



東濃地域の堆積岩中におけるウランの 移行・保持に関する研究 —移行経路の構造と構成鉱物の収着・遅延特性に ついての検討—

花室 孝広 太田久仁雄 吉田 英一
東濃地科学センター

資料番号：93-4

Study of Nuclide Migration in Sedimentary Rocks at the Tono
Uranium Deposit — Characteristics of Flow-Path Structure
in Relation to Nuclide Sorption and Retardation —

Takahiro Hanamura Kunio Ota Hidekazu Yoshida
(Tono Geoscience Center)

動燃事業団東濃地科学センターでは、堆積岩中におけるウラン移行・保持の実例である東濃ウラン鉱床を利用し、堆積岩中における放射性核種の移行・保持現象を把握するための調査・試験を実施している。堆積岩中の移行経路については、染色試験や顕微鏡観察等により、また、ウランの化学的挙動については放射非平衡調査や収着試験により調査を行った。その結果、黒雲母中の劈開・石英や長石粒子中の微小割れ目・基質中の空隙がウランの移行経路および地下水流路として重要な役割を果たしており、還元環境下でいったん濃集したウランは、緻密な凝灰質や泥質の堆積岩中ではほとんど移行せず、長期にわたって保持される可能性の高いことが示された。

1. はじめに

動燃事業団・東濃地科学センターでは、地層処分研究開発の基盤となる地質環境に関する科学的・技術的知見の取得・蓄積を目的として、地層科学研究を実施している。

本技術報告では、地層科学研究項目の1つである地層中における物質の移行・保持に関する研究内容とその成果の一部について報告する。

東濃地科学センターの位置する岐阜県東濃地域には、東濃ウラン鉱床が存在する。ウランは、放射性廃棄物中に含まれる主要元素のひとつである。したがって、天然に存在するウランの地層中での移行・保持現象を研究（ナチュラアナログ研究）することによって、堆積岩中での物質（元素）の移行・保持に関する知見を得ることが可能である。東濃地科学センターでは、この東濃ウラン鉱床を対象に、堆積岩中での物質の移行現象のモデル化と堆積岩の有する保持能力を評価するために、

- ① 堆積岩中の物質（ウラン）の移行経路
- ② 天然ウラン系列核種の移行挙動に関する地球化学的挙動
- ③ 堆積岩中における物質（ウラン）の収着・

遅延特性

の三項目の調査・研究を進めている。以下にそれらの研究方法および結果について述べる。

2. 東濃ウラン鉱床の概要

東濃ウラン鉱床は、岐阜県東濃地域に位置する日本最大のウラン鉱床である。東濃ウラン鉱床周辺の地質は、図1に示すように、基盤の白亜紀花崗岩とこれを覆う新第三紀および第四紀の堆積岩層から構成されている。基盤の花崗岩には、かつて地表に露出していた際に、河川によって侵食を受けた痕跡であると考えられるチャンネル構造が認められる。花崗岩の上部を覆っている新第三紀堆積岩は、花崗岩の巨礫を多く含む礫岩層と、碎屑性鉱物と炭質物を多く含む凝灰質、あるいはアルコース質砂岩および泥岩層から構成されている。この堆積岩中には、石英、長石、黒雲母、緑泥石、黄鉄鉱、方解石、スメクタイト、輝沸石、斜ブチロル沸石等が主要な構成鉱物として確認されている¹⁾。

ウランの濃集は、主に前述の堆積岩と基盤の花崗岩の境界部付近の上部の、傾斜の緩いチャネル

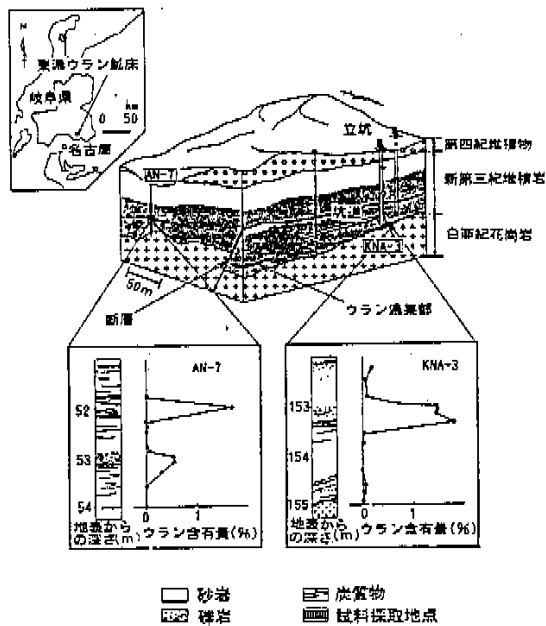


図1 東濃ウラン鉱床の地質概要

ル構造の部分に、幅数メートル規模の分布として確認されている。ウランの濃集部付近の堆積岩層中には角礫状の巨礫と炭質物が含まれていることから、その堆積岩は、河川の氾濫原や沼沢地に類似した環境で形成されたと推定されている。これまでの地質・鉱物学的調査から、東濃ウラン鉱床は、基盤の花崗岩から溶出したウランが地下水によって運ばれ、基盤を覆っている新第三紀堆積岩層中に濃集して形成されたものと考えられており²⁾、その形成年代は、フィッシュトラック法によるこれまでの年代測定の結果および地質学的な証拠から、約1000万年前と推定されている³⁾。

