

# 放射性廃棄物地層処分場候補地における新調査技術 地質環境測定用マイクロ化学プローブの開発

Development of New Investigation Technology for Geological Disposal Siting Step

吉田 拓真 Takuma Yoshida  
笹平 朗 Akira Sasahira

野下 健司 Kenji Noshita

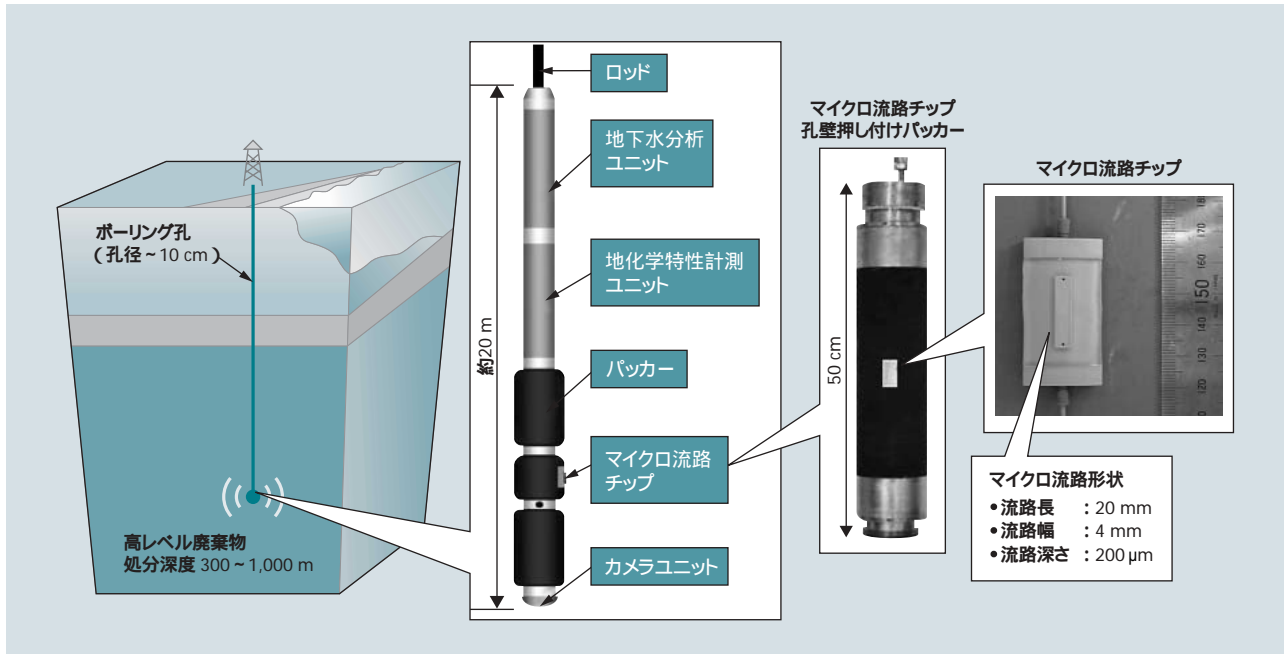


図1 マイクロ化学プローブを用いた地質環境測定システムの概要

日立製作所独自のマイクロ流路を用いた固液界面反応評価技術によって地層の分配係数や拡散係数などの地化学特性を計測するシステムの概要を示す。マイクロ化学プローブをボーリング孔内部に挿入することで、地下環境での「その場」測定することをめざしている。

## 1.はじめに

わが国では使用済燃料を再処理してリサイクルする原子燃料サイクルの確立が、長期的なエネルギー資源確保の観点から重要である。また、近年、地球温暖化、ウラン資源などの観点からも原子燃料サイクルの有用性が改めて見直されている。

現在計画されている核燃料サイクルの運用では、使用済燃料中に発生する核分裂生成物 (FP:Fission Products) は、再処理により高レベル放射性廃棄物として分離され、ガラス固化体として地層処分されることになる。

わが国における高レベル放射性廃棄物処分場のサイト候補地は、原子力発電環境整備機構 (NUMO:Nuclear Waste Management Organization of Japan) によって公募された後、文献調査、地表からの調査、地下での調査が行われ、処分場としての適性を段階的に評価される。具体的なサイトはまだ決定していないが、候補地の文献調査開始から4～5年後に

