

# 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

## — 概 要 書 —

(動力炉・核燃料開発事業団 研究委託内容報告書)

技 術 資 料		
開示区分	レポ ー ト No.	受 領 日
Z	J1564 96-002	1996. 9.2
この資料は技術管理室保存資料です 閲覧には技術資料閲覧票が必要です 動力炉・核燃料開発事業団 技術協力部技術管理室		

1996年 3 月

この資料は、動燃事業団の開発業務を進めるため、特に限られた関係者だけに開示するものです。ついては、複製、転載、引用等を行わないよう、また第三者への開示又は内容漏洩がないよう管理して下さい。また今回の開示目的以外のことには使用しないよう特に注意して下さい。

本資料についての問合せは下記に願います。

〒319-11 茨城県那珂郡東海村村松 4 -33

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所

技術開発推進部 技術管理室

## 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

九石正美\*、池田泰久\*、熊谷幹郎\*、林 孔華\*\*、川上 泰\*\*

### 要 旨

TRU廃棄物には、地下水に対して溶けやすい長半減期核種のヨウ素129及び炭素14が含まれているものも存在するため、これらの核種の移行の遅延を期待できる緩衝材の検討を行った。また、TRU廃棄物の一つであるアスファルト固化体の長期耐久性評価の観点から地下水環境を想定した溶出特性の検討と微生物の存在による分解挙動について評価を行った。実施項目は以下の5項目である。

- (1) 処分環境（強還元及び高pH）での天然鉱物や無機イオン交換体への核種吸着実験  
TRU廃棄物処分を想定した環境下において天然鉱物や無機イオン交換体へのヨウ素吸着実験を行った。その結果、ヨウ素吸着能のすぐれていたのは焼成したハイドロタルサイト（HT）であった。しかし、その吸着機構を検討した結果、予め地下水に含まれる炭酸イオンにより、吸着能が低下することが明らかになった。
- (2) 性能評価に使用できるヨウ素及び炭素の移行パラメータの検討  
放射性ヨウ素及び炭素を含有するTRU廃棄物を処分した場合の処分システムの性能評価を行うためのヨウ素及び炭素の移行パラメータを調査した。
- (3) アスファルト固化体からのヨウ素の浸出挙動の検討  
硝酸塩47.5%、CsI 2.5%を含む模擬アスファルト固化体を作製し、浸出試験を実施した。浸出液には、蒸留水系及び処分環境を模擬したpHが12程度の液を使用した。可溶性の塩は塩の種類に関係なく溶出し、本固化体は約30年で全量溶出すると推定された。また、アルカリ溶液中の溶出は蒸留水中より若干低かった。
- (4) アスファルトを最も劣化させ易い微生物の検討  
分離した菌株と既存の菌株を用いて、好気条件下で微生物によるアスファルトの各面分とアスファルトそのものの分離実験を行った。その結果、好気条件下で微生物分解によってアスファルトが劣化され、培地中に粉末状のアスファルトを分離したことが分かった。また、嫌気条件下で硝酸が存在する時にモデル hidrocarbon が分解されることが実験で明らかになった。
- (5) アスファルトの微生物分解に関するシナリオの検討  
微生物の生育環境、増殖に必要な栄養分、及び各バリアに対する影響を総合的に考察し、地層処分中に起こりうる生物学的なプロセスを追求した。これらの知見に基づいて、微生物によるアスファルト分解に関するシナリオを作成した。

---

\* 本報告書は、(財)産業創造研究所が動力炉・核燃料開発事業団の委託により実施した研究内容結果である。

契 約 番 号：070D0280

事業団担当部課室：環境技術開発部 地層処分開発室 石川 博久

\*：原子力化学工学センター、 \*\*：生物工学研究部

## A Study on Behavior of Soluble Radioactive Species and Biodegradation of Bituminized Radioactive Waste

Masami Sazarashi\*, Yasuhisa Ikeda\*, Mikio Kumagai\*, Kong-hua Lin\*\*, Yasushi Kawakami\*\*

Some of TRU wastes are known to contain  $^{129}\text{I}$  and  $^{14}\text{C}$  nuclides which have long half-lives and are soluble in groundwater. Therefore, we have examined properties of buffer materials which are expected to be retarded migration of  $^{129}\text{I}$  and  $^{14}\text{C}$  nuclides, and studied leaching properties and biodegradation to assess durability of the bituminized TRU wastes. The results are summarized as follows:

(1) Adsorption experiments of  $\text{I}^-$  ions on natural minerals and inorganic ion exchangers under disposal environment (low Eh and high pH)

- Calcined hydrotalcite was found to have high adsorptivity to  $\text{I}^-$  ions.
- From adsorption mechanism, it is not expected that  $\text{I}^-$  ions are adsorbed selectively on the calcined hydrotalcite.

(2) Survey of parameters for migration behavior of  $^{129}\text{I}$  and  $^{14}\text{C}$  nuclides

- The Kd values for  $^{129}\text{I}$  and  $^{14}\text{C}$  nuclides measured under various conditions were examined to prepare data base for assessing the disposal systems.

(3) Leaching behavior of  $\text{I}^-$  ions from bituminized wastes

- Leaching experiments were carried out by using the bituminized samples containing nitrate (47.5 wt%) and CsI (2.5 wt%).
- Samples were immersed in distilled water or simulated solutions (pH = 12).
- All soluble salts were found to be leached easily from bituminized samples and suspected to be completely leached from the present samples during 30 years.
- When the samples were immersed in alkaline solutions, the leaching rate was found to be slightly slower than that in distilled water.

