

行政院原子能委員會  
委託研究計畫研究報告

高完整性混凝土處置容器之長期抗菌性研究(80-02)  
Investigation of the Anti-Microbial Effects on High Integrity  
Container for Storage Disposal of Radioactive Waste

計畫編號：107A017

受委託機關(構)：國立清華大學 原科中心

計畫主持人：周鳳英

聯絡電話：03-5742884

E-mail address：fichou@mx.nthu.edu.tw

協同主持人：溫曉薇

研究期程：中華民國 107 年 01 月至 107 年 12 月

研究經費：新臺幣 54.2 萬元

核研所聯絡人員：陳鈺沛

報告日期：107 年 11 月 23 日

## 目 錄

中文摘要 .....	1
ABSTRACT .....	3
壹、計畫緣起與目的 .....	5
一、 背景 .....	5
二、 目的 .....	7
貳、研究方法與過程 .....	9
一、 三株 SRB 測試菌株之國外採購及培養 .....	9
二、 於厭氧箱中製備含受測 SRB 之夯實膨潤土 .....	9
三、 夯實膨潤土 .....	10
四、 評估深層環境下 SRB 菌株存活及 $^{35}\text{S}^{2-}$ 之生成狀況 .....	12
五、 以液體閃爍計數 (Liquid scintillation counting) 分析 $^{35}\text{S}$ 活度 .....	13
六、 以濁度法分析 $\text{SO}_4^{2-}$ 之濃度 .....	13
七、 銅片上硫酸銅之分析 .....	14
參、主要發現與結論 .....	15
一、 微生物培養 .....	15
二、 製備含受測 SRB 之夯實膨潤土 .....	16
三、 評估模擬深層高壓環境下 SRB 菌株存活及 $^{35}\text{S}^{2-}$ 之生成狀況 ... .....	17
肆、參考文獻 .....	21

## 中文摘要

高完整性混凝土處置容器之長期抗菌性研究(80-02)

Investigation of the Anti-Microbial Effects on High Integrity Container  
for Storage Disposal of Radioactive Waste

(計畫編號：107A017)

周鳳英<sup>1</sup>、鍾曉萍<sup>1</sup>、王雅亭<sup>1</sup>、黃昱翔<sup>1</sup>

<sup>1</sup>國立清華大學原子科學技術發展中心

在用過核燃料之地質處置上，膨潤土具維持銅罐之完整性及隔離用過核燃料的重要功能。膨潤土可以阻礙放射性核種向外遷移及含有腐蝕性成分之地下水向內輸送，且可作為岩石移動的緩衝劑。硫酸鹽還原菌（SRB）存在膨潤土及其周圍的地下水中，可以經由還原硫酸鹽（ $\text{SO}_4^{2-}$ ）為硫化物（ $\text{S}^{2-}$ ）造成銅罐之腐蝕。

本研究為我國高放處置微生物學相關研究之起步，主要為依循瑞典模式（SKB R-15-05）建立一個系統以評估微生物對銅罐完整性之影響。三年的研究包括：培養 *Desulfovibrio aespoeensis* (DSM 10631)、*Desulfotomaculum nigrificans* (DSM 574)、*Desulfosporosinus orientis* (DSM 765) SRB 細菌並建立檢測方法、製備添加 SRB 之膨潤土（Wyoming MX-80），及其於膨潤土夯實後對銅片之長期腐蝕測試評估。本年度為第三年，延續前二年製備添加 SRB 之膨潤土，將之於核研所製備之模擬深層高壓容器中夯實，添加放射性硫及碳源，測

試深層環境下 SRB 菌株存活及  $^{35}\text{S}^{2-}$  之生成狀況，及硫化物於銅片材料上之分布狀況。目前結果顯示 SRB 菌株可於此高密度夯實的膨潤土中存活良好，未來相關之評估資料可提供建立用過核燃料最終處置場許可證申請之需，為長期的安全性評估之一部份。

關鍵字: 微生物、最終處置、膨潤土

## Abstract

In geodisposal of spent nuclear fuel, the bentonite barrier has an important function in maintaining the integrity of the copper canisters that isolate the spent fuel. The bentonite barrier the outward transport of radionuclides and the inward transport of corrosive groundwater components, while acting as a buffer against the movement of rock. Sulphate-reducing bacteria (SRB) that are present in the surrounding groundwater or reside naturally in the bentonite can induce corrosion of the canister by production of sulphide ( $S^{2-}$ ) by the reduction of sulphate ( $SO_4^{2-}$ ).

The project is a preliminary study that mainly follows the Swedish model (SKB R-15-05) in establishing a system for evaluating of the effects of microbes on the integrity of the aforementioned copper canisters. Three species of SRB, *Desulfovibrio aespoeensis* (DSM 10631), *Desulfotomaculum nigrificans* (DSM 574) and *Desulfosporosinus orientis* (DSM 765), and Wyoming MX-80 bentonite clay powder were used in the experiment. SRB was cultured and detected and SRB-bentonite clay slurries was prepared.

The results showed SRB can survive in high-density ( $2000 \text{ kg/m}^3$ ) and low-density ( $1750 \text{ kg/m}^3$ ) bentonite. The relevant evaluations are

part of the long-term safety assessment of an SR-Site in support of an application for a license to build a final repository for spent nuclear fuel.

