

## 資 料

551.49 : 550.4

### 放射 性 水 理 地 質 学 (その 1)

A. N. Tokaref

A. V. Shcherbakof

小 西 善 治 訳

#### 放射性元素の含量が高いが分散状態を示す岩石類\*

この種岩石類には、まず第一にウラン、ラジウムの含有量が高いが、分散状態で存在し、かつ多少均一に分布し、時には著しく濃縮している岩石類が属する。この種岩石類にはある種頁岩・褐炭・石灰岩・泥炭・鉄珪酸塩類岩石が属する。この種岩石中におけるウランの濃縮は、主として同時性特性を帯び、吸着・陽イオン交換・共沈・還元過程において生成される。

ウラン化合物が沈殿物中に沈積する主要過程は次のようである。

1. ウラン水酸化物の加水分解と凝固 ( $UO_2(OH)_2$  と  $Al(OH)_3$  化合物の pH の値がきわめて近似 (pH がそれぞれ 4.2~4.1 の場合) している場合には、ウランは主として粘土質岩石類によつて同化される。

2. 吸着過程 この過程は鉍物の生成を伴わないで、粘土質岩石類、とくに oil shale 中にウランが濃縮するさいに大きな役割を演ずる。しかしこの過程では一般的にみて、ウランの高濃集が形成されない。

3. 錯イオン—ウラン化合物の溶解度で条件づけられる一の破壊、それに伴う単純な、かつ一層不溶性化合物の形成。この場合、炭酸塩と共沈する条件下では、ウランの完全沈殿は黄鉄鉍の沈積によつて起きる。

4. 6 価ウランの 4 価ウランへの環元と、それと関連性のある 4 価ウラン化合物の加水分解

5. 難溶性塩—バナジウム酸・磷酸塩・砒酸塩・炭酸塩および珪酸塩—の形成

沈積岩および変成岩におけるウランの含量は、放射性元素の含量の上昇を伴い (分散状態を示し)、ウラン  $n \cdot 10^{-2}\%$ 、ラジウム  $n \cdot 10^{-3}\%$  に達する。

#### 放射性元素が濃集し、鉍物の生成を伴う岩石類

この種の岩石類にはまず第一にそれぞれ熱水成鉍床と水成鉍床を形成する岩石類が属している。鉍石中におけるウランの含有量は 1 万分の 1 から 100 分の 1 にわたり、平均組成は 1 千分の 1 である。ラジウムの含量は  $n \cdot 10^{-10}\%$  から  $n \cdot 10^{-7}\%$  にわたり、平均  $n \cdot 10^{-8}\%$  に等しい。

後火山作用期および後ペグマタイト生成期の生成産物には含ウランスカレンが入れられるであろう。この種生成物中ではウランは稀有のまた普通にみられない珪酸塩鉍物の型態で存在するか、ウランが溶解しうるような鉍物中では、類質同像混合物の型態で含み、最後には閃ウラン鉍またはピッチブレンドの型態で認められる。

熱水性相で最も頻繁にみられるウラン沈殿物—この相で沈殿する唯一の内力的ウラン鉍物は閃ウラン鉍である。しかしこの相で酸素が対应的に濃集する場合には、6 価ウラン、例えばゴム石、ある種のウラン珪酸塩・ウラン磷酸塩が形成される。すべての熱水成ウラン鉍物の沈殿温度は  $250^\circ$  以下である。

稼採対象となる主要ピッチブレンドの生成温度は高くないから、温度変化によつてコロイド

\* A. H. Токарев, A. B. Щербаков: Глава 1 Условия обогащения природных вод радиоактивными Элементами, Радиогидрогеология, p. 19~43, 1956

型態の酸化ウランの迅速沈殿を解明できない。Scherbina によればこのような現象が起きる最も確率度の高い事実としては、揮発物質、とくに炭酸の喪失を起こす顕著な圧低下があげられるであろう。その量はきわめて大きく、その partial pressure も対応的に高く、次反応式で見られるような化学的反応が進行する。



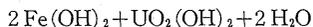
多量の炭酸が存在すると、熱水溶液中のウランは可溶性ウラン・炭酸塩質錯塩—おそらくウランの 5 炭酸塩  $[\text{U}^{4+}(\text{CO}_3)_5]^{6-}$  の型態で搬出が促進される。鉱脈が open の状態か、あるいは割れ目の空隙中に水溶液が浸透する場合には、造気相の存在によって条件付けられている溶液には、圧の顕著な低下が起こり、そのために炭酸および過熱水蒸気が放出され、ウランの炭酸塩質錯塩は分解して酸化ウランが遊離する(水和作用の程度による)。

ピッチブレンドの生成される第二の可能な方法は、熱水溶液中可溶性のウラン化合物が水媒質の pH の変化影響—母岩(とくに炭酸塩類)との化学反応によって起きる—下で分解する場合である。

ピッチブレンドが沈殿する第三の方法は、さまざまな要因の作用下でウランゾルが凝固する場合である。

- 1) 重炭酸カルシウムの溶解によってウラン・珪酸ゾルが凝固し、しばしば出会する炭酸塩・石英・ピッチブレンド鉱脈を形成する。
- 2) 銅硫化物を媒介として同種ゾルが凝固し、黄銅鉱・ピッチブレンド鉱床の生成が誘導される場合。
- 3) 多孔質岩石(とくに砂岩)を媒介としてウランゾルの凝固が起きる場合。

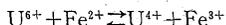
最後にピッチブレンドが沈殿・生成される第四の可能な方法としては、鉄との相互作用の結果として酸化ウランが溶液から沈殿する場合があげられる(メルコフのデータ)。この場合次の酸化・還元反応が行なわれる。



