

ウラン系列核種を用いる放射性核種移行の ナチュラルアナログ研究

金井 豊¹⁾

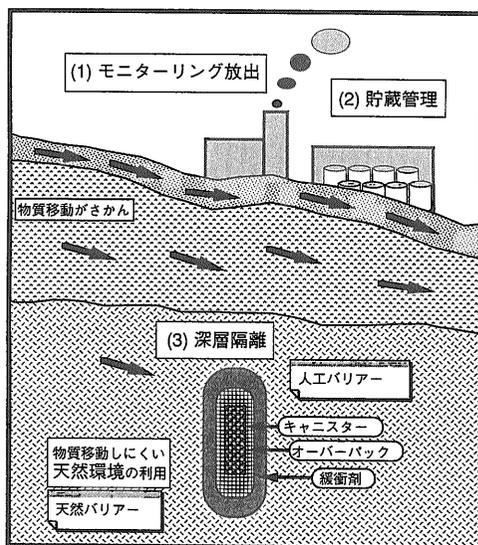
1. はじめに

近年地球に対する社会の見方が変わってきており、地球は有限な物質で、環境保護・保全是不可欠である、という考えが主体的となってきた。その根本には人口問題とエネルギー問題とがある。この2点を今後私達は常に考えていかなければならない。環境を守りつつ人間生活を維持するのに必要なエネルギーを獲得するため、石油エネルギー以外の太陽光や地熱エネルギー等の代替エネルギーの開発研究が進められているが、なかなか容易なことではない。原子力エネルギーもその一つとして開発・実用化されているが、放射性廃棄物という解決すべき問題を抱えており、これは社会の責任として真正面から対処していかなければならない。

『放射能・放射性廃棄物』と聞いて、「まあ、なんてこわい！いやだわ。」と思う読者も多いことだろう。確かに『原子爆弾』や『死の灰』は人を死に至らせるだけの力があり危険きわまりないものであるが、その一方で放射線は私達に多大な恩恵を与えているのも事実である。小さなものでは夜光塗料やガス漏れ検知器・各種センサー、大きなものでは断層探査・微量分析手法・発電等がある(金井, 1987参照)。放射能は、この世に元素ができたときから(今ある元素はその昔核反応によって作られた!), そして地球が誕生したときからずっと天然に存在していた。地球に有機物・生命体が誕生したのも、そして種が分化して現在いろいろな生物が地上にいるのも放射線のエネルギーのおかげかもしれない。要はレベルの問題であり、正しい知識で適切に扱うという当たり前のことができればむやみに怖がることはない。

さて、原子力産業における放射性廃棄物の管理には、(1)放射能レベルが許容値以下のものはモニタリングしながら環境に放出する、(2)減容・固化したものを貯蔵施設に貯蔵管理する、(3)人間の生活圏から隔離する、等の方策が考えられている(第1図)。このうち、超ウラン元素(原子番号がウラン(92)よりも大きい元素)を含む高レベル放射性廃棄物(TRU廃棄物ともよばれている)は、極めて半減期が長く長期にわたって放射線を放出し続けるので(第2図)生物に対する影響も大きい。このため、(3)の地層処分が現在検討されている。

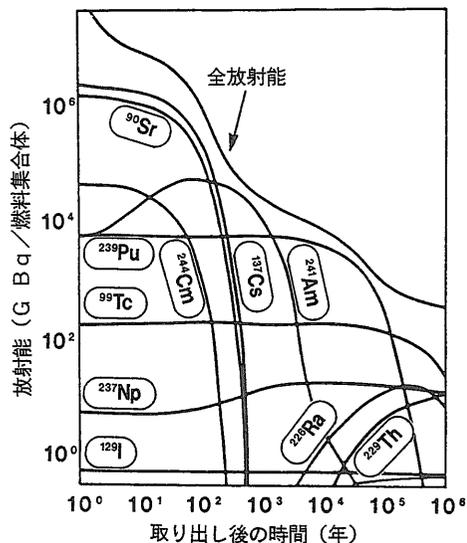
地層処分では、数千年を越える長期にわたって放射性核種が人間の生活圏まで移行してこないことを実証することが重要で(第1図参照)、地層中の核



第1図 放射性廃棄物管理の概念図。高レベル放射性廃棄物は、人工バリアーと天然バリアーの多重構造で生活圏への核種移行を抑える。

1) 地質調査所 地殻化学部

キーワード: ウラン系列核種, 放射性核種, ナチュラルアナログ



第2図 原子炉から取り出された放射性廃棄物の放射能変化(Brookins, 1984). ^{90}Sr ・ ^{137}Cs は数百年で放射能はほとんどなくなるが, ^{239}Pu ・ ^{237}Np 等は長期にわたって放射能を有している.

