

# わが国の地質体におけるウラン，トリウムの溶出挙動 I：溶出実験

## Leaching behavior of uranium and thorium(I):an experimental approach

# 中田 正隆[1]; 初谷 和則[2]; 清水 香織[3]; 服部 将也[1]; 小室 光世[4]

# Masataka Nakata[1]; Kazunori Hatsuya[2]; Kaori Shimizu[3]; Masaya Hatsutori[1]; Kosei Komuro[4]

[1] 東学大・教育・地学; [2] 筑波大・理工; [3] 原研・NUCEF 管理課; [4] 筑波大・地球

[1] Dep. Astro. and Earth Sci. Tokyo Gakugei Univ.; [2] Science and Engineering, Univ. Tsukuba; [3] Project Planning Division, JAERI; [4] Inst. Geosci., Univ. Tsukuba

ウラン，トリウムは，天然に普遍的に存在するアクチニド元素で，放射性廃棄物中で重要な TRU 元素と地球化学的挙動が類似するといわれている．ここでは，わが国の地質体を対象としたウラン，トリウムの溶出プロセス，メカニズムの解明の一環としてすすめている土岐，苗木地域の岩石を用いた溶出実験の結果を報告する．

実験は，岩石粉末 50mg に水溶液 50ml (蒸留水に必要に応じて酸化剤としての過酸化水素，還元剤として硫化水素ナトリウムを添加)を，地表大気環境下で密封封入し行った．常温常圧環境で随時攪拌し，約 30 日後ろ過し溶液を分析した．微粉体の溶出の影響を防ぐため，花崗岩や砂鉱では洗浄した 60-150 メッシュの粒子を，堆積岩やウラン鉱石は試料をほぐしたものをを用いた．

新鮮な土岐花崗岩に蒸留水を加えた結果，最終的な溶液の pH は 6.0 となった．一番溶出率の高いグループとしては，Zn, Ni, Co, Mo といった重金属元素が見られる．これらの元素は，硫化鉱物が大気環境下で酸化して溶出したと考えられる．次のグループとして，Ca, Na, Mg, Li, Sr, Cs など通常の造岩鉱物の風化で放出されるアルカリ元素やアルカリ土類元素に加えて，Mn, U, V が認められる．Mn が溶出したことは，2 価のイオンとしての溶出を示唆する．一方，U や V が溶出することは，酸化されたことに起因すると推察される．溶出率が低い元素として，酸化環境で風化残留すると一般にいわれている Al, Fe, Zr, Ti, Th, Sc, Y, La, Ce が認められる．溶液中の Th/U 比は 0.12 で，花崗岩の Th/U 比は 2.7 と比較して低く，ウランが溶出しやすいことと調和的である．U, Th が同じ鉱物に存在しているとすれば，U だけが選択的に溶出するか，あるいは両元素が溶出した後 Th がコロイドなどとして再沈澱するかを示していると思われる．

東濃鉱山のウラン鉱石 (還元鉱) に蒸留水を加えた結果，pH は 8.2 で，豊富に含まれる炭酸塩鉱物の影響が考えられる．溶出の高いグループとしては，Zn, Ni, Mo といった重金属元素，Ca, Na, Mg, Sr などのアルカリ元素やアルカリ土類元素とともに，U, Mn が認められる．Mn の溶出が大きいこと，La と Ce の挙動が類似していることは，溶出がある程度還元環境で行われていることを示す．一方，U の溶出が顕著なことは，U が 6 価になる程度の酸化還元電位か，あるいは，鉱石中に吸着されている 6 価のウランが含まれるかに起因するのであろう．溶出率が低い元素として，酸化環境で風化残留すると一般にいわれている Al, Fe, Ba, Zr, Ti, Th, Y, La, Ce, K が認められる．

新鮮な土岐花崗岩に過酸化水素と硫化水素ナトリウムを添加した結果を示す．pH はほとんどの系で 6.0 から 6.5 であった．Fe は，酸化剤を加えた系では顕著な溶出が認められないのに対し，他の系で溶出が認められる．同様に，Mn は，酸化剤が多い系で顕著な溶出が見られないのに対し，より酸化剤の少ない全ての系で溶出が認められる．一方，V は還元剤を加えた系ではほとんど溶出しないのに対し，他の系では溶出する．これら redox-sensitive な元素の溶出挙動は，pH-Eh 図などの平衡論を用いた予測と調和的で，溶出が顕著かどうかはそれぞれの価数の変化と対応するものと考えられる．U と Th に関しては，Th がほとんど溶出しないのに対し，U は顕著に溶出する．U は redox-sensitive な元素といわれているにもかかわらず，還元的な系でも酸化的な系でも溶出した．

東濃鉱山のウラン鉱石 (還元鉱) の結果，pH は酸化剤を加えた系では 7.9~8.2 であるのに対し，還元剤を加えた系では還元剤の量が多いほどよりアルカリ性となった．Fe は酸化剤をある程度加えた系，Mn は還元剤が少ない系と酸化剤を加えた全ての系で顕著な溶出が認められる．V は酸化剤当量 0.5 以上で溶出が顕著である．U と Th に関しては，いずれの系においても，花崗岩同様，Th がほとんど溶出しないのに対し，U は顕著に溶出する．

以上のように，元素の溶出挙動は，Fe, Mn, V, Th のように化学平衡モデルと比較的よく一致した挙動をとるもの，U のように化学平衡モデルでは説明できそうにないものなど様々であった．溶出は，固液反応が基本ゆえ，固体の中の元素の存在状態，界面の性質など，岩石や鉱物で通常キャラクタリゼーションを行わない様々なファクターが重要であることが推察される．重要なファクターに関するキャラクタリゼーションと組み合わせた事例研究を積み重ね，より一般性のある溶出挙動の体系の構築が必要であると思われる．

(清水香織[3]:本研究は，筑波大学自然学類所属時の成果である)

