

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)

(動力炉・核燃料開発事業団 研究委託内容報告書)

1998年2月

財団法人 産業創造研究所

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大字村松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

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)

技術協力部 技術管理室

開示
開示
用し

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)

九石正美*、程塚正敏*、山口 真*、池田泰久*、林 孔華**、川上 泰**

要 旨

TRU廃棄物処分場の安全性評価のために分配係数に関する文献調査を実施し、データベースを作成すると共に、TRU廃棄物の一つであるアスファルト固化体に含まれるヨウ素129の浸出挙動を把握する。また、長期耐久性評価の観点からアスファルトの微生物分解にともなう酸素消費速度の評価を行う。実施項目と成果の概要は以下の通り。

(1) 吸着データベースの作成

- ・昨年度データベースに登録したヨウ素と炭素を除き、TRU廃棄物処分に関係のある18核種について分配係数の記載のある196件の文献を収集した。
- ・本文に示した登録の規則に従う分配係数の記載されている文献は132件であった。
- ・データベースに登録した核種は全部で13核種、全レコード数は1520であった。
- ・100件以上のデータが登録されたのは、Cs、Np、Pu、Sr、Tc、Uの6核種であった。

(2) アスファルト固化体からのヨウ素の浸出挙動の検討

- ・NaOH溶液によるpH調整では、NaもIイオンも浸出率は 10^{-3} cm/dayのオーダーであり、溶液のpHに依存しなかった。
- ・本固化体から90%の核種が溶出する時間は、浸出率から約8年と見積もられた。
- ・AgIを含有するアスファルト固化体は大気下還元下共に、ほとんど膨潤しなかった。
- ・還元環境下でもアスファルト固化体に硝酸イオンが存在すれば、固化体内部のEhが低下せず、AgIが分解しないと推定された。
- ・AgI含有アスファルト固化体は、CsI固化体と比較して NaNO_3 の浸出速度が遅いことや還元環境下でもEhが低下しないことから、実固化体の大きさではヨウ素を約1500年間保持することが予測された。

(3) アスファルト分解に伴う酸素消費量の調査

- ・アスファルトを劣化させうる好気性微生物を用いてアスファルトの劣化実験を行ったときの酸素消費を測定し、酸素量当たりの劣化量を見積もった。
- ・アスファルトの微生物劣化実験での酸素消費は小さく、培地そのものの酸素消費を直接測定することはできなかった。しかしながら、培地中の菌体を濃縮して菌体濃度を高めた状態では酸素消費を測定することができた。
- ・アスファルトペレットの重量減少を劣化量と定義して計算すると、重量比で酸素消費1に対し、2種のアスファルト分解菌を用いた実験でそれぞれアスファルト0.391、0.388が劣化されることがわかった。
- ・アスファルトの劣化実験での微生物増加量を計算してアスファルトの劣化量に対する菌体増加量を求めた。この劣化量1に対し、0.28の菌体増加があることがわかった。

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。

事業団担当部課室：環境技術開発部 処分システム解析室
*：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(III)

Masami Sazarashi*, Masatoshi Hodozuka*, Makoto Yamaguchi*, Yasuhisa Ikeda*
Kong-hua Lin**, Yasusi Kawakami**

We have prepared data base for distribution ratios of various nuclides to assess the safety of disposal sites of TRU wastes, and studied leaching properties of I⁻ ions from bituminized solidity to understand the behavior of ¹²⁹I in bituminized TRU wastes. Furthermore, we have evaluated the biodegradation from the standpoint of long durability of the bituminized TRU wastes. The results are summarized as follows:

(1) Preparation of data base for adsorption

- We have surveyed 196 papers to collect the distribution ratios for 18 nuclides except for ¹²⁹I and ¹⁴C.
- The distribution ratios described in 132 papers were found to fit to the registration rules.
- The nuclides registered in data base are 13, and number of record is 1520.
- For nuclides of Cs, Sr, Tc, U, Pu, and Np, the distribution ratios more than 100 were registered in the data base.

(2) Leaching behavior of I⁻ ions from bituminized solidity

- Leaching rates of Na⁺ and I⁻ ions are the order of 10⁻³ cm/day without depending on pH of NaOH solutions.
- The period required for leaching 90% of nuclides in bituminized solidity was evaluated to be about 8 years.
- The bituminized solidity containing AgI was found to not swell in aqueous solutions under atmospheric and reductive conditions.
- It was suggested that AgI in bituminized solidity containing NO₃⁻ ions does not decompose even under reductive conditions.
- The leaching rate of NaNO₃ from the bituminized solidity containing AgI is slower than that from the bituminized solidity containing CsI, and in such a AgI solidity system Eh value does not decrease even under reductive conditions. From these results, it was predicted that ¹²⁹I nuclides are fixed for about 1500 years in the practical bituminized wastes.

(3) Oxygen consumption during biodeterioration of bitumen

- Microbial oxygen consumption was measured during biodeterioration of bitumen with aerobic mixed culture of bitumen-degrading species. The amount of deteriorated bitumen was estimated per unit amount of oxygen consumed.
- The oxygen consumption was so small that the amount of oxygen consumed could not be directly measured in non-concentrated culture. Concentration of the culture by centrifugation enabled the measurement; the concentrated microbial suspension showed greater respiration in unit volume of culture.
- The biodeterioration experiments by the two bitumen-degrading mixed cultures showed that 0.391 and 0.388 of bitumens were respectively deteriorated on a weight basis per unit weight of oxygen consumption.
- The microbes grow with the deterioration of bitumen. Unit weight of bitumen deteriorated gave 0.28 cell growth for a strain on a weight basis.

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

PNC Liaison : Waste Technology Development Division, Geological Isolation Technology Section,

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

目 次

1. まえがき	1
2. 易溶性核種の挙動に関する研究	3
2. 1 吸着データベースの作成	3
2. 1. 1 目的	3
2. 1. 2 文献の収集と整理	3
2. 1. 3 データベース登録の規則	4
2. 1. 4 登録結果の概要	11
2. 2 アスファルト固化体からのヨウ素の浸出挙動の検討	21
2. 2. 1 アスファルト溶出機構検討試験の継続	21
(1) 背景と目的	21
(2) 試験方法	21
(3) 試験結果	21
2. 2. 2 不溶性銀添加アスファルト固化体の浸出試験	33
(1) 背景と目的	33
(2) AgI 沈澱の調製	34
(3) 模擬固化体の調製	34
(4) 模擬地下水の調製	35
(5) 試験方法	35
(6) 試験結果と考察	39
3. 微生物によるアスファルトの分解挙動に関する研究	58
3. 1 アスファルト分解に伴う酸素消費量の調査	58
3. 1. 1 培養	58
3. 1. 2 測定項目	58
(1) 酸素消費量	58
(2) アスファルト劣化量	65
(3) 微生物増殖量	65
3. 1. 3 データの整理	69
3. 1. 4 まとめ	81
4. あとがき	82
5. 参考文献	85

1. まえがき

TRU廃棄物の一つであるアスファルト固化体には、地下水に対して溶けやすい長半減期核種のヨウ素129を含むため、ヨウ素のアスファルト固化体からの浸出挙動を把握する。また、アスファルト固化体の長期耐久性評価の観点からアスファルトの微生物分解にともなう酸素消費速度の評価を行う。

1.1 実施項目

実施項目は以下の3項目とする。

- ① 易溶性核種の挙動に関する研究
 - (1) 吸着データベースの作成
 - (2) 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) アスファルト分解に伴う酸素消費量の調査

1.2 研究内容

それぞれの研究内容の概要を以下に示す。

① 易溶性核種の挙動に関する研究

(1) 吸着データベースの作成

地層中からTRU廃棄物処分場に浸入した地下水は人工バリア材であるセメント系材料の影響を受けて高アルカリの地下水となって再び地層中に放出される。ここでは、セメント平衡水環境を含む高アルカリ性環境で取得された岩石、天然鉱物及び人工吸着材等への以下に示す核種についての吸着試験を実施した文献を対象に分配係数を調査し、データベースを作成する。

対象核種：Ni、Se、Sr、Zr、Nb、Mo、Tc、Sn、Cs、Sm、U、Np、Pu、Am、Cm、Th、
Ra、Pb

(2) アスファルト固化体からのヨウ素の浸出挙動の検討

昨年度はヨウ素、セシウム、硝酸ナトリウムをドーブした模擬アスファルト固化体(49φ×15L)を作製し、その固化体を用いて常温・常圧下での浸出試験を実施した。その結果、本模擬固化体からのヨウ素、セシウム、硝酸ナトリウムの初期浸

出率はそれらの含有量に依存せず 10^{-3} cm/dayのオーダーであり、含有するヨウ素の90%が溶出する期間は約30年と推定された。

今年度は、ヨウ素のより現実的な浸出率を調査するため、ヨウ素を不溶性銀(AgI)の形態でドーブした模擬アスファルト固化体を作製し、処分環境条件でのヨウ素浸出試験を実施する。

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) アスファルト分解に伴う酸素消費量の調査

昨年度の試験より、好気条件での微生物によるアスファルト分解速度が嫌気条件での40倍に相当するため、酸素の有無は微生物のアスファルト分解を大きく左右することが明らかとなった。

今年度は処分場における酸素の存在期間を正確に見積もるため、微生物のアスファルト分解に伴う酸素消費速度を実験的に調査する。

1) 培養

従来法と同様の培養を行って、適時にその酸素消費を測定する。

2) アスファルト劣化量

従来法に従い、培養終了時にアスファルトを取り出し、重量減少量を求め、劣化量とする。

3) 微生物増殖量

培養時の増殖量は従来法に従い、濁度で評価する。厳密な意味での増殖量を求めることは粒子化したアスファルトがcellと混在しているので困難であるが、菌数を計数し、別にアスファルト以外の炭素源での菌体量/菌数などのデータから近似的に求めることを考える。

4) データの整理

1) で求められた酸素消費量とアスファルト劣化量を相関させて、単位酸素量当たりの可能な最大アスファルト劣化量を評価する。こうすると処分サイトに持ち込まれた酸素量からアスファルトの可能な劣化量を求めることができる。

2. 易溶性核種の挙動に関する研究

2.1 吸着データベースの作成

2.1.1 目的

前書きでも述べたように、TRU廃棄物処分場の安全性を評価するためには、天然バリアや人工バリアの核種吸着能が重要な要因の一つである。現在、すでに多くの研究が実施されており、核種の吸着能を分配係数として報告されている。これらのデータを整理することによって、安全評価へのインプットデータとして妥当な分配係数を設定するための吸着データベースを作成する。

2.1.2 文献の収集と整理

昨年度に引き続き、以下に示す18核種についての吸着試験を実施した文献を後述の方法で収集して整理した。なお、ヨウ素と炭素は昨年度にデータベースが完成しているので、除外した。

対象核種：Ni、Se、Sr、Zr、Nb、Mo、Tc、Sn、Cs、Sm、U、Np、Pu、Am、Cm、Th、Ra、
Pb

方法① 日本科学技術センター 原子力情報ファイル (NUCLEN : '81~95)

- ・ 検索式 = 放射性廃棄物 × 吸着 × 元素名 (ヨウ素、炭素を除く)
- ・ 延べ702件、重複を除くと407件、Abstractを読んで234件を選定して原文を注文
- ・ 原文を当たり、Kd又はRdが載っているもの及び換算できそうな125件を選定
- ・ 動燃殿の指示により、MHIと重複している4件を除外して121件を選定

方法② 日本科学技術センター 原子力情報ファイル (NUCLEN : '81~95)

- ・ 検索式 = 放射性廃棄物 × (吸着 + 収着) × (核種)
- ・ 検索式 = (岩石 + 鉱物 + 人工バリア) × (吸着 + 収着) × (核種)
- ・ 検索式 = (データベース) × (吸着 + 収着)
- ・ 延べ807件、①との重複を除き、Abstractを読んで47件を選定して原文を注文
- ・ 原文を当たり、Kd又はRdが載っているもの44件を選定

方法③ MRS Proceeding '82~97を当たり、前述の検索に漏れたもの31件を選定

以上の合計196件を表2.1.1のように国別、アメリカは件数が多いので、研究機関別に分類した。更に、重複を避けて登録するためにこれらの分類記号の中で発行年順に番号をつけた。今後、これを文献コードとして使用する。

表2.1.1 収集文献の整理

所属国（研究機関）	分類記号	件数
アメリカ（ORNL）	AO	27
アメリカ（他のNL）	AN	29
アメリカ（大学その他）	AU	24
*日本	J	41
イギリス	K	12
ドイツ	G	12
カナダ	C	10
スウェーデン	S	9
フランス	F	6
フィンランド	L	4
イタリア	I	3
トルコ	T	2
中国	CH	4
チェコスロバキア	Z	3
スイス	SW	2
インド	D	2
モナコ	O	1
オーストラリア	O	1
ベルギー	O	1
ユーゴスラビア	O	1
韓国	O	1
リビア	O	1
合計		196

*日本語11件

2.1.3 データベース登録の規則

昨年度と同様に、表2.1.2の規則に従って文献のデータをデータベースに登録した。また、データベースのフィールド名「固相」は、英語の鉱物名が多く、わかりにくいので、表2.1.3に示す対訳表に基づき、日本語で登録した。

表2.1.2 データベース登録の規則 (1/3)

分配係数

フィールド名	タイプ	説明
元素	テキスト	試験に使用した同位体名を登録
固相	テキスト	試験に使用した固相の種類を登録
液相	テキスト	試験に使用した液相の種類を登録
化学形態の分類	テキスト	収着した核種の化学形態 (I^- , IO_3^- 等) を登録
収着機構の分類	テキスト	収着機構 (化学吸着、陰イオン交換等) を登録
分配係数の種類	テキスト	文献中に記載されている記号 (K_d , R_d 等) を登録 <ul style="list-style-type: none"> ・ 吸収率の値から求めて登録した場合はその旨を記した。 ・ 拡散係数等から求めたものはその旨を記した。 ・ 遅延係数から求めたものはその旨を記した。
分配係数(ml/g)	数字	分配係数の値 ml/g を登録 <ul style="list-style-type: none"> ・ pHをパラメータとしている場合は、セメント間隙水 pH に最も近い pH での分配係数を登録した。 ・ 初期濃度をパラメータとしている場合は、最も低い濃度で得られた分配係数を登録した。 ・ 浸漬期間をパラメータとしている場合は、最長期間で得られた分配係数を登録した。
信頼度	数字	空欄
出発物質	テキスト	試験開始時の核種の化学形態を登録
文献コード	テキスト	<ul style="list-style-type: none"> ・ 文献収集の時に用いた文献コード (AO-1, J-1等) を用いた。 ・ 文献コードから文献を参照できるリストを添付した。

表2.1.2 データベース登録の規則 (2/3)

一般記載事項

フィールド名	タイプ	説明
初期濃度(mol/l)	数字	トレーサ初期濃度を登録
液固比(ml/g)	数字	液固比を登録
浸漬期間(日)	数字	浸漬期間を登録
固液分離方法	テキスト	0.45 μろ過、遠心分離等を登録
実験雰囲気	テキスト	Ar, 大気等を登録
試料サイズ 比表面積	テキスト	試料粒子サイズまたは比表面積を単位を付けて登録
反応容器	テキスト	ガラス、ポリエチレン等を記載
温度(°C)	数字	試験時の液温を登録
最終 pH	数字	試験終了時の液相の pH を登録
最終 Eh	数字	試験終了時の液相の Eh を登録
実験方法	テキスト	バッチ法、インディフュージョン法等を登録
誤差	テキスト	繰り返し数または標準偏差を登録
分析方法	テキスト	トレーサ濃度の分析方法を登録

液組成

Na	テキスト	mol/l で登録
Ca	テキスト	mol/l で登録
Mg	テキスト	mol/l で登録
Fe	テキスト	mol/l で登録
Cl	テキスト	mol/l で登録
SO ₄ ²⁻	テキスト	mol/l で登録
HCO ₃ ⁻	テキスト	mol/l で登録
SiO ₂	テキスト	mol/l で登録
TOC	テキスト	mol/l で登録
K	テキスト	mol/l で登録

表2.1.2 データベース登録の規則 (3/3)

文献情報

フィールド名	タイプ	説明
元素	テキスト	(1/3)記載と同じ
文献コード	テキスト	(1/3)記載と同じ
信頼度	テキスト	(1/3)記載と同じ
固相	テキスト	(1/3)記載と同じ
液相	テキスト	(1/3)記載と同じ

実験方法	テキスト	(1/3)記載と同じ
溶解度の考慮	テキスト	文献中で試験時のトレーサ濃度は溶解度を考慮しているかを簡単に登録
固相組成の記載	テキスト	固相組成について登録 <ul style="list-style-type: none"> ・化学式が記載されている場合はそれを登録した。 ・産地、商品名が記載されている場合はそれを登録した。 ・詳細な組成等が記載されている場合は「本文参照」等と登録した。
pH, Ehコントロール法の記載	テキスト	pH, Ehコントロール法（使用した薬品名等）を登録
炭酸沈殿するイオンの考慮	テキスト	二酸化炭素の制御方法、または炭酸沈殿するイオンを考慮しているかを登録
コロイド、有機物についての記載	テキスト	実験系に存在するコロイド、有機物を登録
容器への吸着考慮	テキスト	ブランク溶液を準備しているかを登録
還元剤の種類	テキスト	使用した還元剤名を登録
試料の準備方法	テキスト	使用した同位体等の準備時の取り扱いについて簡単に登録
温度制御方法	テキスト	実験系の温度制御方法（室温下、恒温槽等）を登録。
固液分離方法の適合性	テキスト	沈殿、コロイドの大きさを考慮して固液分離をしているかを簡単に登録
吸着箇所同定の考慮	テキスト	核種が吸着している場所を同定していればその場所を登録
反応性の考慮	テキスト	吸着の可逆性、不可逆性、反応速度等について議論されているかを登録
放射線効果の考慮	テキスト	放射線が吸着に与える影響（液相、固相等の変質等）について議論されているかを登録
活量補正の考慮	テキスト	液相の活量補正について議論されているかを登録
吸着メカニズム、モデルの議論	テキスト	吸着メカニズム、モデリングについて議論されているかを登録
競合イオンの影響の考慮	テキスト	液相成分が吸着に与える影響について議論されているかを登録
圧縮系での固相壁面効果	テキスト	圧縮系での固相の壁面効果についての記載を簡単に登録

表2.1.3 鉱物名日本語対訳表 (1/3)

accessory	従属鉱物
agate	メノウ
albite	ソーダ長石、 $\text{NaAlSi}_3\text{O}_8$
alluvium	沖積土
almandine	貴ざくろ石 $\text{Fe}_3\text{Al}_2\text{Si}_5\text{O}_{12}$
amphibole	角閃石の総称
analcime	方沸石、 $\text{NaAlSi}_2\text{O}_6 \cdot \text{H}_2\text{O}$
andesite	安山岩
anhydrite	無水石膏 CaSO_4
anorthite	灰長石 $\text{CaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$
apatite	燐灰石 $\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3(\text{OH},\text{F},\text{Cl})$
argillaceous	陶土質の、粘土質の
argillite	粘土質岩
augite	輝石の一種
barite	バライト、硫酸バリウムの鉱石
basalt	玄武岩
bauxite	ボーキサイト、 $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$
be Bentonite	ベントナイト
beryl	緑柱石 $\text{Be}_3\text{Al}_2\text{Si}_6\text{O}_{18}$
biotite	黒雲母、 $\text{K}_2(\text{Mg},\text{Fe},\text{Al})_3(\text{Si},\text{Al})_3\text{O}_{10}(\text{OH})_2$
bornite	斑銅鉱、 Cu_5FeS_4
bourmonite	車骨鉱、 PbCuSbS_3
breccia	角れき岩
bytownite	亜灰長石 (斜長石の一種)
calcareous	石灰質の
calcite	方解石、 CaCO_3
celestite	セlestait、天青石、 SrSO_4
cerargyrite	角銀鉱、 AgCl 、別名：horn silver
chacocite	輝銅鉱、 Cu_2S
chalcopyrite	黄銅鉱 CuFeS_2
chalcosite	輝安銅鉱、=chalcostibite、 CuSbS_2
chlorite	緑泥石、 $\text{Mg},\text{Fe},\text{Al}$ に富むケイ酸塩鉱物
claystone	粘土質岩
coffinite	コフィン石 USiO_4
corundum	コランダム、剛玉石 Al_2O_3
diabase	輝緑石
diatomite	珪藻土、 SiO_2
diorite	閃緑岩、粗粒玄武岩
dolomite	ドロマイト、白雲石 $\text{CaMg}(\text{CO}_3)_2$
eolian sand	風成砂、=aeolian
epidote	緑れん石
feldspar	長石
flagstone	板石 (砂岩、頁岩)
fluorite	螢石 CaF_2
fluvioglacial	融水流の
foliation	葉状構造
foresterite	ホーステライト、苦土カンラン石 Mg_2SiO_4
gabbro	ハンレイ岩、かすり石
galena	方鉛鉱 PbS
gibbsite	ギブサイト $\text{Al}(\text{OH})_3$

表2.1.3 鉱物名日本語対訳表 (2/3)

glaciofluvial sand	氷河砂
glauconite	海緑石、海緑砂
gneiss	片麻岩
goethite	針鉄鉱、 $\text{FeO}(\text{OH})$
granite	花崗岩
granodiorite	花崗閃緑岩
grossularite	緑ざくろ石、 $\text{Ca}_3\text{Al}_2(\text{SiO}_4)_3$ 、=grossular
gypsum	石膏、 $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$
halite	カリ岩塩、 KCl
halloysite	ハロイサイト $\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$
hedenbergite	ヘデンベルグ石、 $\text{CaFeSi}_2\text{O}_6$
hematite	ヘマタイト、 Fe_2O_3
hornblende	角閃石
igneous rock	火成岩
illite	イライト
ilmenite	イルメナイト、チタン鉄鉱、 FeTiO_3
kaolin	カオリン、カオリナイト近似鉱物の総称
kaolinite	カオリナイト $\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4$
limestone	石灰岩
limonite	褐鉄鉱 $2\text{Fe}_2\text{O}_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$
loellingite	レーリンジャイト、ヒ鉄鉱、 FeAs_2
magnetite	磁鉄鉱、 Fe_3O_4
Maifanshih	風化火成岩の一種（中国の固有名詞）
marl	泥灰土
marlaceous	泥灰質の
marlstone	泥灰岩
megrele	
mica	雲母
microcline	微斜長石 KAlSi_3O_8
molybdenite	モリブデナイト MoS_2
monazite	モナザイト、モナズ石 $(\text{Ce}, \text{La}, \text{Md}, \text{Pr}, \text{Th})\text{PO}_4$
montmorillonite	モンモリロナイト
mudstone	泥岩、土丹、比較的柔らかい粘土質岩
muscovite	白雲母、 $\text{KAl}_3\text{Si}_3\text{O}_{10}(\text{OH})_2$
oligoclase	灰曹長石
olivine	カンラン石
ooze	軟泥、浮遊物の遺骸が沈積したもの
opaque	不透明体
orthoclase	正長石 KAlSi_3O_8
palygorskite	パリゴルスカイト
peat	泥炭
pegmatite	巨晶花崗岩
phlogopite	金雲母 $\text{KMg}_3\text{AlSi}_3\text{O}_{10}(\text{OH})_2$
phosphorite	燐灰石、apatite
phyllosilicate	層状ケイ酸塩
plagioclase	斜長石
plagiorhyolite	斜流紋岩
plutonic rock	深成岩
porphyritic	斑岩状の
prehanite	ぶどう石、 $\text{Ca}_2\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_{10}(\text{OH})_2$

表2.1.3 鉱物名日本語対訳表 (3/3)

propylite	プロピライト、変朽安山岩
pumice	軽石
pyrite	黄鉄鉱 FeS_2
pyrolusite	軟マンガン鉱、 MnO_2
pyromorphite	緑鉛鉱、 $\text{Pb}_5(\text{PO}_4)_3\text{Cl}$
pyroxene	輝石、Ca,Fe,Mgに富むケイ酸塩鉱物
pyrrhotite	磁硫鉄鉱、=pyrrhotine, FeS
quartz	石英、 SiO_2
rhyolite	流紋岩
rutile	ルチル、金紅石、 TiO_2
sandstone	砂岩
schistose	片岩質の
sepiolite	セピオライト $\text{Mg}_2(\text{H}_4\text{Si}_4\text{O}_{11})_2(\text{OH})_2$
sericite	セリサイト
serpentine	蛇紋石 $\text{Mg}_3\text{Si}_2\text{O}_7(\text{OH})_2$
shale	頁岩、泥板岩
silt	沈積土
slate	粘板岩
smectite	スメクタイト、緑粘土
sphalerite	閃亜鉛鉱、 ZnS
sphene	せつ石 $\text{CaTi}(\text{SiO}_4)(\text{O},\text{OH},\text{F})$
spodumene	リチア輝石、 $\text{LiAlSi}_2\text{O}_6$
stibnite	輝安鉱 Sb_2S_3
stratum	地層
strotianite	ストロンチウム石、 SrCO_3
tetrahedrite	四面銅鉱、 $(\text{Cu},\text{Fe})_{12}\text{Sb}_4\text{S}_{13}$
tonalite	トータル岩
tuff	凝灰岩
uranite	閃ウラン鉱、ウラナイト、ウラン雲母
volcanic	火山性の
zircon	ジルコン、 ZrSiO_4

