

微生物が地下の酸化還元環境形成に及ぼす影響

天野由記^{*1} 岩月輝希^{*2} 井岡聖一郎^{*1,3} 笹尾英嗣^{*1,4}

微生物は地下の酸化還元環境の形成および維持にどのような影響を及ぼすのだろうか？日本原子力研究開発機構では、「水-岩石(有機物)-微生物」システムにおいて微生物を考慮に入れた岩盤の酸化還元緩衝能力の評価を試みている。本報告では、微生物影響の評価のために実施した天然環境調査の結果を紹介するとともに、今後の課題を示した。

Keywords: 高レベル放射性廃棄物処分, 酸化還元緩衝能力, 「水-岩石(有機物)-微生物」相互作用, 微生物, 酸素消費

How would microbial production of reduced compounds contribute to keep the repository host rock reduced? Japan Atomic Energy Agency (JAEA) has studied redox buffer capacity of the water-rock (organics)-microbes interaction. In this paper, the results of water-rock (organics)-microbes interaction in the subsurface environment around Tono area to assess microbial effect on redox condition were presented.

Keywords: geological disposal of high-level radioactive waste, redox buffer capacity, water-rock-microbes interaction, microorganisms, oxygen consumption

1 はじめに

高レベル放射性廃棄物の地層処分では、ガラス固化体を封入するオーバーパックの健全性の維持やオーバーパックの破損後、地下水と接した放射性核種の溶解度を低く抑える観点から、処分場周辺が長期にわたって還元環境にあることが望ましいと考えられている。このような、地下深部における還元環境の形成に関わるプロセスやメカニズムに関する研究では、有機物や鉄、硫黄などを含む化学種の酸化還元反応が還元環境の形成に重要な役割を果たすことが報告されている[1-8]。一方、近年の研究により、地下深部には地上と同レベルの微生物量が存在するとの見積もりがあり[9]、これらの微生物が酸化還元反応時の触媒としての役割を果たす可能性も示唆されている[10-12]。

本報告では、地層処分事業の各段階において、微生物が酸化還元状態の形成・維持に及ぼす影響について考察した。

2 地層処分場において想定される微生物活動

地層処分場周辺において微生物が関わる現象は、人工バリアや天然バリアおよびその中間的領域など、場所や時間スケールによって様々な現象に分けられるため、ここでは、酸化還元状態の変化を時間軸毎に、主に(1)処分場の建

設・操業から閉鎖まで、(2)閉鎖直後から建設に伴う環境攪乱が岩盤の元来有している水理学的、化学的回復能力(本研究では酸化還元緩衝能力と呼ぶ)によって定常状態に達するまで、(3)定常状態に達した以降(隆起・沈降・侵食、気候・海水準変動など数万年オーダーの天然現象を考慮する必要のある時間スケール)に区分して、微生物が関わる酸化還元プロセスについて予察した。なお、ここでいう酸化還元緩衝能力とは、岩盤の酸化還元状態を一定の範囲内に保つ能力のことを指し、その能力は地質・水理学的条件、岩盤が有する酸化還元反応に関わる物質、水-鉱物反応速度、地下微生物の存在量・種・活性等に依存するものと考えられる。

2.1 処分場の建設・操業～閉鎖までの微生物による酸化還元プロセス

処分場の建設時には、坑道掘削にともなって坑道周辺に大気中の酸素がもたらされることにより、それまで還元環境下で形成されていた嫌気性細菌(酸素を呼吸に用いない菌)を主とした地下微生物生態系が攪乱を受けると予想される。酸素は多くの微生物にとって最もエネルギー効率の良い電子受容体であり、地下環境にも酸素によって増殖が活性化される微生物が数多く存在していることがわかっている[13, 14]。これらは通性嫌気性菌と呼ばれ、酸素のない環境下では硝酸イオンなどを用いて増殖することができるが、酸素を用いた呼吸の方がエネルギーをより多く獲得できるため、酸素の存在下で増殖が活発になる。したがって、酸素、有機物、および地上からの好気性菌の進入により、酸素を消費する微生物の活動が活発化し、それにともない坑道周辺に侵入した酸素は微生物によって消費される可能性がある。ただし、処分場建設・操業時には坑道掘削にともなう地下水流動の変化や酸素の持続的な供給などにより水理・化学環境が攪乱を受ける状態が続くため、その酸化還元状態は安定しないものと考えられる。この間、周辺坑道の岩盤がどの程度酸化を受けるのかを把握することで、処分場閉鎖後の酸化還元反応に関わる微生物

Microbial effect on redox condition in subsurface environment by Yuki Amano (amino.yuki@jaea.go.jp), Teruki Iwatsuki, Seiichiro Ioka, Eiji Sasao
本稿は、原子力学会 2007 年春の大会バックエンド部企画セッションにおける講演内容に加筆したものである。