熱水成閃ウラン鉱はピッチブレンドと異つて晶出過程で生成され、そのさいウランは温度の低下に伴つて溶解度が低下するために弱過飽和溶液から供給される。鉱体中におけるこの種鉱物の分布にみられる相対的均質性と規則性とは鉱物の沈殿の逐次性を物語っている。このことについては鉱物の結晶構造が裏づけている。

Scherbina は熱水性ウラン鉱床の生成について次の点を指摘している。

1. ウランの熱水鉱床は構造擾乱地帯に賦存する。
2. ウランの移動はアルカリが過剰に濃集した珪酸水溶液中で起きる。たゞし多量の  $\text{CO}_2$  が存在することを必要とする。
3. ウランはきわめて可溶性の化合物系を形成する。(1) 4 価型態 (2) 珪酸塩・炭酸塩・アルカリ錯化合物の型態 (3) 6 価型態で運び出される。
4. ウラン硫化物を全く欠くこと、ピッチブレンドには加水分解の跡およびコロイド型態の特性がみられることは、水酸化物の型かまたは可溶性アルカリ・炭酸塩化合物の型かで、ウランがコロイド状移動を行なうことを示すものである。
5. ウランの沈殿に必要な条件は次のようである。
  - 1) 圧低下  $\text{CO}_2$  の部分喪失、これと関連性のある炭酸塩質錯化合物の分解と加水分解
  - 2) ある種母岩との相互作用の結果として生じる pH 値の変化。それと関連性のあるゾルの破壊—4 価ウラン化合物の迅速沈殿
  - 3) 沈殿剤として鉄酸化物の活発な干与(反応過程)。



6. ウラン鉱物類の遊離は、時間的にも、空間的にも、硫化物と無関係に発生し、多相性で特徴付けられる。

水成ウラン鉱床中で、最も稼行価値をもっている鉱床は、含ウラン炭素質物質鉱床・ウラン頁岩鉱床およびウラン・バナジン酸塩鉱床である。

ウラン炭素質物質の生成は、浅い淡水集水盆地に起こり、その盆地には、酸性火成岩塊が分布している。この種火成岩中を流れる水によつて、盆地の給水——この給水過程は媒質の緩徐な交換(水と岩石)と還元性特性とで特徴付けられる——が行なわれる。Scherbina が指摘しているように、ウランによる炭素質物質の富化は次のようにして起きる。

- 1) 可溶性ウラン塩の有機化合物——例えば石炭・泥炭——への収着。
- 2) 6価ウラン化合物の4価ウラン化合物への還元、加水分解による黒色粉状ウランの生成
- 3) 含ウラン難溶性磷酸塩の沈殿と含ウラン腐食岩の生成

最後の2過程は含ウラン腐食岩が還元能力をもっているから同時に進行する。この場合酸性(媒質)反応からアルカリ媒質反応へ変わるので、還元能力はウランの酸化・還元電位の同時的低下に伴つて増大する。好ましい条件下では、6価ウランの電位と腐食岩の陰イオンの電位との相関関係は、限界に達し、4価ウランへのウランの還元が始まる。この場合ウランは、黒色粉状ウラン型態で沈殿し、主として微粒分散状態で腐食物と共生して産出する。

ウラン頁岩例えば Dictyonema 頁岩の生成は、公海の家盆——その海底は還元環境で特色付けられる——地域に起きる。ウランによる頁岩の富化は次のようにして行なわれる。

- 1) ウランの4価化合物への還元とその加水分解。
- 2) 頁岩を構成する粘土質、有機物質によるウラン化合物の収着、この場合有機化合物の同時生成が考えられる。

Altguzen によれば、Dictyonema 頁岩のウラン源としては、海水のみがあげられる。すなわち酸性火成岩塊が海水に洗われて、ウランが沈殿したものである。

ウラン・バナジン酸塩鉱床については、多くの研究・調査データによると、分散状態の初成ウラン・バナジン酸塩の濃集体が浅い縁大陸海の頗海地帯に形成され、そこにウラン・鉄およびバナジウムの硫酸塩・炭酸塩および水酸化物の溶液が流入した。次で有機物質を媒介として収着・還元過程が進行し、この溶液から黒色粉状ウラン・バナジウム・鉄硫化物  $3\text{FeS}\cdot\text{V}_2\text{S}_5$ 、黄鉄鉱および白鉄鉱が沈殿した。その後ウラン鉱石はすでに地質構造の形成後に地下水によつて初成分散性ウラン鉱化作用産物の再配列が起こり、その影響を受けて富化され、現在みられるような鉱床が形成されたのである。

#### ラジウムのみが二次濃集を示す岩石類

この種岩石類には、ラジウムのみが二次濃集している岩石類がある。この種岩石類は、普通局部的に、かつ狭い範囲に形成されるものである。この種岩石の生成は、(1) 透水性割れ目壁におけるラジウムの収着、(2) 粘土質洪積層・石灰・凝灰質堆積物および鉄・マンガニ質堆積物中におけるラジウムの収着とに連関性がある。

#### 放射性元素の初成移動

さまざまな放射性元素の放射学的特性および化学的特性が異なるので、岩石中における放射性元素のさまざまな挙動が誘導される。岩石中における放射性元素の存在問題の研究は、Starik によつて行なわれた。Starik の研究の基礎をなしている主要な理論的前提は次のようである。