2.1.4 登録結果の概要

登録文献数及び核種の登録数の集計結果を表2.1.4に示す。収集した文献は196件あったが、その中で以下のような文献は登録しなかった。

- ① 総説であり、具体的実験条件の記載されていない分配係数
- ② 前報と重複したデータを用いている分配係数
- ③ 拡散モデルシミュレーションのためのインプットデータとして設定された分配係数
- ④ 再処理工程で発生する硝酸廃液中に含まれるPp、U等の回収を目的とした吸着材の分配係数
- ⑤ セメントやベントナイトなど、人工バリアへの分配係数

その結果、登録した文献は132件であった。登録した核種は全部で13核種、すなわち5核種（Mo、Nb、Pb、Sm、Zr）については、分配係数が見あたらなかった。他方、100件以上のデータを登録したのは、Cs、Np、Pu、Sr、Tc、Uの6核種であった。これらの核種がよく研究されていることがわかる。

吸着材として検討された材料は、種類が多く、まだ整理されていないが、文献名と検討した核種や材料の一覧を文献コード毎に整理して、表2.1.5～表2.1.9に示すので、参照されたい。

表2.1.4 登録文献及び核種の集計結果

文献コード名	AO	AN	AU	J	K以降	合計
収集文献数	27	29	24	41	75	196
登録文献数	19	17	17	30	49	132
登録核種						
Am	0	8	14	24	35	81
Cm	0	2	10	0	4	16
Cs	78	30	59	65	64	296
Ni	0	8	8	0	21	37
Np	55	23	8	13	52	151
Pu	0	15	53	6	52	126
Ra	7	8	0	0	48	63
Se	0	8	3	0	0	11
Sn	0	0	0	3	6	9
Sr	67	48	64	72	65	316
Tc	74	6	0	34	65	179
Th	0	1	0	0	8	9
U	53	43	52	7	71	226
合計	334	200	271	224	491	1520

表2.1.5 登録文献一覧 (19件、文献コード: AO) (1/2)

No.	文献コード	著者	公開年	タイトル	雑誌名	vol.	No.	ページ	キーワード	材料
1	AO-2	Meyer R E; Shiao S-Y; Palmer D A	1980	Adsorption of radionuclides by inorganic oxides	Trans Am Nucl Soc	35		187-188	Cs, Sr, Tc	アルミナ, ZnO ₂
2	AO-3	Meyer R E; Palmer D A; Arnold W D; Case F I	1984	Adsorption of nuclides on hydrous oxides. Sorption isotherms on natural materials	ACS Symp Ser		246	79-94	Cs, Sr, Tc	アルミナ, ZnO ₂
3	AO-4	Meyer R E; Arnold W D; Case F I	1984	Valence effects on the sorption of nuclides on rocks and minerals	US DOE Rep		NUREG-CR-3389	48p	Tc, Np	玄武岩, ヘマタイト, 鉄磁石, イルメナイト, 炭石, 雲母, 方鉛鉱
4	AO-5	Kelmers A D; Cutshall N H; Jacobs G K; Johnson J S; Kessler J H; Meyer R E; Clark R J	1984	Evaluation of radionuclide geochemical information developed by DOE high-level nuclear waste repository site projects. Annual progress report for the period October 1982 - September 1983	US DOE Rep		NUREG-CR-3730	57p	Tc, Np	玄武岩, クリノプソライト
5	AO-7	Seeley F G; Kelmers A D	1984	Geochemical information for sites contaminated with low-level radioactive wastes I Niagara Falls storage site	US DOE Rep		ORNL-6083	22p	U, Ra	土壌
6	AO-9	Seeley F G; Kelmers A D	1985	Geochemical information for sites contaminated with low-level radioactive wastes II -St. Louis Airport Storage Site	US DOE Rep		ORNL-6097	61p	U, Ra	土壌, モンモリロナイト, イラタイト, ハロサイト, カオリン
7	AO-10	Kelmers A D; Kessler J H; Amold W D; Meyer R E; Cutshall N H; Jacobs G K; Lee S Y; Clark R J	1984	Progress in evaluation of radionuclide geochemical information developed by DOE high-level nuclear waste repository site projects. Report for January - March 1984	US DOE Rep	2	NUREG-CR-3851	1-47	Np, Tc, U	玄武岩
8	AO-11	A.D.Kelmers, W.D.Arnold, R.E.Meyer, F.J.Smith, G.K.Jacobs, S.K.Whattley	1984	Progress in Evaluation of Radionuclide Geochemical Information Developed by DOE High-Level Nuclear Waste Repository Site Projects: Report for April-June 1984	US DOE Rep	3	NUREG-CR-3851	38P	Tc, Sr, Np	玄武岩
9	AO-12	R.E.Meyer, W.D.Arnold, and F.J.Case	1985	Valence Effects on the Sorption of Nuclides on Rocks and Minerals. II	US DOE Rep		NUREG-CR-4114	50P	Np, Tc	玄武岩, イラタイト, ヘマタイト, イルメナイト, 炭石, モルデナタイト
10	AO-13	A.D.Kelmers, J.H.Kessler, F.G.Seeley, W.D.Arnold, R.E.Meyer, F.J.Smith, N.H.Cutshall, G.K.Jacobs, S.Y.Lee, S.K.Whattley	1985	Progress in Evaluation of Radionuclide Geochemical Information Developed by DOE High-Level Nuclear Waste Repository Site Projects: Report for October 1983-September 1984	US DOE Rep		NUREG-CR-4136	66P	Tc, Np, U, Sr	玄武岩
11	AO-14	F.G.Seeley and A.D.Kelmers	1985	Geochemical Information for Sites Contaminated with Low-level Radioactive Wastes: Ill-Weldon Spring Storage Site	US DOE Rep		ORNL-6112	45P	U, Ra	土壌
12	AO-15	A.D.Kelmers, F.G.Seeley, W.D.Arnold, J.G.Blencoe, R.E.Meyer, G.K.Jacobs, S.K.Whattley	1985	Progress in Evaluation of Radionuclide Geochemical Information Developed by DOE High-Level Nuclear Waste Repository Site Projects: Report for January-March 1985	US DOE Rep	2	NUREG-CR-4236	49P	Tc, U	玄武岩
13	AO-17	A.D.Kelmers, W.D.Arnold, J.G.Blencoe, R.E.Meyer, G.K.Jacobs, S.K.Whattley	1986	Progress in Evaluation of Radionuclide Geochemical Information Developed by DOE High-Level Nuclear Waste Repository Site Projects: Report for April - June 1985	US DOE Rep	3	NUREG-CR-4236	21P	U	玄武岩
14	AO-19	R.E.Meyer, W.D.Arnold, P.C.Ho, F.J.Case, and G.D.O'Kelley	1986	Geochemical Behavior of Cs, Sr, Np, and U in Saline Groundwaters: Sorption Experiments on Shales and Their Clay Mineral Components	US DOE Rep		ORNL-TM-10634	55P	Cs, Sr, Tc, Np, U	モンモリロナイト, イラタイト, 頁岩

表2.1.5 登録文献一覧 (19件、文献コード: AO) (2/2)

15	AO-20	R.E.Meyer, W.D.Arnold, J.G.Blencoe, G.D.O'Kelley, and J.F.Land	1986	Progress in Evaluation of Radionuclide Geochemical Information Developed by DOE High-Level Nuclear Waste Repository Site Projects: Report for April 1986- September 1987	US DOE Rep	2	NUREG-CR-4708	64P	Sr, Cs, Tc, Np, U	凝灰岩
16	AO-21	P.C.Ho	1986	Organic Geochemistry: Effects of Organic Components of Shales on Adsorption	US DOE Rep		ORNL-TM-10932	49P	Cs, Sr, Tc	頁岩
17	AO-22	R.E.Meyer, W.D.Arnold, F.I.Case, G.D.O'Kelley	1988	Effects of Experimental Parameters on the Sorption of Cesium, Strontium, and Uranium from Saline Groundwaters onto Shales	US DOE Rep		ORNL-TM-10933	54p	Cs, Sr	頁岩
18	AO-24	H.A.Friedman and A.D.Kelmers	1990	Laboratory Measurement of Radionuclide Sorption in Solid Waste Storage Area 6 Soil/Groundwater Systems	US DOE Rep		ORNL-TM-10561	25P	Cs, Sr, U	土壌、粘土、砂
19	AO-25	R.E.Meyer, W.D.Arnold, F.I.Case, G.D.O'Kelley, and J.F.Land	1990	Effect of Mineralogy on the Sorption of Strontium and Cesium onto Calico Hills Tuff	US DOE Rep		CONF-901105-10	18P	Sr, Cs	クリノプロクロライト、凝灰岩

表2.1.6 登録文献一覧 (17件、文献コード: AN)

No.	文献コード	著者	公開年	タイトル	雑誌名	vol.	No.	ページ	キーワード	材料	分類
1	AN-1	Dosch R G	1981	Solubility and sorption characteristics of uranium(VI) associated with rock samples and brines/groundwaters from WIPP and NTS	U S DOE Rep		SAMD-80-1595	3-4p	U	ドロマイト	Sorption
2	AN-3	Erickson K L	1980	Radionuclide sorption studies on abyssal red clays	Sci Basis Nucl Waste Manage Vol 2	2		641-646	Tc, U, Pu, Am, Cm	粘土	Sorption
3	AN-4	Lynch A W; Dosch R G	1981	Cesium migration through solid cores of Margenta dolomite	Sci Basis Nucl Waste Manage Vol 3	3		457-464	Cs	ドロマイト	Sorption
4	AN-5	Nowak E J	1981	Composite backfill materials for radioactive waste isolation by deep burial in salt	Sci Basis Nucl Waste Manage Vol 3	3		545-552	Pu, Am, Tc, Sr, Cs	ペントナイト, 砂, チタン酸ナトリウム, 合成モルデナイト, イライト	Sorption
5	AN-7	Ames L L, Mcgarrah J E, Walker B A	1981	Basalt-radionuclide reactions: FY-1981 annual report	U S DOE Rep		RHC-BW-CR-127	23P	Pu, U, Cs, Se, Np, Ra	玄武岩, スメクタイト	Sorption
6	AN-9	Swanson J L	1983	Mobility of organic complexes of nickel and cobalt in soils	U S DOE Rep		PNL-4796	68p	Ni	土壌	Sorption
7	AN-10	Shade J W; Ames L L; Mcgarrah J E	1984	Actinoid and technetium sorption on iron-sulfate and dispersed clay colloids	American Chemical Society Symp. Ser		246	67-77	U, Pu, Cs, Np, Tc, Sr	シリカコロイド	Sorption
8	AN-13	Freeman H D; Buel J L	1985	Engineered sorbent barrier screening studies	U S DOE Rep		PNL-SA-13315	16p	Sr, Cs	活性炭, アンバーライト, セオライト, 緑砂, チタン酸ナトリウム, パーミキュライト	Sorption
9	AN-14	Swanson J L	1985	Organic-Complexant-enhanced mobility of toxic elements in low-level wastes	U S DOE Rep		NUREG-CR-4435	65p	Ni, Am	カオリナイト	Sorption
10	AN-18	Mitchell S J; Freeman H D; Buel J L	1986	Engineered sorbent barriers for low-level waste disposal	U S DOE Rep		PNL-SA-14237	15p	Sr	活性炭, セオライト, 酸化物, リン酸塩	Sorption
11	AN-20	Nelson D M; Orlandini K A; Penrose W R	1989	Oxidation states of plutonium in carbonate-rich natural waters	J Environ Radioactivity	9		189-198	Pu	炭酸カルシウム	Sorption
12	AN-22	Triay I R; Meijer A; Cisneros M R; Miller G G; Mitchell A J; Ott M A; Hobart D E; Palmer P D; Perrin R E; Aguilar R D	1991	Sorption of americium in tuff and pure minerals using synthetic and natural groundwaters	Radiochimica Acta	52/53		141-145	Am	凝灰岩, マンガン鉱, クリノプタロライト	Sorption
13	AN-24	Silva R J	1992	Mechanisms for the radiation of uranium(IV) migration	Sci Basis Nucl Waste Manage 15	257		323-330	U	シリカ	Sorption
14	AN-25	Triay I R; Robinson B A; Mitchell A J; Overly C M; Lopez R M	1993	Transport of neptunium through Yucca Mountain tuffs	Sci Basis Nucl Waste Manage 16	294		797-802	Np	凝灰岩, 石英, セオライト, モンモリロナイト, ヘマタイト	Sorption
15	AN-26	Siegel M D, Ward D B, Cheng W C, Bryant C, Chocas C S, Reynolds C G	1993	Preliminary characterization of materials for a reactive transport model validation experiment	High Level Radioact Waste Manage	1		348-358	Ni	砂	Sorption
16	AN-28	Nemoff M; Thoma S G; Miller J E; Trudell D E	1996	SNL-1, a highly selective inorganic crystalline ion exchange material for U^{2+} in acidic solutions	Sci Basis Nucl Waste Manage 19	412		659-664	Sr	無機物交換体	Sorption
17	AN-29	Jacobsson A-M M; Rundberg R S	1997	Uranyl Sorption onto alumina	Sci Basis Nucl Waste Manage 20	465		797-804	U	アルミナ	Sorption

表2.1.7 登録文献一覧 (17件、文献コード: AU)

No.	文献コード	著者	公開年	タイトル	雑誌名	vol.	No.	ページ	キーワード	材料
1	AU-3	Wolfsberg K; Aguilar R D; Bayhurst B D; Daniels W R; DeVilliers S J; Erdal B R; Lawrence F O; Maestas S; Mitchell A J; Oliver P Q; Vine E N	1981	Sorption -Desorption studies on tuff. III. A continuation of studies with samples from Jackass Flats and Yucca Mountain, Nevada	U S DOE Rep		LA-8747-MS	70p	Sr, Cs, Pu, Am, U	凝灰石
2	AU-4	Relyea J F; Silva R J	1981	Application of a site-binding, electrical, double-layer model to nuclear waste disposal	U S DOE Rep		PNL-3898	21p	Cs	シリカ
3	AU-5	Deju R A	1981	Basalt waste isolation project, Quarterly report	U S DOE Rep		RHO-BWI-81-100-1Q	62p	Pu	玄武岩
4	AU-6	Ryan J P	1982	Bath and column strontium distribution coefficients with water-saturated soil strata from the Savannah river plant burial ground	Environ Migr Long Lived Radionuclides			133-145	Sr	土壌
5	AU-7	Miner F J; Evans P A; Polzer W L	1982	Plutonium behavior in the soil/water environment. Part I. Sorption of plutonium by soils. Part II. Selected chemical and physical characteristics of aqueous plutonium and their effects on the sorption of plutonium by soils	U S DOE Rep		RFP-2480	38p	Pu	ローム、シルト
6	AU-8	Means J L	1982	The importance of organic compounds in ground water as radionuclide-mobilizing agents	U S DOE Rep		ONWI-348	69p	Sr, Cs, U	カオリナイト、モンモリロナイト、イライト
7	AU-11	Delegard C M; Barney G S; Gallagher S A	1984	Effects of Hanford high-level waste components on the solubility and sorption of cobalt, strontium, neptunium, and americium	American Chemical Society Symp Ser		246	95-112	Sr, Am, Np, Pu	堆積土
8	AU-12	Beall G W; Lee W W-L; Luik A E V	1986	Americium speciation and distribution coefficients in granitic ground water	Sci Basis Nucl Waste Manage			501-507	Am	石英、黒雲母
9	AU-14	Alberts J J; Pinder J E III; Lesnek S; Wurtz E	1986	The effect of pH, solid phase, particle concentration and equilibration time on the partition coefficient of curium on natural sediments	Appl Distrib Coeff Radiol Assess Models			72-82	Cm	針鉄鉱、堆積土、カオリナイト、シリカ
10	AU-16	Barney G S; Geiger J L	1989	Plutonium and uranium adsorption on sediments in a shallow aquifer at the Hanford site	Am Chem Soc Natl Meet Div Environ Chem	29		319-322	Pu, U	堆積土
11	AU-17	Del Debbio J A	1991	Sorption of strontium, selenium, cadmium, and mercury in soil	Radiochim Acta	52/53		181-186	Se, Sr	堆積土、沖積土、玄武岩
12	AU-18	Voudrias E A; Means J L	1993	Sorption of uranium by brine-saturated halite, mudstone and carbonate minerals	Chemosphere	26	10	1753-1765	U	岩塩
13	AU-19	Gutierrez M; Fuentes H R	1993	A Langmuir isotherm-based prediction of competitive sorption of Sr, Cs, and Co in Ca-montmorillonite	Waste Management	13		327-332	Sr, Cs	Ca型モンモリロナイト
14	AU-20	Ward D B; Bryan C R; Siegel M D	1994	Detailed characterization and preliminary adsorption model for materials for an intermediate-scale reactive-transport experiment	High Level Radioact Waste Manag Vol 4	4		2048-2062	Ni	砂、針鉄鉱、石英
15	AU-21	(Westinghouse Savannah River Co., S C)	1994	Uranium geochemistry in soil and groundwater at the F and H seepage basins	U S DOE Rep		EPD-SGS-94-307	100p	U	土壌
16	AU-22	Laud J C; Rupert M C; Harris M J; Duran A	1995	Adsorption study for uranium in Rocky Flats groundwater	U S DOE Rep		RFP-4900	4p	U	活性炭、アルミナ
17	AU-23	Bertetti F P; Pabalan R T; Turner D R; Almirandez M G	1996	Neptunium(V) sorption behavior on clinoptilolite, quartz, and montmorillonite	Sci Basis Nucl Waste Manage	412		631-638	Np	クリノプチロライト、石英、モンモリロナイト

表2.1.8 登録文献一覧 (30件、文献コード: J) (1/2)

No.	文献コード	著者	公開年	タイトル	雑誌名	vol.	No.	ページ	キーワード	材料	分類
1	J-1	山形茂; 下岡隆司; 森尾宗明; 荒木邦夫; 矢野ひろし	1981	花こう岩と水におけるセシウムの分配係数に関する研究 (連載)	日本原子力研究所 JARI-Mレポート	67	JARI-M-9432	22p	Cs	花崗岩	Sorption
2	J-2	Ohe T	1984	Ion exchange adsorption of radioactive cesium, cobalt, manganese, and strontium to granitoid rocks in the presence of competing cations	Nuclear Technology		1	92-101	Sr, Cs	花崗岩, 雲母	Sorption
3	J-3	塚本正樹	1985	岩石中のストロンチウムおよびセシウムの吸着速度 (その2) 粒子内拡散の温度依存性	電力中央研究所エネルギー研究所研究報告		285007	30p	Cs, Sr	花崗岩	Sorption
4	J-4	馬原隆典	1986	フォームアウトを利用したストロンチウム-90とセシウム-137の地中移動速度の検討	電力中央研究所工本研究所研究報告		385027	28p	Sr	ローム	Sorption
5	J-5	Nakayama S, Moriyama H, Arimoto H, Higashi K	1986	Distribution coefficients of americium, neptunium, and proactinium for selected rocks	Mem Fac Eng Kyoto Univ	48	3	275-283	Am, Np	花崗岩, 凝灰岩, 石英	Sorption
6	J-6	Konishi M, Yamamoto K, Yanagi T	1986	Sorption behavior of cesium and strontium ions on natural minerals	Technology Reports Osaka Univ	36	1864	397-403	Cs, Sr	ベントナイト, 石英	Sorption
7	J-7	Sato S, Furuya H, Araya S, Matsuo K	1986	Migration behavior of U(VI) in turf	Sci Basis Nucl Waste Manage 9	50		763-770	U	凝灰岩	Sorption
8	J-10	妹尾宗明, 白橋浩一, 坂本朝昭, 小西正郎, 森山昇	1988	浸出土壌と合成地下水系におけるプルトリウム-239の分配係数の測定	日本原子力研究所 JARI-Mレポート		JARI-M-88-038	15p	Pu	ローム, 凝灰岩, モルタル	Sorption
9	J-11	香野卓治	1988	地層中の移行に關連するテクネチウムの溶液化学	日本原子力学会誌	30	4	313-318	Tc	石英, 雲母, 角閃石, 麻石, さくろ石, 輝石, 綠れんが石, 輝石, 花崗岩, 石灰岩, 凝灰岩, 頁岩, 黄銅鉱, 方鉛鉱	Sorption
10	J-12	土弘進夫, 森信之	1988	ソイルモルタルの核種吸着特性について	福島建設技術研究所年報	36		215-218	Cs, Sr	モルタル	Sorption
11	J-13	Konishi M, Yamamoto K, Yanagi T, Okajima Y	1988	Sorption behavior of cesium, strontium and americium ions on clay materials	J Nucl Sci Technol	25	12	929-933	Cs, Sr, Am	ベントナイト, ローム	Sorption
12	J-14	Akiba K, Hasimoto H, Kanno T	1989	Distribution coefficient of cesium and cation exchange capacity of minerals and rocks	J Nucl Sci Technol	26	12	1130-1135	Cs	凝灰岩, 砂岩, 頁岩, 安山岩, 玄武岩, 花崗岩, 石灰岩, 雲母, 輝石, 角閃石, 石英	Sorption
13	J-15	Akiba K, Hasimoto H	1990	Distribution coefficient of strontium on variety of minerals and rocks	J Nucl Sci Technol	27	3	275-279	Sr	凝灰岩, 砂岩, 頁岩, 安山岩, 玄武岩, 花崗岩, 石灰岩, さくろ石, 輝石, 綠れんが石, 石英	Sorption
14	J-16	Konishi M, Okajima Y, Yamamoto K, Yanagi T	1989	Physical and chemical properties of bentonite-loam mixture as backfill materials	Proc 1989 Jt Int Waste Manage Conf Vol 1	1		475-481	Sr, Cs	ベントナイト	sorption
15	J-17	Senoo M, Shirahashi K, Sakamoto Y, Moriyama N, Konishi M	1989	Research on safety evaluation for TRU waste disposal	Proc 1989 Jt Int Waste Manage Conf Vol 1	1		483-489	Pu	ローム, 砂, 凝灰岩, ベントナイト	sorption
16	J-18	Ohnuki T, Takeuchi T, Kobayashi S, Ozaki T, Shimizu T, Kawata Y, Maeda S	1989	A field demonstrative experiment on solutes migration through saturated soil layer	Proc 1989 Jt Int Waste Manage Conf Vol 1	1		491-495	Sr, Cs	土壌	sorption
17	J-20	Minura H, Ishihara Y, Akiba K	1991	Adsorption behavior of americium on zeolites	J Nucl Sci Technol	28	2	144-151	Am	ゼオライト	sorption
18	J-22	Tsukamoto M, Ohe T	1991	Intraparticle diffusion of cesium and strontium cations into rock materials	Chemical Geology	90	1/2	31-44	Sr	雲母, 花崗岩	sorption
19	J-23	田中聡夫, 村山秀雄	1991	TRU核種の移行評価を目的とした分配係数の実験的取得手法	日本原子力研究所 JARI-Mレポート		JARI-M-91-118	18p	Am, Pu	砂岩, 凝灰岩, 土壌	sorption
20	J-24	Ohnuki T	1991	Characteristics of migration of ⁸⁵ Sr and ¹³⁷ Cs in alkaline solution through sandy soil	Sci Basis Nucl Waste Manage 14	212		609-616	Sr, Cs	土壌, カオリナイト, 輝石, セリサイト, 針鉄鉱, ルチル	sorption
21	J-27	Mimura H, Akiba K	1993	Adsorption behavior of cesium and strontium on synthetic zeolite, P	J Nucl Sci Technol	30	5	436-443	Sr, Cs	ゼオライト	sorption

表2.1.8 登録文献一覧 (30件、文献コード: J) (2/2)

22	J-29	Ohnuki T	1994	Sorption characteristics of strontium on sandy soils and their components	Radiochimica Acta	64	3/4	237-245	Sr	土壌、石英、カオリナイト、ハロイサイト、緑泥石、セリサイト、斜長石、輝石	sorption
23	J-30	Ohnuki T	1994	Sorption characteristics of cesium on sandy soils and their components	Radiochimica Acta	65	1	75-80	Cs	土壌、カオリナイト、ハロイサイト、緑泥石、セリサイト、輝石	sorption
24	J-32	田中忠夫、山本忠和、神山秀雄	1995	地層中移行試験に用いる放射性核種供給源構成素材の核種収容・脱離特性	日本原子力学会誌	37	1	51-58	Sr, Cs	セメント、砂、ケイソウ土、砂岩、セオライト、シリカゲル、イオン交換樹脂	sorption
25	J-33	Ohnuki T; Murakami T; Sato T; Isobe H	1994	Redistribution of strontium and cesium during alteration of smectite to illite	Radiochimica Acta	66/67		323-326	Sr, Cs	イライト、粘土	sorption
26	J-35	Idemitsu K; Obata K; Furuya H; Inagaki Y	1995	Sorption behavior of uranium(VI) on a biotite mineral	Sci Basis Nucl Waste Manage 18	353		981-988	U	蛭石	sorption
27	J-37	Amaya T; Kobayashi W; Suzuki K	1995	Absorption study of the Tc(IV) on rocks and minerals under simulated geological conditions	Sci Basis Nucl Waste Manage 18	353		1005-1012	Tc	花崗岩、凝灰岩、礫母、石英、長石	sorption
28	J-38	Tanaka T; Senoo M	1995	Sorption of ⁶⁰ Co, ⁸⁵ Sr, ¹³⁷ Cs, ²³⁷ Np and ²⁴¹ Am on soil under coexistence of humic acid; Effects of molecular size of humic acid	Sci Basis Nucl Waste Manage 18	353		1013-1020	Sr, Cs	砂	sorption
29	J-39	Kozai N; Ohnuki T; Muraoka S	1995	Sorption behavior of neptunium on bentonite - Effects of calcium ion on the sorption-	Sci Basis Nucl Waste Manage 18	353		1021-1028	Np	ベントナイト	sorption
30	J-41	Amaya T; Suzuki K; Oda C; Yoshikawa H; Yui M	1997	Adsorption of Sn(IV) on goethite in 0.01M NaCl solution at ambient temperature	Sci Basis Nucl Waste Manage 20	465		819-826	Sn	針鉄鉱	sorption