*1 (独)日本原子力研究開発機構 地層処分研究開発部門 東濃地科学研究ユニット

Japan Atomic Energy Agency, Geological Isolation Research and Development Directorate, Tono Geoscientific Research Unit
〒509-6032 岐阜県瑞浪市明世町山野内 1-64

*2 (独)日本原子力研究開発機構 地層処分研究開発部門 幌延深地層研究ユニット

Japan Atomic Energy Agency, Geological Isolation Research and Development Directorate, Horonobe Underground Research Unit
〒098-3224 北海道天塩郡幌延町北進 432 番 2

*3 現所属：(独)北海道科学技術総合振興センター 幌延地圏環境研究所

*4 現所属：(独)日本原子力研究開発機構 地層処分研究開発部門 研究開発統括ユニット

の酸化還元緩衝能力のより現実的な評価に寄与することができる。

2.2 処分場の閉鎖～定常状態の形成までの微生物による酸化還元プロセス

処分場の閉鎖により、地下環境への酸素、有機物および地上微生物の供給は止められるが、閉鎖時には、ペントナイトや埋め戻し材、岩盤、地下水によって酸素や酸化された鉱物が坑道内に残存すると考えられる。残存した酸素については、300年以内に消滅するという見積りもあるが[15]、これらの酸素は元来地層中に生息していた地下微生物および埋め戻しの際に混入した表層微生物による呼吸作用や有機物の酸化によって速やかに消費される可能性がある。微生物が関与した酸素消費反応は、黄鉄鉱や有機物、鉄イオンなどによる無生物反応よりも桁違いに速く、また実際の地下環境においては微生物が広く分布しているため、酸素消費反応は主に微生物を介して進むと考えられる。また、混入した酸素が消費され尽くすと、硝酸イオン、マンガン、鉄、硫酸イオン、炭酸イオンなどを用いて嫌気性菌が活動し、その反応にともない有機酸、メタン、硫化物、二価鉄、水素などの還元剤が供給される。これらの微生物による酸素消費、還元剤生成の一連の反応は処分システムの酸化還元状態に影響を及ぼすと予測される。したがって、微生物の酸素消費能は埋め戻し後の処分場から酸素を除去するのに十分なものが、また一連の微生物反応により還元環境は形成されるかどうか、またそのメカニズムについても解明する必要がある。

2.3 定常状態の形成以降の微生物による酸化還元プロセス

処分場閉鎖後、地下環境が還元的な定常状態に達したと仮定して(定常状態が還元環境であるか否かは建設・操業による攪乱の程度、岩盤の酸化還元緩衝能力に依存する)、その還元状態は長期的に維持される必要がある。長期的な地盤の隆起・侵食、気候・海水準変動などの天然事象を想定した場合、処分場周辺の岩盤にはこれらの事象を踏まえてもなお酸化還元状態を一定の範囲内に保つ酸化還元緩衝能力を有することが求められる。この酸化還元緩衝能力は、地下環境中に存在する地下水、岩石(有機物)、および微生物の相互反応によって発揮されるものと考えられる。例えば、還元環境の回復後、地下環境中では酸素を必要としない嫌気性菌(通性嫌気性菌を含む)を中心とした微生物生態系が再び形成されると予想される。その場合、「水-岩石(有機物)-微生物」反応システムにより、硝酸や硫酸イオンの直接的還元に加え、副産物として硫化物イオンなどの還元剤が生成され、還元環境の維持につながると考えられるが、長期的な還元環境の維持には、これらの嫌気性菌の活性とその代謝反応に必要な酸化剤と還元剤が岩盤中に十分な量含まれているかどうか重要な要素となる。したがって、岩盤の酸化還元緩衝能力を評価するためには、

主要な酸化還元反応や関連鉱物・イオンの量比、反応速度、反応を律速する酸化剤や還元剤の供給速度に加えて微生物の存在量、微生物群集組成、増殖速度、酸化還元反応速度等に基づいて定量的な解析をおこなう必要がある。

3 各時間スケールの酸化還元緩衝能力に関する研究の現状と提言

筆者らは、天然環境における岩盤の酸化還元緩衝能力を評価するために、地下深部の地下水や岩石を採取し、その生物化学特性に関する試験および解析をおこなっている。ここでは、筆者らがこれまでに実施した研究について紹介し、得られた結果を2章で述べた処分事業の各段階で想定される事象と対比させて概説し、地層処分に関わる微生物の研究を行う上で、今後の課題について述べる。

3.1 処分場建設・操業～閉鎖まで：水理・化学的に攪乱を受けた岩盤を対象とした生物化学的硫酸還元緩衝能力の評価

処分場の建設・操業から閉鎖時にもたらされた酸素や酸化鉱物がどの程度の期間で還元されるのかを明らかにしておくことは、処分システム周辺の長期的な化学環境の変遷を推測する上で重要である。

