

TRU廃棄物処分システムに与える 微生物影響について

(研 究 報 告)

2005年9月

核燃料サイクル開発機構
東海事業所

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村村松4番地49

核燃料サイクル開発機構

技術展開部 技術協力課

電話：029-282-1122（代表）

ファックス：029-282-7980

電子メール：jserv@jnc.go.jp

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:

Technical Cooperation Section,

Technology Management Division,

Japan Nuclear Cycle Development Institute

4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1184, Japan

© 核燃料サイクル開発機構

(Japan Nuclear Cycle Development Institute)

2005

TRU 廃棄物処分システムに与える微生物影響について
(研究報告)

加藤 卓*, 中西 博*, 稲垣 学*, 本田 明*, 塚本 政樹**

要 旨

TRU 廃棄物の地層処分が行われる数百 m 以深の地下環境は嫌気状態であり、かつセメント系材料の影響で長期間、pH 12.5 以上の高アルカリ環境が保持されると考えられる。従来はこのような嫌気性高アルカリ環境では、微生物は活動しないと考えられてきた。しかし、近年の研究では、上記のような処分環境においても微生物が活動する可能性が指摘されている。そこで、TRU 廃棄物地層処分施設における環境条件を微生物学的環境条件の観点から検討することにより、活動の可能性のある微生物を抽出した。これらの微生物の代謝システムに着目し、TRU 廃棄物の地層処分環境における微生物活動が処分システムに与える影響について検討を行った。

微生物活動が TRU 廃棄物の地層処分システムに与える影響を評価した結果、微生物活動による pH 変化、酸化還元反応、セメント系材料変質、金属腐食、アスファルト変質、ベントナイト変質、空隙閉塞が処分システムの安全性を損なうことは小さいと考えられた。一方、微生物活動による核種の溶解度や収着特性に影響を及ぼす錯体形成及びコロイド形成（核種を取込んだ微生物自身のコロイドとしての挙動を含む）、並びにガス発生（放射性ガス状化学種生成を含む）については、当該微生物活動の不確実性が大きいことから今後の課題とした。

*：東海事業所 環境保全・研究開発センター 処分研究部 処分材料研究グループ

**：財団法人 電力中央研究所

An Estimation of Microorganisms Impacts on Geological Disposal System for TRU Waste
(Research Document)

Takashi Kato*, Hiroshi Nakanishi*,
Manabu Inagaki*, Akira Honda*, Masaki Tsukamoto**

Abstract

Some of TRU waste will be disposal in underground of several hundred meters depth. The environment condition of such deep underground is considered to be unaerobic. It is also thought that the high alkaline environment of exceeding pH 12.5 is considered to be maintained for long period of time in the repository for TRU waste because of the use of cementitious material. It was believed that the microorganisms cannot be active in such of anaerobic high alkaline environment mentioned above. However, the recent researches have suggested the possibility of the activities of microorganisms in the previous environment. The microorganisms are not always considered to be active in the geological disposal facilities for TRU waste. The microorganisms become active in both the place and period in which the preferable environmental conditions for the microorganisms are formed. Therefore, the microorganisms which are possible to be active in the repository for TRU waste were extracted. In addition, the impacts of microbial activities on geological disposal system for TRU waste were estimated with considering the metabolism system of the extracted microorganisms.

The analysis results suggested followings.

Negative impacts of microbial activities on the safety of geological disposal system for TRU waste through the processes of pH evolution, redox reaction, alteration of both cementitious material and bentonite buffer, metal corrosion, clogging of pore space by biofilm were estimated to be negligible. On the other hand, the impacts of complex formation between the metabolic products and radioactive nuclides, the colloid formation (including the colloidal behavior of microbes) and gas production (including the evolution of radioactive gas) were identified as the subjects of future works because of the lack of information.

* : Materials Research Group, Waste Isolation Research Division, Waste Management and Fuel Cycle Research Center, Tokai Works, Japan Nuclear Cycle Development Institute

** : Nuclear Power Generation Technology, Nuclear Technology Research Laboratory, Central Research Institute of Electric Power Industry

目 次

1.	はじめに	1
2.	一般的な地下深部における微生物活動の概観	2
3.	TRU 廃棄物の地層処分環境における微生物活動の概観	6
3.1	地下深部の環境特性	6
3.2	微生物影響評価の観点から見た TRU 廃棄物の地層処分の 特徴	7
3.3	TRU 廃棄物の地層処分環境における個別の微生物活動 の概観	8
4.	TRU 廃棄物の地層処分環境において考慮すべき微生物影響	14
4.1	核種の溶解度や収着特性に与える影響	14
4.2	人工バリア及び天然バリアに与える影響	15
4.3	その他の影響	16
5.	TRU 廃棄物の地層処分環境における微生物活動の評価	17
5.1	処分環境から見た微生物活動の評価（水分活性と 微生物活動）	17
5.2	個別の微生物活動の評価	19
6.	TRU 廃棄物の地層処分環境における微生物活動が処分 システムに与える影響の評価	25
6.1	核種の溶解度や収着特性に与える影響	25
6.2	人工バリア及び天然バリアに与える影響	27
6.3	その他の影響	29
6.4	TRU 廃棄物の地層処分システムに与える微生物影響の まとめ	30
7.	おわりに	30
8.	謝 辞	30
9.	参考文献	31
付録 1	NEON への微生物反応の組み込み	付-1(1)
付録 2	アスファルトの微生物分解により発生する CO ₂ ガスの セメント系材料への影響に関する検討	付-2(1)

表 目 次

表 1-1	微生物活動による影響	2
表 2-1	栄養形式による微生物の分類	4
表 2-2	呼吸形式の違いによる獲得エネルギー	4
表 2-3	海底下の地下環境における酸化還元分帯	5
表 3-1	地下水組成	7
表 3-2	TRU 廃棄物の分類及び廃棄物に含有される微生物活動の基質	8
表 3-3	処分施設における基質と微生物活動	9
表 4-1	TRU 廃棄物の地層処分環境における微生物影響	17
表 5-1	微生物活動の評価に用いた基質等の物量	20
表 5-2	セメント混和剤からの二酸化炭素発生量	21
表 6-1	有機基質からの二酸化炭素生成量	26
表 6-2	生成二酸化炭素による間隙水組成の変化	28

図 目 次

図 2-1	微生物活動から見た地表付近から地下深部における 微生物活動の概観	5
図 3-1	代表的な高性能 AE 減水剤の推定化学構造	10
図 5-1	硝酸ナトリウム濃度と水分活性の関係	19
図 6-1	グループ 3 の Region III 相当条件での核種移行解析	28

1. はじめに

TRU 廃棄物の地層処分が行われるような数百 m 以深の地下環境は、嫌気状態であり、かつ多用されるセメント系材料の影響により長期間に渡り、pH 12.5 以上の高いアルカリ性環境が継続されると考えられる。従来は、このような嫌気性の高アルカリ性環境では、微生物はほとんど存在しないと考えられてきた。しかし、近年の研究により、中性から弱アルカリ性の嫌気性環境である地下数百 m 以深においても多種多様な微生物が確認されている（笹本ほか，1996，村上ほか，2003）。また、好気性の高アルカリ性環境で活性を有する微生物（掘越・秋葉，1993）や pH8.5～12.5 の高アルカリ性環境でペプトンなどの易分解性の有機物を利用する絶対嫌気性高度好アルカリ性微生物 *Alkaliphilus transvaalensis* が報告されている（Takai et al., 2001）。さらに、中性付近で成育する微生物をアルカリ性環境に馴化させることで、pH12.5 の高アルカリ性環境で成育する微生物を取得した例も報告されている（藤原・川嶋，2002）。したがって、TRU 廃棄物の地層処分環境においても微生物活動の生起を否定することはできない。

現在、国内外において微生物が放射性廃棄物の処分システムに及ぼす影響に関する調査あるいは研究が実施されている。これらの成果に基づき、TRU 廃棄物の地層処分システムに及ぼす微生物活動の影響は、表 1-1 のように分類・整理されている（共同作業チーム，2000）。しかしながら、これらすべての影響が TRU 廃棄物の処分施設において常時、すべての場所で顕在化するわけではなく、微生物が活動する環境条件が整った場所と期間に顕在化することになる。

地層処分環境における微生物活動への影響因子は地下深部の本来の環境特性（微生物種、酸化還元状態、温度、圧力等）と外来要因（廃棄物特性、処分施設の構造、建設・操業により持ち込まれる有機物等）から構成され、これらが微生物活動を介して処分システムの挙動に影響を与える。一方、処分環境中で活動する微生物の種類は処分サイトの地質環境に強く依存し、さらに、外来要因もサイト特性に応じて変化すると考えられる。したがって、具体的な環境条件を設定していない現時点では、上記の影響因子を決定し、評価を行うことは困難である。国内外においては、微生物影響を定量的に評価することを目的として、ガス発生速度や地球化学的条件を評価するためのモデル化研究（Arter et al., 1991 ; Agg, 1993 ; Yim et al., 1996 ; Humphreys et al., 1995 ; Wang and Papenguth, 2001 ; 菅野ほか，2004）がなされてきている。しかし、前述のように影響因子の不確定性のために、現時点では入力パラメータ等を定め難い状況にある。そこで、本報告では、微生物活動に係る環境条件の推定等に基づく定性的な影響の評価と保守的な仮定のもとで基質の物量に基づく影響の評価を実施した。

表 1-1 微生物活動による影響

	プロセス	現象	影響度
溶解度や収着特性に与える影響	錯体形成	・錯化剤の生成	N
	コロイド形成	・代謝産物によるコロイドの生成 ・微生物のコロイドとしての挙動	
	pH の変化	・酸生成（有機系/無機系） ・錯化剤の生成	N, P
	酸化還元反応	・酸素の消費 ・自然環境での酸化還元反応 ・核種の還元	
	核種の収着/取り込み	・細胞壁・膜への核種収着 ・細胞内部への核種取り込み ・生物膜による鉱物表面被覆	
人工バリアに与える影響（直接的影響）	セメント系材料変質	・生成した酸による変質	N
	金属腐食	・直接的な金属腐食 ・生成物による金属腐食	
	アスファルト変質	・生物学的変質	
	ベントナイト変質	・生成物による変質	
人工/天然バリアに与える影響（間接的影響）	空隙閉塞	・生物膜による空隙閉塞 ・生成物による空隙閉塞	P
その他	ガス発生	・生物的ガス発生	N
		・生物的ガス消費	P

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に対する優位に働く可能性がある

2. 一般的な地下深部における微生物活動の概観

本章では、TRU 廃棄物の地層処分環境における微生物活動を理解するために、一般的な地下深部における微生物活動の全体像を把握することとした。本章で把握した地下深部の微生物活動に基づき、3 章（TRU 廃棄物の地層処分環境における微生物活動の概観）で TRU 廃棄物の地層処分環境における微生物活動の全体像の把握を行った。

微生物は活動に必要とするエネルギー源、炭素源、窒素源、電子供与体及び電子受容体により表 2-1 に示すように分類される。地下深部の環境で活動できる微生物は光エネルギーを利用できず、かつ嫌気状態であることから、表 2-1 中の化学合成独立栄養嫌気性微生物と化学合成従属栄養嫌気性微生物である。ただし、これらの微生物も地下深部で高い活性を維持しているわけではない。

地表では太陽光エネルギーを利用し光合成独立栄養微生物（光合成細菌や藻類等）が光合成により二酸化炭素から糖類等の有機物を生産している。地表及び地表から数 m の地下環境では、光合成独立栄養微生物や植物が生産した光合成生産物（糖類等）を従属栄養微生物（好気性/嫌気性）が利用して活発なエネルギー代謝を行い、微生物活動を行っている。一方、地表付近で生産された光合成生産物（糖類等）が希薄な地下深部では従属栄養微生物の活動は有機基質により制限を受けると考えられる。さ

らに酸素のほとんどない地下深部環境では嫌気呼吸によりエネルギーを獲得することになるが、嫌気呼吸により獲得できるエネルギー量は好気呼吸に比べ極端に少ない。微生物は好気呼吸では、酸素を最終電子受容体として、効率的な電子伝達系により高いエネルギーを獲得（ATP*合成）している。たとえば、好気条件下では、グルコース 1 モルを完全酸化すると理論上 38 モルの ATP が合成される。しかし、嫌気状態では 1 モルのグルコースから 2 モルの ATP 合成しか起こらない。こうしたことから、外的要因による環境変化を受けない場合（光合成生産物である易利用性有機物等の栄養源の持込等）、地下数百 m 以深の環境における微生物活動は非常に限定的なものであると考えられる。陸域地下の微生物調査（Pedersen and Ekendahl, 1990 ; Hazen et al., 1991 ; Pedersen et al., 1996a ; 1996b）や ODP (Ocean Drilling Project) の成果（Cragg et al., 1992 ; 1995 ; Parkes et al., 1994 ; Wellsbury et al., 1997）から、全地球上の潜在微生物量の 90% 以上が陸域地下及び海底の微生物圏に存在するが、炭素循環量から推定される微生物生産量は地球全体の 0.2% 以下であり、微生物量に比べその活動が極端に低いと考えられている。また、海底下の微生物に関する研究（Inagaki et al., 2001 ; 2002a ; 2002b ; D'Hondt et al., 2002）においても、地下深部の微生物の多くは活発な代謝活性を有する微生物ではなく、休眠状態であると考えられている。

地下深部における微生物活動を把握するためには、地下深部における微生物の量及び基質代謝系を理解することが重要となる。有機基質がほとんど存在しない地下深部では、熱水や火山活動等の地下活動により供給される鉄、硫黄等の無機物を電子受容体とするエネルギー代謝（嫌気呼吸）が行われていると考えられる。これまでに、陸域地下深部からは、絶対嫌気性従属栄養性の鉄及びマンガン還元好熱菌（Boone et al., 1995）、深部花崗岩の地下水中からメタン生成菌（Kotelnikova et al., 1998）、ウラン鉱床の地下水から硫酸塩還元菌（Chang et al., 2001）、硝酸塩還元菌（長沼ほか, 2002）などが報告されている。こうしたことから、硝酸塩還元（脱窒）、鉄／マンガン還元、硫酸塩還元、メタン生成等が地下深部における重要な微生物活動と考えられる。しかし、嫌気呼吸によるエネルギー代謝では、硝酸塩還元と鉄／マンガン還元以外のエネルギー代謝は獲得できるエネルギーが酸素呼吸に比べて著しく低く（表 2-2）、硝酸塩還元と鉄／マンガン還元以外のエネルギー代謝を利用した微生物が活発に活動するとは考え難く、栄養源、電子供与体及び電子受容体が豊富に存在する特殊な地層環境を除けば、地下環境におけるこれらの微生物活動は極めて低いと考えられる。

海底下の地下環境における還元状態は、深度方向に酸化帯、硝酸塩還元帯、酸化鉄還元帯、硫酸塩還元帯、メタン生成帯の分帯が存在することが明らかとなっており（表 2-3）（資源エネルギー庁, 2003）、環境中の還元状態において支配的に活動する微生物種が異なっている。こうしたことから、陸域地下の深部環境においても深度が大きくなり酸化還元電位が低下するのに伴い、支配的に活動する微生物が硝酸塩還元菌（以下、「脱窒菌」という。）、鉄／マンガン還元菌、硫酸塩還元菌（以下、「SRB」という。）、メタン生成菌の順に変遷すると考えられる。

* ATP: アデノシン三リン酸の略で、すべての生物反応におけるエネルギー源となる。

以上述べてきた地表から地下深部における微生物活動の概観を図 2-1 に示す。

表 2-1 栄養形式による微生物の分類

エネルギー源	炭素源	窒素源	電子供与体	電子受容体		代表的微生物	
光合成微生物	CO ₂ (独立栄養)	N ₂ 利用可	H ₂ O	O ₂	好気	藍藻	
		N化合物	H ₂ S	有機酸		嫌気	緑色硫黄細菌 紅色硫黄細菌
	有機物 (従属栄養)		H ₂ , 有機物	有機物	紅色非硫黄細菌		
	化学合成微生物	CO ₂ (独立栄養)	N化合物	NH ⁴⁺ , NO ²⁻	O ₂	好気	硝酸酸化細菌
H ₂				水素細菌			
Fe ²⁺				鉄酸化細菌			
S, S ₂ O ₃ ²⁻				NO ₃ ⁻	嫌気	硫黄酸化細菌 硫黄還元細菌	
有機物 (従属栄養)		N ₂ 利用可	N化合物	有機物	O ₂	好気	窒素固定細菌
							大腸菌
		N化合物	有機物	有機物	有機物(糖)	嫌気	<i>Clostridium</i> 属
					NO ₃ ⁻		硝酸塩還元細菌
					Fe ³⁺ , MnO ₂		Fe/Mn還元細菌
					SO ₄ ²⁻		硫酸塩還元細菌
有機物		N化合物	有機酸, H ₂	CO ₂	メタン生成細菌		
				有機物	有機物	有機物資化性菌	