表2.1.9 登録文献一覧 (49件、文献コード: K以降) (1/3)

No.	文献コード	著者	公開年	タイトル	雑誌名	vol.	No.	ページ	キーワード	材料
1	K-1	Harvey B R; Kershaw P J	1984	Physico-chemical interaction of long-lived radionuclides in coastal marine sediments and some comparisons with the deep environment.	Eur Rep Comm Eur Commun		EUR-9214	131-141	Pu, Np, Tc	海底堆積土
2	K-4	Berry J A; Cowper M M; Green A; Jefferies N L; Linklater C M	1991	Sorption of radionuclides on mineral surfaces	Proc Recod 91	2		988-993	Cs	石英、方解石、カオリナイト
3	K-5	Berry J A; Baston G M N; Bond K A; Linklater C M; Pilkington N J	1991	Studies of the effects of degradation products on the sorption of tin and radium	Sci Basis Nucl Waste Manage 14			577-584	Sn, Ra	粘土、蛭石
4	K-6	Bond K A; Haworth A; Sharland S M; Smith A C; Tweed C J	1991	Modelling studies of the sorption of uranium and plutonium in the farfield of a nuclear waste repository	Sci Basis Nucl Waste Manage 14			585-592	Pu	粘土
5	K-8	Baston G M N; Berry J A; Bond K A; Boulton K A; Brownsword M; Linklater C M	1994	Effects of cellulosic degradation products on uranium sorption in the geosphere	Journal of Alloys and Compounds	213/214		475-480	U	ゼオライト
6	K-9	Baston G M N; Berry J A; Bond K A; Boulton K A; Brownsword M; Linklater C M	1994	Effects of cellulosic degradation products concentration on actinide sorption on tuffs from the borrowdale volcanic group, Sellafeld, Cumbria	Radiochimica Acta	66/67		437-442	Pu, Th	ゼオライト
7	K-10	Baston G M N; Berry J A; Brownsword M; Herth T G; Tweed C J; Williams S J	1995	Sorption of plutonium and americium on repository, backfill and geological materials relevant to the JNFL low-revel radioactive waste repository at Rokkasho-mura	Sci Basis Nucl Waste Manage 18	353		957-964	Pu, Am	砂岩、ゼオライト、土壌、ベントナイト
8	K-11	Baston G M N; Berry J A; Brownsword M; Cowper M M; Herth T G; Tweed C J	1995	The sorption of uranium and technetium on bentonite, tuff and granodiorite	Sci Basis Nucl Waste Manage 18	353		989-996	U, Tc	ゼオライト、花崗閃緑岩
9	K-12	Baston G M N; Berry J A; Brownsword M; Cowper M M; Herth T G; Ilett D J; Tweed C J; Yui M	1997	The effect of temperature on the sorption of technetium, uranium, neptunium and curium on bentonite, tuff and granodiorite	Sci Basis Nucl Waste Manage 20	465		805-812	Tc, U, Np, Cm	ゼオライト、花崗閃緑岩
10	G-1	Broddia B-G; Merz E	1983	Zur Wirksamkeit von Tonmineralen als Rückhaltebarriere bei der Endlagerung radioaktiver Abfälle in Salzgesteinen	Z Dtsch Geol Gess	134	2	453-466	Cs, Sr	ベントナイト、粘土
11	G-3	Meier H; Zimmerhackl E; Menge P; Hecker W	1987	Influence of liquid/solid ratios in radionuclide migration studies	Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Articles	109	1	139-151	Ra, U	砂岩
12	G-4	Lieser K H; Bauscher CH	1988	Technetium in the hydrosphere and in the Geosphere	Radiochimica Acta	44/45		125-128	Tc	堆積土、鉄鉱石
13	G-5	Winkler A; Bruhl H; Trapp CH; Bock W-D	1988	Mobility of technetium in various rocks and defined combinations of natural minerals	Radiochimica Acta	44/45		183-186	Tc	砂
14	G-8	Bock W-D; Bruhl H; Trapp C; Winkler A	1989	Sorption properties of natural sulfides with respect to technetium	Sci Basis Nucl Waste Manage 12	127		973-977	Tc	鉄石
15	G-11	Meier H; Zimmerhackl E; Zeitler G; Menge P	1991	Diffusion measurements of radionuclides in site-specific sediment/groundwater-systems	Sci Basis Nucl Waste Manage 14	212		617-622	U, Ra, Ni	砂、粘土
16	C-1	Patterson R J; Spoel T	1981	Laboratory measurements of the strontium distribution coefficient K_d for sediments from a shallow sand aquifer	Water Resources Reseach	17	3	513-520	Sr	堆積土、石英、雲母、長石、バークキュライト
17	C-4	Vandergraaf T T; Ticknor K V; George IM	1984	Reactions between technetium in solution and iron-containing minerals under oxic and anoxic conditions	American Chemical Society Symp Ser		246	25-43	Tc	石英、花崗岩、ハンレイ岩
18	C-6	Sheppard S C; Sheppard M I; Everden W G	1990	A novel method used to examine variation in Tc sorption among 34 soils, aerated and anoxic	J Environ Radioactivity	11	3	215-233	Tc	粘土
19	C-7	Ticknor K V; Kaminent D C; Vandergraaf T T	1991	Flow path mineralogy: its effect on radionuclide retardation in the geosphere	Sci Basis Nucl Waste Manage 14	212		661-668	Sr, Cs	方解石、鉄鉱石、輝緑石、針鉄鉱、石膏、雲母、粘土

表2.1.9 登録文献一覧 (49件、文献コード: K以降) (2/3)

20	C-8	Ticknor K V	1993	Actinoid sorption by fracture-infilling minerals	Radiochimica Acta	60	1	33-42	U, Np, Pu	方解石、輝石、輝石、針鉄鉱、石炭、雲母、粘土
21	C-9	Ticknor K V	1994	Uranium sorption on geological materials	Radiochimica Acta	64	3	229-236	U	輝石、針鉄鉱、花崗岩、雲母、粘土
22	C-10	Ticknor K V	1994	Sorption of nickel on geological materials	Radiochimica Acta	66/67		341-348	Ni	雲母、花崗岩、粘土、長石、石英
23	S-1	Torstenfelt B; Andersson K; Allard B	1982	Sorption of strontium and cesium on rocks and minerals	Chemical Geology	36		123-137	Cs, Sr	花崗岩、片麻岩、輝石、燧石、雲母、方解石、雲石、粘土、角閃石、鉄燧化物、雲石、石英、蛇紋岩
24	S-2	Allard B; Olofsson U; Torstenfelt B; Kipatsi H; Andersson K	1982	Sorption of actinoides in well-defined oxidation states on geologic media	Sci Basis Nucl Waste Manage 5			775-782	Th, U, Pu, Np, Am	アルミナ、シリカ
25	S-5	Allard B	1984	Mechanisms for the interaction of americium(III) and neptunium(V) with geologic media	Sci Basis Nucl Waste Manage 7	26		899-906	Am, Np	粘土、雲母、石英、カンラン石、燧石、雲石、鉄燧石、カルサイト、アルミ鉱物
26	S-7	Torstenfelt B; Rundberg R S; Mitchell A, J	1988	Actinoid sorption on granites and minerals as a function of pH and colloids / pseudocolloids	Radiochimica Acta	44/45		111-117	U, Np, Pu	花崗岩、角閃石、雲石、粘土
27	S-8	Norden M; Ephraim J H; Allard B	1994	The influence of a fulvic acid on the adsorption of europium and strontium by alumina and quartz: Effects of pH and ionic strength	Radiochimica Acta	65		265-270	Sr	アルミナ、石英
28	S-9	Johansson H; Byegard J; Skarnemark G; Skelberg M	1997	Matrix diffusion of some alkali- and alkaline earth-metals in granitic rock	Sci Basis Nucl Waste Manage 20	465		871-878	Sr	閃石、花崗岩
29	F-1	Rancon D; Gueguenat P	1984	Etude de la sorption des elements dans les sediments marins des grands fonds de l'Atlantique Nord	EUR Rep Comm Eur Commun		EUR 9571 FR	28 p	Pu, Am, Np, Cs	海洋底層堆積岩、イライト
30	F-4	Labonne N; Moulin V; Stammose D	1992	Actinoid sorption onto silics in the presence of humic substances: Proposal of retention mechanisms	Sci Basis Nucl Waste Manage 15	257		307-314	Am	シリカ
31	L-4	Hoelta P; Siitari-Kauppi M; Huikuri P; Lindberg A; Hautajarvi A	1997	The effect of specific surface area on radionuclide sorption on crushed crystalline rock	Sci Basis Nucl Waste Manage 20	465		789-796	Sr	トータル岩、雲母片麻岩
32	I-1	Stanners D A; DePiano A	1986	Uptake Kd studies of Np and Am by seabed sediments under normal and anoxic atmospheres	Radioact Waste Manage Nucl Fuel Cycle	7	1	1-11	Np, Am	海洋底層堆積岩
33	I-2	Bidoglio G; De piano A	1986	Neptunium migration in salt brine aquifers	Nuclear Technology	74	3	307-316	Np, Am	粘土
34	I-3	Bidoglio G; De piano A; Rightetto L	1989	Interactions and transport of plutonium-humic acid particles in groundwater environments	Sci Basis Nucl Waste Manage 12	127		823-830	Pu, Np	海綿砂、フミン
35	T-1	Hatipoglu S; Gokturk H; Erten H	1994	Migration behaviour of barium and strontium in granite	Radiochimica Acta	66/67		369-372	Sr	花崗岩
36	CH-1	Zhuang H; Zeng J; Zhu L	1988	Sorption of radionuclides technetium and iodine on minerals	Radiochimica Acta	44/45		143-145	Tc	輝石、モリブデン、イライト
37	CH-2	Wang R S; Chau A S Y; Liu F; Cheng H; Nar P; Chen X M; Wu Q Y	1993	Studies on the adsorption and migration of radium in natural minerals	Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Articles	171	2	347-364	Ra	パライト、バリウム燧、セレスタイト、ストロンチウム燧、イライト、マンガン燧、ジルコン、粘土、輝石、ヘマタイト
38	CH-3	Hsu C-N; Liu D-C; Chuang C-L	1994	Equilibrium and kinetic sorption behaviors of cesium and strontium in soils	Appl Radioact Isot	45	10	981-985	Cs, Sr	粘土
39	CH-4	Wang R; Wang L	1995	Adsorption behavior of radium in carbonaceous slate	Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Articles	189	2	269-276	Ra	粘板岩
40	Z-1	Benes P; Strejcek P; Lukavec Z	1984	Interaction of radium with freshwater sediments and their mineral components. I.	Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Articles	82	2	275-285	Ra	石英
41	Z-2	Benes P; Brovec Z; Strejcek P	1986	Interaction of radium with freshwater sediments and their mineral components. III.	Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Articles	98	1	91-103	Ra	雲母、長石

表2.1.9 登録文献一覧 (49件、文献コード：K以降) (3/3)

42	Z-3	Rajec P; Shaw G	1994	Sorption of radiocesium on soils in the presence of electrolytes	Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Articles	183	1	147-157	Cs	土壌
43	SW-1	Aksoyoglu S	1989	Sorption of U(VI) on granite	Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Articles	134	2	393-403	U	花崗岩
44	SW-2	Cornell R M; Aksoyoglu S	1992	Sorption of nickel on marl	Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Letters	164	6	389-396	Ni	泥炭土、方解石、石英、針葉鉱土
45	D-1	Khan Z A; Brat S	1986	Behavior of fission products in soil-waste systems	US DOE Rep		CONF-8612121	322-324	Cs, Sr	土壌
46	O-1	Aston S R; Gastaud J; Oregioni B; Parsi P	1984	Observations on the adsorption and geochemical associations of technetium, neptunium, plutonium, americium and californium with a deep-sea sediment	Eur Rep Comm Eur Commun		EUR-9214	179-188	Tc, Np, Pu, Am	深海産堆積土
47	O-2	Airey P L	1984	Radionuclide migration around uranium ore bodies. Analogue of radioactive waste repositories	US DOE Rep		NUREG-CR-3941-vol.1	154p	U	ウラン鉱石
48	O-5	Cho Y-H; Hahn P-S; Park S-W	1995	Studies on the sorption characteristics of ¹³⁷ Cs onto granite and tuff	J Korean Nucl Soc	27	1	25-32	Cs	花崗岩、セオライト
49	O-6	El-wear S; German K E; Peretrukhin V F	1992	Sorption of technetium on inorganic sorbents and natural minerals	Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Articles	157	1	3-14	Tc	合成鉱物、砂岩、長石、ホークサイト、玄武岩、燧灰石、泥炭、黄鉄鉱、カオリン

2.2 アスファルト固化体からのヨウ素の浸出挙動の検討

2.2.1 アスファルト溶出機構検討試験の継続

(1) 背景と目的

—昨年開始したアスファルト固化体の浸出試験により、核種の浸出速度は蒸留水中よりセメント間隙水を模擬したCa(OH)₂溶液中で低下することが明らかとなった。その原因を検討するために、昨年度はNaOHでpHを調整した溶液を用いてアスファルト固化体の浸漬試験を開始したが、試験期間が112日と短く、結果が明確にならなかったため、447日まで浸漬期間を延長して検討した。

(2) 試験方法

昨年と同様に、以下に示す条件で試験を実施した。

a. 模擬固化体：

- ・ CsI=12.5 g 及び NaNO₃=237.5 g をアスファルト250 g に混合
- ・ 形状：49φ×15 L（内容積28.3ml）、上面のみ接液

b. 浸漬方法：試験溶液1.0ℓに浸漬し、25℃で大気下密封放置（1条件2試料）

- ##### c. 溶液条件：
- ①② 1.0×10^{-4} M - NaOH 溶液（pH=10）、
 - ③④ 1.0×10^{-3} M - NaOH 溶液（pH=11）、
 - ⑤⑥ 1.0×10^{-2} M - NaOH 溶液（pH=12）、
 - ⑦⑧ 1.0×10^{-1} M - NaOH 溶液（pH=13）

d. サンプルング：112日目から8週毎(168、224、280、336、392、448日) 各々5 ml サンプルング

- ##### e. 測定項目：
- ① 液中に溶出したI、Cs、Naの濃度
 - ② 固化体の重量（付着水を十分にふき取ったもの）
 - ③ 試験開始時及び試験終了時のpH

(3) 試験結果

a. 浸漬溶液のpH変化

アスファルト固化体浸漬溶液のpH変化を図2.2.1に示す。pH=11~13では試験終了時まで初期設定値で維持されるが、初期設定pH=10では約100日で中性になっている事がわかる。中性になる原因は、空気中の炭酸ガスの吸収と考えられる¹⁾。高

pH試料でpH低下が見られないのは、溶け込む炭酸ガス量に対してOHイオンが過剰なこと及び試料のサンプリング時以外は密封されているので炭酸ガスの溶解が制限されるためと思われる。

b. 試料の外観と重量変化

浸漬447日後の浸漬溶液の状況と固化体の外観を写真2.2.1及び写真2.2.2に示す。浸漬溶液の減少が認められないことから、密封に問題はなかったと言える。また、いずれのpHでも、Ca(OH)₂溶液の時のような濁りも認められない。

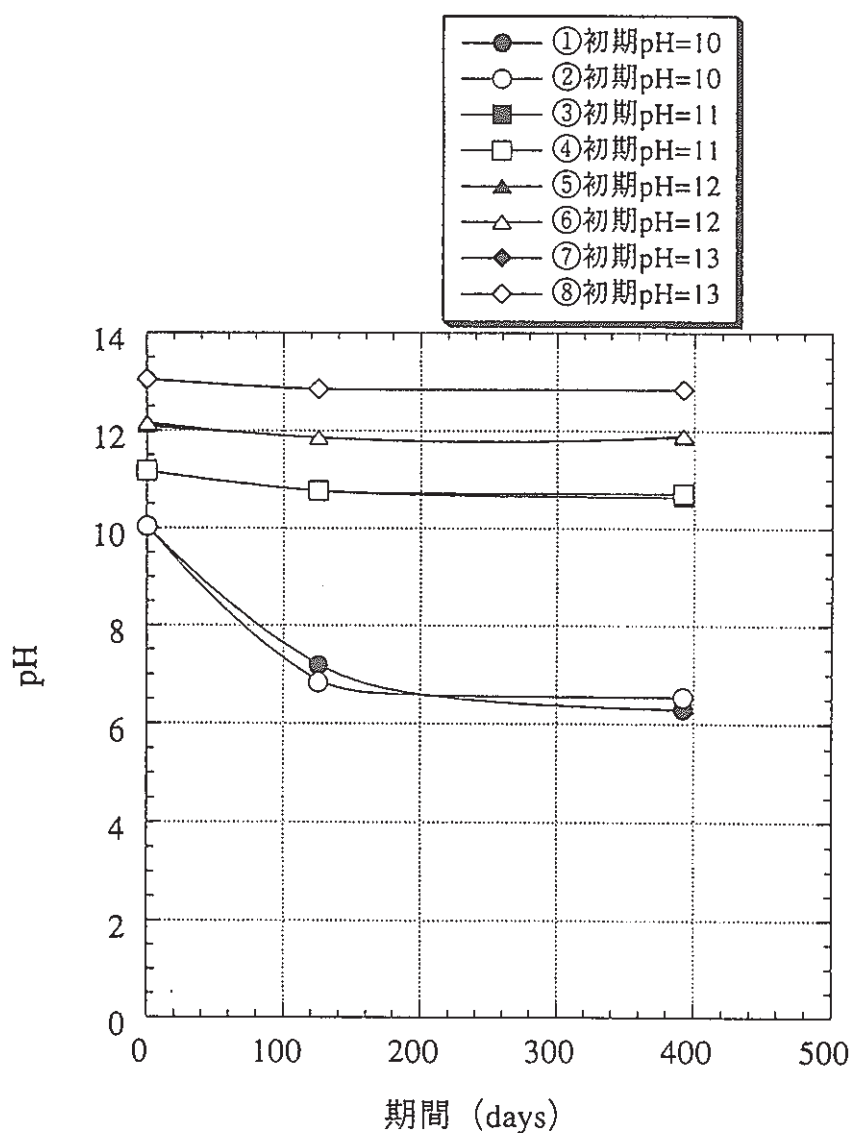


図2.2.1 アスファルト固化体浸漬溶液のpH変化



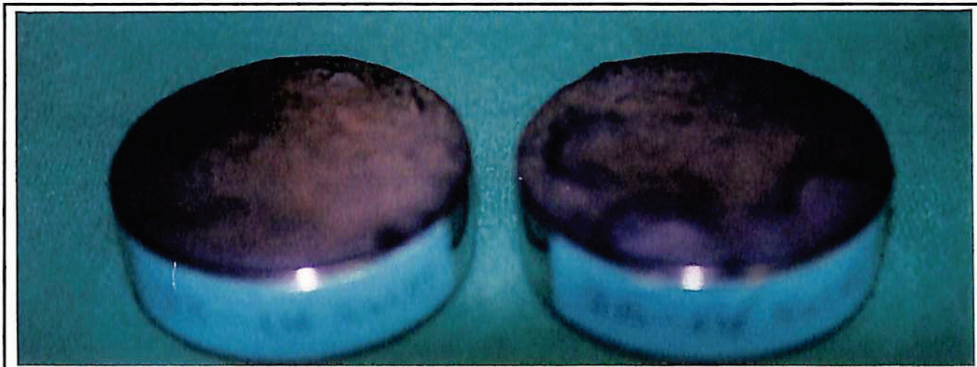
初期pH=10及びpH=11のNaOH溶液浸漬状況 (①、②、③、④)



初期pH=12及びpH=13のNaOH溶液浸漬状況 (⑤、⑥、⑦、⑧)

写真2.2.1 アスファルト固化体のNaOH溶液浸漬状況 (447日後)

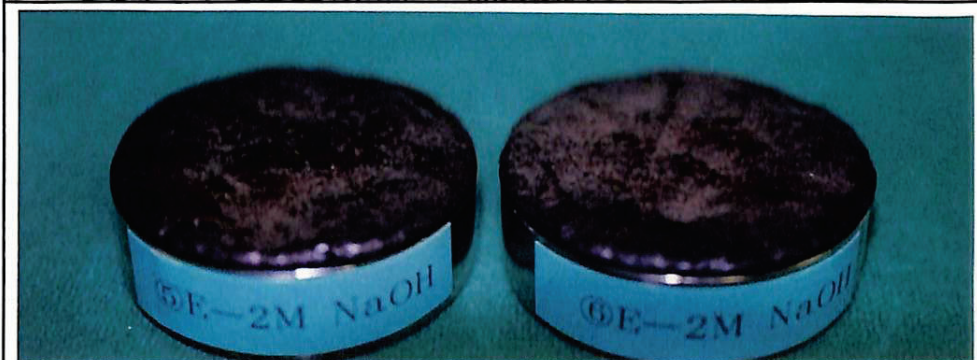
This is a blank page.



初期pH=10のNaOH溶液浸漬アスファルト固化体 (①、②)



初期pH=11のNaOH溶液浸漬アスファルト固化体 (③、④)



初期pH=12のNaOH溶液浸漬アスファルト固化体 (⑤、⑥)



初期pH=13のNaOH溶液浸漬アスファルト固化体 (⑦、⑧)

写真2.2.2 NaOH溶液浸漬アスファルト固化体の試料外観 (447日浸漬)

This is a blank page.