ボーリングによる概要調査の後、地下施設を用いた精密調査を経て、処分場建設地が選定される。

このうち、地表からのボーリング孔を用いる調査では、岩盤の透水係数などの水理特性は計測できるものの、地層中の放射性核種の移行挙動を支配する分配係数などの地化学特性を計測できる技術はないことから、これまでは地下環境を模擬した地上の試験設備で計測が行われてきた。

ここでは、分配係数などの地化学特性をボーリング孔内の深部地下雰囲気ですべて直接測定することを目的とするマイクロ化学プローブの開発状況について述べる(図1参照)。

## 2.マイクロ化学プローブ

地層処分された放射性廃棄物から溶出する放射性核種は、長期的には地下水に混入して移動していくが、この過程で地下水と接した岩盤において吸脱着を繰り返しながら移動

わが国における高レベル放射性廃棄物処分場のサイト候補地は、原子力発電環境整備機構 (NUMO) によって公募された後、文献調査、地表や地下での調査が行われ、処分場としての適性を段階的に評価される。地表からの調査では、サイトの特性を把握するために、主にボーリング孔を用いる調査が行われる。これまで、地層中の放射性核種の移行挙動を支配する分配係数などの地化学特性を計測できる技術はなく、地下環境を模擬した地上の試験設備で計測が行われてきた。このため、ボーリング孔内の深部地下雰囲気ですべて直接測定することを目的とするマイクロ化学プローブの開発が進められている。

する。このため、放射性核種の移動速度は地下水の移動速度に比べ、きわめて遅くなり、生物圏に現れるまでに放射能が減衰することが期待される。この移動の遅れを評価するためには、岩盤の透水係数などの水理特性に加え、岩に対する放射性核種の吸着の程度を表す係数である分配係数を計測する必要がある。

実際の地層における分配係数は、従来はボーリング時に採取した岩盤試料を用いて、地下環境を模擬することのできる地上の試験設備において取得されている。

日立製作所では、分配係数データの信頼性を飛躍的に向上させるため、経済産業省「革新的実用原子力技術開発費補助事業」への採択を受け、分配係数をボーリング孔内の深部地下雰囲気ですべて直接測定することを可能とするマイクロ化学プローブの開発を、平成16年度から、東海大学、東京大学、東京電力株式会社、東電設計株式会社、株式会社ダイヤコンサルタント、日揮株式会社と共同で行っている。

マイクロ化学プローブは地化学特性計測ユニット、および地下水分析ユニットの二つのユニットから構成されている。それぞれのユニットの特徴は次のとおりである。

### (1) 地化学特性計測ユニット

地化学特性計測ユニットは、日立製作所独自のマイクロ流路を用いて分配係数と拡散係数を測定する。マイクロ流路の測定原理については後述する。

### (2) 地下水分析ユニット

地下水中の鉄イオン ( $Fe^{2+}$ )、硫化物イオン ( $S^{2-}$ ) は地下の化学環境を支配する重要な成分であり、地化学特性にも大きな影響を及ぼす。しかし、これらのイオンは地上の大気中では不安定なため、地下環境で測定する必要がある。このため、このプローブには地化学特性をどのような地下環境で取得したかを明らかにするための、鉄イオン、硫化物イオンの「その場」分析するユニットを実装する。

