

## 高レベル放射性廃棄物処分における堆積岩を対象とした ナチュラルアナログ研究

入江寛和\*・本多照幸\*・岩月輝希\*\*・石井英一\*\*・水野崇\*\*

### A Natural analogue study using trace elements in sedimentary rocks in high level radioactive wastes

Hirokazu Irie\*, Teruyuki Honda\*, Teruki Iwatsuki\*\*,  
Eiichi Ishii\*\* and Takashi Mizuno\*\*

\* 東京都市大学大学院工学研究科, Graduate School of Engineering, Tokyo City University Graduate Division

\*\* 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。本研究では、放射性核種(マイナーアクチノイド: MA)と化学的性質が類似している天然類似元素(ナチュラルアナログ元素)を用いる事により、岩石の化学的風化作用(主に酸化)に伴うMA(特にAmやCm)の地層中の挙動について考察した。対象としたMAのナチュラルアナログ元素は、ランタノイド元素(Ln)及びU, Thなどである。Ln元素はAmやCmと、電荷(+3)、イオン半径(約100pm)が、ThはPuやNpと電荷(+4)、イオン半径(約100pm)が類似しており、化学的性質が近似である。

#### 2. 試料及び実験方法

試料は北海道天塩郡幌延町にある露頭から27試料を採取した(以下、幌延試料)。また、比較対象試料として日本原子力研究開発機構の東濃地科学センター(岐阜県瑞浪市)のボーリング孔から19試料を採取した(以下、東濃試料)。試料のプロファイルを表1a, bに示す。幌延試料は軟岩系の堆積岩(声間層)であり、岩石の風化状況として地表から直接風化を受けた箇所(風化帯)と地表に連結した割れ目に沿って風化した箇所(割れ目風化部)が存在した。東濃試料は明世累層と土岐花崗岩の2種類があり、風化状況は割れ目に沿って風化を受けている。

試料は粉碎後、X線回折分析(XRD)及び蛍光X

線分析(XRF)により構成鉱物の同定と主要元素の定量を、中性子放射化分析(NAA)により微量元素(天然類似元素)の定量を行った。

表1a 試料プロファイル(幌延)

試料名	岩石	岩相	地質	表層からの距離(m)
H-1	堆積岩	溶脱部	声間層	表層付近
H-2	堆積岩	溶脱部	声間層	0.9
H-3	堆積岩	溶脱部	声間層	1.8
H-4	堆積岩	溶脱部	声間層	2.7
H-5	堆積岩	溶脱部	声間層	3.6
H-6	堆積岩	風化部	声間層	4.17
H-7	堆積岩	風化部	声間層	4.24
H-8	堆積岩	風化部	声間層	4.31
H-9	堆積岩	風化部	声間層	4.38
H-10	堆積岩	風化部	声間層	4.45
H-11	堆積岩	風化部	声間層	4.52
H-12	堆積岩	風化部	声間層	4.59
H-13	堆積岩	風化部	声間層	4.66
H-14	堆積岩	風化部	声間層	4.73
H-15	堆積岩	風化部	声間層	4.8
H-16	堆積岩	健岩部	声間層	4.9
H-17	堆積岩	健岩部	声間層	5.5
H-18	堆積岩	健岩部	声間層	5.9
H-19	堆積岩	健岩部	声間層	6.3
H-20	堆積岩	割れ目風化部	声間層	6.6
H-21	堆積岩	割れ目風化部	声間層	6.62
H-22	堆積岩	割れ目風化部	声間層	6.65
H-23	堆積岩	割れ目風化部	声間層	6.68
H-24	堆積岩	割れ目風化部	声間層	6.7
H-25	堆積岩	健岩部	声間層	7.1
H-26	堆積岩	健岩部	声間層	7.25
H-27	堆積岩	健岩部	声間層	7.4

表1b 試料プロファイル(東濃)

