

20億年前の天然原子炉(オクロ鉱床)を訪ねて

藤井 勲¹⁾

1. はじめに

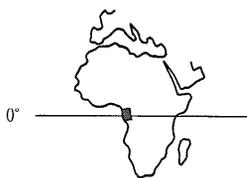
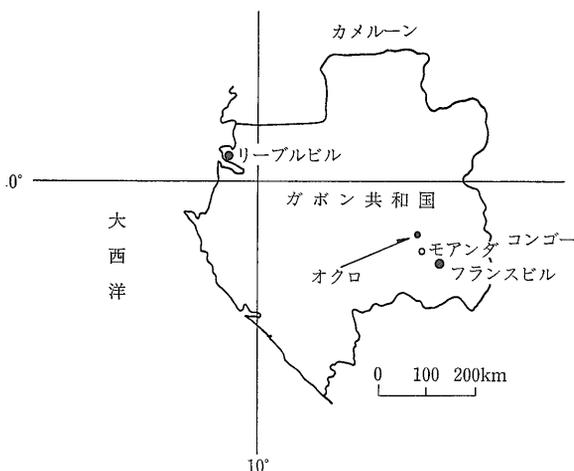
今から19年前に、フランスの原子力庁は、「アフリカのガボン共和国にあるオクロのウラン鉱床で天然の原子炉が発見された。」と発表した。人間の英知を集めて、初めて完成する事が出来たと信じられていた原子炉が、自然に存在していたと言うのであるから、本当か？と、半ば信じ難いと思った人も多かったろうと思うが、筆者もその一人であった。しかし、これは科学的に疑う余地の無い事実であった (Neuilly *et al.*, 1972)。そこで、1984年の春、ヨーロッパで開かれた「エネルギーに関する国際会議」に参加した折りに、12年間暖めていた「天然原子炉」を現地に訪ねたいという念願を果たす事にした。この原子炉は、1972年に西アフリカのガボン共和国 (第1図) で発見されたもので、フランス原子力庁の研究の結果、今から約20億年前に、ウラン鉱床の中で、全く自然発生的に原子核分裂の連鎖反応が発生して、膨大なエネルギーを放出していた事が判明したという代物である。ここでは、この天然原子炉を現地に調査した私の印象と、いくつかの知見などを述べて、御参考に供したいと

思うのである。

2. オクロへ

東アジアから見ればヨーロッパとアフリカは、同じ方向にあるが、ジャンボ・ジェット機でも、パリからガボン共和国の首都のリーブルビルまで9時間はかかる。ちょうど、東京からオーストラリアまでと同じ程度の距離である。パリを発ってから長時間にわたってサハラ砂漠を北から南に縦断したのち、私の乗ったジェット機は、暮色深いガボン共和国の首都であるリーブルビルの国際空港に到着した。人の顔が何とか識別出来る程度の明るさであったが、蒸し風呂のような高温多湿の気候に圧倒された。念願のアフリカに遂に来たんだという感慨と、大変な処に来てしまったという後悔の念が私の頭のなかで交錯した。

この国は、フランスの旧植民地であるが、シュバイツァー博士が、この国のランバレネに病院を開いて、黒人の救済にあたった事で有名である。しかし、今では、国民一人当たりの国民総生産では、アフリカ第2を誇り、



第1図
ガボン共和国とオクロの位置図

1) 元地質調査所非常勤調査員：〒194-01 東京都町田市金井町2406

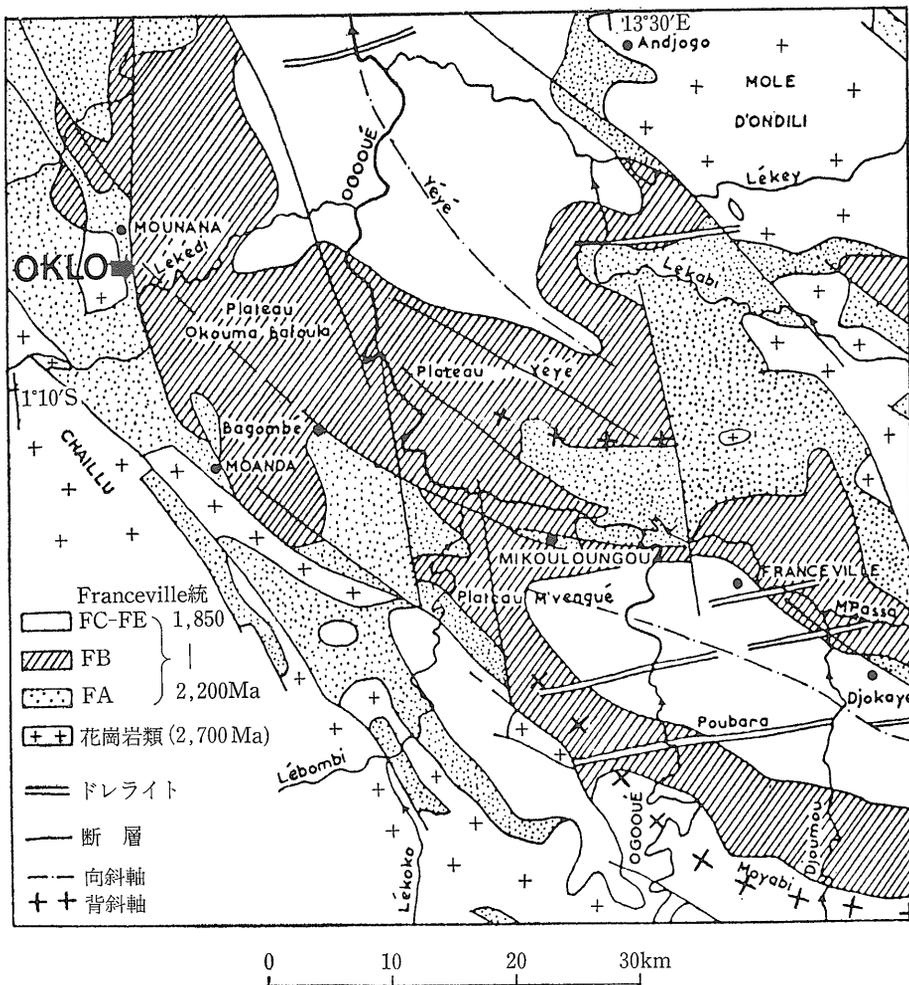
キーワード：オクロ現象，ウラン鉱床，核分裂生成物，超ウラン元素，放射性廃棄物，廃棄物処理・処分，地層処分，天然原子炉