1. ウラン・トリウム・プロトアクチニウムの放射性系列の3母体元素は、長い半減期(長い寿命)をもち、その寿命は鉱物および岩石の生成期にマグマまたは溶液中に存在できた程度の長さである。したがつて放射性元素の母体元素は、鉱物の結晶格子のなかにはいりうる。
2. いわゆる3母体元素から形成される残余のすべての放射性元素は、地質学的時間尺度の立場からみると、短い寿命をもっている。したがつて現在鉱物および岩石中にみられるこの種原子は、鉱物・岩石の形成に生成されたものである。
3. ウラン・トリウム・プロトアクチニウムから生成される放射性元素は、結晶化学的性質

が母体元素のそれと異つている。

4. 放射性元素は、 $\alpha$  粒子の原子核からの放出ととくに関連性をもっている。すなわち先行原子は結晶格子中に占めていた位置から、新形成元素によつて“たたき出される”(反応効率現象, reactive efficiency phenomenon)。

このような放射性元素の挙動の論理的帰結として、岩石中における放射性元素の次のような(可能な)存在型態が考えられる。すなわち放射性元素の原子——ウラン・トリウム・プロトアクチニウム——が鉱物の結晶格子中にはいつているものとしよう。次にその崩壊産物の原子が、最初の3元素の同位元素の型態で出現しなければ、放射性崩壊産物は、結晶格子中に存在しないであろう。しかしこの種の崩壊産物は、擾乱帯および空所——このような箇所は水で満されていることは明らかである——に、あるいは毛細裂(註1)中に濃集するはずである。

ウラン・トリウム・プロトアクチニウムおよびその同位元素は、鉱物の結晶格子中に普通存在するから、岩石から水へのこの種元素の移行は、鉱物の溶解現象と結び付いている(Starik は第一種移動と名付けている)。したがつてウランが岩石から水へ移行する場合には、溶解度に全般的に影響を及ぼすあらゆる要因、例えば化学的組成、溶液の酸度、遊離酸素の量、温度等が影響するはずである。

上述3放射性元素の崩壊産物(ラドン・ラジウムおよびその同位元素)は、岩石の毛細裂かに、部分的には溶液中に、部分的には毛細裂か壁に附着状態で存在する。したがつて岩石から水への移行は、鉱物の溶解と関連性をもっていない(第二種の移動と呼ばれている)。エマネシオン同位元素の移動は、エマネション化過程、すなわち岩石中に含まれている母体元素から生成される放射性エマネシオンの遊離(岩石から)状態によつて決定される。

ラジウムとその同位元素との岩石から水への移行は、岩石の侵出によつて起きる。侵出過程の本質は、結晶格子が全体として乱されずに、鉱物の構成元素の溶液へ移行することである。

侵出化作用は、普遍的な現象である。そのうえ侵出は、他の自然現象の全系と関連性をもっている。侵出化作用が働くと、放射平衡は乱される。ラジウムは、ウラン鉱物から移動し、この鉱物内では、ラジウムの不足が起きる。二次ウラン鉱物の侵出過程はとくに強烈に現われ、そのために多量のラジウムが移動する。この場合鉱物中に残存するラジウムは、ウランと放射性平衡下に存在していたはずの量の10~15%にすぎないことがしばしばみられる。

侵出過程は、3階梯からなることが考えられる。

- 1) ラジウムとその同位元素は、反応効率によつて、岩石の“毛細”裂か——水で満されている——に濃集する。
- 2) 溶液中のラジウムと“毛細”裂か壁のラジウムとの間には、附着平衡が成立する。
- 3) 拡散によつて平衡が成立する。すなわち

毛細裂か水中の  $Ra$  ⇌ 静水圧水 (gravity water) 中の  $Ra$

毛細裂かから静水圧水へのラジウムの拡散は、きわめて緩慢に行なわれる。このことは、繰り返し侵出による侵出容量 (leaching capacity) の低下が裏付けている。拡散平衡は、1年を経過しても成立しない(第7表)。

第7表 繰り返し侵出による岩石からのラジウムの抽出実験

試料 (No.)	繰り返し侵出実験期間	侵出ラジウム量
1	実験開始期	0.0150
2	13 日後	0.0088
3	26 日後	0.0040
4	15 カ月	0.0073

註1) こゝでは毛細裂かは、必然的に毛細管的特性を示さない岩石のさまざまな空所・空隙をも含める。

毛細裂かから静水圧水へ拡散するラジウムの拡散速度は、岩石粒の比表面積に著しく左右される。すなわち岩石粒が分散微粒状態になれば、ラジウムの拡散速度が上昇し、岩石から水へ移行するラジウムの量も増大する(第8表)。

第8表 ラジウムの侵出容量と岩石の分散度との相関関係

粒子の比表面積(cm <sup>2</sup> /g)	0.54	0.96	1.33	2.73
侵出ラジウム量(%)	0.0025	0.0037	0.0080	0.0150

岩石から毛細裂か・流体水(静水圧水)への放射性元素の全移動過程は、次のようである。すなわち“初成移動”の一般的名称で統合される酸化→侵出→溶解→拡散→エマネーション化であつて、その移動は、静水圧水ならびに岩石を媒介とする放射性元素の運動によつて進行する全過程、例えば、沈殿、吸着、脱エマネーション化等で理解される二次移動とは異なつている。

この過程の総和は、水および岩石・鉱石の放射性元素間の平衡を乱し、さまざまな型態の移動と、さまざまな放射性水型の生成が誘導される。

#### 放射性水生成の水理地質学的条件

放射性水の生成において主要な役割を占めるものは、水理地質学的条件である。放射性水はきわめて多様な天然水型中では出会う。その型は、多様な給水条件、循環条件、湧出(地表面への)条件によつて特色付けられ、さまざまな大きさおよび型態の鉱床を形成する。