Keywords: microbes, final repository, bentonite

## 壹、計畫緣起與目的

### 一、背景

高放射性廢棄物最終處置的基本要求是選擇適當的地底地質環境，將高放射性廢棄物永久安置，使其與人類生活圈隔離，以確保民眾安全及環境品質。國際原子能總署（IAEA）於 2001 年針對各國執行中之高放射性廢棄物最終處置計畫，建議採深層地質處置方式。深層地質處置法同時也是我國法令明訂之最終處置方式（高放射性廢棄物最終處置及其設施安全管理規則）。目前核能先進國家如美國、瑞典、瑞士、日本、法國、加拿大、比利時、德國、英國等最終處置計畫均採行此一方案，並積極地進行系統化的規劃與研究。深層地質處置是將用過核子燃料及高放射性廢棄物埋在深約 300 至 1000 公尺的穩定地質環境中（如花崗岩），再配合用過核子燃料廢棄物罐（如銅罐）、緩衝材（如夯實的膨潤土）與回填材料（如花崗岩骨材+水泥）等工程設施與包含處置母岩（如花崗岩）及地質圈障壁所組成的多重障壁，可以有效阻絕或遲滯放射性物質的外釋與遷移，以換取足夠的時間與阻隔（黃秉修，民國 103 年）。其中選用之膨潤土材料成份應不可具有對廢棄物罐有害之物質，在緩衝材料成份之需求上要求硫化物及有機碳成份需低於 1%wt（SKB, 2010<sup>a</sup>）。緩衝材料之膨潤土成份中，除蒙脫石為主要礦物組成外，另含有其他礦物，在處置場工程障壁緩衝材料選擇時，則

需考量膨潤土中的這些成份是否會對廢棄物罐造成不良影響，這些礦物作用對工程障壁功能的整體影響，係取決於地下水與緩衝材料之間的交互影響（SKB, 2010<sup>b</sup>）。處置環境中硫化物來源包含源自緩衝及回填材料中之硫化礦物之溶解，及緩衝及回填材料中微生物之硫酸鹽還原形成硫化物並將之溶於地下水中；一者來自岩層中之硫化礦物之溶解，或者來自地下水系統中微生物對硫酸鹽之還原（SKB, 2010<sup>c</sup>）。

硫酸鹽還原菌（sulfate reducing bacteria，SRB）為厭氧菌，廣泛存在許多厭氧環境中，是主要的金屬腐蝕微生物，尤其是對地下管路的腐蝕，造成經濟損失的影響。於厭氧情況下硫酸還原菌利用硫酸根離子（ $\text{SO}_4^{2-}$ ）當作電子接受者（electron acceptor），利用代謝過程電子的轉移作用，將元素硫或是硫酸根離子還原成硫離子（ $\text{S}^{2-}$ ）或硫化氫（ $\text{H}_2\text{S}$ ），並將硫離子及硫化氫釋放到環境中，硫化氫具強腐蝕性（Gibson, 1990）。微生物一般較能夠承受惡劣的環境，硫酸鹽還原菌於深地下水（至少 600 至 700 米）是很常見的，對於硫化物生產的潛力及可能產生的影響在安全性評估上是值得探討的（SKB, 2010<sup>b</sup>；Bengtsson et al., 2016；2017）。

研究指出硫酸鹽還原菌可於厭氧環境下存活並增加硫化物的生成（Pedersen et al., 2000；Masurat et al., 2010<sup>a</sup>；2010<sup>b</sup>；Marja-aho et al., 2018）。Hajj 等人於模擬高放射性廢棄物處置場之高壓環境



進行 SRB 對 P235GH 不銹鋼之腐蝕研究，結果顯示硫酸鹽還原菌能於高壓環境下生長並對 P235GH 不銹鋼造成腐蝕，其腐蝕速率為  $28.7 \pm 4.3 \mu\text{m}/\text{year}$ 。在廢棄物處置環境中如果有水及硫酸鹽還原菌之存在，可能造成鋼鐵貯存桶之加快腐蝕（Hajj et al., 2010）。Smart 等人之文獻報導瑞典 SKB 計畫，以銅-鐵貯存桶做為用過核燃料處置之貯存容器放置於深層地底處置場，周圍環繞著緩衝材料，評估貯存桶腐蝕速率。實驗結果顯示微生物之活動可能為加速銅、鐵腐蝕速率的原因（Smart et al., 2011）。

## 二、目的

核研所研製之高完整性容器（high integrity container, HIC）已由行政院原子能委員會放射性物料管理局核准使用作為「低放射性廢棄物混凝土盛裝容器」，具穩定性及耐久性。本研究已完成此放射性廢棄物處置高完整性容器之耐生物劣化研究，以 ASTM G21、G22 測試，及以 10 倍菌量的加速測試，顯示對 HIC 試體抗壓強度、重量變化均無顯著影響。現因應未來廢棄物處置可能採高低放共構處置方案，我國高放處置現階段參考處置概念採用瑞典 KBS-3 銅質外殼鑄鐵為內裡的廢棄物罐參考設計。微生物為接觸放射性廢棄物之第一線生物，硫化物為造成廢棄物罐腐蝕之重要因子，硫化物之生成可能為：緩衝與回填材料中微生物之硫酸鹽還原形成硫化物並將之溶於地下水中，或者來自地下水系統中微生物對硫酸鹽之還