東濃地科学センターでは、これまでに東濃ウラ

ン鉱床の地質調査に加え、地表および坑道からのボーリングにより、地下水の水理学的および地球化学的調査も実施している。その結果、砂岩・泥岩層は、地表付近や基盤岩との境界部付近に比べて透水係数が低い ($10^{-6} \sim 10^{-8}$ cm/sec) こと、またその岩層中の地下水には酸素が溶け込んでおらず、強還元性である ($E_h = -300$ mV) ことが明らかにになっている⁴⁾。これらの地質環境特性は、ウランの長期的な保持に対して有効であると考えられている。

3. 研究方法と試験結果

堆積岩中におけるウランの移行・保持現象を把握し、モデル化に資するためには、ウランの移動しやすい部分の構造とそこで生じる地球化学的な現象に関する情報を具体的に抽出することが必要である。そのために、本研究では以下の三項目に焦点を絞って研究を展開している。

- ① 堆積構造(移行経路)とウランの分布との関係
- ② 天然ウラン系列核種の移行挙動
- ③ 堆積岩の有するウランの保持(収着)能力

まず、①の堆積構造(移行経路)とウランの分布との関係については、堆積岩の岩石組織観察と染色試験、堆積岩の岩石組織とウランの分布の相関調査およびカソードルミネッセンスによる物質の移行経路の同定を行った。②の天然ウラン系列核種の移行挙動については、長期にわたる天然ウラン系列核種の移行挙動を確認するために、放射非平衡調査を行った。また、③の堆積岩の有するウランの保持(収着)能力については、ウラン濃集部の堆積岩とその構成鉱物の収着能力および収着メカニズムを把握するために、原位置から採取した岩石と、そこから分離した主要構成鉱物を用いた天然ウランの収着試験を行った。表1に、これらの調査研究方法を研究項目別にまとめて示す。

表1 研究項目と方法

研究項目	対象場所	方法
ウランの移行経路	KNA-3 (ウラン濃集部)	- 偏光顕微鏡・SEM観察 - 染色試験 - EPMA・α-オートラジオグラフィによるウラン分布調査 - カソードルミネッセンス観察
天然ウラン系列核種の移行挙動	AN-7, KNA-3 (ウラン濃集部)	- 全岩 $^{238}\text{U}/^{238}\text{U}$, $^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 放射能比測定 - 分離鉱物 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$, $^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 放射能比測定 (石英・長石・黒雲母・黄鉄鉱・粘土鉱物・炭質物)
ウランの収着・遅延特性	AN-7, KNA-3 (ウラン濃集部・非濃集部)	^{233}Uトレーサーを用いた収着試験 (ウラン濃集部・非濃集部全岩) - 天然ウランを用いた収着試験 (ウラン非濃集部全岩/分離鉱物)

3.1 調査および試験に用いた岩石試料

今回、調査研究対象とした東濃地域の堆積岩は、顕著な割れ目の見られない凝灰質や泥質の砂岩である。前述の①～③の調査には、地表および東濃鉱山坑道から掘削したボーリングによって得られた岩石試料を用いた。図1に示すように、AN-7号ボーリングは地表から、またKNA-3号ボーリングは坑道内からウラン濃集部に向けて掘削したものである。両ボーリングサンプルから幅約数十cmで1～2wt%のウランを含むウラン濃集部が認められた。ウラン濃集部付近の岩相は、細粒～粗粒凝灰質砂岩であり、部分的に細粒化した炭質物の破片を含んでいる。ウランの濃集がほとんど認められない部分の岩相は、細粒凝灰質砂岩あるいは礫質砂岩である。

移行経路の調査には、主にKNA-3号ボーリングから得られたウラン濃集部の岩石試料を用い、放射非平衡調査には、AN-7号ボーリングおよびKNA-3号ボーリングから得られたウラン濃集部の岩石試料を用いた。また、収着試験には、AN-7号ボーリングおよびKNA-3号ボーリングから得られたウラン濃集部の岩石試料に加え、比較のために、ウランの濃集が認められない岩石試料も用いた。

3.2 ウランの移行経路に関する調査研究

移行経路の構造を把握するために、走査型電子顕微鏡 (SEM) による岩石表面構造の観察を実施した。移行経路の三次元的な連結状態は、岩石試料を用いた染色試験により把握した。また、岩石中の移行経路(空隙)とウランの分布との相関を、光学顕微鏡、 α -オートラジオグラフィおよび電子プローブマイクロアナライザー (EPMA) を用いて調査した。さらに、染色試験で確認された移行経路がウランの移行に寄与したか否かを確認するために、カソードルミネッセンスによる移行経路周辺の放射線 (α 線) 損傷についての調査も行った。これらの調査の方法および結果を以下に述べる。

