

土岐花崗岩中のウラン，トリウムおよびランタノイドの含有量とその挙動 本多照幸*・坪井麻里子**

Contents and behavior of uranium, thorium and lanthanoids in the Toki granite

Teruyuki Honda* and Mariko Tsuboi**

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

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

1. 緒言

旧核燃料サイクル開発機構（現日本原子力研究開発機構）東濃地科学研究センターでは，高レベル放射性廃棄物を安全に処理するための地層処分技術に関する研究のうち，国の計画に示された，深地層の科学的研究（地科学研究）を進めている．瑞浪超深地層研究所では，主に花崗岩を対象として，岩盤の強さ，地下水の流れ，水質などを調べたり，実際に地下1,000m程度まで立坑を掘削し，水平坑道を設置して研究を進める超深地層研究所計画を推進している．

本研究では，その基礎研究として，東濃ウラン鉱床の基盤岩である，土岐花崗岩のボーリングコア試料中のウラン，トリウム及びランタノイドを定量し，ボーリングの位置並びにコアの深度方向における微量元素の分布及び変動を解析し，挙動について解明することを目的とする．

2. 実験

2-1 試料

試料には旧核燃料サイクル開発機構から提供された，岐阜県東濃地域の1000 m級2箇所（DH-9，DH-15）及び700 m級1箇所（DH-12）のボーリングコア試料を用いた．ボーリングコア3孔から，浅部（200～300 m）と深部（600m以深）の2箇所に分け，多くの場合，各々から新鮮な花崗岩と変質した花崗岩を各1試料，計12試料を採取した．

2-2 中性子放射化分析

作製した照射試料を，比較標準試料（STD），標準試料（JLK-1）とともに，それぞれ照射用カプセルに入れ，旧日本原子力研究所 JRR-4 にて，中性子の照射を行った．短半減期核種は気送管にて，30秒照射後，JRR-4にて γ 線の測定を行った．長半減期核種については，Tパイプで20分照射後，武蔵工業大学原子力研究所に郵送し，測定を行った．

3. 結果及び考察

3-1 定量元素及び濃度レベル

中性子放射化分析により，ランタノイド（Lu 0.45～Ce 93.3ppm），U（2.2～8.4ppm），Th（6.3～48.8 ppm）を含む，のべ23元素が sub ppm～%のレベルで定量された．ランタノイドは通常の花崗岩の濃度レベルであったが，ThとUは一部で高い試料が存在した．

3-2 Ce*/La*比及びEu*/Sm*比

コンドライトで規格化したCe*/La*比及びEu*/Sm*比を用いて，CeとEuの挙動について検討した．図1に，DH-12コア試料のCe*/La*比及びEu*/Sm*比をプロットする．図1より，DH-12は，DH-12-3においてCeの負のアノマリーが認められ，かつ，Euの負のアノマリーが比較的大きかった．図2にDH-15コア試料の

