PR0031

人形峠ウラン鉱山跡地周辺におけるラジウムの地球化学的研究

○田中万也[1,5]、栗原雄一[2]、富田純平[3]、山﨑信哉[4]、徳永紘平[5]、香西直文[1,5]
（[1]原子力機構先端基礎セ、[2]長岡技科大量子原子力系、[3]原子力機構放射線管理、[4]筑波大 CRiES、[5]原子力機構人形峠セ）

はじめに

かつてのウラン(U)鉱山開発サイトを有する原子力機構人形峠環境技術センターでは、ウラン鉱石や鉱さいと天水が接触することで坑水（地下水）が定常的に発生している。こうした坑水には、二価鉄とともに一般的な環境水に比べて高濃度のラジウム(Ra)が含まれている。そのため、人形峠センター鉱さいたい積場内には、こうした坑水が流入することで Ra を含む大量の鉄水酸化物が堆積している。このような準天然環境とも言える特殊な環境は、Ra の地球化学的挙動を調べるのに適した国内唯一のサイトである。本研究では、人形峠センター内の水圏環境において Ra の地球化学的挙動評価を行った。

試料及び分析方法

2019 年 11 月及び 2020 年 11 月に、人形峠センター鉱さいたい積場において表層堆積物及び表層水試料をそれぞれ採取した。堆積物試料は凍結乾燥した後、XRD、SEM 及び化学分析に用いた。XAFS 測定用試料は、乾燥せずに測定に用いた。水試料は孔径 0.45 μm フィルターでろ過した後、硝酸添加により酸性化して ^{226}Ra 分析に用いた。^{226}Ra 放射能濃度は、Ge 半導体検出器を用いて子孫核種の γ 線強度を計測して定量した。Fe-K 吸収端及び Mn-K 吸収端 XAFS スペクトルは、Photon Factory の BL12C にて測定した。

結果及び考察

XRD 分析や XAFS スペクトル解析から、堆積物は主にフェリハイドライト及びゲーサイトなどの鉄水酸化物からなることが分かった。また、SEM 観察では堆積物中に珪藻殻が見られた。堆積物中の ^{226}Ra 濃度は、12,000～29,000 Bq/kg であった。一方、水試料(pH は 6.0 ~ 7.1)の ^{226}Ra 濃度は、60～580 mBq/L であった。これらの堆積物と表層水中の ^{226}Ra 濃度から、見かけの固液分配係数は $3.1 \times 10^4 – 3.8 \times 10^5$ mL/g と見積もられた。フェリハイドライトとゲーサイトへの Ra の固液分配係数はそれぞれ~1000 及び~300 mL/g (pH7)という実験値が報告されている(Sajih et al., 2014, *GCA*, **146**, 150–163)。したがって、鉄水酸化物と表層水の間の単純な吸着平衡では堆積物中の ^{226}Ra 濃度を説明できない。そのため、鉄水酸化物以外の Ra ホストもしくは表層水以外の Ra 供給源を考える必要がある。Mn(IV)酸化物は Ra を強く吸着することが分かっているが、XAFS スペクトル解析からは堆積物中の Mn(IV)の有無と分配係数の間に明瞭な関係は見られなかった。また、珪藻殻が Ra のホストとなることは考えにくい。残る可能性としては、微細な鉱さい片の存在や下層堆積物間隙水からの拡散による Ra 供給が考えられる。

Ra geochemistry in the Ningyo-toge mine area

*K. Tanaka[1,5], Y. Kurihara[2], J. Tomita[3], S. Yamasaki[4], K. Tokunaga[5] and N. Kozai[1,5] ([1]ASRC, JAEA, [2]Depart. of Nucl. Technol., Nagaoka Univ. of Technol., [3]Depart. of Radiat. Protect., JAEA, [4]CRiES, Univ. of Tsukuba, [5]Ningyo-toge Center, JAEA)