

東濃ウラン鉱床周辺堆積岩中炭酸塩の地球化学

Geochemistry of carbonate minerals in sedimentary rocks around Tono uranium deposit, central Japan

土橋 竜太 [1]; 鹿園 直建 [2]

Ryuta Dobashi[1]; Naotatsu Shikazono[2]

[1] 慶應・理工・開放環境; [2] 慶應

[1] Open and Environmental Systems Sci, Keio Univ

; [2] Keio

これまでのナチュラルアナログ研究では鉱物の吸着による遅延効果（放射性元素の地中での移動を遅らせる効果）は多く研究されているが、鉱物の取り込み（固溶体の生成）による遅延効果はあまり研究されていない。また、鉱物の取り込みのほうが長期的な遅延効果が期待できると考えられる。よって本研究では堆積岩中に普遍的に存在し、自生鉱物である炭酸塩鉱物の元素取り込みによる遅延効果について検討した。なお、放射性核種である Am、Cm 等は天然には存在しないために、これらの化学的類似元素である希土類元素（ランタニド元素）を用いた。

炭酸塩鉱物中の希土類元素を C1 コンドライトで規格化すると、その希土類パターン上に W 型テトラド効果が現れた。東濃ウラン鉱床周辺地域では花崗岩と地下水との水 - 岩石反応により、花崗岩から希土類元素が溶出し風化花崗岩では M 型テトラド効果、地下水では W 型テトラド効果を見せ、花崗岩から溶出した希土類元素が地下水により堆積岩中へ移行し、堆積岩は地下水と同じ W 型のテトラド効果を見せることが知られている（Takahashi, 2003）。よって炭酸塩鉱物中の希土類パターンが地下水と同じ W 型のテトラド効果を見せるため、炭酸塩鉱物中の希土類元素は地下水から取り込まれたと考えられる。

また、炭酸塩鉱物中、岩石バルク試料中での希土類元素濃度を比較すると、特に炭酸塩鉱物中の軽希土類元素濃度が高いといえる。希土類元素の中でも特に軽希土類元素が Am、Cm 等の化学的類似元素なので、炭酸塩鉱物は Am、Cm 等についても同様にこれらを取り込みやすい性質を示すと考えられる。よって炭酸塩鉱物は Am、Cm 等の放射性元素に対して遅延効果が期待できると考えられる。

希土類元素の取り込みを考えるうえで地下水で規格化した分配係数を求めた。東濃堆積岩中の炭酸塩鉱物でイオン半径と分配係数の関係をみるとイオン半径が Ca に近い元素ほど、またイオン状態での電荷が大きいほど分配係数が高くなっていることが分かる。例えば、+3 価の希土類元素の分配係数の方が +1、+2 価のアルカリ元素やアルカリ土類元素の分配係数より大きい。

また、溶液中での存在状態が炭酸塩鉱物への分配に影響を及ぼすと考えられるため、溶液中での希土類元素が全て炭酸錯体と仮定してスペシエーション計算を行った。その結果、東濃地下水では $\text{REE}(\text{CO}_3)_2^-$ が卓越することが分かった。

実際の処分環境下では炭酸塩鉱物の放射性元素の取り込みには、イオン半径や電荷が影響することが考えられる。