アスファルト固化体試料の外観は、写真2.2.2のように、いずれも膨潤は認められるが、昨年度の試料と比較するとその量は少ない（PNC ZJ 1564 97-001 p27参照）。これは、図2.2.2に示す重量変化からもわかる。昨年度の試験では約450日浸漬で、蒸留水中で約20wt%増加し、Ca(OH)₂溶液中で約10wt%増加したが、本年度の試験では、7～13%の範囲である。しかも、重量増加率が必ずしもpHに依存せず、最も重量が増加したのは、pH=11の場合であった。ここで、初期設定pH=10では前述したように約100日の浸漬で中性になることから、浸漬条件は昨年度の蒸留水に近い。にもかかわらず、重量増加率は約7%と半分以下である。

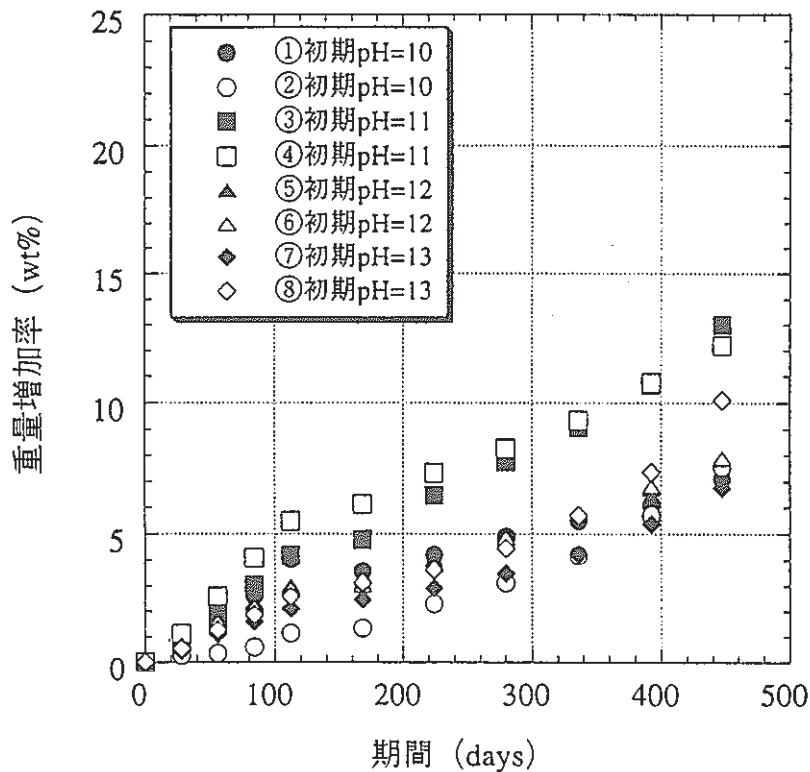


図2.2.2 NaOH溶液浸漬アスファルト固化体の重量変化

以上のことから、アスファルト固化体の膨潤は、浸漬溶液のpHに依存するのではなく、廃棄物として含有させているCsI及びNaNO₃のうち、NaNO₃の粒子の大きさに依存している可能性があるが、確証は得られていない。この粒子の大きさについては今後検討していく予定である。

c. 硝酸ナトリウムの溶出

本試験溶液のpHはNaOHを用いて調整しているので、予め試験溶液には以下のNaイ

オンが含まれている。

①② 1.0×10^{-4} M-NaOH溶液 = 2.3ppm

③④ 1.0×10^{-3} M-NaOH溶液 = 23ppm

⑤⑥ 1.0×10^{-2} M-NaOH溶液 = 230ppm

⑦⑧ 1.0×10^{-1} M-NaOH溶液 = 2300ppm

そこで、各浸出溶液の濃度測定値から上記の予め含まれていたNaイオンを除いて溶出量を算出した。その結果を図2.2.3に示す。昨年度の試験に較べて、膨潤量が少ない。しかし、個々の試料の膨潤量が異なるにもかかわらず、Naの溶出量に有為な差はなく、昨年度の蒸留水中における浸出試験結果に近い値である。

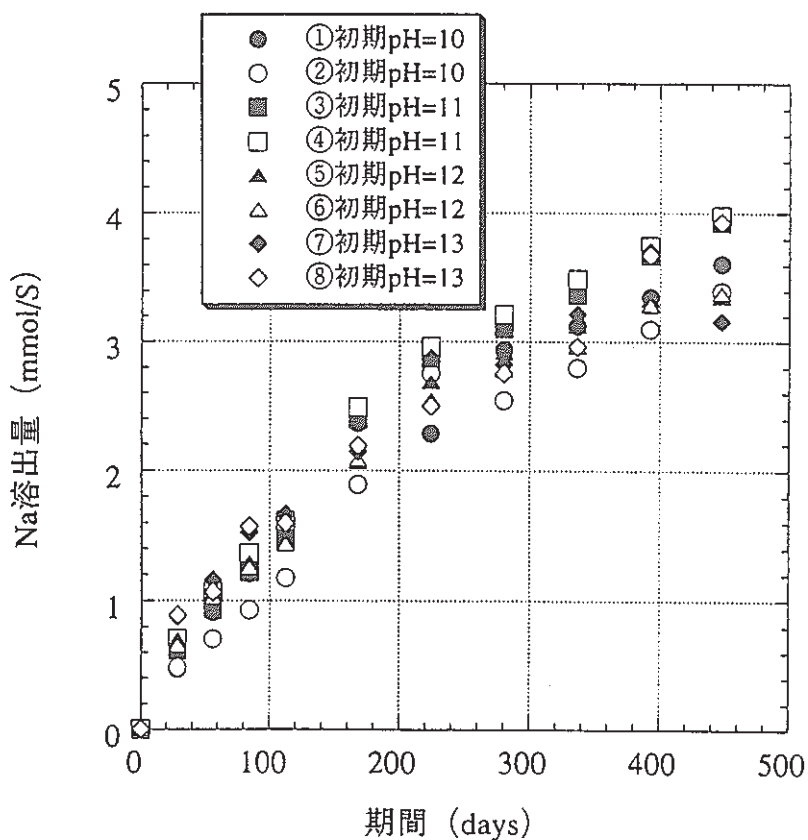


図2.2.3 NaOH溶液浸漬アスファルト固化体のNa溶出量

なお、NO₃イオンは、昨年度の112日までの分析結果がNaの浸出曲線とほぼ一致していたので今年度は省略した。

d. ヨウ化セシウム の溶出

ヨウ素イオンの溶出量を図2.2.4に、セシウムイオンの溶出量を図2.2.5に示す。

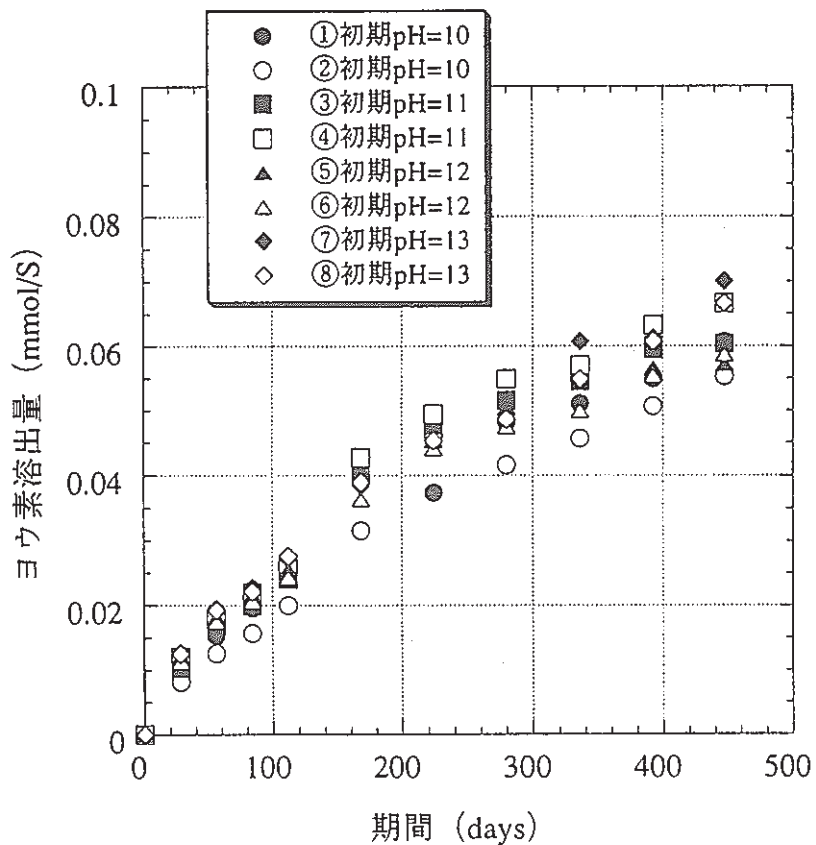


図2.2.4 NaOH溶液浸漬アスファルト固化体のヨウ素溶出量

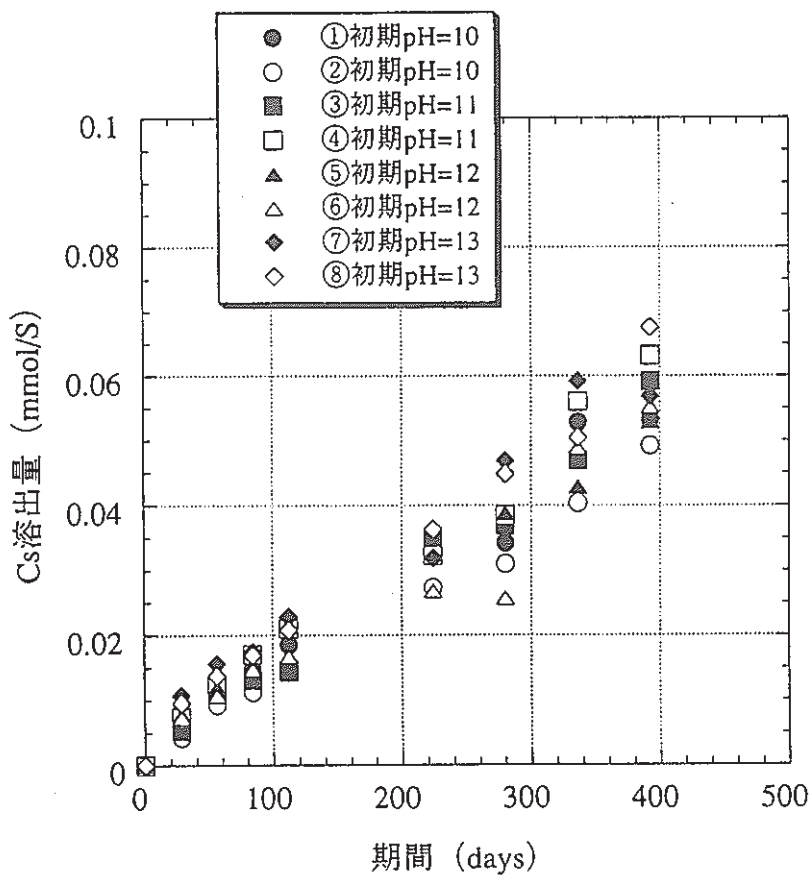


図2.2.5 NaOH溶液浸漬アスファルト固化体のCs溶出量

ヨウ素はICP、Csは原子吸光で測定したので測定誤差により若干の相違はあるが、両者とも同様の濃度で溶出していると考えられる。従って、以後はヨウ素イオンをCsIの溶出を代表するものとする。

e. 浸出率の検討

昨年度も実施したように、アスファルトやセメント固化体からの核種の浸出率を一般化して比較検討するために、IAEAが推奨している下記の計算方法を適用する²⁾。

浸出率 R_n (cm/days)は、

$$R_n = (C_t/C_0 \cdot V/S)/t$$

- で示される。ここで、
- C_t = t 日後の核種浸出量 (mol)
 - C_0 = 初期固化体中の核種含有量 (mol)
 - V = 試料の体積 (cm³)
 - S = 試料の接液表面積 (cm²)
 - t = 浸出期間 (日)

である。

図2.2.6にナトリウムイオンの浸出率を、図2.2.7にヨウ素イオンの浸出率を示す。

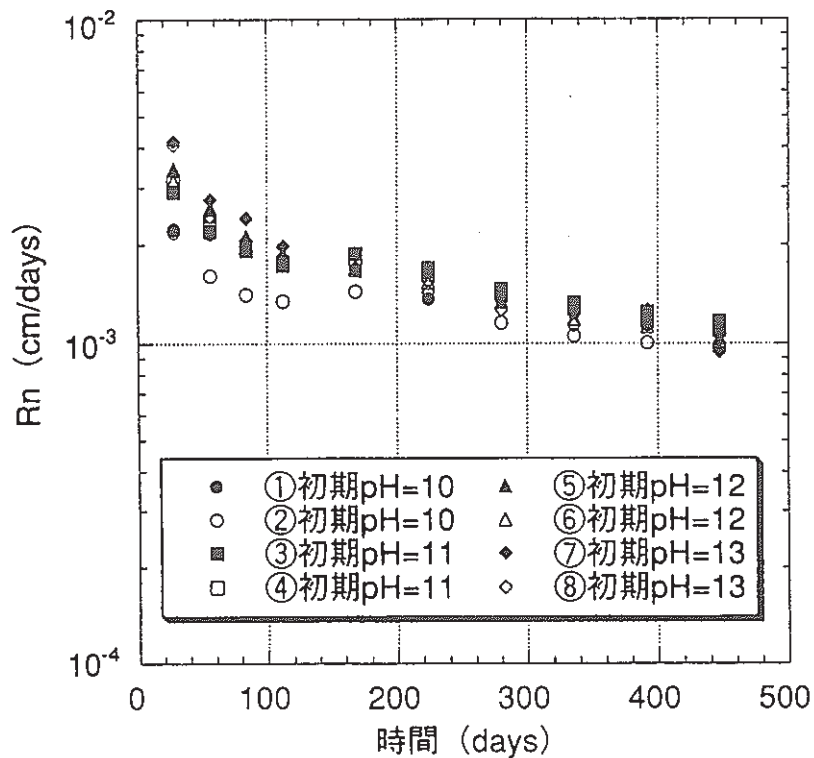


図2.2.6 NaOH溶液中のアスファルト固化体からのNaイオン浸出率

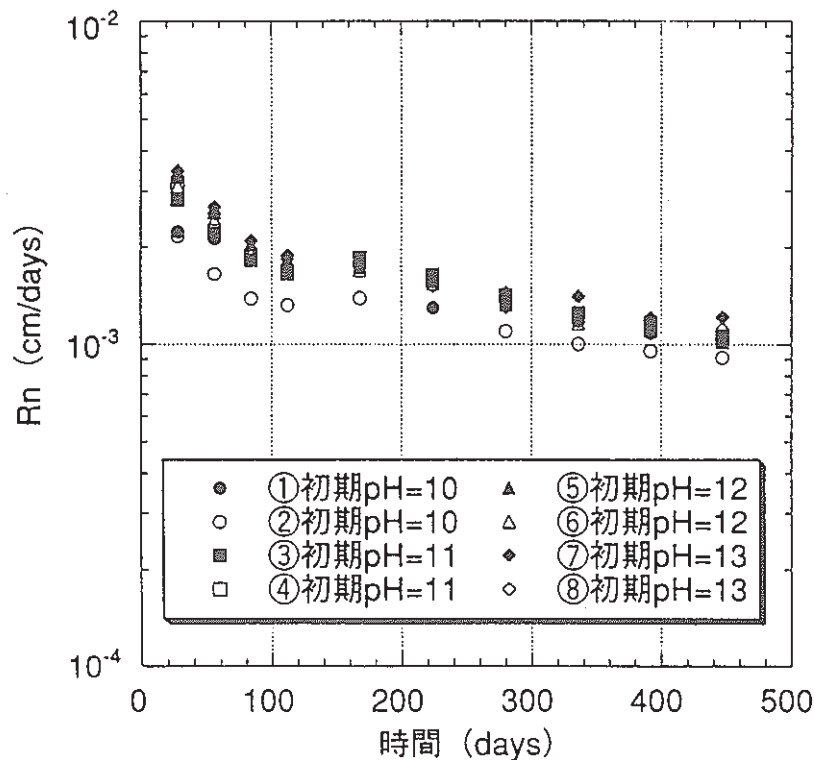


図2.2.7 NaOH溶液中のアスファルト固化体からのヨウ素浸出率

いずれも同様な傾向で、 10^{-3} cm/dayのオーダーで浸出している。これは、昨年度の蒸留水中での浸出試験結果とはほぼ一致しており、 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 溶液の様な浸出率の低下はNaOH溶液でアルカリにした場合は認められないことになる。

次に、昨年度と同様に、核種の浸出が拡散によってのみ起こるとすると、 t 時間後の溶出量は以下の式で表わされる（詳細 PNC ZJ 1564 97-001 p36参照）。

$$C_t/C_0 \cdot V/S = 2\sqrt{Dt/\pi} \quad (1)$$

ここで、 D ：拡散係数、その他は上述と同様である。

そこで、Naイオンの浸出率、すなわち(1)式の左辺($C_t/C_0 \cdot V/S$)に対して浸出時間 \sqrt{t} をプロットすると図2.2.8が得られる。設定pHによる有為な差はなく、平均の傾きは0.0245であることがわかる。同様に、ヨウ素イオンについては図2.2.9に示すように、その平均の傾きは0.0238である。これを(1)式に代入すると拡散速度 D を求めることができる。それぞれの拡散速度は以下のようなになる。

$$\text{Naイオン} \quad : D = 5.45 \times 10^{-9} \text{ cm}^2/\text{s}$$

$$\text{ヨウ素イオン} : D = 5.15 \times 10^{-9} \text{ cm}^2/\text{s}$$

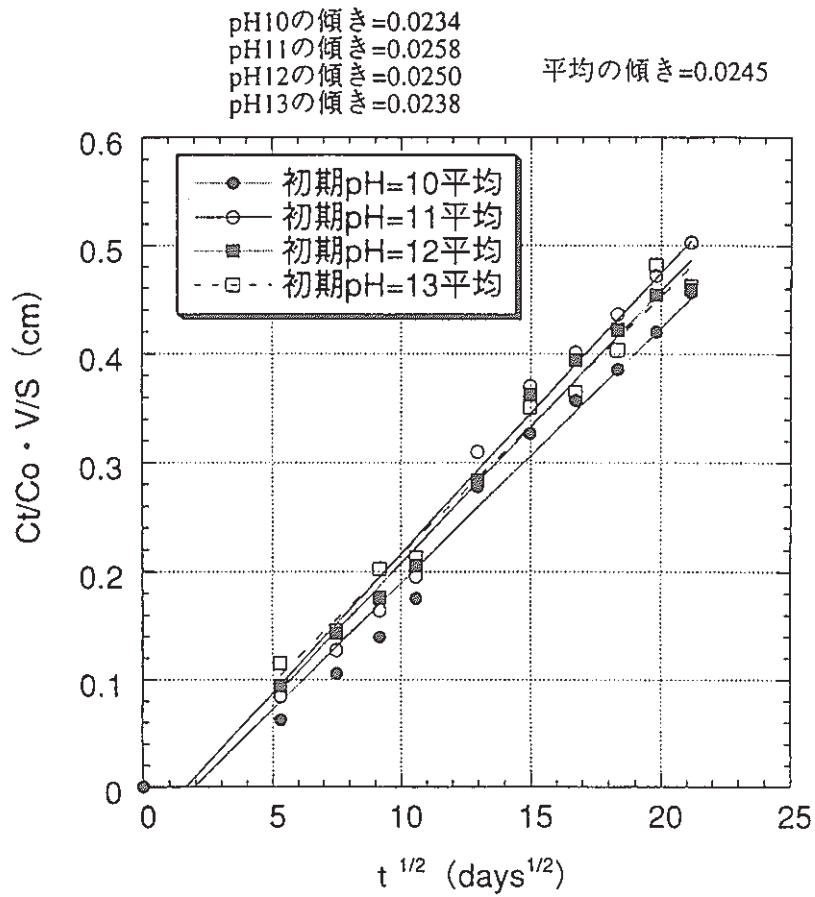


図2.2.8 NaOH溶液中のアスファルト固化体からのNaイオンの浸出速度

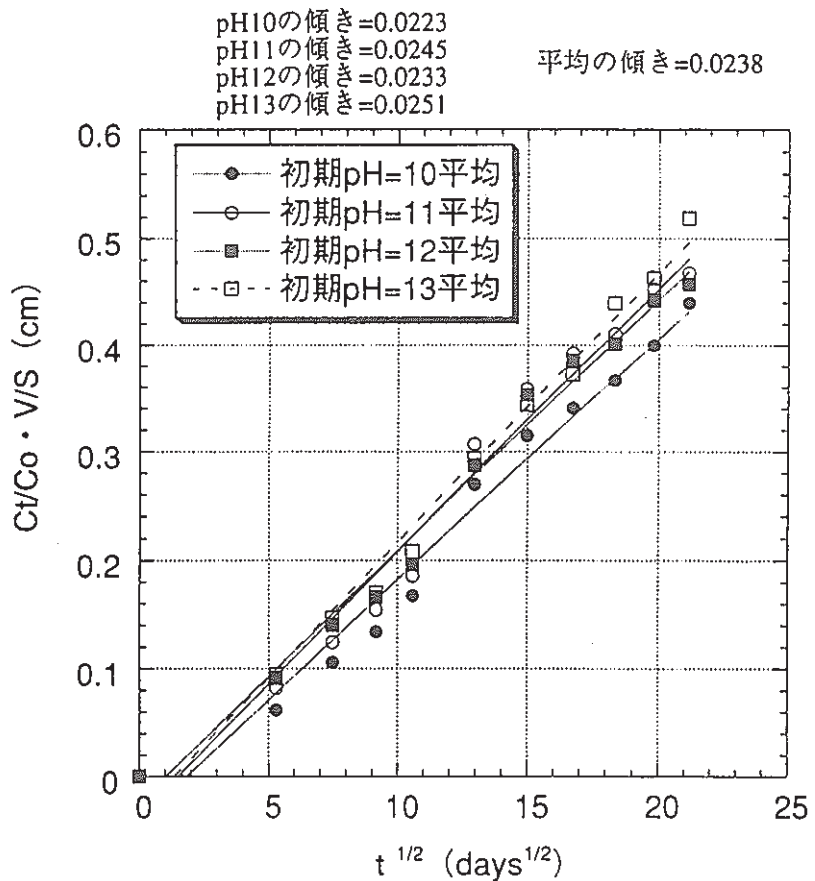


図2.2.9 NaOH溶液中のアスファルト固化体からのヨウ素の浸出速度

このように両者はほぼ一致していることがわかる。ここで、昨年と同様に本固化体から90%の核種が溶出する時間 t を計算すると、 $C_t/C_0=0.9$ 、 $V/S=1.5$ であるから、(1)式より、 $t=1.43/D$ となる。従って、

Naイオン : $t = 8.32$ 年

ヨウ素イオン : $t = 8.80$ 年

のような結果が得られる。これは、昨年実施した蒸留水浸漬の $t=7.5$ 年に近い値である。すなわち、浸漬溶液のpHは核種の浸出に影響を与えないことになる。

他方、一昨年の実験では、pH12.5程度の $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 溶液中における模擬アスファルト固化体からの核種浸出率は蒸留水中より低下するという結果を得ている。この原因として、模擬固化体表面での CaCO_3 の沈澱膜の形成又は高pH環境自身の影響が考えられた。試料の浸漬時を通じてサンプリング時以外は密封されている事から、沈澱膜の生成量はわずかで影響が少ないと考えられたので、高pH環境の影響が大きいのではないかという観点から、本年度NaOH溶液を用いて検討してきたわけである。しかし、前述したように、高pH環境でも蒸留水中の結果と同様に浸出率の低下が見られなかった。したがって、pH12.5程度の $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 溶液中での浸出率が小さくなる原因としては模擬アスファルト固化体表面での CaCO_3 の沈澱膜形成が有力である。しかしながら、その確証は得られていないのでさらに検討が必要である。

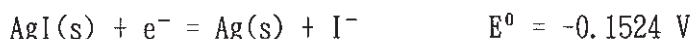
2.2.2 不溶性銀添加アスファルト固化体の浸出試験

(1) 背景と目的

アスファルト固化体に含まれるヨウ素は、CsIやNaIのように可溶性のものほかに、AgIのように不溶化処理を施されたものもある。前者は水に接触すると容易に溶解して浸出するが、後者は下式の溶解度積 (K_{sp}) に従うため、浸出量は極めて少量である³⁾。

$$K_{sp} = [\text{Ag}][\text{I}] = 8.3 \times 10^{-17}$$

すなわち、浸出液中のヨウ素濃度は、 $[\text{I}]=9.1 \times 10^{-9} \text{ mol/l} = 1.16 \mu\text{g/l}$ である。しかしながら、還元雰囲気では、下式のように分解してヨウ素の浸出量が増大する恐れがある。



そこで、実際の処分環境を模擬した還元状況をグローブボックスと亜ニチオン酸を用いて再現し、ヨウ素の浸出挙動を検討した。

(2) AgI沈澱の調製

特級試薬として市販されているAgIには不純物として溶解度の高いAgIO₃が含まれている可能性がある。そこで、市販のAgIを蒸留水に分散し、2日後に上澄み液をICP-MSで分析したところ、約1 ppmのヨウ素が検出された。純粋なAgIであれば、溶解度から計算すると1 ppb程度になるはずであり、何らかの不純物の存在が示唆された。したがって、できるだけ純粋な沈澱を使うために以下の方法でAgIを調製した。

0.5mol/l -AgNO₃ (200ml) 溶液と0.48mol/l -KI (200ml) をゆっくり混合し、一日攪拌放置して上澄みを吸引ろ過した。その沈澱を500mlの蒸留水に再分散し、更に1日攪拌放置して上澄みを吸引ろ過した。この洗浄操作を再度繰り返したのち、50℃で真空乾燥してメノウ乳鉢で粉碎したものを試料とした。

この試料を前述と同様の方法で分析したところ、上澄み液中で約0.3ppmのヨウ素が認められた。これはAgIのコロイドの生成とも考えられるが、この程度であれば浸出試験には影響が少ないと判断してこの沈澱を試験に使用することとした。

(3) 模擬固化体の調製

特級試薬のNaNO₃ (237.5 g) を500mlの蒸留水に溶解し、前述のAgI粉末 (12.5 g) を添加し、超音波付きマグネットスターラーで攪拌しつつ、ローラーポンプで加熱溶解したアスファルトに少量ずつ添加した。

アスファルトは、昨年度と同様に250 gを1.0 lのビーカーに取り、マントルヒーターで180℃程度に加熱し、約4時間かけてスラリーを混合混練後、アスファルトの温度が180℃であることを確認して、SUS304シャーレに速やかに流し込み、放冷成型した。

固化体の形状は、昨年度と同様に49φ×15L (内容積28.2ml) の円板状で、試料の上面のみ接液するタイプである。

(4) 模擬地下水の調製

本年度の浸出試験は、より地下環境を模擬するために、従来の蒸留水やCa(OH)₂溶液以外に模擬地下水も用いることにした。一概に地下水といっても多種多様の成分が含まれているが、ここでは、降水系地下水に分類される炭酸水素ナトリウムが主成分の模擬地下水を使用した。この模擬地下水は蒸留水に表2.2.1に示す試薬を添加して2日間攪拌放置して調製した。これらの全成分が溶解しているわけではなく、pHやEhによっては、一部分不溶解成分が存在する。(PNC SJ 4262 90-001 p23参照)

表2.2.1 模擬地下水組成表

添加成分	濃度(mg/l)
NaHCO ₃	5415
CaCO ₃	499
MgCl ₂ · 6H ₂ O	418
FeCl ₃ · 6H ₂ O	145
SiO ₂	100
KCl	33.5
NaF	22.1
Na ₂ SO ₄	14.8
KBr	7.45

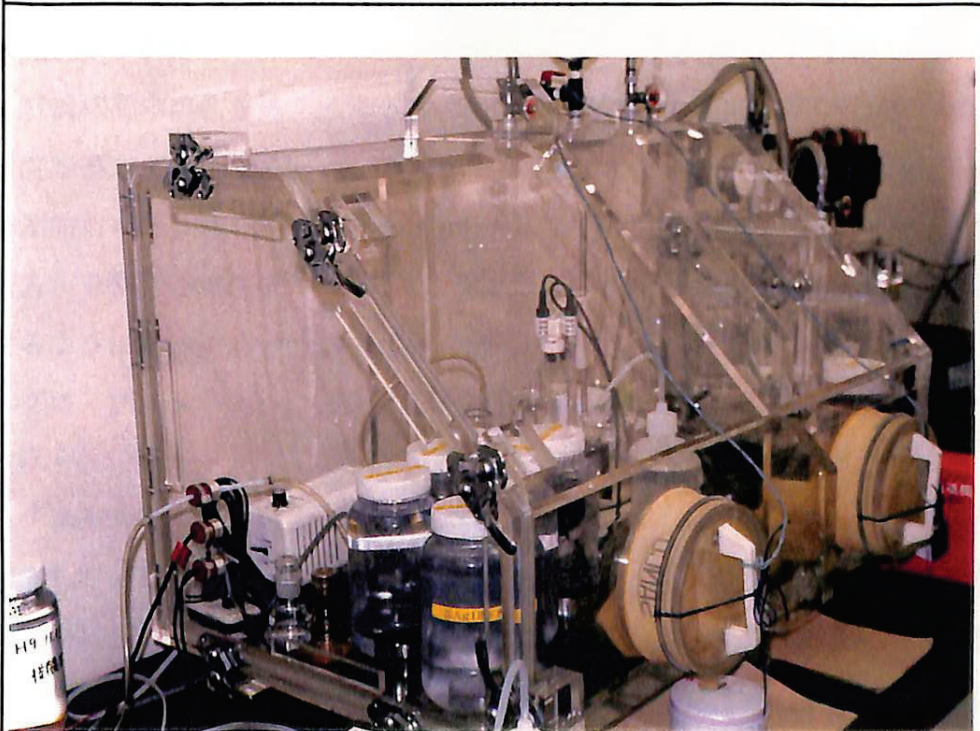
(5) 試験方法

25°C恒温下で験溶液 1 ℓ に試料 1 個を浸漬して放置する。大気下と還元環境下は、写真2.2.3に示すような恒温槽とグローブボックスを用いた。グローブボックスは内部に設置した温風器で25°Cに保ち、Arガスを2.0 ℓ/min程度常時流入させて酸素濃度を100ppm以下に抑えた。更に、還元状態に保つために、亜ニチオン (Na₂S₂O₄) 酸を試料溶液に適宜添加した。

This is a blank page.