試料名	岩石	岩相	ボーリング孔	地質	深度(m)
T1-1	堆積岩	健岩部	MSB-2	明世累層	8.67
T1-2	堆積岩	健岩部	MSB-2	明世累層	8.75
T1-3	堆積岩	風化部	MSB-2	明世累層	8.78
T1-4	堆積岩	風化部	MSB-2	明世累層	8.95
T2-1	堆積岩	健岩部	MSB-2	明世累層	19.25
T2-2	堆積岩	風化部	MSB-2	明世累層	19.75
T2-3	堆積岩	健岩部	MSB-2	明世累層	19.93
T2-4	堆積岩	健岩部	MSB-2	明世累層	20
T3-1	花崗岩	風化部	DH-15	土岐花崗岩	231.85
T3-2	花崗岩	風化部	DH-15	土岐花崗岩	231.85
T3-3	花崗岩	風化部	DH-15	土岐花崗岩	231.85
T3-4	花崗岩	風化部	DH-15	土岐花崗岩	231.85
T4-1	花崗岩	風化部	DH-15	土岐花崗岩	244.35
T4-2	花崗岩	風化部	DH-15	土岐花崗岩	244.35
T4-3	花崗岩	風化部	DH-15	土岐花崗岩	244.35
T4-4	花崗岩	風化部	DH-15	土岐花崗岩	244.35
T4-5	花崗岩	風化部	DH-15	土岐花崗岩	244.35
T5-1	花崗岩	健岩部	DH-15	土岐花崗岩	330
T5-2	花崗岩	健岩部	DH-15	土岐花崗岩	944

### 3. 結果および考察

#### 3-1 露頭全体での挙動

元素の挙動を評価する際に、風化作用において最も不動と考えられる $Al_2O_3$ 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。

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

ここで、 $A_e$ は各試料の元素濃度、 $B_e$ は健岩部の元素濃度を各々表す。幌延試料はH-18(表1a)を、東濃試料は風化部近傍の健岩部を健岩部の基準試料として採用した。元素変動率が0の場合、その試料は基準試料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表2に示す。なお、太字が基準試料である。

表2より表層付近ほどLn元素が溶脱している事

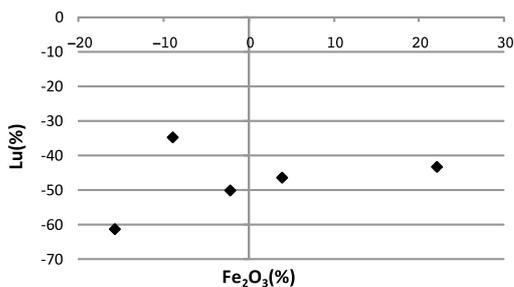


図1a 溶脱部におけるLuとFe相関

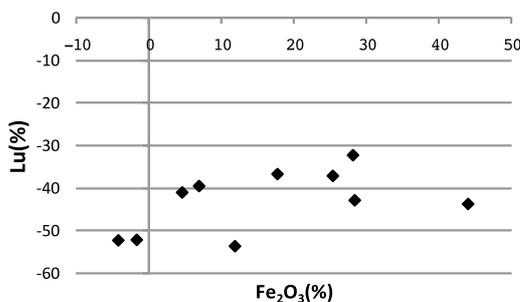


図1b 風化部におけるLuとFeの相関

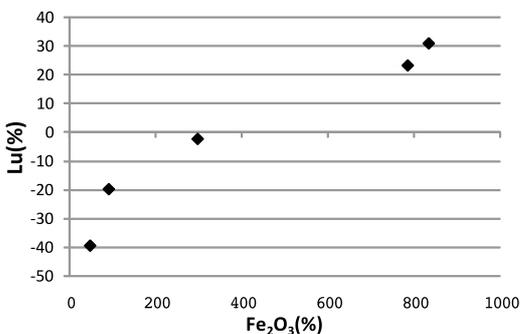


図1c 割れ目風化部におけるLuとFeの相関

が分かる。これは表層からの天水の流入により酸化的环境になり、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%という激しい濃集が見られる。これは酸化的环境である風化溶脱部で溶脱したUが還元的环境である健岩部において濃集したためと考えられる。