それぞれの放射性元素による水の富化は、循環地下水の定流体力学的条件の下で、一定の気候帯、一定の水理地質学的構造体に起きる。水の交換特性、地下水の循環強度、岩石と水との接触時間の長さは、岩石から水への放射性元素の移行条件を決定する。

#### 気候帯の意義について

地表上における岩石の風化過程の特性、ならびにその進行度を決定する要因としての気候の役割は、きわめて大きい。

大気温度変化は、岩石の物理的風化、すなわち崩壊(disintegration)を招く。物理的風化の主要な要因は、温度の季節的変動と月変化およびそれと関連性がある岩石の周期的凍結と溶解過程である。物理的風化は、ラジウムおよびトリウムによる地下水の富化を促進する(岩石のエマネーション化係数の増大とラジウムの侵出度との上昇)。

空気中の酸素および炭酸ガスで飽和された雨水が地表面に降ると、岩石の分解(化学的風化)強度が上昇するが、鉱体の酸化強度も増加する。すなわちこの種雨水は、多数元素の溶液への移行を促進さす(その内には放射性元素を含む)。岩石から運び出される放射性元素の比総量は、流量が多ければ(したがつて溶液中における放射性元素の濃集度が低い)、流量の少ない場合(溶液中における放射性元素の濃集度が高い)よりも著しく大きい。このようにして水の流量が大きければ、岩石中(放射性元素が運び出される)における放射性元素の含有量は著しく低下するはずである。天然条件では、多量の降雨は、ウラン濃集体の破壊を促進し、鉱床地帯から放射性元素を多量に運び出し、地下水は貧化(放射性元素に対して)する。

乾燥、熱帯気候地域では蒸発が大きな意味をもっている。この地帯では、蒸発作用が強度に行なわれるので、放射性元素(とくにウラン)が地下水および地表水に濃集しているのがしばしば観察されている。さらにこれらの地域では、溶液から沈殿しているのが認められている。貯水池のウラン富化には蒸発の役割がとくに大きい。

#### 成層圏(stratosphere)の水力学的帯状性の意義について

地質構造的・岩石相の特性は、地形・地理学条件系とともに水理地質学的過程の方向を決定し天然の環境をつくる。地質構造的・岩石相の条件自体は、現在知られている放射性水の分布(予期される)と生成とをしばしば解明できないことがある。

それぞれの地域における放射性地下水の特性とその生成条件を理解するためには、地下水の動的状態とくに留意する必要がある。地質学的、地形・地理学的データおよびその他のデータを考慮に入れて行なわれる水理地質学的解析では、(1) 放射性地下水の動力学と様式との特性要素を明らかにし、(2) さまざまな放射性水型の分布にみられる地球化学的的特性が確認される。

放射性地下水の分布とその形成には、一定法則性と広域特性、すなわち放射水理地質学的帯状分布が認められる。

水の様式、動的状態および放射化学的組成の広域変化は、長期間地質時代にわたって占めていた含水岩石系の構造(層序)の位置と、その高距とに普通左右される。放射性地下水の最も見事な帯状分布は、厚い堆積物が広域にわたって発達している Plate-forme 地域にみられる。この地域では、5つの水理地質学的帯の存在がしばしば確認され、各帯は、それぞれ地下水の動的状態・様式・地球化学的組成によって特色付けられる。

Ignatovich によれば、地下水の生成と分布とは、水平帯状分布性(地層の傾斜にそつて全水理地質学的要因の規則的変化が認められる)——浅所に賦存する含水岩石系は地表要因が主要な役割を示す——と、垂直分布性——地表水の動的状態が明確にみられる——が観察されている。

次の垂直分布帯が区別される。

### 1. 通気帯(一時的侵透水帯)

この地帯は、地表面と地下水面との間に分布する。この地帯に降下する雨雪水は、風化の強烈な動因となる。酸素と炭酸ガスに富む水は、容易にかつ迅速に移動し、岩石・鉱物(そのなかにはウランを含む)に対して機械的・物理的・化学的作用を及ぼし、そのために岩石・鉱物は破壊・侵出・溶解する。この地帯では放射性水性は、降雨・侵透(雨水)期にだけ生成される。通気帯の厚さはさまざまである。すなわちその厚さは、泥炭地の 0 から数 10 m、ときには著しく開析の進んだ山嶽地域での 100 m にわたっている。

### 2. 地下水面の変動帯

地下水面の変動は、含水層準面の水の“受入れ”と排水(流動)による水の“支出”との相関関係によって決定される。侵透水量が“支出量”より大きければ地下水面は高まるとともに、下帯(水交換が強烈に行なわれる)の規模が大きくなる。蒸発または地下水溜が侵透を上廻るならば、地下水の水位は下がり、上帯(通気帯)の規模が大きくなる。

### 3. 集約水代謝帯

この帯は、地下水のきわめて強烈な循環によって特色付けられる。この帯の空所は常に水によって満たされ、降雨によって補足される。さらにこの地帯では、動的状態の巨大な貯水量をもつ地下水溜が形成される。この帯の水は、現世成因であつて、酸素に富んでいる。化学的組成からみればこの帯は、弱鉱化 hydrocarbonate 型、ときには硫酸塩型に属するが、乾燥地域では、硫酸塩・塩化物型に入れられる。集約水代謝帯には、地下水ばかりでなく、被圧水も入れられる。この帯では、地下水溜も、強烈な水の循環、交換運動に巻き込まれる。この帯は、河川網の排水に影響を及ぼす。集約水代謝は、300 m およびそれ以上の深度に分布している。

この帯のウラン鉱床地域内では、3 主要元素——ウラン・ラジウム・ラドン(溶解)で地下水が富化されるが、堆積岩および変成岩塊では、分散ウラン——ウラン(侵出)のみで富化される。