以下に、これら各ユニットの開発状況について述べる。

## 3. マイクロ化学プローブの開発状況

### 3.1 地化学特性計測ユニット

#### (1) マイクロ流路による地化学特性計測手法

従来、拡散係数は図2(a)に示すように薄い岩試料をトレーサ核種が通過する時間から測定していた。また、分配係数は

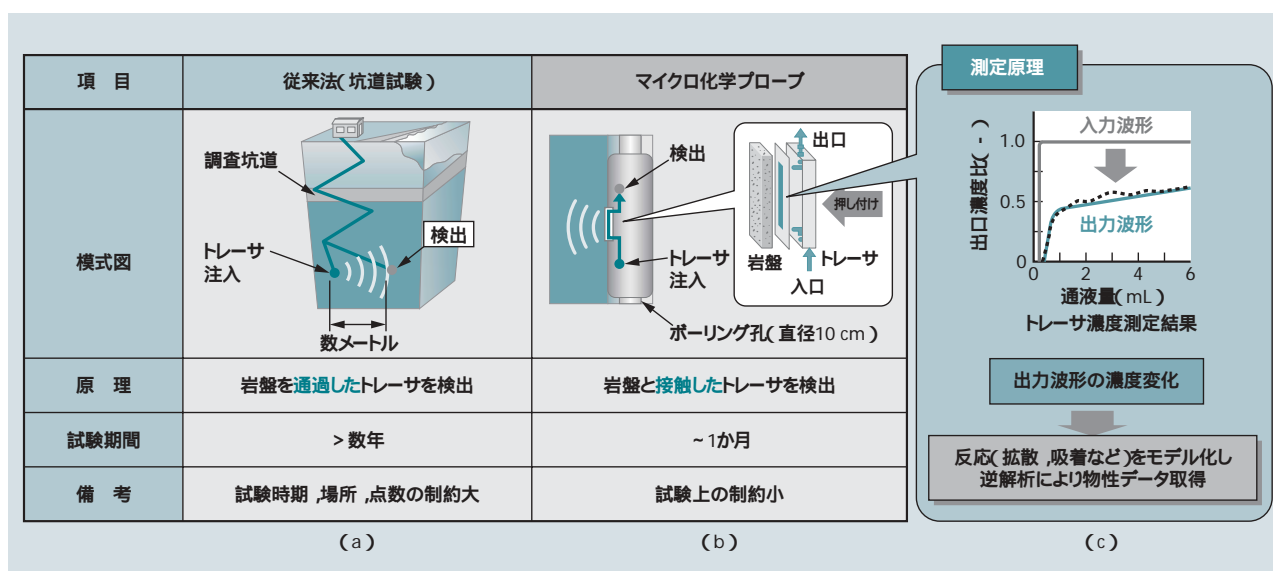


図2 マイクロ流路による地化学特性計測手法の概要

地化学特性計測における従来法による測定(a)と、マイクロ化学プローブ(b)、およびマイクロモックアップの例(c)をそれぞれ示す。

図2(b)に示すように、岩試料を破碎し、岩内部の粒子表面を露出させ、吸着量から分配係数を測定していた。

日立製作所では近年、マイクロリアクタの基本原理を応用し、分配係数と拡散係数を高速でかつ同時に測定することが可能な岩石特性分析手法(マイクロモックアップ法)を開発した<sup>1)</sup>。

マイクロモックアップの一例を図2(c)に示す。岩盤切り出しサンプルの表面に厚み100 μm程度の流路を形成し、トレーサ溶液を通し、出口におけるトレーサ濃度の経時変化を測定することにより、応答曲線を求める。この応答曲線を解析することで岩盤の遅延係数とマトリクス拡散係数を評価することができる。測定に要する時間は従来の手法に比べ、きわめて短時間であるにもかかわらず、これまで直接測定が困難とされてきた亀裂面での収着遅延とマトリクス拡散を同一の非破碎試料で評価できるメリットが見出されている<sup>1)</sup>。

### (2) 孔内定置ユニットの開発

ボーリング孔内での測定では、マイクロモックアップの流路部分(マイクロ流路)をある曲率を持つボーリング孔壁に押し付ける機構が必要となる。日立製作所は、ダイヤモンドコンサルタントと共同で、水圧によって膨張するゴム製の膜を利用して流路チップを孔壁に押し付ける方式を考案した。この方式により、実際にボーリング孔を設けた花こう岩ブロックを対象に核種通液試験を実施した。試験体系を図3に示す。

核種にはH-3とSr-85を用い、それぞれ約500 Bq/mL、1,000 Bq/mLの溶液を用いた。流路チップの形状は深さ200 μm、流路長2 cm、流路幅4 mmのものを用いた。また、同様の試験を岩ブロックではなく、平板形状の岩サンプルに対しても実施し、データとの比較を行った。その結果、H-3、Sr-85ともほぼ同一の応答曲線が得られることを確認した。また、数値解析を行い、H-3の応答曲線から実効拡散係数Deを評価したところ、いずれも $1 \times 10^{-11}$  (m<sup>2</sup>/s)の値を得て、Sr-85の結果からも分配係数Kd= $1 \times 10^2$  (mL/g)の値を得た。これにより、実際