表 2-2 呼吸形式の違いによる獲得エネルギー

呼吸形式	反応式	獲得エネルギー (kcal/mol)	電子受容体
硝酸塩呼吸 (脱窒菌)	$C_6H_{12}O_6 + 4.8NO_3^- + 4.8H^+ \rightarrow 6CO_2 + 2.4N_2 + 8.4H_2O$	-638.0	硝酸
硫酸塩呼吸 (硫酸塩還元菌)	$CH_3COOH + 2H^+ + SO_4^{2-} \rightarrow H_2S + 2CO_2 + 2H_2O$	-36.4	硫酸
	$4H_2 + 2H^+ + SO_4^{2-} \rightarrow H_2S + 4H_2O$	-5.7	
炭酸塩呼吸 (メタン生成菌)	$CO_2 + 4H_2 \rightarrow CH_4 + 2H_2O$	-32.7	水素
	$4HCOOH \rightarrow CH_4 + 3CO_2 + 2H_2O$	-34.7	ギ酸
	$CH_3COOH \rightarrow CH_4 + 2H_2O$	-8.6	酢酸
金属還元	$MnO_2 + 4H^+ \rightarrow Mn^{2+} + 2H_2O$	-441.5	マンガン
酸素呼吸	$C_6H_{12}O_6 + 6O_2 \rightarrow 6CO_2 + 6H_2O$	-686.0	酸素

表 2-3 海底下の地下環境における酸化還元分帯（資源エネルギー庁，2003）

深 度	酸化還元分帯	支配的微生物	酸化還元電位
—		・底生生物	
0 ～数 cm/数 10m	酸化帯	・好気性微生物	
	硝酸塩還元帯	・硝酸塩還元微生物 ・Mn 還元微生物	Eh = -50～ -200
数 cm/数 10m ～ 数 10m/数 100m	酸化鉄還元帯	・鉄還元微生物	Eh = -150～
	硫酸塩還元帯	・硫酸塩還元微生物	-400
数 10m/数 100m～	メタン生成帯	・メタン生成微生物	Eh = -200～

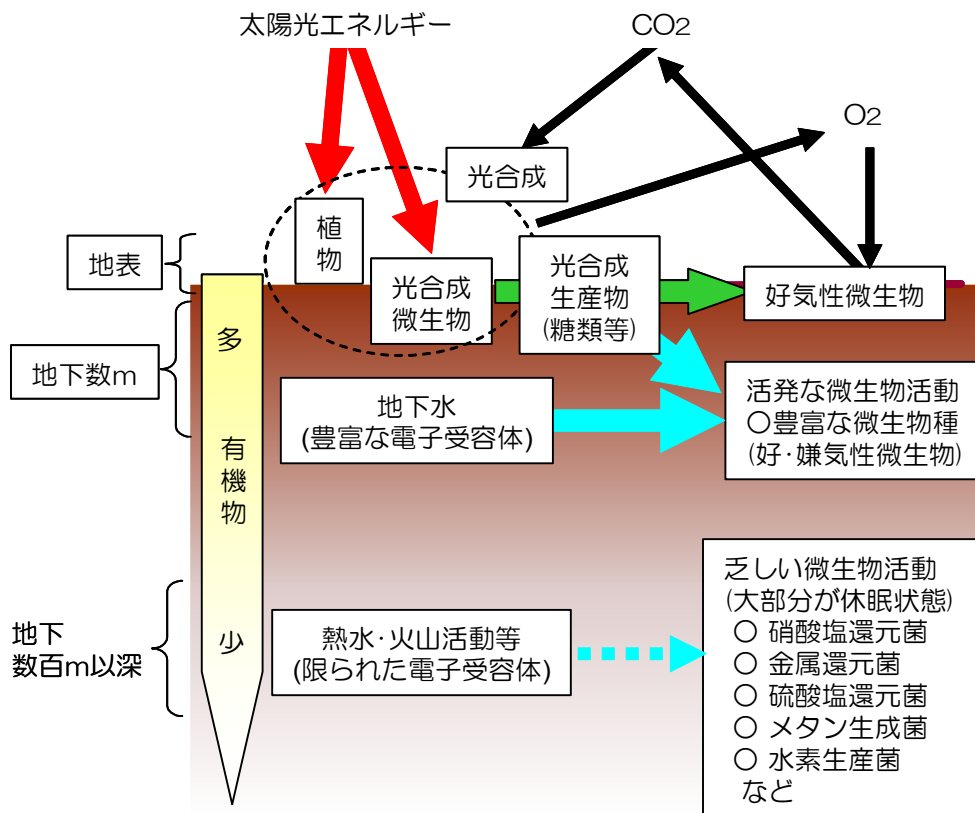


図 2-1 微生物活動から見た地表付近から地下深部における微生物活動の概観

3. TRU 廃棄物の地層処分環境における微生物活動の概観

3.1 地下深部の環境特性

TRU 廃棄物の地層処分システムに与える微生物の影響を評価するためには、TRU 廃棄物の地層処分環境における微生物活動を理解することが重要となる。そこでまず、微生物活動の観点から TRU 廃棄物の地層処分施設が設置される深部地下の環境について検討する。

① 微生物相（種類，菌量）

活動する微生物としては、表 2-3 に示した一般的な地下深部環境で確認されている微生物（硝酸塩還元菌，Fe/Mn 還元菌，SRB，メタン生産菌）及び本来は休眠状態であるが廃棄物に含まれる有機物等により活性化される微生物（例えば，有機基質分解菌等）が考えられる。

② 栄養条件（母岩及び地下水中有機及び無機栄養源の種類，濃度）

本検討では、降水系高 pH 型地下水及び海水系高 pH 型地下水を検討の対象とした（表 3-1）。有機基質については、地下水に含有される有機物の濃度は 1～10mgC/dm³ 程度であり（長尾，1995），しかも，この有機物は主に，微生物にとって利用し難いフミン物質から構成されている（たとえば，EIC ネット環境用語集；サイクル機構，1999）。

③ pH

想定した地下水の pH は 8 前後である。但し，処分施設内の間隙水はセメント系材料と接触することにより，pH12.5～13.5 が長期間継続する。

④ 酸化還元状態

地層処分本来の環境は還元性であり，酸化還元電位も pH8 前後の条件で，-300mV(vs. SHE)程度と考えられている。

⑤ 温度

処分深度を地下 500m 及び 1,000m とし，温度勾配を 3℃/100m，地表温度を 15℃とすると，処分深度 500m では 30℃，1,000m では 45℃程度である。

⑥ 圧力

処分深度を地下 500m 及び 1,000m とすると，地下水の圧力は約 5MPa 及び 10MPa と考えられる。また地圧は深度 1,000m で鉛直応力，水平面内平均応力とも二十数 MPa 程度となる（サイクル機構，1999）。

表 3-1 地下水組成 (サイクル機構, 1999)

	降水系高 pH 型地下水	海水系高 pH 型地下水
pH	8.5	8.0
Eh (mV)	-281	-303
単位 : mol/dm ³		
Na (Total)	3.6×10^{-3}	6.2×10^{-1} ³⁾
Ca (Total)	1.1×10^{-4}	3.3×10^{-4}
K (Total)	6.2×10^{-3}	1.1×10^{-2}
Mg (Total)	5.0×10^{-5}	2.5×10^{-4}
Fe (Total)	9.7×10^{-10}	3.9×10^{-8}
Al (Total)	3.4×10^{-7}	3.2×10^{-9}
C (Total)	3.5×10^{-3}	3.5×10^{-2}
S (Total)	1.1×10^{-4} ¹⁾	3.0×10^{-2} ⁴⁾
B (Total)	2.9×10^{-4} ²⁾	1.7×10^{-3} ²⁾
P (Total)	2.9×10^{-6} ²⁾	2.6×10^{-7} ²⁾
F (Total)	5.4×10^{-5} ²⁾	1.0×10^{-4} ²⁾
Br (Total)	—	5.3×10^{-4} ²⁾
I (Total)	—	2.0×10^{-4} ²⁾
N (Total)	2.3×10^{-5} ²⁾	5.2×10^{-3} ²⁾
Cl (Total)	1.5×10^{-5} ³⁾	5.9×10^{-1}
Si (Total)	3.4×10^{-4}	3.0×10^{-4}

- 1) $\text{SO}_4^{2-} = 1.1 \times 10^{-4} \text{ mol/dm}^3$, $\text{HS}^- = 3.8 \times 10^{-9} \text{ mol/dm}^3$, $\text{H}_2\text{S(aq)} = 1.2 \times 10^{-10} \text{ mol/dm}^3$
- 2) 実測地下水の平均値より設定
- 3) 電荷バランスをとるために調整
- 4) $\text{SO}_4^{2-} = 3.2 \times 10^{-5} \text{ mol/dm}^3$, $\text{HS}^- = 2.8 \times 10^{-2} \text{ mol/dm}^3$, $\text{H}_2\text{S(aq)} = 2.1 \times 10^{-3} \text{ mol/dm}^3$

3.2 微生物影響評価の観点から見た TRU 廃棄物の地層処分の特徴

TRU 廃棄物の地層処分では、対象となる廃棄物の特徴を考慮して、廃棄物をグループ 1 からグループ 4 の 4 種類に分類している (表 3-2)。これらの廃棄物は、それぞれグループ毎に別々の坑道に処分される。グループ 1 及び 2 の処分坑道には核種移行抑制のためにベントナイト緩衝材が設置される。

各廃棄物グループに含まれる微生物活動の基質となり得る有機物としては、グループ 2 の廃棄物に含まれるセルロース (JNC 廃棄体中に 0.1wt% 程度含有されるウエス等由来) (倉形ほか, 1996)、グループ 3 の廃棄物に含まれるアスファルト (放射性廃液の固化マトリクス) 及びリン酸トリブチル類 (抽出溶媒等として使用されるリン酸トリブチル (TBP) 及びその分解生成物であるリン酸ジブチル (DBP)、リン酸モノブチル (MBP)。以下、総称して「TBP 類」という。) が含有されている。またグループ

3には可溶性の硝酸塩（PUREX法による再処理プロセス廃液由来）が含まれており、溶出した硝酸イオンは微生物活動における有効な電子受容体として働く可能性がある。なお、グループ1に分類される廃棄物には微生物活動の基質となり得る物質は含まれない。また、グループ4に分類される廃棄物には種々雑多な有機物等が含有されるが焼却処理されるため、最終的な地層処分時には有機物は含まれない。

表 3-2 TRU 廃棄物の分類及び廃棄物に含有される微生物活動の基質

Gr	主な廃棄物	微生物活動の基質となる物質
1	○廃銀吸着材のセメント固化体	○含有されない。
2	○ハル・エンドピースの圧縮収納体	○セルロース（ウエス等由来）
3	○低レベル濃縮廃液のアスファルト 固化体及びセメント固化体 ○ビチューメン固化体	○アスファルト ○硝酸塩 ○TBP類
4	○可・難・不燃性廃棄物のセメント固 化体 ○解体廃棄物等	○含有されない。 （焼却処理されるため、地層処分時 点では有機物は含まれない。）

各グループの処分坑道とも充填材等としてセメント系材料が使用される可能性がある。セメント系材料として、最も汎用的なセメントである普通ポルトランドセメントが使用されるとすると、処分施設の間隙水は長期にわたり pH12.5～13.5 程度に維持されることとなる。また、セメント系材料の利用に伴い有機系セメント混和剤が使用される可能性があり、これらも微生物の有機基質となる可能性がある。また、地下水中に含まれる天然有機物（フミン物質）と無機塩類（硝酸塩、硫酸塩等）も基質となる可能性がある。

3.3 TRU 廃棄物の地層処分環境における個別の微生物活動の概観

前述の 3.1 項及び 3.2 項の検討を基に、TRU 廃棄物の地層処分環境において微生物活動の基質となり得る可能性のある物質（表 3-3）に着目し、個別の微生物活動について検討を行った。なお、TRU 廃棄物の地層処分環境である地下数百 m 以深における微生物の代謝活動に関する知見は少なく、TRU 廃棄物の地層処分環境における微生物の代謝活動を精緻に知ることはできない。したがって、ここでは微生物の多様性を考慮して TRU 廃棄物の地層処分環境（嫌気性、かつ高アルカリ性環境）においても、中性付近の pH で活性を有する微生物と同程度の活性を有する微生物が存在するとの保守的な仮定を採用した。

表 3-3 処分施設における基質と微生物活動

Gr.	廃棄体グループにおける基質		活動微生物
	廃棄体	施設・地下水	
1	含まれない	セメント混和剤 フミン物質 無機塩類（硝酸塩、硫酸塩等）	セメント混和剤分解菌* 硫酸塩還元菌 メタン生成菌
2	セルロース		セメント混和剤分解菌* セルロース分解菌* 硫酸塩還元菌 メタン生成菌
3	アスファルト 硝酸塩 TBP 類		セメント混和剤分解菌* アスファルト分解菌* TBP 類分解菌* 脱窒菌 硫酸塩還元菌 メタン生成菌
4	含まれない		セメント混和剤分解菌* 硫酸塩還元菌 メタン生成菌

*：微生物学上の分類ではないが、評価上のグルーピングに対応した名称を便宜上付した。

(1) セメント混和剤分解菌の活動

セメント系材料の単位水量を減じ、さらに、作業性向上のために用いられるセメント混和剤の代表的なものである高性能 AE 減水剤は、その主成分によって、ポリカルボン酸系、ナフタリン系、メラミン系及びアミノスルホン酸系の 4 つに大別される（図 3-1）。しかし、TRU 廃棄物の地層処分施設で使用されるセメント混和剤は種類及び量に不確定性があることから、これらの減水剤をすべて同等に分解できる微生物が存在するとの仮定に基づいて、TRU 廃棄物の地層処分環境における微生物活動を考えた。

セメント混和剤を分解する微生物はグループ 1～4 のすべての廃棄物の処分施設で活動する可能性のある微生物である。

セメント混和剤のアルカリ分解生成物の化学構造並びに微生物の代謝・分解に関する知見は稀少であり、その微生物影響を正確に推察することは困難である。しかし、セメント混和剤は有機炭素化合物であることから、微生物に分解・代謝されることにより有機酸を経て、最終的に二酸化炭素にまで代謝・分解される可能性がある（以下、このセメント混和剤を代謝・分解する微生物群を便宜上「セメント混和剤分解菌」という。）。したがって、セメント混和剤はセメント混和剤分解菌の活動により低分子の有機酸、二酸化炭素、水素に分解されるとした。この過程で生じた低分子有機酸は、SRB（すべてのグループで活動。活動の詳細は(6)項で記述する。）、脱窒菌（グループ 3 で活動。活動の詳細は(8)項で記述する。）に利用されると考えられる。また、同様に、低分子有機酸、二酸化炭素、水素はメタン生成菌（すべてのグループで活動。活動の詳細は(7)項で記述する。）の活動によりメタンへと変換される可能性がある。

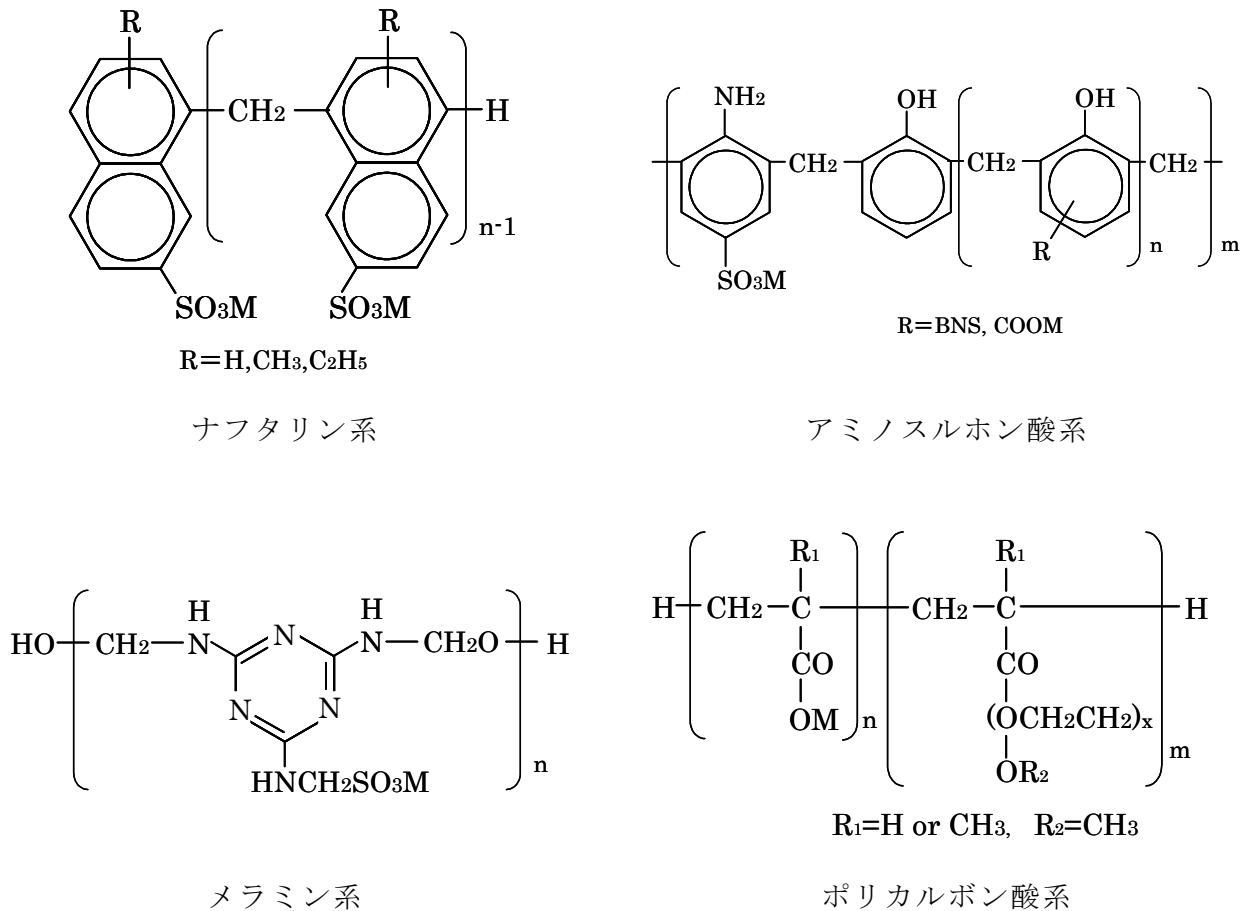


図 3-1 代表的な高性能 AE 減水剤の推定化学構造 (シーエムシー, 1998)