ラドンによる水の富化理論は、すでに 1910 年に Mache, 次いで Ogilvi, Starik, Baranov によって研究された。水が岩石の割れ目に沿つて移動し、水がラドンによって富化される場合には、次の数学的相関関係によって支配される(Baranov による)。

$$Q = \frac{E}{\lambda} \left( \frac{-S_1 l_1}{\omega} \lambda \right) \frac{-S_2 l_2}{\omega} \lambda \quad (2)$$

Q=水のラドン含量

$E$  = 活性化岩石中に開かれた溝面/cm<sup>2</sup> から放出されるラドン量(1 sec)  
 $S_1$  = 活性化岩石中に開かれた溝の断面積  
 $S_2$  = 非活性化岩石中に開かれた溝の断面積  
 $l_1$  = 放射性岩石中に開かれた溝長  
 $l_2$  = 非放射性岩石中に開かれた溝長  
 $\omega$  = 1 cm<sup>2</sup> の溝を1秒間に流れる水の量(流量)  
 $\lambda$  = 定数

多孔質岩石に沿って地下水が流動する場合には、次の相関関係が観察される。

$$Q = \frac{E}{p_1 \lambda} \left( \frac{-p_1 l_1 \lambda}{\omega} \right) \frac{-p_2 l_2 \lambda}{\omega} e \quad (3)$$

$Q$  = 水のラドン含量  
 $E$  = 1 cm<sup>3</sup> 岩石から1秒間に放出されるラドン量  
 $p_1$  = 放射性岩石の孔隙率  
 $p_2$  = 非放射性岩石の孔隙率  
 $l_1$  = 放射性岩石の侵透通路長  
 $l_2$  = 非放射性岩石の侵透通路長  
 $\omega$  = 1 cm<sup>2</sup> の岩石中を1秒間に流れる水量(流量)  
 $\lambda$  = 定数

この式を解析すると、水の放射性とその水の侵透速度との相関関係に関して次の場合が求められる。

- 1) 水は、きわめて長い侵透通路によつて活性化層から流れる。この場合には水の放射性は侵透速度に左右されない。
- 2) 水は、比較的短い侵透通路によつて活性化層から流れる。この場合には水の放射性は、侵透速度の増大に伴い減少する。
- 3) 水が非活性化層で覆われている厚い活性層から通つてくる場合、この場合には、水の放射性は、侵透速度の増大に伴つて上昇する。

鉱体を洗う水(例えば排水)の侵透速度の増大は、ラドンによる水の顕著な富化を誘導する。しかし無鉱石岩石に沿って循環する水中では、このような上昇現象は認められない。このような状態は、すべてのウラン鉱床について観察され、ウラン鉱体の探鉱の指針となる。

第9表 排水による水の放射能の変化について

含 水 層	Rn の含有量	含 水 層	Rn の含有量
二次鉱物を伴う花崗岩類		炭酸塩を伴う砂岩	
排 水 以 前	200	排 水 以 前	35
排 水 後	830	排 水 後	120
無 鉱 石 花 崗 岩		無 鉱 石 砂 岩	
排 水 以 前	85	排 水 以 前	2
排 水 後	120	排 水 後	5

#### 4. 難(水)代謝帯

この帯は、地下水の比較的緩慢な循環によつて特色付けられる。この帯の水の大部分は上昇性、すなわち被圧、排水、侵食網帯にあるが、下降性(広域にわたる分水嶺地帯)である。堆積岩中の水は、とくに弱洗水性構造地帯では、鉱化度が著しく高まる。したがつて組成からみるとその水は硫酸塩型から塩化物型への移行型に属する。高距および造構条件に対応して、とくに著しく乱されている場合(褶曲帯)には、深部(水)代謝の前提がつけられるとともに、これらの地帯では、アルカリ型のきわめて若い水が形成され、ときには温泉となつて湧出することがある。Plate-forme 地帯では、この帯は、深度 500~600 m まで発達し、褶曲地帯では、1,000~2,000 m にまで及ぶ。この地帯の水は緩慢に回春され、一層若年水によつて置き換わ

る。難(水)代謝の地球化学的帯は、酸化・還元環境で特色付けられる。

放射性元素の含有量がクーク値を示す難(水)代謝帯の堆積岩塊地帯内では、放射性水は、強(水)代謝帯におけると同一原因によつて形成されない。

難(水)代謝帯のウラン鉱床地帯内では、水はウラン化合物の溶解、沈殿によつて、ウラン・ラドン・ラジウムかまたはラジウム・ラドンのみによつて富化される。

褶曲構造を形成する酸性火成岩の発達地帯では、深所構造裂かを伝わつて循環する水は、ラドンで富化される。

#### 5. きわめて難(水)代謝帯

この地帯の明確な特性は、(1) 水の運動がきわめて緩慢なこと、(2) 還元的地球化学環境、(3) 水の化学的組成および気体組成の相対的安定性である。褶曲地帯では、この帯を欠失する。Plate-forme 地帯では、深所(水)代謝をほとんど欠くので、重力作用、蒸発、拡散、陽イオン交換およびその他の物理・化学的過程によつて、鉱化度の高いラジウムで富化された塩化物—ソーダ・カルシウム組成—ときには塩の飽和度が限界に達することがある—の水が生成される。この帯の地下水溜は、地質時間の規模において出現し、そのために水は老年水である。