(4) Evaluation of biodegradation of bitumen by isolated and known microbes

- Biodegrading experiments by the isolated and known microbes under aerobic condition show that microorganisms able to degrade bitumen are ubiquitous.
- The surface of bitumen was attacked by microbes under aerobic condition and became bumpy. This resulted in accumulation of powdered bitumen in the culture medium.
- Aerobic degradation of bitumen by microbes resulted in formation of some metabolic product.
- In anaerobic cultures, the denitrifying activity of microbes on hydrocarbons was identified by cell growth, and measurement of the produced  $^{15}\text{N}_2$  in denitrifying process was investigated.

(5) The scenarios of biodegradation of bitumen

- According to the kind of electron acceptors, the possible microbial processes were divided into aerobic process, denitrifying process, sulfate-reducing process and methane fermentation process.
- Under the environments of solidified bitumen that is disposed underground, degradation of bitumen by the above processes were discussed.

---

Work performed by Institute of Research and Innovation under contract with Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation.

Contract No. : 070D0280

PNC Liaison : Waste Technology Development Division, Geological Isolation Technology Section, Hirohisa Ishikawa.

\*: IRI, Nuclear Chemistry and Chemical Engineering Center. \*\*: IRI, Biotechnology Department.

## 目 次

1. まえがき .....	1
2. 易溶性核種の挙動に関する研究 .....	2
2. 1 処分環境（強還元及び高pH）での 天然鉱物や無機イオン交換体への核種吸着試験 .....	2
2. 1. 1 背景と目的 .....	2
2. 1. 2 ヨウ素吸着材スクリーニング試験 .....	2
2. 1. 3 地下水環境調製方法の検討 .....	2
2. 1. 4 焼成HTのヨウ素試験 .....	2
2. 2 性能評価に使用できるヨウ素及び炭素の移行パラメータの検討 .....	4
2. 3 アスファルト固化体からのヨウ素の浸出挙動の検討 .....	5
2. 3. 1 固化体の調製方法 .....	5
2. 3. 2 固化体のキャラクタリゼーション .....	5
2. 3. 3 浸出試験方法 .....	5
2. 3. 4 浸出試験結果 .....	6
3. 微生物によるアスファルトの分解挙動に関する研究 .....	10
3. 1 アスファルトを最も劣化させ易い微生物の検討 .....	10
3. 1. 1 環境からアスファルト分解微生物の分離 .....	10
3. 1. 2 アスファルトの成分分画 .....	10
3. 1. 3 微生物によるアスファルトの各画分の分解実験と評価 .....	10
3. 1. 4 微生物によるアスファルトの分解実験と アスファルトの表面変化の分析 .....	11
3. 1. 5 Consortiumを作り出すための長期培養と代謝産物 .....	12
3. 1. 6 嫌氣的に微生物によるモデル炭化水素の分解 .....	12
3. 2 アスファルトの微生物分解に関するシナリオの検討 .....	12
3. 2. 1 処分環境下での微生物の活動を規定する環境条件 .....	13
3. 2. 2 微生物活動により変化し得る環境因子 .....	13
3. 2. 3 微生物によるアスファルト分解に至る過程 .....	13

## 1. まえがき

TRU廃棄物には、地下水に対して溶けやすい長半減期核種のヨウ素129及び炭素14が含まれているものも存在するため、これらの核種の移行の遅延を期待できる緩衝材の開発を行う。また、TRU廃棄物の一つであるアスファルト固化体の長期耐久性評価の観点から微生物の存在によるアスファルトの分解挙動について評価を行う。

実施項目は以下の5項目とする。

### ① 易溶性核種の挙動に関する研究

- (1) 処分環境（強還元及び高pH）での天然鉱物や無機イオン交換体への核種吸着実験
- (2) 性能評価に使用できるヨウ素及び炭素の移行パラメータの検討
- (3) アスファルト固化体からのヨウ素の浸出挙動の検討

### ② 微生物によるアスファルトの分解挙動に関する研究

- (1) アスファルトを最も劣化させ易い微生物の検討
- (2) アスファルトの微生物分解に関するシナリオの検討

## 2. 易溶性核種の挙動に関する研究

### 2.1 処分環境（強還元及び高pH）での天然鉱物や無機イオン交換体への核種吸着試験

#### 2.1.1 背景と目的

昨年度までも、ヨウ素吸着材の開発を目的に実験研究を行って来ている。一般に、ヨウ素吸着能を持つ材料は少ない。また、ヨウ素と不溶性沈澱を作って、収着するような材料についても検討したが、地下水環境条件によってはその沈澱も分解する等の問題があること明らかになってきた。そこで、本年度は、実際に想定される地下水環境、特にTRU廃棄物をコンクリートサイロ内に処分する事を前提として、アルカリ間隙水中でのヨウ素吸着材のヨウ素吸着能について検討した。

#### 2.1.2 ヨウ素吸着材スクリーニング試験

幾つかの天然鉱物や無機イオン交換体についてヨウ素吸着試験を実施した結果、ヨウ素を吸着するのは、Bi/Mg系無機イオン交換体と、焼成ハイドロタルサイト（HT）であった。特に、焼成HTのヨウ素吸着能が高かったので、焼成HTの吸着機構も含めて詳細に検討することにした。

#### 2.1.3 地下水環境調製方法の検討

昨年度までは、地下水環境を模擬するために、グローブボックスを用いてAr雰囲気とし、更に試料溶液に鉄粉を添加して、Ehを低下させていた。本法で問題となるのはセメント間隙水のようなアルカリ溶液では鉄粉が溶解し難く、Ehが低下しないことである。そこで、還元剤に亜ニチオン酸を用いた地下水環境の調製法について検討し、長期のヨウ素吸着実験を行えるような方法を確立した。