筆者らは、岐阜県の瑞浪超深地層研究所用地内[16]において、上述の攪乱された現象を小規模ではあるが模擬していると考えられる地層を対象として、原位置の硫酸還元反応に関わる酸化還元緩衝能力の評価を試みた[17]。研究対象とした地層は、ボーリング孔掘削終了後から観測・採水装置の設置まで約3ヶ月間裸孔状態にあったことで、深度毎の地下水位の違いにより硫酸イオン濃度の高い表層地下水が深部の堆積岩(深度157.8m)に混入している[18]。また、礫岩層を含み、透水性が高く地下水の流動経路として機能していることから、大規模な地下施設の建設を想定した場合、水理学的にも乱されやすい環境にある。そのため、水理・化学的な攪乱を受けやすい地層として、原位置の「水-岩石(有機物)-微生物相互反応」による酸化還元緩衝能力を研究するのに適した環境となっている。硫酸イオン濃度を指標として酸化還元緩衝能力を評価した結果、対象とした地層においては、観測を開始してから約9ヶ月間は硫酸還元反応に伴う硫酸イオン濃度の減少がわずかに認められたが、その後の約1年間は有意な変化は認められなかった。したがって、原位置における硫酸還元菌の活性は低かったと推測される。その要因として、硫酸還元菌の増殖に必要な物質の量が不足していたことが考えられる。対象とした地層に生息する硫酸還元菌は主に有機物を用いて硫酸イオンを還元する種であるため(Table 1)[13]、硫酸還元菌の活性は硫酸イオンと有機物の供給速度に律速される。硫酸イオン濃度を変化させて微生物の硫酸還元速度を測定すると、硫酸イオン濃度が高くなるほど硫酸還元速度も増加することがわかっているが(Fig. 1)、原位置における硫

Table1 The number of sulfate reducing bacteria in groundwaters estimated by MPN method.

地層名	ボーリング孔	深度 (mbgl ¹⁾)	乳酸を利用する 硫酸還元菌 (cells ml ⁻¹)	酢酸を利用する 硫酸還元菌 (cells ml ⁻¹)
明世 / 本郷累層	TH-6 号孔 ²⁾	104	BD ³⁾	ND ⁴⁾
	TH-6 号孔	132	BD	ND
土岐夾炭累層	KNA-6 号孔	160	3.6	BD
	MSB-2 号孔	124.3	23	23
土岐夾炭累層(基底礫岩部)	TH-6 号孔	153	2.3	ND
	MSB-2 号孔	157.8	23	BD
花崗岩	TH-6 号孔	177	BD	ND
	KNA-6 号孔	180	3.6	BD
	MSB-2 号孔	173.1	23	23

¹⁾ meter below ground level, ²⁾ データの一部は Murakami et al. (2002)[14]から引用, ³⁾ Below the detection limit, ⁴⁾ Not determined

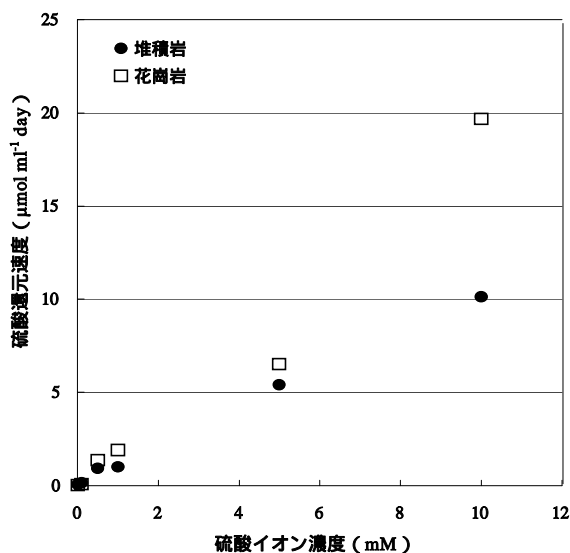


Fig. 1 The relationship between the sulfate concentration and the sulfate reduction rate for microorganisms

酸イオン量については, 表層地下水の混入により十分量存在していたと考えられる。一方で, 有機物濃度については観測当初には表層水と同レベルの約 3 mg L^{-1} の濃度で検出されていたものが, 観測開始から2年後には 0.7 mg L^{-1} まで減少していた。溶存成分のマスバランス解析結果から, この減少は地下水の入れ替わりによるものと推察され, 生物化学的な反応による有機物の消費を意味するものではないと考えられる。この地下水の入れ替わりにより, 有機物の種類についても表層地下水から供給されていた比較的分解しやすいものからリグナイトを起源とする難分解性のものに変化したと推察される。硫酸還元菌は利用できる有機物種が限定されており, 対象とする地層で検出されている硫酸還元菌は主に低分子有機酸である乳酸あるいは酢酸を利用することがわかっている[13] (Table 1)。つま