原 (SKB, 2010<sup>c</sup>)，因此高放處置之安全評估需考量硫酸鹽還原菌可能造成廢棄物罐之腐蝕。

本研究為我國高放處置之微生物相關研究初起步，參考 Svensk Kärnbränslehantering AB 於 2015 提出之 R-15-05 報告「Microbial sulphide-producing activity in MX-80 bentonite at 1750 and 2000 kg m<sup>-3</sup> wet density」，探討硫酸鹽還原菌於高壓夯實緩衝材料中之存活狀況，提出三年期計畫。前面研究內容包括：SRB 菌株購買、建立 SRB 菌株之培養、計數等相關技術，建立添加 SRB 於膨潤土的製備流程，建立 SRB 菌株存活率之評估技術。製備添加 SRB 之膨潤土並夯實，將之置入核研所製備之模擬深層高壓容器中探討隨著時間增加過程中菌株存活率、遷移及 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>代謝生成 S<sup>2-</sup>之變化。本年度為第三年，研究內容包括：依 SKB 之 Report R-15-05 文獻中的條件，延續前二年製備添加 SRB 之膨潤土，將之於核研所製備之模擬深層高壓容器中夯實，添加放射性硫及碳源，測試深層環境下 SRB 菌株存活及 <sup>35</sup>S<sup>2-</sup>之生成狀況，及硫化物於銅片材料上之分布狀況，提供腐蝕效應評估所需之數據。

## 貳、研究方法與過程

### 一、三株 SRB 測試菌株之國外採購及培養

實驗中使用三種不同的 SRB，分別為 *Desulfovibrio aespoensis* (ATCC 700646/ DSM 10631)、*Desulfotomaculum nigrificans* (ATCC 19998/ DSM 574) 及 *Desulfosporosinus orientis* (ATCC 19365/ DSM 765) (SKB, 2015)。經由食品工業研究所向國外 German collection of microorganisms and cell cultures (DSMZ) 採購。培養用培養基係依其標準方式於厭氧環境下配製 (Widdel and Bak, 1992)，菌株皆需於厭氧環境下培養。

### 二、於厭氧箱中製備含受測 SRB 之夯實膨潤土

選用美國 Wyoming 州開採的 MX-80 膨潤土，屬於鈉型膨潤土。成分為 SiO<sub>2</sub>: 55~64%，Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>: 18~21%，Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>: 2.5~2.8%，CaO: 0.1~1.0%，Na<sub>2</sub>O: 2.5~2.7%，MgO: 2.5~6.2%，K<sub>2</sub>O: 0.2~0.4%。瑞典採用此型膨潤土做為其放射性廢棄物處置場之緩衝材料。

於厭氧箱操作（由 97% N<sub>2</sub> 和 3% H<sub>2</sub> 的氣體配比），取 60 g 膨潤土粉末於清大原科中心鈷六十照射廠，照射滅菌後，將之分散在 1110 mL 的無菌厭氧水中，再分別加入三種 SRB 細菌各 30 mL 之菌液，並與膨潤土均勻混合。膨潤土粘土漿狀物置於厭氧箱內大型玻璃培養皿中乾燥，靜置待以上粘土完全乾燥。之後以無菌勺將乾燥的粘土刮下，然後小心地研磨成細粉。再取 540 g 膨潤土與研磨

粘土混合，即可得一批 600 g 膨潤土 ( $5 \times 10^6$  SRB/gdw)。另外取 300 g 的膨潤土粉末，以輻射照射使膨潤土達完全滅菌，做為對照組用。

評估混入 SRB 膨潤土製備後之菌株存活率，係以 MPN (most probable number) 分析法進行。係於厭氧箱中取 1 g 的膨潤土樣品放入試管中，加入 40 mL 無菌厭氧之 0.9% NaCl 溶液，移至震盪儀上震盪分散膨潤土 (~2 小時)，之後將上述樣品分別進行 10 倍、100 倍及 1000 倍稀釋，再接種於 5 管的 9 mL 厭氧 SRB 培養基中 (Masurat et al., 2010)。MPN 試管於厭氧箱中 30°C 下培養 4 週後，觀察其硫化物產生及顏色變化評估之(如圖 1 所示，依其結果再查表可得其菌數)。

### 三、 夯實膨潤土

以萬能試驗機夯實膨潤土，對滅菌之對照組及添加 SRB 膨潤土分別夯實兩種不同的粘土濕密度 ( $1,750 \text{ kg/m}^3$ 、 $2,000 \text{ kg/m}^3$ )，含 SRB 之土樣夯實後保存於添加厭氧包之小型厭氧箱中 (Anaeropack. Anaero, MGC, Inc.)。