石油，ウラン，マンガ，などを輸出しており，公用語はフランス語である．人口は，120万と言われている．

この国の入国管理，税関チェックを終えた後に，蒸し暑さと，喧騒の渦の中で，早春のパリからのスーツを着た私の体からは，容赦なく滝のような汗が流れだした．それに加えて，重い手荷物，毎度の事ながら海外旅行の最悪の場面である．上気して途方に暮れていた時，フランスビル・ウラン鉱山会社(COMUF)から出迎いの，マダム・ピッシュと名乗る婦人が声をかけてくれた．そして，同時にこの喧騒の渦から解放された．案内されたホテルは，第一級のものであった．ここの食堂は，大変立派で衛生的ではあるが，トカゲが床の上に数匹いて，食事をしてる私を見上げて，パン屑を求めて待っているのは，些か驚きであった．それは，日本人がそれから連想するものとは違っ，さながらペットの子犬の所作に似ていた．翌朝，伊藤忠商事の丸尾支店長のお世話でリーブルビ

ル市内を見物，昼食にベトナム式中華料理店で，伊勢海老，かに，豚，焼き飯など食べた．これは，予想に反して非常に旨かった．おそらく，この度の海外旅行中の食事の白眉であった．この日の午後，再びF28というオランダ製の新鋭ジェット機に乗って，南東に500kmほど飛んだ．目的の「天然原子炉」は，この航空機の降りる「モアンダ」という町の北，20kmのところにある（第2図）．この国には市販されている地図がなかったので，何処を飛んでいるのか皆目判らないが，地上を見ても山がない．緑のジャングルが延々と続いている．途方もなく大きい大陸の上を，私の乗った航空機は，大西洋側から奥地に向けて南東に飛んだ．機内には，私を除いて，ガボン人以外の客は乗っていなかった．私は，非常に遠いところに来てしまった事を実感した．

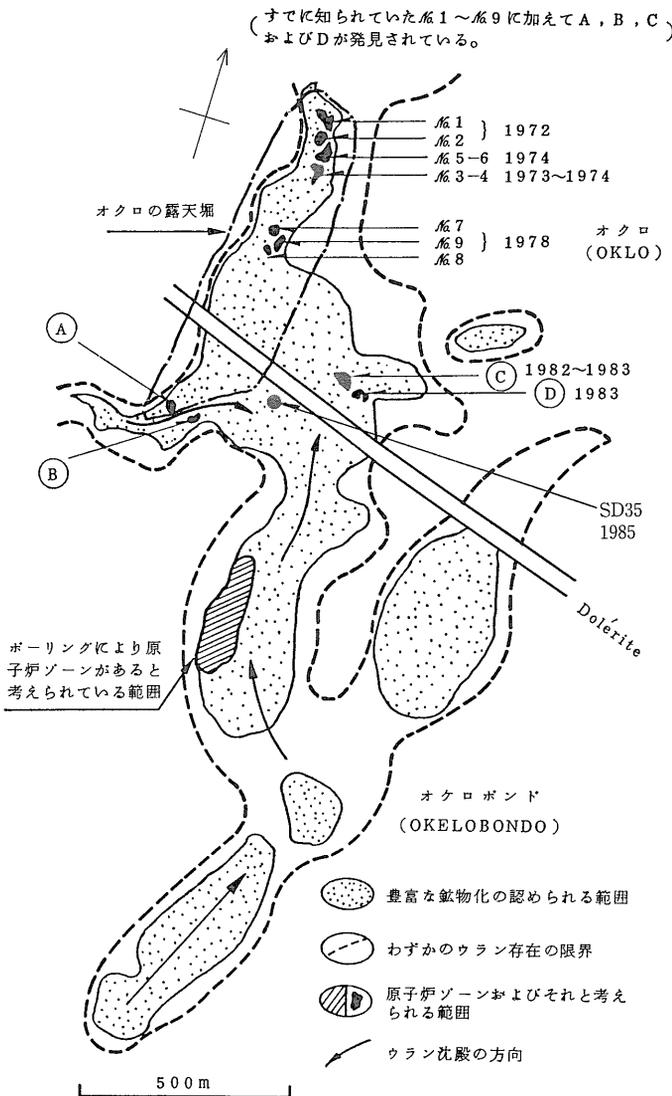
翌日，ついに念願の「天然原子炉」の跡を見た．フランスビル・ウラン鉱山会社のドローヌ技術部長の案内



第2図
 ガボン共和国．フランスビル盆地の地質図
 [Diouly-osso and Chauvet (1979) の一部改変]
 FA: 砂岩-アルコース砂岩部層
 FB: 泥質岩部層 (一部有機質に富む)
 FC-FE: 溶結凝灰岩ないし凝灰質砂岩-泥岩

で、露天掘りのオクロ鉱床（第3図）を見る。最初に、西側から、深く露天掘りされた部分を見る。100m程の深さで、手前の砂岩が45度の傾斜で東側に掘り下げられていた。原子炉は、この砂岩上にあるので西側からは見にくい。重戦車のような鉱石運搬車が、露天掘りの底を砂ぼこりを揚げて走り回っていた。次いで東側にジープでまわる。先ほどの45度の砂岩の壁を正面から見る事が出来る。露天掘りの南北の長さは、約1000mで、その北側から発見された順序に従って、原子炉ゾーン No. 1, No. 2, No. 3-No. 4, No. 5-No. 6があり、そこから南に300m位離れた処に固まって No. 7, No. 8, No. 9の原子炉群の跡がある。ここには、この原子炉が大量の熱を発

