}$ および $^{152}\text{Eu(III)}$ の好塩菌 *Halomonas elongata* に対する吸着挙動について、幅広いイオン強度で実験を行った後、吸着メカニズムの解明に向けた研究を行っている。*Halomonas elongata* は 0.1~5.2 M NaCl というイオン強度範囲に適応でき、急激な浸透圧変化にも強い耐性を示すものである。微生物への金属吸着におけるイオン強度の影響を調べるために、微生物細胞への $^{244}\text{Cm(III)}$ および $^{152}\text{Eu(III)}$ 吸着実験による分配係数測定、溶媒抽出法による細胞表層の疎水性測定、酸塩基滴定法による細胞表層の官能基発現状況解析、電気泳動法による細胞表層高分子発現状況解析（リポ多糖、糖タンパク質、総タンパク質）、PCR 法等による細胞表層特性の変化をもたらす浸透圧ストレス応答遺伝子の存在確認を行っている。吸着実験の結果、*Halomonas elongata* は吸着溶液中の NaCl 濃度（生育溶液と同じ）によらず、Cm(III) と Eu(III) への高い親和性を示し、また 2.6 M より高い NaCl 濃度で生育した細胞への Cm(III) と Eu(III) の分配には大きな差が見られるという結果が得られている。疎水性測定の結果、高い NaCl 濃度溶液中で生育した細胞ほど高い親水性を示し、親水性の度合いの増大は水和金属イオンとの相互作用の増加につながると考えている。酸塩基滴定法による細胞表層の官能基発現状況測定結果から、細胞上にはカルボキシル基、リン酸基、アミノ基が存在すると考えている。高い NaCl 濃度下 (5.1 M) で生育した細胞では、pKa 値 7 付近 [リン酸基 (およびスルホヒドリル基)] の官能基が多く発現することが示されている。電気泳動法による細胞表層高分子発現状況測定の結果から、細胞表

層のリポ多糖は、細胞生育溶液中のイオン強度により発現量が変化することが示されている。リポ多糖およびタンパク質電気泳動の結果より、Cm(III)およびEu(III)の主要な吸着部位は糖鎖であることが示唆されている。PCR法他による細胞表層特性の変化をもたらす浸透圧ストレス応答遺伝子の存在確認の結果、RpoS遺伝子が表層特性の変化において重要な役割を果たしている可能性が高いことを示している。

これらの結果から、イオン強度の変化により *Halomonas elongata* の細胞表層の特性（疎水性、官能基発現、高分子発現）は大きく変化し、この変化が吸着挙動に影響すると結論付けている。

第3章ではpHおよび金属濃度が金属の吸着に及ぼす影響が述べられている。ここではグラム陰性の土壌細菌 *Pseudomonas fluorescens* Migula (ATCC 55241) へのAm(III), Eu(III), Ca(II), およびCu(II)について、バッチ法により、異なるイオン強度、pH、および金属濃度での吸着実験を行っている。ならびに、吸着メカニズムの解明に向けて、細胞漏出有機物のTOC（全有機体炭素）測定、酸塩基滴定、ATR（全反射測定）法による細胞への金属の吸着状態の解析を行っている。

細胞へのEu(III), Ca(II), Cu(II), およびAm(III)の吸着実験では、Ca(II)をのぞいてイオン濃度が上昇するにつれて吸着量が増大するという結果が示されている。また、Eu(III)の *P. fluorescens* への吸着量は平衡Eu(III)濃度が増加するにしたがい増加すること、およびEu(III)濃度の低い領域ではすべての塩濃度でpHの減少に従ってEu(III)の吸着量が増加するpH依存性があるという結果が得られている。この結果は、pH変化によりEu(III)への高い親和性を有する構造が生じたか、pHに依存した何らかの競合的なプロセスが存在するためとしている。TOCによる漏出有機物の測定結果から、本研究で観察された低濃度のEu(III)の吸着におけるpH依存性は、細胞からの漏出有機物の影響ではなく、細胞表面そのものとEu(III)との相互作用によってもたらされる可能性が高いことが示されている。また、このpH依存性については細胞表面の官能基の中でもカルボキシル基が果たす役割が大きいことも示している。

このような結果から、微生物細胞と金属イオンの相互作用においては、pH、イオン強度、金属濃度の違いによって吸着メカニズムにも違いが生じること、及び環境中における微生物と金属との相互作用を考えるにあたっては、環境条件を詳細に調査してその条件における微生物の影響を検討する必要があることを結論付けている。

第4章は結論であり、第5章は今後の展開が述べられている。

以上要するに、本論分は微生物への金属の吸着について、イオン強度、pH および金属濃度、他イオンの影響の観点から実験的研究を行い、吸着メカニズムについて多くの貴重な知見を得たものである。これらは、システム量子工学、特に高レベル放射性廃棄物処分安全評価に寄与するところが少なくない。

よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。