ラジウムによる水の富化理論は Schepoteb によつて研究された。彼の見解によれば、水がラジウムの同位元素で富化される。したがつてこの種富化の限界は、放射性岩石と水との接触によつて発生する放射性元素の2つの流れによつて条件付けられる。すでに指摘したように、各岩石は、水で満された内“毛細管裂か”網をもっている。岩石中の放射性元素は、きわめて不均一に分布している。放射性共生鉱物中かまたはその付近に分布している“毛細裂か”から浸出する静水圧水部分はラジウムの同位元素を含んでいるが、“空隙裂か帯”に存在する他の部分は、実際上ラジウムの同位元素を含まない。初期にはラジウム同位元素を含まない静水圧水と岩石と接触している場合には、この種元素(ラジウム)の存在するような毛細裂か—静水圧中—から拡散が始まるが、そこから以前にラジウム同位元素を含まない毛細裂か水へ移動する。静水圧水中におけるラジウムおよびその同位元素の濃集度は、この2つの流れの空間的、時間的変化の大きさおよび特性によつて決められる。拡散はきわめて緩慢に行なわれるので、高鉱化度の停滞水様式にあつては、ラジウムによる水の富化が促進される。

上述の垂直帯状分布(強代謝帯—難代謝帯—高度難代謝帯)は、Russkii Plate-forme 地帯で認められる。山麓地帯では、逆転帯状分布が観測されている。すなわち高度難代謝帯は、強代謝帯の上方に存在する。最後に、山嶽地帯では、強代謝帯が発達し、造構擾乱地帯の深所には、難代謝帯のみが観察されている。

#### 岩石および地下水の物理的性質

岩石および地下水の物理学的性質中で、放射性元素による地下水の富化にとつて最も重要な意味をもっているのは、岩石のエマネション能力、その収着性質および地下水の温度である。

#### 岩石のエマネション能力

岩石のエマネション化は、エマネション同位元素、主としてラドンの移動過程である。この種ラドンは、貴ガスであつて、岩石への収着は、きわめて僅かである。エマネション過程は、岩石の毛細裂かから周辺の気相、液相環境へのラドンの拡散によつて主として決定される。拡散過程は partial pressure の法則によつて支配され、地下水の化学的組成には、全く左右されない。

固体岩石中におけるラドン原子の拡散はとるに足らないので、岩石から周辺媒質への遊離は次の場合に起きる。

- 1) ラドンを生成するラジウムは、深所毛細裂かでなく、水と接触する岩石の表面に付着、分布する場合、すなわちラドンが岩石に収着(エマネション捕集剤)する場合。
- 2) ラドンが深所毛細裂か中に存在するラジウムから形成される場合、たゞし全岩石はきわ

めて強度の破碎状態にあるものとする(したがって造岩鉱物の結晶格子が破碎されている場合)。

岩石のエマネションは、エマネション能力、すなわち放射性平衡が成立するために充分な時間中に1gの岩石の放出するラドン量、またはエマネション係数(放射平衡の成立に充分な時間経過中に放出されるラドン量と1g岩石中に含まれているラドンと平衡状態にあるラドンの全量と比で表わされる。エマネション能力は、量的には、放出ラドンと平衡状態にあるラジウムのg数で示されるが、エマネション係数は、%で表わされる。したがって数字上ではエマネション能力と岩石中におけるラジウムの含量との比に等しい。

岩石のエマネション能力には、次の要因が影響を及ぼすことが考えられている。

1. 岩石の保存度 Starik のデータによれば、この場合比表面の変化は本質的な役割を演じない。エマネションは、拡散過程に結び付いた過程であるからである(クロビナイトの比表面が458倍変わってもエマネション係数は僅か2.5倍大きくなるにすぎない)。
2. 水温または大気温度 温度が高まると、岩石のエマネション能力は著しく高まる。Starik のデータによれば、トルベルナイト(Torbernite)のエマネション化は、温度20°で60%であるが、60°では100%に達する。
3. 岩石の湿度 岩石の湿つた状態にある場合には、その割合に比例してエマネション化は低下する。
4. 気圧 気圧が高ければ、岩石のエマネション化は、それに比例して低くなる。

第10表 鉱石および岩石のエマネション

岩石または鉱石	試料数	エマネション係数		
		極小	極大	平均
火成岩				
片麻岩・花崗片麻岩	13	20.0	26.5	22.0
花崗岩・花崗岩状岩石	11	5.0	24.1	17.0
花崗岩質ペグマタイト	2	—	—	28.0
石英斑石	2	4.0	5.0	4.5
石英粗面岩	27	5.6	—	15.1
堆積岩				
quartzite	8	13.0	30.0	20.6
砂岩	14	0.9	12.2	10.7
珪質粘土岩	5	—	—	21.5
泥灰岩	4	—	—	12.7
石灰岩	19	0.9	25.0	11.2
炭質頁岩	—	—	—	17.7
ウラン鉱物と鉱石				
クロベナイト	—	—	—	0.17
ジルコン	16	3.5	92.3	0.07
トルベルナイトを伴う花崗岩	16	3.5	92.3	43.8
オチユナイトを伴う花崗岩	5	0.2	20.0	14.4
黒色粉状ウランを伴う花崗岩	6	22.0	70.0	44.2
含ウラン褐鉄鉱	104	2.4	70.0	15.7
ピッチブレンドを伴う菱鉄鉱	17	1.1	32.2	8.0
頁岩	15	—	—	24.0
黒色粉状ウランを伴う石灰岩	7	2.1	62.5	26.3
カーノタイトを伴う石灰岩	22	1.5	74.1	34.0
カーノタイト質砂岩	20	1.7	59.2	34.4
含ウラン石炭	5	36.8	91.2	75.6