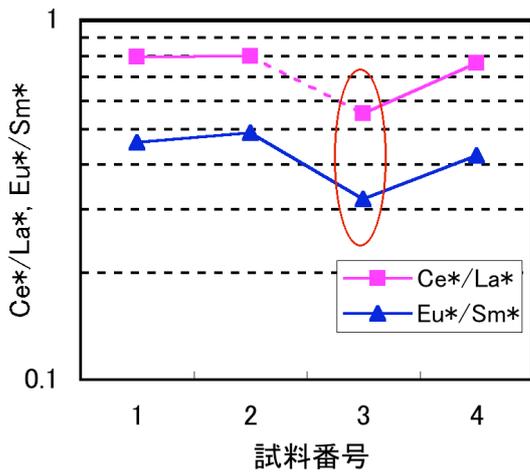


図1 DH-12 コア試料の Ce*/La*比及び Eu*/Sm*比

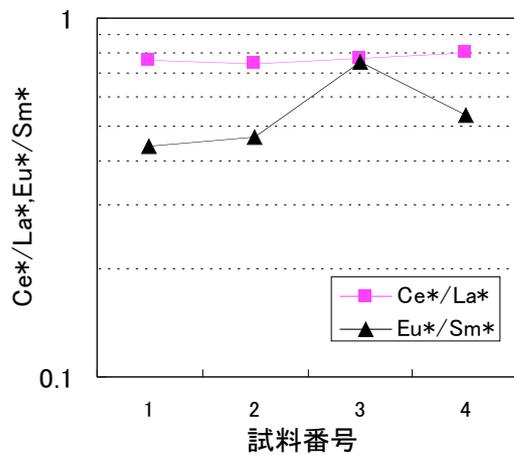


図2 DH-15 コア試料の Ce*/La*比及び Eu*/Sm*比

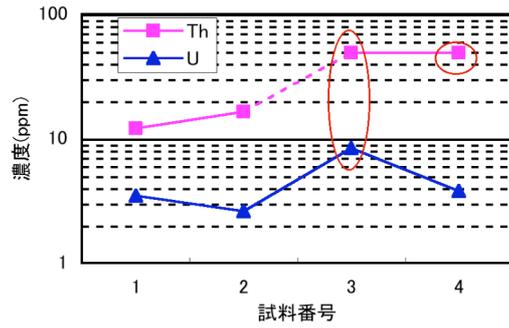


図3 DH-12 コア試料におけるトリウム濃度及びウラン濃度

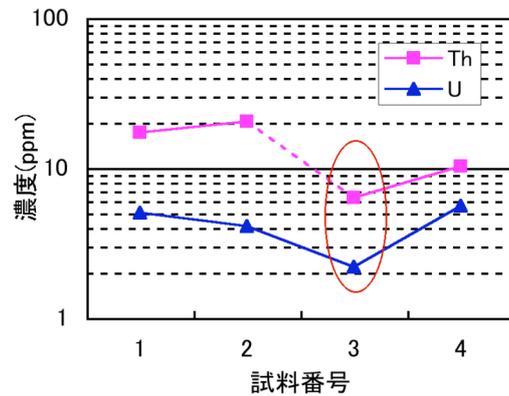


図4 DH-15 コア試料におけるトリウム濃度及びウラン濃度

Ce*/La*比及び Eu*/Sm*比をプロットする。DH-15では、DH-15-3でEuの負のアノマリーが観測されなかった。この試料は強く変質しており、U, Thとも濃度が低かった。DH-9については、花崗岩質岩石の典型的な例を示した。

3-3 トリウム濃度及びウラン濃度

DH-12及びDH-15コア試料のTh及びU濃度を各々図3及び図4に示す。図3より、DH-12では、DH-12-3でTh, U共に高い濃度(Th 48.8ppm, U 8.4ppm)を示した。図4より明らかのように、DH-15では、DH-15-3でTh(6.3 ppm), U(2.2 ppm)共に比較的低い濃度であった。また、DH-9は一般的な濃度範囲

(Th 12~19 ppm, U 3.3~5.7 ppm)を示した。

3-4 Th/U比及びTh/Sc比

花崗岩質の岩石では、一般にTh含有量がU及びSc含有量より多い。従って、Th/U比及びTh/Sc比は共に1より大きく、通常は2~6程度の範囲にある。図5にDH-12コア試料におけるTh/U比及びTh/Sc比を示す。DH-9及びDH-15におけるTh/U比及びTh/Sc比は共に通常の範囲内にあった。しかしながら、図5におけるDH-12-4のTh/U比は12.8と高く、同時にTh/Sc比も高いことが見出された。

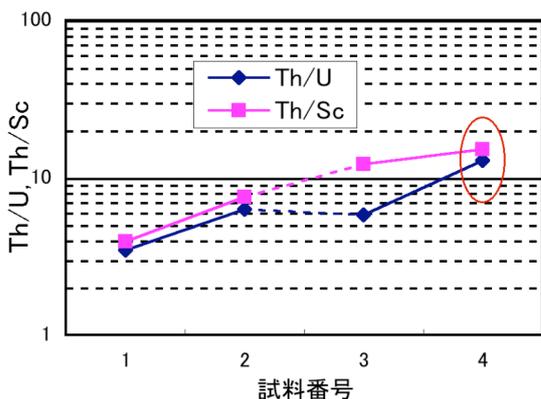


図5 DH-12 コア試料における Th/U 比及び Th/Sc 比

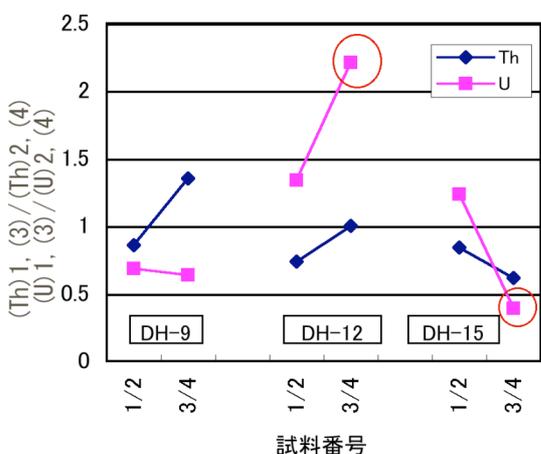


図6 コア近隣試料間のトリウム濃度比及びウラン濃度比の変動

3-5 コア近隣試料間のトリウム濃度比及びウラン濃度比

図6に、コア近隣試料間のTh濃度比及びU濃度比をプロットする。図6において、DH-12-3、DH-12-4のU濃度比（DH-12-3/4）を見ると2.2以上と高く、DH-12-3にUが多いことが分かった。一方、DH-15-3、DH-15-4のU濃度比（DH-15-3/4）は0.39と低く、DH-15-4にUが多いことが明らかとなった。また、本研究で見える限り、Uの方がThより濃度の変動が大きかった。

