

岐阜県東濃地域におけるウラン系列核種の挙動と ナチュラルアナログとしての有用性

金井 豊* 坂巻幸雄** 瀬尾俊弘***

KANAI, Yutaka, SAKAMAKI, Yukio and SEO, Toshihiro (1991) Behavior of uranium series nuclides around the Tono uranium mine, Gifu Prefecture, and their usefulness as natural analogues. *Bull. Geol. Surv. Japan*, vol. 42 (5), p. 249-260, 7 fig., 4 tab.

Abstract : The concentrations of uranium series nuclides, ^{238}U , ^{234}U , ^{226}Ra and ^{222}Rn , were measured for ground- and surface waters around the Tono uranium mine, and their geochemical behaviors and adoptability for natural analogues were investigated.

^{238}U contents in the groundwaters were in low level because the groundwater remained in reducing condition with high pH. Such a condition may be favourable for the retention of uranium analogue nuclides in the high level radioactive wastes (HLRW). ^{226}Ra contents were higher than the equilibrium values of ^{238}U , which suggests that radium was easier to move than uranium. ^{222}Rn was much abundant in the groundwaters from several hundreds times to several ten thousands times than its precursor ^{226}Ra . It is reasonably assumed that much amount of radon was supplied by host granitic rocks and uraniferous ore body through micro paths (fractures). The waters from the Sublevel gallery of the Tono mine were low in radon content and $^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$ activity ratios, of which hydrogeochemical data suggests that the water was not recharged from deep groundwaters, but from shallow ones. The behavior of radon may be a good analogue for the gaseous nuclides released from the HLRW.

要 旨

東濃鉱山及びその周辺地域の地表水・地下水の水質を調査し, その中のウラン系列核種(^{238}U , ^{234}U , ^{226}Ra , ^{222}Rn)の挙動, 関係などを調べ, ナチュラルアナログとしての有用性を考察・検討した。その結果,

(1)坑内のボーリング湧水中のウラン(^{238}U)は, 低濃度であり, 深層地下水の水質が還元的でpHも高いことからウランの溶解度が低く, 従って移動性が乏しくなっていることを示す。高レベル放射性廃棄物の処理においてもこのような安定した還元環境の保持が重要と考えられる。

(2)ラジウム(^{226}Ra)はウラン濃度の高い水において高濃度となる傾向が認められたが, ウランから計算される放射平衡量のラジウムよりもはるかに多く, 水系中のラジウムはウランよりも移動し易いことが実証された。

(3)ラドン(^{222}Rn)はボーリング湧水などでは高濃度となっており, その親核種のラジウムと比較しても数百-

数万倍の非平衡状態で, 水の流れに沿って活発な供給・移動がなされている。このようなラドンの挙動は, 水循環の指標となると同時に, 廃棄物から出る可能性のあるガス状の元素に対する指標としても有用と考えられる。

1. はじめに

近年, 原子力産業から排出される高レベル放射性廃棄物の地層処分の安全性評価手法の有力な手だての一つとして, 廃棄物中の放射性核種と同様な地球化学的挙動をする天然の核種でその挙動を類推しようという, いわゆるナチュラルアナログ研究が重要視されている(例えば坂巻ほか, 1987; Brookins, 1983; Finnegan and Bryant, 1987など)。そのアナログとして有望と考えられる元素を第1表に示したが, ウラン・トリウム・希土類元素等が有効な類似元素となっており, 物質挙動を研究する上で天然に存在するウラン鉱床周辺地域が, 格好のフィールドであることがわかる。

岐阜県土岐市を中心とした東濃地域は, 1962年地質調

Keywords : natural analogue, uranium, Tono district, surface water, groundwater, uranium series daughters

*地殻化学部

**地質標本館

***動力炉・核燃料開発事業団中部事業所

第1表 高レベル放射性廃棄物中の長半減期核種の類似元素 (Chapman and Smellie(1986)に一部加筆)
Table 1 Analogue elements for long-lived nuclides present in high level radioactive wastes.

核種	半減期(年)	自然界における酸化状態	イオン半径(VI配位・Å)	水和係数 log K ₁	想定される類似元素
⁹⁹ Tc	2.14×10 ⁵	red. IV	0.64		Re(IV)?
		ox. VII			Re(VIII)?
²³¹ Pa	3.28×10 ⁴	red. V	0.78	9.5	(Th,U(IV))
		ox. V			
²³³ U	1.59×10 ⁵	red. IV	0.76	13.4	U(IV),(Th, Zr, Hf)
²³⁴ U	2.45×10 ⁵	ox. VI	0.73	8.2	<u>U(VI)</u>
²³⁵ U	7.04×10 ⁸				
²³⁸ U	4.47×10 ⁹				
²³⁷ Np	2.14×10 ⁶	red. IV	0.87	12.5	<u>U(IV)</u> ,(Th, Zr, Hf)
		ox. V	0.75	5.1	U(VI)
²³⁸ Pu	8.77×10	red. III	1.00	6.5	<u>ランタニド</u> (特にNd)
²³⁹ Pu	2.41×10 ⁴	IV	0.86	13.5	<u>U(IV)</u> ,(Th, Zr, Hf)
²⁴⁰ Pu	6.57×10 ³	ox. IV	0.86	13.5	<u>U(IV)</u> ,(Th, Zr, Hf)
		V	0.74	4.3	U(VI)
²²⁹ Th	7.34×10 ³	red. IV	0.94	10.8	<u>Th</u>
²³⁰ Th	8.0 ×10 ⁴	ox. IV			
²³² Th	1.41×10 ¹⁰				
²⁴¹ Am	4.33×10 ³	red. IV	0.98	6.5	<u>ランタニド</u>
²⁴³ Am	7.37×10 ³	ox. III			
²⁴⁴ Cm	1.81×10	red. III	0.98	(6.5)	<u>ランタニド</u>
		ox. III			

(下線は最適元素を示す)