(2) フミン物質分解菌の活動

フミン物質を分解する微生物はグループ 1~4 のすべての処分施設で活動する可能性のある微生物である。

フミン物質 (フミン酸, フルボ酸) は, 動植物遺骸が微生物分解を受けて生成した分子量数千から 1 万程度の天然有機物であり, 微生物最終分解生成物と考えられている (たとえば, EIC ネット 環境用語集, 2005)。したがって, フミン物質は微生物による分解をほとんど受けない天然有機物であると考えられる。しかし, フミン物質分解に限らず, 地下深部環境における微生物による有機物分解に関する研究は稀少であり, フミン物質を分解できる微生物が地下深部環境に存在するとの保守的な仮定に基づいて, TRU 廃棄物の地層処分環境における微生物活動を考えた。

前述のように, フミン物質の微生物代謝に関する研究例は皆無であり, 代謝産物による影響を推察することは困難である。しかし, 有機炭素化合物であることから, フミン物質分解菌によりセメント混和剤の場合と同様に低分子の有機酸, 二酸化炭素, 水素に分解されるとした。この過程で生じた低分子有機酸は, SRB (すべてのグループで活動。活動の詳細は(6)項で記述する。), 脱窒菌 (グループ 3 で活動。活動の詳細は(8)項で記述する。)に利用されると考えられる。また, 同様に, 低分子有機酸, 二酸

化炭素，水素はメタン生成菌（すべてのグループで活動。活動の詳細は(7)項で記述する。）の活動によりメタンへと変換される可能性がある。

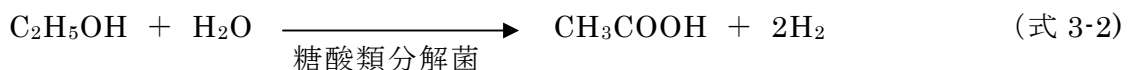
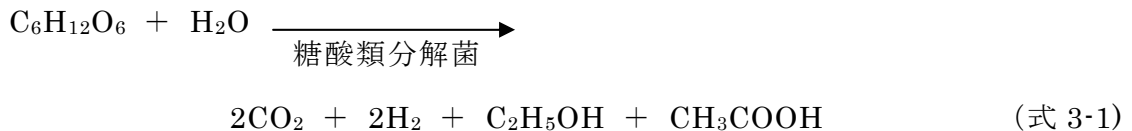
(3) セルロース分解菌の活動

セルロースを分解する微生物の活動はグループ 2 の処分施設環境に特有の微生物活動である。

グループ 2 の廃棄物には，他の廃棄物グループには含まれないウエス等由来のセルロースが含有されておりグループ 2 に特有の有機基質である。このセルロースはグルコースが β -1,4 結合で直鎖状に結合した多糖類であり，グルコースが α -1,4 結合で直鎖状に結合した澱粉やアミロースと異なり微生物による分解作用を受け難い不溶性多糖類である。一方，セルロースは室温程度のアルカリ環境下では，peeling off 反応等により糖酸類に分解される (Van Loon and Glaus, 1997)。この糖酸類はセルロースとは異なり可溶性で微生物にとって易利用性の有機物形態である。こうしたことから，グループ 2 の廃棄物に含まれるセルロースがすべて糖酸類にアルカリ分解されるという保守的な仮定に基づいて，グループ 2 の処分施設における微生物活動を考えることとした。

グループ 2 の処分施設で生成される糖酸類は地層処分環境に存在する嫌気性の有機基質を分解する微生物により（以下，この糖酸類を代謝・分解する微生物群を便宜上，総称して「糖酸類分解菌」という。）代謝・分解される。糖酸類の代謝産物は，グループ 2 の処分施設で活動する微生物の重要な有機基質の一つと考えられ，SRB 等の嫌気呼吸微生物の活動を活性化すると考えられる。

アルカリ分解により生成する糖酸類として，核種移行解析上，重要な糖酸であるイソサッカリン酸（分子式： $C_6H_{12}O_6$ ，以下，「ISA」という。）を仮定すると，ISA は糖酸類分解菌の活動により二酸化炭素，水素，エチルアルコール及び酢酸に代謝・分解される（式 3-1）。この代謝過程で生じたエチルアルコールは，さらに，糖酸類分解菌等により酢酸と水素に代謝・分解される（式 3-2）。また，糖酸類分解菌による ISA の最終代謝産物である有機酸（酢酸），二酸化炭素及び水素は SRB 及びメタン生成菌の活動における基質となる可能性がある。

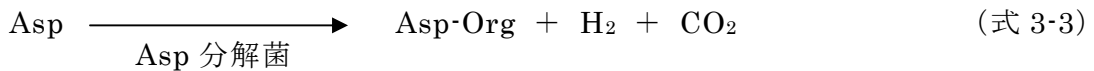


(4) アスファルト分解菌の活動

アスファルトは高温高压下でのラジカル重合体であり，微生物にとって利用し難い有機物である。しかし，ここでは評価の保守性の点から，アスファルトを分解し得る微生物が処分施設内で活動するという仮定のもとで検討を行う。アスファルトを分解

する微生物（以下，アスファルトを分解する微生物を便宜上「アスファルト分解菌」という。）の活動はグループ 3 の処分施設環境に特有な微生物活動である。

アスファルトが微生物により分解されるとすると，この分解プロセスは，グループ 2 廃棄物における糖酸類分解と同様にグループ 3 廃棄物の地層処分システムにおける各種の微生物活動を評価する上で重要と考えられる。それはアスファルト分解菌の活動によりアスファルトの飽和分や芳香族分等から生成される有機酸及び可溶性芳香族化合物等（式 3-3）は他の微生物活動を活性化するためである。可溶性芳香族化合物はさらにアスファルト分解菌による代謝・分解作用を受け有機酸等に変化する。アスファルト分解菌の活動により生成された有機酸等は，脱窒菌，SRB 及びメタン生成菌の活動における電子供与体となる。



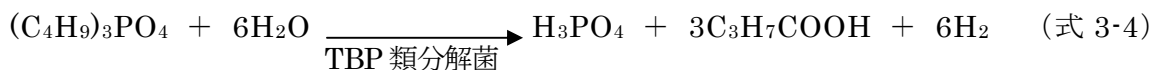
Asp : アスファルト

Asp-Org : アスファルト由来可溶性有機物で有機酸類や芳香族化合物等で，他の微生物活動における栄養源や電子供与体となる。

(5) TBP 類分解菌の活動

アスファルト分解菌と同様に，TBP 類を有機基質として活動を行う微生物（以下，この TBP 類を分解する微生物を便宜上「TBP 類分解菌」という。）の活動もグループ 3 の処分施設環境に特有な微生物活動である。

TBP 類は TBP 類分解菌により代謝・分解され，リン酸と有機酸が生成されると考えられる（式 3-4 に TBP からの酪酸生成反応を示す。）。この有機酸（酪酸がさらに代謝・分解されたギ酸，酢酸，プロピオン酸等を含む。）は脱窒菌，SRB 及びメタン生成菌の活動における電子供与体となる。



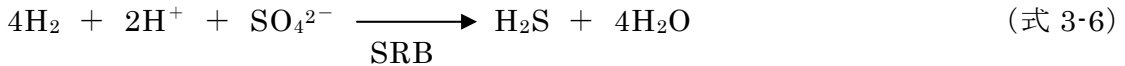
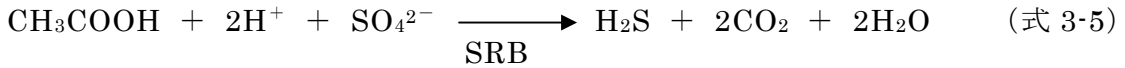
(6) 硫酸塩還元菌の活動

SRB はグループ 1～4 のすべての処分施設で活動する可能性のある微生物である。

SRB は，嫌気状態で硫酸塩を電子受容体として硫酸塩を還元することにより最終的に硫化水素を生成し，金属腐食に関与する可能性がある。中性付近の pH で活動する代表的な SRB は *Desulfovibrio* 属である。SRB は，有機酸や芳香族化合物を電子供与体として利用できる（Widdel and Pfennig, 1977a ; 1977b ; 1977c）。地下水には硫酸イオンが $1.1 \times 10^{-4} \text{ mol/dm}^3$ 含まれており（降水系高 pH 型地下水における硫酸イオン濃度。表 3-1 参照），セメント起源の硫酸イオンまで考慮するとセメント系材料の間隙水濃度は $2.6 \times 10^{-4} \text{ mol/dm}^3$ となる。この硫酸イオンを SRB が電子受容体として利用する可能性がある。

こうしたことから，SRB はセメント混和剤分解菌，糖酸類分解菌，アスファルト分

解菌及び TBP 類分解菌（以下、こうした有機基質を分解する微生物を便宜上「有機基質分解菌」という。）の活動によって生成される有機酸を電子供与体、地下水中に存在する硫酸イオンを電子受容体とした活動（式 3-5）を行い、金属腐食に影響を与える可能性がある。なお、SRB には、有機物を用いず水素酸化をエネルギー源とする硫酸塩還元代謝系も存在する（式 3-6）。

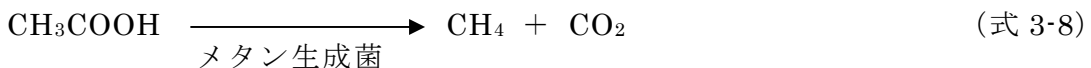
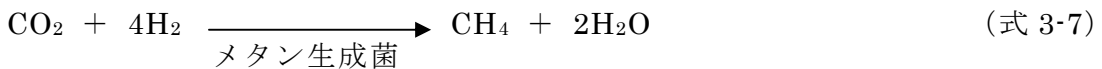


(7) メタン生成菌の活動

メタン生成菌はグループ 1～4 のすべての処分施設で活動する可能性のある微生物である。

メタン生成菌は、水素（金属腐食や微生物活動等により供給）と二酸化炭素（微生物による有機物分解や地下水等から供給）からメタンを生成する（式 3-7）。なお、有機酸（有機基質分解菌が生成）からメタン生成を行う代謝系を持つメタン生成菌も存在する（式 3-8 に酢酸からのメタン生成反応を示す）。

また、メタン生成菌が地層処分環境において、C-14 を含む化学種を利用した場合、C-14 が放射性ガス状化学種（C-14 メタン）の形態をとる可能性がある。



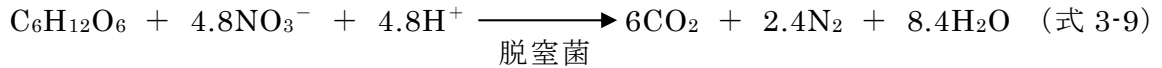
(8) 脱窒菌の活動

グループ 3 に分類される TRU 廃棄物には多くの硝酸塩と放射性廃液の固化マトリクスであるアスファルト及び廃溶媒である TBP 類を含んでおり、硝酸塩を電子受容体、アスファルト／セメント混和剤／TBP 類由来の可溶性有機物を電子供与体とする脱窒菌の活動が活性化される可能性がある（たとえば、可溶性有機物をグルコースとすると反応式は式 3-9 のようである）。脱窒反応は表 2-2 に示すように嫌気呼吸の中で最も大きなエネルギーを獲得できることから、グループ 3 の処分施設における重要な微生物活動である。中性付近の pH で活動する代表的な脱窒を行う微生物としては、*Rhodobacter* 属、*Thiobacillus* 属、*Thiomicrospira* 属、*Thermothrix* 属、*Pseudomonas* 属、*Paracoccus* 属等がある。

処分施設内で脱窒菌が活発に活動した場合、生成する窒素ガスは処分施設からの間隙水の押し出しによる核種移行の促進やガス圧上昇による処分施設の物理的損傷の原因となる可能性がある。

また、窒素固定細菌等の働きでアンモニアが多量に生成された場合には、核種がア

ンモニアと錯体を形成し、溶解度等に影響を及ぼす可能性がある。



(9) その他の微生物活動

TRU 廃棄物の地層処分環境で活動する可能性のある微生物として、有機基質分解菌、SRB、メタン生成菌及び脱窒菌以外に、鉄／マンガン還元菌の活動が考えられるが、地下水中の電子受容体となる化合物の濃度が低いことから（表 3-1 参照）、その活動は非常に限定されたものと考えられる。また、仮に、鉄／マンガン還元菌の活動した場合、錯化剤形成、コロイド形成、核種の取り込等の他の微生物活動による活動と同質の影響を与えると考えられる。したがって、基質量の多い有機基質分解菌等の活動を評価すれば、鉄／マンガン還元菌の活動による影響は無視できるほど小さいと考えられる。

4. TRU 廃棄物の地層処分環境において考慮すべき微生物影響

前章で検討した TRU 廃棄物の地層処分環境で活動する可能性のある微生物とその微生物活動が処分システムに与える可能性のある影響について以下のように整理し、表 4-1 にまとめた。

4.1 核種の溶解度や収着特性に与える影響

(1) pH 変化に及ぼす影響

- ① 有機基質分解菌の活動で生成される有機酸及び二酸化炭素は処分施設の間隙水の pH を低下させる可能性がある。
- ② TBP 類分解菌の活動で生成されるリン酸は処分施設の間隙水の pH を低下させる可能性がある。
- ③ 脱窒菌、SRB 及びメタン生成菌の活動により有機酸が消費される可能性や脱窒菌の活動により遊離された Na^+ が有機酸を中和する可能性もあり、この場合は間隙水の pH 低下が緩和されると考えられる。
- ④ 微生物による間隙水の pH 低下はすべての廃棄物グループの処分施設に影響を与える可能性がある。

(2) 錯体形成に及ぼす影響

- ① 有機基質分解菌の活動で生成される有機酸並びに有機基質分解菌、脱窒菌、SEB 及びメタン生成菌の代謝産物（化学種は特定できない）が錯化剤として作用し、核種の溶解度等を変化させる可能性がある。
- ② 微生物活動により生成される錯化剤的作用を示す物質は、易利用性の栄養源が乏しい地層処分環境では微生物活動により消費される可能性がある。

- ③ 微生物による錯化剤形成はすべての廃棄物グループの処分施設に影響を与える可能性がある。

(3) コロイド形成に及ぼす影響

- ① 有機基質分解菌，SRB，メタン生成菌及び脱窒菌の代謝産物が核種と有機コロイドを形成し，核種の移行に影響を及ぼす可能性がある。
- ② 微生物の代謝産物によるコロイド形成はすべての廃棄物グループの処分施設に影響を与える可能性がある。

(4) 酸化還元反応に及ぼす影響

- ① 微生物活動により処分施設の酸化還元状態が大きく変化した場合，核種の溶解度等に影響を及ぼす可能性がある。
- ② 微生物による処分施設の酸化還元状態の変化はすべての廃棄物グループの処分施設に影響を与える可能性がある。

(5) 核種の収着／取り込みに及ぼす影響

- ① 微生物表面への核種の収着や微生物体内への核種を取り込みは微生物自身がコロイド様の働きをし，核種の移行に影響を及ぼす可能性がある。
- ② 天然バリアである母岩鉱物表面に微生物膜（バイオフィーム）が形成された場合，核種の鉱物表面への収着挙動が変化する可能性がある。
- ③ 微生物への核種の収着／取り込みはすべての廃棄物グループの処分施設に影響を与える可能性がある。

4.2 人工バリア及び天然バリアに与える影響

(1) セメント系材料変質に及ぼす影響

- ① 有機基質分解菌の活動で生成される有機酸によりセメント系材料の溶解が生じる可能性がある。
- ② 有機基質分解菌，脱窒菌，SRB 及びメタン生成菌の活動で生成される二酸化炭素によりセメント系材料に変質が生じる可能性がある。
- ③ TBP 分解菌の活動で生成されるリン酸によりセメント系材料に変質が生じる可能性がある。
- ④ 微生物によるセメント系材料の変質はすべての廃棄物グループの処分施設に影響を与える可能性がある。

(2) 金属腐食に及ぼす影響

- ① 有機基質分解菌の活動で生成される有機酸により金属腐食が生じる可能性がある。
- ② SRB の活動により生成される硫化水素により金属腐食が生じる可能性がある。
- ③ TBP 分解菌の活動で生成されるリン酸により金属腐食が生じる可能性がある。

- ④ 微生物による金属腐食はすべての廃棄物グループで処分システムに影響を与える可能性がある。

(3) アスファルト変質に及ぼす影響

- ① アスファルト分解菌の活動により放射性廃液の固化マトリクスであるアスファルトが分解・劣化を受け、アスファルトの核種封じ込め性能が低下する可能性がある。
- ② アスファルトの微生物分解で生じる代謝産物（化学種は特定できない）は地層処分環境で活動する微生物の基質となり微生物活動を活性化する可能性がある。
- ③ 微生物によるアスファルト変質はグループ3の処分施設において処分システムに影響を与える可能性がある。