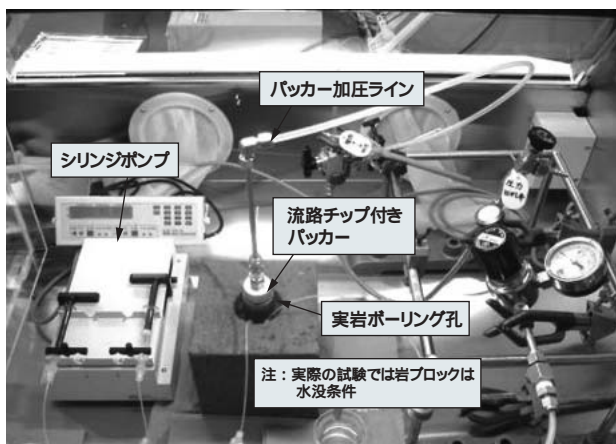


図3 ボーリング孔核種通液試験体系  
実際にボーリング孔を設けた花こう岩ブロックを対象に核種通液試験を実施した。

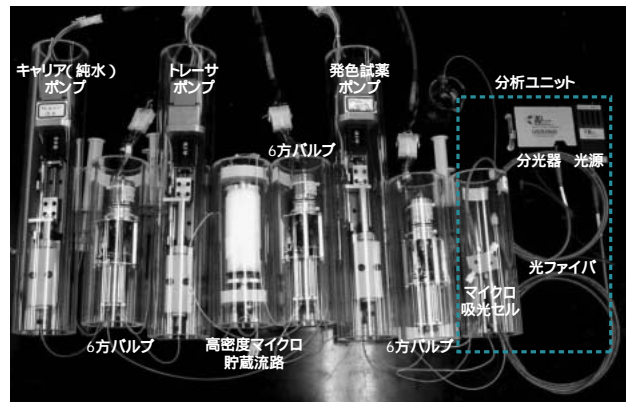


図4 トレーサ分析システムの外観  
吸光分析システムが直径60 mm以下のサイズに収納されている。

のボーリング孔内においても、ラボデータとほぼ同じ核種移行遅延特性を評価できる見通しを得た。

### (3) トレーサ分析システムの開発

開発したトレーサ分析システムの外観を図4に示す。

このシステムでは、トレーサ溶液とキャリア溶液を切り替えてマイクロ流路チップに送液可能となっており、その後、オンライン分析を行うマイクロ吸光分析装置を通過し、オフライン分析用の高密度マイクロ貯蔵流路に接続される。このオフライン分析用の高密度マイクロ貯蔵流路は、極細チューブから構成されており、トレーサの濃度変化を長期間チューブ中に保管することができ、オンラインでは分析できない成分を地上に引き上げて詳細に分析することが可能となっている。

また、このシステムは深地層のボーリング孔内において使われることが前提となるため、開発にあたっては、以下の目標仕様を設定した。

- (a) 構成機器の小型化:構成機器サイズ < 直径60 mm
- (b) 耐圧仕様:耐圧仕様 > 5 MPa(圧力がかかる系統)
- (c) 分析精度:一般的な吸光度計とほぼ同等の性能

マイクロ吸光分析システムについてのオンライン分析確認試験を実施した結果、目標仕様である検出下限値は0.1 ppm以下を満足する見通しが得られた。

### 3.2 地下水分析ユニット

地下水分析システムでは、採取した地下水の分析をマイクロ吸光分析システムと、マルチ水質センサによって実施する。マイクロ吸光分析では、核種移行に大きな影響を及ぼす地下水中の還元物質である鉄イオンと硫化物イオンの濃度を0.1 ppmの検出下限値で原位置計測可能なものとした。一方、マルチ水質センサは、時刻、深度、水温、pH(水素イオン濃度)、Eh(酸化還元電位)、導電率、溶存酸素を原位置で計測可能なものとした。このシステムも深地層のボーリング孔内において使われることが前提となるため、開発にあたっては、トレーサ分析システムと同様の耐圧、寸法目標仕様を設定した。