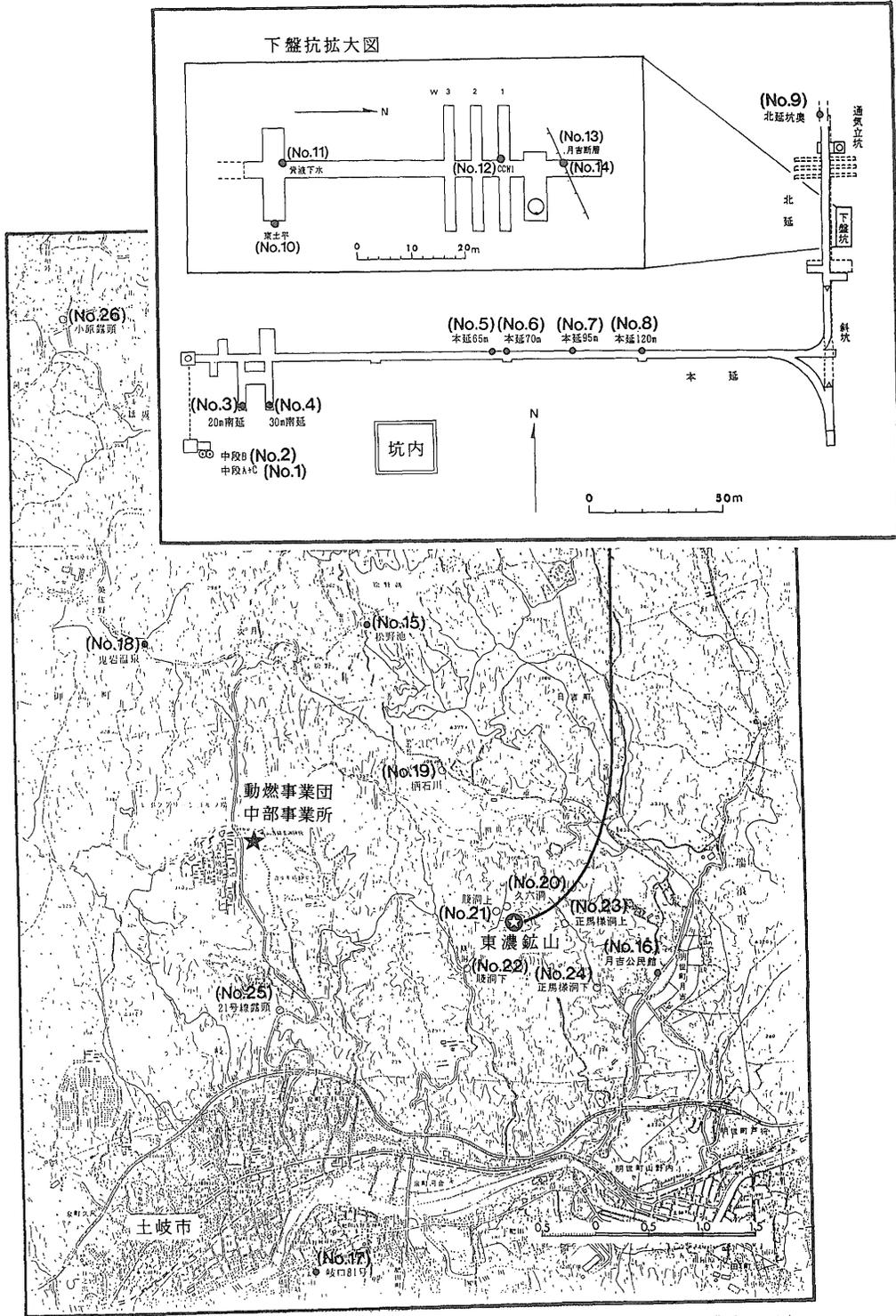
査所により国道21号線の一部において中新統の堆積岩中に強い放射能異常が見いだされたのを契機に、その後、同所や動力炉・核燃料開発事業団(動燃事業団)による種々のウラン鉱床探査がなされ、わが国で最初に発見された堆積型ウラン鉱床である人形峠をしのぐ最大級のウラン鉱床であることが明らかになった。現在では、動燃事業団が主体となって、鉱床成因の研究・探鉱技術の開発等がなされている。

筆者らは、日本各地におけるウラン兆候地における調査研究を行うと共に、動燃事業団との密接な連携の下に東濃地域のウラン兆候地における岩石・水試料の地球化学的な研究を推し進めてきた(例えば、坂巻ほか,1987;坂巻ほか,1989;坂巻,1989など)。本研究報告は、それらの研究の中で、特に水系における各種イオンとウラン系列核種の挙動について調べ、ナチュラルアナログとしての有用性を予察したものである。

なお、この研究を行うに当たり、動燃事業団 中部事業所の方々には、現地研究に関して多大な御援助・御協力を頂いたばかりでなく、討論を通じて貴重なご意見を頂いた。ここに深く感謝する次第である。

2. 地質のあらまし

岐阜県東濃地域並びに周辺地域の地質と鉱床については、島田ほか(1969)、大塚ほか(1969)、坂巻ほか(1969)、鈴木ほか(1969)、佐藤(1969)、河野ほか(1969)、望月・関根(1969)、山本ほか(1974)、小林(1989)等の詳細な報告がなされているので、ここでは簡単な概要を述べるにとどめる。地質構造は大きく分類すると、黒雲母花崗岩を基盤とし、中新統の中村層群(土岐夾炭累層)・瑞浪層群(本郷累層・明世累層・生俵層)、鮮新統の瀬戸層群等の新第三系がこれを覆っており、ウラン鉱床は主として土岐夾炭累層の基底部に近く胚胎し



第1図 試料採取地点 (国土地理院発行2.5万分の1地形図「土岐・御嵩」より)

Fig. 1 Sampling locations.

ている。

当地域には、月吉鉱床や美佐野鉱床、謡坂鉱床、定林寺鉱床等のウラン鉱床が知られているが、最大級の鉱床は月吉鉱床であり、調査坑はこの月吉鉱床(東濃鉱山)に作られている。海拔282mの地表から掘り下げた立坑を125.7m下がった坑内の本延坑は、土岐夾炭累層下部を東方に掘進し、その東端で北に折れ北延坑となっている。北延坑の下には下盤坑が走っており、北端では月吉断層(走向 東西、傾斜60-70°南の逆断層)が観察される(第1図参照)。中段は立坑を72m下がった地点にあり、坑内外で使用する地下水を採取している。

3. 試料及び分析方法

東濃鉱山の坑内及び周辺地域における試料採取地点を、第1図に示した。これらの試料は坑内の中段の湧水、本延・下盤坑でのボーリング湧水・滴水・溜り水、坑外でのボーリング湧水・溜り水、河川水などである。試料は、一般水質分析用とウラン・ラジウム分析用(塩酸添加)とに分けてポリエチレン瓶に採取し、ラドンはその場で溶媒抽出した。