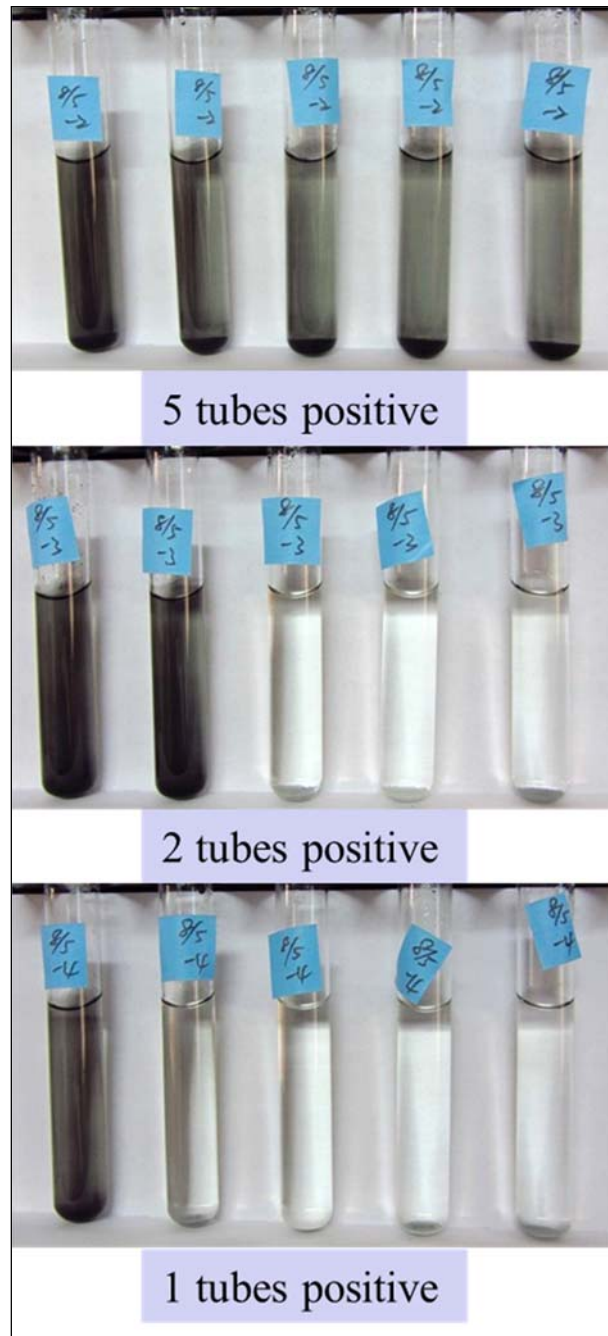


圖 1、MPN 分析中三種稀釋度的三組試管經培養 4 週後，以硫化物之產生與顏色變化，評估菌株生長結果，可見三組中分別有 5/5、2/5 及 1/5 為長菌之正反應。

#### 四、 評估深層環境下 SRB 菌株存活及 $^{35}\text{S}^{2-}$ 之生成狀況

含 SRB 菌株之膨潤土夯實後，置入核研所建立之模擬深層緩衝材料測試系統，並添加含  $^{35}\text{SO}_4^{2-}$  溶液，評估深層環境下 SRB 菌株存活及  $^{35}\text{S}^{2-}$  之生成狀況。測試用之銅圓片以 99% 乙醇於超音波中清洗 5 分鐘，然後用無菌分析級純水 (AGW) 漂洗。之後將銅片置於含有 250 mL 0.5 M sulfamic acid (氨基磺酸,  $\text{H}_2\text{NSO}_3\text{H}$ ) 的燒杯中處理 24 小時，此係依據銅的化學清洗程序「ISO 8407:2009-Corrosion of metals and alloys - Removal of corrosion products from corrosion test specimens」之步驟，依次於玻璃燒杯中以 400 mL 無菌、pH7、脫氧之 AGW 洗滌 4 次 (ISO 8407, 2009)。

參考之 SKB R-15-05 實驗方法顯示其測試系統分為二階段進行：前期將膨潤土維持於含水飽和的狀態，至穩定後，第二階段置入測試銅片並添加放射性硫-35，評估菌於緩衝材料存活率及腐蝕的影響。因此，進行第二階段之銅片安裝方式係參考 SKB R-15-05 實驗方法 2.6。測試容器由水飽和系統和底蓋與鈦濾膜分開，連同頂蓋與力傳導器被拆除，銅片取代原本鈦濾膜在膨潤土的空腔，更換為沒有孔的底蓋。擰開容器中間之通風塞，以便能夠除去活塞。所添加之放射性  $^{35}\text{SO}_4^{2-}$  (比活度：1050-1600 Ci (38.8-59.2 TBq) /mmol，硫酸鈉於 1 mL 水) 以滴管均勻加入膨潤土土樣表面的四個點，最終體積為 50  $\mu\text{L}$ ，之後重新組裝測試系統。

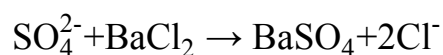
上述各測試系統裝入銅片後再經不同時間（SKBR-15-05 實驗方法為第 47，77 和 123 天）進行取樣，取樣時先停止力傳導器之記錄，小心移除力傳導器及測試系統之頂蓋和螺釘。仔細推出活塞到底。移到通風櫥將底板小心除去，將銅片及膨潤土塊取出進行分析膨潤土中不同深度部位之菌株存活率、 $^{35}\text{SO}_4^{2-}$ 及  $^{35}\text{S}$  含量。

五、以液體閃爍計數（Liquid scintillation counting）分析  $^{35}\text{S}$  活度

在通風櫃中對膨潤土取樣之試管中加入 40 mL 無菌的 10%  $\text{CaCl}_2$  溶液。將此試管放置約一周使膨潤土顆粒沈澱。然後取出 100  $\mu\text{L}$  的上清液加到含有 9.9 mL 高離子閃爍試劑（high-ionic scintillation cocktail）之 24 mL 閃爍計數瓶。以液體閃爍計數儀計數 1 分鐘。閃爍器的測量效率是以 100  $\mu\text{L}$   $^{35}\text{SO}_4^{2-}$  分析之（SKB，2015）。

六、以濁度法分析  $\text{SO}_4^{2-}$  之濃度

硫酸鹽離子含量測定使用方法為濁度法（Method. 4500- $\text{SO}_4$  E Turbidimetric method, APHA, 1992），將含硫酸鹽水樣加入緩衝溶液之後再加入氯化鋇，使之生成硫酸鋇沈澱，反應式如下：



取 100 mL 或是適量稀釋至 100 mL 水樣，放入 250 mL 的錐形瓶中，加入 20 mL 的緩衝溶液以磁石攪拌之，在攪拌同時加入一勺磨細後之氯化鋇粉末，立即開始計時在定速下攪拌  $60 \pm 2$  秒。在攪拌結束後，將溶液到入分光光度計用比色槽中，立即測定其於 420 nm 之