(4) ベントナイト変質に及ぼす影響

- ① セメント混和剤分解菌，糖酸類分解菌，SRB 及びメタン生成菌の代謝産物や微生物活動により有機性カチオンが生成された場合，ベントナイトの層間に取り込まれベントナイトの性質に変化が生じる可能性がある。
- ② セメント混和剤分解菌及び糖酸類分解菌の活動で生成される有機酸により間隙水の pH 低下が起こり，ベントナイトの性質に変化が生じる可能性がある。
- ③ 微生物によるベントナイト変質は緩衝材が設置される処分施設（グループ1及び2）において処分システムに影響を与える可能性がある。

(5) 空隙閉塞に及ぼす影響

- ① 微生物活動により形成されるバイオフィームにより地層処分施設の空隙が閉塞される可能性がある。
- ② 微生物活動により発生する二酸化炭素とセメント系材料中のカルシウムの水和物から生成される CaCO_3 により地層処分施設の空隙が閉塞される可能性がある。
- ③ 微生物活動による空隙閉塞はすべての廃棄物グループで処分システムに影響を与える可能性がある。

4.3 その他の影響

(1) ガス発生

- ① 微生物活動により発生するガス（二酸化炭素，窒素，水素，メタン）は処分施設からの間隙水の押し出しによる核種移行の促進やガス圧上昇による処分施設の物理的損傷の原因となる可能性がある。
- ② メタン生成菌が C-14 を含む化学種を利用した場合，C-14 が放射性ガス状化学種（C-14 メタン）として拡散する可能性がある。
- ③ 微生物活動によるガス発生はすべての廃棄物グループで処分システムに影響を与える可能性がある。

表 4-1 TRU 廃棄物の地層処分環境における微生物影響

活動微生物	廃棄物グループ	処分システムに与える影響
セメント混和剤分解菌	Gr.1, Gr.2 Gr.3, Gr.4	○ 共通的な影響*
フミン物質分解菌	Gr.1, Gr.2 Gr.3, Gr.4	○ 共通的な影響*
糖酸類分解菌	Gr.2	○ 共通的な影響*
アスファルト分解菌	Gr.3	○ 共通的な影響* ○ アスファルト変質
TBP 類分解菌	Gr.3	○ 共通的な影響* ○ リン酸生成による pH 低下 ○ リン酸生成による金属腐食
脱窒菌	Gr.3	○ 共通的な影響* ○ 窒素ガス発生 ○ pH 低下の緩和
硫酸塩還元菌	Gr.1, Gr.2 Gr.3, Gr.4	○ 共通的な影響* ○ H ₂ S による金属腐食
メタン生成菌	Gr.1, Gr.2 Gr.3, Gr.4	○ 共通的な影響* ○ メタン発生 ・ 発生ガス圧による影響 ・ C-14 メタンとしての核種移行

* ○ 共通的な影響：

- | | |
|------------------|-----------------------------|
| ① 錯体形成 | ② コロイド形成 |
| ③ 二酸化炭素による pH 低下 | ④ 酸化還元反応 |
| ⑤ 核種の収着／取り込み | ⑥ セメント系材料変質 |
| ⑦ 有機酸による金属腐食 | ⑧ ベントナイト変質(Gr.1 及び Gr.2 のみ) |
| ⑨ 空隙閉塞 | ⑩ ガス発生 (二酸化炭素, 水素) |

5. TRU 廃棄物の地層処分環境における微生物活動の評価

5.1 処分環境から見た微生物活動の評価 (水分活性と微生物活動)

一般に微生物活動と水分活性には密接な関係があり、通常、微生物は水分活性が 0.98 以上で活発に活動し、水分活性が 0.94~0.96 に低下すると活動が抑制される (微生物が死滅することはないが、休眠状態となる) (たとえば、日本食品分析センター、2003)。グループ 1, 2 及び 4 では、廃棄物の特性から水分活性の低下を考慮する必要はないが、グループ 3 では硝酸塩 (ほとんどが硝酸ナトリウムと考えられる。) の影響により水分活性が低下する可能性がある。

水分活性と微生物活動の関係を示す例として、焼却残渣主体の埋立地の高塩類化に伴う埋立地内の微生物活動の研究において、微生物の有機物分解活性は塩濃度が高くなると低下し、特に、脱窒菌は高塩濃度環境下ではその生育が抑制されることが示されている (立藤ほか、1995)。一方、塩湖 (死海、グレートソルトレイク等) や岩塩

等で生育する特殊な微生物（高度好塩菌）が見出されており，一般の微生物が活動を停止するような高い塩濃度（NaCl 濃度として $2.5\sim 5.2 \text{ mol/dm}^3$ ）で活動する可能性がある。高度好塩菌では，生育環境と細胞内の塩濃度差は 1,000 倍にも達しており，その濃度差を維持（体内の Na^+ イオンの排出）するためには，大量の光合成産物のような易利用性の有機物を分解することで得られる大きなエネルギー，あるいは光エネルギーを必要とする。すなわち，高度好塩菌は有機物分解でエネルギーを獲得できない環境では，バクテリオロドプシンと呼ばれるレチナル蛋白質が光エネルギーを利用して，水素イオンを菌体外へ排出し菌体内外に水素イオンの濃度差を生じさせ，このプロトン濃度差による電気化学ポテンシャルを ATP 合成， Na^+ イオンの排出などに使用する。しかし，地下深部の TRU 廃棄物の地層処分環境では，当然のことながら光エネルギーを利用することは出来ず， Na^+ イオンの排出のためには有機物分解から必要なエネルギーを得る必要がある。グループ 3 にはアスファルトが大量に持ち込まれるがアスファルトは微生物分解を受け難い天然高分子有機物である。こうしたことから，アスファルトから微生物活動により生成される可溶性有機物の量は少ないと考えられる。また，セメント系材料に起因する高アルカリ性条件における化学的なアスファルト分解については低酸素雰囲気下で，セメントペースト硬化体及び硝酸ナトリウム (3mol/dm^3) を共存させた状態でアスファルトから溶出する有機炭素の濃度が測定された実験事例 (Greenfield et al., 1997) があり参考になる。この実験では液中の有機炭素濃度 (TOC) は浸漬 10 日後に約 $20\sim 30\text{mg/dm}^3$ 程度を示し，700 日後まで経時的な変化はない。この実験事例から，アルカリ性条件での化学的分解による可溶性有機物の継続的供給は起こらないと見なすことができる。したがって，処分環境におけるアスファルト分解では， Na^+ イオンの排出に必要，かつ十分なエネルギーを獲得出来ないと考えられる。こうしたことから，地下深部の TRU 廃棄物の地層処分環境では，高度好塩菌が活発に活動するとは考えられない。したがって，グループ 3 の地層処分環境では，廃棄物から持ち込まれる硝酸塩の影響により処分環境の水分活性が低下している期間は，有機基質分解菌，脱窒菌及び高度好塩菌等の処分環境で活動する可能性のあるすべての微生物活動が停止していると考えられる。こうしたことから，硝酸ナトリウム濃度と水分活性の関係を計算コード GMIN (Felmy, 1990) により評価した (図 5-1)。なお，評価においてはセメント系材料中を想定し，ポルトランダイト (Ca(OH)_2) 平衡を仮定した。その結果，グループ 3 の処分施設における間隙水中の初期水分活性は微生物活動が抑制される 0.94 以下となる。その後，硝酸塩（硝酸ナトリウム）濃度が移流や拡散により約 2.0mol/dm^3 （水分活性 0.94 以上）以下に低下すると微生物活動が開始されると考えられる。

なお，このグループ 3 廃棄物の地層処分環境における硝酸イオン（電子受容体）及びアスファルト分解生成物（電子供与体）は処分施設の適切なレイアウト（たとえば，地下水流に対して最下流に配置する等）がなされ，他の廃棄物の処分施設における微生物活動には影響を及ぼさないこととする。

グループ 3 の処分環境での硝酸塩濃度低下後に開始される微生物の活動環境における電子受容体濃度は，硝酸塩 2.0 mol/dm^3 ，硫酸塩 $2.6\times 10^{-4} \text{ mol/dm}^3$ （降水系高 pH 型地下水における硫酸イオン濃度とセメント起源の硫酸イオンの和）であり，硝酸塩

濃度は硫酸塩濃度に比べ4桁高く、脱窒菌が支配的な嫌気呼吸微生物となる。その後、脱窒菌活動や移流・拡散により硝酸塩濃度が地下水中の硫酸塩濃度以下にまで低下すると硫酸塩還元菌が活動する可能性があるが、獲得エネルギー量やアスファルト分解菌の活動（電子供与体の供給量）により制限されると考えられる。

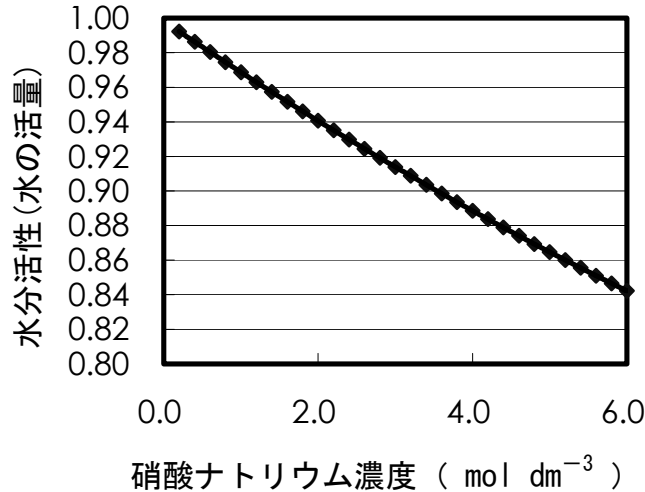


図 5-1 硝酸ナトリウム濃度と水分活性の関係

5.2 個別の微生物活動の評価

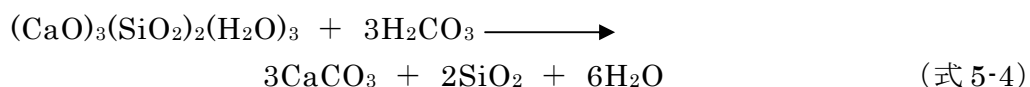
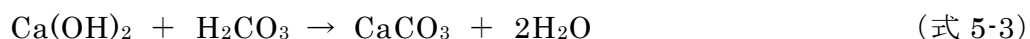
本項では、3.3 項で把握した TRU 廃棄物の地層処分環境で活動する可能性がある微生物活動について基質代謝に着目した評価を行った。

なお、評価にあたっては以下の考え方を基本とした。

- ① TRU 廃棄物の処分環境で活動する微生物は、処分環境の地質特性、地下水環境等に大きく影響され、TRU 廃棄物の処分施設のサイトに強く依存する。したがって、処分施設の地質環境が特定されていない現時点では、TRU 廃棄物の地層処分環境における微生物影響を評価することには不確実性がある。そこで、微生物活動が地層処分システムに与える影響について保守的仮定を導入し評価を行うこととした。
- ② TRU 廃棄物の処分環境に持ち込まれる有機物（セメント混和剤、フミン物質、セルロース、TBP 類、アスファルト及びそのアルカリ分解生成物等）は代謝経路及び代謝産物の同定並びに代謝速度を決定することはできない。そこで、以下の二つの理由から有機基質は、すべて有機炭素化合物であることから微生物活動により代謝・分解され、有機酸を経て、最終的に二酸化炭素まで分解されると仮定した。
 - 二酸化炭素 1 モルが水に溶解し、炭酸イオン 1 モルを生成すると 2 モルのプロトンが放出されることになり（式 5-1）、有機酸（単位炭素量あたりのプロトン放出量が最も多い C1 有機酸（たとえば、HCOOH）でも炭素 1 モルあたりプロトン 1 モル（式 5-2））の生成を仮定するよりも、単位炭素量あたりの化学量論的プロトン放出量が多いため保守的評価を行える。



- 二酸化炭素の溶解により生成する CO_3^{2-} は、セメント系材料を構成する水和物中のカルシウムと反応し、 CaCO_3 を形成し、セメント固相の水和物組成を変化させ（式 5-3、式 5-4）、セメント系材料の放射性核種の収着性に影響を及ぼす可能性があり、この影響を評価しておく必要がある。



- ③ 一方、微生物が容易に利用できる易分解性有機物が極端に乏しい TRU 廃棄物処分環境では、微生物活動やアルカリ分解等で生成される有機酸は速やかに消費・分解される可能性がある。しかし、この微生物による有機酸の消費・分解過程及びその程度には不確実性がある。そこで、その影響を保守的に見積もられるように、消費分解仮定を無視した。

評価に用いた TRU 廃棄物の処分施設内における基質等の物量を表 5-1 に示す。なお、処分施設の母岩は結晶質岩、処分深度は 1,000m、処分坑道は円形坑道（直径 12m）を想定した。

表 5-1 微生物活動の評価に用いた基質等の物量（坑道 1m 当たり）

物質等	Gr.1	Gr.2	Gr.3	Gr.4
セメント量 (kg/m)	22,500	16,800	58,500	58,500
セメント中 CaO 量 (mol/m)	2.6×10^5	1.9×10^5	6.8×10^5	6.8×10^5
添加高性能 AE 減水剤量 (TOC·kg/m)	67.5	50.5	175	175
セルロース量 (kg/m)	—	0.7	—	—
アスファルト量 (kg/m)	—	—	9,850	—
TBP 類量 (kg/m)	—	—	10.4	—
NaNO_3 量 (kg/m)	—	—	11,600	—

(1) セメント混和剤分解菌活動の評価

セメント系材料を用いた充填材や構造躯体の施工時に施工性を高めるために使用される有機系セメント混和剤（減水剤等）の使用量は、一般的にはセメント重量の 0.3～3%程度である（コンクリート用化学混和剤協会, 2003）。高性能 AE 減水剤の分析例では、セメントペースト硬化体から溶出した高性能 AE 減水剤は添加量に対して最大で 4%程度であり、溶出された有機物には主成分である高分子物質は含まれておらず、より低分子の有機物の溶出が確認された（入矢ほか, 2000）。これは高性能 AE 減水剤の大半が、セメントペースト硬化体中に固定され、低分子量成分あるいは低分子量の分解生成物のみが溶出しているためと考えられた。こうしたことから、セメント混和剤分解菌が栄養源として利用している化合物種としては、図 3-1 に示した代表的な高性能 AE 減水剤の構造から単環もしくは 2 環の芳香族化合物、メラミン及びジカルボン酸類等が考えられる。セメント混和剤分解菌はこうしたセメント混和剤由来の低分子有機物を分解し、より低分子の有機酸を生成する。また、生成された有機酸はすべての廃棄物グループにおいて SRB 及びメタン生成菌の基質となり、グループ 3 では、さらに、脱窒菌の基質となる。

セメント混和剤から微生物活動により生成される二酸化炭素量は、高性能 AE 減水剤添加量を 3%、間隙水中への溶出量を保守的に全量溶出、高性能 AE 減水剤の平均炭素含有量を 60%（図 3-1 から推定した）と仮定して求めた（表 5-2）。この結果、グループ 1 では 5.6×10^3 mol/1m-坑道、グループ 2 では 4.2×10^3 mol/1m-坑道、グループ 3 と 4 では 1.5×10^4 mol/1m-坑道であると考えられた。

表 5-2 セメント混和剤からの二酸化炭素発生量

廃棄体 Gr.	セメント量 (kg/1m-坑道)	混和剤添加量 (TOC-kg/1m-坑道)	CO ₂ 発生量 (mol/1m-坑道)
1	22,500	67.5	5.6×10^3
2	16,800	50.5	4.2×10^3
3	58,500	175	1.5×10^4
4	58,500	175	1.5×10^4

(2) フミン物質分解菌活動の評価

フミン物質は植物などの微生物最終分解生成物で、直鎖炭化水素と多環芳香族化合物の分子量数千から 1 万程度の難分解性高分子化合物であり、微生物の栄養源としては利用し難い形態である。仮に、微生物により代謝・分解された場合は、他の有機基質と同様の代謝・分解を受けると考えられることから、セメント混和剤等の微生物代謝産物と同質の影響を与えると考えられる。フミン物質の炭素含有量は 55～58%であり、ベントナイトの炭素含有量は約 0.4%であることから、ベントナイト中の全炭素がフミン物質由来と仮定してもベントナイト中におけるフミン物質の含有量は約 0.7%と微量である。一方、フミン物質は地下水からも流入する。地下水中の有機炭素濃度

は 1~10ppm 程度であることから (長尾, 1995), 地下水中の有機炭素がすべてフミン物質に由来し, 地下水中の有機炭素濃度を 10ppm, 処分施設への地下水流入量を $1.5 \times 10^{-2} \text{ m}^3/\text{年}/1\text{m-坑道}$, 流入期間を 10 万年間と仮定すると, 処分施設へのフミン物質の累積流入量は, すべての処分施設において有機基質としての影響を考慮すべきセメント混和剤量の約 1/10 (グループ 1, 2) ~ 約 1/25 (グループ 3, 4) となる。こうしたことから, セメント混和剤等の微生物代謝産物の影響を考慮すればフミン物質の微生物代謝産物の影響は無視できるとほど小さいと考えられる。したがって, フミン物質分解菌の活動は評価しないこととした。