ウランは、硝酸アルミニウム・磷酸一アンモニウム塩酸溶液を添加した後、アンモニア水で磷酸アルミニウムの沈澱を作ってウランを共沈させた。濾過分離後硫酸に溶かしてpHを1.0-1.5に調整した後、硫酸型陰イオン交換カラムに流してウランを捕捉分離、塩酸(1+1)で洗浄して1N塩酸で溶離した。その一部を分取し、固体蛍光法(Kanai *et al.*, 1986)でウランを定量すると同時に、残りのウランをステンレス板に電着して α スペクトロメトリーで $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比を測定した(Kanai, 1986)。ウランの蛍光の測定には Aloka社製 Fluorimeter FMT-4B を、放射能比の測定には有効面積600mm²のSSB(Si表面障壁型半導体検出器)を検出器としたORTEC社製 α スペクトロメータ576AにCANBERRA社製マルチチャンネルアナライザ-S-85を接続して使用した。

ラジウムは、塩化バリウム溶液と硫酸アンモニウム溶液を加えて生じる硫酸バリウムの沈澱に共沈させた。沈澱を分離・洗浄後、EDTA・4Naを加えて温めて溶かし、キュリー瓶に移した。ラドンの半減期が3.8日であるので約1ヶ月静置してラジウムとそれから生じたラドンとが放射平衡に達するのを待った後、このラドンを液体シンチレーター(POP 4g+POPOP 0.1g/toluene 1 l)に溶かし、パッカー社製液体シンチレーションカウンターTRI-CARB 1550 で計数して濃度を求めた。

ラドンは、池田・阿部(1977)に従い、現地で試料水1リットルを静かに試料瓶に採取し、液体シンチレーター

40mlを加え、200回以上振とうしてラドンを抽出した。静置して2層を分離した後、液体シンチレーターをバイアル瓶に採取した。バイアル瓶は実験室に持ち帰り、ラジウムの場合と同様に液体シンチレーションカウンターで計数した。水温による抽出率の補正と半減期の補正をして、抽出時刻におけるラドン濃度を算出した。

そのほかの一般水質は、イオンクロマトグラフ法(金井, 1987)や原子吸光法・比色法等の定法により測定を行った。

4. 結果と考察

4.1 一般水質について

調査した地下水・地表水試料の一般水質については、坂巻(1989)に報告されているのでここでは簡単に述べるにとどめる。分析結果を第2表に示した。

電気伝導率は、溶液中の溶存物質質量を端的に反映しており、第2図に示したように測定された主成分イオンのmg当量の合計とよい相関関係を示している。地表水では低い値であるのに対し、地下水等では高くなっているのがわかる。電気伝導率の測定は容易に行えるため、現場における重要な測定項目の一つといえる。

第3図には、電気伝導率と溶存シリカとの関係を示した。○で示した河川水では、電気伝導率の増大と共に溶存シリカの増加傾向がある。岩石・水相互作用のメカニズムは簡単ではないが、接触時間に応じて溶出するとすれば、河川水では均質にシリカが溶かし出されているものと推定される。シリカ濃度の高い小原露頭の水は、細粒アルコース砂岩中からしみ出た溜り水であり、かなりの溶出量となっている。

水質をキーダイヤグラム上に図示したものを第4図に示した。ほとんどの坑内水はpHが高く、キーダイヤグラム上で炭酸アルカリの領域(Na-HCO₃型)にあり、岩石と長期の接触を経た深層の停滞水であることをうかがわせている。また、第5図に示したように、フッ化物イオン濃度が高いのも坑内水の水質の特徴の一つである。

取水位置からみて、中段の水は主として瀬戸層群及び瑞浪層群上部、本延坑及び下盤坑のボーリング湧水は不整合面直下や基盤の花崗岩に由来するものと判定され、水質もそれを裏付ける変化をしている。坑外では、岐口81号ボーリングが瑞浪層群下部の水を集めているのを除き、松野池・月吉公民館・鬼岩温泉は花崗岩からの裂か水と推定される。河川水は一部は基盤花崗岩の地域を、そして多くは瀬戸層群・瑞浪層群から成る地表を流れている。

第2表 東濃鉱山及び周辺地域の一般水質
Table 2 Water quality of samples from Tono district.

番号	試料採取位置	備考 (’89)	流量 l/m	水温 °C	伝導率 μS/cm	pH	Na	K	Ca	Mg	HCO ₃	CO ₃	F	Cl	SO ₄	t.Fe	Mn	SiO ₂	PO ₄	
							mg/l				mg/l				mg/l					
(坑内)																				
1	中段 A+C ホース	22806	13.1	12.6	153.	7.1														
		20301	5.4	15.2	159.	7.0	15.1	2.91	8.74	1.49	32.9	0.0	0.10	2.34	32.60	0.00	0.00	26.8	0.10	
2	中段 B ホース	22807	0.5	11.5	253.	8.6														
		20302	0.4	15.7	250.	8.5	38.3	5.76	11.6	0.97	140.	0.0	0.41	1.03	5.32	0.16	0.03	33.1	0.36	
3	20m南延引立滴水	20310		16.4	222.	8.4	49.1	0.36	3.26	0.04	113.	0.0	6.40	0.57	0.98	0.00	0.00	13.4	0.01	
4	30m南延引立滴水	20311				8.7	50.9	0.35	2.48	0.03	104.	1.2	6.46	0.56	3.32	0.02	0.00	13.8	0.01	
5	本延坑 65mボーリング	22704	1.0	18.2	204.	9.4														
		20306	1.0	18.2	232.	9.3	43.8	0.24	1.75	0.02	86.9	8.9	3.68	0.62	0.14	0.01	0.00	16.6	0.00	
6	本延坑 70mボーリング	22702	1.8	19.0	205.	9.3														
		20305	1.9	19.1	202.	9.2	42.7	0.27	2.61	0.03	91.5	6.6	3.63	0.62	0.10	0.00	0.00	17.0	0.00	
7	本延坑 95mボーリング	22701	9.7	19.5	199.	9.2	38.7	0.21	3.05	0.05	87.2	6.0	3.64	0.76	0.36	0.01	0.00	17.6	0.00	
		20304	10.1	19.0	197.	9.2	40.3	0.26	3.05	0.04	87.6	6.5	3.74	0.68	0.28	0.02	0.00	17.6	0.00	
8	本延坑 120mボーリング	22703	1.4	18.9	192.	9.0														
		20303	1.5	18.6	191.	9.0	34.0	0.39	6.14	0.12	93.4	2.0	3.99	0.73	0.05	0.01	0.01	18.8	0.01	
9	北延坑奥	22811	1.3	18.4	220.	9.3														
		20309	0.8	17.1	217.	9.4	47.1	0.50	1.64	0.01	75.0	13.2	6.42	0.80	0.41	0.00	0.00	19.3	0.02	
10	下盤坑 東土平ボーリング	22705	0.2	16.9	237.	9.6														
		20307	0.3	15.6	232.	9.6	49.8	0.20	1.47	0.02	76.9	14.4	6.75	0.69	0.30	0.01	0.00	13.7	0.00	
11	下盤坑 貴液下水	22809	3.8	15.3	436.	9.7	80.4	1.32	3.68	0.11	138.	29.4	4.61	1.69	24.6	0.03	0.00	16.4	0.02	
12	下盤坑 クロスカットNo1西	22810	0.2	14.6	1600.	9.8	313.	1.05	2.01	0.07	409.	168.	4.29	4.29	86.5	0.01	0.00	16.8	0.09	
13	下盤坑 月吉断層滴水	22808	19.1*	15.4	256.	8.3	54.2	0.32	2.14	0.03	130.	0.0	4.13	1.10	5.54	0.01	0.00	15.7	0.00	
14	下盤坑 月吉断層溜水	20308	0.6	11.0	260.	9.5	57.4	0.69	3.20	0.08	95.8	13.2	4.30	0.95	9.52	0.05	0.00	16.1	0.02	
(坑外)																				
15	松野池1号ボーリング	30113	1.5	13.4	206.	9.8														
		20412	1.1	13.1	219.	8.1	8.7	2.54	24.1	1.59	107.	0.0	1.97	0.84	3.92	0.03	0.14	28.8	0.01	
16	月吉公民館	30112	6.5	17.4	243.	7.8														
		20414	7.0	17.2	248.	9.8	52.7	0.25	1.49	0.02	69.7	18.2	10.7	1.14	0.13	0.01	0.00	13.5	0.00	
17	岐口81号ボーリング	30115	18.1	23.9	1970.	8.9														
		20415	15.1	24.3	1930.	8.9	235.	1.69	57.6	0.26	12.2	4.2	8.17	476.	0.62	0.02	0.06	12.1	0.00	
18	鬼岩温泉 松泉閣前	30222	8.7	20.0	241.	8.7	27.7	0.41	17.0	0.12	63.4	0.0	5.14	21.4	7.50	0.03	0.00	19.9	0.00	