生した時に作られた熱水によって、砂岩の表面が侵食された跡がはっきり残っていた（口絵1）。この砂岩の上に10%から50%程度の濃度のウランの層が載っていたのである。この様に高い濃度のウランは、工業的には極めて優れた鉱石であるから、今では、すっかり採掘されてしまって、僅かに原子炉ゾーンNo. 2の一部分、および、原子炉ゾーンAのみが保存されているに過ぎない。しかし、原子炉ゾーンB, C, D, およびオケロポンドの原子炉ゾーン（第3図）は、地表ではなく地下深くにあるので、1987年現在、20億年前の姿そのままに存在している筈である。



最近、オクロ鉱床のSD35（第3図）と、このオクロから南30キロメートル、モアンダの東にあるバゴンベ地区（第2図）に、天然原子炉が発見されたという報告を受けた。後者の天然原子炉は、オクロ-オケロポンド地区の比較的小さい地域の中で発見された十数個以外のものとしては、最初のものである。

原子炉があったと言えば、ソビエトの最近のチェルノブイリ原子力発電所の事故の時の様に、あたり一面に「死の灰」の放射能がバラ撒かれていて、危険ではないのか？と思われるかも知れないが、20億年という長い年月の間に、それらは全部壊変してしまっているから、その心配はない。そこにあるのは、普通のウランが持っている天然の放射能だけである。

20億年前という気の遠くなる様な過去を、ある種の感慨をもって思いふけている内に、猛烈なスコールと雷が襲来した。赤道直下のスコールは、すさまじい。強烈な太陽の光線と、この大量の水の供給が、ガボン豊かな緑の国にしているであろう。この国の子供たちは、十分の栄養をとり、すくすく育っており、ここは、われわれの先入観として持ちがちな「飢餓のアフリカ」というイメージとは全然異なる天地の様に、私には思われた。

3. 天然原子炉とは

3.1 その発見

この天然原子炉を見て、先ず第一に、私

1) COMUF の Dronne, J. L. 技術部長による 1985年時点の情報。

第3図 天然原子炉群の位置図

が感じたことは自然の神秘であった。科学技術の粋を集めた先端のテクノロジーを以て、初めて作られたといわれる原子炉に限らず、人間よりも先に、自然が完成させている技術というものが、かなり沢山ある。例えば、「軌立て具には約60個の目が付いているが、そのレンズ系は、現在、天体あるいは、人工衛星の観測に用いられている、非常に広角で、画像の周辺に至るまで歪の少ないシュミット・カメラのレンズ系と同じである」という研究報告がある。また、このような例を出すまでもなく、人間の身体の中の生理現象は、極度に自動化された、しかも常温で操業可能な、極めて効率の高い化学工場である事など、枚挙に暇がない程である。

地球が誕生したのは、今から46億年前であると言われている。この値は、1950年以降、実用化されて盛んに用いられている放射性同位体の壊変現象を利用した放射年代測定法にもとづいている。また、先に述べたオクロの天然原子炉の年齢は、ウランの核分裂数から計算によって求めることが出来る。いくつかの試料から求めた結果を平均したところ、約20億年という値がえられた。すなわち、地球の年齢の半分の少し後の時期に、天然の原子炉が誕生した事になる。

オクロの天然原子炉の発見に至る経緯は、大変に興味深い物語であると共に、その発見史の前半の主役は、日本人化学者の黒田和夫博士であった事も、われわれ日本人としては忘れ得ぬ事であろう。1956年、アーカンソー大学の教授であった黒田博士は、理論的な考察の結果、約20億年前にウラン鉱床中に天然原子炉が存在していた可能性のあることを指摘した (Kuroda, 1956)。それから16年後の1972年にフランスの原子力庁は、アフリカの大西洋岸の赤道直下にあるガボン共和国のオクロ地区で、天然原子炉が発見されると発表した。そして、これは黒田博士によって、その存在が予言されていたものであることを指摘した (Neuilly *et al.*, 1972)。発見史の後半の主役は、フランスの原子力庁が果たすことになる。

1972年6月、フランスのピエールラットにあるウラン濃縮工場で、天然ウラン中の ^{235}U の濃度を分析していたところ、 ^{235}U の天然ウラン中における標準の濃度である0.720%よりも低い濃度を検出した。この濃度は、地球上は勿論のこと、太陽系の中では一定の値を持つと考えられているので、これより少ない値が得られたことは、二重の意味で、極めて重要であると考えられた。すなわち、ここ数十年間の学問上の常識に反して、何故0.720%よりも少ない ^{235}U を含むウランが天然に存在するのか？という自然科学上の疑問と、ウラン濃縮事業への多大の影響に対する懸念であった。

事の重大性に鑑みフランス原子力庁は、その所属研究

所の地質学者、鉱物学者、中性子物理学者、および核化学者等を動員して、このウランの同位体組成の異常の原因を追求した。この結果、減損したウランと共存する希土類元素のネオジムの同位体組成が、天然起源のネオジムのそれと一致せず、 ^{235}U の核分裂起源のネオジムの同位体組成と一致することが確かめられた。この様にして ^{235}U の同位体存在比が小さいのは、ここで過去にウランの核分裂連鎖反応が起こり消費されたからであると説明することが出来たのである。そして、この異常な同位体組成を示したウランは、ガボン共和国のオクロ鉱床から抽出されたウランであることが確かめられた。第3図にオクロで発見された天然原子炉群 (No. 1-No. 9, A, B, C, D等) の位置を示してある。また、表紙に露天掘のオクロ鉱床の景観と、口絵1にNo. 2原子炉ゾーンの保存されている部分を示してある。残念ながら、オクロの天然原子炉の大部分は、すでに採掘されてしまい、原子炉ゾーンA、および地下深くに確認されているものと、この保存部分を除いて現存していない。

3.2 天然原子炉の成立のシナリオ

オクロの天然原子炉の成立に関して興味深い考え方がある。もし地球上に生物が発生しなかったとしたら、この原子炉は出来なかったであろうというものである。この原子炉成立のシナリオを紹介しよう。

地球上に地殻が形成されて、高温で水蒸気の状態にあった水が、凝縮して地球上に海を形成した後、地表の可溶性の成分は雨によって海水中に濃縮されていった。原子炉成立の基本条件として、まず第一に、ウラン濃度の高い鉱床が形成されなければならないが、当初のウランは UO_2 という化学型で地殻の中に存在していたであろう。このウランの局所的な濃度は、決して高いものではなかったと思われる。この二酸化ウランは水に対しては可溶性ではないので、雨によって海水中に濃縮されることは無かった。ウランは原子価が高くなれば可溶性にならない。地殻の中にウランが濃縮されるためには、何等かの原因でウランの原子価が高くならなければならない。これを可能にしたのが植物の発生である。