岩石から放出される最大ラドン量は、次式により近似的に決定される。

$$Q = \frac{kqp}{d} \cdot 10^8 \text{ Cal/l}, \quad (4)$$

$k$  = エマネーション係数     $q$  = 1g の岩石のラジウム含量  
 $d$  = 密度     $p$  = 岩石の引隙率

各岩石試料に対するエマネーション係数値は著しく変動するにかゝらず、エマネーションの平均値は信頼度の高い一定の値を示すことは特徴的である。例えば酸性火成岩では、エマネーションの平均係数値は 15~30% であるが、堆積岩および変成岩のそれは 10~25% である。さらに一層高いエマネーション係数 (32~91%) は、鉱体にだけ認められている。二次水成ウラン鉱物は一層脆弱な構造をもち、そのために内成ウラン鉱物に比較してエマネーション係数が高い (第 10 表)。

収着過程

地表変成帯でとくに発達している鉱物はコロイド鉱物である。この種コロイドは、内成鉱物の分解によつて生成されたものであつて、地殻の表面殻中に広域に分布している。固相、液相、気相の複雑な物理・化学的相関関係——元素移動の主要要因の変化によつて条件付けられる——は、とくにこの地帯に、物質の高分散型態の形成にとつて好都合な条件をつくる。

コロイド粒子の 2 つの性質、粒子の電荷と容積に比較して表面積が大きいことは、とくに地球化学的に大きな意味をもっている。

与えられた媒質内の同種コロイドの電荷は、すべて同一である。コロイド粒子の電荷の符号は 1 溶剤から他種溶剤へ移行するさいまたは酸性媒質がアルカリ媒質へ変わる場合にも変わる。第 11 表には、地表上で観察される正および負のコロイド類が掲げられてある。

第 11 表 地殻に最も広域に分布するコロイド

正のコロイド	負のコロイド
Fe (OH) <sub>3</sub> ; Al (OH) <sub>3</sub> ; Cr (OH) <sub>3</sub> ; Ti (OH) <sub>4</sub> ; Zr (OH) <sub>4</sub> ; Ce(OH) <sub>3</sub> ; Cd(OH) <sub>2</sub>	粘土質コロイド類 腐食質コロイド類 SiO <sub>2</sub> ; MnO <sub>2</sub> ; SnO <sub>2</sub> ; V <sub>2</sub> O <sub>5</sub> ; Sb <sub>2</sub> S <sub>3</sub> ; PbS; As <sub>2</sub> S <sub>3</sub> ; その他 硫化物, Au; Ag; Pt

したがつてコロイドの場合には、表面力がとくに顕著に出現することが予期されるはずであらう。地表変質帯中で最も広域に分布しているコロイド類は、Fe(OH)<sub>3</sub> と Al (OH)<sub>3</sub> を除くと、負電荷のコロイドである。したがつて陽イオンが溶液から収着捕集される。

コロイドは、きわめて大きい比表面をもち、周知のように、物質の分散度の増大に伴い著しく上昇する (第 12 表)。

第 12 表 物質の比表面とその分散性の度合との相関関係

立方体の辺 (cm)	立方体数	総比表面 (cm <sup>2</sup> )
1	1	6
1.10 <sup>-1</sup>	10 <sup>3</sup>	6.10
1.10 <sup>-2</sup>	10 <sup>6</sup>	6.10 <sup>2</sup>
1.10 <sup>-3</sup>	10 <sup>9</sup>	6.10 <sup>3</sup>
1.10 <sup>-4</sup>	10 <sup>12</sup>	6.10 <sup>4</sup>
1.10 <sup>-5</sup>	10 <sup>15</sup>	6.10 <sup>5</sup>
1.10 <sup>-6</sup>	10 <sup>18</sup>	6.10 <sup>6</sup>

る。イオンの僅かの部分のみが表面層中に存在し、そのために完全に平衡状態を現わさない低分散性結晶系と異なつて、コロイド系では、この種イオン数は著しく増加し、その特性は容易に明らかにされる程度に顕著に現われる。

表面力の作用は、まず収着現象に帰する。すなわちコロイドの表面エネルギーが減少するよ  
うな物質は、コロイド物質によつて溶液から吸収される。しかしこの場合には、コロイドの表面  
ばかりでなく、全コロイド塊が吸収される。この2つの現象は一般に収着と呼ばれている。収  
着の原因は、イオンの静電気結合の不飽和性にある。Khan は収着の法則を次のように定式化  
している。"与えられたイオンの表面電荷が被収着イオンの電荷の符号と反対であるとともに、  
収着された化合物が与えられた溶媒に難溶性である場合には、稀釈状態下のこの種イオン  
は沈積物によつて収着される"。

低度の濃集状態(とくにラジウム)で天然水中に溶存する放射性元素(ウランおよびラジウム)  
はさまざまなコロイド類によつて盛んに収着される。

ラジウムは、粘土質・有機物質(粘土・泥炭・石炭)・鉄・マンガン堆積物によつて収着され  
る。このことは、(1)放射泉によつて沈積した堆積物がラジウムで富化されていること。(2)  
ウラン鉱床の母岩中にラジウムが過剰に含有していることで明らかである。

第13表 鉱泉の水および堆積物におけるラジウムの含有量 (Ovchinnikov による)

鉱泉名	堆積物の特性	水中の溶存 Ra 10 <sup>-10</sup> %	堆積物中 における Ra 10 <sup>-8</sup> %	Ra 堆積物
				溶存 Ra
1	鉄質堆積物	0.07	15.3	21,000
2	湯の華	0.01	1.4	14,000
3	"	0.21	0.46	220
4	鉄質堆積物	0.15	6.0	4,000
5	湯の華	0.003	0.18	6,000
6	マンガン堆積物	0.003	41.00	1,350,000
7	鉄質堆積物	0.003	8.1	270,000
8	粘土質堆積物	0.06	283.0	471,700
9	泥炭	0.001	0.2	20,000
10	鉄質堆積物	0.9	0.78	87
11	"	7.48	40.00	240

