

幌延地域の堆積岩風化部における主要—微量元素の分布と挙動

入江寛和*・永田寛*・本多照幸**・岩月輝希***・石井英一***

Distribution and behavior of major—trace elements in a chemical weathering zone of sedimentary rocks from Horonobe, Hokkaido, Japan

H. Irie*, H. Nagata*, T. Honda**, T. Iwatsuki***, E. Ishii***

* 武蔵工業大学工学部, Faculty of Engineering, Musashi Institute of Technology

** 武蔵工業大学原子力研究所, Atomic Energy Research Laboratory, Musashi Institute of Technology

*** 日本原子力研究開発機構, Japan Atomic Energy Agency

1. 緒言

日本では、原子力発電所で使用した燃料を再処理して有効活用する事にしており、この処理によってウランやプルトニウムを回収した後は、高レベル放射性廃棄物が残る。この高レベル放射性廃棄物を地層処分する際には、その安全性を評価するため地層中での放射性核種の挙動を評価する必要がある、そのための手法開発が必要とされている。放射性核種は化学環境（酸化還元環境等）によりその挙動が異なるため、本研究では、特にマイナーアクチノイド(Am, Cm等)と化学的性質が類似しているランタノイドの酸化・還元環境における挙動を解明する事を目的として、岩石の地球化学的変化と元素の分布状態について調査を行い、基礎的知見を得た。

2. 実験

2-1 試料

試料は北海道天塩郡幌延町にある露頭から採取した岩石（計27試料）を100メッシュ以下に粉砕して用いた。試料の採取場所を図1aに、採取した露頭を図1bに、試料のプロファイルを表1に示す。

2-2 中性子放射化分析

全27試料と標準試料及び堆積物標準試料(JLK-1)を二重のポリエチレン袋に封入し照射

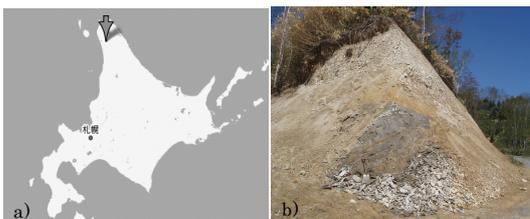


図1 試料の採取場所(a)と露頭(b)

試料とした。中性子源は、日本原子力研究開発機構東海研究開発センターのJRR-3Mを使用し、短寿命核種の照射及び測定はJRR-3MのPN-3にて、長寿命核種はPN-1にて照射を行い、武蔵工業大学原子力研究所にて測定した。γ線の測定には、検出器にORTEC社の高純度Ge半導体検出器（相対計数効率：31.2%，半値幅：1.33MeVにおいて1.75keV）及び多チャンネル波高分析器（SEIKO EG&G社, MCA7700）を用いて測定を行った。照射及び測定条件を表2に示す。