3.2.1 SEMおよび染色試験による移行経路調査と結果

SEMは、岩石表面の微細な凹凸を観察することが可能である。SEMを用いた空隙の観察には、堆積岩試料の破断面を使用した。

岩石試料中における地下水等の溶液が実際に流れ得る移行経路を同定するため、染色液を岩石中に浸透させて、その浸透経路を観察する染色試験を行った。染色物質には、赤色のエポキシ系レジン

(シアノアクリレート)を用いた。岩石試料を減圧したデシケータ内で赤色レジンに浸漬させて、試料中に赤色レジンを十分に浸透させた後、岩石試料を60～80℃に加熱して、赤色レジンを固定させた。染色試験に用いた岩石試料の周縁部には、ボーリング時に人工的な亀裂が生じていると考えられることから、岩石試料の中央部から岩石薄片を作成し、顕微鏡を用いて赤色レジンの分布を観察した。

SEMによる観察の結果、堆積岩中には黒雲母の劈開面に沿った平行な隙間 (写真1(a))、石英や長石等の粒子中に見られる微小な割れ目 (写真1(b)) および鉱物粒子の間の部分の主に粘土鉱物

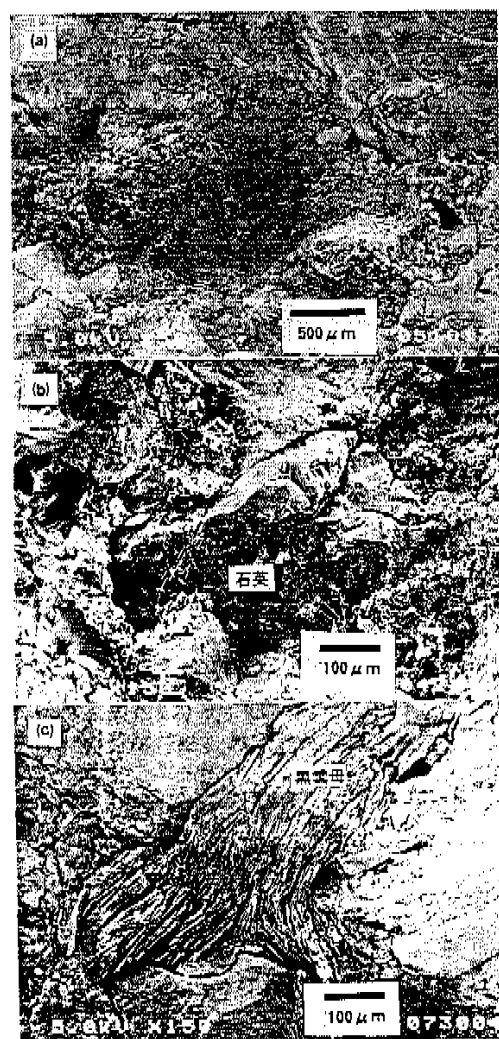


写真1 SEMによる堆積岩組織の観察

- (a) 黒雲母の劈開
- (b) 粒子中の微小な割れ目
- (c) 粒子間の隙間・基質

によって構成されている基質と呼ばれる部分の中に、認められる空隙（写真1(c)）があることが確認された。また、染色試験の結果、これらの空隙が赤色レジンによって染色されることが確認された（写真2）。

3.2.2 α -オートラジオグラフィ観察およびEPMAによる調査と結果

α -オートラジオグラフィは、岩石の試験片（ここでは岩石薄片）からの α 線発生箇所を検出板を用いて同定することによって、ウランの濃集箇所とその濃集量とを定性的に把握する手法である。

ウランを含んだ堆積岩試料から岩石薄片を作成し、その岩石薄片と α 線損傷の検出板とを密着させて一定期間静置させた後、酸で検出板の α 線損傷部を腐食させると、堆積岩中のウラン分布を示す α -オートラジオグラフ像を得ることができる。光学顕微鏡によって、 α -オートラジオグラフ像の取得に使用した岩石薄片を詳細に観察し、検出板の α 線損傷部分と鉱物の組織や構造とを対応させることで、10 μ m程度までの微視的なウラン分布を把握した。

さらに、微細なスケールでのウラン分布と鉱物組織との関係は、EPMAによって調査した（EPMAは、試料に電子線を照射した際に放射される特性X線を検出して元素の分布を特定することができる分析装置である）。EPMAによる調査では、堆積岩試料の岩石薄片からのウランの特性X線の分布を検出し、岩石試料中のより微視的なウランの分布を把握した。

α -オートラジオグラフィやEPMAを用いたウラン分布調査から、写真3に示すように、石英粒子の割れ目や鉱物粒子を取り巻く基質の部分お

よび黒雲母の劈開等の染色試験によって同定された移行経路に沿って、ウランが濃集していることが確認された。

3.2.3 カソードルミネッセンスによる観察と結果

カソードルミネッセンス像の観察は、岩石中の移行経路における天然ウランの移行の有無を調査するのに有効な手法である。天然ウランが空隙中に存在する、あるいは空隙中を移行するとき、その空隙周辺の鉱物は天然ウランから放射される α 線によって損傷を受ける。したがって、現時点でその場にウランが認められない場合においても、 α 線による損傷の痕跡が認められる空隙から天然ウランが存在・移行したことが推定できる。そのような損傷を受けた部分は、電子線の照射により得られるカソードルミネッセンス像によって同定することが可能である^{5),6)}。この調査においては、染色試験結果との比較を行うために、染色試験に用いたものと同一の岩石薄片を使用した。