#### 2.1.4 焼成HTのヨウ素吸着試験

地下水環境下においても焼成HTは、図2.1.1に示すように、ヨウ素の高い吸着能を示し、有望なヨウ素吸着材と考えられた。しかし、文献調査の結果、焼成HTの陰イオン吸着能にはイオン半径と電荷密度が影響していることがわかった。そこで、予め地下水中に存在するような陰イオンを含む溶液に分散したのち、乾燥した試料を用いてヨウ素吸着実験を行った。結果を表2.1.1に示すように、炭酸イオンを含む溶液に分散した試料

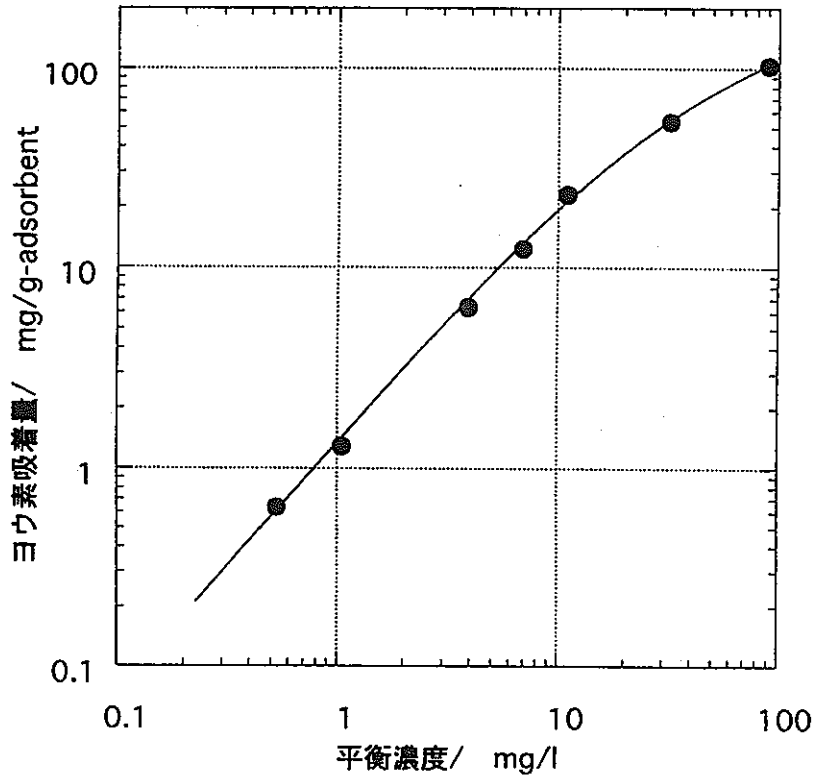


図2.1.1 地下水環境下における焼成HTのヨウ素吸着量

表2.1.1 焼成HTの再吸着試験結果

試料	試料分散時のpH	試験液中のpH	分離液中のI <sup>-</sup> 濃度(ppm)	吸着率 (%)	Kd (ml/g)
H <sub>2</sub> O分散	11.45	11.46	4.3	96.7	2920
NaHCO <sub>3</sub> 分散	9.95	9.70	130	0	0
Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> 分散	12.49	10.37	128	1.5	1.6
NaCl分散	12.40	10.97	40.5	68.8	221
NaNO <sub>3</sub> 分散	12.31	10.82	35.3	72.8	268

\*吸着試験液の測定濃度I=130ppm



はヨウ素を全く吸着しないことから、本吸着材は炭酸イオンが主成分の地下環境では使えないと判断された。ちなみに、焼成HTの吸着機構は以下のようなものであった。HTを500°C程度に焼成しても層間水や炭酸イオンが放出されるが、その構造は保たれている。従って、これを水中に再分散すると元に戻ろうとする。そのとき水は十分にあるが、放出された炭酸イオンに相当するアニオンが不足することになる。そこで、ヨウ素イオンのようなアニオン溶液中に存在すれば、吸着されることになる。

## 2.2 性能評価に使用できるヨウ素及び炭素の移行パラメータの検討

本調査は、各種移行媒体（充填材、緩衝材、岩石等）に関するヨウ素及び炭素の拡散係数や分配係数を整理し、試験条件等を考慮して、妥当な数値を提案することを目的とする。

### 2.2.1 ヨウ素-129の収着に関する調査

放射性ヨウ素 ( $^{129}\text{I}$ ) を地層処分した場合を想定し、その移行挙動を検討するため各種移行媒体への収着性を評価することを目的に、その基本データの一つである分配比について、1970年～1980年代の文献を対象に調査を行った。

調査に当たり、試験により得られた分配比の信頼性をできるだけ評価し易いように、対象とした収着材の性状、接触させる液の性状、実験条件（方法、濃度、液固比、雰囲気、pH、Eh、浸漬時間、固液分離法）について整理した。また、ヨウ素の化学形態としては、 $\text{I}^-$ と $\text{IO}_3^-$ を対象とした。

結果は、ほとんどの分配比が、本調査で選定した評価項目を完全には満たしておらず、値の信頼性が高いとは言えない。また、信頼性を無視しても、本調査で対象とした収着材の $\text{I}^-$ イオンに対する収着能は低いと言える。今後、分配比の信頼性の評価項目を再検討するとともに、本調査で対象とした収着材及び他の収着材についても、最近の文献をも含め調査を行い、ヨウ素の分配比を評価する意向である。

### 2.2.2 炭素-14の収着に関する調査

本研究は、炭素の収着について、これまでに報告された文献をもとにして考察した。文献は主としてNEA/OECDの収着データベース<sup>1)</sup>と日本科学情報センターの原子力情報ファイルNUCLENによる検索によって調べたものである。