り, 表層地下水からの比較的分解しやすい有機物の供給が止められ, 利用可能な種類の有機物が十分供給されなかったため, 硫酸還元反応による硫酸イオンの消費が十分になされず, 同地層は硫酸還元緩衝能力を十分に有していなかったものと推察される。

以上の結果から, 処分場建設に伴う地下水の水理・化学的攪乱により微生物の呼吸に必要な電子受容体や有機物が変化した場合, 微生物の活性も影響を受けることとなり, 結果として酸化還元緩衝能力も処分場建設前と比べて変化する可能性が高い。ここで重要な点は, 処分場建設に伴って生じる地下水の水質の変化と閉鎖時に埋め戻し材によって持ち込まれる物質(具体的には微生物の呼吸に必要な電子受容体と有機物)を把握し, 閉鎖後の微生物の酸化還元活性についてある程度予測を行うことで, 閉鎖後の環境の変化が酸化還元緩衝能力の著しい低下をもたらさないか否かを評価しておくことである。また, 処分場建設・操業の段階で, 坑道周辺における酸化帯の空間的な広がりを把握しておくことも重要である。

今後の課題として下記の項目について研究を進める必要がある。

- (1) 処分場閉鎖時に持ち込まれる電子受容体および有機物量の把握
- (2) 処分場建設・操業時における坑道周辺の酸化帯領域の把握

3.2 処分場の閉鎖～定常状態に達するまで: 室内試験による水-岩石(有機物)-微生物相互反応プロセスの再現

処分場閉鎖直後に地下に残存すると予測される酸素が, 微生物の代謝反応によって速やかに消費され得るかどうか, また微生物が還元環境の形成に果たす役割とその過程で生じる酸化還元反応を明らかにするために, 以下のような閉鎖系の条件下でバッチ試験を行った [19-21]。

反応試験に用いた堆積岩試料は、前述のボーリング孔から採取されたリグナイト含有砂岩および泥岩の粉碎物を用い、水については蒸留水を用いた。すべての器具、水、および岩石試料は反応試験前にオートクレーブ滅菌をおこなった。培養液中に添加する微生物は、堆積岩の深度79 mにおいてリグナイトが含まれる岩相に分布する地下水から採集した。これらの岩石(有機物)、微生物、水を反応させ、溶存酸素濃度や酸化還元電位の変化をモニタリングするとともに、反応溶液中の微生物組成の変化についても解析をおこなった。

反応溶液中の溶存酸素濃度は、微生物を添加していない状態では約 0.6 mg L^{-1} で安定していたが、微生物を添加した直後から著しく減少し、微生物添加後6日目には 0 mg L^{-1} まで減少した後試験終了時まで(45日間)検出されなかった(Fig. 2)。微生物による酸素の消費速度は $0.10 \text{ mg L}^{-1} \text{ day}^{-1}$ であった。酸化還元電位(Eh)については、微生物を添加していない状態では約 $+330 \sim +400 \text{ mV}$ で安定した値を示していたが、微生物を添加した直後から著しく減少した(Fig. 3)。Eh値は最小で -189 mV まで減少した後、約 $-144 \sim -94 \text{ mV}$ 付近で安定値を示した。pHについては、微生物を添加した直後にわずかに上昇が認められたが、その後は約 $7.1 \sim 7.2$ で安定した値を示した(Fig. 4)。pHの上昇要因としては、微生物の代謝により反応溶液中に炭酸物質が生成されたためと考えられる。また、微生物を反応溶液中に添加した直後から、溶液中の細胞数の増加が計測された。添加直後の反応溶液中の全菌数は、 $1.22 \times 10^3 \text{ cells ml}^{-1}$ であったが、反応直後から全菌数は指数関数的に増加し、13日後には $1.69 \times 10^7 \text{ cells ml}^{-1}$ まで増加して定常状態に達した。一方で、死滅した微生物(死菌)を添加した反応液や、「水-岩石(有機物)」のみの反応溶液では、Eh値の低下は見られず、反応溶液からも微生物の増殖は認められなかった。微生物の増殖の開始と、酸素濃度の減少および酸化還

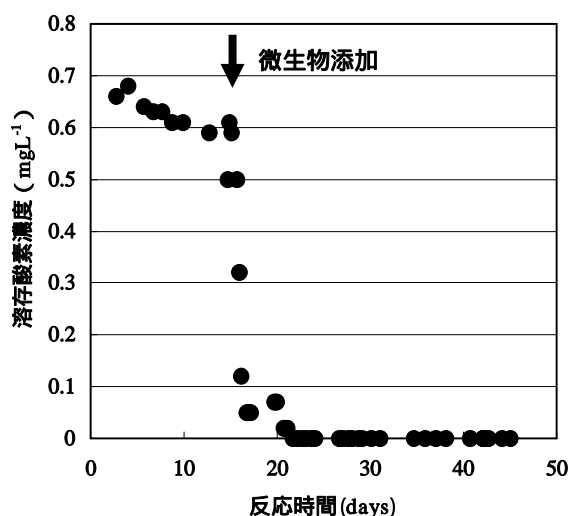


Fig.2 Change with time in dissolved O_2 concentration. After microorganisms added, the oxygen concentration in the incubation decreased significantly.