(3) 糖酸類分解菌活動の評価

グループ 2 に含まれるウエス等由来の全有機物をすべてセルロースと見積もり, そのすべてが糖酸類に変換されると仮定し, セメント混和剤と同様に糖酸類がすべて二酸化炭素に代謝・分解されるとの仮定を設定し, 糖酸類から微生物活動により生成される二酸化炭素の発生量を求めた。保守的に糖酸類がすべて二酸化炭素に分解されると仮定すると, 1 モルの糖酸類から 6 モルの二酸化炭素が発生することとなる。グループ 2 に含まれるセルロース量は $0.7\text{kg}/1\text{m-坑道}$ と見積もられていることから, すべてが糖酸類に分解された場合の総糖酸類量は $4.3\text{mol}/1\text{m-坑道}$ となる。上記仮定に基づけば, 坑道 1m 当り, $26\text{mol}/1\text{m-坑道}$ の二酸化炭素が発生することとなる。

(4) アスファルト分解菌活動の評価

グループ 3 に含まれるアスファルトは飽和分 (パラフィン及びナフテン), 芳香族分 (比較的 low molecular weight の芳香族化合物), レジン (縮合した芳香族環化合物), アスファルテン (縮合した芳香族環の層状構造化合物) の主たる 4 成分からなり, 固化マトリクスとして使用されているブローンアスファルトの分析例 (福本ほか, 2002) では, 飽和分 23.7%, 芳香族分 32.1%, レジン 20.6%, アスファルテン 23.6% とされている。アスファルトは微生物にとって非常に分解し難い有機物であるが, 構造的に飽和分と芳香族分は主たる 4 成分のなかでは微生物分解を受ける可能性がある成分である。こうしたことから, アスファルト中の飽和分と芳香族分はアスファルト分解菌の活動により脱窒菌, SRB 及びメタン生成菌の栄養源となり得る可溶性有機物 (有機酸類) に代謝・分解され, 最終的に微生物活動により二酸化炭素に代謝・分解されると仮定した。グループ 3 廃棄体中のアスファルト量は $9,850\text{kg}/1\text{m-坑道}$ と見積もられている。アスファルトの炭素含有量を 84.5% (福本ほか, 2002) 及び飽和分と芳香族分がすべて二酸化炭素に分解されると仮定すると, 二酸化炭素の総発生量は $3.9 \times 10^5 \text{ mol}/1\text{m-坑道}$ となる。

(5) TBP 類分解菌活動の評価

TBP ($(\text{C}_4\text{H}_9)_3\text{PO}_4$) 及びその分解生成物である DBP ($(\text{C}_4\text{H}_9)_2\text{HPO}_4$) と MBP ($(\text{C}_4\text{H}_9)\text{H}_2\text{PO}_4$) は TBP 類分解菌の活動により有機酸, 二酸化炭素及びリン酸を生成する可能性がある。グループ 3 廃棄物中の TBP 類量は $10.4\text{kg}/1\text{m-坑道}$ と見積もられている。TBP 類がすべて TBP と仮定し (TBP 濃度は $39\text{mol}/1\text{m-坑道}$ となる。TBP を

仮定することで炭素数が最大となり、生成有機酸及び二酸化炭素の影響評価の保守性が担保される。)、その TBP がすべて二酸化炭素に代謝・分解されると仮定すると二酸化炭素の総生成量は $4.7 \times 10^2 \text{ mol/1m-坑道}$ となる。また、TBP 類がすべて MBP と仮定した場合 (MBP 濃度は 68 mol/1m-坑道 となる。MBP を仮定することで、濃度が最大となり生成リン酸の影響に関する保守性が担保される。) のリン酸発生量は 68 mol/1m-坑道 となる。12m の円形坑道では、廃棄体定置領域の断面積は 113.1 m^2 となることから、廃棄体領域の空隙率を 0.19 とすると、TBP 類分解菌の活動により生じたリン酸が全量間隙水中に溶解すると間隙水中のリン酸濃度は $3.2 \times 10^{-3} \text{ mol/dm}^3$ となる。

(6) 硫酸塩還元菌活動の評価

地層処分環境で活動する SRB は電子供与体及び栄養源として、有機基質分解菌の活動で生成される有機酸を、電子受容体として地下水及びセメント起源の硫酸塩を利用する。したがって、SRB が活発に活動した場合、有機基質分解菌活動により生成された有機酸を消費 (減少) し、有機酸に由来する種々の影響を緩和させる可能性がある。一方、SRB が活発に活動しない場合、有機酸の消費は起こらず、有機酸に由来する種々の影響 (pH 低下、金属腐食、有機基質の消費等) は緩和されない。なお、グループ 3 では、SRB の電子受容体濃度 (硫酸塩濃度: $2.6 \times 10^{-4} \text{ mol/dm}^3$) にくらべ 4 桁高い脱窒菌の電子受容体 (水分活性が 0.94 以上に上昇し、微生物活動再開直後の硝酸塩濃度 $2.0 \times 10^{-4} \text{ mol/dm}^3$) が存在することから、エネルギー獲得効率の面から SRB の活動は脱窒菌活動により制限を受けると考えられた。

緩衝材としての使用が想定されている圧縮ベントナイト中における SRB の炭素鋼腐食に及ぼす影響に関する研究において (西村ほか, 1999), SRB の活動は圧縮ベントナイト中では抑制されることが示されており、圧縮ベントナイト中における炭素鋼の腐食速度は微生物活動に影響されず、降水系模擬地下水では約 $5 \mu \text{ m/年}$ 、海水系模擬地下水では約 $10 \mu \text{ m/年}$ であった。こうしたことから、緩衝材中での SRB の活動が処分容器の腐食に及ぼす影響は小さいと言える。また、SRB が活発に活動するという保守的な仮定に基づき、人工海中での SRB の活動を模擬した試験 (硫化水素ガスを吹き込み) において、炭素鋼の腐食速度が測定されている (谷口ほか, 2001)。この結果、炭素鋼の腐食速度は、硫化水素吹き込み (SRB が活発に活動している状態を模擬) により溶液中 (緩衝材の無い場合を想定) では約 $60 \mu \text{ m/年}$ 、ベントナイト中では $30 \sim 40 \mu \text{ m/年}$ であった。しかし、溶液中及びベントナイト中共に、硫化水素吹き込みと窒素ガス吹き込み (SRB が活動していない場合を想定) との間に明確な差は認められていない。こうしたことから、SRB の活動による金属の微生物腐食による影響は小さいと考えられる。

(7) メタン生成菌活動の評価

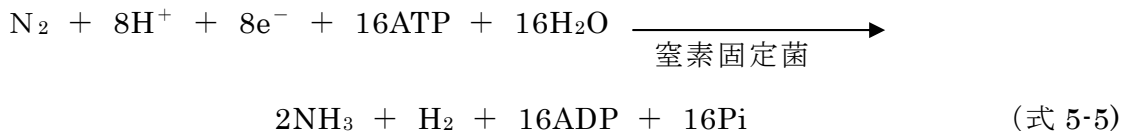
メタン生成菌はその活動に最適な酸化還元電位から、TRU 廃棄物の地層処分環境では、最後に活動する微生物群であると考えられ、他の微生物活動により生成される有機酸と二酸化炭素を利用して活動する。したがって、メタン生成菌が活発に活動した場合、セメント分解菌活動により生成された有機酸及び二酸化炭素を消費 (減少) し、

これらに由来する種々の影響を緩和する可能性がある。

また、メタン生成菌が C-14 を含む化学種を利用した場合、C-14 の放射性ガス状化学種（C-14 メタン）が生成される可能性がある。

(8) 脱窒菌活動の評価

一般的には、窒素を生成する脱窒作用を脱窒反応というが、腸内細菌にはアンモニアを生成する非脱窒型の硝酸塩還元（硝酸からアンモニアを生成）を行う微生物も存在する。しかし、非脱窒型の硝酸塩還元を行う腸内細菌が地層処分環境に持ち込まれる可能性は低い。また、窒素からアンモニアを生成（窒素固定）する微生物として、根粒菌（マメ科植物と共生：好気性）、好気性土壌細菌（*Azotobacter* 属）、嫌気性土壌細菌（*Clostridium* 属）、シアノバクテリア（*Anabaena* 属：藍藻）、光合成細菌（例えば、*Rhodospirillum rubrum*）等が存在する。根粒菌はマメ科植物との共生により常に窒素固定を行うが他の窒素固定微生物は特定の条件でのみ窒素固定の代謝系が発現する。すなわち、根粒菌以外の微生物による窒素固定（窒素ガスのアンモニアへの還元）は微生物の生育環境中に多量の光合成産物（糖類等の多量のエネルギー源）もしくは光エネルギーが存在し、かつ含窒素化合物がない場合に微生物活動に必要なアミノ酸合成を行うための代謝系である。*Azotobacter* 属は糖類の好気分解、*Clostridium* 属は糖類の嫌気分解、藍藻／光合成細菌は光エネルギーにより窒素固定に必要なエネルギーを獲得する。窒素ガスのアンモニアへの還元は非常にエネルギーを要求する反応であり、1 分子の窒素ガスから 2 分子のアンモニアを生成するために 16 分子の ATP が消費され、16 分子の ADP 及び無機リン酸（式 5-5 中では Pi と表している。）が生成する（式 5-3）。微生物による窒素からのアンモニア生成反応は微生物の生育環境中に窒素ガス以外の含窒素化合物が存在すると進行しない。また、生成されたアンモニアは菌体外に放出されることなく、微生物活動に必要なアミノ酸に変換される。



TRU 廃棄物の地層処分環境では、マメ科植物との共生によりアンモニア生成を行う根粒菌は活動しない。したがって、TRU の処分環境で窒素ガスのアンモニアへの還元を行う可能性のある微生物は、嫌気性細菌である *Clostridium* 属であるが、地層処分環境ではアンモニアへの還元に必要なエネルギーを得られる光合成産物（糖類等）が存在せず、かつ廃棄物由来の硝酸イオンが供給される環境では窒素ガスのアンモニアへの還元代謝サイクルは常に抑制されていると考えられる。したがって、TRU 処分環境では微生物活動で硝酸イオンからアンモニアが生成される可能性は小さいと考えられる。

脱窒菌の活動によりグループ 3 廃棄物に含まれる硝酸イオンから窒素ガスが発生する可能性がある。硝酸イオンの化学的変遷は、実験的検討及び既往の知見に基づきモデル化が行われ硝酸塩の化学的変遷を評価するコード NEON が開発されている（本田

ほか、2005)。脱窒菌活動による硝酸塩の微生物学的変遷（脱窒作用）を評価するために、NEONに微生物活動による脱窒反応を組み込み（付録1参照）、グループ3における硝酸塩の微生物学的変遷が評価された（増田ほか、2005）。この結果、脱窒菌の活動により発生する窒素ガスは脱窒菌の活動が最も活発な時期においても、年間処分坑道1mあたり約 $0.08\text{m}^3/\text{年}/1\text{m}$ 程度であった。

また、硝酸イオンは大部分が硝酸ナトリウムの型で存在すると考えられることから、脱窒作用による硝酸イオンの消費（窒素生成）は Na^+ を遊離させ、生成有機酸によるpH低下を緩和する可能性がある。

6. TRU 廃棄物の地層処分環境における微生物活動が処分システムに与える影響の評価

前章において評価したTRU廃棄物の地層処分環境における微生物活動が、処分システムに与える影響を事象毎に評価した。

6.1 核種の溶解度や収着特性に与える影響

(1) pH変化に及ぼす影響

処分施設中の間隙水のpH変化を生起する微生物の影響としては、有機基質（セメント混和剤、セルロース、アスファルト、TBP類）からの有機酸及び二酸化炭素の生成並びにTBP類からのリン酸の生成が考えられる。有機酸と二酸化炭素によるpH変化は前述したように（5.2項②）、有機基質がすべて二酸化炭素に代謝・分解されると仮定することで保守性が担保される。セメント混和剤、セルロース、アスファルト及びTBP類分解菌の活動により各有機基質から生産される二酸化炭素量を表6-1に示す。表6-1から明らかなように、グループ1、2及び4では有機基質から生成される二酸化炭素生成量と間隙水中のセメント系材料中のカルシウムの水和物を比べると、カルシウムの水和物量が1~2桁多い。したがって、グループ1、2及び4では処分環境中の全有機物がすべて二酸化炭素に代謝・分解された場合においても、微生物活動で生成される二酸化炭素はセメント系材料中のカルシウムの水和物により中和され、pH変化に与える影響は小さいと考えられる。一方、グループ3では、有機基質としてアスファルトが多量に持ち込まれる。アスファルトはフミン物質と同様に微生物による分解を受け難い有機基質であるが、仮に、アスファルト中の飽和分と芳香族分のすべてが二酸化炭素に代謝・分解された場合、発生する二酸化炭素量はセメント系材料中のカルシウムの水和物量の約6割（モル比）となる。しかし、後述するように（6.2(1)項）、アスファルトから生成される二酸化炭素により変質したセメント系材料はRegion III相当のpH緩衝性を維持している。また、TBP類分解菌の活動によりリン酸が遊離される可能性がある。しかし、リン酸は不溶性の水酸アパタイト $[\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{OH})_2]$ として沈殿し、その間隙水中の濃度は $10^{-6}\text{mol}/\text{dm}^3$ 程度まで減少する（武井ほか、2002）。また、TBP類の微生物分解により遊離するリン酸量はセメント系材料中のカルシウムの水和物量に比べ5桁小さい。こうしたことから、TBP類の微生物分解により生成するリン酸がpH変化に与える影響は小さいと考えられる。

表 6-1 有機基質からの二酸化炭素生成量

Gr.	CO ₂ 量 (mol/1m ³ -坑道)					カルシウム水和物量 (mol/1m ³ -坑道)
	セメント混和剤	糖酸類	アスファルト	TBP 類	合計	
1	5.6×10 ³	0	0	0	5.6×10 ³	2.6×10 ⁵
2	4.2×10 ³	2.6×10 ¹	0	0	4.2×10 ³	1.9×10 ⁵
3	1.5×10 ⁴	0	3.9×10 ⁵	4.8×10 ²	4.1×10 ⁵	6.8×10 ⁵
4	1.5×10 ⁴	0	0	0	1.5×10 ⁴	6.8×10 ⁵

(2) 錯体形成に及ぼす影響

有機基質分解菌の代謝産物等は錯化剤として作用する可能性がある。しかし、地層処分環境に持ち込まれる有機物の微生物代謝に関する知見は乏しく、地層処分環境で活動する微生物の代謝産物と核種との錯体形成を評価することは困難である。一方、この錯化剂的働きをする可能性がある代謝産物は易利用性有機物であり、微生物活動により消費される可能性もあるが、有機酸を含む微生物の代謝産物を他の微生物が消費する活動は不確実性がある。なお、グループ 2 に含まれるウエス等由来の有機物による錯化剤生成の影響は、全有機物がセルロースであり、そのすべてが ISA に分解されるという保守的仮定に基づく評価を実施しており（本田，2005），その結果は、核種移行解析に反映されている。

こうしたことから、セルロース以外の他の有機基質の微生物代謝産物と核種との錯体形成に関しては今後の課題である。

(3) コロイド形成並びに核種の収着及び取り込みの影響

緩衝材として乾燥密度 1.6g/cm³ のベントナイト-ケイ砂混合物（ベントナイト 70%、ケイ砂 30%）が使用されるとすると、ベントナイトのろ過効果（Kurosawa et al., 1997）により、たとえ微生物が核種を取り込みコロイド様の挙動を示したとしても、その移動は抑制される。また、微生物の生成する粘性多糖類等による有機コロイドの形成も考えられるが、粘性多糖類は機械的せん断力が作用しなければバイオフィーム等のような巨大分子構造を形成し、微生物自身がコロイド様挙動を示した場合と同様にベントナイトにより移動が抑制される。こうしたことから、緩衝材が使用される処分施設では微生物に由来するコロイドの形成は、緩衝材機能が健全に保持されている期間は緩衝材のろ過効果により核種の移行促進は起こらない。

一方、緩衝材が変質しろ過機能が損なわれる場合や緩衝材を設置しない処分施設では、微生物によるコロイド形成並びに核種の収着や取り込みによる影響は、知見が乏しく評価することが困難であり処分システムに与える影響は今後の課題である。

(4) 酸化還元状態の変化に及ぼす影響

処分環境は処分坑道閉鎖後に好気性微生物活動や金属腐食に伴う酸化性化学種の消費等により嫌気状態に移行する。嫌気状態に移行後は嫌気性微生物の活動により地層本来の還元状態に徐々に移行し、表 2-3 に示すように、その酸化還元状態に最適な微生物が活動し、酸化状態に再度移行することはない。

このため、微生物活動により酸化還元状態が酸化性に变化し、核種の溶解度や収着特性に与える影響は小さいと考えられる。

6.2 人工バリア及び天然バリアに与える影響

(1) セメント系材料変質に及ぼす影響

前述のように (6.1(1)項)、全廃棄体グループにおいて、含有される有機物から発生する二酸化炭素量は、セメント系材料中のカルシウムの水和物量に比べ少なく、また、リン酸 (グループ 3) は不溶性の水酸アパタイトとして沈殿する。こうした中和反応や沈殿の生成はセメント系材料からのカルシウムの溶脱を生起するが、グループ 3 以外ではセメント系材料中のカルシウム水和物量が 1~2 桁多いことから、セメント系材料変質に与える影響は小さいと考えられる。