ウラン系列核種の挙動とナチュラリアノログとしての有用性(金井 ほか)

第2表 つづき
Table 2 continued

番号	試料採取位置	備考 (89)	流量 l/m	水温 °C	伝導率 μS/cm	pH	mg/l							PO ₄					
							Na	K	Ca	Mg	HCO ₃	CO ₃	F		Cl	SO ₄	t.Fe	Mn	SiO ₂
19	(地表水) 梶石川上流	20413	100.	5.7	16.2	6.3	1.4	0.62	0.63	0.12	2.2	0.0	0.05	1.19	1.31	0.00	0.00	10.9	0.00
20	久六洞	30217	34.2	6.8	18.5	6.4	2.1	0.82	0.25	0.16	3.4	0.0	0.02	1.35	1.68	0.03	0.00	11.9	0.00
21	賤洞上定点	30218	900.	8.2	21.6	6.4	1.8	0.94	0.57	0.23	2.7	0.0	0.05	1.56	2.46	0.02	0.00	12.4	0.00
22	賤洞下定点	30216	1500.	6.3	62.8	6.9	4.3	0.90	4.54	0.43	6.8	0.0	0.11	2.66	13.3	0.05	0.00	13.7	0.00
23	正馬榎洞上定点	30219	480.	8.0	41.9	6.7	3.0	1.26	1.88	0.52	4.3	0.0	0.08	2.18	5.27	0.02	0.00	18.2	0.02
24	正馬榎洞下定点	30220	1700.	7.7	51.9	6.6	3.4	1.12	2.97	0.67	6.6	0.0	0.06	1.86	8.52	0.05	0.00	19.4	0.06
25	21号露頭溜水	30114		10.6	187.	7.9	2.6	0.44	31.6	0.63	87.8	0.0	0.06	2.70	7.31	0.01	0.00	18.7	0.06
26	小原露頭溜水	30221		12.0	191.	6.3	5.8	0.64	20.3	2.49	15.2	0.0	0.07	2.65	59.0	0.03	0.00	60.0	0.02

* : l/d t.Fe : total Fe

4.2 ウラン・ラジウム・ラドン濃度について

ウラン・ラジウム・ラドン濃度の測定結果を第3表に示した。ウランは、坑内の深層水や坑外のボーリング湧水、河川水などではいずれも1ppb以下であり、坑内のウラン鉱体近くの湧水でも低濃度であった。携帯用の酸化還元電位計で幾つか酸化還元電位を測定したところ、河川水では+100mV(vs. AgCl電極/3.3M KCl)を越えたが、ボーリング湧水では逆に-50~-200mVと低い値であった。このように湧水は還元的であり、さらに第2表に示されるように高pHである。こうした条件のもとではウランの溶解度が低いので、観測されたように低濃度となっていると考えられる。ウラン濃度の特に高い下盤坑クロスカットNo.1西の下水、及び貴液下水は、1986年まで行われていたアルカリ・インプレースリーチング実験の名残である。月吉断層の滴水及び松野池1号ボーリング湧水では1ppbより高いウラン濃度であった。河川水では、賤洞及び正馬榎洞の下定点が流量が増えているにもかかわらず上定点よりも幾分高濃度になっており、ウラン濃度の高い水の混入が推定されている。

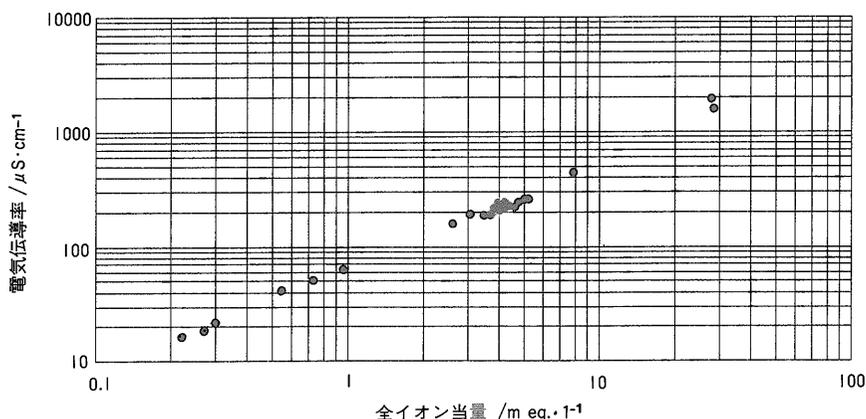
第6図には、ウラン濃度と電気伝導率・溶存シリカ量との関係を示した。単純な水・岩石相互作用によるものならばウラン量との相関が期待されるが、母岩の種類や溶出環境・メカニズム等が複雑なため、この結果では明瞭な相関は認められていない。