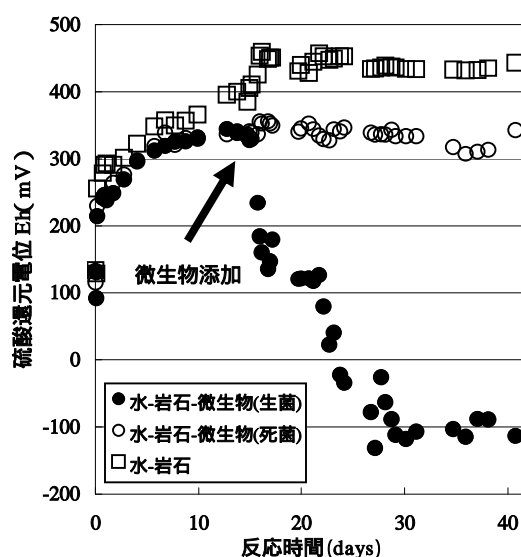


Fig. 3 Change with time in Eh. After microorganisms added, the Eh in the incubation decreased significantly.

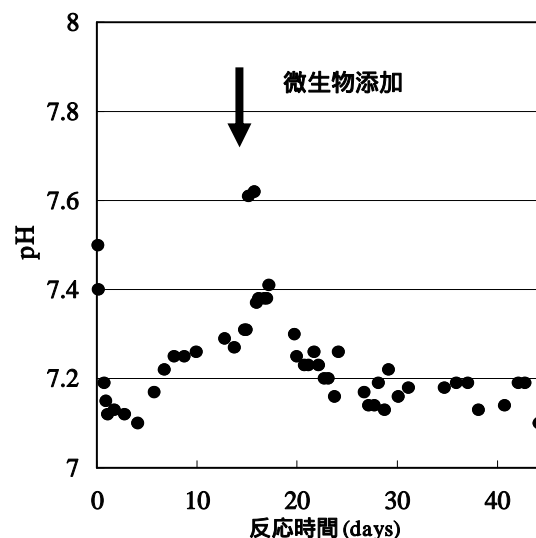


Fig. 4 Change with time in pH

元電位の低下は一致していることから、微生物細胞自体には還元緩衝能力はなく、微生物の代謝反応が還元環境の形成に大きく寄与することが示唆された。

「水-岩石(有機物)-微生物」反応の過程でおこなう酸化還元反応を明らかにするために、溶液中のイオン濃度の測定および微生物群集組成の解析をおこなった。その結果、反応初期には好気性菌、すなわち酸素消費をおこなう細菌や、硝酸還元菌が優占して存在していたが、反応6日目には硝酸還元菌の増加が見られた。その後、鉄還元菌が検出され、反応13日目には硫酸還元菌が50%以上を占めていた。また、Eh値の低下、微生物細胞数の増加とともに、反応溶液中の硫酸イオン濃度が減少し、硫化物イオン濃度の増加が認められたことから、微生物による硫酸還元反応がEh値の低下に大きく寄与したことが示唆された。つまり、

還元状態の形成過程においては、酸素消費 硝酸還元(鉄酸化を含む) 鉄還元 硫酸還元という一連の反応が生じ、その結果還元剤が生成することにより、還元状態が形成されることが明らかとなった。さらに、微生物群集と酸化還元電位、反応溶液中の溶存イオン濃度の変化から、還元環境の形成・維持に主要な役割を果たす微生物代謝反応を特定することができた。この実験により明らかになった還元状態の形成過程は、微生物代謝のエネルギー効率を考えると非常によく説明できる現象である。

