PR0159

$^{234}U/^{238}U$ 比を用いた珪質および珪藻質泥岩を流動する深層地下水中ウランの起源推定

○栗林千佳[1]、宮川和也[2]、伊藤茜[3,1]、谷水雅治[1]
（[1]関西学院大院・理工、[2]原子力機構、[3]九州大院・工）

ウラン同位体（$^{234}U/^{238}U$ 比）は、地下水流動を把握するための有用なトレーサーとして研究がすすめられている。U は ^{234}U と ^{238}U の半減期の違いにより、閉鎖系において約数百万年経過すると、両核種の放射壊変速度が等しくなる放射平衡が観測される。しかし、岩石中の鉱物からは ^{234}U が優先的に溶出するため、地下水中の U は放射非平衡状態である場合が多く、また、放射非平衡の程度（*AR*）は帯水層の母岩の種類や地下水年代に依存して変動する。さらに、低透水性の還元的な帯水層においては、^{238}U が優先的に U(VI)から U(IV)に還元されて UO_2 沈殿を生成することで、*AR* が増大することが知られている。本研究では、低流動性かつ還元的な北海道幌延地域の深層地下水において U の *AR* 変化を測定することで、地下水中の U の起源について考察した。

北海道幌延地域の地下水は、鮮新世～第四紀に形成した珪藻質泥岩である声問層と、中新世～鮮新世に形成した珪質泥岩である稚内層からなる低透水性の帯水層中を流動し、堆積層の形成時に間隙に取り込まれた海水に由来する塩水系地下水である。本研究では、幌延深地層研究センターの地下施設を利用し、深度の異なる 4 地点（深度 140-350 m）から、各 5 L の地下水試料を採水した。試料中の主要溶存元素を、鉄共沈法および陰イオン交換分離法を用いて除去したのち、二重収束多重検出型 ICP 質量分析装置（NEPTUNE）で $^{234}U/^{238}U$ 同位体比を測定し、壊変定数から *AR* を算出した。地下水中の U 濃度は、酢酸アンモニウムで pH 5 に調整した試料を、イミノ二酢酸官能基を修飾したキレート樹脂をフィルター状に加工したディスクに通液し、捕集した U を硝酸で溶出させて回収したのち、四重極 ICP 質量分析装置（Agilent 8800）で測定した。

分析の結果、*AR* は 2-11 の値をとり、ほぼ放射平衡状態にある *AR* ~1 の酸化的な地下水と比較して高い値を示した。また、U 濃度の逆数との間に正の相関関係が認められ、この直線関係から二成分の地下水の混合であることが示唆された。一方の端成分は、古海水およびオパール A からオパール CT への相変化の際の脱水反応により生じた水に由来する *AR* ~1 かつ高濃度の U を含む流体であり、もう一方は、UO_2 の沈殿により *AR* が上昇し U 濃度が低下した天水起源の流体であると考えられる。さらに、UO_2 沈殿が生成される還元的な地下水において *AR* がどこまで上昇するかを検討したところ、地下水中の U の溶解度を考慮すると最大二桁程度であることが示唆された。

Origin of dissolved uranium in a deep groundwater in siliceous mudstone aquifer evaluated from $^{234}U/^{238}U$ activity ratios

*C. Kuribayashi[1], K. Miyakawa[2], A. Ito[3,1] and M. Tanimizu[1] ([1]Grad. School of Sci. and Tech., Kwansei Gakuin Univ., [2]JAEA, [3]Kyusyu Univ.)