炭素の収着についての研究例は比較的少なく、取り扱われている収着材は、計画され

ている処分場周辺の岩石、ベントナイト、コンクリートなどである。液相としては、実際の処分場の深層地下水または模擬地下水で、トレーサーを用いて液相から固相への吸着を求めたものがほとんどで、これらは好氣的雰囲気で行われている。

一般に、炭素-14は天然の岩石やベントナイトには吸着しにくく、コンクリートに吸着する傾向がみられる。深層地下の処分場では還元雰囲気であることが予想される。その場合には、そのまま好氣的条件のデータは使えないが、吸着分配比は参考になるはずである。

## 2.3 アスファルト固化体からのヨウ素の浸出挙動の検討

### 2.3.1 固化体の調製方法

模擬アスファルト固化体は、実機と同様な方法で調製することが理想であるが、小規模試験では難しいので簡易な加熱混合装置を製作して、アスファルト固化体を調製した。

アスファルトには、PNCより提供して頂いたブローンアスファルトを用いた。模擬廃棄物には、溶出試験を単純化するためにCsIとNaNO<sub>3</sub>のみ添加することとした。

- ・ 模擬廃棄物含有量50wt% (CsI=12.5gとNaNO<sub>3</sub>=237.5gにアスファルト250g)
- ・ 固化体の形状：SUS304シャーレ (49φ×15<sup>mm</sup>) 使用、上部面のみ接液

### 2.3.2 固化体のキャラクタリゼーション

アスファルトには不純物として存在していたと考えられるSが蛍光X線によって確認された。また、添加した各元素とも均一に分布し、塩の析出等はないことも確認された。

SBM像とEPMAにより、CsIはミクロに見れば10μm以下の粒子としてアスファルトに固定されていると判断された。

### 2.3.3 浸出試験方法

本研究の浸出試験は地層処分を想定しているので、単に蒸留水だけでなく、セメント間隙水に付いても検討した。セメント間隙水にはCa(OH)<sub>2</sub>=0.01M (pH=12) のアルカリ溶液を用いた。試験はバッチ式で、溶液の交換は行わず、少量のサンプリング液量のみ補充することとした。

#### (1) 試験期間及びサンプリング間隔：

長期間実施することが好ましいが、とりあえず本年度は以下のような間隔でサン

リングした。なお、浸漬開始は固化体調製4日後とした。

・7日、14日、21日、28日、42日、56日、70日、84日、以後可能な範囲で継続

(2) 測定項目：① 液中に溶出した下記の物質の濃度

ヨウ素、ナトリウム、セシウム、硝酸イオン、TOC

② 溶液のpH

③ 固化体の重量（付着水を十分にふき取ってから測定）

### 2.3.4 浸出試験結果

(1) アスファルト固化体の重量変化

アスファルト固化体を12週間浸漬した時の重量変化を図2.3.1に示す。それぞれ同一条件で3個の浸出試験を実施しているが、試料による固体差は殆どないと考えられる。表面をカットした試料が最も重量が増加し、水を吸収し膨潤し易いことが分かった。アルカリ溶液は、比較的膨潤しにくく、ブランクのアスファルト単体は殆ど重量変化がなかった。

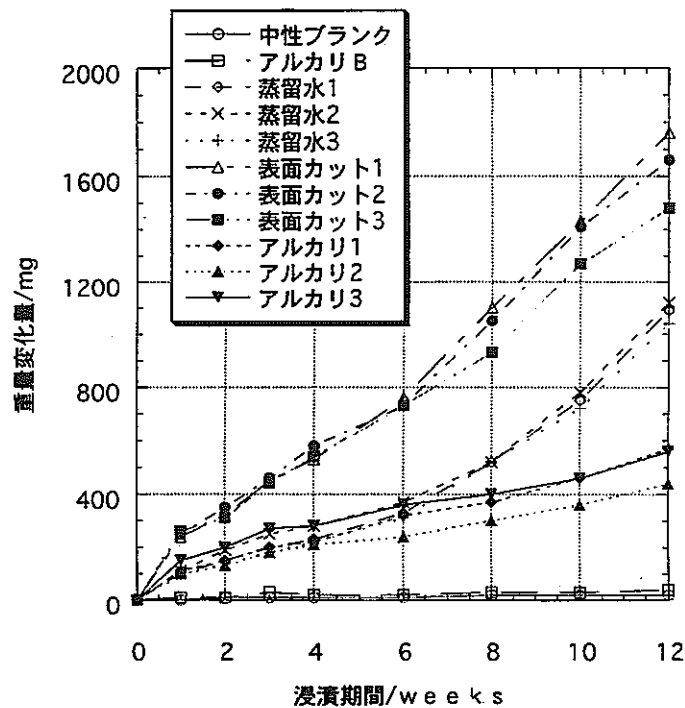


図2.3.1 アスファルト固化体の重量変化

(2) 核種の浸出率の検討

IABAが推奨している下記の計算方法を適用して核種の浸出率を検討した。

浸出率 $R_n$ ( $\text{cm day}^{-1}$ )は、 $R_n = (C_t/C_0 \cdot V/S)/t$  で示される。

ここで、 $C_t = t$  時間後の核種浸出量 (mol)、

$C_0 =$ 初期固化体中の核種含有量 (mol)、

$V =$ 試料の体積 ( $\text{cm}^3$ )、 $S =$ 試料の表面積 ( $\text{cm}^2$ )、 $t =$ 浸出期間 (days)  
である。