2-3 蛍光X線分析(XRF)による主要分析

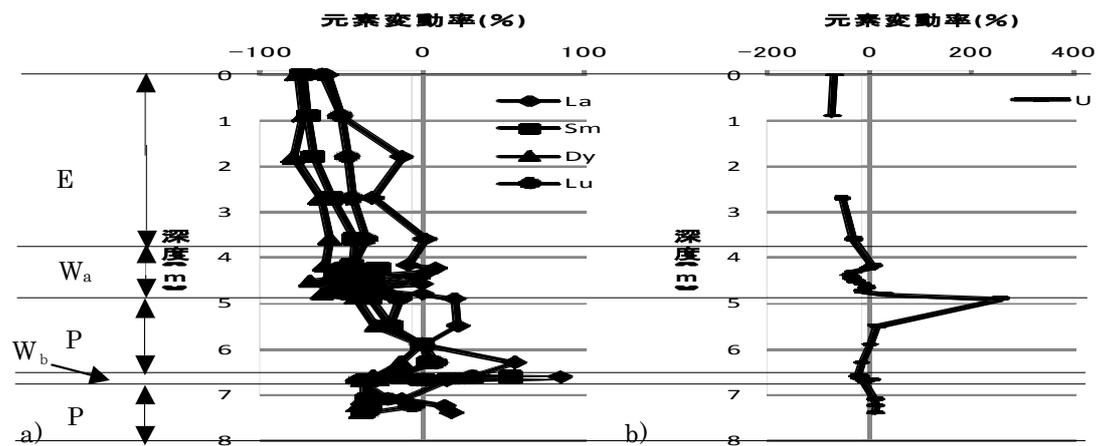
電気炉PK-1940により試料の強熱減量を行い、

表1 試料のプロファイル

試料No.	状態	表層からの距離	色
1	溶脱部	表層付近	白
2	溶脱部	90cm	白
3	溶脱部	1m80cm	白
4	溶脱部	2m70cm	白
5	溶脱部	3m60cm	白
6	風化帯	4m17cm	白と茶の斑
7	風化帯	4m24cm	8よりはやや濃い
8	風化帯	4m31cm	9よりさらに薄い
9	風化帯	4m38cm	黄土(やや薄い)
10	風化帯	4m45cm	黄土
11	風化帯	4m52cm	黄土
12	風化帯	4m59cm	黄土
13	風化帯	4m66cm	黄土
14	風化帯	4m73cm	黄土
15	風化帯	4m80cm	黄土
16	健岩部	4m90cm	灰
17	健岩部	5m50cm	灰
18	健岩部	5m90cm	灰
19	健岩部	6m30cm	灰
20	割れ目風化部	6m60cm	薄い茶
21	割れ目風化部	6m62cm	赤茶
22	割れ目風化部	6m65cm	赤茶
23	割れ目風化部	6m68cm	明るい茶
24	割れ目風化部	6m70cm	黒っぽい茶
25	健岩部	7m10cm	灰
26	健岩部	7m25cm	灰
27	健岩部	7m40cm	灰

表2 中性子放射化分析の照射及び測定条件

照射場所	熱中性子束(n/cm ² s)	照射時間	照射量(mg)	冷却時間	測定時間(sec)
PN-1	5.2 × 10 ¹³	20min	30	1week	1200
				1month	7000
PN-3	1.5 × 10 ¹³	10sec	5	5min	200
				1hour	300



※E：溶脱部、W_a：風化帯、P：健岩部、W_b：割れ目風化部
 図2 微量元素の元素変動率

Li₂B₄O₇を5g, ヨウ化リチウムを1滴加え, ビートサンプラーNT-2000でガラスビートを作製し分析試料とした. その試料を蛍光X線分析装置(XRF: Rigaku社)により分析した.

2-3 X線回折 (XRD)による主要鉱物の同定

粉末試料成形機PX-700を用いて丸型試料ホルダーに測定試料を圧縮・成形し, 測定試料とした. 測定試料をX線回折装置(XRD:Rigaku社)に装着し測定を行った.

3. 結果および考察

3-1 露頭の構成鉱物

XRDにより得られた鉱物の同定結果を表3に示す. なお△と表記している箇所は他の鉱物のピークと重なり判別が困難だったことを表す. 石英, 長石は全試料において同定された (表3). また, 黄鉄鉱は健岩部でのみ同定されている. 黄鉄

表3 鉱物同定結果

試料No.	岩種	石英	長石	黄鉄鉱	黄銅	イリテ	切リナイ	燧石	スズケイ
1	溶脱部	○	○	x	○	○	○	○	○
2	溶脱部	○	○	x	x	x	○	○	○
3	溶脱部	○	○	x	○	○	○	○	○
4	溶脱部	○	○	x	○	○	○	○	○
5	溶脱部	○	○	x	○	○	△	○	○
6	風化帯	○	○	x	○	○	○	○	○
7	風化帯	○	○	x	△	△	△	△	○
8	風化帯	○	○	x	x	x	○	○	○
9	風化帯	○	○	x	△	△	x	x	○
10	風化帯	○	○	x	△	△	x	△	△
11	風化帯	○	○	x	△	△	x	△	○
12	風化帯	○	○	x	△	△	x	x	○
13	風化帯	○	○	x	△	△	x	△	○
14	風化帯	○	○	x	△	△	x	x	○
15	風化帯	○	○	x	△	△	○	x	○
16	健岩部	○	○	○	△	△	x	x	○
17	健岩部	○	○	○	△	△	x	x	△
18	健岩部	○	○	○	△	△	○	x	○
19	健岩部	○	○	○	△	△	x	△	○
20	割れ目風化部	○	○	x	△	△	x	x	○
21	割れ目風化部	○	○	x	x	x	x	x	○
22	割れ目風化部	○	○	x	x	x	x	△	○
23	割れ目風化部	○	○	x	x	x	x	x	○
24	割れ目風化部	○	○	x	△	△	△	x	○
25	健岩部	○	○	○	△	△	△	x	○
26	健岩部	○	○	○	△	△	x	x	△
27	健岩部	○	○	○	△	△	△	△	○