収着過程に近似的な現象は、イオン半径の近い元素に特徴的にみられる共沈現象である。  
Khan のデータによれば、研究対象にとりあげられた多数の無機・有機塩中で、類似のラジウ  
ム化合物で捕集されていないようなバリウム塩は、1例も発見されていない。そのうえラジウ  
ム塩が対応バリウム塩中にはいついもない場合も全く知られていない。このような現象から次  
のような重要な結論が導かれる。すなわち地下水から沈殿する場合には、バリウム化合物は、  
透水裂かの表面にラジウムの沈積を招き、その結果として地下水のラジウム貧化を不可避的に  
誘導する。

放射性水の形成観点からみてきわめて重要な二次的現象は、炭酸カルシウムと少量のラジウ  
ムとの共沈現象である。この種現象は、普通にみられる炭酸泉の沈殿物(湯の華)のラジウム  
——多くの場合高放射性ラドン水を誘導する——による富化を解釈することができる。

それとともに上述の現象の逆の現象が存在することを指摘しておくことが必要である。すな  
わち石膏およびアルカリ金属のハロゲン物が沈殿する場合には、ラジウムの共沈を伴わないか  
ら、炭酸カルシウムは、ウラン沈積物に捕獲されない。

ラジウムばかりでなくウランも、粘土質・有機物質・水酸化鉄およびマンガンによつて盛  
んに収着される。このような現象は、鉱物学的には、ウランがみられない含ウラン石炭・頁

岩(粘板岩) 鉱床, ウラン鉄帽 (iron cap) が形成されることを示している。

収着過程は, 溶液から放射性元素の分離を促進し, 岩石および水におけるラジウムとウランとの放射平衡を乱す。ラジウムが収着される場合には, “エマネション・捕集剤”が形成され, 地下水はラドンによって二次的に富化される。

水の温度様式

地下水の温度は, 一方では, ウランの溶解度とウランおよびラジウムの水への供給に, 他方では, 液相と気相とのラドンの分布に大きな影響を及ぼす。

ウラン鉱物の溶解度の温度影響に関する問題は, 現在十分に研究されていない。種々の温度下のトルベルナイトの溶解に関する Starik の実験によれば, 中性および弱アルカリ媒質中では, 水温の上昇によって(主として)ウランの溶液への移行が著しく進行する。しかしラジウムの浸出は僅かである。酸性媒質の温度上昇は媒質が母岩(周辺)に及ぼす侵食作用が著しく増大する。その結果として, ウランおよびラジウムの水への移行が盛んに行なわれる(第14表)。

第14表 温度と相関関係にある torbernite のウラン・ラジウムの溶液への移行強度 (Starik による)

温度 (°C)	媒質	溶液へ移行する放射性元素量 (%)		Ra/U
		Ra	U	
15	H <sub>2</sub> O	1.22	0.13	9.4
60	H <sub>2</sub> O	1.81	0.67	2.7
15	0.1N. HCl	2.15	1.43	1.5
60	0.1N. HCl	7.50	2.78	2.7

温度の上昇に伴うウランの液相状態への移行の増大については, 閃ウランおよびピッチブレンドの試料実験の結果によっても明らかである。

第15表 ウランの溶液への移行と水温との相関関係

鉱石	温度下の溶存ウランの含有量 (g/l)	
	20°	70°
閃ウラン鉱	$1.8 \cdot 10^{-2}$	$2.5 \cdot 10^{-2}$
ピッチブレンド	$4.5 \cdot 10^{-2}$	$7.4 \cdot 10^{-2}$

ラドンによる地下水富化に及ぼす温度の影響は, きわめて明らかである。ラドンは, 気体である点を考慮に入れると, 地下水の水温上昇は, 鉱泉(泉)の脱ガス化を一層顕著に促進し, それと関連して水, 空気との間のラドン分布係数(水におけるラドンの溶解度係数)は減少する。種々の水温下の  $\alpha = \frac{cRn_{水}}{cRn_{空気}}$  のラドンの理論分布係数値は, 第16表に掲げられてある。

第16表 水温とラドン $\alpha$ の溶解度係数との相関関係

水温 (°C)	$\alpha$	水温 (°C)	$\alpha$	水温 (°C)	$\alpha$
0	0.510	30	0.200	70	0.118
5	0.420	40	0.160	80	0.112
10	0.350	50	0.140	90	0.109
20	0.225	60	0.127	100	0.107

多くの研究成績が示しているように, 理論係数値 $\alpha$ は, 自然で観察される値に充分近づく。

第17表には, ある放射泉における水およびガスの含有量が掲げられてある。

資 料

第 17 表 放射泉のガスおよび水のラドンの含量

放 射 温	水 測 (°C)	M.E. 単位の Rn の含量		α 値	
		水	ガ ス	実際値	理論値
(ザイルカル)					
シビヤア放射泉	0.1	16.2	39.6	0.40	0.51
アルシャン・トウキンスク	8.8	2.4	3.3	0.73	0.36
キスローフスク	13.6	4.7	7.0	0.67	0.31
(北部キルギイス)					
カイナルスク	21.0	5.0	18.5	0.29	0.25
アルウラ, 深度 300 m	29.6	3.5	10.2	0.34	0.20
ノーヴァア・マチエスタ 深度 500 m	30.9	0.7	2.4	0.29	0.20
チエハルトウボオ	34.0	4.3	13.6	0.23	0.18

(以下次号に続く)