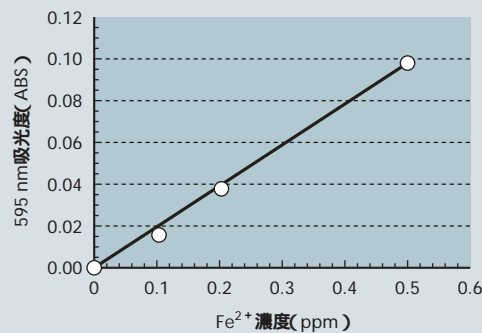
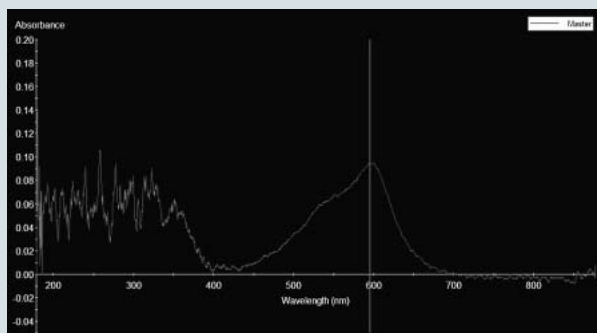
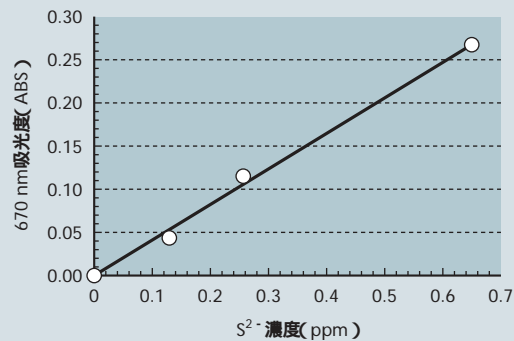
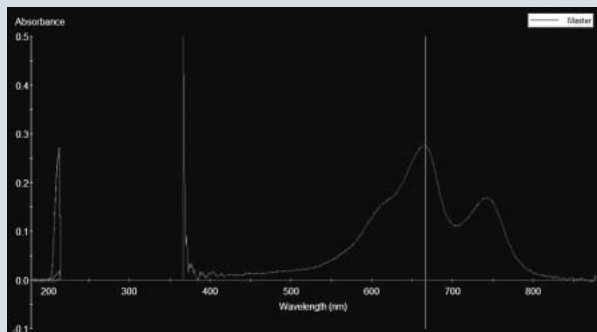
(a) Fe<sup>2+</sup> 分析結果(左: 吸光スペクトル, 右: 検量線)(b) S<sup>2-</sup> 分析結果(左: 吸光スペクトル, 右: 検量線)

図5 オンライン分析確認試験の結果

いずれの分析についても、目標仕様である検出下限値は0.1 ppm以下を満足することを確認した。

マイクロ吸光分析システムについてのオンライン分析確認試験の結果の例を図5に示す。その結果、いずれの分析についても、目標仕様を満足することを確認した。

#### 4. おわりに

ここでは、これまでに得られたマイクロ化学プローブの各装置ごとの開発状況について述べた。

現在、マイクロ化学プローブの開発は、最終的な目標である実際のボーリング孔での確認試験をめざして、実際のボーリング孔環境において予想されるさまざまな過酷な条件を想定した装置全体のシステム設計が進められている。

近い将来、この技術が放射性廃棄物処分場の選定段階において安全と信頼性の向上に寄与できるよう、開発を行っていく所存である。

なおこの技術開発は経済産業省が実施した平成16年度、平成17年度「革新的実用原子力技術開発費補助事業」の成果の一部である。

#### 参考文献

- 1) K. Okuyama, et al.: A fast and sensitive method for evaluating nuclides migration characteristics in rock medium by using micro-channel reactor concept, Physics and chemistry of the earth (2006)

#### 執筆者紹介



**吉田 拓真**  
1986年日立製作所入社、電力グループ 原子力事業部  
原子力技術本部 所属  
現在、燃料サイクルバックエンド分野の事業取りまとめに  
従事  
日本原子力学会会員



**野下 健司**  
1991年日立製作所入社、電力グループ 電力・電機開発  
研究所 原子力化学プロジェクト 燃料サイクルグループ  
所属  
現在、放射性廃棄物処分の研究に従事  
日本原子力学会会員



**笹平 朗**  
1985年日立製作所入社、電力グループ 電力・電機開発  
研究所 原子力化学プロジェクト 燃料サイクルグループ  
所属  
現在、燃料サイクル分野の研究に従事  
理学博士  
日本化学会会員、日本原子力学会会員