

北海道大曲断層におけるランタノイドを対象としたナチュラルアナログ研究  
鈴木孝太\*・本多照幸\*

Natural analogue study using lanthanoids in Omagari fault,  
Hokkaido, Japan  
Kohta Suzuki\* and Tetuyuki Honda\*

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

**はじめに**

高レベル放射性廃棄物(HLW)の処分方法として、我が国では地層処分が採用された。地層処分によって、処分後から数千年間は人工バリア、その後数万年間は天然バリア(地層)によって、HLWと我々の生活環境を隔離することを想定している。しかし、深地層中に断層が存在すると、数千年後に放射性核種を含む地下水が漏出した時、断層を水みちとして生活環境圏に想定よりも早く到達してしまう可能性がある。そのため、地層処分において断層が処分システムや放射性核種の移動に与える影響についての評価手法の構築が、重要な課題の一つとして挙げられる。

そこで本研究では、断層部の岩石を採取し、HLW中に含まれる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)の存在形態を解明することによって、将来MAが断層部でどのような挙動を示すかを評価することを目的とする

**実験**

**試料と実験方法**

試料は北海道天塩郡幌延町にある大曲断層の露頭から試料を採取した。本研究では、稚内層と声問層を境とした断層(OF1)と稚内層中の断層(OF2)の2試料を評価対象とした。試料は100mesh以下に粉碎後、逐次溶解法を適用し、試料中の微量元素の存在形態、存在割合を類推した。逐次溶解操作により得られた抽出液中の微量元素の定量は、中性子放射化分析により行った。

本研究では、ナチュラルアナログ元素として、微量元素(ランタノイド(Ln), Th)を用いた。

**逐次溶解法**

逐次溶解法は、試料に対してそれぞれ違う目的の抽出試薬を反応させ、段階ごとに可溶性成分を

抽出し、各元素の試料中での存在形態と存在割合を類推する手法である。本研究では3つの抽出試薬を用いて3段階で抽出を行った。表1に本実験で用いる抽出試薬の組み合わせと、各段階で抽出対象となる目標化学形態を示す。

表1. 逐次溶解法における抽出試薬と抽出形態

	目的	抽出試薬	目標形態
STEP1	弱酸による抽出	CH <sub>3</sub> COOH	イオン交換性、炭酸塩など
STEP2	還元剤による抽出	NH <sub>4</sub> OH-HCl	Fe・Mnの酸化物
STEP3	酸化剤による抽出	H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> -CH <sub>3</sub> COONH <sub>4</sub>	硫化物、有機物
残渣			珪酸塩

**結果と考察**

**逐次溶解法による抽出結果**

逐次溶解法における抽出挙動の評価には、回収率、抽出率、抽出割合を用いた。回収率、抽出率、抽出割合は、それぞれ(1)式、(2)式、(3)式を用いて算出した。

$$\text{回収率(\%)} = (\text{STEP1} \sim \text{3の抽出量} + \text{残渣中の含有量}) / (\text{バルク試料中の含有量}) \times 100 \dots \dots \dots (1)$$

$$\text{抽出率(\%)} = (\text{各STEPの抽出量又は残渣中の含有量}) / (\text{各STEPの抽出量} + \text{残渣中の含有量}) \times 100 \dots \dots (2)$$

$$\text{抽出割合(\%)} = (\text{各STEPの抽出量}) / (\text{STEP1-3の全抽出量}) \times 100 \dots \dots \dots (3)$$

本研究では、回収率が100±30%の範囲のものを評価対象とした。

**主要元素の抽出挙動**

図1、図2に逐次溶解法による主要元素の抽出率と抽出割合を示す。

図1より、OF1・OF2共にAl,Naのほとんどが残渣に存在していた。OF1・OF2共にMgの半分

以上が残渣に存在していた。このことから、主要元素はケイ酸塩態として存在しており、ケイ酸塩鉱物の結晶構造中に存在していると推測できる。

図2より、OF1・OF2共にNaがSTEP1において選択的に抽出された。このことから、炭酸塩あるいはイオン交換性の形態で存在している割合が高いことが示唆された。OF1のMgは全STEPを通して抽出される割合が同様なことから、特定の形態をとって存在しているものではない可能性がある。OF2のMgはSTEP2で抽出される割合が高いことから、Fe・Mn水和酸化物態として存在している可能性がある。しかし、FeやMnの抽出結果が評価対象範囲外であったため、Fe・Mn水和酸化物と結合していたかは評価できなかった。