カソードルミネッセンスによる観察の結果を写真4に示す。カソードルミネッセンスは、ウラン濃集部の特に、石英粒子の周縁部および粒子中の微小な割れ目に沿って認められた。また、微小な割れ目には、赤色の染色液が同様に認められた。ただし、今回の観察では、石英以外の鉱物ではカソードルミネッセンスを確認することはできなかった。

3.3 天然ウラン系列核種の移行挙動に関する地球化学的調査研究

3.3.1 調査研究方法の概要

天然ウラン系列核種の堆積岩中における移行挙動を地球化学的に把握するために、ウラン系列核

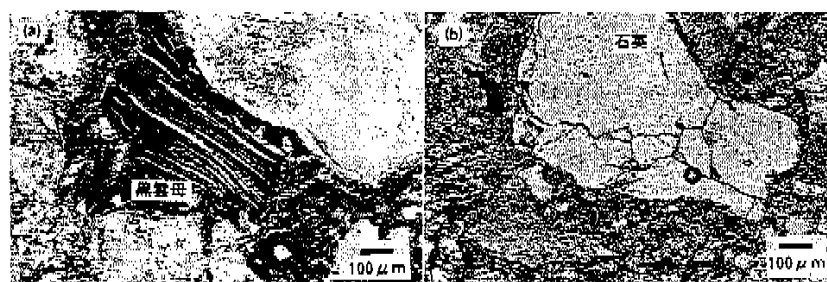


写真2 染色試験の結果
(a) 黒雲母の劈開
(b) 粒子中の微小な割れ目

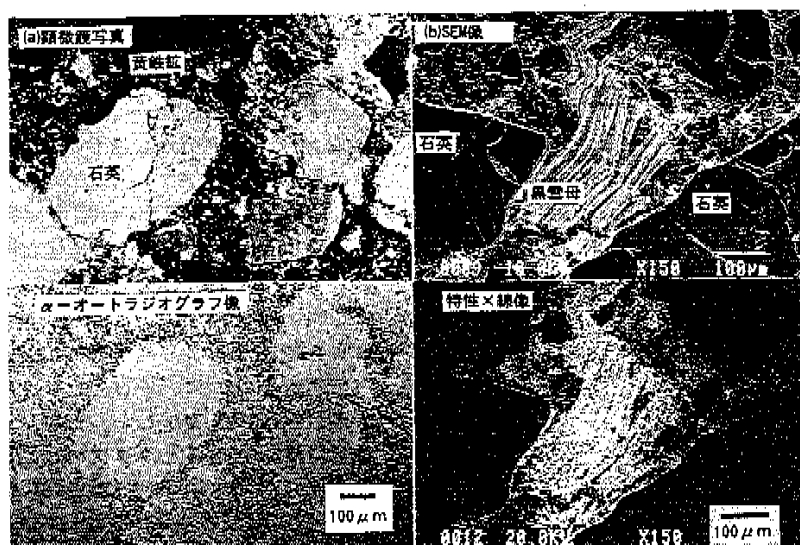


写真3 堆積岩中のウランの分布

- (a) α-オートラジオグラフ像
(b) EPMAによるウランの特性X線像

種 (^{238}U 、 ^{234}U 、 ^{230}Th) の放射非平衡調査を実施した。天然に存在する ^{238}U は44.7億年という長い半減期を持ち、半減期24.8万年の ^{234}U 、さらに半減期7.5万年の ^{230}Th に壊変してゆく。 ^{238}U の半減期は、その娘核種の半減期に比べて著しく長い。ため、娘核種の壊変速度は親核種である ^{238}U の半減期によって規制される。したがって、すべてのウラン系列核種が閉鎖系で長期にわたって安定に存在している場合には、娘核種の壊変速度は ^{238}U のそれに等しくなる。この場合、それぞれのウラン系列核種の放射能強度は等しくなり、核種間の放射能強度の比は1となる（この状態を放射平衡であるという）。一方、娘核種の壊変速度がそれぞれ異なり、ウラン系列核種の選択的な溶脱や濃集によって、娘核種ごとに放射能強度が異なる状

態を放射非平衡であるという⁷⁾。

放射非平衡状態の ^{238}U 、 ^{234}U 、 ^{230}Th が閉鎖系で長期間、安定に存在した場合、それらのウラン系列核種が放射平衡に達するためには、約170万年が必要となる。したがって、ウラン系列核種の放射能強度を測定し、それらの比を検討することによって、過去約170万年間のウラン系列核種間の相対的な挙動を把握することが可能となる。