前述のようにアスファルトが微生物に利用し難い有機物であることを考慮すると、微生物によるアスファルトの代謝・分解反応は、長期間にわたりゆっくりと進行すると考えられる。しかし、物量の多いアスファルトの影響で最終的にはセメント系材料中のカルシウムの水和物量の約 6 割 (モル比) の二酸化炭素が生成する (表 6-1)。この影響は通常の構造材としてのセメント系材料には大きな影響を与えられ。しかし、処分施設閉鎖後のセメント系材料に期待する機能は、pH 緩衝性及び核種の収着性であることから、アスファルトからの二酸化炭素生成が瞬時に起こると仮定して予察的な検討を行った。この結果、アスファルトから生成される二酸化炭素の影響によりカルシウムが溶脱したセメント系材料は Region III 相当の pH 緩衝性を維持しており (表 6-2)、かつ常に Region III に相当する条件が維持されるとして核種移行解析を実施しても、線量はレファレンスケースと大きな変化は生じない (図 6-1) (付録 2 参照)。こうしたことから、核種移行に対するこれらの影響は小さいといえる。

表 6-2 生成二酸化炭素による間隙水組成の変化

	初期	反応後
pH	—	11.1
CO ₂ (mol/dm ³)	1.8×10 ¹	0
Ca(OH) ₂ (mol/dm ³)	7.4	0
エトリンサイト*	2.1×10 ⁻¹	2.1×10 ⁻¹
hidroガーネット*	1.1	0
ブルーサイト*	1.2	0
C-S-H (1.8) *	1.6×10 ¹	0
C-S-H (1.0) *	0	6.3
C-S-H (1.1) *	0	4.4×10 ⁻¹
CaCO ₃ *	0	1.8×10 ¹
グロシュラー*	0	8.2×10 ⁻¹
ハイドロタルサイト*	0	3.1×10 ⁻¹

* : 間隙水 1dm³あたりの鉱物量(mol)

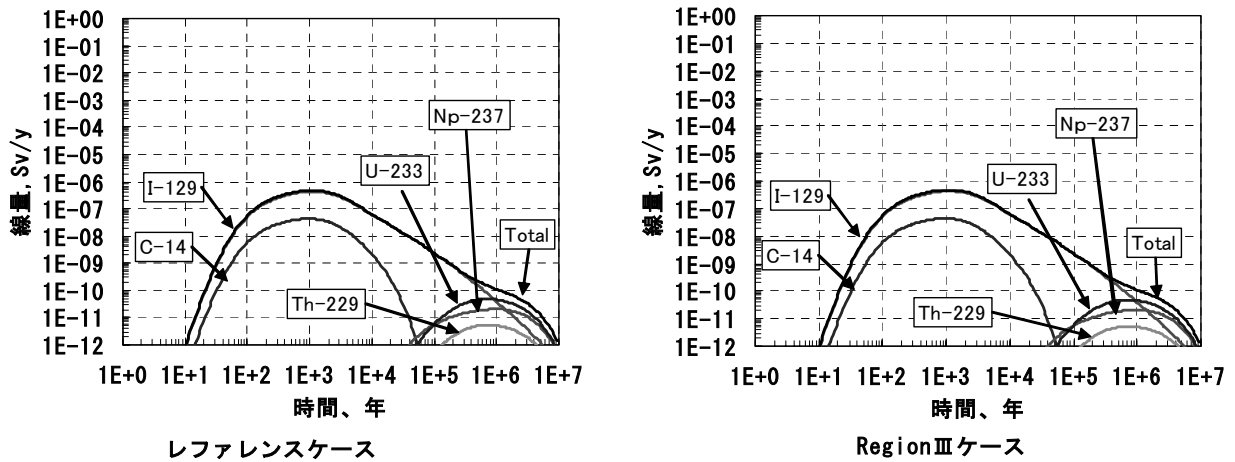


図 6-1 グループ 3 の Region III 相当条件での核種移行解析

(2) 金属腐食に及ぼす影響

微生物が生成する有機酸，リン酸はセメント系材料中のカルシウムの水和物により中和されることから金属腐食に与える影響は小さいと考えられる。

SRB の活動は圧縮ベントナイト中では抑制される (西村ほか, 1999)。さらに, SRB の活動を模擬した試験 (硫化水素ガス吹き込み) において, 炭素鋼の腐食速度は硫化水素吹き込み (SRB が活発に活動している状態を模擬) と窒素ガス吹き込み (SRB が活動していない状態を想定) との間に明確な差は認められていない (谷口ほか, 2001)。こうしたことから, SRB の活発な活動を仮定しても, 金属腐食に及ぼす影響並びに腐食に伴うガス発生に与える影響は小さいと考えられる。また, 代替設計概念を除いて金属容器に核種の封じ込め性は期待しておらず, 核種移行解析は瞬時放出を仮定して評価が行われている。したがって, たとえ微生物活動によりこれらの金属容器が腐食貫通したとしても核種移行評価に及ぼす影響はない。

(3) アスファルト変質に及ぼす影響

放射性廃液の固化マトリクスであるアスファルトには、核種の封じ込め性能は安全評価上期待しておらず、瞬時放出を仮定して安全評価が行われている。したがって、微生物がアスファルトの変質を速め、その結果として、固化マトリクスからの核種放出速度が上昇したとしても核種移行評価に及ぼす影響はない。一方、地下深部におけるアスファルト等の有機基質の微生物による代謝・分解に関する知見は乏しく、アスファルトの代謝産物による影響に関する知見を拡充することが必要である。

(4) ベントナイト変質に及ぼす影響

ベントナイトに対する微生物影響としては、微生物活動により生成する有機性カチオンがベントナイトの主要構成鉱物であるスメクタイトの層間に入り込みベントナイトの特性を変える可能性が考えられる。一方、有機性カチオンは、そのほとんどすべてが窒素化合物であり、特に、アミン系化合物が重要な有機性カチオンである（化学大辞典，1987）。ベントナイト緩衝材が設置されるグループ 1 及び 2 の処分施設においては、廃棄物から持ち込まれる有機基質は少なく、窒素化合物は持ち込まれない。また、地下水中の天然有機物濃度及び窒素濃度も低い（長尾，1995；サイクル機構，1999）。セメント混和剤については、窒素化合物を含まない薬剤を選択することができる。したがって、微生物活動により生成する有機性カチオンが、スメクタイトの層間に入り込み、ベントナイトの特性を変える可能性は低い。また、前述したように（6.1(1)項）、微生物活動による極端な pH 変化は起こらないことから、pH 変化がベントナイト変質に及ぼす影響も小さいと考えられる。

(5) 空隙閉塞に及ぼす影響

バイオフィームや CaCO_3 の生成は処分システムの空隙を閉塞し、地下水の移動を抑制する可能性がある。このため、微生物活動による空隙閉塞は処分システムに優位に働く可能性がある。

6.3 その他の影響

(1) ガス発生に及ぼす影響

処分環境での微生物活動による主要な発生ガスは、二酸化炭素（すべての微生物活動）と窒素（脱窒菌活動）である。二酸化炭素は処分環境では水への溶解度が高く、 CaCO_3 として固定される。セメント系材料中のカルシウムの水和物量は二酸化炭素発生量に比べて大きいことから（表 6-1）、二酸化炭素発生が処分システムに与える影響は小さいと考えられる。また、脱窒菌の活動による窒素ガス発生速度は、たとえ腐食による水素ガス発生速度に脱窒菌による窒素ガス発生を考慮しても、金属の腐食速度を $0.1 \mu\text{m}/\text{年}$ で一定と仮定して算定した水素ガス発生速度を大きく上回るものではなく、最大時で 1.3 倍程度であった（増田ほか，2005）。さらに、TRU 廃棄物の地層処分環境ではメタンが発生する可能性もある。こうしたガス発生による影響はガスの影響の評価に含めて考えることが可能である。

一方、メタン生成菌が C-14 を含む化学種を利用した場合、C-14 の放射性ガス状化学種（C-14 メタン）が生成される可能性があり、生成の可能性及び移行挙動の評価に関する知見を充実する必要がある。

6.4 TRU 廃棄物の地層処分システムに与える微生物影響のまとめ

微生物活動が TRU 廃棄物の地層処分システムに与える影響を評価した結果、微生物活動による pH 変化、酸化還元反応、セメント系材料変質、金属腐食、アスファルト変質、ベントナイト変質、空隙閉塞が処分システムの安全性を損なう影響は小さいと考えられた。一方、微生物活動による核種の溶解度や収着特性に影響を及ぼす錯体形成及びコロイド形成（核種を取込んだ微生物自身のコロイドとしての挙動を含む）、並びにガス発生（放射性ガス状化学種生成を含む）については、当該微生物活動の不確実性が大きいことから今後の課題とした。

7. おわりに

TRU 廃棄物の地層処分システムに対する微生物影響評価の信頼性の向上のためには、微生物による基質代謝スキームの解明（アスファルト分解、C-14 メタン生成等）及び代謝産物影響（錯化剤/コロイド形成等）の評価を行うことが必要である。具体的には、以下の研究開発を図ることが必要となる。

- ・ 有機基質代謝スキームの解明

セメント混和剤（特に、間隙水中に存在する低分子有機物）、セルロース（糖酸類）及びアスファルトの微生物代謝スキームを解明し、錯体形成やコロイド形成に与える影響及び代謝産物による微生物活性化プロセスの理解を深める必要がある。特に、セメント系材料から溶出するセメント混和剤及び物量の多いグループ 3 に含まれるアスファルトは重要な有機基質である。

- ・ C-14 影響の把握

放射性ガス状化学種（C-14 メタン）の生成プロセスの理解、生成速度、評価方法の確立等を行う必要がある。

また、地層処分環境における微生物活動及び影響に関する知見は乏しく、室内外の試験研究によるデータの充実及び微生物活動の評価に係る知見の拡充を図る必要がある。

8. 謝 辞

本研究をまとめるにあたり、有益なご助言を賜りました独立行政法人 海洋研究開発機構 掘越弘毅博士に心から謝意を表します。

9. 参考文献

- Agg, P.J. : “Modelling gas generation in radioactive waste repositories, Nucl. Energy”, Vol.32, p.81-87(1993).
- Arter, H.E, Hanselman, K.W., Bachofen, R. : “The behaviour of microorganisms in a waste repository”, *Experienta* Vol.47, p.578-583(1991).
- Boone, D.R., Liu, Y., Zhao, Z., Balkwill, D.L., Drake, G.R., Stevens, T.O., and Aldrich, H.C. : “*Bacillus infernus* sp. nov., an Fe(III)- and Mn(IV)-reducing anaerobic from the deep terrestrial subsurface”, *Int. J. Syst. Bacteriol.*, Vol.45, p.441-448(1995).
- Chang. Y., Peacock, A.D., Long, P.E., Stephen, J.R., McKinley, J.P., Macnaughton, S.J., Hussain, A.K.M.A., Saxton, A.M., and White, D.C. : “Diversity and characterization of sulfate-reducing bacteria in groundwater at a uranium mill tailings site”, *Appl. Environ. Microbiol.*, Vol.67, p.3149-3160(2001).
- シーエムシー : コンクリート混和剤の開発技術, シーエムシー(1998)
- コンクリート用化学混和剤協会 : コンクリート用化学混和剤協会ホームページ (<http://www.moon.sphere.ne.jp/jcaa/>), 高性能 AE 減水剤について (2003) .
- Cragg, B.A., Harvery, S.M., Fry, J.C., Herbert, R.A., and Parkes, R.J. : “Bacterial biomass and activity in the deep sediment layers of the Japan Sea, Hole 798B”, *Proc. Ocean Drill Program: Sci. Results*, Vol.127/128, p.761-776(1992).
- Cragg, B.A., Harvery, S.M., Fry, J.C., Weightman, A.J., Rochelle, P.A., Maxwell, J.R., Kastner, M., Hovland, M., Whiticar, M.J., and Sample, J.C. : “ The impact of fluid and gas venting on bacterial populations and processes in sediments from Cascadia Margin accretionary system (sits 888-892) and the geochemical consequences”, *Proc. Ocean Drill Program: Sci. Results*, Vol.146, p.399-411 (1995).
- D’Hondt, S., Ruthetrford, S. and Spivack, A.J. : “ Metabolic activity of subsurface life in deep-sea sediments”, *Science*, Vol.295, p.2067-2070 (2002).
- EIC ネット環境用語集:環境情報提供システム(<http://www.eic.or.jp/ecotem>) (2005).
- Felmy, A.R. : GMIN: A Computerized Chemical Equilibrium Model Using a Constrained Minimization of the Gibbs Free Energy, PNL-7281, Pacific Northwest Lab., Richland, WA (1990) .
- 福本雅弘, 西川義朗, 加川昭夫 : アスファルトから浸出する可溶性有機成分に関する評価試験(6) - 還元雰囲気アスファルト浸出試験での可溶性有機成分の調査研究 -, JNC TN8410 2002-009(2002).
- 藤原和弘, 川嶋文人 : 微生物の地層処分環境条件における馴化の研究, JNC TJ8400 2002-034(2002).
- Greenfield, B. F, Ito, M., Spindler, M. W., Williams, S., J. and Yui, M : “The Effects

- of The Chemical and Radiolytic Degradation of Asphalt on Plutonium Solubility”, Mat. Res. Soc. Symp.Proc., Vol.465 (1997) .
- Hazen, T.C., Jimenez, L., Lopez de Victoria G. and Fliermans, C.B. : “Comparison of bacteria from deep subsurface sediment and adjacent groundwater”, Microb. Ecol., Vol.22, p.293-304 (1991).
- 本田明：ハル・エンドピース廃棄物に含まれる有機物の放射性物質の溶解度及び収着に及ぼす影響について，JNC TN8400 2004-011 (2004) .
- 本田明，増田薫，建石剛，今北毅，西村務，加藤修：炭素鋼の腐食に伴う硝酸イオンの化学的変遷のモデル化，JNC TN8400 2005-023 (2005) .
- 掘越弘毅，秋葉暁彦：好アルカリ微生物，学会出版センター(1993).
- Humphreys, P., Johnstone, T., Trivedi, D., Hoffmann, A. : “The biogeochemical transport code DRINK : A mechanistic description. ”, Mat. Res. Soc. Symp. Proc., Vol.353, p.211-218(1995).
- Inagaki, F., Takai, K., Komatsu, T., Kanamatsu, T., Fujioka, K. and Horikoshi, K. : “Archaeology of archaea: Geomicrobiological record of Pleistocene thermal events concealed in a deep-sea subseafloor environments”, Extremophiles, Vol.5, p.385-392(2001).
- Inagaki, F., Okada, H., Tsapin, A., Nealson, K.H. and Horikoshi, K. : “Endolithic genetic record of ancient microbes in Cretaceous black shale”, Geochim. Cosmochim. Acta., Vol.66, (S1), p.A354(2002a).
- Inagaki, F., Sakihama, Y., Takai, K., Komatsu, T., Inoue, A., and Horikoshi, K. : “Profile of microbial community structure and presence of endolithic microorganisms inside a deep-sea rock”, Geomicrobiol. J., Vol.19, p.535-552(2002b).
- 入矢桂史郎，久保博，加藤忠男，藤田英樹：人工バリア材の変質に関する研究－硝酸塩及びセメントからの浸出物の影響－，JNC TJ8400 2000-034, p.71(2000).
- 化学大辞典：化学大辞典縮刷版 30 刷，共立出版株式会社 (1987) .
- 核燃料サイクル開発機構：わ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，JNC TN1400 99-020, 021, 022, 023(1999).
- 菅野毅，福永栄，栃木善克，油井三和，吉川英樹，吉田泰，青木和弘，工藤章，加藤憲二，難波謙二，宮坂都，Wang, Y. : 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，JNC TW 8404 2003-035 (2004) .
- 共同作業チーム 核燃料サイクル開発機構・電気事業連合会：TRU 廃棄物処分概念検討書，JNC TY1400 2000-001 (2000) .
- Kotelnikova, S., Macario, A.J. and Pedersen, K. : “*Methanobacterium subterraneum* sp. nov., a new alkaliphilic, eurythermic and halotolerant methanogen isolated from deep granitic groundwater”, Int. J. Syst. Bacteriol., Vol.48, p.357-367 (1998).
- 倉形光一郎，小嶋裕，石川一富，須藤光男：ハル缶廃棄物選別試験(2)-ハル等廃棄物有

- 機物除去試験-, PNC ZN8410 2000-010 (2000)
- Kurosawa, S., Yui, M., and Yoshikawa, H. : “ Experimental Study of Colloid Filtration by Compacted Bentonite”, Mat. Res. Soc. Symp. Proc., Vol.465, p.963-970 (1997) .
- 増田薫, 加藤卓, 本田明 : 硝酸イオンの金属腐食反応及び微生物反応による化学的変遷挙動の評価, JNC TN8400 2005-021 (2005).
- 村上由紀, 岩月輝希, 長沼毅 : “東濃地域における地下水化学と地下微生物の相互作用”. J. of Geography, Vol.112(29), p.277-287(2003).
- 長尾誠也 : “地下水中に存在する腐食物質の特徴と TRU 元素との錯体形成能. 放射性廃棄物研究”, Vol.1, p.231-242 (1995) .
- 長沼毅, 足立奈保美, 藤田夕佳, 谷本大輔, 渡辺史子, 岡本拓士, 村上由記, 天野健治, 岩月輝希, 濱克宏 : 東濃地下の窒素固定菌・硝化菌・脱窒菌 : “地下微生物が地下窒素サイクルに関与する可能性”, 地球惑星科学関連学会 2002 年合同大会要旨集, B006-011 (2002) .
- 西村務, 和田隆太郎, 西本英敏, 藤原和雄, 谷口直樹, 本田明 : ベントナイト中における炭素鋼の腐食挙動に及ぼす微生物の影響, JNC TN8400 99-077 (1999).
- 日本食品分析センター (2003) : 日本食品分析センターニュース, Vol.2.
- Parkes, R.J., Cragg, B.A., Bale, S.j., Getliff, J.M., Goodman, K., Rochelle, S.M. : “Deep bacterial biosphere in Pacific ocean sediments”, Nature, Vol.371, p.410-413 (1994).
- Pedersen, K., and Ekendahl, S. : “ Distribution and activity of bacteria in deep granitic groundwater of southeast Sweden”, Microb. Ecol., Vol.20, p.37-52(1990).
- Pedersen, K., Arlinger, J., Hallbeck, L., and Pettersson, C. : “ Diversity and distribution of subterranean bacteria in groundwater at Oklo in Gabon, Africa, as determined by 16S rRNA gene sequencing”, Mol. Eco., Vol.5, p.427-436(1996a).
- Pedersen, K., Arlinger, J., Ekendahl, S., and Hallbeck, L. : “ 16S rRNA gene diversity of attached and unattached bacteria in boreholes along the access tunnel to Aspo hard rock laboratory, Sweden”, FEMS Microbiol. Ecol., Vol.19, p.249-262(1996b).
- 笹本広, 瀬尾俊弘, 油井三和, 佐々木康雄 : 釜石鉱山における地下水の地球化学的研究(1), PNC TN8410 96-203 (1996) .
- 資源エネルギー庁 放射性廃棄物対策室 : 「地層処分技術調査」技術検討委員会説明資料. 資料 4 III-106 (2003) .
- Takai, K., Moser, D.P., Onstott, T.C., and Spoedrickson, J.K. : “*Alkaliphilus transvaalensis* gen.nov., sp.nov., an extremely alkaliphilic bacterium isolated from a deep South African gold mine”, Int.J.Syst.Evol.Microbiol. Vol.51, p.1245-1256 (2001).
- 武井明彦, 大和田仁, 藤田英樹, 根岸久美 : セメント系材料に対する硝酸塩等の影響

評価, JNC TJ8400 2002-020 (2002).