大気環境下における試験 (25℃恒温槽)



還元環境下の試験 (Ar雰囲気、温風器で25℃に設定)

写真2.2.3 アスファルト固化体の浸出試験実施状況

This is a blank page.

溶液条件は以下のように1条件2試料として、固体差の有無も検討した。

a. 溶液条件：

- ①②Ar曝気後、 4.0×10^{-3} M $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ 添加蒸留水
- ③④Ar曝気後、 4.0×10^{-3} M $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ 添加pH=12調製水 ($\text{Ca}(\text{OH})_2=0.01\text{M}$)
- ⑤⑥Ar曝気後、 4.0×10^{-3} M $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ 添加模擬地下水
- ⑦⑧大気環境下模擬地下水
- ⑨⑩大気環境下蒸留水

b. サンプルング：4週毎（28、56、84日、全3回、以後可能な限り継続）

5 ml サンプルング（給水なし）

c. 測定項目：①液中に溶出したI, Na, NO_3 イオンの濃度

- ②固化体の重量（付着水を十分にふき取ったもの）
- ③試験開始時及び試験終了時のpHとEh
- ④試験終了時の試料外観写真

(6) 試験結果と考察

a. pHとEhの挙動

試験期間中の各溶液のpH変化を図2.2.10に示す。 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 溶液はpH=12と、試験期間を通じて一定であった。模擬地下水もpH=8～9と一定であったが、 $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ を添加している還元系がやや高いpHを示した。蒸留水も初期には大気系より還元系の方がやや高いpHを示した。また、還元系は徐々に低下する傾向があったが、後述するように $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ を添加すると元のpHに戻った。

グローブボックスの中で浸出試験を行った3種類6個の試料のEh変化を図2.2.11に示す。

予めArガスを曝気して脱酸素してから 4.0×10^{-3} mol (0.522 g) の $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ を添加しているので、初期は-500mV程度であったが、徐々にEhは上昇した。黒矢印の所で更に0.522 gの $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$ を添加している。溶液中にはこのようにEhを上昇させる酸素は存在しないので、アスファルト固化体から硝酸イオンが溶出しているためと考えられる。

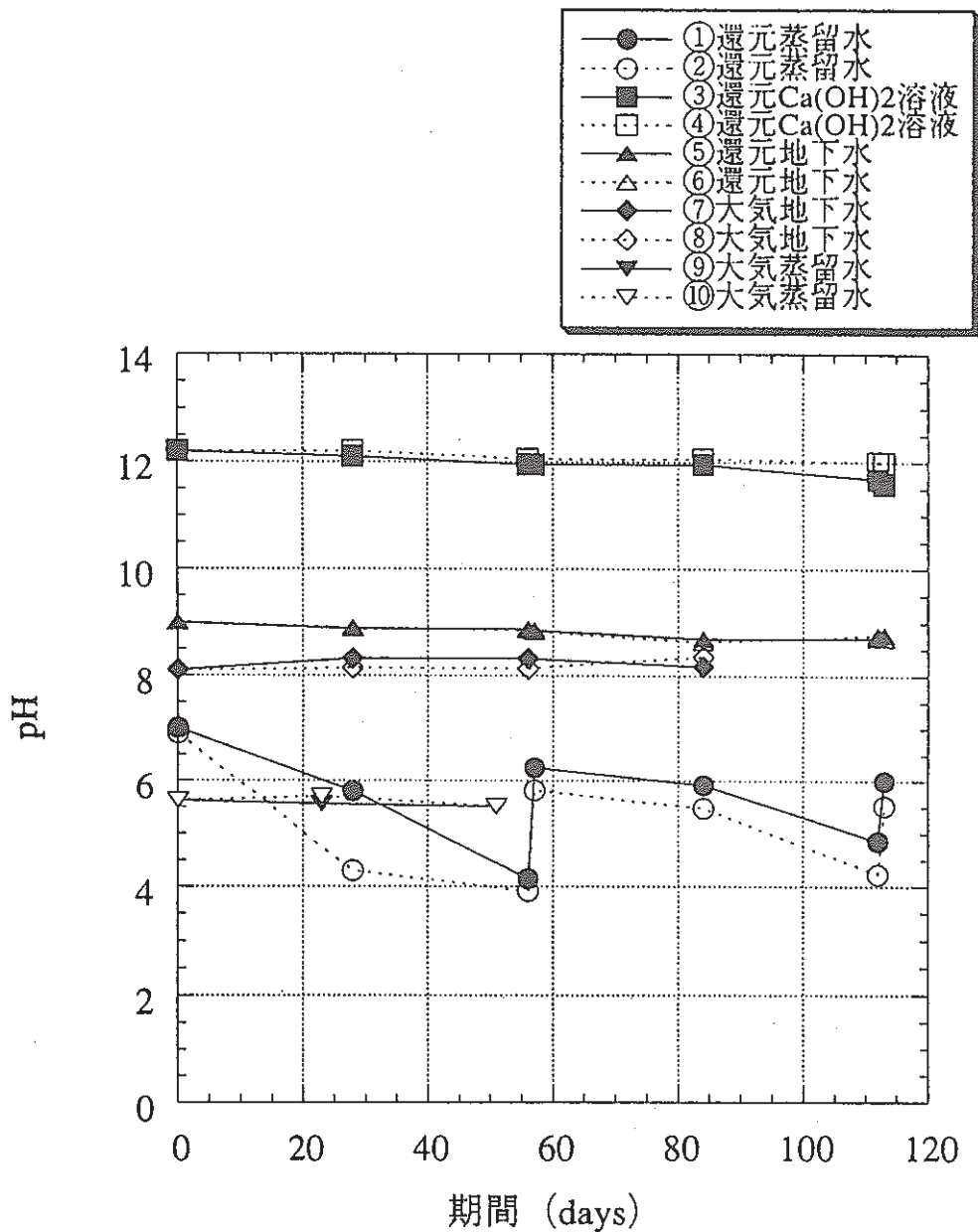


図2.2.10 AgI含有アスファルト固化体の浸出試験における溶液のpH変化

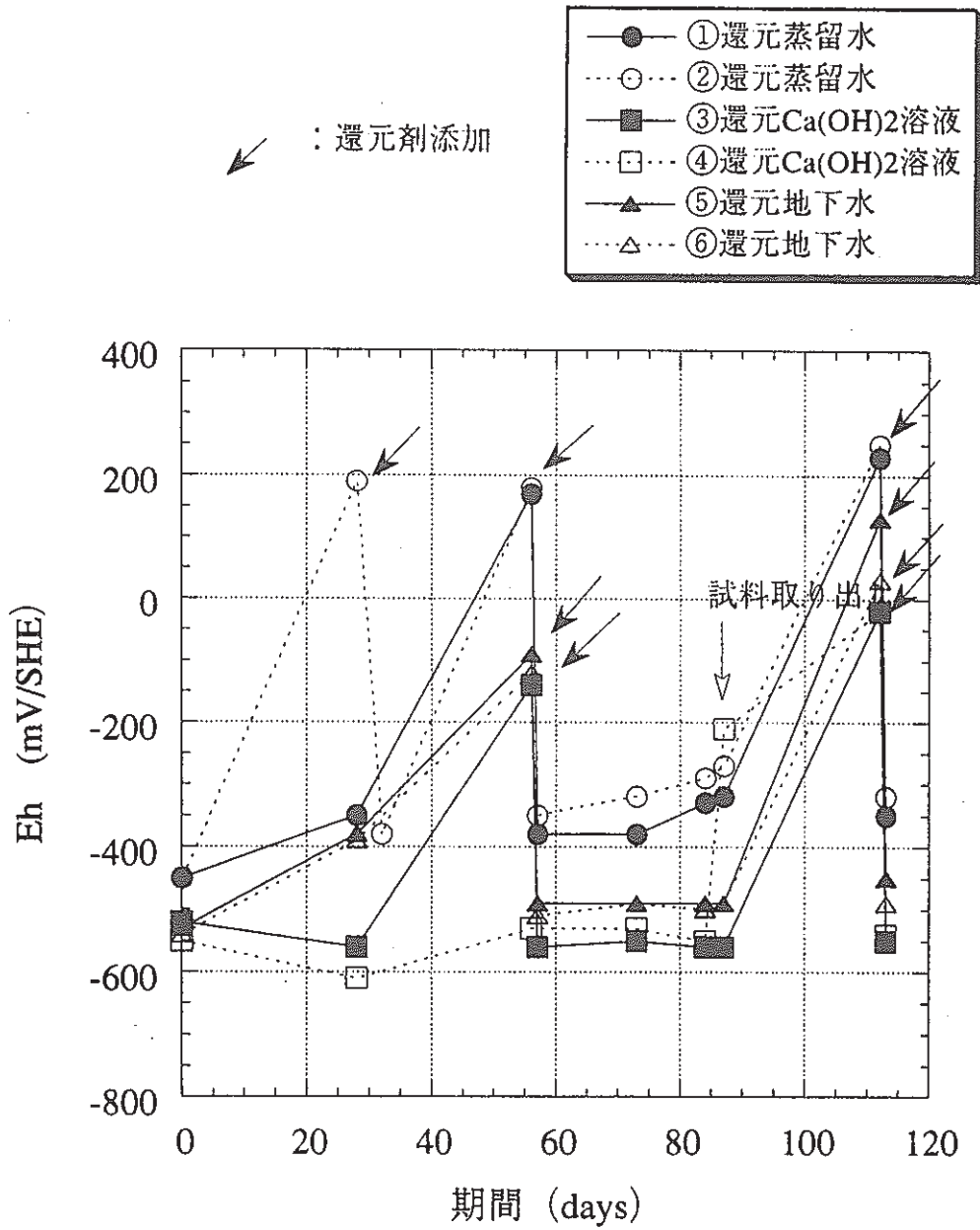


図2.2.11 AgI含有アスファルト固化体の浸出試験における溶液のEh変化

そのメカニズムは、硝酸や亜ニチオン酸に関する化学種の標準電極電位は(1)、(2)、(3)式で表される⁴⁾から、Eh=-400mVでは、(1)-{(2)+(3)}すなわち(4)式のようになり、亜ニチオン酸は硫酸に、硝酸は亜硝酸になり、OH⁻が消費されてpHが低下すると考えられる。また、S₂O₄²⁻が消費されれば、Ehが上昇することになる。



b. 試料の外観と重量変化

各試料の浸漬状況と溶液から取り出した試料の外観を写真2.2.4から写真2.2.8に示す。溶液の特徴は、蒸留水は透明であるが、Ca(OH)₂溶液は白濁していること、また特筆すべきは、模擬地下水系において大気下ではFeCl₃と思われる茶褐色の沈澱が生成しているが、還元環境下では白色の沈澱に変わっていることである。これは3価の鉄イオンが2価の鉄イオンに還元されたためと考えられる。



84日目還元環境下蒸留水浸漬状況 (①、②)



84日目還元環境下蒸留水浸漬試料の外観 (①、②)

写真2.2.4 浸出試験後のAgI含有アスファルト固化体の外観 (1)

This is a blank page.



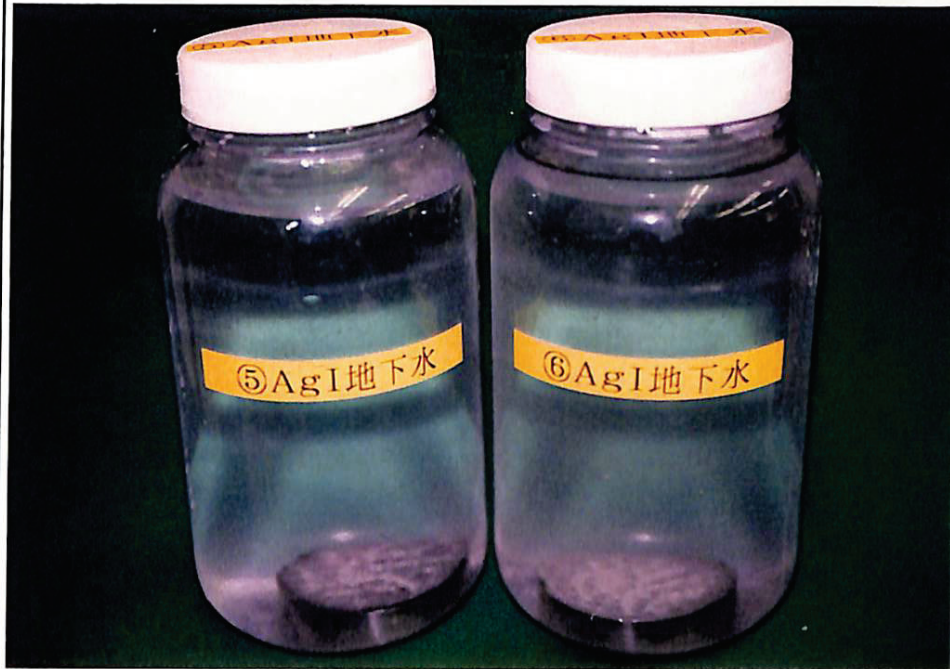
84日目還元環境下Ca(OH)₂溶液浸漬状況 (③、④)



84日目還元環境下Ca(OH)₂溶液浸漬試料の外観 (③、④)

写真2.2.5 浸出試験後のAgI含有アスファルト固化体の外観 (II)

This is a blank page.



84日目還元環境下模擬地下水浸漬状況 (⑤、⑥)



84日目還元環境下模擬地下水浸漬試料の外観 (⑤、⑥)

写真2.2.6 浸出試験後のAgI含有アスファルト固化体の外観 (Ⅲ)

This is a blank page.



84日目大気下模擬地下水浸漬状況 (⑦、⑧)



84日目大気下模擬地下水浸漬試料の外観 (⑦、⑧)

写真2.2.7 浸出試験後のAgI含有アスファルト固化体の外観 (IV)

This is a blank page.



51日目大気下蒸留水浸漬状況 (⑨、⑩)



51日目大気下蒸留水浸漬試料の外観 (⑨、⑩)

写真2.2.8 浸出試験後のAgI含有アスファルト固化体の外観 (V)

This is a blank page.

アスファルト固化体の外観の特徴は、昨年度までのCsIを添加した固化体と比較して膨潤がほとんど見られず、しかも固化体表面の凹凸が目立つことである。そこで、試料の増減率を調べたものが、図2.2.12である。還元環境下のは、グローブボックスから取り出して測定することによって溶液のBhが上昇することを避けるために、最終の84日目だけの測定で1点しかないが、還元系の蒸留水の2試料を除いて重量はすべて減少している。また、重量が増加している2試料もその増加率が極めて低いことから、AgIを含んだアスファルト固化体はほとんど膨潤しないと言える。

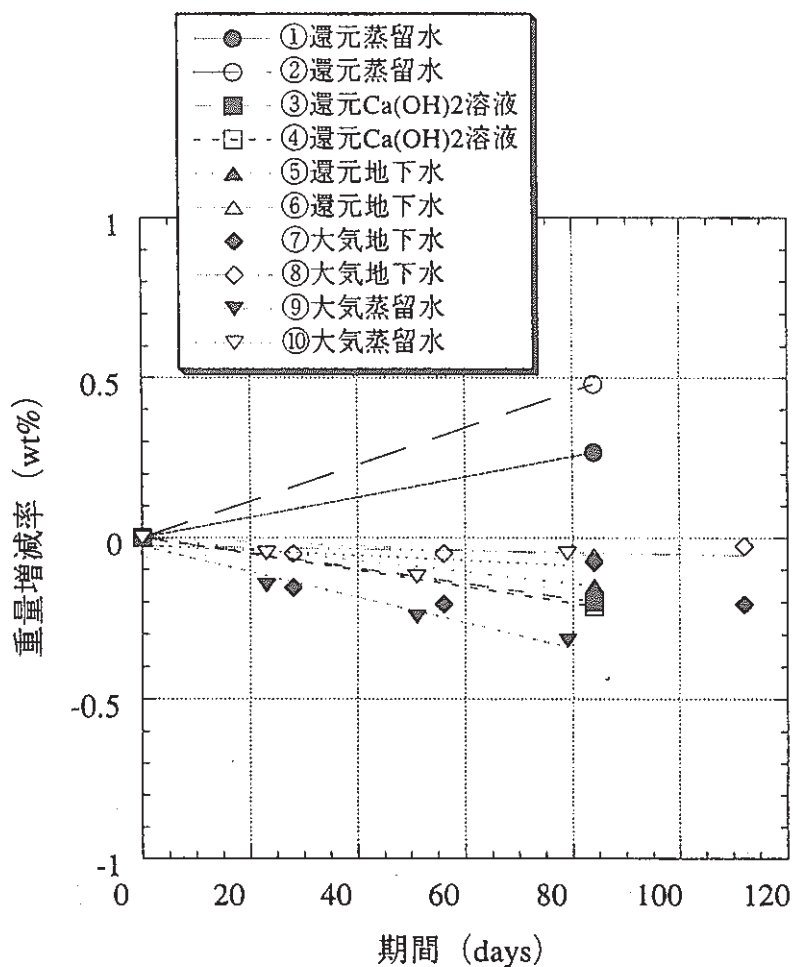


図2.2.12 AgI含有アスファルト固化体の重量変化

一方、Brodersen K. ら⁵⁾ は、 NaNO_3 の粒子をふるい分けして大きさ別にアスファルトに混入して浸出試験を行い、以下の様な考察をしている。

- ・混入する粒子が小さいほど、水を取り込みやすい。
- ・溶液のイオン強度は水を取り込みにほとんど影響しない (5 g/l - NaNO_3 以下)。

- ・水の取り込みのdriving forceはポア内部とバルクのイオンの濃度差と考えられる。
- ・岩塩層に処分した場合に侵入する水の塩濃度は非常に高いので、水の取り込みは減少する。
- ・混入する粒子が小さいほど、 NaNO_3 の浸出率は低下する。
- ・粒子の分散が十分でないと、粒子同士が連結して浸出しやすくなる。ただし、水の取り込みの増大はない。

これらを踏まえて本研究の浸出試験結果を考察すると、固化体調製時のスラリー混入時の時間が異なり、生成した粒子が初年度に較べ次年度以降は大きくなったと仮定すると、初年度の膨潤が大きいのは小粒子ほど水を取り込み易いと言うことで理解できる。他方、本研究では、一般に膨潤率が大きいと浸出率も大きく、この点ではBrodersen K. らの結果と異なっている。これは粒子で添加した場合と水を蒸発させて粒子を作った場合の相違があるのかもしれない。今後粒子の形状について更に検討する予定である。

c. 核種の浸出挙動

本研究で最も重要なヨウ素はすべての試料で検出されなかった（検出限界0.1ppm）。大気系のもは、 AgI の溶解度から推定されるようにヨウ素は検出されなくて当然である。一方、還元系のもは、その溶液のEhから判断して溶出してもよいはずであるが、溶出が認められないことから、前述したようにアスファルト固化体の内部では、大量に存在する硝酸イオンのためにEhが低下せずに AgI の分解が起こらないと考えられる。

従って、以下では NaNO_3 の溶出について検討する。図2.2.13にNaイオン、図2.2.14に NO_3 イオンの溶出量を示す。両者共に溶液の種類や大気下や還元環境下に依存せずにはほぼ同様の溶出曲線を示している。しかも、両者の曲線は一致しており、両イオンとも同量溶出していることがわかる。そこで本項では、代表としてNaイオンの浸出率について検討する。

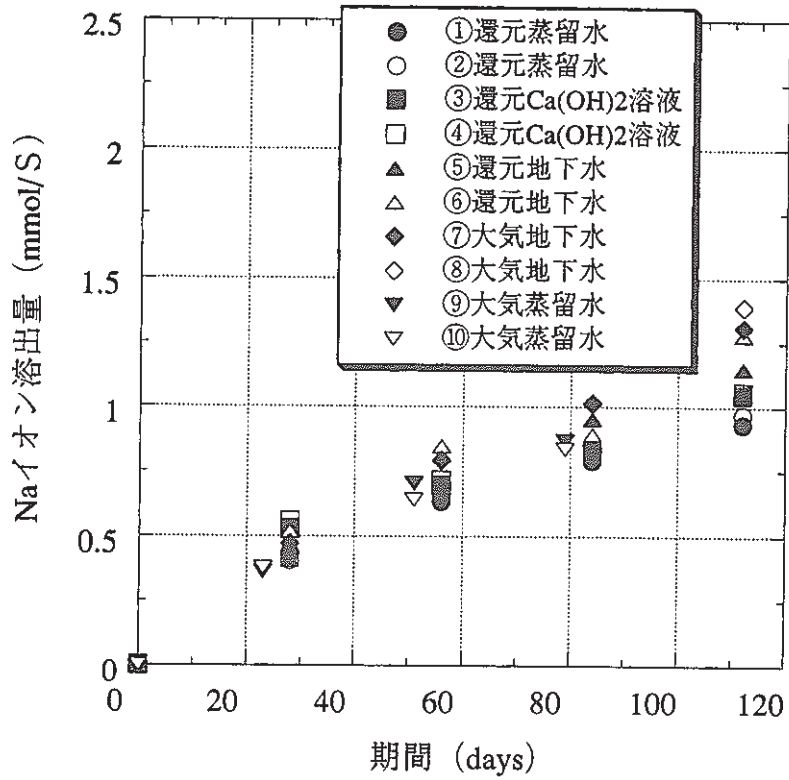


図2.2.13 AgI含有アスファルト固化体からのNaイオン溶出量

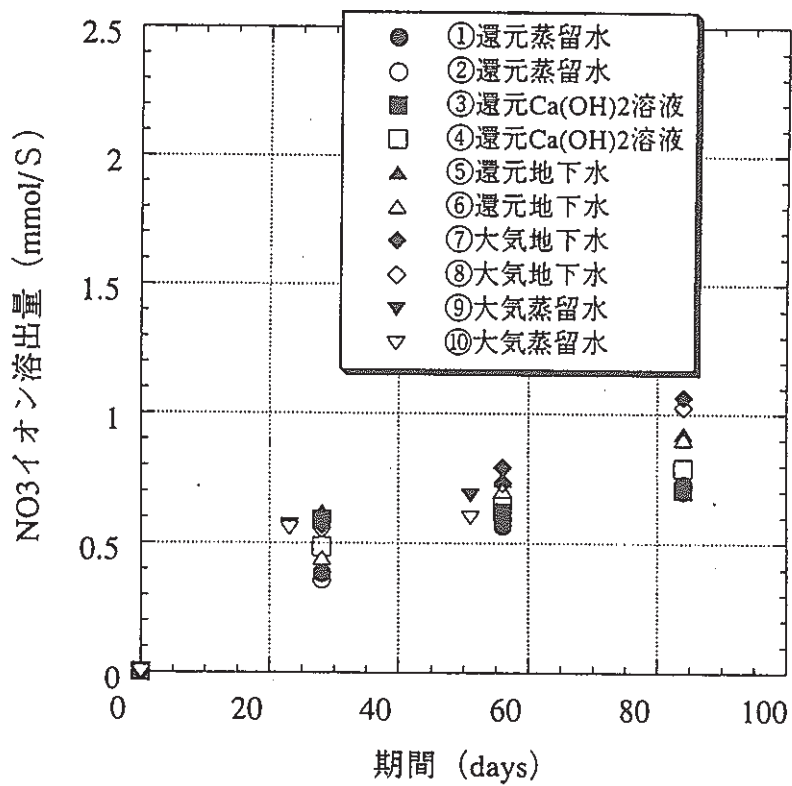


図2.2.14 AgI含有アスファルト固化体からのNO₃イオン溶出量

2.2.1節と同様にNaイオンの浸出率 (Rn) を図2.2.15に示す。AgI含有アスファルト固化体も昨年度実施したCsIを添加した固化体と同様にRnは 10^{-3} のオーダーである。ただし、その浸出速度は、図2.2.16に示すように、平均の傾きが0.0135であり、CsI固化体と比較して半分程度である。この傾きから拡散速度と90%の NaNO_3 が浸出する時間を計算すると以下のようなになる。