ラジウムは、本延坑70m・120mボーリング湧水、下盤坑貴液下水、松野池ボーリング湧水、小原露頭の溜り水、鬼岩温泉湧水等で0.05Bq/l以上と比較的濃度が高い。これらは、本延坑70mを除くといずれもウラン濃度の比較的高い試料である。

ラドンは、坑内の本延坑におけるボーリング湧水・下盤坑貴液下水、坑外の月吉公民館脇のボーリング湧水・松野池ボーリング湧水で80-670Bq/lと高く、21号露頭の溜り水でも高濃度であった。一方、中段で採取した水試料及び北延坑奥での湧出水はラドン濃度が低かった。一般に地表水中のラドン濃度は低い(例えば、金谷ほか、1980)ので、このことは中段や北延坑奥での湧水が、地表水・浅層地下水によって涵養されている可能性を示している。

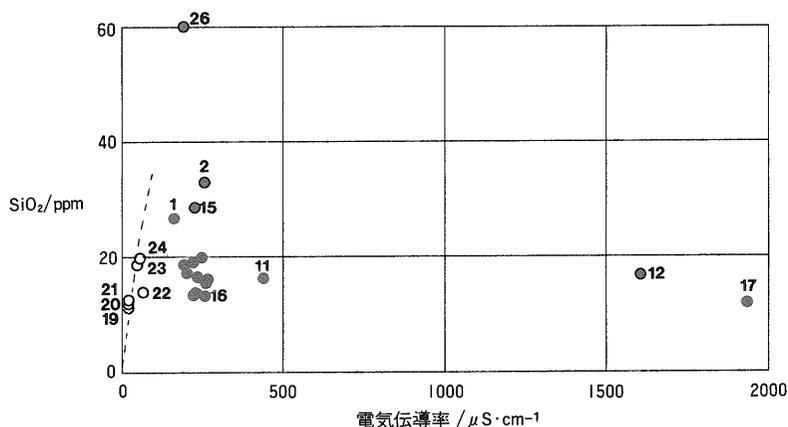
4.3 ウラン系列核種の放射能比

今回測定したウラン系列核種の²³⁸U, ²³⁴U, ²²⁶Ra, ²²²Rnの関係を第7図に示した。いずれもα壊変核種で、²²²Rnを除いて半減期は4.468×10⁹年, 2.45×10⁵年, 1600年といずれも長いものである。これらの核種間の放射能比を第4表に示した。



第2図 東濃鉱山及び周辺地域における水試料中の全イオン当量と電気伝導率の関係

Fig. 2 Relationships between total ion equivalent and electric conductivity in water samples from Tono district.



第3図 電気伝導率と溶存シリカの関係

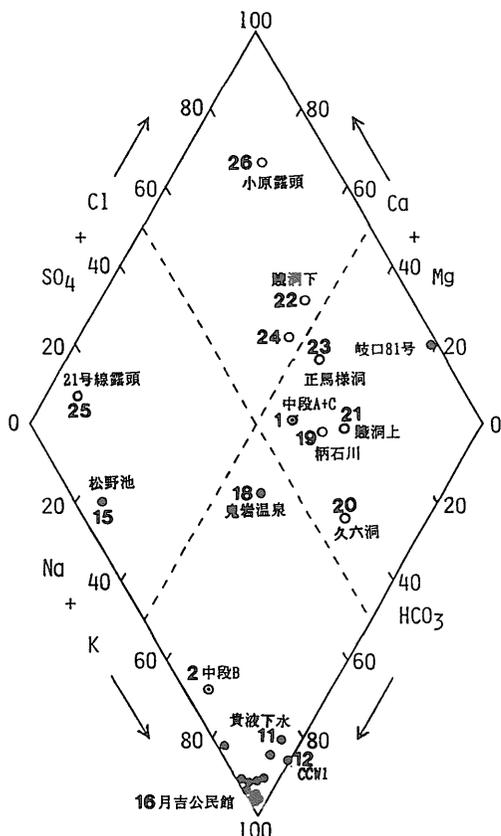
(●: 坑内水・ボーリング水; ○: 地表水)

Fig. 3 Relationships between electric conductivity and dissolved silica content in waters.

$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比は、中段の試料及び小原露頭の溜り水では放射平衡を示す1.0に近い値であるが、そのほかの試料では、いずれも1以上の値であり、坑内の下盤坑東土平ボーリング湧水では6倍もの非平衡状態である。

^{234}U は ^{234}Th から生ずるが、 ^{234}Th は ^{238}U の α 壊変に伴う反跳効果を受け結晶格子の位置からずれて緩く束縛された状態にあるか、もしくは結晶格子から溶液中に飛び出していると考えられるので(例えば、Kigoshi, 1971; Fleischer, 1980など)、一般論としては ^{234}U は ^{238}U よりも溶液中では多くなる。特に、還元的な環境下ではウラン濃度(^{238}U)が低く、反跳効果によって飛び出た ^{234}Th か

ら生ずる ^{234}U 濃度が相対的に高くなるため、 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比が大きくなり、 ^{238}U と逆相関を示すことが指摘されており(Kanai, 1988)、前述したようにボーリング湧水が還元的であることと矛盾していない。湧出した水の酸化還元電位の安定測定は容易ではないが、ボーリング口に設置されたモニタリング装置では負の電位を示しており、また、前述したように携帯用電極による測定でも低電位を示す湧水が多かった。下盤坑では、以前アルカリ溶液によるインプレースリーチング実験がなされており、その場合には前述した理由で溶出しやすい ^{234}U が大量にリーチングされて $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比は6を越えていたが、今回の調査でもクロスカットNo.1西及び貴