吸光值，再由無水硫酸鈉 ( $\text{Na}_2\text{SO}_4$ ) 配製之檢量線求得樣品濃度。

以不加氯化鋇者為空白樣品。

$$\text{硫酸鹽濃度}(\text{mg SO}_4^{2-}/\text{L}) = \frac{\text{檢量線求得SO}_4^{2-}\text{含量}(\text{mg})}{\text{水樣體積}(\text{ml})} \times 1000$$

### 七、銅片上硫酸銅之分析

上述測試後之銅片以無菌之鑷子取出，放入無菌培養皿中並移至手套箱內，以 AGW 溶液將銅片完全浸泡過夜，隔日反覆以 AGW 洗滌五次去除銅片上之膨潤土及硫酸根離子，移除溶液後靜置風乾。

銅片上之  $\text{Cu}_x^{35}\text{S}$  活度分析係以影像數位板 BAS-III<sub>s</sub> (Imaging plate (IP), Fuji Film Co.) 分析之，其影像紀錄材料為  $\text{BaFBr:Eu}^{2+}$ ，IP 型號為 FLA-3000, 50  $\mu\text{m}$  畫數，尺寸為 20 cm x 40 cm。待測樣品在經過上個階段的實驗後便產生活度，具有放射性，亦即可以對影像數位板進行曝露的動作。影像數位板受到樣品的曝露後，板上所接受到的二維劑量分佈便被儲存記錄下來。經由讀取機的掃描後，可得到一個數位化的劑量分佈初始影像 (\*.img)，接著利用富士公司的影像分析軟體 Image Gauge，對此初始影像進行匯入、讀取、處理、與匯出。藉由這些匯出的結果，再配合 Matlab 軟體對所獲得的數據結果作進一步的分析。



## 參、主要發現與結論

### 一、微生物培養

三株 SRB 菌株分別為: *Desulfovibrio aespoeensis* (DSM 10631) 是以”DSMZ 193. DESULFOBACTER MEDIUM”之標準方式配製其厭氧培養液，以 30°C 培養之。而 *Desulfotomaculum nigrificans* (DSM 574)及 *Desulfosporosinus orientis* (DSM 765)則以 “DSMZ 63. DESULFOVIBRIO (POSTGATE) MEDIUM”之標準方式配製其厭氧培養液，分別以 55°C 及 30°C 培養之。配置方法如第一年報告中所述。圖 2 所示為此厭氧培養液配製過程，其所有步驟均需於充氮氣狀態下進行，液體最後分裝至含墊片蓋可密封的試管 (Hungate tube) 或密封瓶中。

接菌時針筒須維持無菌與厭氧，針筒需於氮氣下抽放 30 次，於氮氣下開啟菌株之保存管，並迅速轉移至上述配製培養液之密封試管或密封瓶中。厭氧操作下將菌株分別培養至培養液中，經 3 天培養後可見菌其培養液有黑色沈澱物或混濁的狀況，此為厭氧情況下硫酸還原菌將硫酸根離子 ( $\text{SO}_4^{2-}$ ) 當作電子接受者 (electron acceptor)，利用代謝過程電子的轉移作用，將元素硫或是硫酸根離子還原成硫離子 ( $\text{S}^{2-}$ ) 而產生黑色之沉澱，可做為接種菌株是否存活之判別，亦為 MPN 法中陽性反應之現象。培養於密封瓶中的菌株生長後，因其密封性佳，於 25°C 下可保存 6 個月。