#### 微量元素の抽出挙動

図3、図4に逐次溶解法による微量元素の抽出率と抽出割合を示す。

図3より、OF1・OF2共にLn、Thのほとんどが残渣に存在していた。このことから、Ln、Thはケイ酸塩態として存在しており、ケイ酸塩鉱物の結晶構造中に存在していると推測できる。また各STEPの抽出試薬で、Ln、Thがあまり溶出しなかったことから、酸化還元環境やpH環境の変化

が生じて、ほとんどのLn、Thは鉱物中に取り込まれているため、化学的に溶出しにくいと推察される。

図4より、OF1・OF2グループ共に抽出試薬によって得られた抽出液のLn(Eu以外)、Thの割合は、STEP3で選択的に抽出されている。これは、還元環境下で硫化物態あるいは有機物と結合したLn、Thが溶出したと考えられる。また、酸化環境で、Ln、Thは溶出しやすい傾向があると考えられる。

図4より、OF1・OF2グループ共にEuはSTEP1で選択的に抽出されている。これは、Euは、還元環境下では+2価となり水に溶けにくくなり沈殿することから、硫化物態あるいは有機物態と結合しなかったと考えられる。そのためSTEP1での抽出割合が相対的に高くなった可能性がある。

#### 結論

本研究では、HLW中に含まれる放射性核種と化学的性質が類似しているナチュラルアナログ元素が、断層部でどのような存在形態で存在しているのかを検討した。

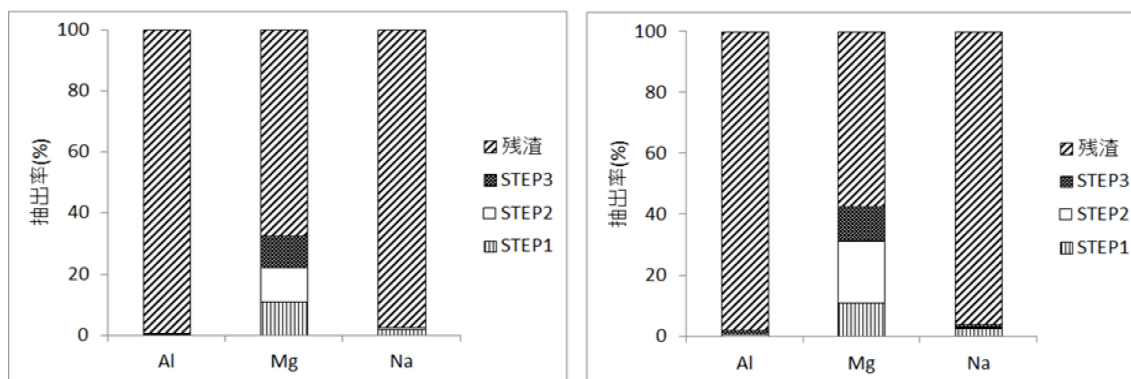


図1. 逐次溶解法による主要元素の抽出率(左:OF1,右:OF2)

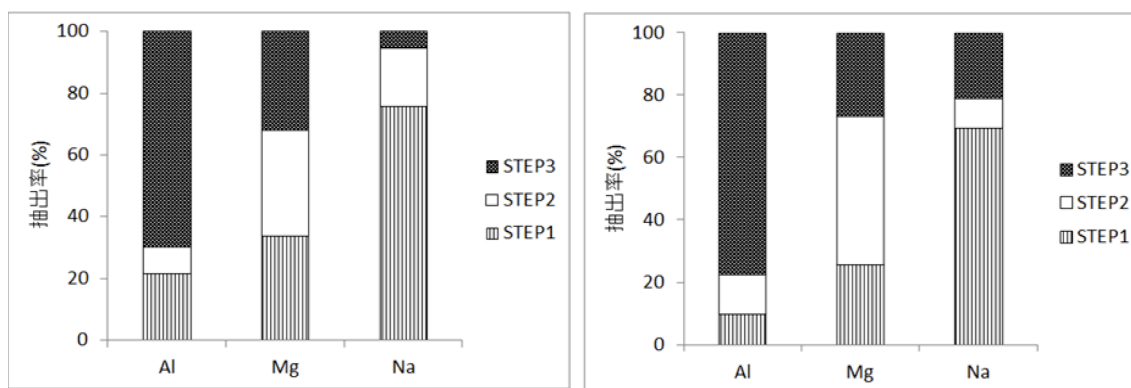


図2. 逐次溶解法による主要元素の抽出割合(左:OF1,右:OF2)