上述の試験結果は、微生物の代謝反応に必要な物質が十分含まれた条件下で得られたものであり、対象とする岩盤の種類や鉱物量、微生物種によって酸化還元緩衝能力は異なると考えられる。例えば、処分場となる地下環境に鉄や鉄酸化細菌が豊富に存在する環境下では、酸素の侵入によって微生物による鉄の酸化が促進され、酸化鉄の沈殿が生じ、酸化鉱物として地中に残存する可能性がある。したがって、原位置における岩石・地下水の化学組成や微生物群集組成、また埋め戻し材の微生物群集組成についても把握し、還元反応が進行する環境条件であるか否かについて評価をおこなう必要がある。また、室内試験による評価では岩石の空隙率や透水性、水-岩石反応による鉱物の溶解速度などについて原位置条件を再現することが難しく、原位置における酸化還元緩衝能力を厳密に再現できない可能性もある。したがって、室内試験とともに原位置試験による直接的な評価を実施し、室内試験の結果と照らし合わせて整合性をとる必要がある。また、閉鎖された際の坑道周辺の酸化帯領域の程度によっても微生物による酸化還元緩衝能力は異なると考えられる。処分場建設・操業の際に岩盤が著しく酸化を受けた場合、還元環境の復元には時間がかかると予想され、酸化性の鉱物の残存が核種の移行に影響を及ぼす可能性もある。上記のような微生物反応を踏まえて、処分場の閉鎖後酸化還元状態が定常状態に達する期間において、酸化還元緩衝能力に及ぼす微生物影響を評価するためには、室内・原位置試験および地質環境調査によって取得したデータを用いて酸化還元反応による還元環境の形成、維持に関するモデル解析が求められる。これにより、微生物影響の定量的な予測も可能となり、地層処分システムを設計する上で過剰設計でなく現実的な仕様を提示することができると考えられる。また、地層処分システムの長期的な安全性に対する信頼性の向上にもつながる。ただし、モデル解析で得られた長期予測を室内試験や原位置試験などによって検証することが難しい場合には、自然界で起こっている事象を「長期的な実験」と捉えてそのメカニズムを解明するナチュラルアナログ研究により、室内試験、原位置試験、およびモデル解析結果の信頼性を補完することが不可欠である。安全評価においては、知見の欠如などから微生物を考慮した評価はほとんどおこなわれておらず、評価に必要なデータの取得や解析ソフトウェア開発が急務である。このような微生物の関わる

反応を考慮した解析ソフトウェアについては、天然環境で起こりうる複数の微生物代謝活動の取り扱いが必要であり、現在開発が進められている[22, 23]。一方で、室内試験および地質環境調査によって取得する微生物データについても、解析ソフトウェア開発に適用可能なものを体系的に取得していく必要がある。具体的には、(1)地下環境の物理化学条件、(2)微生物量、(3)微生物群集組成、(4)微生物の増殖速度(全微生物の速度に加えて、好気性菌、硝酸還元菌、鉄還元菌、硫酸還元菌など)、(5)酸化還元反応に関わる主要な微生物代謝反応速度(酸素消費、酸化還元、硫酸還元、硝酸還元、鉄還元など)が影響評価に必要なパラメーターとして挙げられる。地下環境の物理化学条件に関しては、微生物の増殖に関わる溶存イオン濃度や有機物量に関する情報が不可欠であるが、中でも有機物量については、全有機炭素濃度のみの検討ではなく微生物によって利用可能な形態で存在するかどうかについても検討する必要がある。

今後の課題として下記の項目について研究を進める必要がある。

- (1) 原位置試験による酸化還元緩衝能力の評価手法の確立
- (2) 様々な岩盤における酸化還元緩衝能力の評価
- (3) 坑道周辺の酸化帯領域の程度による酸化還元緩衝能力の評価

3.3 定常状態の形成～東濃ウラン鉱床における酸化還元緩衝モデル

岐阜県東濃地域に分布する東濃ウラン鉱床では、長期的な物質移動現象を理解するためのナチュラルアナログ研究がおこなわれてきた[24]。このウラン鉱床は約1千万年間にわたって地層中に保持されてきたと推察されているが、鉱床が生成してから現在までの間に、断層活動、隆起・沈降、侵食・堆積、気候・海水準変動などの様々な自然現象を被ってきた。それにもかかわらず、ウラン鉱床が長期間安定な状態で保持されてきた要因として、固相のウランが溶脱しない程度の還元状態が維持されてきたことが挙げられている。この還元環境形成・維持には、ウラン鉱床周辺の環境において「水-岩石(有機物)-微生物」の相互反応による岩盤の酸化還元緩衝能力が機能してきたと推測されている[12]。この酸化還元緩衝メカニズムとは、ウラン鉱床を胚胎する堆積岩の海成層由来あるいは堆積岩上部での酸化的風化によって供給される硫酸イオンと、ウラン鉱化帯付近に豊富に含まれている有機物(リグナイト)が、堆積岩に存在する硫酸還元菌を活性化させ、この硫酸還元反応によって生成した硫化物イオンが還元剤として作用し、結果的に還元環境の形成・維持に寄与しているというものである。リグナイトは難分解性有機物であるため硫酸還元菌がリグナイトを直接利用することは難しいと考えられるが、前章(3.2)で述べた室内試験の結果から、

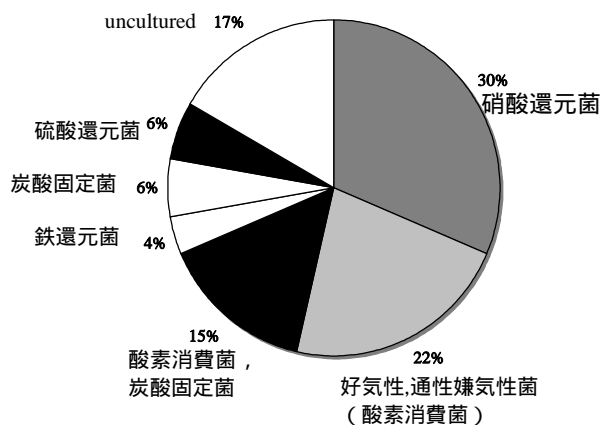


Fig. 5 The microbial composition in the groundwater sample collected from 79 m depth of the borehole MSB-2. More than half of the clones were related to the bacteria which could consume O_2 or reduce NO_3^- to NO_2^- .