拡散係数 $D = 1.66 \times 10^{-9} \text{ cm}^2/\text{s}$
 90%浸出時間 $t = 1.43/D = 27.4 \text{ 年}$

つまり、 NaNO_3 の溶出を比較しても、CsI固化体よりAgI固化体の溶出速度は3倍以上遅い。その原因は現在、明らかになっていないが、膨潤性の違いが影響していると考えられる。

また、特筆すべきは、還元環境下においても NaNO_3 が残存している限り、その酸

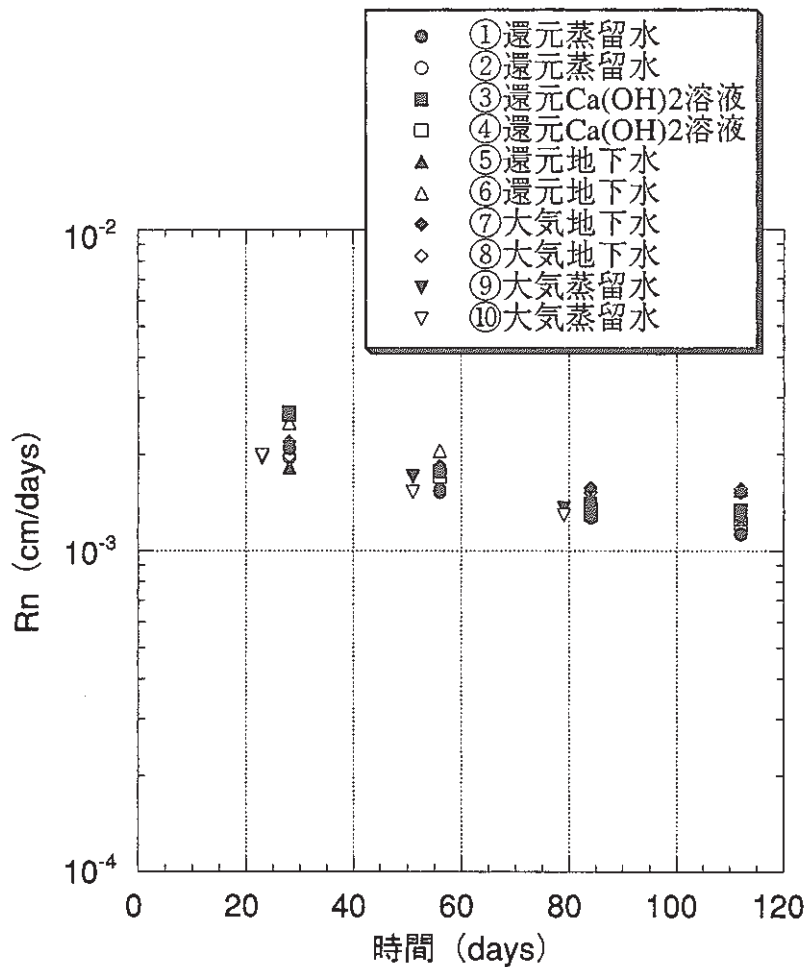


図2.2.15 AgI含有アスファルト固化体からのNaイオン浸出率

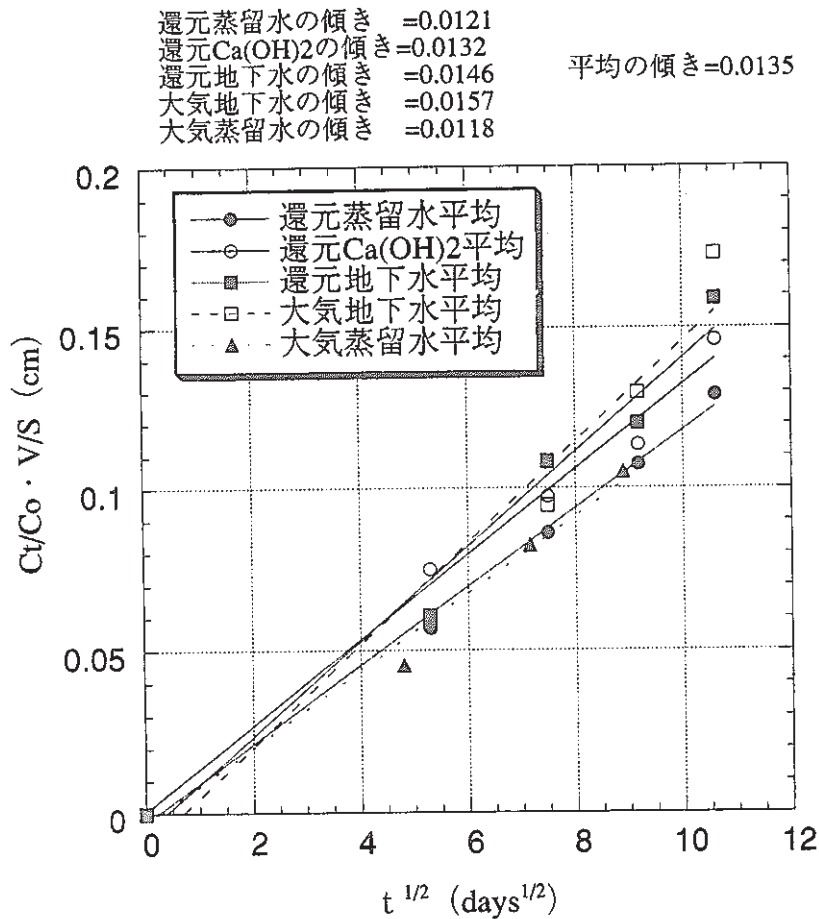


図2.2.16 AgI含有アスファルト固化体からのNaイオンの浸出速度

化性のために、AgIは分解されないのでヨウ素を固化体内部に留める事が可能であるという事である。例えば、200ℓドラム缶(56cmφ×82cmH)の実固化体を想定すると、90%のNaNO₃が溶出する時間は、V/S=70.6であるから

$$90\% \text{浸出時間} \quad t = 70.6/D = 1350 \text{年}$$

となる。すなわち、ヨウ素は、大部分のNaNO₃が溶出してから、アスファルト固化体のBhが低下して初めて溶出を開始するのであるから、還元環境下であっても、少なくとも1500年程度は溶出を防止することができると結論される。

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 アスファルト分解に伴う酸素消費量の調査

昨年度までの結果より、好気条件での微生物によるアスファルト分解速度が嫌気条件での40倍に相当するため、処分サイトにおける酸素の有無が微生物のアスファルト分解を大きく左右することが明らかとなった。

今年度は処分場における酸素の存在期間を正確に見積もるため、微生物のアスファルト分解に伴う酸素消費速度を実験的に調査した。

3.1.1 培養

(1) 前培養

前培養：前報で単離して用いたB6、Tega株をナフタレン、ビフェニル各約0.1gの純炭化水素を炭素源としてM56培地（ $\text{Na}_2\text{HPO}_4 \cdot 12\text{H}_2\text{O}$ 、8.2g、 KH_2PO_4 、2.7g、 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 、1.0g、 $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ 、0.25mg、 $\text{MgSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ 、0.1g、 $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ 、5mg、1ℓ蒸留水、pH7.2）40mlに加えて好氣的に前培養した。

(2) 培養

前記の純炭化水素を炭素源として8日間前培養した後、この菌懸濁液の10mlを本培養に植菌した。培養は300mlの三角フラスコにM56培地100mlとアスファルトペレットを加えて30℃で行った。

アスファルトは実際の固化体の製造に供されているアスファルトであるADコンパウンド（昭和シェル石油㈱製）を直径2cm、厚み0.25cmのペレット状に成型して使用し、培養開始時に培養液に加えた。

3.1.2 測定項目

(1) 酸素消費量

（測定方法）培養液量100mlの通常の好氣的培養を行い、適時にその培養液の少量（～1ml）を抜き出して、溶存酸素測定装置で酸素消費速度を測定した。以上のようにして適時に測定した酸素消費速度を培養期間で積分し、ある期間の総酸素消費量を求めた。

(測定結果) 培養液を適時に取り出し、溶存酸素測定装置 (飯島電子工業製、生化学用DO測定装置MD-100) のセルに加え、密栓してセル内の溶存酸素の一定時間の減少量を測定して溶存酸素消費速度とした。測定装置及び測定セルの外観、および測定装置の構成を図に示す (写真3.1.1、3.1.2、図3.1.1)。

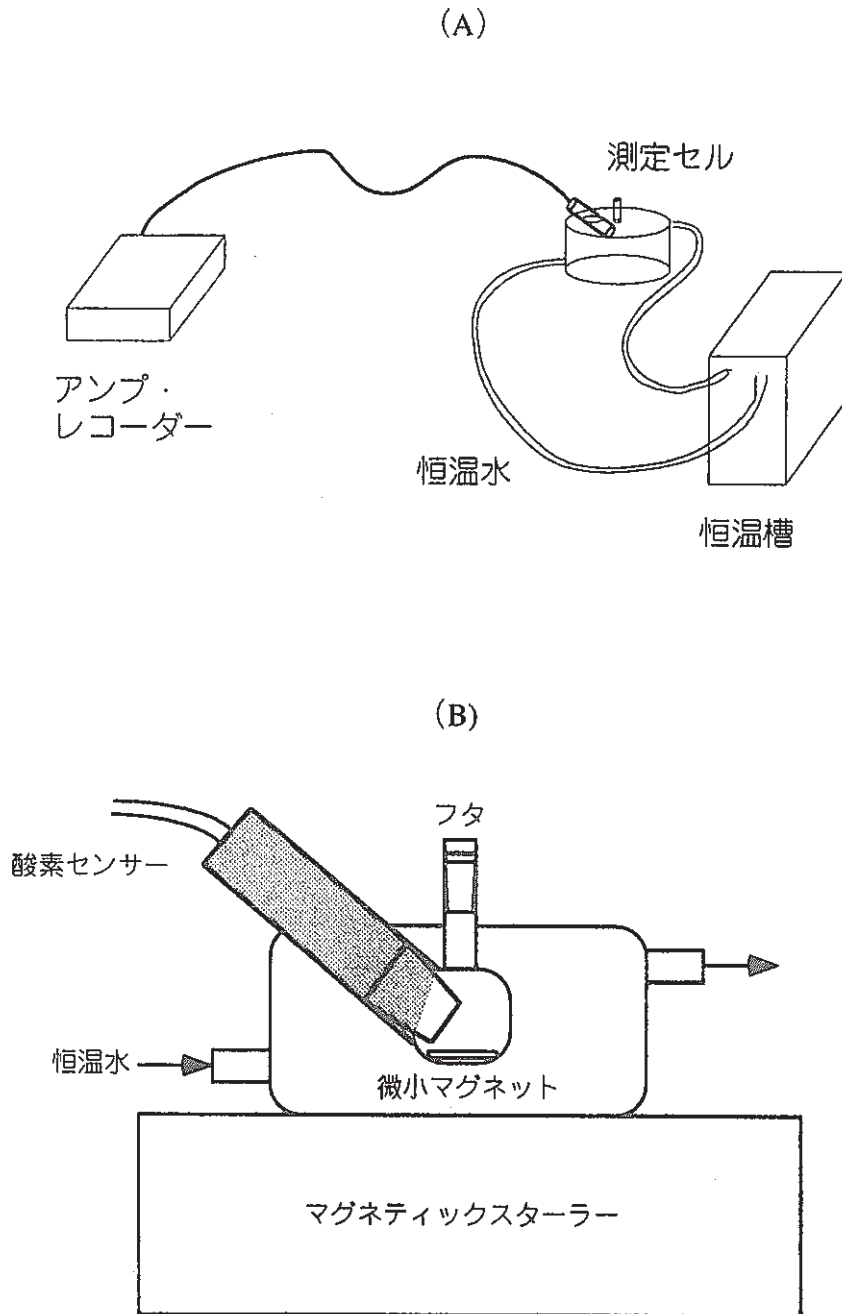


図3.1.1 溶存酸素測定装置

(A) 全体の構成 (B) 測定用セルの構造

This is a blank page.

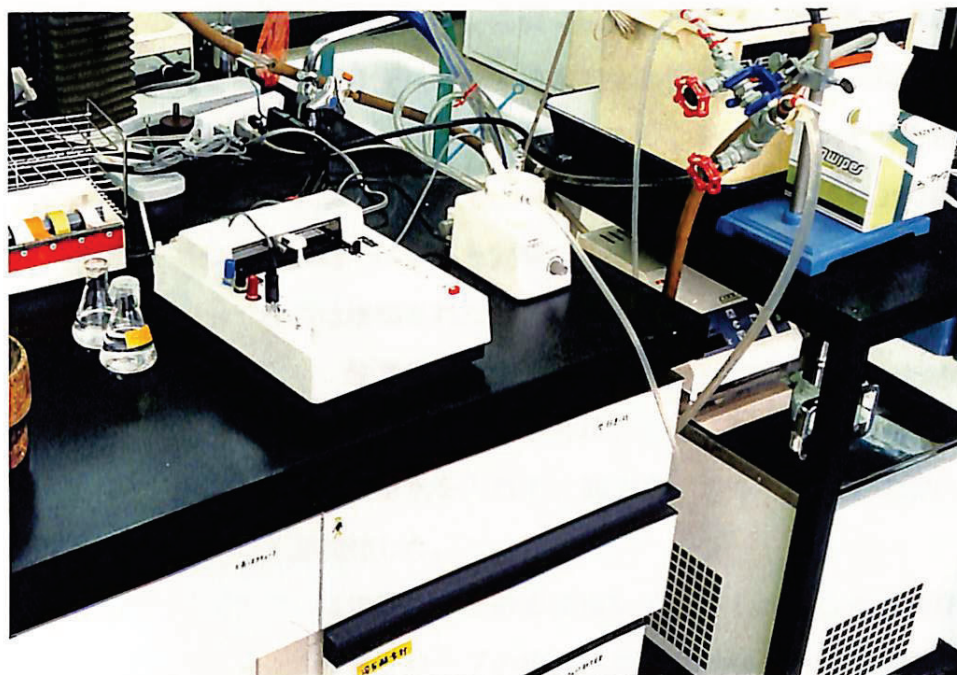


写真3.1.1 溶存酸素測定装置の外観

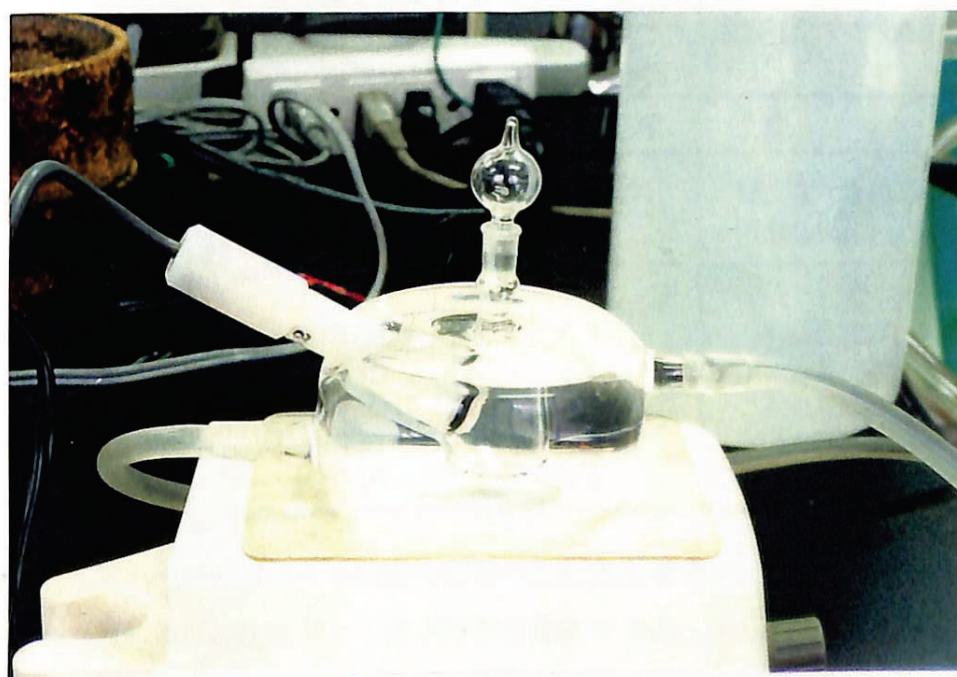


写真3.1.2 測定セル (外径 6 cm、高さ 3 cm)

This is a blank page.

測定セルはガラス製の二重構造になっており、外側には恒温槽より一定温度の水が供給されて、セルを一定温度に保つ。今回は30.2℃の水でセル内を30℃に保った。内側には斜めに溶存酸素センサーを差し込む孔が開けられており、そこにセンサーを差し込む。セルの底部には微小マグネットを入れて、セル全体をマグスターラー上に設置してセル内部を攪拌して内容液を均一にすると同時に、酸素測定に必要な水の流れを作り出している。センサーの出力は増幅された後にレコーダーに記録される。セルの出力の較正は、取扱説明書に従い、酸素量0を5%亜硫酸ナトリウム溶液で、飽和酸素量を曝気した蒸留水で行った。曝気蒸留水の作り方は、まず30℃以下の室温空気で蒸留水を曝気し、その後セルにその蒸留水を入れて、30℃での溶存酸素飽和溶液になるまでフタを開けて約15分間程度攪拌した。

実際にアスファルトで培養している培養液をそのまま用いて測定したところ、溶存酸素量の減少は著しく少なく、溶存酸素プローブの出力の減少は蒸留水の対照の減少と比較して殆ど同じであった。このことは微生物の呼吸量が測定系の擾乱に比べて少なすぎて正確に測定できないことを意味している（図3.1.2）。図3.1.2から数値を読み取り酸素消費速度を出してみたのが表3.1.1である。実際、試料と対照の差は小さくこれを強引に引き算して速度を出すことは適当でないと考えた。

表3.1.1 未濃縮試料を用いた酸素消費速度の測定

時間 (min)	試 料		対 照	
	溶存酸素 (mg/l)	酸素消費速度 (mg/l/min)	溶存酸素 (mg/l)	酸素消費速度 (mg/l/min)
0	7.6	-	7.1	-
10	7.5	0.0100	6.9	0.0200
20	7.3	0.0150	6.8	0.0150
40	7.0	0.0150	6.7	0.0100
60	6.8	0.0133	6.6	0.0083
80	6.6	0.0125	6.5	0.0075

そこでセル内の微生物の呼吸による酸素消費量の絶対量を増やすために、培養液を約10倍に濃縮して微生物の濃度を高めて酸素消費を測定することとした。各測定時には毎回、蒸留水の溶存酸素を測定し、ドリフトを調べた後、試料の測定を行った。その後の多くの測定ではドリフトは概して小さく、図3.1.2に示したドリフトは偶々特に顕著であったようである。

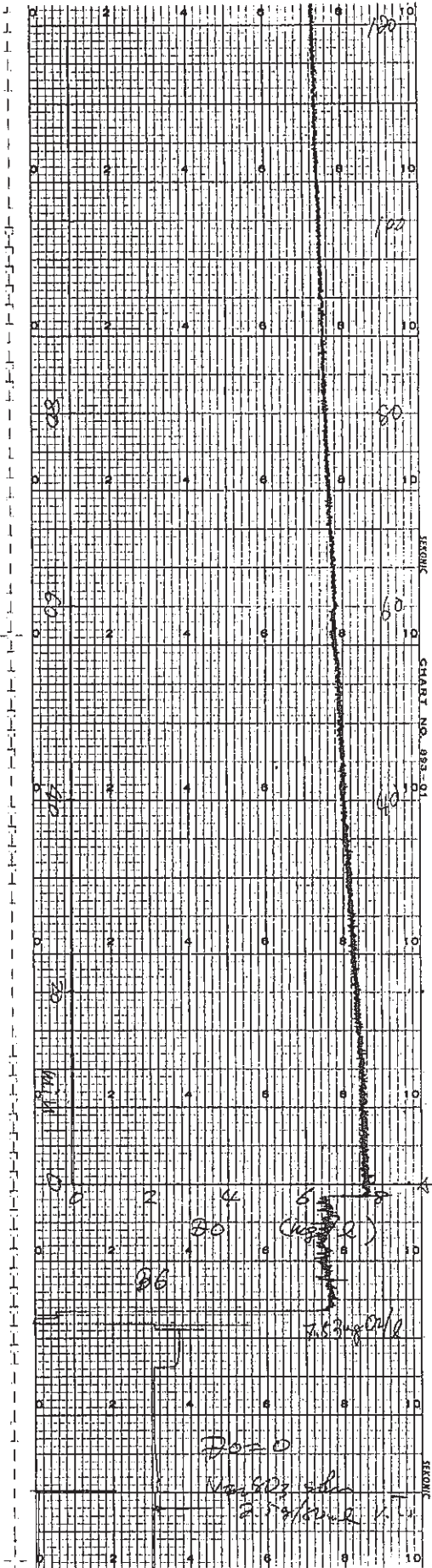
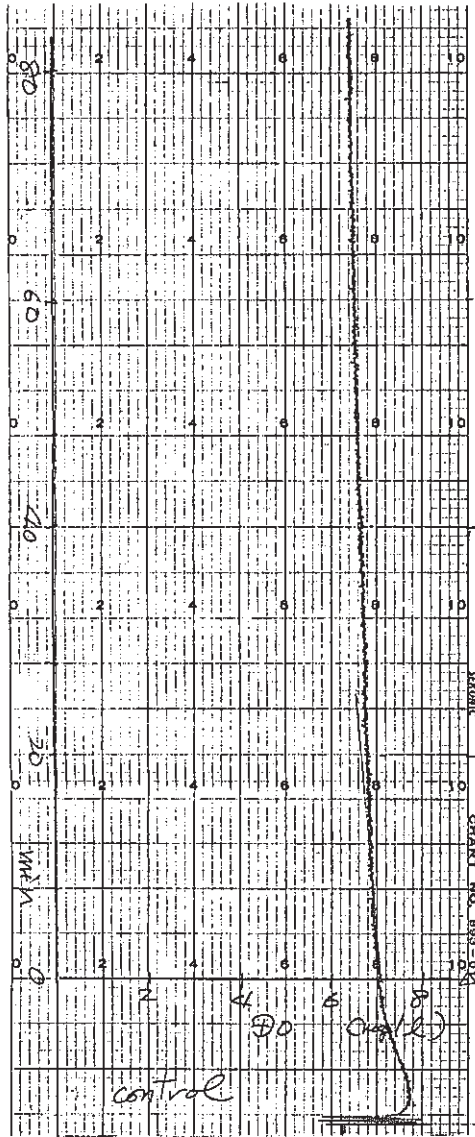


図3.1.2 未濃縮培養液の溶存酸素消費速度

右図：B6株、培養0日目

左図：対照試料（アスファルト、微生物なしの培地）

培養液の濃縮は、培養液10mlを遠心管にとり、2000G、10分間遠心して集菌し、上清の約1 mlに再懸濁した。遠心温度は菌の呼吸活性に影響が出ないように、培養温度と同じ30℃で行った。写真3.1.3、4はこの濃縮に使用した高速冷却遠心機と使用したローターである。この10倍濃縮液1 mlを測定セルに入れ、フタを開けたまま約10分間スターラーを回して細胞懸濁液の温度と溶存酸素濃度を安定させた。その後その懸濁液の上に遠心時に得られた上清を静かに加えて気泡が残らないようにフタをした。この密栓時のセル容量は1.8mlであった。

このように当初予想していたよりも溶存酸素消費が小さかったため、もう一つの測定法として考えていた、培養フラスコに酸素電極を装着し、栓を密閉して培地の上部空間の酸素濃度の減少を測定する方法は、採用した方法に比べて明らかに精度が出ない方法と断ぜざるを得ないので格別試みなかった。

(2) アスファルト劣化量

従来法に従い、培養終了時にアスファルトを取り出し、乾燥後、重量減少量を求め、劣化量とした。

(3) 微生物増殖量

培養時の増殖量は従来法に従い、600nmの吸収による濁度で評価した。分解が進みアスファルトから分解されない粒子が剥がれてくるようになると、濁度から増殖量を求めることは粒子化したアスファルトがcellと混在しているので厳密な意味では無理であるが、菌数を計数し、別にアスファルト以外の炭素源での菌体量/菌数などのデータから近似的に求めることを考える。全菌数はトーマの血球算定盤による計数で、生菌数はプレートカウントにより行った。菌体量は培養後の菌体を乾燥後、重量測定して求めた。これらはB6株についてのみ行った。Tega株は付着性が著しく、菌体重量、全菌数、生菌数を正確に求めることは困難であるために行わなかった。

This is a blank page.