ヨウ化セシウムの浸出率を図2.3.2に示す。浸出期間や溶液によらず、 $10^{-3} \text{cm/day}$ のオーダーで浸出していることが分かる。硝酸ナトリウムは省略するが、同様な傾向である。これは、IAEAの示している一般的なアスファルト固化体からの核種浸出率より大きい値である。原因には、まだ、3ヶ月程度の初期の試験結果であることが考えられるが、さらに検討する予定である。

### (3) ヨウ素浸出速度の見積もり

本試験において、ヨウ素の浸出比率 ( $C_t/C_0 \cdot V/S$ ) に対して時間 ( $\sqrt{\text{day}}$ ) でプロットすると図2.3.3に示すような直線性が成り立つことが分かった。従って、この直線を外挿すれば、ヨウ素が全量放出される時間が推定できることになる。全量放出は $C_t/C_0 = 1$ を意味し、本試料では $V/S = 1.5$ であるから、縦軸のヨウ素浸出比率 ( $C_t/C_0 \cdot V/S$ ) = 1.5の時が全量放出時間である。図2.3.3示した式より計算すると以下のようなになる。

ヨウ素全量放出時間：蒸留水浸漬の場合	25.6年
表面カット試料	13.8年
アルカリ浸漬	33.2年

同様に、200リットルドラム缶 ( $56 \text{cm} \phi \times 82 \text{cm}^{\text{H}}$ ) の固化体について試算すると、 $V/S = 10.5$ となるから、

ヨウ素全量放出時間：蒸留水浸漬の場合	1260年
表面カット試料	679年
アルカリ浸漬	1630年

となる。

以上のように、地層処分と言う観点では非常に早いと言わざるを得ない。しかしながら、この値は浸漬初期データからの算出であり、実際にはもう少し遅くなると予想される。

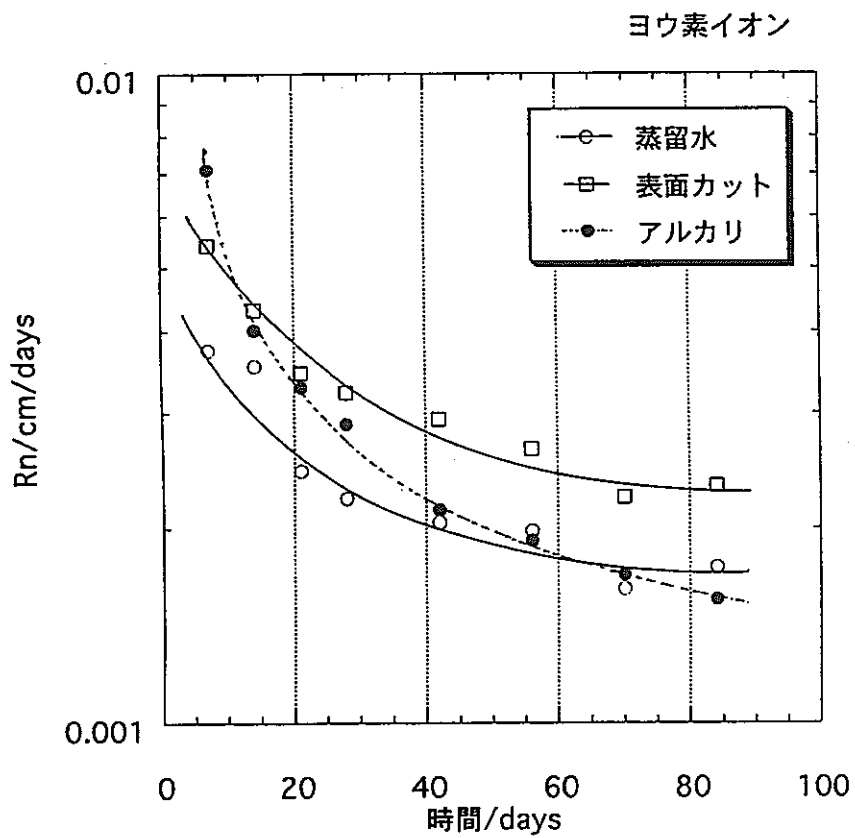
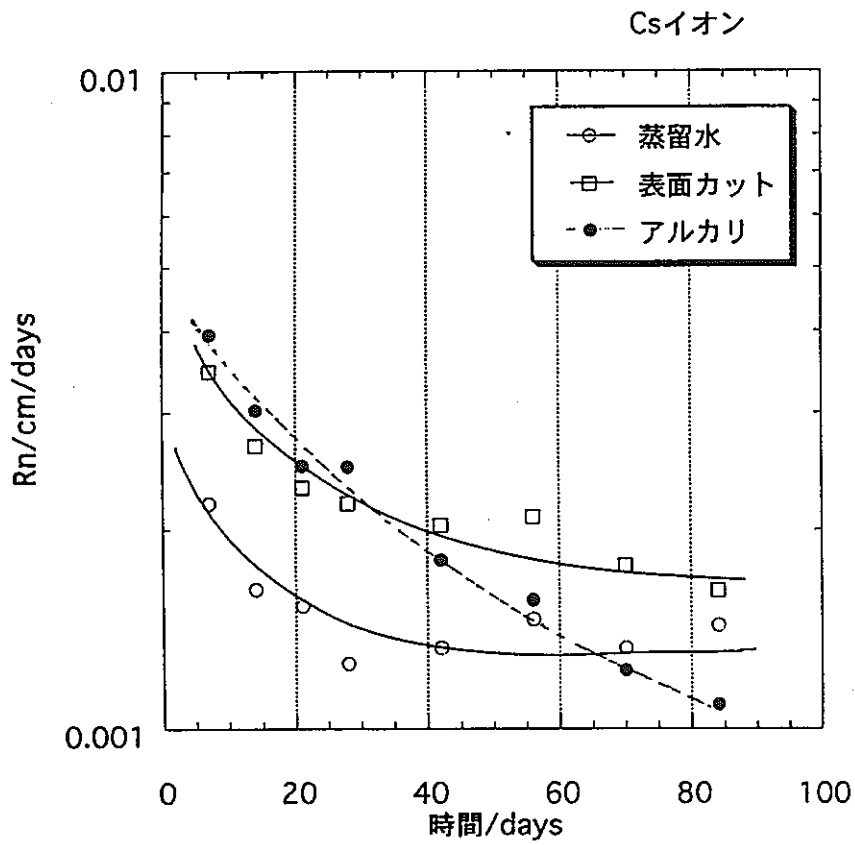