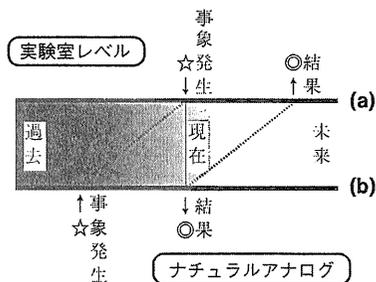
種の移行メカニズムを解明しなければならない. 本小論では, そのために重要視されているナチュラルアナログ研究の一つとして, 天然の放射性核種であるウランとその系列核種を用いた研究を紹介したいと思う.

2. ナチュラルアナログとは

高レベル放射性廃棄物中の放射性核種が環境中でのどのような移行メカニズムで挙動するかを, 実際にホットな状態で, すなわち長半減期で高レベルな実際の放射性核種を使って調査することは不可能である. そこで, これらの放射性核種と物理化学的な性質の類似する, もしくは類推される天然に存在する核種を代役に用いて挙動を予測することが行われる. これがナチュラルアナログ(天然相似核種)である.

数千年を越えるような長期にわたる核種の挙動を予測するわけであるが, 明日のことさえ予測できない私達にとってそれは至難の技である. しかし, 直接関与できる最大限数~数十年のタイムスケールにおいて実験を行い, 核種の挙動を支配するパラメーターの基礎データを得ることは可能で, それから数千年後を予測することができる. これは, 現在を起

●過去の事象を現在に時間を平行移動して考える



第3図 ナチュラルアナログにおける長期予測の概念図. 過去のできごとを現在観察するため, 事象発生時から現在までの時間分を未来の予測時間とすることができるので, 長期予測が可能である.

点にして考える手法である(第3図(a)). 一方, 私達の地球は46億年もの長い地質年代を経て現在に至っているわけで, 過去に起こったことの結果として現在がある. そこで, 起点を過去にとり現在の状況を結果として観察し, その間の時間を現在が起点となるよう平行移動して考えると, 同じ地質環境下における未来予測は現在の結果と同じになると期待される(第3図(b)). ナチュラルアナログ研究ではこちらの立場から未来予測をするものである.

ところで, 天然にあるアナログとしては, 天然放射性核種であるウラン・トリウム他に, 希土類元素(日高, 1994)や廃棄物処理のガラス固化体に見立てた火山ガラス(湯佐ほか, 1988)も考えられている. これらは地球上広く分布しているので, 地球全体がナチュラルアナログの研究の場である. もっと末広に考えると, 天然に起きている現象で, 廃棄物処分した場合に想定される現象に類似した現象すべてをナチュラルアナログと解釈できる. ナチュラルアナログとは, まさに「自然は先生」, 「自然から学べ」ということになる.

3. オクロの天然原子炉

ナチュラルアナログといったら, オクロを避けては通れないほどオクロの『天然原子炉』の話は有名である. 本誌等でも既に詳細に解説されているので(藤井, 1985; 1991), ここでは簡単に述べるにとどめる. 赤道直下のアフリカ・ガボン共和国にあるオクロのウラン鉱床が, 過去に原子炉として作動し

第1表 オクロ鉱床原子炉ゾーン No. 2 における元素の挙動(藤井, 1985; 1991)

	元 素	挙 動
炉心近傍 に比較的 良く保持 された元 素	ウラン(U)	大きな移動なし、一部再配分
	トリウム(Th)	大部分が残留
	プルトニウム(Pu)	大部分が残留
	ジルコニウム(Zr)	大部分、その場で再配分
	ニオブ(Nb)	大部分が残留
	ルテニウム(Ru)	大部分が残留、再配分
	パラジウム(Pd)	大部分が残留
	銀(Ag)	大部分が残留
	テルル(Te)	大部分が残留
	希土類元素(Ce, Nd, Sm, Gd)	非常にわずかの部分のみ移動
かなり失 われた元 素	モリブデン(Mo)	90%程度散逸
	カドミウム(Cd)	90%程度散逸
	鉛(Pb)	再配分、約2/3程度失う
ほとんど 失われた 元素	希ガス(Kr, Xe)	痕跡程度残留, 0.01-1%
	ルビジウム(Rb)	痕跡程度残留, 1%以下
	セシウム(Cs)	痕跡程度Baとして残留, 大部分が散逸
	ストロンチウム(Sr)	痕跡程度残留, 10%以下
	バリウム(Ba)	大部分が散逸
	ヨウ素(I)	大部分が散逸