立藤 (田中) 綾子, 松藤康司, 花嶋正孝: “無機塩類が埋立層内の微生物分解過程におよぼす影響”, 廃棄物学会論文誌, Vol. 6, p.105-114 (1995)

谷口直樹, 川崎学, 藤原和雄: ベントナイト中における硫酸塩還元菌の活性と硫化水素によるオーバーパッキング材料の腐食への影響, JNC TN8400 2001-011 (2001).

Van Loon, L.R., and Glaus, M.A. : *Journal of Environmental Polymer Degradation*, Vol.5, No.2, p.97-109(1997).

Wang, Y., and Papenguth, H.W. : “ A multicomponent reactive transport model of early diagenesis: Application to redox cycling in coastal marine sediments. ” , *Geochemical et Cosmochimica Acta.* , Vol.60 , p.2993-3014(1996).

Wellsbury, P., Goodman, K., Barth, T., Cragg, B.A., Barns, S.P., and Parkes, R.J. : “Deep marine biosphere fuelled by increasing organic matter availability during burial and heating”, *Nature*, Vol.388, p.573-576 (1997).

Widdel, F., Pfenning, N. : *Archives of Microbiology*, Vol.129, p.119(1977a).

Widdel, F., Pfenning, N : *Archives of Microbiology*, Vol.131, p.360.(1977b).

Widdel, F., Pfenning, N : *Archives of Microbiology*, Vol.134, p.286.(1977c).

Yim, M., Simonson, S.A., Sullivan T.M. : “ Investigation of ¹⁴C release in an engineered low-level waste disposal facility. ” , *Nuclear Technology*, Vol.114, p.254-271(1996).

付録 1 NEON への微生物反応の組み込み

1. モデル化

グループ 3 の処分施設では脱窒反応における電子受容体である硝酸塩とともに電子供与体となりうる有機基質（アスファルト及びセメント混和剤）が存在する。今回のモデルでは、有機基質の 98% 以上を占めるアスファルトを脱窒反応における電子供与体と想定しモデル化を行った。

図 A1-1 にモデルの概念図を示す。想定する TRU 廃棄物処分場では硝酸塩とともに電子供与体となりうるアスファルトが固体状態で存在すると考えられる。ここでは、この固体アスファルトは高アルカリ性環境でアルカリ分解され、可溶性有機物の形で間隙水中に溶出され、溶出されたアスファルト由来可溶性有機物は微生物により消費されると考えた。微生物はアスファルト由来の可溶性有機物と間隙水中の NO_3^- を使って活動し、代謝生成物及び窒素ガスを生成すると考えた。このモデルには以下の反応過程が含まれている。

① 固体アスファルトからのアスファルト由来可溶性有機物の生成

アスファルトの可溶化反応はアルカリによる可溶化反応と微生物による可溶化反応が考えられるが、後述する 1.1 項よりアルカリによる可溶化反応速度を用いることで評価の保守性が担保されると考えられることから、一次の化学反応を想定した。

② 固体硝酸塩の溶解

硝酸ナトリウムの飽和溶解度を想定した。

③ 微生物によるアスファルト由来可溶性有機物の分解

微生物反応をモデル化した Monod 式を想定した。

④ 微生物による NO_3^- の脱窒

微生物反応をモデル化した Monod 式を想定した。なお、脱窒反応は、式 A1-1 に示すように 4 段階の還元反応であるが、各ステップにおける反応速度が得られていないことから、地下水中の窒素分解や下水処理における脱窒反応等の取り扱いに準じて、これらを包含した NO_3^- から窒素ガスへの 1 段階の反応として扱った。



以下に上記の反応過程のモデル化とパラメータ導出結果を示す。

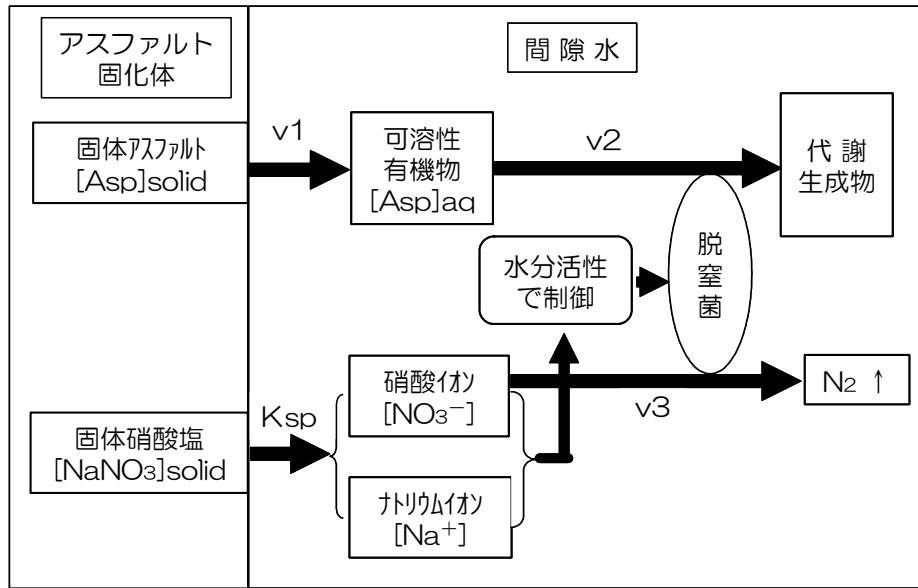


図 A 1 - 1 微生物による硝酸塩の還元モデルの概要

- | | | | |
|--------------|----------------|---------|-----------------------|
| [Asp]solid | : 固体アスファルト濃度 | [Asp]aq | : アスファルト由来可溶性有機物濃度 |
| [NaNO3]solid | : 固体硝酸塩濃度 | [NO3-] | : 溶解した硝酸イオン濃度 |
| d | | | |
| v1 | : アスファルトの可溶化速度 | v2 | : アスファルト由来可溶性有機物の分解速度 |
| v3 | : 脱窒速度 | | |

1.1 固体アスファルトの可溶化速度

TRU 廃棄物の処分環境におけるアスファルトの可溶化はアルカリによる溶解と微生物による溶解が考えられることから、高アルカリ条件での浸漬試験（加川・西川，1998）及び微生物共存下でのアスファルト可溶化試験（丸石ほか，1998）からアスファルトの可溶化速度定数 k_1 を算出した。なお、処分施設におけるアスファルトの可溶化反応はアスファルトの表面から徐々に進むことから、表面積あたりの速度に対応するものと考えられるが、ここでは近似的に固体アスファルト([Asp]solid)単位重量あたりの速度に対応するものと仮定した。

$$\frac{d[\text{Asp}]_{\text{solid}}}{dt} = -k_1 \cdot [\text{Asp}]_{\text{solid}} \quad (\text{式 A1-2})$$

① 高アルカリ条件における k_1 値

アルカリ性環境で行われたアスファルト浸漬試験（(アスファルト 10g + 水酸化カルシウム 5g + 硝酸ナトリウム 10g / 水 0.1 dm³), 90°C, 1100 日）において、約 1.2g dm⁻³ の全有機炭素（TOC）が増加した（加川・西川，1998）。

$$k_1 = \frac{0.1(\text{dm}^3) \times 1.2(\text{g dm}^{-3})}{1100(\text{day}) \times 10(\text{g-Asphalt})}$$

$$= 1.09 \times 10^{-5} \text{ g day}^{-1} (\text{g-Asphalt})^{-1}$$

② 微生物反応における k_1 値

微生物共存下でアスファルトの可溶化（固体重量の低減）についての報告がなされている（丸石ほか，1998）。これによると，全菌数 $7.5 \times 10^{11} \text{ cell dm}^{-3}$ の微生物溶液 0.1 dm^3 （M56 培地）中に浸漬したアスファルト 1 g が 95 日間で 0.072 g の重量が減少したと報告されている。ブローンアスファルトの炭素含有量は約 84.5% であることから，この重量減少を TOC 増加量に換算すると 0.61 g dm^{-3} となる。これから微生物による分解速度定数 k_1 を算出すると以下のようなになる。

$$k_1 = \frac{0.1(\text{dm}^3) \times 0.61(\text{g dm}^{-3})}{95(\text{day}) \times (7.5 \times 10^{11})(\text{cell dm}^{-3}) \times 1(\text{g-Asphalt})}$$

$$= 8.54 \times 10^{-16} \text{ g day}^{-1} \text{ dm}^3 \text{ cell}^{-1} (\text{g-Asphalt})^{-1}$$

ここで，保守的に微生物数を $5.0 \times 10^9 \text{ cell dm}^{-3}$ （東濃地区の深部地下水中の全菌数。村上ほか，2003）とすると，速度定数 k_1 は，

$$k_1 = 8.54 \times 10^{-16} (\text{g day}^{-1} \text{ dm}^3 \text{ cell}^{-1} (\text{g-Asphalt})^{-1}) \times 5.0 \times 10^9 \text{ cell dm}^{-3}$$

$$= 4.28 \times 10^{-6} \text{ g day}^{-1} (\text{g-Asphalt})^{-1}$$

となり，高アルカリ条件下におけるアスファルトの可溶化実験から得られた k_1 の約 1/2.5 となる。

③ モデルで使用するアスファルト可溶化速度定数

上記①及び②の検討から TRU 廃棄物の処分環境における固体アスファルトの可溶化は，アルカリによる溶解が主であり，微生物による固体アスファルトの可溶化は無視することができると考えられた。したがって，高アルカリ条件下での固体アスファルトの可溶化速度定数 k_1 を用いることで評価の保守性が担保されると考えられることから，高アルカリ条件下で得られた k_1 値を使用することとした。

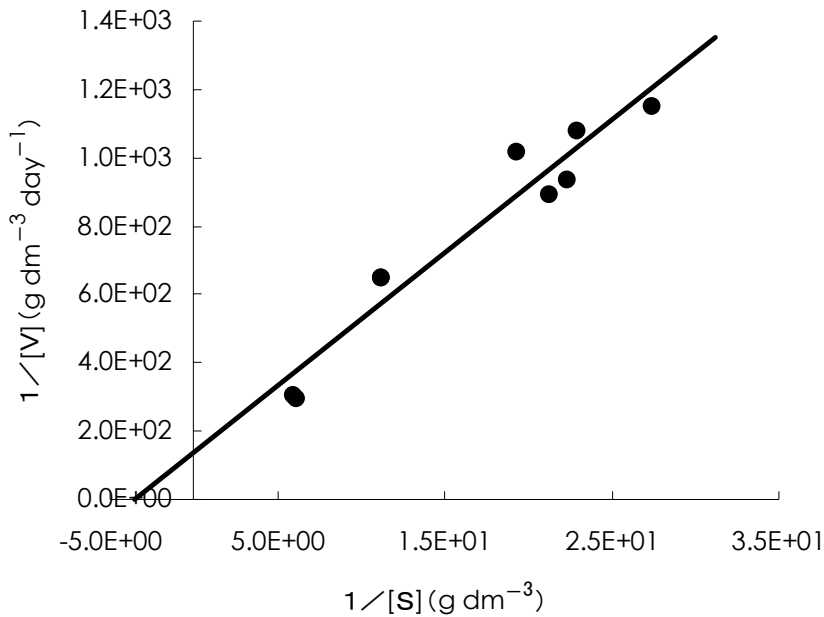
1.2 微生物によるアスファルト由来可溶性有機物の分解速度

微生物によるアスファルト由来可溶性有機物の分解速度は、微生物数を XB 、アスファルト由来可溶性有機物に対する飽和定数を K_m とすると飽和項を考慮した Monod 式より式 A1-3 で与えられる。

$$\frac{d[\text{Asp}]_{\text{aq}}}{dt} = -k_2 \times \frac{[\text{Asp}]_{\text{aq}}}{(K_m + [\text{Asp}]_{\text{aq}})} \times XB \quad (\text{式 A1-3})$$

高アルカリ環境下 (pH12.5) での微生物によるアスファルト分解試験結果 (藤原・川嶋, 2002) から, Lineweaver-Burk プロット解析により (図 A1-2), アスファルト由来可溶性有機物に対する飽和定数 K_m 及び最大分解速度 V_{max} を算出した。この結果, アスファルト由来可溶性有機物に対する $K_m = 0.284 \text{ g dm}^{-3}$, $V_{\text{max}} = 7.3 \times 10^{-3} \text{ g dm}^{-3} \text{ day}^{-1}$ であった。また, この時の微生物濃度は $5 \times 10^7 \text{ cell dm}^{-3}$ であったことから, 菌数 XB あたりの分解速度として式 A1-3 を整理し, k_2 を算出すると, 以下の通りとなる。

$$k_2 = \frac{V_{\text{max}}}{XB} = 1.5 \times 10^{-10} \text{ g cell}^{-1} \text{ day}^{-1}$$



図A1-2 pH12.5における Lineweaver-Burk プロット解析結果

V : アスファルト由来可溶性有機物の分解速度 ($\text{g dm}^{-3} \text{ day}^{-1}$)

S : アスファルト由来可溶性有機物の初期濃度 (g dm^{-3})

1.3 微生物による高濃度硝酸塩の脱窒速度

微生物による脱窒速度式としては Monod 型の速度式が一般的であり、今回取り扱う系においても同様の式 A1-4 が適用できると考えてパラメータを算出する。ここで、脱窒反応における飽和定数を K_n とする。

$$\frac{d[\text{NO}_3^-]}{dt} = k_3 \times \frac{[\text{NO}_3^-]}{(K_n + [\text{NO}_3^-])} \times \frac{[\text{Asp}]_{\text{aq}}}{(K_m + [\text{Asp}]_{\text{aq}})} \times \text{XB} \quad (\text{式 A1-4})$$

脱窒菌存在下、pH8.5 の条件において、 NO_3^- から N_2O の発生速度を脱窒活性の数値として測定した実験から、単位タンパク質量あたりのガス発生量として、 $180 \mu\text{L h}^{-1} \text{mg}^{-1}$ が最大と報告されている（嶺ほか，2002）。 NO_3^- 1mol の分解で 0.5 mol (11.2 dm^3) の N_2O が発生し、微生物の蛋白質濃度 20% (大腸菌で 17%)、微生物の重量が $1 \times 10^{-12} \text{ g cell}^{-1}$ であると仮定すると、脱窒速度 (NO_3^- ベース) は以下のように計算することができる。

$$\begin{aligned} d[\text{NO}_3^-]/dt &= 180 \times 10^{-6} \div 11.2 \times 0.20 \times \text{XB} \\ &= 3.21 \times 10^{-6} (\text{mol h}^{-1} \text{mg}^{-1} \text{cell}^{-1}) \cdot \text{XB} \\ &= 7.7 \times 10^{-14} (\text{mol day}^{-1} \text{cell}^{-1}) \cdot \text{XB} \end{aligned} \quad (\text{式 A1-5})$$