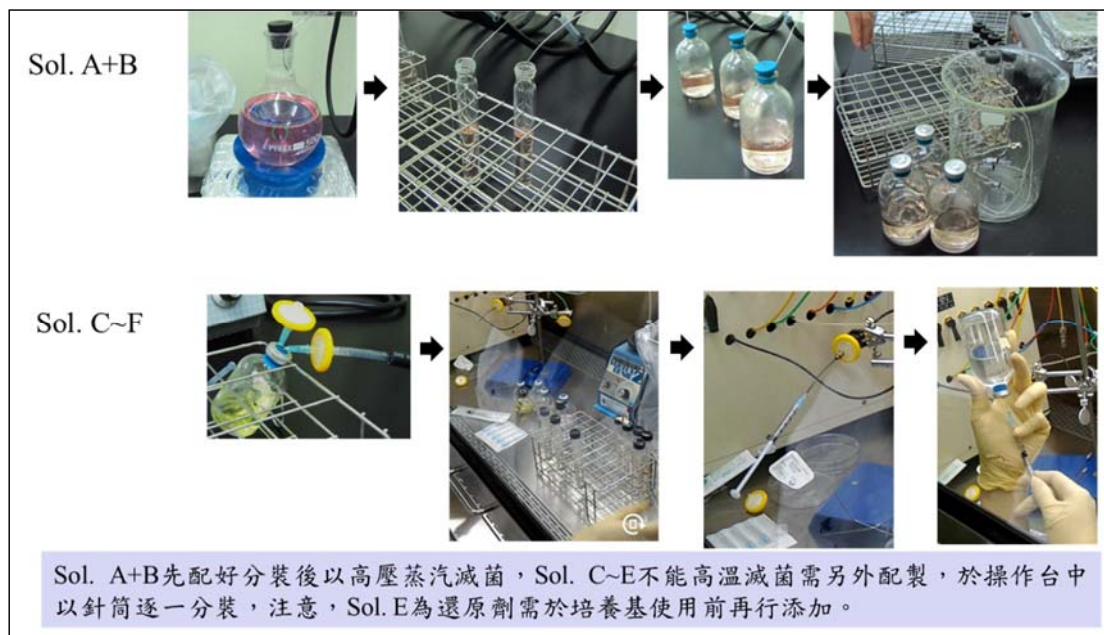


圖 2、DSMZ 193. DESULFOBACTER MEDIUM 配製過程，培養液係以 A~F 六種溶液配製而成。

## 二、製備含受測 SRB 之夯實膨潤土

將 60 g 經加馬輻射滅菌後之膨潤土、高溫高壓滅菌之無菌水 1110 mL 及養菌之密封瓶均移至於厭氧手套箱中，厭氧手套箱使用氣體為 97% 氮氣及 3% 氫氣的混合氣體，並控制環境中氧含量需低於 900 ppm。如圖 3 所示，將無菌水及膨潤土於無菌培養皿中混合，再以針頭分別吸取上述三種菌液各 30 mL 加入培養皿中，靜置待其乾燥。每週更換厭氧手套箱中吸附水氣之乾燥劑以加速乾燥，經 30 至 40 天靜置後可見膨潤土呈現乾燥狀。於厭氧手套箱中將乾燥之膨潤土分批倒至研鉢中，以研杵與研鉢將膨潤土研磨至細粉後待用。

於厭氧手套箱中取上述研磨後之 SRB 膨潤土再加入十倍重量不含菌之膨潤土混合，置於厭氧箱中保存，每個月取適量土樣，以 MPN 分析其中之菌含量，結果顯示經六個月的保存後其土樣中的菌量仍可大於  $10^6$  MPN/g，其中以 *Desulfotomaculum nigrificans* 菌為主，另二菌株對環境敏感，隨處理時間增加菌存活數明顯下降。分析 SRB 菌株於膨潤土夯實前後之存活狀況，結果亦顯示此菌株能存活且其菌數量無明顯變化。

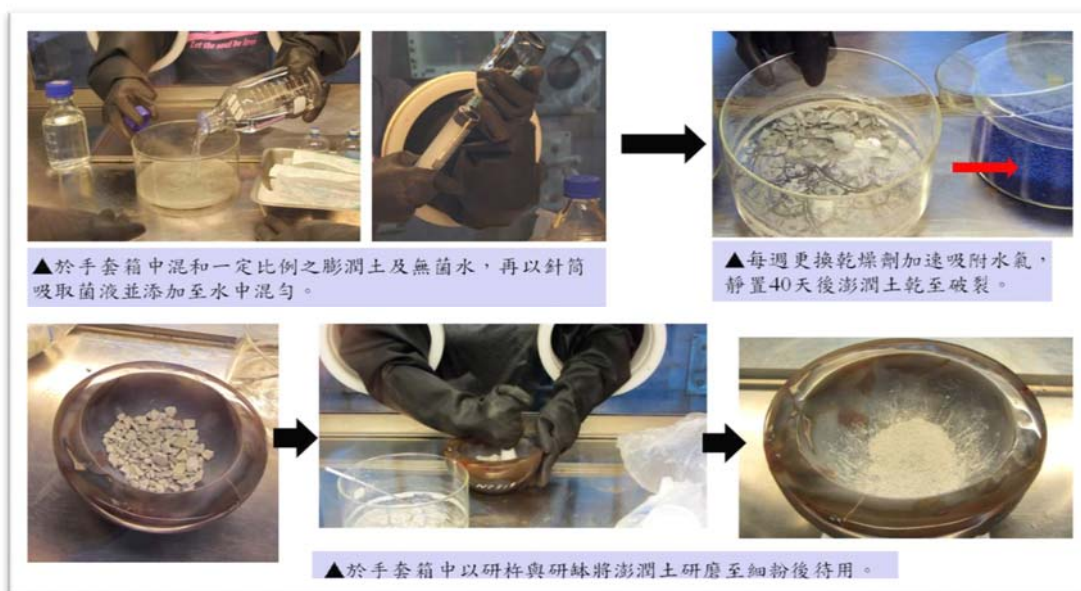


圖 3、於厭氧手套箱中製備含受測 SRB 之膨潤土的流程及成品。

### 三、 評估模擬深層高壓環境下 SRB 菌株存活及 $^{35}\text{S}^{2-}$ 之生成狀況

核研所製備之模擬高壓容器先經充氮氣及進水的測試確認功能正常後，依研究方法四所述第一階段先將上述夯實後之膨潤土置入此模擬高壓的測試容器中，放入力傳導器之記錄及測試系統之頂

蓋，維持水平鎖上螺釘以調整頂蓋位置高度（夯實膨潤土之厚度 2 公分），反覆灌入氮氣與抽去空氣進行置換，開啟進水端注入水飽和試劑（SKB, 2015）並開始記錄其壓力變化值(如圖 4 所示)。

