

## 東濃ウラン鉱床周辺の花崗岩中方解石のランタニド分析と放射性核種の遅延効果に関するナチュラルアナログ研究

### Chemical analysis of REE in calcite and retardation effect of calcite in granite around Tono uranium ore deposit

# 曾我 匠 [1]

# Takumi Soga[1]

[1] 慶大・理工・開環

[1] Open and Environmental systems, Keio Univ.

#### [ はじめに ]

現在、わが国では、原子力発電所の再処理工場から出される高レベル放射性廃棄物の処分方法として、地下 300m 以深において人工バリア（ガラス固化体、オーバーパック、緩衝材）と天然バリア（地層）からなる多重バリアシステムによる地層処分が考えられている。放射性核種が自然（ウラン鉱床）の放射線量レベルになるまでには数万年から数十万年以上かかると言われている。ナチュラルアナログ（天然類似現象）研究とは、実験室内でその長期的変化を推測する手段であり、天然には存在しない放射性核種（Am, Cm）の挙動を、化学的類似性を持つ希土類元素（ランタニド）について分析することで推察する。それにより天然バリアの長期安全性評価をすることが可能となる。本研究では花崗岩中の炭酸塩鉱物中の希土類元素、ウランを分析し、放射性核種（Am, Cm）の移行を遅らせる効果（遅延効果）について研究を行なった。

#### [ 試料・分析方法 ]

岐阜県東濃ウラン鉱床で掘削されたボーリング孔（06MI03 号孔）より、方解石を含む深度 50 箇所と、ほとんど風化を受けていない深度 1 箇所からサンプリングした花崗岩試料を用いた。これらの試料について、鉱物同定（XRD）、主成分元素分析（XRF）、微量成分元素分析（ICP MS）を行った。また、1M 酢酸分解法（岡井, 1998）によって抽出した方解石について、それぞれ主成分元素分析（AAS, ICP AES）、微量成分元素分析（ICP MS）を行なった。そして、方解石の含有量の違う 10ヶ所の深度を選び出し、1M 酢酸分解法より分解力の小さい pH5 酢酸緩衝溶液分解法（岡井, 1998）によって抽出し、同様の分析を行なった。

#### [ 結果・考察 ]

方解石と、方解石を除くバルク中におけるランタニド、ウランの平均濃度は、方解石中の方が高くなる結果となった。また、新鮮な花崗岩中のランタニド濃度により、平均濃度を規格化すると、やや左上がりのパターンとなり、軽ランタニドの規格化値の方が、中・重ランタニドより大きくなり、比較的方解石に取り込まれやすいという結果となった。これは、 $\text{Ca}^{2+}$  のイオン半径と軽ランタニドのイオン半径が約 100pm で近いためであると考えられる。放射性核種である Am や Cm は、安定な酸化数やイオン半径といった点で軽ランタニドと化学的類似性を示すため、以上の結果より、方解石には放射性核種（Am, Cm）を取り込み、移行を遅らせる効果が期待できる。

次に、分解力の異なる 2 つの分解方法による結果は、方解石含有量が多い場合、1M 酢酸分解法によって抽出した方解石の方がランタニド、ウラン濃度が高くなり、あるところから酢酸緩衝溶液の方が高くなる結果となった。また、パターンは、前者の場合は左上がりとなり、後者の場合は右上がりのパターンとなった。これは、前者においては方解石の含有量が多いため、ランタニド含有量も多く、pH の低い 1M 酢酸の方がランタニドの酢酸錯体を多く作ることができたためであると考えられる。また、パターンが左上がりとなったのは、方解石中のパターンを反映した結果と考えられる。後者においては、方解石がほとんどなく、長石類を多く溶出したため、1M 酢酸分解法では溶液の pH が上がり、pH5 で安定である酢酸緩衝溶液の方が、結果として長石類を多く抽出したためであると考えられる。パターンが右上がりとなったのは、酢酸錯体の安定度定数が La から Lu につれて大きくなるためであると考えられる。