

## 岩石の酸化還元試験による微生物作用の評価

## Evaluation of the microbial effect on the laboratory redox tests

# 澤田 昌孝 [1]; 長岡 亨 [1]; 吉田 直樹 [1]; 大山 隆弘 [1]; 宮内 善浩 [2]

# Masataka Sawada[1]; Toru Nagaoka[1]; Naoki Yoshida[1]; Takahiro Oyama[1]; Yoshihiro Miyauchi[2]

[1] 電中研; [2] 日本原燃

[1] CRIEPI; [2] JNFL

放射性廃棄物の処分施設空洞周辺の天然バリア性能には、核種移行の遅延効果が十分に見込まれることが要求されている。移行遅延の観点からは処分環境が還元状態であることが望ましい。酸化還元状態を適切に評価するためには、その形成メカニズムを含めて十分に説明できるように検討する必要がある。処分施設の建設・操業に伴い、地上より持ち込まれた物質等の影響で想定していた還元状態が崩れる可能性があるが、空洞閉鎖後、再び還元状態が回復されることが期待されている。また、これら地下の酸化還元状態の変化には微生物の作用が関係していることが指摘されている。そこで、軽石凝灰岩サイトから採取した新鮮な岩石試料を用いた室内酸化還元試験および地化学シミュレーションにより、岩石および微生物の還元作用について検討を実施した。

岩石の酸化還元室内試験では、酸素に暴露されていない新鮮軽石凝灰岩の粉碎試料を飽和溶存酸素溶液に懸濁させ、経時的に溶存酸素濃度や酸化還元電位などの溶液パラメータを測定するとともに、微生物群集解析を行った。微生物の影響を調べるため、温度を変えた試験や混合液に酵母エキスあるいは酢酸を栄養分として添加する試験も実施した。岩石粉碎試料を飽和溶存酸素溶液に懸濁させると、速やかに溶存酸素濃度は低下した。溶液中への硫酸イオンの浸出が認められることから、実験直後の溶存酸素の低下は、主に岩石中の硫化物などの還元性物質による酸素消費であると考えられた。溶存酸素濃度の低下は、特に温度が高い場合(30℃)に顕著であったことから、微生物が寄与していると考えられた。溶液の酸化還元電位については、栄養分として酵母エキスを添加した場合に、強還元性領域(-450mV vs Ag/AgCl)にまで低下したが、岩石のみの場合および酢酸塩添加の場合には、ほぼ一定であった(0mV)。微生物群集解析(DGGE解析)の結果、設定温度の違い、あるいは添加した基質の違いによる微生物叢の大きな差異は確認できなかった。しかし、それぞれの経時変化において通性好気性菌*Pseudomonas syringae*と相同性を有する微生物が時間経過とともに消失し、偏性嫌気性菌である硫酸還元菌*Desulfitobacterium frappieri*と高い相同性を有する微生物だけが時間経過に伴って優占的になってくることが明らかとなった。このことは、溶存酸素が存在している間は好気性細菌が優勢であり、溶存酸素の減少に伴い、硫酸還元菌の活動が活発になってくること示しており、地質環境の酸化還元状態の形成には、微生物が大きく寄与していることが示唆された。

地化学解析コード PHREEQC2 を用いて、上記の岩石の酸化還元実験のシミュレーションを実施した。無機的な反応である黄鉄鉱の酸化のみを考え、既往の反応速度式を使用した解析では、試験中の挙動を定量的に表現することができなかった。実験時の硫酸還元菌の増加などから、黄鉄鉱の酸化による酸素消費に加え、微生物による有機物の分解に伴う酸素の消費、硫酸還元菌による硫酸還元をモデルに追加することを考えた。微生物を化学種の一つと考え、Monod式を用いてその成長速度を定義することにより、微生物が関与する化学反応の反応速度を考慮した。微生物の作用を考慮したところ、溶存酸素および酸化還元電位の経時的な低下の計算結果は、試験の計測データと整合した。特に硫酸還元菌が活発となる計算ケースでは、強還元領域まで酸化還元電位が低下する結果となった。シミュレーションの結果から岩石の酸化還元試験で観察された現象のメカニズムは以下のように推定される。溶存酸素は黄鉄鉱だけではなく微生物によっても消費され、基質の供給により微生物の活性が高い場合には、その消費速度が大きい。また、硫酸還元菌の働きによっても溶存酸素は消費される(硫酸還元により生成された硫化水素が酸素と反応する)。この働きによって系内の溶存酸素が完全に消費され、強還元領域が形成される。

以上のことから、処分施設周辺が酸素などに暴露された場合においても、岩盤内の黄鉄鉱などの硫化鉱物や微生物によって酸素が消費されることにより、還元環境が保持され、さらに硫酸還元菌などの微生物による作用が関与することにより強還元環境が形成されると考えられた。