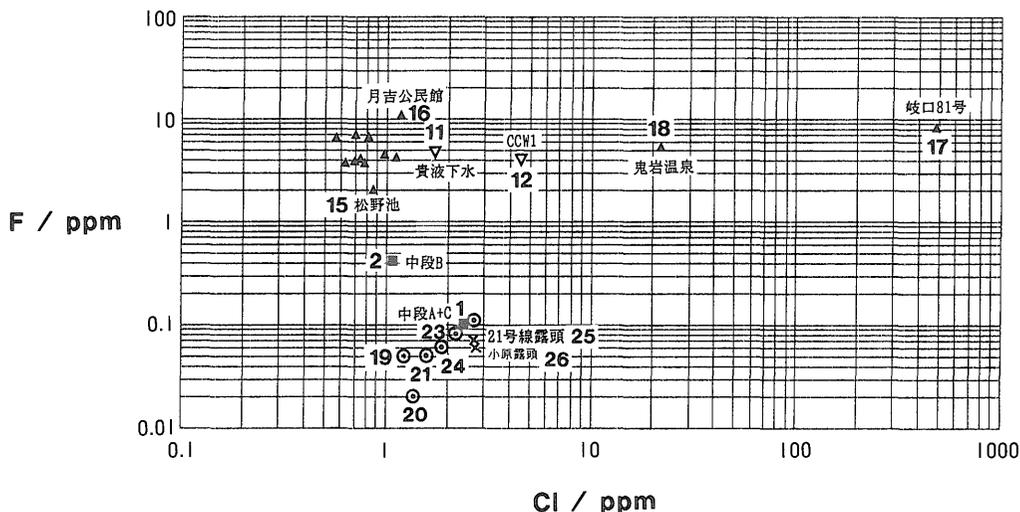
第4図 東濃鉱山及び周辺地域の水質キーダイアグラム
 (●: 坑内水・ボーリング水; ○: 中段; ○: 地表水)

Fig. 4 Key-diagram of water samples from Tono district.

液下水で²³⁴U/²³⁸U放射能比は高い値となっていた。

²²⁶Ra/²³⁴U放射能比は下盤坑貴液下水及び坑外の21号露頭溜り水において1よりも小さい非平衡状態であったが、測定のなされたその他の地点では1よりも大きく、ラジウムがウランよりも水に溶け易くかつ移動し易いことを示唆している。このことは、日本の放射能泉の多くがウランに乏しくラジウムやラドンを多く含んでいることとよく一致している。²²⁶Ra/²³⁴U放射能比が1よりも小さかった下盤坑貴液下水と21号露頭溜り水の2試料は、²²⁶Ra濃度が低いと言うよりはU濃度が特に高かったというべきであろう。

²²⁶Raと²²²Rnは直接の親娘の関係であるが、²²²Rnは化学的に不活性な気体という特徴がある。従って、²²²Rnは系から散失してしまう可能性が高い。しかし、本地域の坑内水や湧水などでは、中段の試料を除いて数百-数万倍もの非平衡状態となっている。²²²Rnの半減期が3.8235日と比較的短いことを考慮すると、かなりの量の²²²Rnが水の流れに沿って供給されていることがうかがえる。飽和ラドン量を計算すると、²²²Rnの水に対する溶解度は20°Cで0.245ml/ml(化学便覧)であるから、 $1.38 \times 10^{13} \text{ Bq/ml} = 1.38 \times 10^{16} \text{ Bq/l}$ まで濃集可能である。中段及び北延奥の試料では、ラドン濃度が低いと同時にそれほど非平衡は大きくない。中段では、おそらく瑞浪層群の水に地表水の混入がなされているのであろう。このことは、この水でトリチウムが検出され深層水と区別されている(坂巻, 1989)ことと矛盾するものではない。



第5図 東濃鉱山及び周辺地域の水におけるフッ化物イオンと塩化物イオンの関係 (▲: 坑内水・ボーリング水, ■: 中段, ○: 河川水, ×: 露頭溜り水)

Fig. 5 Relationships between fluoride and chloride ions in water samples from Tono district.

第3表 東濃鉱山及び周辺地域の水中のウラン・ラジウム・ラドン濃度
Table 3 Uranium, radium and radon contents in water samples from Tono district.

番号	試料採取位置	ウラン(U)	ラジウム(Ra)	ラドン(Rn)
		μg/l	Bq/l ± σ	Bq/l ± σ
(坑内)				
1	中段 A+C ホース	0.02	0.04±0.01	0.7±0.1
2	中段 B ホース	0.56	0.02±0.01	0.1±0.1
5	本延坑 65mボーリング	0.02	0.03±0.01	118. ±1.
6	本延坑 70mボーリング	<0.01	0.07±0.01	94.1±0.2
7	本延坑 95mボーリング	0.01	0.02±0.01	193. ±1.
8	本延坑 120mボーリング	0.10	0.27±0.16	368. ±1.
9	北延坑奥	0.06	0.03±0.01	4.6±0.1
10	下盤坑 東土平ボーリング	0.06	0.02±0.01	670. ±1.
11	下盤坑 貴液下水	233.	0.10±0.01	500. ±1.
12	下盤坑 クロスカットNo.1 西	1140.		
13	下盤坑 月吉断層 滴水	2.00		
(坑外)				
15	松野池1号ボーリング	1.27	0.09±0.01	77.5±0.1
16	月吉公民館	0.19	0.02±0.01	126. ±1.
17	岐口81号ボーリング	0.01	0.03±0.01	20.2±0.1
18	鬼岩温泉 松泉閣前	0.84	0.08±0.01	37.2±0.1
(地表水)				
20	久六洞	0.02		
21	賤洞 上定点	0.04		
22	賤洞 下定点	0.39		
23	正馬様洞 上定点	0.03		
24	正馬様洞 下定点	0.09		
25	21号露頭 溜水	239.	0.02±0.01	157. ±1.
26	小原露頭 溜水	0.07	0.06±0.01	

±σは計数誤差を示す

放射性廃棄物の中には、揮発性のI, 希ガスのKr並びに Xe, Raから生じるRn等の挙動も考慮されなければならず、これらは直接大気中に放散される場合に加えて、水が系を通過する過程で容易に移動することが、このラドンの挙動から強く示唆される。

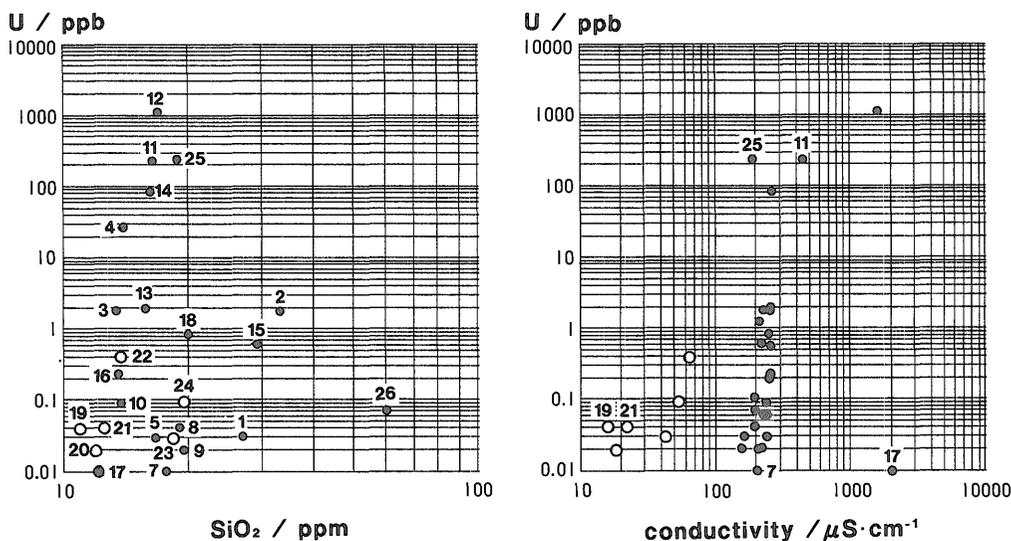
Smellie *et al.* (1986) は、スウェーデン及びスイスでのドリルコア3本中の平衡関係を調べ、2本に非平衡を認め、100万年に40cmのUの移動を示している。しかし、岩石-水接触面での²³⁴U/²³⁸U放射能比は高々2.3に過ぎなかった。また、Sato *et al.* (1987) は、坑道内の固形試料及び月吉鉱床を貫くドリルコア中の²³⁸U, ²³⁴U, ²³⁰Thを調べ、それらの間ではわずかな非平衡が認められたものの、大きな非平衡は無かったと報告している。一方、本研究では水系を扱っているが、そこでの非平衡