堆積岩中において、地下水（空隙水）中のウラン系列核種は移行経路付近の鉱物表面と接し、収容や溶解・沈殿等の地球化学的な反応を起こすと考えられる^{8,9)}。したがって、堆積岩の構成鉱物ごとのウラン系列核種の放射非平衡調査を行い、構成鉱物中の過去約170万年間におけるウラン系列核種の選択的な移行挙動の違いを測定・把握した。



写真4 カソードルミネセンス像

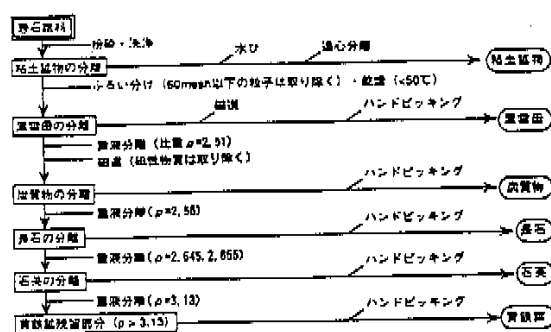


図2 構成鉱物の分離手順

放射非平衡調査にあたっては、堆積岩全岩の放射能強度の測定に加えて、堆積岩試料中の主要構成鉱物である石英、長石、黒雲母、粘土鉱物、炭質物を分離し、鉱物ごとに放射能強度の測定を行った。これらの鉱物は、図2の手順にしたがい、500~700gの堆積岩試料の粉碎(250 μ m以下)、水び、ポリタングステン酸ナトリウム(重液)、磁選によって分離した。また、 ^{238}U 、 ^{234}U 、 ^{230}Th の放射能強度は、日本工業規格(JIS)の方法にしたがい、分離した鉱物試料約1gを ^{232}U - ^{228}Th のスパイク溶液とともに過塩素酸-硝酸-フッ酸の混酸で分解し、溶液中のU、Thを陰イオン交換および溶媒抽出により分離した後、測定を行った。

3.3.2 調査研究結果

堆積岩全岩および主要構成鉱物ごとのウラン系列核種間の放射能比($^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 、 $^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$)の測定結果を図3に示す。全岩の放射能比は誤差(2 σ)の範囲内で1.0の値を示している。一方、黄鉄鉱を除くそれぞれの構成鉱物の $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ -

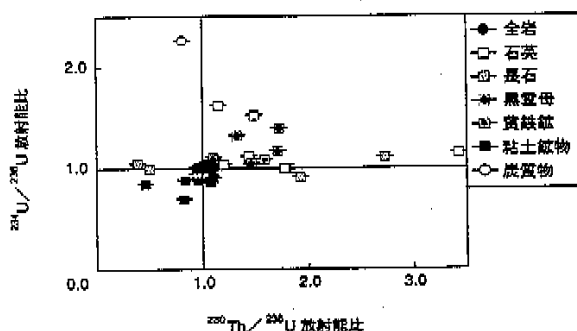


図3 堆積岩全岩および主要構成鉱物の放射非平衡調査結果

$^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 放射能比は、放射平衡状態を示す1.0の値からずれており、これらの構成鉱物中のウラン系列核種は放射非平衡の状態にあると考えられる。また、構成鉱物ごとでも異なる放射能比を示しており、非平衡の状態が一様でないことが認められた。

3.4 ウランの収着・遅延特性に関する調査研究

3.4.1 調査研究方法

収着・遅延特性に関する調査研究では、ウラン含有量の違いによる堆積岩の収着・遅延能力の違いを調べるために、 ^{233}U トレーサーを用いたバッチ式収着試験を実施した。試験には、ウランの濃集した堆積岩試料とウランの濃集していない堆積岩試料を用い、表2の条件で試験を行った。試験終了後の溶液は、0.45 μ mおよび分画分子量10,000のフィルタによってろ過して、懸濁物質およびコロイド粒子を取り除いた後、 ^{233}U の濃度分析に用いた。収着係数(Rd)は、以下の式(1)により求めた。

$$\text{Rd}[\text{ml/g}] = \text{Cr/Cs} \quad (1)$$

Cr: 試験後の岩石中の単位質量(g)あたりのトレーサー含有量

Cs: 試験後の溶液中の単位体積(ml)あたりのトレーサー濃度

また、堆積岩の持つウラン収着能力と堆積岩の透水性との関連を調査するために、収着試験を実施した堆積岩試料と同一の層準から採取した岩石試料について、透水係数と有効間隙率を測定した。透水係数は、原位置の圧力条件を模擬した三軸圧縮系において、定常圧法およびトランジェントパルス法によって測定した。

さらに、酸化・還元条件の違いによる構成鉱物ごとのウラン収着能力の違いを調べるため、ウランの濃集していない堆積岩と、その岩石から分離した構成鉱物(石英・長石・黒雲母)を用いた

表2 ^{233}U を用いたバッチ式収着試験条件

トレーサー	^{233}U
地下水溶液の体積	50ml
溶液の初期濃度	$5.0 \times 10^{-7} \text{mol/l}$
試料	凝灰質砂岩 (ウラン濃集部・非濃集部)
粒度	<710 μ m
試料重量	20.0g
雰囲気条件	窒素ガス
測定時間(日)	7・14・33・60