今から20数億年前の地球大気の組成は、現在の金星と同じように、二酸化炭素と水蒸気等であったと考えられているが、20~25億年前頃から光合成を行なう青緑藻という植物が地球上に登場して、地球表面の大気中の遊離酸素量が次第に増加していった。このため、地表付近に露出した二酸化ウランは遊離酸素を含む大気と接触して酸化され、より高い原子価の状態である水溶性のウラニル錯イオンとなり、雨水によって多量のウランが溶け出して地下深く滲み込み、有機物を含む層で還元されて再び不溶性となり沈澱して、ウランは、閃ウラン鉱 (ura-

ninite), ピッチブレンド, あるいは, コフィナイトといった鉱物になった. あるいは, 溶け出したウランが河口付近の還元性の環境で沈澱して堆積していったかも知れない. とにかく, この様にして, 酸化と還元を受けながらウランの濃度の高い鉱床が形成されていったと考えられている. すでに述べたように, 局部的にウランが濃縮されなければならぬという天然原子炉成立のための第一条件は, かくして, 満たされたのである. しかし, これだけの条件では原子炉は成立しない. さらに, 以下の条件が必要である.

第二の条件は, ^{235}U の濃度(同位体存在比)が高いことである. その方が核分裂連鎖反応が起き易いからである. これについては, 年代を遡るほど有利になる. その理由は, 次の通りである. 天然のウランを構成している核種は, ^{238}U , ^{235}U , ^{236}U の壊変系列に属する ^{234}U の3核種であるが, ^{238}U の半減期が45億年であるのに対して ^{235}U のそれは7億年であるから, 今から21億年前の ^{235}U の濃度は, 現在の0.720%に対して4.0%に達する. つまり当時の天然ウランは, 今日の濃縮ウランに相当していたのである. しかし, もし数億年前程度の過去に形成された鉱床であったとすると, 大きいウランの濃集ではあっても ^{235}U の濃度が低く臨界には至らなかったであろう. 今から約20億年前にウラン鉱床が形成されていた事がこの条件を満たしたのである.

第三の条件は, 中性子毒と呼ばれる中性子吸収断面積の大きい核種が存在しないことである. オクロの天然原子炉の炉心付近には, このような核種を含む化学元素がほとんど無かった.

第四の条件は, ^{235}U の核分裂を惹起する熱中性子をつくり出すための水の存在である. 第一の条件で述べたようにウラン鉱床を形成するためには, 水の存在が不可欠である. オクロにおいては, 水はウラン鉱床の形成と熱中性子をつくるための減速という二つの役割を果たしていたという事になる.

4. オクロ現象と核分裂生成物の“ふるまい”

これまで述べてきたような条件がオクロのウラン鉱床において同時に満たされたために, 天然原子炉が成立して, 莫大なエネルギーが放出された. しかし, 研究の結果によれば, この原子炉は, かなり長期間にわたって間欠的に作動していた可能性もあり瞬間的な出力としては, それほど大きいものではなく, 数十kW程度であったと考えられている. つまり, 膨大なエネルギーを数十万年かかって少しずつ放出していた形跡があるのである. 次々と発見された十数個ある原子炉の内, 初めの6

個について調査された結果によると, 放出されたエネルギーの総量は, 100万kW級の原子力発電所の原子炉5基が, 一年間フル運転したときに発生する熱エネルギーに相当する. この様に, 全く自然にウラン鉱床の中で発生した核分裂連鎖反応の持続を, オクロの地名を採ってオクロ現象と呼ぶことになった.

このエネルギーの総量は, 過去に核分裂連鎖反応を経験していない, 現在の天然ウラン中の ^{235}U の濃度が0.720%であるのに対して, オクロ鉱床の天然原子炉炉心付近の現在の ^{235}U の濃度が異常に少ないので, この両者の差と, 核分裂連鎖反応が持続している間に ^{238}U から ^{239}Pu が生成され, それが壊変して ^{235}U となった量を勘案して核分裂連鎖反応で燃焼して失われた ^{235}U の量を求めて, 計算されている. 失われた ^{235}U の総量は, 先に述べた6個の原子炉については, 約6トンに達する. したがって, この炉心で発生した核分裂生成物量は約6トンになる. 今日の言葉で言うならば, 6トンの高レベル放射性廃棄物が発生した訳である. 勿論, 人工原子炉でも, 天然原子炉でも, それを構成する核種は壊変を考えなければ同じである.

さて, このときに発生した約6トンの放射性廃棄物はどうなったか. 当然の事ながら, この廃棄物中の数ある化学元素の内, ルビジウム, セシウム等のようなアルカリ金属は, 水と接触すると激しく反応して, 極めて水溶性に富む水酸化物となるので, オクロにおいても炉心からほとんどその全部が失われている. 次いで, 地球表面の環境条件で気体である核分裂生成物, 例えば, クリプトン, キセノン等も, ほとんどが失われていて存在していない. また, ヨウ素のような沸点の低い元素も炉心から失われている. バリウム, ストロンチウムの様なアルカリ土類金属も相当量が失われている. しかし, それ以外のプルトニウム, ウラン, トリウム, 希土類元素, ジルコニウム, ニオブ, ルテニウム, パラジウム, テルル等は, ほとんど失われる事なく炉心に留まっている. 特に, プルトニウムが全く失われていなかった事は, 注目すべき事であろう. というのは, 超ウラン元素はアクチノイド元素としてよく似た化学的性質をもっているもので, これに属するプルトニウムが炉心に留まっていた事は, 超ウラン元素が同じ“ふるまい”をしたであろうことを示唆するものである. さらに, やや詳しく, これらの元素の“ふるまい”について紹介する事にしよう(Hagemann *et al.*, 1980).

