

方解石中の微量元素濃度に基づく地下深部の酸化還元状態の推察

Analysis of palaeo-redox condition based on uranium concentration in the calcite

岩月 輝希[1]; Arthur Randolph[2]; 水野 崇[1]

Teruki Iwatsuki[1]; Randolph Arthur[2]; Mizuno Takashi[1]

[1] サイクル機構 東濃地科学センター; [2] Monitor Sci.

[1] JNC TGC; [2] Monitor Sci.

高レベル放射性廃棄物の地層処分に関わる研究では、数万年オーダーの時間スケールで地層中での放射性元素の挙動について考察する必要がある。放射性元素の挙動は地質や地下水の流動状態、地球化学環境（特に pH や酸化還元電位）に大きく左右され、地層処分の時間スケールで放射性元素の挙動を推測するためには、地下深部の水理環境や地球化学環境の長期的変遷を推測する技術が必要である。

東濃地科学センターでは、これまでに岐阜県東濃地域の基盤花崗岩を対象に、複数のボーリング孔で花崗岩中の割れ目表面の方解石を採取し、方解石の結晶形や炭素・酸素同位体比および地史に基づいて、地下水の pH の長期的変遷を推測する手法を開発してきた。その結果、東濃地域の地下深部には、中期中新世に沈殿した方解石など、様々な時代に様々な水質の地下水から沈殿した方解石が長期間保存されている事が判っている。本研究では、これまでの研究を更に発展させ、方解石中の金属元素濃度に基づき、放射性元素の挙動に影響するもう一つの重要な因子である地下水の酸化還元状態の長期的変遷を推測する手法の開発を試みた。

溶液中の溶存成分濃度が方解石に対して飽和状態に達し、方解石の沈殿が形成される時、溶液中の微量元素がある分配係数に従って方解石内に共沈することが知られている。この場合、方解石中の微量元素濃度と分配係数から方解石を沈殿させた溶液中の微量元素濃度を逆算する事ができる。したがって、酸化還元電位を反映し易い金属元素に注目し、方解石中の金属元素濃度から方解石沈殿時の溶液中の金属元素濃度を求め、その金属元素の酸化還元平衡式を仮定してやることで、方解石が沈殿した時点の酸化還元電位を推測できる可能性がある。本研究では、現在、強還元環境にある深度約 500-800m の花崗岩中の割れ目表面から採取した方解石中の金属元素濃度を LAMP(Laser Ablation Micro Probe)により分析し、方解石が沈殿した時点の酸化還元電位の推測を試みた。対象とした試料は、結晶形から、現在と同様の淡水環境で形成したと判断できる方解石 5 試料であり、方解石中の金属元素濃度から理論的に推測できる酸化還元電位と現在の酸化還元電位を比較することで、前述の手法が適用可能かどうか予察的に検討した。本稿では方解石中のウラン濃度に基づく解析結果について述べる。

方解石中のウラン濃度は、0.1-10ppm と分析された。ウランの方解石に対する分配係数 $([方解石中の U] / [溶液中の Ca] / [方解石中の Ca] / [溶液中の U])$ は Curti, 1999 により、 $=0.04$ と求められている。溶液中の Ca 濃度は、地下水の pH に依存し、現在と同様の pH 条件 8-10 を仮定した場合、ウランの分析値から方解石沈殿時の地下水中のウラン濃度は $5.6E-11 - 6.1E-8M$ と求める事ができる。現在の地下水は熱力学的に $UO_2(am.)$ と平衡状態にあると考えられており、 $UO_2(am.)$ の酸化還元平衡式 $[UO_2(am.) = UO_2^{2+} + 2e^-]$ に求められた地下水中のウラン濃度を代入することで、地下水の酸化還元電位を見積もる事ができる。方解石中のウラン濃度から求められた方解石沈殿時の地下水中のウラン濃度と前式から、方解石が沈殿した時の地下水の酸化還元電位は理論的に約 -200 - -440mV と求められる。現在の地下水の酸化還元電位は約 -270 - -400mV であり、理論的にほぼ同等の値を得る事ができた。今後、様々な時代に沈殿した方解石中の金属元素濃度に基づいて、酸化還元状態の長期的変遷について考察していく予定である。

(参考文献 : Curti, 1999: Applied Geochem., 14, 433-445)