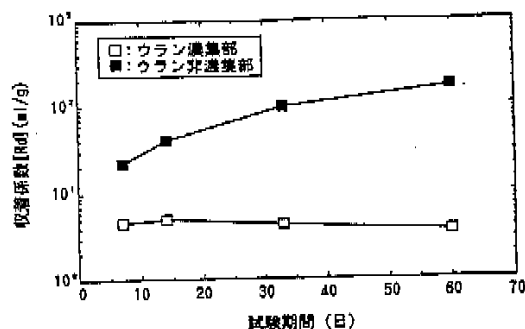


図4 ウランの収着係数の経時変化

バッチ式収着試験も行った。この試験においては、ウランの濃集した堆積岩から地下水にウランを溶脱させて作成した天然ウランの溶液をトレーサーとして使用した。試験は、それぞれ、酸化（大気下、 $E_h = +300\text{mV}$ ）および還元（芽胞気制御下、 $E_h = -350\text{mV}$ ）の条件下で実施した。試験後の溶液は、 $0.45\mu\text{m}$ フィルタでろ過し、ウランの濃度を求め、前述のように、式(1)により収着係数(Rd)を算出した。

3.4.2 調査研究結果

^{233}U トレーサを用いたバッチ式収着試験の結果を図4に示す。試験の結果、 ^{233}U の収着係数はウランの濃集していない堆積岩で $59\sim 170\text{ml/g}$ 、濃集部の堆積岩で $3.6\sim 4.4\text{ml/g}$ となり、ウランの濃集していない堆積岩の方が、ウラン濃集部の堆積岩よりも大きなウラン収着能力を持つことがわかった。

また、図5で示すとおり、ウラン濃集部の堆積岩の透水係数（ $10^{-8}\sim 10^{-7}\text{cm/sec}$ ）はウランの濃集していない堆積岩の値（ $10^{-11}\sim 10^{-10}\text{cm/sec}$ ）に比べて、2～3オーダー高い値を示した。

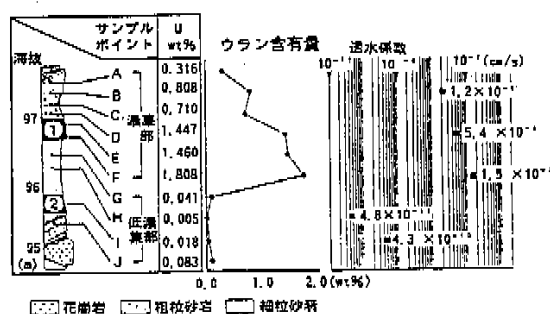


図5 ウラン含有量と透水係数の関係

表3 天然ウランを用いたバッチ式収着試験の結果

	収着係数(ml/g)	
	酸化条件	還元条件
凝灰質シルト岩	14	170
凝灰質中粒砂岩	1	300
凝灰質細粒砂岩	2	1,000
炭質物を含む凝灰質泥岩	30	1,800
石英	<1	5
黒雲母	2	8,000
炭質物	200	—

次に、天然ウランを用いたバッチ式収着試験の結果を表3に示す。試験の結果、還元条件における堆積岩および主要構成鉱物に対するウランの収着係数は、酸化条件の場合よりも2～3オーダー大きな値を示すことから、堆積岩および主要構成鉱物は、還元環境下でより高い収着能力を示すことがわかった。さらに、構成鉱物ごとにウラン収着能力が異なっていることも明らかとなった。

4. 考察

4.1 ウランの移行経路

SEMによる観察の結果から、黒雲母の劈開、石英や長石等の粒子中に見られる微小な割れ目および基質中の空隙が、堆積岩中に見られる主要な空隙構造であることがわかった。また、これらの空隙が赤色レジンによって染色されることから、三次元的に連結していることが確認された。さらに、石英・長石等の粒子中に見られる微小な割れ目および基質中の空隙では、二次鉱物である方解石が晶出していることも確認されている。これらの結果より、堆積岩中には $10\sim 100\mu\text{m}$ スケールの三次元的に連結した空隙が存在しており、この空隙は物質の移行経路としての役割も果たすものと考えられる。

α -オートラジオグラフィやEPMAを用いたウラン分布調査からは、上述の移行経路に沿ったウラン分布が確認された。この結果から、ウランは上述の空隙を通して移行し、空隙に沿って濃集したと考えることができる。

また、石英粒子の周縁部および粒子中の微小な割れ目に沿って分布するカソードルミネッセンスの存在により、石英粒子の周縁部および粒子中の微小な割れ目に沿ってウランが移行し、一時的に保持されていたことが推定される。