図2.3.2 ヨウ化セシウムの平均溶出率

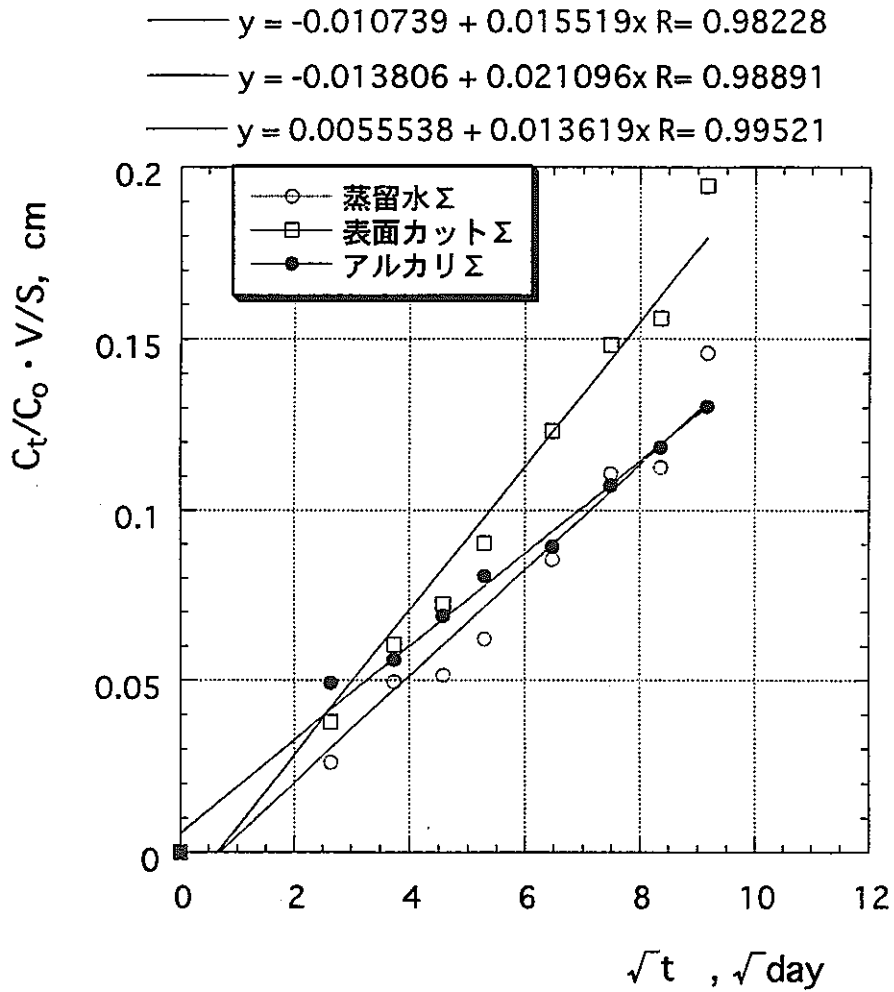


図2.3.3 アスファルト固化体からのヨウ素浸出速度

### 3. 微生物によるアスファルトの分解挙動に関する研究

#### 3.1 アスファルトを最も劣化させ易い微生物の検討

既存株や環境中微生物を対象に、好気と嫌気の下でアスファルトを栄養源として最も活動しそうな微生物を実験より検討する。さらにアスファルトのモデル炭化水素のみとモデル炭化水素と硝酸塩等が共存する場合、微生物分解に伴う微量ガスの検出、定量のための実験手法を検討する。また、微生物による劣化生成物の定性・定量についても検討を行う。

##### 3.1.1 環境からアスファルト分解微生物の分離

川崎、横浜両市の汚染のある淡水域と海水域より試料を採取し、炭化水素分解微生物の単離を試みた。その結果、好氣的培養ではテトラデカンの分解菌T6株、ビフェニルの分解菌B4、B6株、ナフタレンの分解菌N1、N3、N6株を分離した。

また、テトラデカン、ナフタレン、ビフェニルの混合物を炭素源とした嫌気培養では炭化水素の資化能と脱窒能を両方同時に有する微生物の分離も試みた。

##### 3.1.2 アスファルトの成分分画

カラムクロマトグラフィー方法によりアスファルトの分画を行い、実験に必要な飽和画分、芳香族画分、レジジン画分、アスファルテン画分を用意した。

##### 3.1.3 微生物によるアスファルトの各画分の分解実験と評価

今年度と昨年度本研究室で分離した菌株と他の研究機関から分譲された菌株を用いて、アスファルト各画分での微生物増殖を調べた。その結果、殆どの菌株についてすべてのアスファルトの画分での増殖が見られた。自然界にアスファルトの各画分の分解微生物が広く存在していることが示唆された。また、飽和画分よりもレジジン画分の方を好んで分解する微生物が存在しているという興味深い結果が得られた。