はかなり大きなものもある。このことは地層処分研究に当たった水系における研究の有用性を示しているものと受け止める事ができる。

5. ま と め

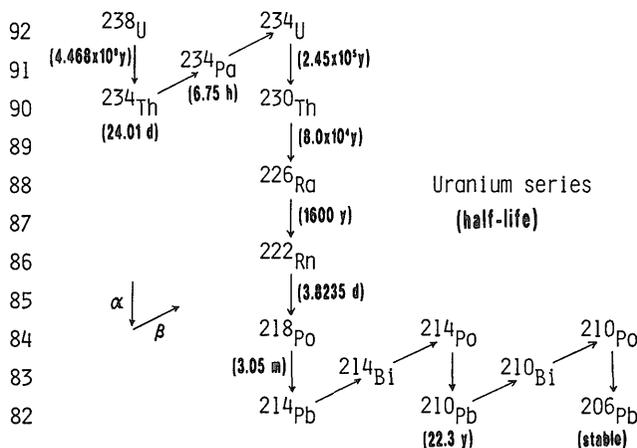
岐阜県東濃鉱山及びその周辺地域の地表水・地下水の水質を調査し、その中のウラン系列核種である²³⁸U, ²³⁴U, ²²⁶Ra, ²²²Rnなどの挙動、関係などを調べ、ナチュラルアナログとしての有用性を考察・検討した。その結果、

(i) 坑内のインプレースリーチング試験の影響が未だ残る下盤坑クロスカットNo.1西の下水及び貴液下水を除くと、ボーリング湧水中のウラン(²³⁸U)は低濃度である。このことは、深層地下水の水質が還元的でpHも高



第6図 ウラン濃度と電気伝導率・溶存シリカの関係
(●:坑内水・ボーリング水; ○:地表水)

Fig. 6 Relationships among uranium content, electric conductivity and dissolved silica content.



第7図 ウラン系列の壊変系列核種とその半減期

Fig. 7 Decay scheme for uranium series nuclides and their half-lives.

いことからウランの溶解度が低く、従って移動性が乏しくなっていることを示す。高レベル放射性廃棄物の処理においてもこのような安定した還元環境の保持が重要と考えられる。

(ii) ラジウム(^{226}Ra)はウラン濃度の高い水において高濃度となる傾向が認められたが、ウランから計算される放射平衡量のラジウムよりもはるかに多く、水系中のラジウムはウランよりも移動し易いことが実証された。

(iii) ラドン(^{222}Rn)はボーリング湧水などでは高濃度

となっており、その親核種であるラジウムと比較しても数百-数万倍の非平衡状態で、水の流れに沿って活発な供給・移動がなされているものとみられる。一方、中段の水のラドン濃度、 $^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比はともに低く、この水は浅層地下水・地表水によって涵養されていることを強く示唆する。このようなラドンの挙動は、水循環の指標となると同時に、廃棄物から出る可能性のあるガス状の元素に対する指標としても有用と考えられる。

本研究では、ウラン系列のウラン・ラジウム・ラドン

第4表 東濃鉱山及び周辺地域の水中の²³⁸U, ²³⁴U, ²²⁶Ra, ²²²Rnの間の放射能比
Table 4 Activity ratios among ²³⁸U, ²³⁴U, ²²⁶Ra and ²²²Rn in water samples from Tono district.

番号	試料採取位置	放射能比				
		$\frac{^{234}\text{U}}{^{238}\text{U}} \pm \sigma$	$\frac{^{226}\text{Ra}}{^{238}\text{U}} \pm \sigma$	$\frac{^{222}\text{Rn}}{^{238}\text{U}} \pm \sigma$	$\frac{^{226}\text{Ra}}{^{234}\text{U}} \pm \sigma$	$\frac{^{222}\text{Rn}}{^{226}\text{Ra}} \pm \sigma$
(坑内)						
1	中段 A+C ホース		165. ± 48.	2620. ± 40.		16. ± 5.
2	中段 B ホース	0.93 ± 0.04	2.3 ± 1.6	9. ± 1.	2.5 ± 1.8	4. ± 3.
5	本延坑 65mボーリング	2.76 ± 0.41	103. ± 46.	476000. ± 1000.	37. ± 22.	4620. ± 2080.
6	本延坑 70mボーリング	1.47 ± 0.39				1280. ± 220.
7	本延坑 95mボーリング	2.84 ± 0.70	162. ± 91.	1550000. ± 10000.	57. ± 46.	9610. ± 5410.
8	本延坑 120mボーリング	1.55 ± 0.14	217. ± 132.	296000. ± 1000.	140. ± 98.	1360. ± 830.
9	北延坑奥	5.07 ± 0.49	38. ± 15.	6180. ± 40.	7.5 ± 3.7	162. ± 66.
10	下盤坑 東土平ボーリング	6.12 ± 0.59	33. ± 15.	898000. ± 1000.	5.4 ± 3.0	27100. ± 12600.
11	下盤坑 貴液下水	4.61 ± 0.10	0.03 ± 0.01	173. ± 1.	0.01 ± 0.01	4970. ± 660.
12	下盤坑 クロスカットNo1西	3.67 ± 0.04				
13	下盤坑 月吉断層 滴水	3.58 ± 0.10				
(坑外)						
15	松野池 1号ボーリング	1.97 ± 0.05	5.4 ± 0.8	4910. ± 10.	2.7 ± 0.5	911. ± 142.
16	月吉公民館	1.69 ± 0.15	8.5 ± 4.9	53400. ± 100.	5.0 ± 3.3	6300. ± 3630.
17	岐口81号ボーリング	1.79 ± 0.56	262. ± 96.	162000. ± 1000.	146. ± 99.	620. ± 228.
18	鬼岩温泉 松泉閣前	3.34 ± 0.15	7.9 ± 1.2	3560. ± 10.	2.4 ± 0.5	450. ± 73.
(地表水)						
20	久六洞	1.79 ± 0.63				
21	賤洞 上定点	3.77 ± 0.48				
22	賤洞 下定点	1.86 ± 0.10				
23	正馬様洞 上定点	3.22 ± 0.63				
24	正馬様洞 下定点	5.10 ± 0.45				
25	21号露頭 溜水	2.94 ± 0.05	0.01 ± 0.01	53. ± 1.	0.00 ± 0.01	7330. ± 4020.
26	小原露頭 溜水	0.99 ± 0.14	70. ± 14.		71. ± 24.	