この実験が、有機・無機混合培地により十分な栄養があり NO_3^- も十分に存在する条件で測定されたことを考慮すると、式 A1-5 は式 A1-4 において $[\text{Asp}]_{\text{aq}} \gg K_m$ 、及び $[\text{NO}_3^-] \gg K_n$ が成立すると考えることができる。すなわち、式 A1-4 における k_3 の値を求めることができる。

$$k_3 = 7.7 \times 10^{-14} \text{ mol day}^{-1} \text{ cell}^{-1} \quad (\text{式 A1-6})$$

最終的に、以下の式 A1-7 が得られる。

$$\frac{d[\text{NO}_3^-]}{dt} = k_3 \times \frac{[\text{NO}_3^-]}{(K_n + [\text{NO}_3^-])} \times \frac{[\text{Asp}]_{\text{aq}}}{(K_m + [\text{Asp}]_{\text{aq}})} \times \text{XB} \quad (\text{式 A1-7})$$

ここで、脱窒素反応の飽和定数 K_n は下水処理で報告されている値 ($30 \mu \text{ mol dm}^{-3}$) とした（市岡ほか，1999）。

1.4 水分活性と微生物活動の関係

一般に、微生物は高塩分濃度下においてその活性が著しく低下することが知られている。一方で、苛酷な環境下においても微生物の増殖の可能性も指摘されている。そこで、水分活性を微生物の活動の指標として考え、塩分濃度から水分活性を計算し、微生物活動の閾値としてパラメータとすることとした。つまり、水分活性の値により微生物活動の有無を規定する。 NO_3^- 濃度と水分活性の関係は、計算コード GMIN (Felmy, 1990) により式

A1-8 を得た。

$$\text{水分活性} = 0.0007 \times [\text{NO}_3^-]^2 - 0.0302 \cdot [\text{NO}_3^-] + 0.9982 \quad (\text{式 A1-8})$$

1.5 微生物モデルのまとめ

以上の検討で導出された速度式とパラメータを整理する。

① 固体アスファルトの可溶化

$$\frac{d[\text{Asp}]_{\text{solid}}}{dt} = -k_1 \cdot [\text{Asp}]_{\text{solid}} \quad (\text{式 A1-9})$$

$$k_1 = 1.09 \times 10^{-5} \text{ g day}^{-1} (\text{g} \cdot \text{Asphalt})^{-1}$$

② アスファルト由来可溶性有機物の微生物分解

$$\frac{d[\text{Asp}]_{\text{aq}}}{dt} = k_2 \times \frac{[\text{Asp}]_{\text{aq}}}{(K_m + [\text{Asp}]_{\text{aq}})} \times X_B \quad (\text{式 A1-10})$$

$$k_2 = 1.5 \times 10^{-10} \text{ g cell}^{-1} \text{ day}^{-1}, \quad K_m = 0.284 \text{ g dm}^{-3}$$

③ アスファルト由来可溶性有機物存在下での微生物による硝酸イオン還元

$$\frac{d[\text{NO}_3^-]}{dt} = k_3 \times \frac{[\text{NO}_3^-]}{(K_n + [\text{NO}_3^-])} \times \frac{[\text{Asp}]_{\text{aq}}}{(K_m + [\text{Asp}]_{\text{aq}})} \times X_B \quad (\text{式 A1-7})$$

$$k_3 = 7.7 \times 10^{-14} \text{ mol day}^{-1} \text{ cell}^{-1}, \quad K_n = 3.0 \times 10^{-5} \text{ mol dm}^{-3}$$

物質収支を考慮して、固体アスファルトからの可溶化アスファルトの生成速度、微生物によるアスファルト由来の可溶性有機物の分解速度及び NO_3^- の脱窒速度を整理すると以下の通りとなる。

$$\frac{d[\text{Asp}]_{\text{Solid}}}{dt} = -k_1 \cdot [\text{Asp}]_{\text{Solid}} \quad (\text{式 A1-8})$$

$$\frac{d[\text{Asp}]_{\text{aq}}}{dt} = k_1 \cdot [\text{Asp}]_{\text{Solid}} - k_2 \cdot \frac{[\text{Asp}]_{\text{aq}}}{(K_m + [\text{Asp}]_{\text{aq}})} X_B \quad (\text{式 A1-9})$$

$$\frac{d[\text{NO}_3^-]}{dt} = -\frac{1}{2} \cdot \frac{d[\text{N}_2]}{dt} = -k_3 \cdot \frac{[\text{NO}_3^-]}{(K_m + [\text{NO}_3^-])} \cdot \frac{[\text{Asp}]_{\text{aq}}}{(K_m + [\text{Asp}]_{\text{aq}})} X_B \quad (\text{式 A1-10})$$

なお、上記の計算を行うにあたり、アスファルト量 450 g dm^{-3} 、微生物量 $5.0 \times 10^9 \text{ cell dm}^{-3}$ として、固体アスファルトの可溶化速度は

$$d[\text{Asp}]_{\text{solid}}/dt = 4.9 \times 10^{-3} \text{ g dm}^{-3} \text{ day}^{-1}$$

となる。

一方、アスファルトが可溶化し、一日後に、 $[\text{Asp}]_{\text{aq}} = 4.9 \times 10^{-3} \text{ g dm}^{-3}$ になったとすると、アスファルト由来の可溶性有機物の分解速度は、

$$\begin{aligned} \frac{d[\text{Asp}]_{\text{aq}}}{dt} &= 1.5 \times 10^{-10} \times \frac{4.9 \times 10^{-3}}{0.284 + 4.9 \times 10^{-3}} \\ &= 1.3 \times 10^{-2} \text{ g dm}^{-3} \text{ day}^{-1} \end{aligned}$$

となる。

したがって、固体アスファルトの可溶化速度よりも生成された可溶性有機物の微生物による消費速度が上回ることとなり、微生物による硝酸イオンの還元速度は固体アスファルトの可溶化が律速となる。

参考文献

- 加川昭夫，西川義朗：アスファルトから浸出する可溶性有機成分に関する評価研究（5），PNC PN8410 98-036（1998）。
- 丸石正美，程塚敏正，山口真，池田泰久，林孔鼻，川上泰：易溶性核種の挙動及びアスファルトの微生物分解挙動に関する研究(III)，PNC TJ 1554 98-001（1998）。
- 嶺達也，三原守弘，大井貴夫：脱窒細菌のアルカリ性及び還元環境下での耐性に関する実験的研究，JNC TN 8430 2000-009（2000）。
- 村上由紀，岩月輝希，長沼毅：“東濃地域における地下水化学と地下微生物の相互作用．J. of Geography”，Vol.112(29)，p. 277-287(2003)。
- 藤原和弘，川嶋文人：微生物の地層処分環境条件における馴化の研究，JNC TJ8400 2002-034(2002)。
- 市岡高男，佐来栄治，加藤進，澤智代，木村俊夫，菅原庸：微生物の機能を利用した水質浄化（第3報），三重県環境科学センター研究報告，第19号（1999）。
- Felmy, A.R. : GMIN: A Computerized Chemical Equilibrium Model Using a Constrained Minimization of the Gibbs Free Energy, PNL-7281, Pacific Northwest Lab., Richland, WA (1990) .

付録 2

アスファルトの微生物分解により発生する CO₂ ガスのセメント系材料への影響に関する検討

1. はじめに

グループ 3 に分類される TRU 廃棄物は、放射性廃液の固化マトリクスとして使用されるアスファルトが多量に含まれる。このアスファルトは多様な有機炭素化合物の混合物であり、潜在的には微生物の有機基質として働く可能性がある。微生物がアスファルトを有機基質として活動すれば、代謝産物として元のアスファルト成分より低分子の有機酸や二酸化炭素（以下、CO₂ と記す）が生成され、グループ 3 に分類される TRU 廃棄物の地層処分施設の主たる部分を構成するセメント系材料と反応することで影響を及ぼす可能性がある。一方、TRU 廃棄物の地層処分施設においては、処分施設閉鎖後にセメント系材料に期待される機能は、アルカリ性環境維持等の化学的緩衝性と放射性核種の収着による移行遅延であることから、施設閉鎖後のセメント系材料に対する上記のアスファルトの微生物分解の影響は、これらの機能に対して評価を行えばよい。

アスファルトの主成分は、パラフィン等の飽和分、低分子の芳香族化合物である芳香族分、縮合芳香族環化合物であるレジン、縮合芳香族環の層状化合物であるアスファルテンの 4 種類に分類できる。これらで構成されるアスファルトは本来、微生物にとって非常に分解しにくい有機物と考えられる。これら 4 種類の主成分の中で比較すれば、飽和分及び芳香族分が、他の 2 種類の成分よりは微生物により分解を受けやすいと考えられる。しかし、アスファルトの微生物による代謝・分解に関する知見は乏しく、現実的な評価に必要な微生物代謝スキーム及び代謝産物の同定並びに代謝速度を決定することはできない。そこで、以下の二つの理由から、本書では有機炭素化合物であるアスファルトが、微生物により完全に代謝・分解を受け、CO₂ が生成するとして検討を行うこととした。

- ① CO₂ 1 モルが水に溶解し、炭酸イオン 1 モルを生成すると 2 モルのプロトンが放出される（化学反応式 A2-1 参照）ことになり、有機酸（単位炭素量あたりのプロトン放出量が最も多い C1 有機酸（たとえば、HCOOH）でも炭素 1 モルあたりプロトン 1 モル）の生成を仮定するよりも、単位炭素量あたりの化学量論的プロトン放出量が多いため保守的評価を行える。



- ② CO₂ の溶解により生成する CO₃²⁻ は、セメント系材料を構成する水和物中の Ca と反応し、CaCO₃ を形成し、セメント固相の水和物組成を変化させ、セメント系材料の放射性核種の収着性に影響を及ぼす可能性もあり、この影響も評価しておく必要がある。

具体的には、グループ 3 の処分坑道設計例に基づき、処分坑道 1m あたりのアスファルト量、セメント水和物量を算定し、アスファルト中の飽和分及び芳香族分に含まれる炭素が、微生物活動によりすべて CO₂ になったと仮定して処分坑道 1m あたりに生成する CO₂ 量を算定した。この CO₂ が全量、セメント水和物と反応したと仮定して、地球化学計算コード PhreeqC (David and

Appelo, 1999) を用いてセメント水和物の変化及びセメント間隙水の pH 条件を評価した。以下にその詳細を示す。

2. 評価条件

2.1 CO₂ 生成量

アスファルトの微生物分解に関する知見が乏しいことから、ここではアスファルト成分の飽和分及び芳香族分がすべて CO₂ に代謝・分解されたと保守的に仮定し、以下の計算により CO₂ 生成量を求めた。なお、固化マトリクスであるアスファルトは、ブローンアスファルトとし、その分析例（福本ほか，2002）（表 A2-1）を用いた。また、アスファルト量、処分坑道形状を表 A2-2 に示す。

上記仮定に基づくと、アスファルトからの総 CO₂ 発生量は、

$$\begin{aligned} \text{総 CO}_2 \text{ 発生量 (mol/1m-坑道)} &= 9,850 \times 0.558 \times 0.845 \times 1000 \div 12 \\ &= 3.9 \times 10^5 \text{ mol/1m-坑道} \end{aligned}$$

となる。セメント系材料の空隙率を 0.19 とし、発生 CO₂ が全量、間隙水に溶解すると仮定すると CO₂ の空隙水中における濃度は、

$$\begin{aligned} \text{空隙水中 CO}_2 \text{ 濃度 (mol dm}^{-3}\text{)} &= 3.9 \times 10^5 \div 113.1 \div 190 \\ &= 18.1 \text{ mol dm}^{-3} \end{aligned}$$

となる。

表 A 2 - 1 ブローンアスファルト分析例（福本ほか，2002）

飽和分	芳香族分	レジン	アスファルテン	炭素含有量*1
23.7%	32.1%	20.6%	23.6%	84.5%

*1：アスファルト中の炭素量

表 A 2 - 2 アスファルト量及び処分坑道形状

アスファルト量 (kg/1m-坑道)	処分坑道形状
9850	直径 12m 円形

2.2 セメント系材料の設定パラメータ

セメント系材料としては、表A 2-3に示すモデルモルタルを設定した。

表A 2-3 モデルモルタル配合

W/C (%)	S/C	単位量 (kg/m ³)		
		W	C	A
55	3.0	266	483	1449

なお、本配合は、モデルコンクリート配合をもとに算出したものである。モデルコンクリートの諸条件は以下の通り。C : 300kg/m³, W : 165 kg/m³, A : 1,877 kg/m³, Air=4.5%である。セメント及び骨材（細・粗骨材）の密度はそれぞれ、3.16g/cm³, 2.70g/cm³とした。

表A2-3に示す配合よりセメントが完全水和したものとして、各水和生成物量を表A2-4に示す。なお、本検討では表中の網掛け部鉱物について設定することとした。

表A 2-4 完全水和による各水和生成物量

モデル固相（モルタル 1m ³ あたり）			
固相 or 元素	mol/m ³	固相 or 元素	mol/m ³
C ₃ AH ₆	215	KOH	58
C ₃ FH ₆	79	NaOH	37
MH	237	C-S-H	3,121
C ₆ As ₃ H ₃₂	40	CH	1,415
C ₄ AsH ₁₂	0	Cl	1

C-S-HのCa/Si比=1.8, 間隙率=0.19とした。

2.2 評価条件まとめ

設定パラメータを表A2-5に示す。なお各モデル固相量は間隙に充填された水に対し接していると仮定した量とした。また、地下水の組成は、降水系、海水系により異なるが、ここではCO₂ガスによる影響を検討するため、地下水中のCO₂量及び他の成分は無視できるものとし、水は「純水」とした。なお、評価には、地球化学計算コードPhreeqC Interactive Version 2.10及び熱力学データベースとして、JNC-TDBを使用した。

表A2-5 設定パラメータ (単位: mol dm⁻³)

水		純水
CO ₂		1.8 × 10 ¹
固相	CH	7.4
	C ₆ AsH ₃₂	2.1 × 10 ⁻¹
	C ₃ AH ₆	1.1
	MH	1.2
	C-S-H (1.8)	1.6 × 10 ¹

* : 間隙水 1dm³あたりの鉱物量(mol)

3. 評価結果

評価した結果を表A2-6 及びA2-7 に示す。

表A2-6 CO₂影響による固相組成変化

		初期物量	反応後物量
CO ₂ (mol dm ⁻³)		1.8 × 10 ¹	0
固相	CH	7.4	0
	C ₆ AsH ₃₂	2.1 × 10 ⁻¹	2.1 × 10 ⁻¹
	C ₃ AH ₆	1.1	0
	MH	1.2	0
	C-S-H (1.8)	1.6 × 10 ¹	0
	C-S-H (1.0)	0	6.3
	C-S-H (1.1)	0	4.4 × 10 ⁻¹
	CaCO ₃	0	1.8 × 10 ¹
	グロシュラー	0	8.2 × 10 ⁻¹
	ハイドロゲネット	0	3.1 × 10 ⁻¹

* : 間隙水 1dm³あたりの鉱物量(mol)

表A2-7 CO₂影響による液相変化

液相 pH	イオン濃度 (mol dm ⁻³)					
	Al	C	Ca	Mg	S	Si
11.1	8.2 × 10 ⁻⁵	1.2 × 10 ⁻⁵	7.2 × 10 ⁻³	7.5 × 10 ⁻⁸	5.9 × 10 ⁻³	2.5 × 10 ⁻⁴

表A2-6 より固相の変化を見ると、CO₂ ガスの影響により水酸化カルシウム、ハイドロゲネット、ブルーサイト及びC-S-H (Ca/Si比=1.8) が溶解し、炭酸カルシウム、グロシュラー、ハ

イドロタルサイトの生成が見られ、Ca/Si比の小さいC-S-H (1.0, 1.1)の生成が確認された。なお、エトリンガイトについては極微量 ($2.0 \times 10^{-3} \text{ mol dm}^{-3}$)の溶解がみられた。

CO₂ガスの影響により間隙水のpHは11.1に変化しているものの、調和溶解組成のCa/Si比より高いCa/SiのC-S-Hが残存しており、RegionIII相当の状態と考えられる。したがって残存するセメント水和物相は、RegionIII相当のpH緩衝性を維持しているといえる。

4. まとめ

微生物によるアスファルトの代謝・分解は、知見も乏しく、かつ非常に利用し難い有機物であると考えられる。これらを考慮し、代謝・分解反応が起こるとしても、非常に長期間にわたることが予想されるが、ここではアスファルトの代謝・分解が瞬時に起こり、分解生成物として発生すると思われるCO₂ガスの影響によるpH変化及びセメント系材料への影響を検討した。その結果、以下の結論を得た。

- 1) 多量のCO₂ガスにより初期設定したセメント水和鉱物はC-S-H (1.8)以外は他鉱物へ変質した。また、C-S-H (1.8)は、よりCa/Si比の小さいC-S-H (1.0, 1.1)へ変化した。また、エトリンガイトは極微量の溶解がみられた。
- 2) 液相のpHは、初期に考えられる12.5以上から11.1に低下したが、RegionIII相当のpH緩衝性を維持していた。

参考文献

福本雅弘, 西川義朗, 加川昭夫: アスファルトから浸出する可溶性有機成分に関する評価試験 (6) - 還元雰囲気アスファルト浸出試験での可溶性有機成分の調査研究 -, JNC TN8410 2002-009 (2002) .

David, L.P., Appelo, C.A.J.: User's guide to PHREEQC (Version2) - A computer program for speciation, batch-reaction, one-dimensional transport, and inverse geochemical calculations, U.S. Geological Survey Water-Resources Investigations Report 99-4259 (1999) .