4.1 ウランの“ふるまい”

オクロ現象において最も注目すべきことは, この天然原子炉のウランが核反応の期間(約60万年間)と, その後の20億年間に, その殆ど全部がその時の位置に留まって

いた事であろう。その根拠として、この天然原子炉の断面における ^{235}U の同位体減損の程度と、核分裂生成物、特に、希土類元素の量との相関を挙げる事が出来る。核分裂によって消費された ^{235}U の量と核分裂生成物の量との関係は矛盾なく説明されている。そして、また、核反応の時期以来、ウランが再結晶するなど、ウランの再構成によって同位体再均一化が行われた形跡は全く存在しない。例えば、閃ウラン鉱(uraninite)の結晶粒に核分裂片による照射損傷の跡が観察されている。これは、核反応が持続していた当時から此の結晶が存在していた事を意味する。また、この閃ウラン鉱は、ウランと特別の親和力をもたない化学元素(核分裂生成物)を含んでおり、しかも、この鉱物の結晶粒の中にもみ見出される。さらに、顕微鏡観察によれば、ウランは極めて均一性に富んでいることが判明したし、その上、天然原子炉の中では、 ^{238}U (半減期: 2300万年)が2つの経路で生成され、アルファ壊変の後に ^{232}Th に変換されるが、イオン・マイクロアナライザー(IMA)による分析では、ウランのイオン像とトリウムのそれとは完全に一致し、しかも、トリウムの濃度はウランの濃度に比例していたのである。以上の事実から、ウランの移動は無かったと結論されている。

4.2 核分裂起源あるいは放射性起源の化学元素の“ふるまい”

少々細くなるが、これらの元素を次の3つのカテゴリー、すなわち、天然原子炉心近傍において、1) 保持されていた、2) かなりの量が失われた、3) 全部除去された、3種の化学元素群に分けて考察する事にしよう。

4.2.1 比較的によく炉心近傍に保持されていた化学元素群

放射性起源のトリウム、核分裂起源の希土類元素(La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb)、ジルコニウム、ルテニウム、ロジウム、およびパラジウム、そして多分、イットリウム、ニオブ、およびテルルなどを挙げる事が出来る。このリストには、今では当然、原子炉ゾーン中には存在していないが、プルトニウムを加える事が出来る。というのは、このプルトニウムから生まれた ^{235}U を検討すると、プルトニウムの壊変前の“ふるまい”に関する手掛かりを得る事が出来るからである。測定された核分裂生成物の量から計算された中性子のフルエンス²⁾から推定すると、ウランの同位体減損は不十分で、 ^{235}U の顕著な量が回復されていることは、明白である。中性子物理学的研究によれば、再生係数によってその量を予測す

事ができる(Naudet, 1978)。しかし、勿論、この事実からプルトニウムの全部が保存されたと断定するのは、いささか早計であろう。

この点、イオン・マイクロアナライザーによる分析は、非常に正確な情報を提供する(Havette and Naudet, 1978)。多量の照射を受けた試料中に残留していた ^{238}U の半分以上は、放射性起源であり、壊変以前のプルトニウムの相当の量の移動は、ウランの同位体組成の不均一の原因となるからである。さて、数多い詳細な実験結果によれば、不均一を裏付ける様なものは何もなかった事が示されている。すなわち、一方では、ウランの結晶粒は完全に均一な組成を持っている。例えば、アメリカの一つの研究例(Duffy, 1978)を引用して見よう。そこでは、試料の3つの小さな結晶粒の異なる点について27の測定を行い、同じ値の0.522% (分散: 0.004%)を得ている。他方では、 ^{235}U と ^{238}U の2つの同位体のイオン像は正しくピッタリと重なり合う。これらについてはマイクロミクロンのスケールの差さえも見つける事ができなかった。移動して位置を換えたプルトニウムがあれば、それらは、やがて純粋な ^{235}U になるので、全てのプルトニウムの位置の変更は、今日においても直ちに発見することが出来る。

また、1,000個以上のイオン・マイクロアナライザーによる分析にもかかわらず、原子炉ゾーンの近傍において、正常の値より高い同位体存在比をもつウランは全く見出されていない。もし生成したプルトニウムの1000分の1だけが、非常に劣化した原子炉周辺に移動していたならば、間違いなく、この同位体組成の異常は確認された筈である。故に、非常に可能性が大きいものとして次の様に考える事が出来る。すなわち、「プルトニウムはウランの中に、それが完全に壊変するまで、その全部が留まっていた」と。これは、この2つの元素の性質が似ていることを考えるなら、何も驚くべきことではない。それらの酸化物の UO_2 と PuO_2 は、結晶学的に同型であり、 U^{4+} と Pu^{4+} のイオン半径は非常に近く、それぞれ 1.08\AA と 1.04\AA である。この2つの元素は固溶体をつくり、その形成にあたっては、プルトニウムの核はウラン核の位置の格子点に位置し、その存在は何等の乱れもつくりません。しかも、ウランとは逆にプルトニウムは6価の原子価を持たないので、酸性溶液に対してもっと安定である。

^{236}U の壊変から生成される放射性起源のトリウム ^{232}Th は、天然起源のトリウム ^{232}Th と区別することが出来ない。しかし、オクロの天然原子炉周辺において、後者の存在度が低いことを考慮すれば、原子炉ゾーンに非常に多く存在するトリウムは、高いフルエンスの原子炉ゾ

2) 中性子束(neutron/cm²/sec)を時間積分したのもの。すなわち、ある物質中の単位面積を通過した中性子の総量(neutron/cm²)。

ーンにおいてウランから生成されたトリウムであると考えられる。この増加分のトリウムは、核分裂数と比例関係にあり、期待された量の存在が確認されている (Fréjaques *et al.*, 1975)。そこでは、トリウムが生成された位置から移動していなかった理由として、トリウムおよびウランの物理化学的性質の類似を指摘するのが適当であろう。すなわち、 UO_2 と ThO_2 は結晶学的に同型に属し、非常に近いイオン半径 (1.08Å, 1.112Å) を持ち、トリウムはウランと置換し、原子価 4 でしか存在していない。イオンプローブ組成像においてトリウムは、ウラン結晶粒中にもみ見られる。