鉱は還元環境でのみ生成し得る鉱物である為, 健岩部は還元環境であったことの裏付けとなる.

3-2 露頭全体での挙動

元素の挙動を評価する際に, 風化作用においても最も不動と考えられるAl₂O₃により規格化を行い, その他の元素の変動率を求めた. 変動率を算出するに当たり使用した式を(1)式に示す.

$$\text{元素変動率(\%)} = \left[\frac{(A_e/A_{Al})}{(B_e/B_{Al})} - 1 \right] \times 100 \dots (1)$$

ここで, eは各元素を表し, Aは各試料の, Bは健岩部(No.18)の元素濃度を各々表す. また今回は他の健岩部との比較からNo.18を評価の基準試料として採用した. 元素変動率が0の場合, その試料はNo.18と比べ元素濃度が変動していない事を表す. (1)式により得られた結果を図2に示す.

図2aより表層付近ほどランタノイドが溶脱している事が分かる. これは表層からの地下水の流入により酸化的環境になり, 溶脱したと考えられる. また, Uに関しては風化帯直下の健岩部において約250%もの濃集が見られる. これは酸化環境である溶脱部及び風化帯で溶脱したUが還元環境である健岩部において濃集したためと考えられる. この仮説を裏付ける為にTh/U-Ce/Uプロットを図3に示す. この図では左下ほど還元環境であり, 右上ほど酸化環境となる. 溶脱部は強酸化環境にあり, 酸素を含んだ表層水の影響を強く受けているものと思われる. そして風化帯直下の健岩部は相対的に還元環境にプロットされ, 上記の仮説を裏付けている. 一方で, 割れ目風化部は単純な酸化環境ではない事が見て取れる.

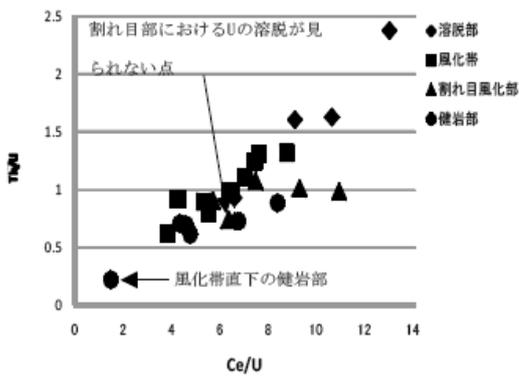
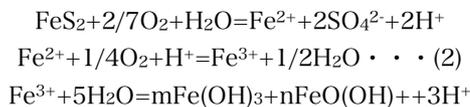


図3 Th/U-Ce/Uプロット

3-3 割れ目風化部における元素の挙動

図2より割れ目風化部は特に激しい変動が見られ、単純な酸化環境ではないことが分かる。そこで(1)式によって得られた結果において割れ目風化部周辺を拡大したものを図4に示す。

図4aよりランタノイドは濃集、4bよりUは溶脱、4cよりFeは激しい濃集を示している。割れ目が風化帯につながっていることから、濃集を示している元素は溶脱部及び風化帯において溶脱したものが割れ目風化部で濃集したと推測される。Feの激しい濃集は以下の(2)式の反応で黄鉄鉱が溶解した事によって生じた水酸化鉄と考えられる。なお、 $m+n=1$, $m>n$ である。