(±σ)は計数誤差を示す

についてその挙動並びに水循環を検討し、ナチュラルアナログとしての有用性について予察したが、²³⁸U-²³⁴Uの崩壊系列の間に²³⁴Thを含んでおり、²³⁴Uの詳細な挙動を解明するためには実際には²³⁴Thの挙動も解明しなければならない。また、²³⁴Uから²²⁶Raにいたる間においても²³⁰Thが存在しており、その挙動も重要である。こうしたThフラクションの核種は一般に水系中では移動しにくいと考えられているが、時間のスケールを入れた速度論的な検討を行うには不可欠な核種であり、これらについての研究も今後の課題として残されている。

文 献

Brookins, D.G.(1984) Geochemical aspects of radioactive waste disposal. Springer-

Verlag, New York, p. 1-8.

Chapman, N.A. and Smellie, J.A.T.(1986) Introduction and summary of the workshop. *Chem. Geol.*, vol. 55, p. 167-173.

Finnegan, D.L. and Bryant, E.A.(1987) Methods for obtaining sorption data from uranium series disequilibria. *Loss Alamos Nat. Lab.*, LA-11162- MS UC-70, p. 1-21.

Fleischer, R.L.(1980) Isotopic disequilibrium of uranium: alpha-recoil damage and preferential solution effects. *Science*, vol. 207, p. 979-981.

池田喜代治・阿部喜久男(1977) 地震予知に関連する地下水の化学的性質. 地質ニュース,

- no. 273, p. 20-29.
- Kanai, Y.(1986) Determination of $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ activity ratios in geological reference materials by alpha spectrometry. *Radioisotopes*, vol. 35, p. 601-604.
- 金井 豊(1987) イオンクロマトグラフィーにおける陰・陽イオンの保持挙動と陸水分析への応用. 地調月報, vol.38, p. 587-600.
- Kanai, Y.(1988) Behavior of uranium-238 and its daughter nuclides in the Masutomi spring, Yamanashi Prefecture, central Japan. *Geochem.J.*, vol. 22, p. 285-292.
- , Imai, N. and Terashima, S.(1986) Determination of uranium in thirty-six geological reference samples by fluorimetry and extractive spectrophotometry. *Geostandards Newsletter*, vol. 10, p. 73-76.
- 金谷 弘・池田喜代治・阿部喜久男(1980) 川崎市の地盤隆起と地下水のラドン濃度変化について. 地調月報, vol. 31, p. 447-460.
- Kigoshi, K.(1971) Alpha-recoil thorium-234: dissolution into water and the uranium-234/uranium-238 disequilibrium in nature. *Science*, vol. 173, p. 47-48.
- 小林孝男(1989) 岐阜県可児盆地東部の地質とウラン鉱化作用. 鉱山地質, vol. 39, p. 79-94.
- 河野勉也・坂巻幸雄・井上英二(1969) 岐阜県瑞浪市南部駄知地区の含ウラン層. 日本におけるウランの産状 その2, 地調報告, no. 232, p. 809-815.
- 望月常一・関根節郎(1969) 岐阜県土岐市ウラン鉱床の化学探鉱. 日本におけるウランの産状 その2, 地調報告, no. 232, p. 817-823.
- 大塚寅雄・近藤善教・佐々木政次・高田康秀・下坂康哉(1969) 土岐市河合のウラン露頭. 日本におけるウランの産状 その2, 地調報告, no. 232, p.741-745.
- 佐藤良昭(1969) 岐阜県東濃御嵩・日吉付近に分布する新第三系の重鉱物組成. 日本におけるウランの産状 その2, 地調報告, no. 232, p. 803-808.
- 坂巻幸雄(1989) 堆積性ウラン鉱床を対象とした天然相似元素の分布と移行メカニズムに関する野外地質学的研究. 昭和63年度科学技術庁科学技術振興調整費による緊急受託研究報告書.
- ・鈴木泰輔・小尾五明(1969) 岐阜県御嵩地区の地質とウランの産状. 日本におけるウランの産状 その2, 地調報告, no. 232, p. 747-771.
- ・金井 豊・上岡 晃・豊 遙秋(1987) Natural Analogueとの関連でみたウラン鉱床. 三鉱学会要旨集, p. 130.
- ・山川 稔・金井 豊・黒田和男(1989) 風化花崗岩地域における地下水系. 地質調査所所内研究発表会要旨, 地調月報, vol. 40, p. 530.
- Sato, C., Ochiai, Y. and Takeda, S. (1987) Natural analogue study of Tono sandstone type uranium deposit in Japan. Natural analogues in radioactive waste disposal. CEC, p. 462-472.
- 島田忠夫・林昇一郎・小尾五明(1969) 岐阜県土岐市北部の地質とウラン鉱床. 日本におけるウランの産状 その2, 地調報告, no. 232, p. 711-740.
- Smellie, J.A.T., Mackenzie, A.B. and Scott, R.D. (1986) An analogue validation study of natural radionuclide migration in crystalline rocks using uranium-series disequilibrium studies. *Chem. Geol.*, vol. 55, p. 233-254.
- 鈴木泰輔・浜地忠男・根本隆文・大久保太治・尾上亨(1969) 岐阜県瑞浪市日吉地域の地質とウランの産状. 日本におけるウランの産状 その2, 地調報告, no. 232, p. 773-801.
- 山本 勇・塩田哲也・原島文雄・藤本順吉・鯉沼稔・広野修一郎(1974) 東濃地域のウラン鉱床の探鉱について. 鉱山地質, vol. 24, p. 157-168.

(受付:1991年2月6日;受理:1991年3月5日)