希土類元素は、詳細な多数の研究の対象になった (Maeck *et al.*, 1975; Naudet, 1978; Ruffenach, 1978; Cesario *et al.*, 1978)。全希土類元素群は、その殆ど全部が原子炉周辺に留まっているが、その分布に幾らかの乱れを起させた、短距離の小さい移動がある。炉心の核分裂起源の希土類元素は、ウランと非常に良い相関の下にある。しかし、部分的なわずかの異常が観察されている。すなわち、ネオジムよりも重い希土類元素の軽度の不足が存在する。他方、同位体変換から計算される中性子フルエンスの曲線は軽度に変形しており、同位体混合のあった事を証明している。原子炉ゾーンの境界では、1～2 m まで、置換された核分裂起源の希土類元素が存在している。この再移動は、天然の希土類元素の同位体組成に軽度の影響を与えている。原子番号の高いもの程、この影響を強く受けている。

この希土類元素の再移動は、この鉱床の最近の変化に関係した現象ではない。この移動は、核反応の間に行なわれたものであると考えられている。反踏効果などによって、ウラン結晶粒から外に出た希土類元素は、少量の置換をして、多分、閃ウラン鉱中に、おそらく、粘土鉱物の再結晶時に、新たに入り込んだものと思われる。希土類元素は、ウラン結晶粒中にもみ見られる。

ジルコニウムについては、少数の試料が分析されただけであるが (Fréjaques *et al.*, 1975; Maeck *et al.*, 1975)、核分裂起源の ^{90}Zr は核分裂数に比例して存在し、これは、ストロンチウム (半減期: 28年) がその壊変以前に、有効に移動する時間を持たなかった事を証明している。定量結果は、核分裂起源のジルコニウムは全体としては保持されていた事を示している。同位体分析の結果は、核分裂起源のジルコニウムがウラン結晶粒中に分布している事を示している。天然起源のジルコニウムは粘土相に結合している。

ルテニウムについても、幾つかの試料については定量が行われた (Fréjaques *et al.*, 1975; Maeck *et al.*, 1975)。炉心において一般に ^{99}Ru のかなりの顕著な不足 (～30%

まで) が確認されている。これは、テクネチウム (2.1×10^6 年) がその壊変以前に明らかに移動した事を証明している。ルテニウムは、その大部分が反応ゾーンの中にとどまっている。しかし、ネオジムに対して顕著な不一致が観測され、無視しえない部分が (10～15%) 反応ゾーンから失われていると推定されている。イオンプローブ組成像は、ルテニウムの大部分がウラン結晶粒内に留まっており、また、粘土中にも見出される事を示している。他方では、原子炉周辺について行なわれた分析によると、少なくとも、12 m まで核分裂起源のルテニウムが見出されている。

ロジウムとパラジウムは、定量分析はなされなかったが、イオン分析によるとこれらの元素が、ウランの結晶粒内に完全に閉じ込められ、そこに留まっていることが判る。これらの元素の保存状態はルテニウムのそれよりも良いと考えてもよい。パラジウムの同位体分析は、 ^{103}Rh の中性子捕獲による質量数104の同位体の形で、正確に見出される事を示している。

イットリウムとニオブ、これらは一つの同位体しか持たないが、その情報は甚だ少ない。イオン分析はこれらの元素がウラン粒内に存在する事を示している。テルルは、同様に比較的良く保存されているようである。

4.2.2 かなりの量が失われた化学元素群

まず、放射性起源の鉛を取り挙げるのが適当であろう。これは想定された年数の間に生成されたと考えられる量の30～35%しか、平均して見出されていないからである (Devillers and Menes, 1978; Gancarz, 1978)。現在、存在している鉛は、 ^{238}U の壊変系列の最後に位置する ^{206}Pb から成っており、明らかに天然起源の鉛ではない。従って、残りの65～70%の鉛は、その祖先に当たるウランと同じ位置にあることが予想されたにも拘らず、系外に移動してしまったと思われる。イオン分析は、残留している鉛の小部分が、なお閃ウラン鉱中にあることを示しているが、その大部分は方鉛鉱の中に濃縮されているか、あるいは粘土質母岩中に拡散した状態で存在している。

ビスマスは、 ^{237}Np の放射性壊変によってつくられる [この ^{237}Np は、3つの異なるプロセスによって作られる。 ^{236}U の中性子捕獲、 ^{238}U の (n, 2n) 反応、および、 ^{241}Pu の放射性壊変]。計算の不確かさはあるが、ビスマスは予見された量に比して、かなり大きい不足が見だされている。多分、ネプツニウムの安定性を問題にする理由は無いように思われる。ビスマスに壊変してからの移動と考える方が自然であろう。その化学的性質は、鉛のそれによく似ているからである。核分裂生成物のモリブデンは、その大部分が反応ゾーンから除かれている

が、なお、相当の量（～10%）がそこに留まっている。残留した量はウランと相関があるようである（Havette and Naudet, 1978）。他方、核分裂起源の銀の相当量が残留しているが、正確な情報はない。シンチレーション・スペクトロメータの測定結果によると、天然起源の銀によって一定しない希釈が行われているようである。

4.2.3 反応ゾーンから殆ど全部除去されてしまった化学元素群

核分裂生成物のうちで、希ガス（Kr, Xe）、ヨウ素、カドミウム、アルカリ金属（Rb, Cs）、アルカリ土類金属（Sr, Ba）が問題になる。

クリプトン、キセノンなどの希ガスは、ほとんど全部消失している。残存量は生成量に対して 10^{-2} ～ 10^{-4} のオーダーである。同位体分析の結果では、核分裂生成物であるネオジムの分析値から計算されたフルエンスは、 ^{134}Xe の中性子捕獲の量から計算されたフルエンスよりも高い値を示している。これは、核反応の最中に発生した移動の結果であると、先ず考えられる。しかしながら、幾つかの測定値は、 ^{235}U の熱中性子による核分裂生成物の組成をもっており、少なくとも、原子炉から2mの範囲まで、なおも希ガスが見いだされる事を示している。しかも現存のウランによって、それを説明することは出来ない。これは、ウランから分離していった希ガスの少量が、その周辺にトラップされたものであろう。また、 ^{129}Xe は、1600万年の半減期をもつ ^{129}I の壊変から生成されるが、 ^{129}Xe は、研究対象になった全ての試料の中で、核分裂生成物として期待される同位体存在比よりも高い値を示している。この理由は、 ^{129}Xe 以外のキセノンの同位体の親核種のヨウ素の半減期が数日以下であるのに対して、 ^{129}Xe の親核種の半減期が1600万年である事に起因すると考えられる。つまり、実際には希ガスは地質年代を通じて、ヨウ素の壊変の後に徐々に拡散したと考えられる。この解釈は次の事を示す事になる。つまり、「ヨウ素は反応に続く数千万年の間、ウランから大量には分離していなかった」。しかし現実には、原子炉の中に ^{127}I は最早、見いだされていない。臭素に関する情報はないが（この核分裂収率は極端に小さい）、この元素は、少なくとも、ヨウ素と同じように動きうる事は非常に有りそうな事である。