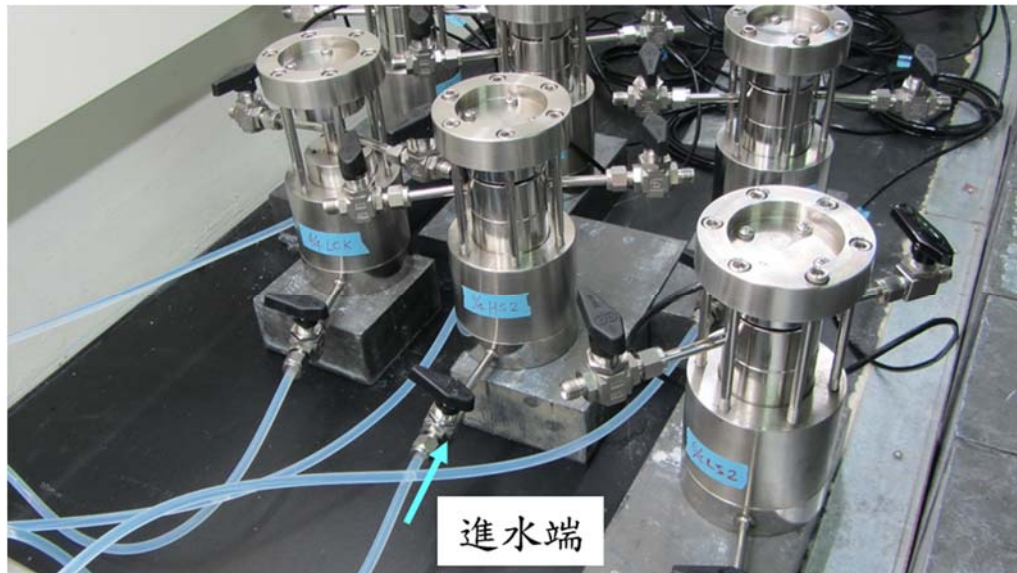


圖 4、將膨潤土置入高壓模擬之測試容器中，接上水飽和試劑待膨潤土飽和。

於測試 58 天至膨潤土水飽和後，下一階段之測試將於系統中放入銅片並添加  $^{35}\text{SO}_4^{2-}$  溶液於 SRB 膨潤土上，經 80 天後取出膨潤土與銅片，其中土樣取出立即放入無菌容器中，如圖 5 中將土樣以 1 cm 圓柱條狀方式取出，再以每 0.5 cm 分層切片土樣，以上取樣步驟均於吹氮氣下進行之。上述各土樣分別分析膨潤土中不同深度部位之菌株存活率、 $\text{SO}_4^{2-}$  及  $^{35}\text{S}$  含量，結果如表一所示。SRB 菌株存活量係以 MPN 分析之，表一中可見膨潤土之不同夯實密度及不

同深度的土樣中菌株皆有存活，菌數均高於  $10^6$  MPN/L，且不同夯實密度間之菌數無顯著差異。

土樣中硫酸鹽含量結果可見高密度者其含量隨不同深度而有變化，其最頂端土樣之濃度為  $0.111 \pm 0.003$  mg/g DW，而最靠近銅片之底端土樣的濃度為  $0.051 \pm 0.002$  mg/g DW。而低密度者其各深度土樣的硫酸鹽濃度為  $0.069 \pm 0.003 \sim 0.074 \pm 0.004$  mg/g DW，顯示不同深度間之硫酸鹽含量無明顯差異。高密度夯實的土樣硫酸鹽濃度隨深度不同而變化，推測與模擬高壓系統中飽和水由下端進入後水慢慢往上層土樣滲透的路徑有關，而低密度夯實的土樣因密度稍低其硫酸鹽濃度較容易達到上下平衡。此部分仍須待更長時間取樣的結果以進行確認。

不同處理土樣分析其  $^{35}\text{S}$  活度的結果如表一可見，二種密度夯實的膨潤土都是以最上層土樣測得之活度最高，由不同深度的  $^{35}\text{S}$  活度分布顯示高密度之土樣其射源添加後往下擴散的量可能較少或速度較慢，而低密度之土樣其擴散較高密度者均勻。

本試驗結果可知測試之厭氧菌於此高壓的夯實膨潤土中能存活超過 130 餘天，硫酸鹽濃度及活度因夯實密度不同而有不同趨勢。銅片上硫酸銅活度分析係以影像數位板分析之，試驗中 80 天收得之銅片上經 72 小時的曝光未測得放射性活度，此部分仍待更長時間的取樣點。研究中尚有更長天數之處理將於 12 月取樣分析，