アスファルテンは分子同士が縮合して大きな芳香族環を形成していたため、水への溶解はほかの画分よりも低い。そのため、微生物はアスファルテンを分解しにくいと考えられ、これまでは微生物のアスファルテン画分での増殖は主にアスファルテンに含まれる水溶性の成分によるものと考えていた。しかし、アスファルテン中の可能な水溶性成

分を除去しても、処理しないアスファルテンとほぼ同程度の増殖が見られた。従って、微生物はアスファルテンそのものを分解する可能性が強い。

以上の結果から、従来微生物の分解しやすいと思われる飽和画分、芳香族画分だけではなく、レジン画分またはアスファルテン画分も微生物によっては分解されることが明らかになった。

さらに、微生物分解によるアスファルトの各画分の組成変化及び劣化成分を調べるために、培養液からアスファルトの画分を抽出し、FT-IRにより分析を行った。その結果、微生物分解によって飽和成分、芳香族成分などが酸化されることが分かった。

### 3.1.4 微生物によるアスファルトの分解実験とアスファルトの表面変化の分析

3.1.3で使用した菌株のアスファルトでの増殖を調べた結果、殆どの菌株でアスファルトでの増殖が見られた。この結果から、アスファルトの分解微生物は自然界にかなり普遍的に存在していることが示唆された。また、今年度はB6株のようなアスファルト分解能の高い菌を分離できた。

微生物のアスファルト分解メカニズムを検討するため、走査電子顕微鏡（SEM）で観察を行った。その結果から、微生物がアスファルトの表面に付着し、アスファルトを分解していると考えられる。

アスファルトを炭素源とした好気培養ではTOC（Total Organic Carbon）とCFU（Colony Forming Units）が相関していた。はじめ、微生物はアスファルト由来の有機物質を炭素源として利用し、急速な増殖を遂げた。その後、アスファルト由来の利用可能な有機物質の減少と共に微生物の生育も落ちてきた。つまり、微生物はアスファルト由来の有機栄養物に依存して増殖していた。

我々の研究で微生物によるアスファルトの表面変化を初めて観察した。表面粗さ計で分析した結果、微生物の入っていないコントロールのアスファルトに比べて、B6株により35日間分解に供したアスファルトの方は表面が著しい凸凹の形を呈していることが分かった。肉眼でも、微生物により処理したアスファルトの表面はざらざらになっていたことが分かった。また、BPMAで表面を観察しても、両方の差は明らかであった。

さらに、微生物の入った培養では、培養液に黒い粉末状のアスファルトのようなものが蓄積していたのが見られた。この粉末状のアスファルトのようなものはアスファルトそのものであることがFT-IRの分析で確認できた。この黒い粉末状アスファルトは一種



の劣化生成物といえる。

また、B6株による20日間の培養の後、飽和成分と芳香族成分の割合は減少し、逆にレジジン成分とアスファルテンの割合は増加した。アスファルトの物性は各成分の割合に依存しているので、微生物によるアスファルトの分解はアスファルトの物性（針入度など）に大きな変化をもたらす可能性があると考えられる。

### 3.1.5 Consortiumを作り出すための長期培養と代謝産物

長期混合培養において適応と集積によって、高い分解能を持つ微生物の創出を試みた。また、長期地下処分での適応と集積によるアスファルトの分解の加速の可能性を探ってみた。また、液体クロマトグラフィーにより培養液の分析を行った結果、アスファルトの微生物分解によって培養液に何らかの代謝産物が生成されることが分かった。

### 3.1.6 嫌氣的に微生物によるモデル炭化水素の分解

嫌氣的な条件下で、微生物によるアスファルトのモデル炭化水素の分解について検討した。

先ず、 $\text{NO}_3^-$ を電子受容体として嫌氣的な微生物によるモデル炭化水素の分解の可能性を増殖で検討した。混合培養（今年度分離した菌、昨年度分離した菌、既存菌株のmixture）では $\text{NO}_3^-$ の入った培養は菌が2カ月間も増殖した。一方、 $\text{NO}_3^-$ の入っていないコントロールは菌が殆ど増殖しなかった。 $\text{NO}_3^-$ の入った培養のCFUは $\text{NO}_3^-$ の入っていないコントロールの10倍以上であった。従って、この混合菌は酸素の代わりに、硝酸を電子受容体として利用し、炭化水素を分解するのが示唆された。また、既存菌株のみの混合培養でも同様な結果が得られた。

さらに、嫌気条件下で発生した微量ガスの検出・測定方法を確立するために、ガスクロマトグラフィーによる $\text{N}_2$ の検出・測定、マススペクトロメトリーによる $^{15}\text{N}_2$ の検出・測定の方法について検討を行った。

## 3.2 アスファルトの微生物分解に関するシナリオの検討

想定されるアスファルト固化体の処分条件において、微生物の生育環境、必要な栄養分及び各バリアに対する影響を総合的に考察し、地層処分中に起こりうる生物学的なプロセスを追究した。これらの知見に基づいて微生物分解のシナリオを作成した。

### 3.2.1 処分環境下での微生物の活動を規定する環境条件

微生物の活動を規定するファクターは温度、呼吸における電子受容体の種類（酸素、硝酸、亜硝酸イオン、第二鉄イオン、硫酸イオン、還元的嫌気状態）、pH、有機炭素源、無機栄養素（アンモニア、硝酸塩、リン酸塩）、などが上げられる。