#### 3-2 割れ目風化部における元素の挙動

割れ目風化部のLn元素は、溶脱部、風化部と異なり、健岩部の濃度に比べて濃集の傾向を示している。割れ目風化部にLn元素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。しかし粘土鉱物量は健岩部に比べて顕著な増加を示していなかった事からLn元素の濃集に関与した可能性は低い。そこで、FeとLuの相関例を図1a-cに示す。割れ目風化部のみFe濃度と相関が認められ、割れ目風化部におけるLn元素の濃集は含鉄鉱物の沈殿に起

表2 幌延試料における元素変動率(%)

試料名	岩相	La	Sm	Dy	Lu	Th	U
H-1	溶脱部	-58.5	-74.4	-77.5	-61.3	-29.9	-68.3
H-2	溶脱部	-50.4	-70.9	-73.5	-50.1	-16.4	-74.5
H-3	溶脱部	-12.7	-67.4	-79.7	-46.4	-7.6	nd
H-4	溶脱部	-30.6	-56.3	-63.1	-43.2	3.7	-53.8
H-5	溶脱部	1.7	-42.3	-57.3	-34.7	-10.9	-30.4
H-6	風化部	-8.8	-43.4	-60.5	-43.7	34.8	7.3
H-7	風化部	8.6	-27.6	-48.8	-52.0	19.4	-2.7
H-8	風化部	3.7	-33.9	-53.6	-52.1	17.8	-31.0
H-9	風化部	-29.4	-33.7	-47.3	-39.5	7.9	-40.5
H-10	風化部	-3.5	-34.0	-57.4	-53.5	18.0	-34.3
H-11	風化部	-34.2	-31.6	-69.1	-36.7	12.5	-25.8
H-12	風化部	-0.5	-31.0	-47.2	-37.1	13.4	-14.9
H-13	風化部	-36.3	-33.5	-53.3	-42.8	5.1	-5.1
H-14	風化部	-23.8	-35.8	-58.5	-32.3	15.6	-13.7
H-15	風化部	-0.09	-43.5	-61.8	-41.0	10.5	29.7
H-16	健岩部	20.0	-32.5	-40.7	-14.3	8.7	257.9
H-17	健岩部	22.0	-19.6	-28.4	-21.2	-3.3	14.1
<b>H-18</b>	<b>健岩部</b>	<b>0.0</b>	<b>0.0</b>	<b>0.0</b>	<b>0.0</b>	<b>0.0</b>	<b>0.0</b>
H-19	健岩部	56.8	4.4	-13.3	9.2	2.3	-16.1
H-20	割れ目風化部	31.2	-16.2	-30.3	-19.8	15.5	-22.1
H-21	割れ目風化部	84.8	54.5	30.5	31.1	12.0	-17.4
H-22	割れ目風化部	54.0	17.1	-10.8	23.4	9.5	-21.4
H-23	割れ目風化部	0.06	-0.9	-28.9	-2.2	6.4	5.1
H-24	割れ目風化部	14.9	-34.6	-36.0	-39.5	10.1	-11.2
H-25	健岩部	-12.3	-33.0	-36.1	-20.7	7.1	11.1
H-26	健岩部	13.4	-33.3	-39.2	-5.8	8.8	11.8
H-27	健岩部	18.3	-37.0	-38.0	-33.9	7.2	11.3

\*背景が灰色の値は10%を超えたもの

表3 東濃試料における元素変動率(%)