カドミウムの分析はオクロの3つの試料（De Laeter, 1975）について実施された。核分裂によって天然の同位体組成の乱されたこの元素の微量（100ppbのオーダー）が見いだされている。最も多く照射された試料は、核分裂起源のカドミウム0.013マイクログラム/グラムを含んでおり、これは予想される有るべき量の50%以下の量である。カドミウムは核反応以来、その大部分が、反応の跡

を完全に失う事なく、置換されたのであろう。

ルビジウム、ストロンチウム、そしてバリウムについては、注目すべき類似をもって見る事が出来る。これらの元素は、現在の鉱石中に無視しえぬ量で存在しているが、これらの同位体組成は、第一近似において、天然の元素のそれと同じである。核分裂生成物の存在を証明する極く僅かの同位体比の変化を認める為には、極端に入念な分析が必要である。この様な測定が6個の試料について、アメリカで実施された（Brookins *et al.*, 1975）。 ^{135}Ba と ^{137}Ba の軽度の増加は、 $^{85}\text{Rb}/^{87}\text{Rb}$ の比の減少と関係付けられる。 ^{135}Ba は2600万年の半減期を以て ^{135}Cs の壊変の結果生成される。この相関は、数百年間、おそらく ^{135}Cs の明らかな固定があった事を示唆している。 ^{133}Cs については、天然のセシウムと区別する事が出来ない。これは唯一の安定同位体であるからであるが、ルビジウムとの類似のゆえに、その僅かな鉱石中の存在は、その大きな損失を証明している。

幾つかの元素については、情報がない。セレン、錫、インジウムおよびアンチモンの核分裂収率は、全て非常に小さい。他方、核分裂によっては作られない母岩の大部分の元素は、もし反応の時期に中性子捕獲反応が存在していたら当然、同位体比の異常を示す筈であるが、それらは正常であった。唯一の例外はジスプロシウムより重い希土類元素の場合であった。それらの“ふるまい”は核分裂起源の希土類元素に類似しており、さらにもう少し大きい移動度を示している。粘土の構成要素の水の中の水素（800°C以上で抽出された部分）は天然の組成をもっている。しかも、非常に大きい捕獲断面積の同位体を持つホウ素とリチウムは、完全に正常である事が判っている。カリウムと鉄に関しては $^{40}\text{K}\rightarrow^{41}\text{K}$ 、 $^{56}\text{Fe}\rightarrow^{57}\text{Fe}$ の変換を証明する事が出来なかった。鉄の場合、測定の不確かさが結論の効力範囲を限定してしまう。しかし、同位体比の乱れがもし存在するならば、それは存在する全ての鉄が照射された時の量の10%を超えないと言い得る。

4.3 ウランと母岩の保持能力

第一の注目すべき事柄は、完全な保存状態とウラン中の“閉じ込め”の間の因果関係である。核分裂生成物中の殆ど全ての元素が、ウラン結晶粒中に保持されており、これは、イオン像の測定を行えば、よい保存状態にあるこれらの全ての元素を、閃ウラン鉱中に直接に観察する事ができる。このように、ウランの結晶中に保持されている元素は、炉心によく保持されている。逆に、高い核分裂収率を持って生成するが、ウラン結晶中には見つからない全ての元素（例えばバリウムのような）は、反応ゾーンから大量に除去されている。このため、本質

的に安定な保存状態を保証しているのは、閃ウラン鉱であるように思われる。この結論は、もし良好な保存状態にある元素のリストを作って見るならば、さらに良く理解される。プルトニウムとトリウムに関しては、結晶学的に同形 (isomorphism) であり、 UO_2 - PuO_2 - ThO_2 格子の完全な両立性がある。核分裂生成物については、留まっている元素群は、揮発しにくく、且つウランと置換可能なイオン半径を持った元素群である。

特に興味深いのは発電用原子炉、とりわけ、軽水炉の燃料ピン中の核分裂生成物の“ふるまい”に関して得られた経験と、オクロの天然原子炉のそれとの相似である。この観点から元素群を3つのグループに分ける事が出来る。

先ず第一のグループに属する元素には、気体状のクリプトン、キセノン、あるいは揮発性のヨウ素、テルル、セシウムなどが挙げられる。これらは、最初に燃料ペレット中の多孔性部分に、次いで、さらに低温の被覆管部分に拡散していく傾向がある。第二のグループには、比較的安定な金属元素、ルテニウム、ロジウム、パラジウム、テクネチウム、モリブデン等があり、第三のグループとして酸化物を作る元素が挙げられる。これについては、2つのカテゴリーに分けられ、その一つはバリウム、ストロンチウム等、その結晶格子の中に受け入れられるためには、そのイオン半径がウラン酸化物のイオン半径とは余りにも異なっており、これらは被覆管の方向に移動する。もう一つは、マトリクス中に固溶体を作るもので、イットリウム、ニオブ、ジルコニウム、希土類元素等がこれに相当する。この分類は、オクロで観察された元素群の保持についても、ほぼ、同様の“ふるまい”が確認されている。ただし、幾らかの微妙な差も観察されている。例えば、オクロでは、揮発性元素として分類されている元素の中のテルルは、比較的良く保存されていたが、これとは反対に、安定な包含物を形成するものとして原子炉中では考えられているモリブデンは、オクロではかなり大きく移動している。