ここでは硝酸還元菌や脱窒菌などのような他の従属栄養性微生物がリグナイトを分解することにより酢酸などの低分子有機酸が供給され, その結果硫酸還元菌の活性が高まるものと推察されている[19]. 実際, ウラン鉱床周辺の地下環境における微生物群集組成の解析結果からは硝酸還元菌, 鉄還元菌, 硫酸還元菌が主に存在することがわかっており, 前章の反応試験で得られた微生物群集組成と同様の組成が天然環境においても示されている[13](Fig. 5). したがって, ウラン鉱床周辺の地下環境における酸化還元緩衝能力は, 還元剤である硫化物の生成だけでなく, その生成を有機物供給の面から支える従属栄養性微生物の働きによって機能しているといえる. この一連の微生物代謝反応による酸化還元緩衝プロセスは最終反応が硫酸還元である. そのため, 緩衝能力の程度は硫酸還元菌の活性に左右されると推測されるが, 反応に関わる酸化剤(電子受容体)である硫酸イオンや還元剤(電子供与体)である有機物は, ウラン鉱床周辺の地下水環境が大きく変化しない限り数十年以上の長期にわたって継続的に供給されるとの見積もりがある[12]. したがって, ウラン鉱床を胚胎する堆積岩は, 還元環境を形成する反応プロセスとそれに必要な反応物質を踏まえた上で, 長期にわたって還元環境を維持する酸化還元緩衝能力を有していると推察されている.

上述の酸化還元緩衝メカニズムは周辺の地質・水理・化学・生物学的条件に伴い変化すると考えられるが, 地下の酸化還元状態の長期的な変化を予測するためには, これらの変動要因を考慮した「水-岩石(有機物)-微生物相互反応」システムによる酸化還元緩衝メカニズムを概念モデル化することが必要である. また, 地層処分時の長期的な安全性の評価には, 「水-岩石(有機物)-微生物相互反応」システムが処分場建設・閉鎖による環境変動や閉鎖後の地質環境変動にどの程度頑健性を有するかを示す手法を構築することも求められる. 例えば, 隆起・侵食は地下水流動系の

変化や地表付近の酸化帯の形成を引き起こす可能性があり, このような環境変化に伴って処分場周辺の酸化還元状態がどのような影響を受けるのかについて速度論も含めた予測が必要である. そのためには, 古水理地質学的研究により過去から現在までの地下水流動や化学的状態などの変化を解明し, 地質環境に残された過去の記録から将来起こりうる地質環境変動事象が「水-岩石(有機物)-微生物相互反応」システムに及ぼす影響を評価すること, また, 地質環境変動が起こった場合の環境状態として, 水理・地質・地球化学条件の異なる地層, 例えば酸化帯, 割れ目帯, 断層を含む地層における酸化還元緩衝メカニズムに関する情報の蓄積が求められる. このようなナチュラルアナログ研究とモデル解析結果とのクロスチェックによって, 地層処分に関わる長期的な安全性の信頼性をさらに高めることができると思われる.

今後の課題として, 次の項目が挙げられる.

- (1) 「水-岩石(有機物)-微生物相互反応」システムによる酸化還元緩衝メカニズムの概念モデル化
- (2) 地質環境変動事象に対する「水-岩石(有機物)-微生物相互反応」システムの頑健性の評価手法の確立

4 おわりに

本報告では, 微生物が酸化還元環境の形成・維持に及ぼす影響について, 原位置試験・室内試験結果およびウラン鉱床周辺における微生物を考慮した酸化還元緩衝メカニズムについて紹介した. これらの研究結果から, 微生物は酸化還元環境の形成に寄与する能力を有するが, その能力は微生物を取り巻く地下環境条件に左右されることを示した.

今後は, これらの成果を踏まえ, 3章で述べた課題に基づいて体系的なデータの取得を行い, 長期的な酸化還元緩衝能力に関わる微生物の影響に関する評価を進めていく予定である.