### 3.2.2 微生物活動により変化し得る環境因子

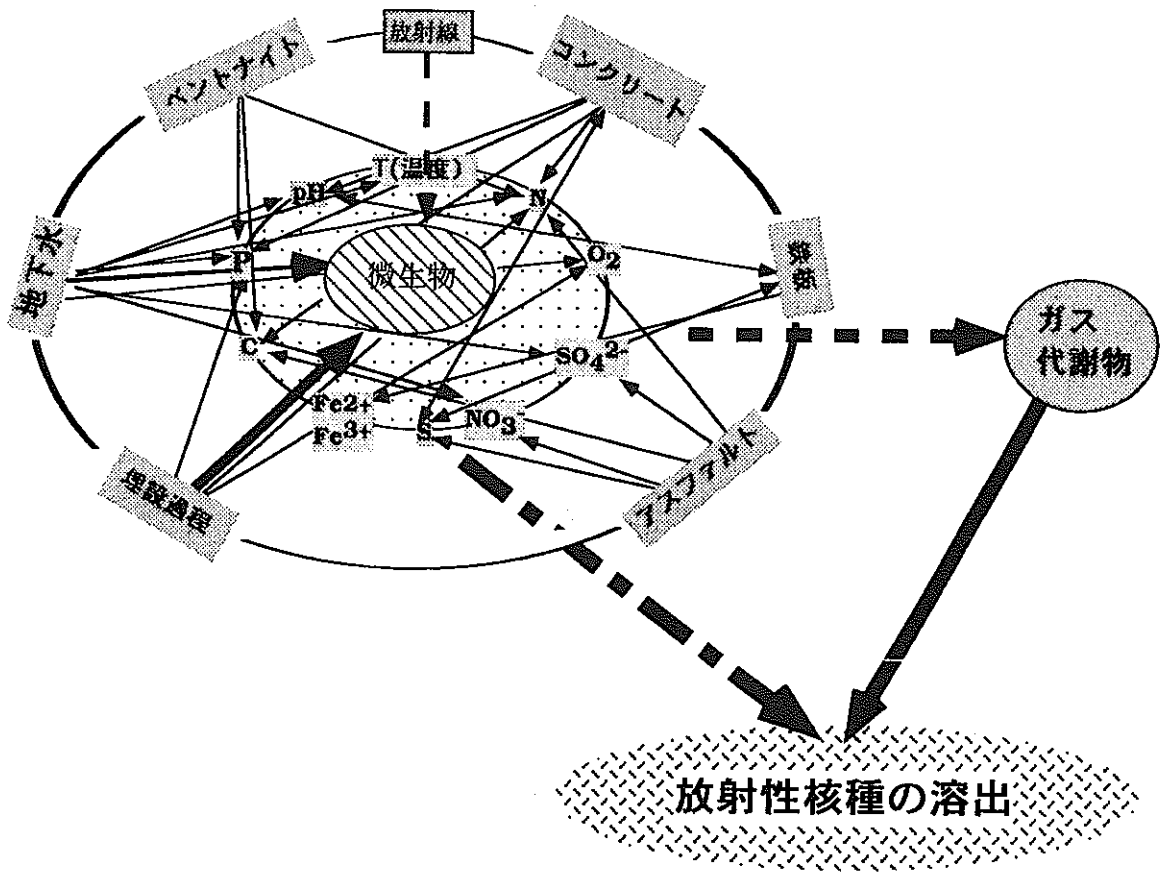
微生物活動によるガスの発生、pHの変化、代謝物の生成、などは処分環境の変化をもたらす。これらが各バリア（コンクリート、鉄板、アスファルト、放射性核種、など）に影響を及ぼす。

### 3.2.3 微生物によるアスファルトの分解に至る過程

- (1) 埋設の過程：アスファルト固化体の埋設の時に地上の環境から様々な微生物、相当量の酸素、有機物、窒素、リンなどの栄養物を持ち込む可能性がある。
- (2) 地下水：処分地地下水に地層中に土着微生物、溶存酸素、電子受容体となり得るイオン（硝酸、亜硝酸、硫酸など）、微生物の活動に必要な栄養、などが存在する可能性がある。
- (3) ベントナイト：ベントナイト中に微生物の生育に必要な栄養物質が存在する。特に、ベントナイトは微粒であるので表面積が大きく、有機物などがベントナイトに吸着し保持される可能性がある。
- (4) コンクリート：地下水によるコンクリートの溶出、微生物の生成した硫酸によるコンクリートの腐食、微生物の発生したCO<sub>2</sub>、窒素ガス、メタンなどのガスによるコンクリートの亀裂、などが考えられる。
- (5) 鉄板：腐食によるFe<sup>2+</sup>またはFe<sup>3+</sup>の生成、Fe<sup>3+</sup>を利用する微生物の増殖、Fe<sup>2+</sup>、Fe<sup>3+</sup>の相互変化による酸化還元状態の拡散、などが上げられる。
- (6) アスファルト：好氣的にまたは嫌氣的にアスファルトの分解（我々の研究ではこのような結果が得られた）。廃棄放射性物質の放射線によってアスファルトの分解能の高い変異微生物の出現、適応と集積によってアスファルトの高分解能微生物の出現、微生物の生産する表面活性物質によるアスファルト分解の加速、などを考察した。
- (7) 放射性核種への影響：微生物のウランなどの放射性核種の蓄積、微生物の放射性核種への吸着、微生物の代謝物または分解物の放射性核種との錯体の形成、などによる

放射性核種の可溶化、移動度の増加、拡散の促進、などが上げられる。

以上検討した結果に基づいてアスファルトの微生物分解に関するシナリオを作成した  
(下の図)。



微生物によるアスファルト分解のシナリオ