試料名	岩相	La	Sm	Dy	Lu	Th	U
<b>T1-1</b>	<b>健岩部</b>	<b>0.0</b>	<b>0.0</b>	<b>0.0</b>	<b>0.0</b>	<b>0.0</b>	<b>0.0</b>
T1-2	健岩部	11.7	23.3	-1.6	17.2	3.5	-13.1
T1-3	風化部	9.2	19.1	-1.3	-2.5	7.5	-8.4
T1-4	風化部	-21.2	-15.1	-40.6	-34.8	-5.9	-31.8
<b>T2-1</b>	<b>健岩部</b>	<b>0.9</b>	<b>0.2</b>	<b>14.5</b>	<b>-8.7</b>	<b>3.1</b>	<b>-4.1</b>
T2-2	風化部	28.0	15.5	9.2	6.3	23.3	-1.6
T2-3	健岩部	5.9	-3.6	-1.8	-4.6	10.8	3.2
<b>T2-4</b>	<b>健岩部</b>	<b>-0.9</b>	<b>-0.2</b>	<b>-14.8</b>	<b>8.9</b>	<b>-3.2</b>	<b>4.2</b>
T3-1	風化部	-48.1	-59.0	nd	-67.9	-6.4	161.5
T3-2	風化部	-52.3	-70.1	nd	-65.8	1.5	17.4
T3-3	風化部	-52.0	-72.1	nd	-65.2	-11.8	16.3
T3-4	風化部	-49.5	-69.0	nd	-66.5	-13.3	-24.5
T4-1	風化部	58.0	13.5	nd	7.3	30.0	-15.3
T4-2	風化部	67.9	36.1	nd	14.8	46.9	34.7
T4-3	風化部	36.1	7.6	nd	-0.1	37.4	-10.7
T4-4	風化部	49.2	15.7	nd	-9.5	42.1	-11.2
T4-5	風化部	33.9	0.2	nd	-2.3	7.4	-4.0
<b>T5-1</b>	<b>健岩部</b>	<b>-1.0</b>	<b>-4.8</b>	<b>nd</b>	<b>-13.3</b>	<b>10.1</b>	<b>-32.8</b>
<b>T5-2</b>	<b>健岩部</b>	<b>1.1</b>	<b>5.1</b>	<b>nd</b>	<b>14.1</b>	<b>-10.7</b>	<b>34.8</b>

\*背景が灰色の値は10%を超えたもの

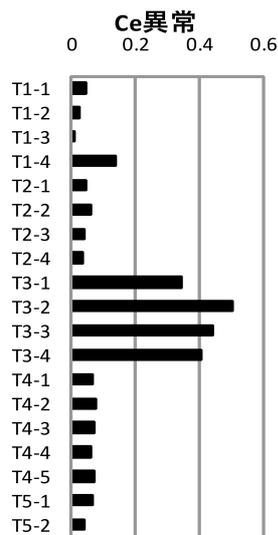
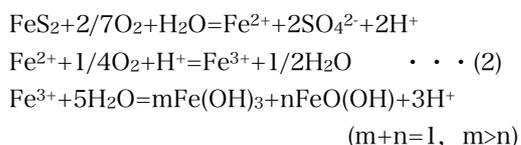


図2 各試料におけるCe異常度

因するものと考えられる。含鉄鉱物(主に水酸化鉄)は、下式(2)のように、もともと岩石中に含まれていた黄鉄鉱の酸化、溶解に伴い生成した鉄イオンが再沈殿したものと推測され、沈殿の過程でLn元素が共沈したと考えられる。



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。溶脱を示していない試料もあるが、これは(2)式により再度還元環境へ移行した可能性も考えられる為に保持された可能性が考えられる。

### 3-3 東濃試料における元素の挙動

東濃試料における元素変動率を表3に示す。多くの風化部のLn元素は濃集を示している。これは水酸化鉄やスメクタイト等の粘土鉱物が原因であるが、T1-4及びT3グループにおいて溶脱傾向を示している。この溶脱理由を考察する上でCe異常度を示す。Ce異常度は(3)式により求める。

$$\text{Ce異常度} = \frac{\text{Ln}(\text{Ce}^*) - (2 \times \text{Ln}(\text{La}^*) + \text{Ln}(\text{Nd}^*))}{3} \quad \dots (3)$$

Lnは通常+3価をとるが、Ceは、酸化環境では+4価となり水に溶けにくくなり、Ceの増加

(Ceの正の異常)を示し、他のLnと比べて異常値をとる。この異常を評価することによって、その試料が酸化環境であったか、還元環境であったかを評価できる。(3)式により得られた結果を図2に示す。図2より、溶脱を示したT1-4、T3グループが他の試料と比べて極めて高いCe異常度を示していることから強い酸化環境であった事が分かる。よって、他の試料と比較して強い酸化環境であった事から溶脱傾向を示したと考えられる。

## 4. 結論

Ln元素は、幌延試料の風化部、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Ln元素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Ln元素が濃集した事が示唆された。また、東濃試料についても風化部の多くの試料が濃集傾向を示した。

以上の事から、酸化環境でも風化の様式によっては、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。

## 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)