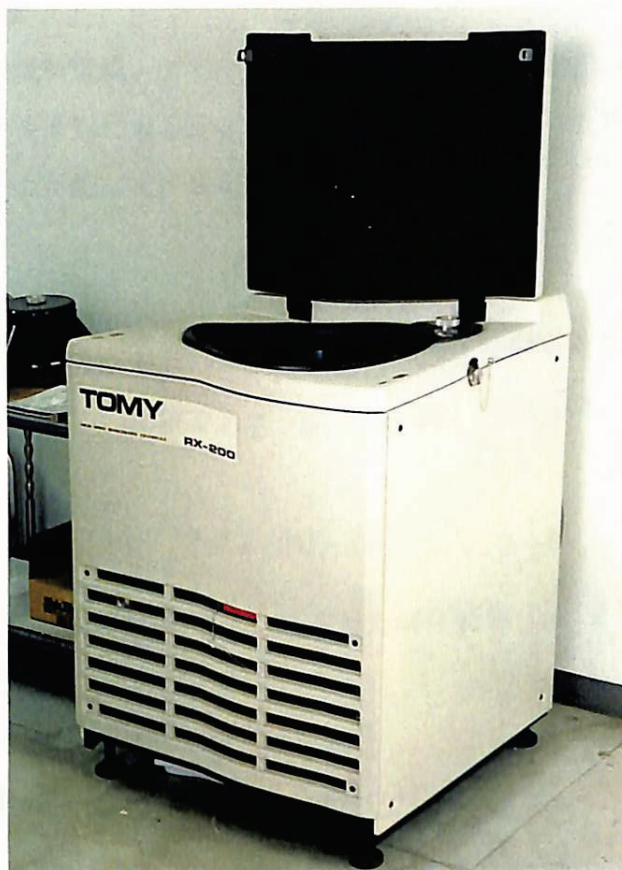


写真3.1.3 高速冷却遠心機（トミー精工製、RX-200）

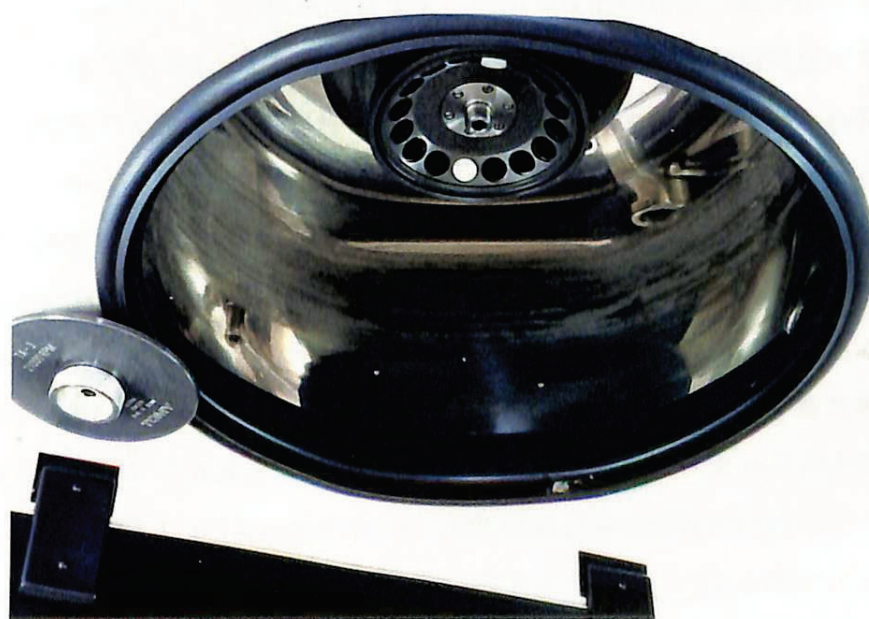


写真3.1.4 同上ローター、TA3

This is a blank page.

3.1.3 データの整理

上で求められた酸素消費量とアスファルト劣化量を相関させて、単位酸素量当たりの可能な最大アスファルト劣化量を評価した。こうすると処分サイトに持ち込まれた酸素量からアスファルトの可能な劣化量を求めることができる。

(1) 酸素消費量

酸素消費速度を以下の式で求めた。式中の1440は1分間当たりで求めた消費速度を日当たりに換算するための係数である（60（分/時）×24（時/日）=1440）。

$$\frac{\Delta DO}{\Delta t} \times \frac{v}{V} \times 1440 \text{ (mg/}\ell\text{/day)}$$

ΔDO : 溶存酸素消費量測定時に低下した溶存酸素 (mg/ℓ)

Δt : 測定時間 (min)

v : 測定セルの容量 (ml) (=1.8ml)

V : 濃縮前の測定培養液容量 (ml) (=10ml)

酸素消費速度の測定結果を図3.1.3(a)～(e)および表3.1.2に示す。これらのチャートから測定開始後10～30分を Δt とし、その間の溶存酸素濃度の低下を ΔDO として $\Delta DO/\Delta t$ を求めたものが表3.1.2に「セル中での酸素消費速度」と記されたものである。上式で濃縮前状態での酸素消費速度に換算したものが同じ表中の「濃縮前状態に換算した酸素消費速度」であり、これが本来の培地中での酸素消費速度である。この酸素消費速度の変化を図3.1.4に示す。図3.1.3(a)の中央と左側がTega株とB6株の実験開始時の酸素消費、その右側のドリフトチェックと記した殆ど一定でやや上がり気味の線が測定器自体のドリフトを見たものである。ドリフトは試料の測定に比べれば、試料の0.1125mg/ℓ/min（表3.1.2にまとめたセル中での酸素消費速度のday0でのB6株の値）に対してその大きさは-0.0068mg/ℓ/min（上昇しているので負、測定はその他の測定と同様に測定開始後16分を Δt とし、その間の溶存酸素濃度の低下（この場合は上昇）を ΔDO として $\Delta DO/\Delta t$ を求めた）でドリフトは殆ど無視できることがわかる。図3.1.4のTega株の初期の消費速度が菌体濃度がB6株など同様に低いにもかかわらず（ODにしてTega株0.070、B6株0.062）その後の速度に比べて異常に高いのは、前培養から植菌した時に前培養で用いた炭素源であるナフタレン、ビフ

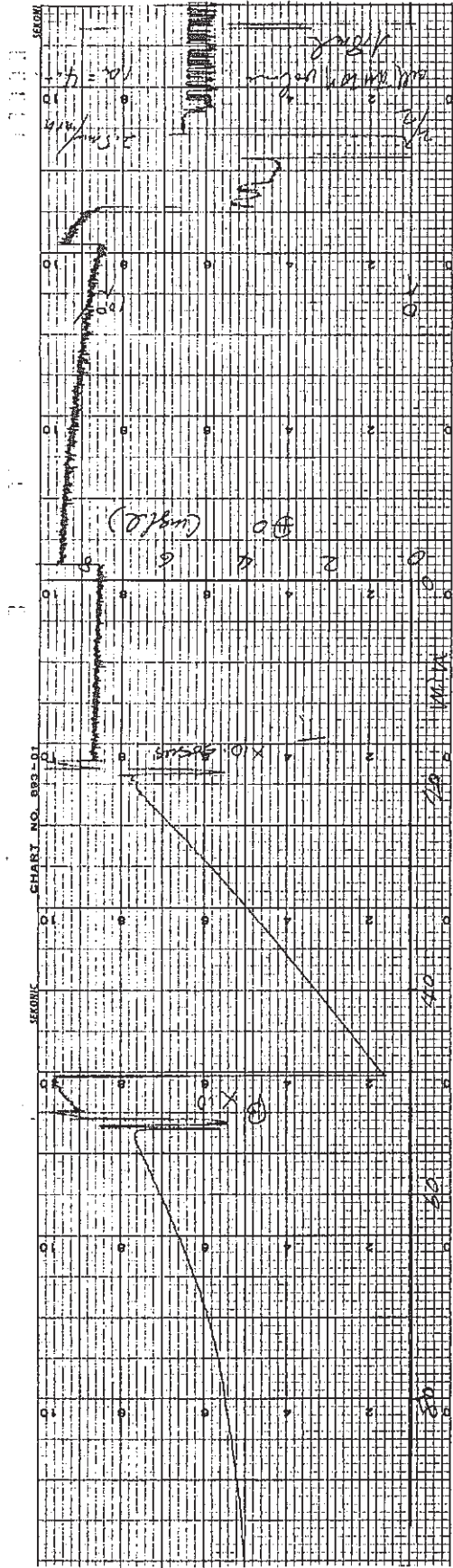


図3.1.3(a) 濃縮培養液の溶存酸素消費速度の測定例 (0日目試料)

図の右側の直線部分は機器のドリフトのチェック、
 中央の酸素濃度が急減少している試料はTega株、
 右側の勾配の緩やかな試料はB6株。横軸は時間、(5日盛り4分)
 縦軸は溶存酸素濃度 (5日盛り 1mg-O₂/l)

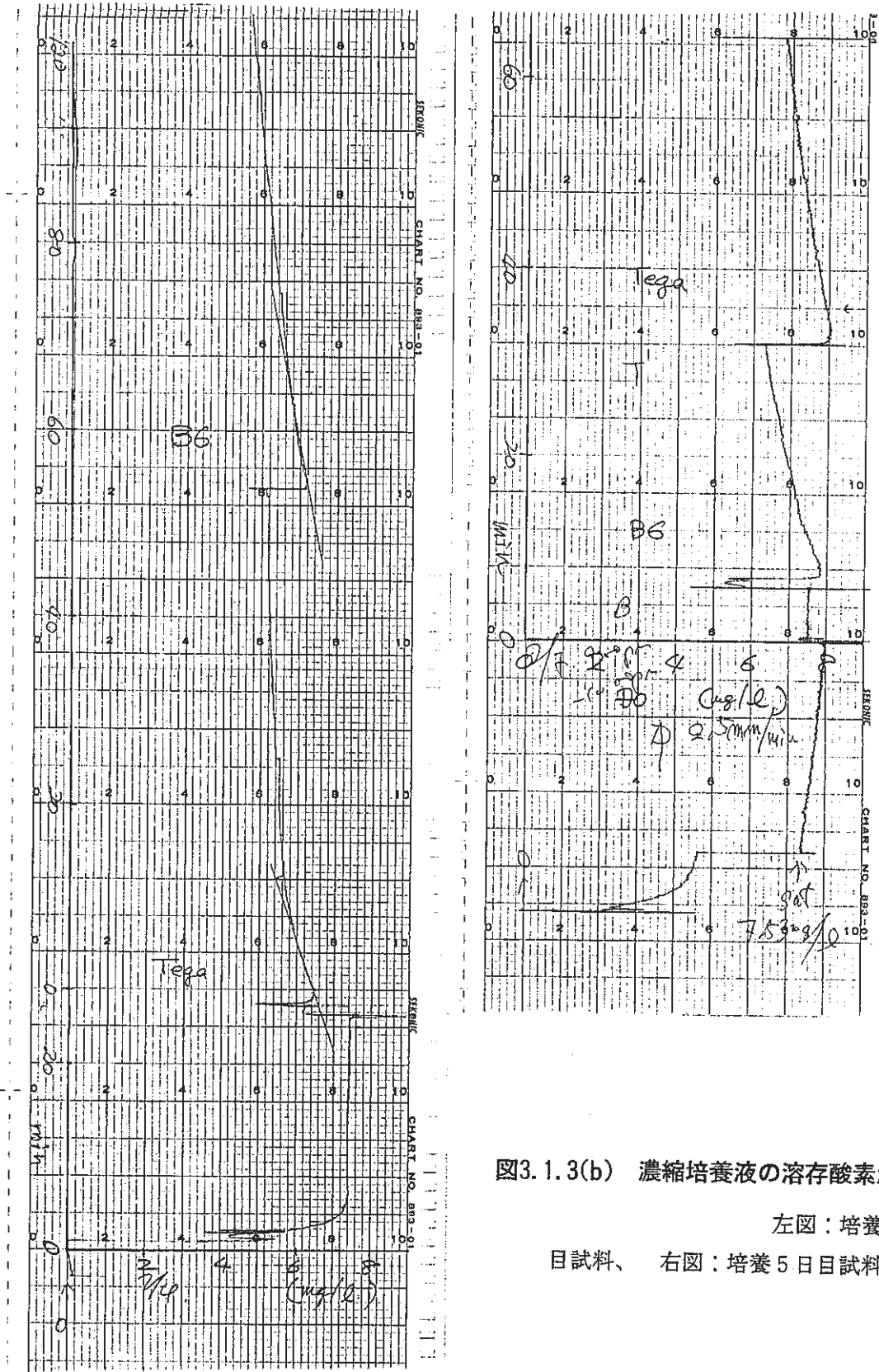


図3.1.3(b) 濃縮培養液の溶存酸素消費速度

左図：培養 2

目試料、 右図：培養 5日目試料

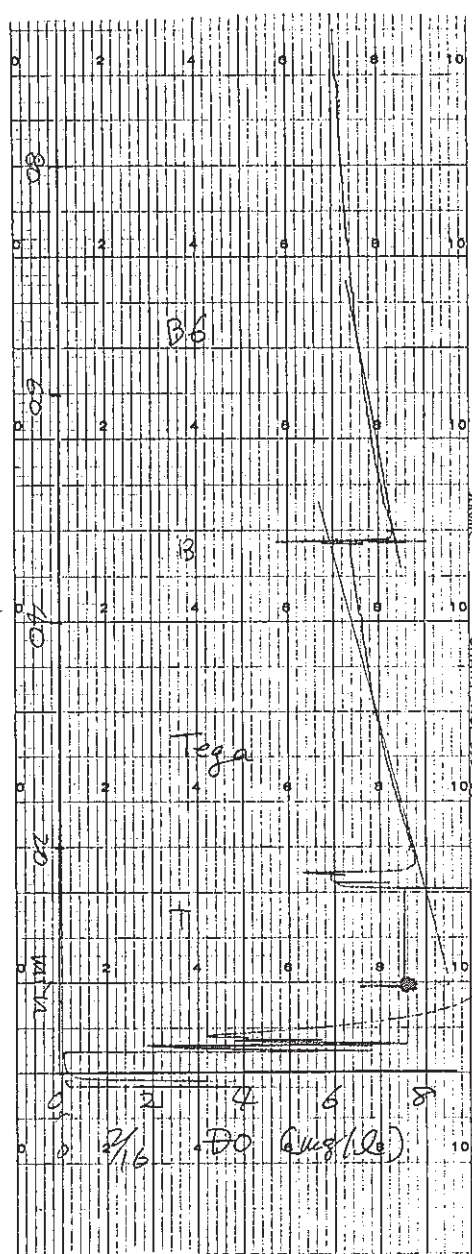
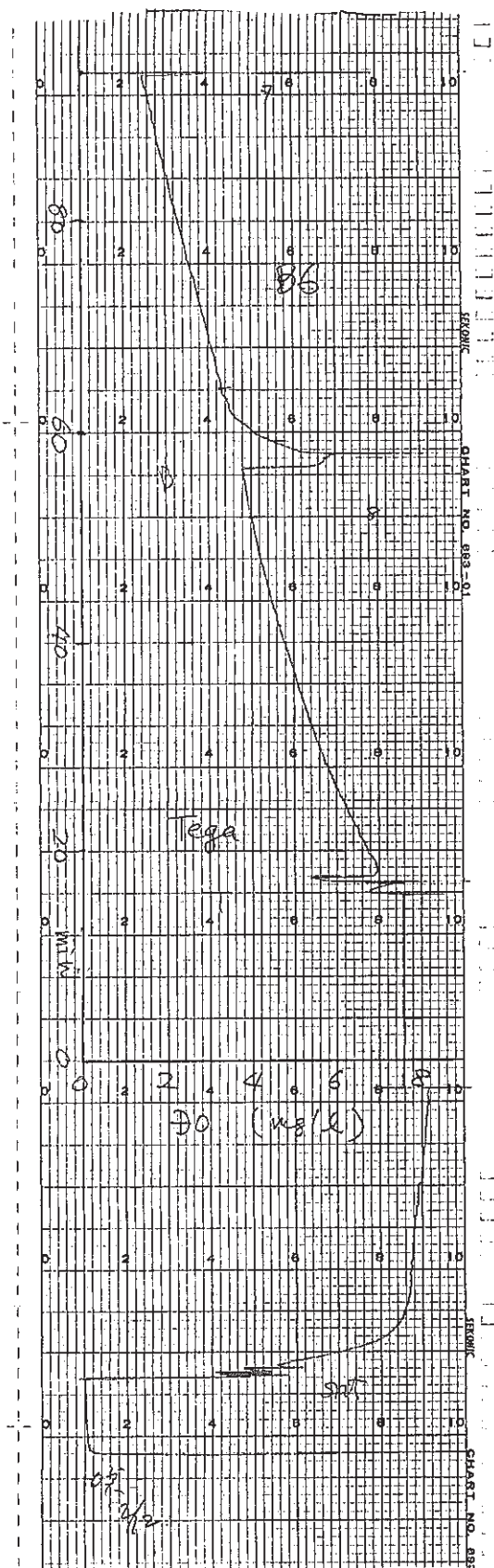


図3.1.3(c) 濃縮培養液の溶存酸素消費速度

左図：培養10

目試料、 右図：培養14日目試料

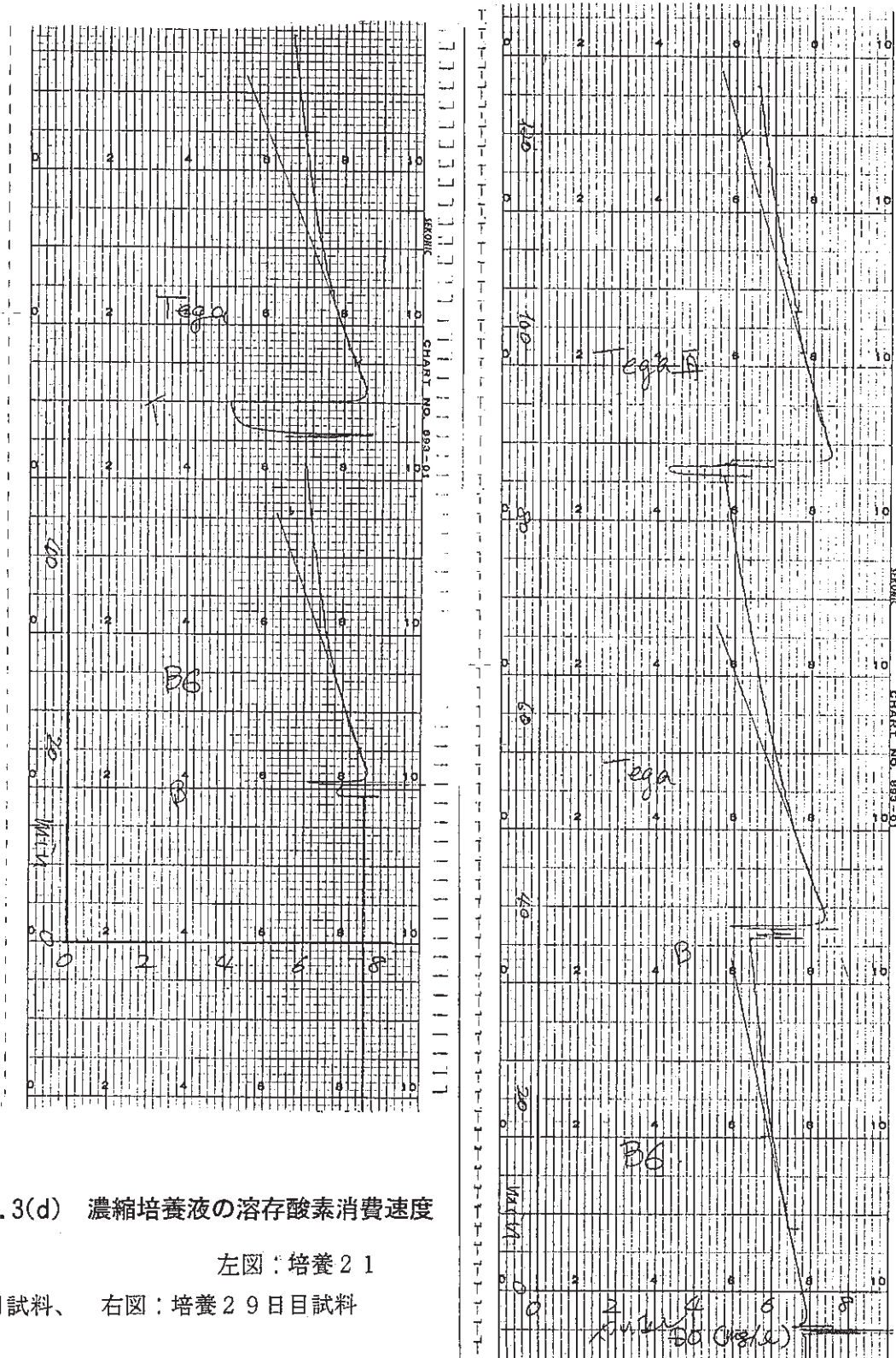


図3.1.3(d) 濃縮培養液の溶存酸素消費速度

左図：培養 2 1

目試料、 右図：培養 2 9 日目試料

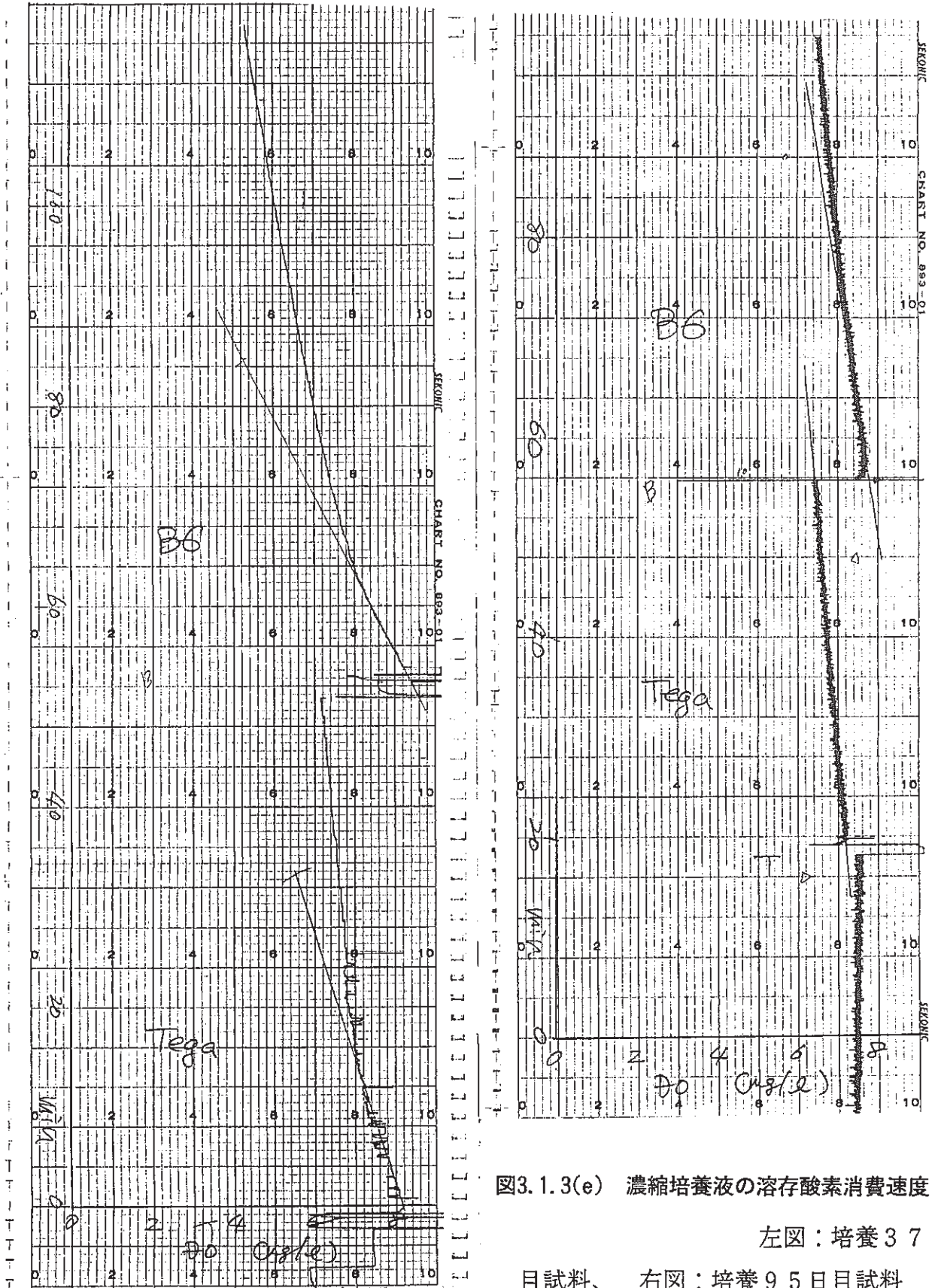


図3.1.3(e) 濃縮培養液の溶存酸素消費速度

左図：培養37

目試料、 右図：培養95日目試料

表3.1.1.2 酸素消費速度測定における濁度、酸素消費速度、累積酸素消費量

days	OD600		セル中での酸素消費速度 (mg/l/min)(1)		濃縮前状態に換算した酸素消費速度(mg/l/day)(2)		累積酸素消費量 (mg/flask)(3)	
	B6	T	B6	T	B6	T	B6	T
0	0.062	0.070	0.1125	0.8696	29.16	225.40	0.00	0.00
2	0.087	0.084	0.0475	0.0833	12.31	21.59	4.16	4.32
4	0.112	0.112						
5	0.130	0.115	0.0625	0.0417	16.21	10.81	8.44	9.18
10	0.126	0.113	0.0618	0.1150	16.02	29.81	16.49	19.33
14	0.123	0.117	0.0438	0.0633	11.35	16.41	21.97	28.57
21	0.103	0.116	0.0854	0.1130	22.14	29.29	33.69	44.56
29	0.103	0.145	0.0917	0.0729	23.77	18.90	52.05	63.83
37	0.097	0.155	0.1110	0.0891	28.77	23.10	73.06	80.63
95	0.099	0.055	0.0375	0.0250	9.72	6.48	184.69	166.40