参考文献

- [1] Kamei, G., Ohmoto, H.: The kinetics of reactions between pyrite and O_2 -bearing water revealed from in situ monitoring of DO, Eh and pH in a closed system. *Geochim. Cosmochim. Acta* **64**, 2585-2601 (2000).
- [2] Stumm, W., Lee, G. F.: Oxygenation of ferrous iron. *Industr. Eng. Chem.* **53**, 143-146 (1961).
- [3] Millero, F. J.: The effect of ionic interactions on the oxidation of metals in natural waters. *Geochim. Cosmochim. Acta* **49**, 547-554 (1985).
- [4] Millero, F. J., Hubinger, S., Fernandez, M., Garnett, S.: Oxidation of H_2S in seawater as a function of temperature, pH and ionic strength. *Environ. Sci. Technol.* **21**, 439-443 (1987).
- [5] Millero, F. J., Sotolongo, S., Izaguirre, M.: The oxidation

- kinetics of Fe(II) in seawater. *Geochim. Cosmochim. Acta* **51**, 793-801 (1987).
- [6] 大本洋: 地層中における還元性物質の速度論的研究. サイクル機構技術資料 PNC TJ1601 96-002 (1996).
- [7] 大本洋: 地層中における還元性物質の速度論的研究 (II). サイクル機構技術資料 PNC TJ1601 97-003 (1997).
- [8] 大本洋, 林謙一郎: 地層中における還元性物質の速度論的研究 (III). サイクル機構技術資料 PNC TJ1601 98-001 (1998).
- [9] Whitman, W. B., Coleman, D. C., Wiebe, W. J.: Prokaryotes: The unseen majority. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **95**, 6578-6583 (1998).
- [10] Puigdomenech, I. et al.: O₂ depletion in granitic media. SKB TR 01-05, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co. (2001).
- [11] Trotignon, L., Michaud, V., Lartigue, J-E., Ambrosi, J-P., Eisenlohr, L., Griffault, L., Combarieu, M., Daumas, S.: Laboratory simulation of an oxidizing perturbation in a deep granite environment. *Geochim. Cosmochim. Acta* **66**, 2583-2601 (2002).
- [12] 岩月輝希, 村上由記, 長沼毅, 濱克宏: ウラン鉱床の長期保存に関わる岩盤の酸化還元緩衝能力-東濃地域における天然環境の水-鉱物-微生物システムの研究例-. *地球化学* **37**, 71-82 (2003).
- [13] Murakami, Y., Iwatsuki, T., Mandernack, K. W., Naganuma, T.: Vertical distributions of sulfate-reducing bacteria and their activity in groundwater of Tono uranium deposit. 10th International Symposium on microbial Ecology ISME-10, Cancun, Mexico, August 22-27, 2004, p. 349 (2004).
- [14] Murakami, Y., Fujita, Y., Naganuma, T., Iwatsuki, T.: Abundance and viability of groundwater microbial communities from a borehole in the Tono uranium deposit area, central Japan. *Microbes and Environments* **17**, 63-74 (2002).
- [15] Wersin, P., Spahiu, K., Bruno, J.: Time evolution of dissolved oxygen and redox conditions in a HLW repository. SKB TR 94-02, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co. (1994).
- [16] 核燃料サイクル開発機構: 高レベル放射性廃棄物の地層処分技術に関する知識基盤の構築-平成 17 年取りまとめ- 分冊 1 深地層の科学的研究-. JNC TN1400 2005-014 (2005).
- [17] 井岡聖一郎, 岩月輝希, 天野由記, 古江良治: 地下水の流動経路における原位置の酸化還元緩衝能力の評価-特に硫酸還元緩衝能力について-. *日本水文科学会誌* **37**, 2-8 (2007).
- [18] 古江良治, 岩月輝希, 濱克宏: 深層ボーリング孔を用いた地下水の地球化学調査の課題に対する試み. *応用地質* **46**, 232-236 (2005).
- [19] 天野由記: 深部地質環境における地下微生物の代謝活性およびその地球化学的役割. サイクル機構技術資料 JNC TN7004 2005-028 (2005).
- [20] 天野由記, 笹尾英嗣, 岩月輝希: 地下深部環境における酸化還元緩衝能力の評価(その 1)-地下微生物の酸化還元活性とそのメカニズムについて-. *日本地下水学会 2005 年秋季講演会*, 青森, 10 月 20 日~22 日, pp. 26-29 (2005).
- [21] 笹尾英嗣, 岩月輝希, 天野由記: 東濃ウラン鉱床でのナチュラルアナログ研究からみた古水理地質研究の役割. *資源地質* **56**, 125-132 (2006).
- [22] Todaka, N., Molinero, J., Murakami, Y., Iwatsuki, T.: Hydro-bio-geochemical modeling of batch experiments of the mizunami underground research laboratory in Japan. International Conference on WATER POLLUTION in natural POrous media at different scales: Assessment of fate, impact and indicators. WAPO2, (Candela et al. eds.), Barcelona, Spain, April 11-13, 2007, pp.725-730 (2007).
- [23] 宮坂郁, 栃木善克, 難波謙二: 放射性廃棄物地層処分における微生物影響の定量評価の試み. *石川島播磨技報* **47**, 32-37 (2007).
- [24] 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- 分冊 1 わが国の地質環境. JNC TN1400 99-021 (1999).