5. おわりに

以上のように、放射性物質である原子炉の灰は、オクロ天然原子炉の場合には、自然環境の中に、言うならば放置されていた訳であるが、初めて天然原子炉が発見されたときの予想では、その炉心にあったウラン、プルトニウムおよび核分裂生成物は全て失われているものと考えられていた。しかし、すでに述べたように、予想に反した研究結果が得られたので、オクロ現象は、地球科学の分野の専門家のみならず、それ以外の分野の人々から

も、高レベル放射性廃棄物の処理処分との関連で、**に**わかに注目されることになった。これは当然の話であって、人間の一生をはるかに越える時間にわたって管理しなければならない廃棄物処分のために、自然がわれわれ人類に与えてくれた“20億年間にわたる実験の結果”を利用しない手はないのである。ある人は、「オクロ現象は極めて特殊な例であって、今日の問題に関して参考にはならない」と言うが、特殊であるが故にこそ、まさにその理由によって、高レベル放射性廃棄物の処理、処分法の研究開発の観点から、この天然現象は研究する価値があるのである。少なくとも、ある条件の下でプルトニウム(多分、超ウラン元素も)が20億年間安定であったという事実は、無視するに足る余りにも貴重な知見であると言わねばなるまいと筆者は考えている。

文 献

- Brookins, D. J., Lee, M. J., Mukhopadhyay, B. and Bolivar, S. L. (1975): Search for fission-produced Rb, Sr, Cs and Ba at Oklo (IAEA-SM-204/3). *Le Phénomène d'Oklo*, 401-413.
- Cesario, J., Poupard, D. and Naudet, R. (1978): Nouvelles analyses des terres rares dans des échantillons d'Oklo (IAEA-TC-119/17). *Les Réacteurs de Fission Naturels*, 473-494.
- De Laeter, J. R. and Rosman, K. J. R. (1975): Cumulative fission yields of cadmium in Oklo samples (IAEA-SM-204/7). *Le Phénomène d'Oklo*, 425-436.
- Devillers, C. and Menes, J. (1978): Contribution du plomb et du thorium à l'histoire des réacteurs d'Oklo (IAEA-TC-119/18). *Les Réacteurs de Fission Naturels*, 495-511.
- Diouly-osso, P. and Chauvet, R. J. (1979): Les gisements d'uranium de la région de Franceville (Gabon). *Uranium deposits in Africa-geology and exploration* (IAEA-AG-109/7), 123-147.
- Duffy, C. J. (1978): Uranium solubilities in the Oklo reactor zones (IAEA-TC-119/36). *Les Réacteurs de Fission Naturels*, 229-234.
- Fréjaques, C., Blain, C., Devillers, C., Hagemann, R. and Ruffenach, J. C. (1975): Conclusions tirées de l'étude de la migration des produits de fission (IAEA-SM-204/24). *Le Phénomène d'Oklo*, 509-524.
- 藤井 勲 (1985): オクロ天然原子炉とその現状. *日本原子力学会誌*, 27, 304-324.
- 藤井 勲 (1985): 天然原子炉. 東京大学出版会, 131p.
- Gancarz, A. J. (1978): U-Pb age (2.05×10^9 years) of the Oklo uranium deposit (IAEA-TC-119/40). *Les Réacteurs de Fission Naturels*, 513-520.
- Hagemann, R., Naudet, R. and Weber, F. (1980): Enseignements tirés de l'étude des réacteurs naturels fossiles d'Oklo pour le stockage des déchets radioactifs (IAEA-SM-243/8), 223-238.

- Havette, A. and Naudet, R. (1978): Etude locale par analyse ionique de nouveaux échantillons d'Oklo (IAEA-TC-119/13). Les Réacteurs de Fission Naturels, 397-405.
- Kuroda, P. K. (1956): On the Nuclear Physical Stability of the Uranium minerals. J. Chem. Phys., 25, 781-782.
- 黒田和夫 (1977): 天然原子炉の可能性に対する解析. 日本原子力学会誌, 19, 225-232.
- 黒田和夫 (1988): 17億年前の原子炉. 講談社, 199p.
- Maeck, W. J., Spraktes, F. W., Tromp, R. L. and Keller, J. H. (1975): Analytical results, recommended nuclear constants and suggested correlations for the evaluation of Oklo fission product data (IAEA-SM-204/2). Le Phénomène d'Oklo, 319-339.
- Naudet, R. (1978): Etudes neutroniques complémentaires sur le phénomène d'Oklo (IAEA-TC-119/21). Les Réacteurs de Fission Naturels, 569-588.
- Naudet, R. (1978): Synthèse des données concernant la stabilité et les remobilisations de l'uranium et des terres rares (IAEA-TC-119/25). Les Réacteurs de Fission Naturels, 643-676.
- Neuilly, M., Bussac, J., Frèjaques, C., Nief, G., Vendryes, G. et Yvon, J. (1972): Sur l'existence dans un passé reculé d'une réaction en chaîne naturelle de fissions, dans le gisement d'uranium d'Oklo (Gabon). Compt Rendu. Acad. sc. Paris, t. 275 (23 octobre 1972), Série D, 1847-1849.
- Ruffenach, J. C. (1978): Les Réacteurs naturels d'Oklo: Etude des migrations de l'uranium et des terres rares sur une carotte de sondage et application à la détermination de la date des réactions nucléaires (IAEA-TC-119/16). Les Réacteurs de Fission Naturels, 441-471.
-
- FUJII Isao (1991): Current status of Oklo natural reactors.
-
- <受付: 1991年2月1日>

ジャパンストンフェア'91

会期: 1991年7月11日(木)~14日(日)

会場: 日本コンベンションセンター(幕張メッセ)

入場料: 1,000円

生活様式の高級化, 本物指向と共に天然石材の需要が急速にのびております。特に先カンブリア時代に至る豊富な産地を背景にした外材は多様なバリエティを持ち, その輸入量は急速にのびております。この様な時期

に日本で初めてストーンフェアが開かれることは時期を得た企画と言えます。

ストーンフェアは大理石の産地イタリアを中心に, カラー大理石フェア(5月), ベローナフェア(9月)などが世界的に有名で, 他にスペイン, ドイツ, カナダなどで毎年開催されています。これらはいずれも石材産地であり, 今回消費国の日本で初めて開かれることは大変興味深く, 国際的にも注目されております。