(1) 溶存酸素測定セル中での消費速度

(2) 3.1.3の式(1)より算出

(3) フラスコ中での酸素消費速度(2)より以下の様にして算出

累積酸素消費量=前累積量+(前時間での消費速度+現時間での消費速度)/2×(現時間-前時間)×100(ml)/1000(ml)

(例) day10でのB6株の累積酸素消費量

$$8.44+(16.2+16.0)/2 \times (10-5) \times 100/1000=16.49$$

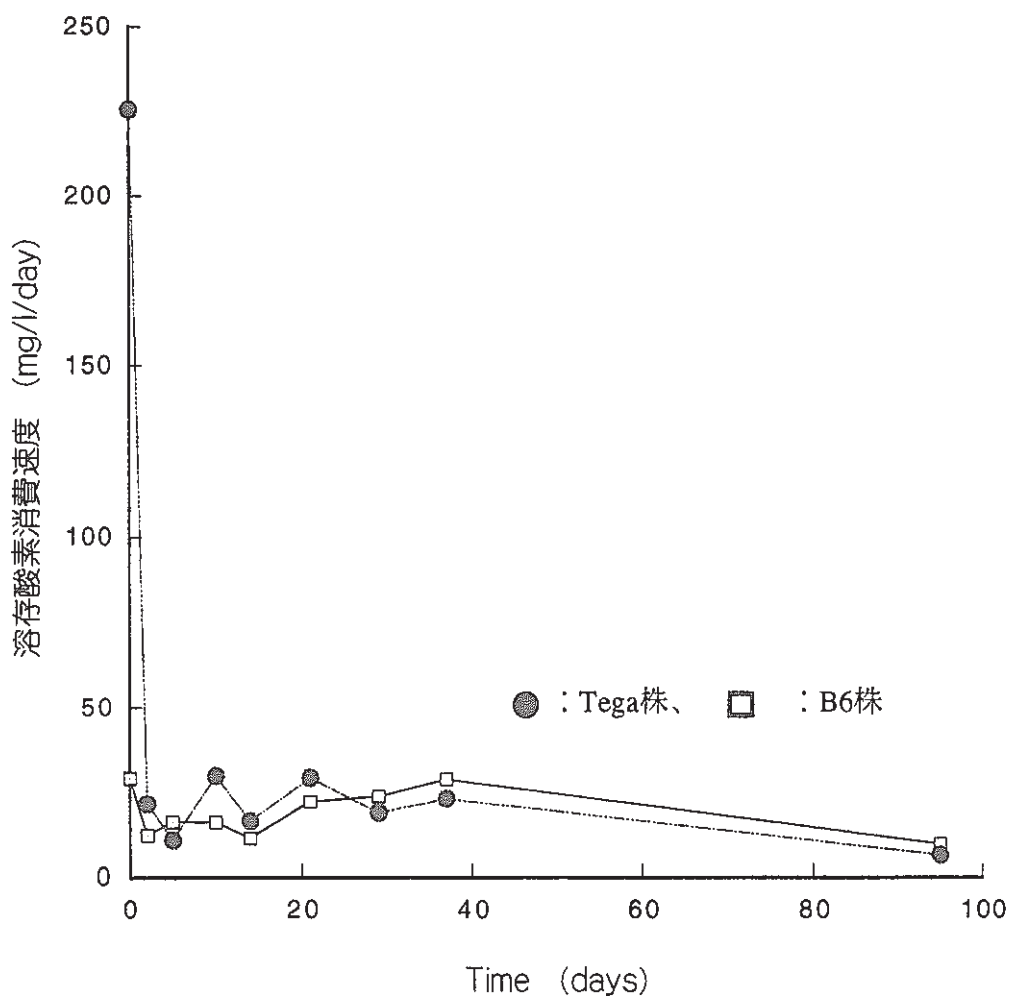


図3.1.4 アスファルト分解時における溶存酸素消費速度の変化

エネルギーの混合物が前培養期間に完全に利用され尽くされず、本培養に一部混入したためであると考えられる。前培養時の炭素源が完全に利用されたと考えられる第2日以降の測定では、速度はかなり小さい値になっている。

図3.1.3(a)でTega株とB6株の酸素消費を比較すると、Tega株での減少が約30分の測定時間全域で直線的なのに対し、B6株での減少は勾配が緩いだけでなく、測定開始後から約30分後に至る間、直線的でなく時間と共に緩くなっている。この違いは以下のように考えることができる。先の急減少を示している測定では測定セル内に利用できる炭素源が測定時間内ではまだ多く残っているのに対し、B6株ではセル内に持ち込まれた炭素源が殆どないと考えられる。そのためにTega株ではその炭素源を用いて一定の呼吸が可能である。ところがB6株では、初めの数10分間のうちに菌体内にあった僅かの利用可能なエネルギー源を使い果たすと、もう炭素源がなくなるために時間と共に呼吸が小さくなるのであろうと考えられる。

図3.1.5に図3.1.4に示した溶存酸素消費速度を培養時間で積分して求めた累積酸素消費量を示す。一般に時間と共に変化する物理量 $f(t)$ の変化速度(微分値) df/dt を時間を追って測定したデータを得たとき、その物理量 $f(t)$ の変化を求めるには、そ

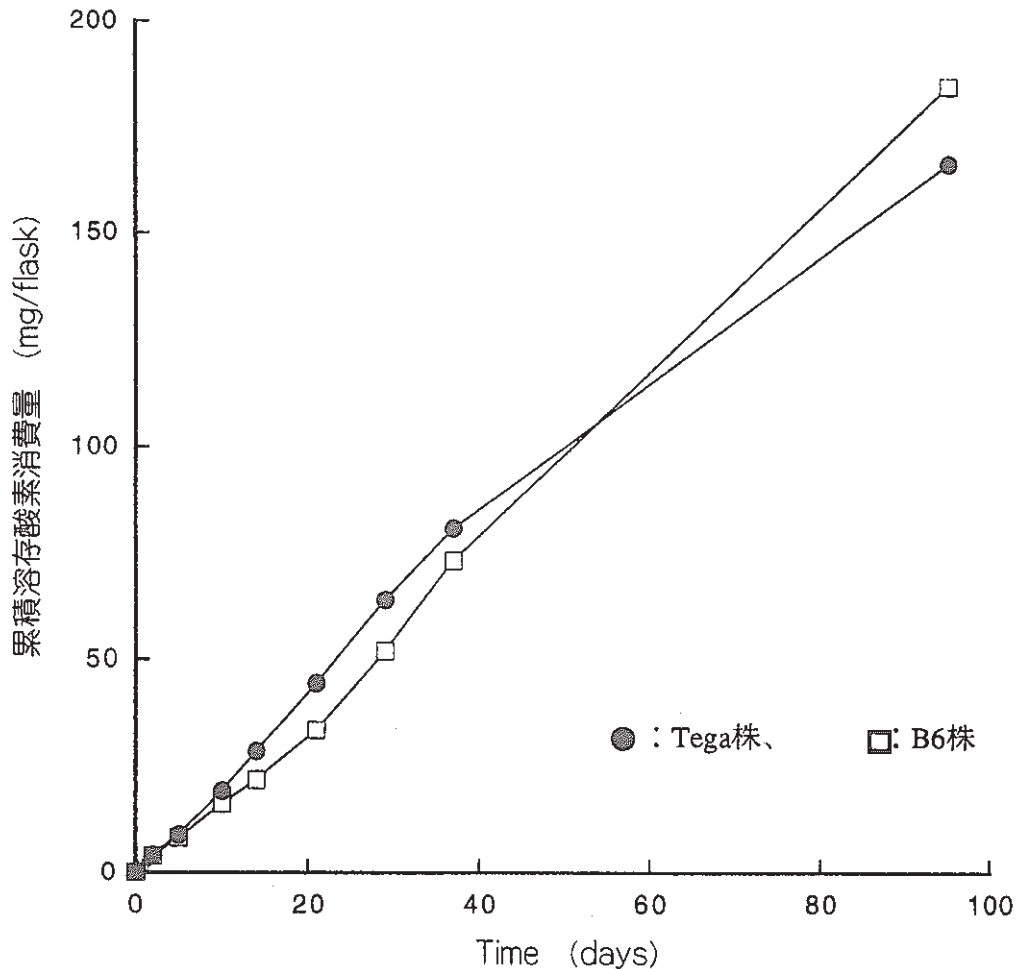


図3.1.5 アスファルト分解時における累積溶存酸素消費量

の変化速度を時間で積分することにより求められる。ここでは微分値である溶存酸素消費速度は連続では測定しておらず、数日おきというように離散的な測定値であるので以下のようにして累積酸素消費量を求めた。

$$\begin{aligned} \text{累積酸素消費量} &= \text{前累積量} + \\ & (\text{前時間での消費速度} + \text{現時間での消費速度}) / 2 \times (\text{現時間} - \text{前時間}) \\ & \times 100(\text{ml}) / 1000(\text{ml}) \end{aligned}$$

100(ml)/1000(ml)の項は実験での培地量が100mlであるために乗じた項である。この式と異なる計算をしたのは一カ所で、Tega株の0時間の速度が前培養の履歴による

と思われる異常値であったので、ここについては2日目のデータを0日に当てはめて計算した。結果は最終的にB6株の方がTega株よりも10%程度多い酸素消費を示した。

(2) アスファルト劣化量

アスファルト劣化量を以下の表3.1.3に示す(単位、g)。

表3.1.3 アスファルトの劣化量

	培養前重量	培養14日目重量	培養14日目重量減少量	培養95日目重量	培養95日目重量減少量
B6株	1.00500	0.99642	0.00858	0.93270	0.07230
Tega株	0.99463	0.98315	0.01148	0.93013	0.06450

測定値の0.1mg以下の桁は参考値と考えるべきであろう。このアスファルト減少量を上記の溶存酸素消費量と相関させると、酸素単位量当たりのアスファルト劣化量が得られる。先の累積酸素消費量は培地1ℓ当たりの量であるので、培養液量は100mlであることを考慮すると、酸素当たりのアスファルト劣化量は、例えばB6株では、

$$72.3\text{mg-asphalt}/1846.9\text{mg-O}_2 \times 100\text{ml}/1\ell = 0.391\text{mg-asphalt}/\text{mg-O}_2$$

同様にTega株で0.388mg-asphalt/mg-O₂となり、重量比でおおよそ酸素1に対しアスファルト0.39が劣化するという結果になった。これはアスファルトが完全に無機化されたものではなく、単にアスファルトペレットの重量減少であり、分解に伴い微粒化して脱落したものを含んでいる。1995年度の報告書にも示されている通り、相当量の大小のアスファルト粒子が懸濁していた。またペレット表面に薄く白く微生物が付着して微生物膜を形成しているのが観察された。そのため微生物の付着による減少量の過小評価の可能性が僅かながらあるだろう。

(3) 微生物増殖量

微生物の増殖量を図3.1.6に示す。この期間はまだアスファルトの粒子はまだ多量には微粒化していないせいか、培地全体に黒みはでていない。そこでこの増殖を別の培地で測定したO.D.と菌体量、菌数との相関から検討した。

表3.1.4にB6株のデータを示す。

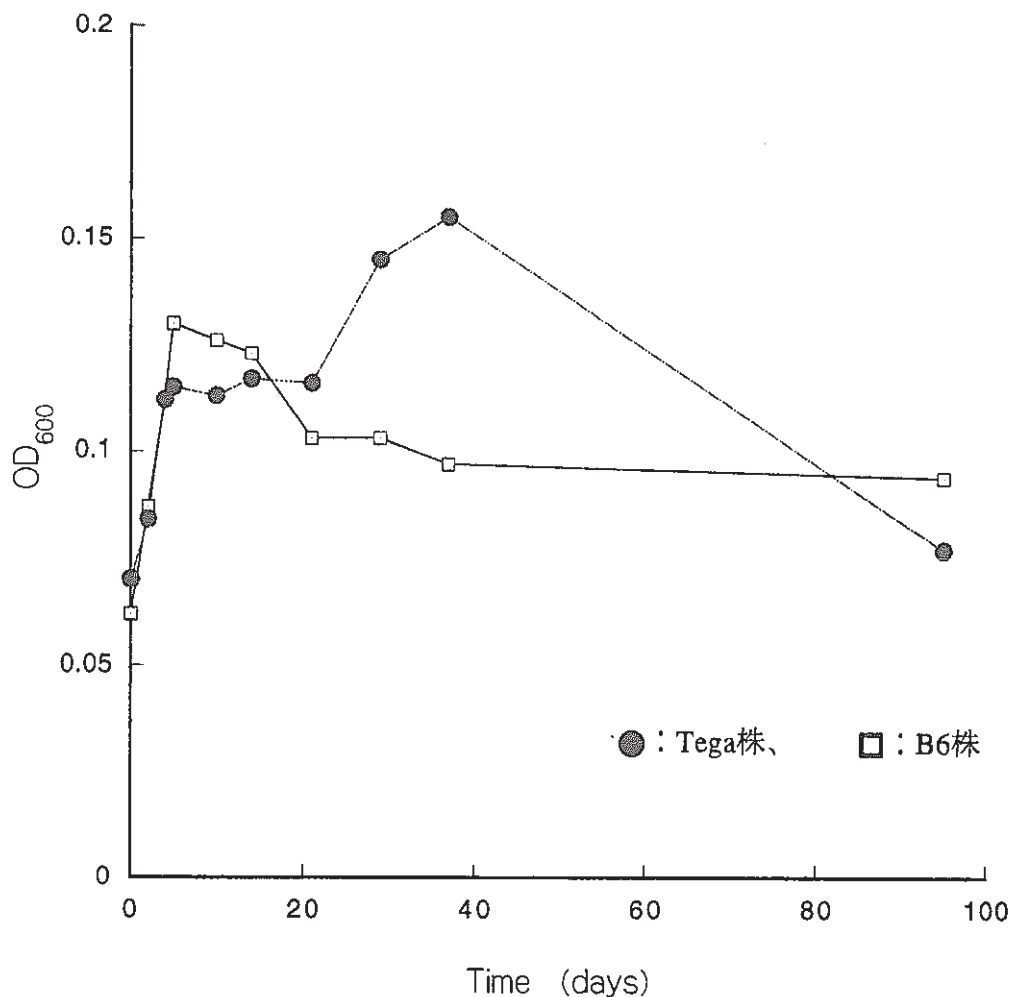


図3.1.6 アスファルト分解時における微生物増殖量

表3.1.4 OD₆₀₀=1.00の時のB6株の全菌数*¹、生菌数*²、菌体乾重量*³

全菌数	7.5×10^8 cells/ml
生菌数	1.75×10^9 cells/ml
菌体乾重量	3.5×10^{-4} g/ml

全菌数*¹：顕微鏡観察により計数した細胞数。通常はトーマの血球算定盤で例えば50 μ m四方、深さ100 μ mの培地柱中に観察される細胞を計数し、数10の培地柱での計数を平均して求める。
 生菌数*²：細菌の懸濁液を希釈して寒天平板に播き、培養して生じたコロニー数から求めた細胞数。通常の培養の直後など細胞の活性が高い時には全菌数とほぼ一致するが、貧栄養細菌などの特殊な細菌の場合、全菌数に対して生菌数が2桁も3桁も低いことも多く、凝集の著しいものでは逆のこともある。

菌体乾重量*³：培養で得た細胞を予め秤量したメンブランフィルターなどで濾し取り、そのフィルターを乾燥させて測った量から求めた菌体の乾燥重量

全菌数と生菌数がこの程度食い違っているのはやむを得ない。この数値は以後の推算には必要ない。この菌株がどのような属に属しているかは不明であるが、例えば大腸菌ではOD600=1.00の時、生菌数は約 8.0×10^8 cells/ml⁶⁾、B6株は大腸菌に比べるとやや小ぶりであることがうかがえる。菌体乾重量は参考文献上での数値がないが、経験によればPseudomonas属の菌株でOD600=1.00の時 3.0×10^{-4} g/mlという数値を出したことがあるので、それとほぼ同じオーダーであると言える。さて図3.1.6のB6株の14日目までの増殖量をODにして0.06として計算すると、フラスコ全体での菌の増殖量は2.4mgとなる。これを先のアスファルトの劣化量と比べると、アスファルトが1mg劣化すると菌体が0.28mg増殖することになる*4。14日目の劣化量を用いたのは、95日目では菌体が図3.1.6に見られるように減少しており、これは自己消化を起していると考えられるためである。炭化水素は微生物の炭素源としては高いエネルギーを持つ物質であるので、炭化水素を炭素源とした時の菌体収量は100%を越えることもあるとされている⁷⁾。しかしここでのアスファルトの劣化量のうち、微生物の炭素源として利用されたものはおそらく数分の1以下であろうから、まだやや過大評価気味かも知れない。もしそうであるとすると、その原因は菌体量を測定するのに炭素源にアスファルトでなく、通常の栄養培地を用いたことに起因する可能性がある。

*4：図3.1.6から増殖したときのB6株のODを14日目の0.126として0日目からの増殖分をおよそ0.06とする。そうするとこの増殖分を菌体乾重量に換算すると、
 $0.06 \times 3.5 \times 10^{-4} \text{ g/ml} \times 100 \text{ ml} = 2.4 \text{ mg}$
 となる。このときのアスファルトの劣化量は8.58mgであるから、アスファルト1mg当たりの菌体増殖量は $2.4 \text{ mg} / 8.58 \text{ mg} = 0.28 \text{ mg-菌体 / mg-アスファルト}$ となる。

3.1.4 まとめ

アスファルトを劣化させる好気性微生物を用いてアスファルトの劣化実験を行ったときの酸素消費を測定し、酸素量当たりの劣化量を見積もった。

- (1) アスファルトの微生物劣化実験での酸素消費は小さく、培地そのものの酸素消費を直接測定することはできなかった。そのため培地中の菌体を濃縮して菌体濃度を高めた状態で酸素消費を測定することができた。
- (2) アスファルトペレットの重量減少を劣化量と定義して計算すると、重量比で酸素消費 1 に対し、2 種のアスファルト分解菌を用いた実験でそれぞれアスファルト 0.391、0.388 が劣化されることがわかった。
- (3) このアスファルトの劣化実験での微生物増加量を計算してアスファルトの劣化量に対する菌体増加量を求めた。アスファルトの劣化量 1 に対し、0.28 の菌体増加があることがわかった。

4. あとがき

昨年度に引き続き本年度実施した収着データベースの作成やアスファルト固化体の浸出挙動に関する下記の3項目の研究成果のまとめと今後の課題について述べる。

- (1) 吸着データベースの作成
- (2) アスファルト固化体からのヨウ素の浸出挙動の検討
- (3) 微生物によるアスファルトの分解挙動に関する研究

(1) 吸着データベースの作成

- ・ 昨年度データベースに登録したヨウ素と炭素を除き、TRU廃棄物処分に関係のある18核種について分配係数の記載のある196件の文献を収集した。
- ・ 収集したすべての文献を読んだ結果、本文中に示した登録の規則に従う分配係数の記載されている文献は132件であった。
- ・ 登録した核種は全部で13核種、全レコード数は1520であった。
- ・ 100件以上のデータが登録されたのは、Cs、Np、Pu、Sr、Tc、Uの6核種であった。
- ・ 収集した文献では、5核種（Mo、Nb、Pb、Sm、Zr）の分配係数が見当たらず、さらに別の方法で文献を収集する必要があるかもしれない。

(2) アスファルト固化体からのヨウ素の浸出挙動の検討

セメント間隙水を模擬したCa(OH)₂溶液中で核種の浸出が低下する原因を検討するために、昨年度はNaOHでpHを調整した溶液を用いてアスファルト固化体の浸漬試験を実施したが、試験期間が短かったので、浸漬期間を延長して検討した。他方、アスファルト固化体に含まれるヨウ素は、AgIのように不溶化処理の施されたものもある。AgIは大気環境下ではほとんど溶解しないが、還元雰囲気では分解してヨウ素の浸出量が増大する恐れがある。そこで、実際の処分環境を模擬した還元状況をグローブボックスと亜ニチオン酸を用いて再現し、核種の浸出挙動を検討した。その結果、以下の成果を得た。

- ・ NaOHによるpH調整溶液では膨潤量が少なく、しかも個々の試料の膨潤量が異なっていた。にもかかわらず、Naやヨウ素の溶出量に有為な差はなく、昨年度の蒸留水

中における浸出試験結果に近い値であった。

- ナトリウムもヨウ素イオンも同様の浸出率で、 10^{-3} cm/dayのオーダーであった。すなわち、 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 溶液のような浸出率の低下は NaOH 溶液でアルカリにした場合は認められなかった。
- 浸出率から計算すると、本固化体から90%の核種が溶出する時間は約8年と推定された。
- AgI を含んだアスファルト固化体は大気下でも還元環境下でもほとんど膨潤しなかった。
- 還元環境下でも、アスファルト固化体に硝酸イオンが存在すれば、 Eh が低下しないので AgI が分解せず、ヨウ素が溶出しないと推定された。
- AgI を含有するアスファルト固化体は、 NaNO_3 の浸出速度が遅く、 CsI 含有アスファルト固化体と比較して半分程度であった。この数値から、実固化体と同じ大きさの模擬固化体から90%の NaNO_3 が浸出する時間を計算すると約1350年となった。すなわち、還元環境下でもヨウ素を1500年は保持できると予測された。
- AgI 固化体の浸出試験は約100日しか実施していないので、より長期の継続試験をおこない本年度の成果を確認する必要があると考えられる。

(3) アスファルト分解に伴う酸素消費量の調査

- アスファルトを劣化させる好気性微生物を用いてアスファルトの劣化実験を行ったときの酸素消費を測定し、酸素量当たりの劣化量を見積もった。
- アスファルトの微生物劣化実験での酸素消費は小さく、培地そのものの酸素消費を直接測定することはできなかった。そのため培地中の菌体を濃縮して菌体濃度を高めた状態で酸素消費を測定することができた。
- アスファルトペレットの重量減少を劣化量と定義して計算すると、重量比で酸素消費1に対し、2種のアスファルト分解菌を用いた実験でそれぞれアスファルト0.391、0.388が劣化されることがわかった。
- このアスファルトの劣化実験での微生物増加量を計算してアスファルトの劣化量に対する菌体増加量を求めた。アスファルトの劣化量1に対し、0.28の菌体増加があることがわかった。

以上の結果より、酸素の存在下でのアスファルトの微生物による劣化とそれに伴う酸素消費を相関させることができた。しかし、この数値は比較的短期間でのデータであり、培養条件から言えば、酸素は十分に供給されアスファルトからの炭素源の供給が律速である条件でのものである。長期にわたる検討、酸素供給律速での実験をすると状況が変わる可能性がある。処分環境での微生物活動を支配する水の流通の程度、酸素の供給速度などが検討される必要がある。

5. 参考文献

- 1) Vernon L. Snoeyink, David Jenkins, "WATER CHEMISTRY", John Wiley & Sons Ins., p156, 1980
- 2) Johnson D.I., Phillips D.C., "The Use of Organic Materials for the Immobilisation of Intermediate Level Radioactive Wastes", AERE - R10639, 1983
- 3) Burger L.L., Scheele R.D., Wiemers K.D., "Selection of a Form for Fixation of Iodine - 129", PNL - 4045, 1981
- 4) 電気化学協会編, 電気化学便覧, 第4版, p74, 丸善株式会社
- 5) Brodersen K., Pedersen B.M., Vinter A., "Comparative Study of Test Methods for Bituminized and Other Low - and Medium - Level Solidified Waste Materials", RISO - M - 2415, 161p (1983)
- 6) Sambrook, J., E.F. Fritsch and T. Maniatis, Molecular Cloning: a laboratory manual. p61, Cold Spring Harbor Laboratory Press, New York (1989)
- 7) 山田浩一, 中原忠篤, 石油蛋白の成算, 石油発酵研究会編, 石油発酵, p89-91, 幸書房, (1970), 東京