3-6 Th/U比とCe/U比の相関

Ce、Th及びUは酸化還元環境に敏感な元素であり、Th/U比とCe/U比はともに、液層-

固層間の分配において、酸化状態では固層で高く、還元状態では液層で高くなる。

図7に土岐花崗岩試料のTh/U比-Ce/U比をプロットする。図7において、相関係数は $R=0.384$ と低く、両比の相関は認められない。図8にDH-12-3及びDH-12-4を除いたTh/U比-Ce/U比をプロットする。図8より、相関係数は $R=0.929$ と極めて高くなり、両比の相関が明らかに認められる。この試料は、外見上は新鮮な花崗岩であるが、Thの濃度が高く、Ceの負のアノマリーが認められるなど、他の試料と比べて異質であると思われる。その原因が、異なる岩相に起因するものなのか、マグマが冷却・固化する過程での元素の分別によるものなのか、あるいは何らかの変質作用と関係しているのか、等について今後より詳細な検討が必要である。

4. 結論

土岐花崗岩3地点から得られたボーリングコア12試料の中性子放射化分析により、U、Thおよびランタノイドを定量した結果、以下の知見を得た。

(1) ランタノイドは通常の花崗岩の濃度レベルであったが、ThとUは一部で高い試料が存在した。

(2) 殆どの試料でEuの負のアノマリーが認められたが、一試料（DH-15-3）のみ認められなかった。この試料は強く変質しており、かつ、U、Th濃度とも低い傾向があり、そのことと関係がある可能性がある。

(3) 一試料（DH-12-3）でCeの負のアノマリーが認められた。この試料はEuの負のアノマリーが比較的大きく、かつ、Th濃度も高かった。

(4) Th/U比は、殆どの試料で2~6の範囲内にあり、通常の花崗岩のレベルであったが、一試料（DH-12-4）のみ12.8と高かった。

(5) コア近隣試料間のTh濃度比およびU濃度比において、2倍以上の変動を示したのは2つのU濃度比（DH-12-3/4とDH-15-3/4）で

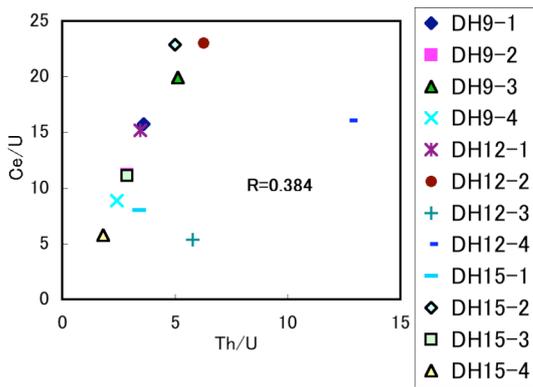


図7 Th/U比とCe/U比の相関

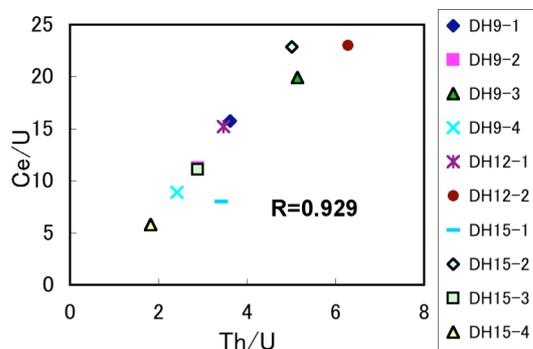


図8 Th/U比とCe/U比の相関
(DH-12-3,4を除く)

あり、近隣の試料間でも大きな変動があることが判明した。

(6) Th/U比-Ce/U比の相関より、DH-12-3及びDH-12-4はほかの試料とは異質であることが示唆された。上述のようにこの試料は、何れもTh濃度が高く、かつ一試料(DH-12-3)でCeの負のアノマリーが認められた。

参考文献

K. Doi & S. Hirono, Behavior of uranium migration in epigenetic uranium ore deposits with reference to radioactive waste isolation in geologic media, WASTE MANAGEMENT, vol.10, 275-284(1990)

超深地層研究所 地層科学研究基本計画 (JNC TN7410 2001-009), 核燃料サイクル開発機構東濃地科学センター, 2001

S. Ishihara & C. Wu, Genesis Late Cretaceous - Paleogene Granitoids with Contrasting Chemical Trends in the Chubu District, Central Japan, Bull. the Geological Survey of Japan, vol.52(10), 471(2001)