その結果、ナチュラルアナログ元素のほとんどは、ケイ酸塩鉱物の結晶構造中に取り込まれ、長期間にわたって水と接触したとしても化学的に溶出する可能性は低いことが示唆された。数千年後、放射性核種を含む地下水が断層部に移行しても、化学的、鉱物学的な相互作用(放射性核種の濃集・保持)により地層中に保持され、生活環境圏へ到達するまでの遅延効果が期待できる。

### 文献

核燃料サイクル開発機構(1999)わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第2次とりまとめ—(総論)。

木川田喜一，早津岳宏，前川裕子，本多照幸，大井隆夫 (2007) 逐次溶解法を用いた火山性海底堆積物の微量元素形態別分析，日本海水学会誌，61，286-292。

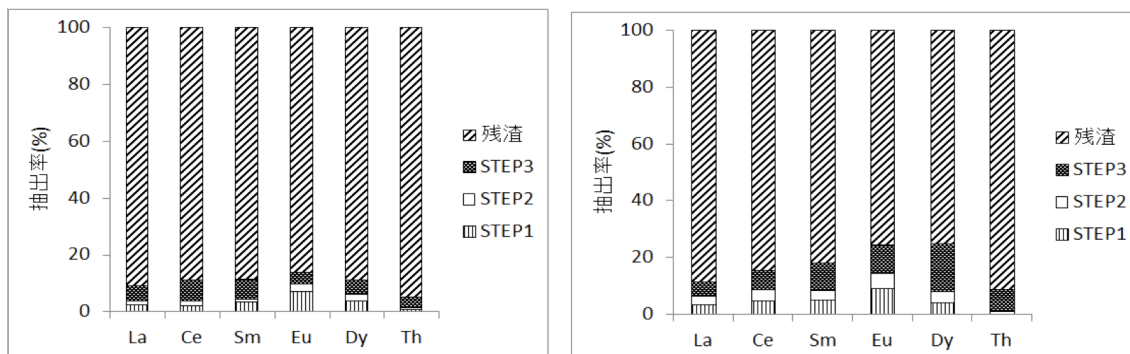


図3. 逐次溶解法による微量元素の抽出割合(左:OF1,右:OF2)

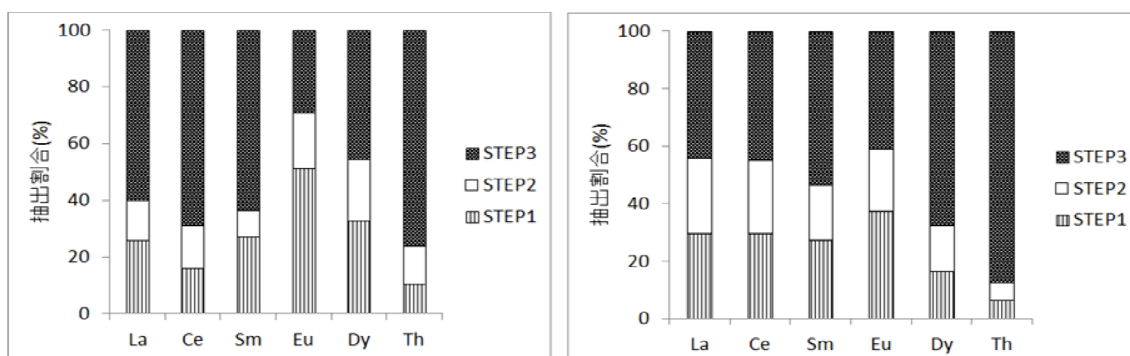


図4. 逐次溶解法による微量元素の抽出割合(左:OF1,右:OF2)