以上の結果から、これまでの調査によって、

- ・黒雲母の劈開
- ・石英や長石粒子中の微小な割れ目
- ・基質（粘土鉱物が充填）中の空隙

の三つのタイプが、堆積岩中の物質移行経路として重要な役割を果たしてきたと考えることができる^{10,11)}。

4.2 ウラン系列核種の移行挙動

堆積岩全岩のウラン系列核種が放射平衡状態を示す一方で、黄鉄鉱を除くそれぞれの構成鉱物中のウラン系列核種では、放射非平衡状態を示す結果が得られた。また、構成鉱物ごとにそれぞれの放射能比が異なることから、過去約170万年間に構成鉱物ごとに異なった岩石-地下水間の反応が、ウランの溶脱や濃集に関与してきたと考えられる^{12,13)}。

粘土鉱物の $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比は1.0よりも小さく、一方、炭質物の $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比は1.0よりも大きな値を示した。これらの鉱物における放射非平衡は、 ^{238}U の崩壊に伴う α 反跳効果¹⁴⁾による ^{234}U の選択的な移行によるものと考えられる。つまり、粘土鉱物からは ^{234}U が選択的に溶脱し、逆に、炭質物では ^{234}U が選択的に濃集していることが推定される¹⁵⁾。また、炭質物では $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ の放射能比が1.0よりも小さいため、 ^{234}U の濃集が ^{230}Th と ^{234}U の放射平衡に要する時間よりも短い時間に起こったことが推定される。黒雲母および石英の $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比は1.0よりも大きく、これらの鉱物において ^{234}U の選択的な濃集が推定されるが、 $^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 放射能比も1.0からずれているため、ウランの濃集と溶脱のプロセスが複合して起こったと考えられる。また長石においては、 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比がほぼ1.0であり、 $^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 放射能比の値の1.0からのずれが大きいことから、ウランの溶脱や濃集が ^{230}Th と ^{238}U の放射平衡に要する時間よりも短い時間内に起きたことが推定される。その一方で、黄鉄鉱は放射平衡の状態にあることから、黄鉄鉱中に存在するウランは、過去約170万年間、閉鎖系が保たれていることが推定される。黄鉄鉱の周囲には、4.1章で示したような移行経路が認められず、黄鉄鉱へのウランの濃集は、黄鉄鉱の生成（還元環境での形成）と密接な関係にある^{11,16)}と考えられることから、黄鉄鉱中のウランは、黄鉄鉱の形成時に濃集してから現在まで保持されてきたものであると考えられる。

以上の結果から、還元環境下における過去約170万年間の堆積岩中のウラン系列核種の移行挙動

は、構成鉱物ごとには異なるものの、堆積岩全岩においては放射平衡が保たれていることから、少なくとも調査対象とした堆積岩試料サイズ（cm～数十cmオーダー）においては、ウラン系列核種は大きく移行していないものと考えられる。このことは、凝灰質や粘土質の緻密な堆積岩中では、ウランは鉱物間の微小なスケールでは移行しうるものの、全体としてはほとんど移行しないことを示唆するものである。

4.3 ウランの収着・遅延特性

^{233}U トレーサーを用いたバッチ式収着試験の結果、ウランの濃集していない堆積岩の方が、ウラン濃集部の堆積岩よりも大きなウラン収着能力を持つことがわかった。このことは、ウランの濃集していない堆積岩では、まだウランに対して飽和状態に達していないことを示すものと考えられる。その一方で、すでにウランが濃集している堆積岩では、ウランに対してほぼ飽和状態に達しており、ウランの収着サイトが少なくなっているために、それ以上ウランを収着させることができないものと推定される。

また、ウラン濃集部の堆積岩の透水係数がウランの濃集していない堆積岩の値よりも2～3オーダー高い値を示すことから、天然ウランは、堆積岩中において移行経路の発達した部分に濃集することが推定される。したがって、堆積岩中のウランの保持現象は、堆積岩の収着能力が高い場合には、地下水とともにウランが移行することができると選択的な移行経路の有無に大きく影響されると考えられる。

天然ウランを用いたバッチ式収着試験の結果、堆積岩および主要構成鉱物は、還元環境下でより高い収着能力を示すことがわかった。この結果は、溶液中に存在するウランの化学種の酸化還元条件による変化に伴って、ウランの主要な収着メカニズムが変化することに起因するものと考えられる。さらに、収着試験の結果、構成鉱物ごとにウラン収着能力が異なっていることも明らかとなった。主要構成鉱物の中でも、黒雲母、炭質物はウランの収着能力が大きく、これらの鉱物が堆積岩全岩のウランの収着・保持に強く関与していると判断できる。さらに黒雲母においては、これまでのEPMA、SEMおよびX線回折を用いた表面観察や鉱物調査によって、ウランの一次鉱物（コフィナイト）と考えられる鉱物が同定されており¹⁷⁾、鉱物化が長期的な保持メカニズムの一つとしての役割を果たしているものと考えられる。

5. おわりに

東濃地科学センターにおいて現在進められている、東濃ウラン鉱床を利用した物質の移行・保持に関する研究のこれまでの成果は、

- (1) 堆積岩中におけるウランの移行経路は、①黒雲母の劈開、②石英・長石粒子中の微小割れ目、③粘土鉱物が充填した基質中の3タイプの空隙が、ウラン等の物質(元素)の移行経路として重要な役割を果たしていること、
- (2) 還元環境下でいったん濃集したウランは、緻密な凝灰質や泥質の堆積岩中ではほとんど移行せず、長期にわたって保持される可能性が高いこと、