割れ目風化部においてランタノイドは溶脱部、風化帯と異なり、濃集の傾向を示している。割れ目風化部でのみランタノイドが濃集する理由とし

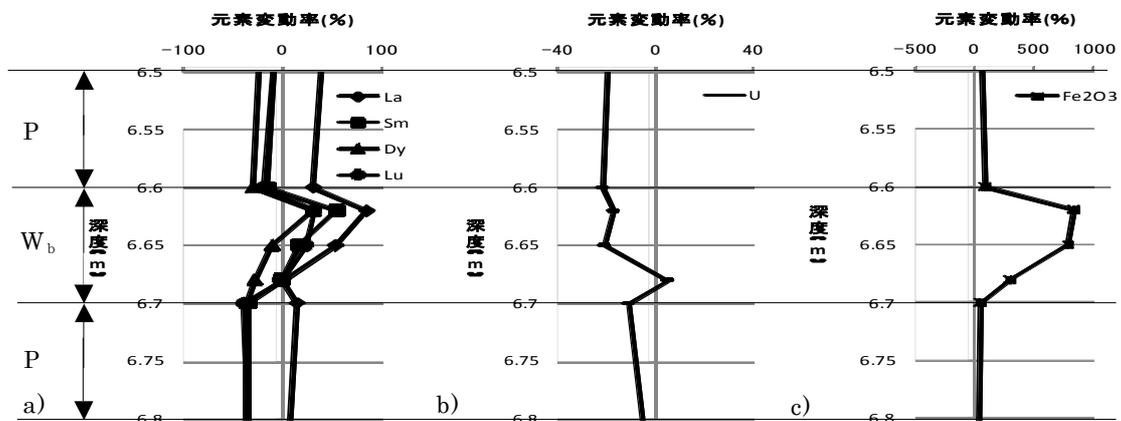
て、地下水の流速や流れ方の違いや鉱物の組成（特に粘土鉱物が生成されたかどうか）、pHの違い等が想定される。しかしながら、割れ目風化部においてスメクタイトの増加量は少なく、また、カオリナイトが増加していない事からも粘土鉱物がランタノイドの濃集に関与した可能性は低い。割れ目風化部においてFeとランタノイドの相関をみると、相関係数が $R=0.8$ 以上と非常に高い。この事から溶脱したランタノイドは水酸化鉄と共に割れ目風化部に濃集した可能性が高い。地下水の流速やpHと濃集との相関に関してはデータがない為判断できない。

また、Uは割れ目風化部においては溶脱傾向を示している。一般に鉄水酸化物の溶解・沈殿反応時の酸化還元電位では、Uは溶存態として存在するためと考えられるが、Uの溶脱が見られない箇所もある。これは水の流れによって二次的に移動してきたUが鉄水酸化物の沈殿に物理的に取り込まれ、保持されている可能性がある。また、割れ目風化部内でUの溶脱を示していない箇所は、図3においても左下にプロットされている事から、還元環境へ移行した可能性がある。

4. 結論

ランタノイドは、風化帯、溶脱部において溶脱傾向を、割れ目風化部において濃集傾向を示した。割れ目風化部に限って言えば、Feとランタノイドの相関が非常に高い事から、黄鉄鉱の溶解に伴い生成した水酸化鉄と共にランタノイドが濃集した事が示唆された。

以上の事から、酸化環境でも風化の様式によりマイナーアクチノイド(Am, Cm等)を保持する可能性がある事が判明した。また、Uは酸化環境に



※P：健岩部、W_b：割れ目風化部

図4 割れ目風化部における各元素の元素変動率

において溶脱しても直近の健岩部に濃集する可能性が示唆され、割れ目風化部において酸化環境から還元環境へ再移行した場合、そのUは保持されるものと思われる。

参考文献

1) 木村進一，鹿園直建，野原昌人，岩井修平：

化学的風化に伴う微量・希土類元素の挙動，
応用地質，第40巻（第5号），281-294，
（1999）

2) 赤川史典，吉田英一，与語節生，山本鋼志：
花崗岩割れ目周辺の酸化還元反応と二次
的物質移動現象，地質学雑誌，第110巻
（第11号），671-685，（2004）