較完整的探討須待後續實驗一併評估。

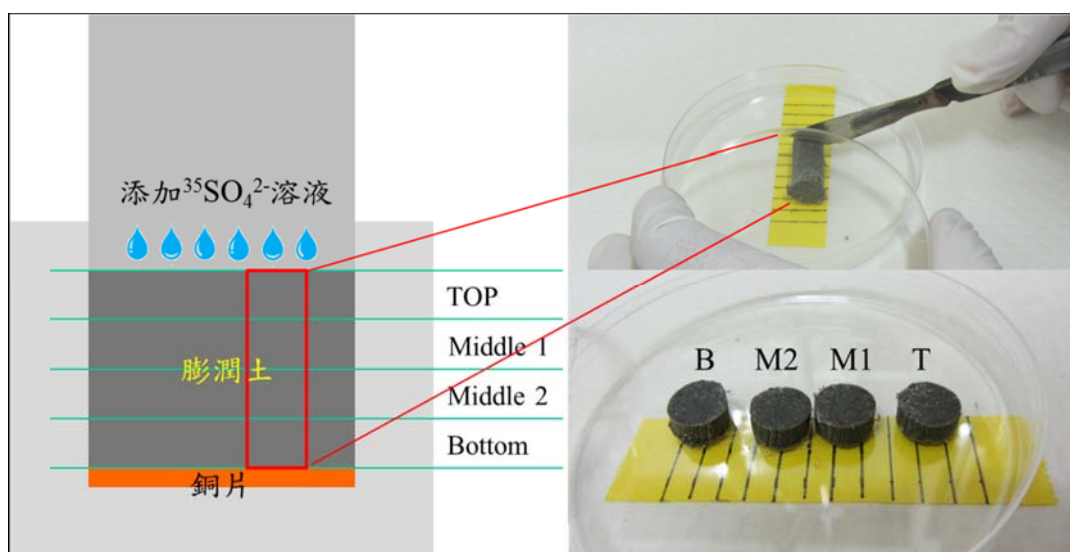


圖 5、測試後之膨潤土取出後分層取樣的狀況，T、M1、M2、B 代表由上而下不同深度之取樣位置。

表 1、添加 SRB 菌株之不同夯實密度膨潤土其各深度取樣，分析其存活菌數(MPN 法)、硫酸鹽含量及  $^{35}\text{S}$  活度的結果

Treatment		Top	Middle 1	Middle 2	Bottom
MPN (MPN $10^6$ /L)	SRB-H	14.0~21.6	6.8~14.0	6.8~14.0	6.8~14.0
	SRB-L	6.8~9.6	14.0~21.6	6.8~14.0	6.8~14.0
SO <sub>4</sub> 含量 (mg/g DW)	SRB-H	0.111±0.003	0.093±0.003	0.090±0.002	0.051±0.002
	SRB-L	0.072±0.002	0.069±0.003	0.071±0.001	0.074±0.004
S-35 活度 (Bq/ g DW)	SRB-H	573.37±98.56	313.14±90.04	258.93±34.97	299.25±54.87
	SRB-L	539.62±7.65	385.26±16.38	433.10±27.43	468.18±5.28

SRB-H 為 2000 kg/m<sup>3</sup> 高密度夯實的膨潤土； SRB-L 為 1500 kg/m<sup>3</sup> 低密度夯實的膨潤土

#### 肆、参考文献

1. APHA 1992. 4500-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> E. Turbidimetric Method , Standard Methods for the Examination of Water and Wastewater. 18th edition, APHA, AWWA, WEF, Washington, DC.
2. Bengtsson A, Pedersen K 2016. Microbial sulphate-reducing activity over load pressure and density in water saturated Boom Clay. Applied Clay Science, 132-133:542-551.
3. Bengtsson A, Pedersen K 2017. Microbial sulphide-producing activity in water saturated Wyoming MX-80, Asha and Calcigel bentonites at wet densities from 1500 to 2000 kg m<sup>-3</sup>. Applied Clay Science, 137:203-212.
4. Gibson GR 1990. Physiology and ecology of the sulfate-reducing bacteria. Journal of applied bacteriology, 69(6):769-797.
5. Hajj HE, Abdelouas A, Grambow B, Martin C, Dion M 2010. Microbial corrosion of P235GH steel under geological conditions. Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C 35:248-253.
6. ISO 8407 2009. Corrosion of Metals and Alloys-Removal of Corrosion Products from Corrosion Test Specimens.
7. Masurat P, Eriksson S, Pedersen K 2010. Microbial sulphide production in compacted Wyoming bentonite MX-80 under in situ

- conditions relevant to a repository for high-level radioactive waste, *Applied Clay Science*, 47:58-64.
8. Masurat P, Eriksson S, Pedersena K 2010<sup>a</sup>. Evidence of indigenous sulphate-reducing bacteria in commercial Wyoming bentonite MX-80. *Applied Clay Science*, 47(1-2):51-57.
  9. Masurat, P, Eriksson, S, Pedersen, K 2010<sup>b</sup>. Microbial sulphide production in compacted Wyoming bentonite MX-80 under in situ conditions relevant to a repository for high-level radioactive waste. *Applied Clay Science*, 47(1):58-64.
  10. Marja-aho M, Rajala P, Huttunen-Saarivirta E, Legat A, Kranjc A, Kosec T, Carpen L 2018. Copper corrosion monitoring by electrical resistance probes in anoxic groundwater environment in the presence and absence of sulfate reducing bacteria. *Sensors and actuators a-physical*, 274:252-261.
  11. Pedersen K, Motamedi M, Karnland O, Sandén T 2000. Mixing and sulphate-reducing activity of bacteria in swelling compacted bentonite clay under high-level radioactive waste repository conditions. *Journal of Applied Microbiology*, 89:1038-1047.
  12. SKB 2010<sup>a</sup>. Design, production and initial state of the buffer, SKB Technical Report, TR-10-15, Swedish Nuclear Fuel and Waste



Management Co.

13. SKB 2010<sup>b</sup>. Buffer, backfill and closure process report for the safety assessment SR-Site, SKB Technical Report, TR-10-47, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co.
14. SKB 2010<sup>c</sup>. Corrosion calculations report for the safety assessment SR-Siter, SKB Technical Report, TR-10-66, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co.
15. SKB 2015. Microbial sulphide-producing activity in MX-80 bentonite at 1750 and 2000 kg m<sup>-3</sup> wet density, SKB Technical Report, R-15-05, Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co.
16. Smart N, Rance A, Reddy B, Lydmark S, Pedersen K, Lilja C 2011. Further studies of in situ corrosion testing of miniature copper-cast iron nuclear waste canisters. *Corrosion Engineering, Science and Technology*, 46:142-147.
17. Widdel F, Bak F 1992. Gram-negative, mesophilic sulphate-reducing bacteria. In Balows A, Trüper HG, Dworkin M, Harder W, Schleifer KZ (eds). *The prokaryotes*. Vol 4. New York: Springer, 3352-3378.
18. 黃秉修，用過核子燃料後端處理技術概述，台電核能月刊第 384 期，民國 103 年 12 月，第 10-25 頁。