の2つに大きく取りまとめられる。

(1)に示した移行経路に関する研究成果は、堆積岩中の物質移行現象のモデル化において、移行経路の概念モデルの構築に必要な不可欠な情報である。また、(2)の還元環境下におけるウランの化学的な挙動に関する研究成果は、還元状態での放射性核種の長期間におよぶ貴重な情報として、今後の室内実験方法やデータの解釈に反映されなければならない。

今後、東濃地科学センターでは、これらの堆積岩中における物質(元素)の移行挙動に関する知見を基に、野外観察・原位置および室内試験・モデル化の総合的研究を展開して行く予定であり、地質環境中での物質移行現象がより具体的に体系化できるものと考えている。

6. 謝辞

本研究を進めるにあたり、スイスNAGRAのDr. I. McKinleyおよびDr. R. Alexanderから有益な助言を頂いた。また、金沢大学理学部の中西助教授には、放射非平衡調査結果の議論に参加して頂いた。以上の方々に厚く感謝の意を表します。

参考文献

- 1) 湯佐泰久、柳澤孝一、他：地質科学研究 2、中部事業所における調査試験研究、動燃技報、85、130-149 (1993)。
- 2) 山本 勇、塩田哲也、他：東濃地域のウラン鉱床の探鉱について、鉱山地質、24、157-168 (1974)。
- 3) Ochiai, Y., Yamakawa, M., et al.: Natural analogue study on uranium deposit in Japan. In: Coma, B. and Chapman, N.A. (eds.) CEC Natural Analogue Working Group 3rd Meeting, Snowbird, USA, 15-17 June 1988, CEC Nuclear Science and Technology Report, EUR112725EN, 126-138 (1989)。
- 4) Yusa, Y., Ishimaru, K., et al.: Geological and geochemical indicators of paleohydrogeology in Tono uranium deposits, Japan. In: Paleohydrogeological Methods and their Applications, NEA Workshop, Paris, 9-10 Nov. 1992, 117-146 (1993)。
- 5) Morton, R.D.: Cathodoluminescence applied to uranium exploration, Nuclide Spectra 11, 1 (1978)。
- 6) Meunier, J.D., Sellier, E., et al.: Radiation-damage rims in quartz from uranium-bearing sandstones. J. Sed. Petrol. 60, 53-58 (1990)。
- 7) Ivanovich, M., Harmon, R.S. (eds.): Uranium-series Disequilibrium: Applications to Earth, Marine, and Environmental Sciences (2nd edn.). Clarendon Press, Oxford (1992)。
- 8) Bear, J.: Dynamics of Fluids in Porous Media. Amer. Elsevier, New York (1972)。
- 9) 動燃事業団：高レベル放射性廃棄物地層処分研究開発の技術報告書—平成3年度、PNC TN1410 92-081 (1992)。
- 10) Yoshida, H., Yui, M., et al.: Flow-path structure in relation to nuclide migration in sedimentary rocks. —An approach with field investigations and experiments for uranium migration at Tono uranium deposit, central Japan. J. Nucl. Sci. Technol. 31, 803-812 (1994)。
- 11) Yoshida, H., Kodama, K., et al.: Role of microscopic flow-paths on nuclide migration in sedimentary rocks. —A case study from the Tono uranium deposit, central Japan. Radiochim. Acta 66/67, 505-511 (1994)。
- 12) Thiel, K., Vorwerk, R., et al.: ^{235}U fission tracks and ^{238}U -series disequilibria as a means to study recent mobilization of uranium in Archaean pyritic conglomerates. Earth Planet. Sci. Lett. 65, 249-262 (1983)。
- 13) Scott, R.D., McKenzie, A.B., et al.: The interpretation of ^{238}U - ^{234}U - ^{230}Th - ^{226}Ra disequilibria produced by rock-water interactions. J. Geochem. Explor. 45, 323-343 (1992)。
- 14) Kigoshi, K.: Alpha-recoil thorium-234: dissolution into water and the uranium-234/uranium-238 disequilibrium in nature. Science 173, 47-48 (1971)。
- 15) Ota, K., Kodama, K., et al.: Geochemical interactions in relation to natural uranium migration in sedimentary rocks at the Tono uranium deposit, central Japan. In: Abst. Scientific Basis for Radioactive Waste Management, XIII, Kyoto, 23-27 Oct. 1994 (1994)。
- 16) Worsjö, P., et al.: Interaction between aqueous uranium (VI) and sulfide minerals: spectroscopic evidence for sorption and reduction. Geochim. Cosmochim. Acta 58, 2829-2843 (1994)。
- 17) Yoshida, H.: Relation between U-series nuclide migration and microstructural properties of sedimentary rocks. Appl. Geochem. 9, 479-490 (1994)。