ていたことが明らかとなっている。原子炉の停止後は風雨にさらされて現在に至っており、核反応によって生成した核分裂核種が約20億年経過した現在どのように保持されているかが詳細に調査・研究された。その結果によると、オクロの環境下ではウラン・トリウム・希土類元素・ジルコニウム・ルテニウム・ロジウム・パラジウム・イットリウム・ニオブ・テルル・プルトニウム等が比較的炉心近傍に保持されていたという(第1表)。このような結果は、実際の核反応生成核種に関するホットな実験として貴重なものである。

4. ウランとその系列核種によるナチュラルアナログ

ウランは原子力産業において中心的な元素であるが、ナチュラルアナログ研究においても有用な核種である。第2表にはアナログ核種として想定されるものを示したが、ウラン・トリウムがかなりの核種のアナログとなり得ることが読み取れる。ウランには主として4価と6価の2つの原子価があり、その多様性によってより多くの元素の類似性を持ち広く適用可能となっている。さらにウランは壊変系列を有しており、特性の異なる系列核種を利用して研究を行うことができる。すなわち、物質移動が起こったときウラン単独でそれを解明することは困難であっても、系列核種も利用すると物質移動の有無

第2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)

核種	半減期 (年)	自然界の 酸化状態	想定される 類似元素
^{99}Tc	2.14×10^5	red. IV	Re(IV)?
		ox. VII	Re(VIII)?
^{231}Pa	3.28×10^4	red. V	(Th, U(IV))
		ox. V	
^{233}U	1.59×10^5	red. IV	U(IV), (Th, Zr, Hf)
^{234}U	2.45×10^5	ox. VI	U(VI)
^{235}U	7.04×10^8		
^{238}U	4.47×10^9		
^{237}Np	2.14×10^6	red. IV	U(IV), (Th, Zr, Hf)
		ox. V	U(VI)
^{238}Pu	8.77×10	red. III	ランタニド* (特に Nd)
		IV	U(IV), (Th, Zr, Hf)
^{239}Pu	2.41×10^4	ox. IV	U(IV), (Th, Zr, Hf)
^{240}Pu	6.57×10^3	ox. V	U(IV), (Th, Zr, Hf) U(VI)
^{229}Th	7.34×10^3	red. IV	Th
		ox. IV	
^{230}Th	8.0×10^4		
^{232}Th	1.41×10^{10}		
^{241}Am	4.33×10^2	red. IV	ランタニド*
		ox. III	
^{243}Am	7.37×10^3		
^{244}Cm	1.81×10	red. III	ランタニド*
		ox. III	

下線部は最適元素を示す

が分かる。それには、放射平衡・非平衡の関係を利用する。

放射平衡・非平衡関係(radioactive equilibrium / disequilibrium)というのは、系列を作る親核種・娘核種間の壊変速度(放射能)の関係を示す。系列を作る親核種の半減期に対して娘核種の半減期が相対的に短いと、十分時間がたった後には娘核種も親核種と同じ速度で壊変する。これが放射平衡状態である。娘核種が0の状態からでも娘核種の半減期のおおよそ4倍の時間がたつと94%、5倍の時間で97%まで平衡状態に達する。従って、半減期の比較的短い系列核種は長い核種と放射平衡にあるとみてよく、放射能的には同等となる。天然にあるウラン・トリウム系列において比較的早く放射平衡になる核種をグループ分けして第3表に示した。例えば、U-238, Th-234, Pa-234, U-234の間では、Th-234とPa-234の半減期がそれぞれ24日、6.8時間でU-238の45億年と比べて極端に短いためすぐに(4カ月程度)放射平衡に達し、あたかもU-238

第3表 ウラン・トリウム系列核種と半減期の大きさによるグループ分け

U	$4.47 \times 10^9 \text{ y}$	$^{238}\text{U} = ^{234}\text{Th} = ^{234}\text{Pa}$ (24d) (6.8h)
	$2.45 \times 10^5 \text{ y}$	^{234}U
	$8.0 \times 10^4 \text{ y}$	^{230}Th
	$1.6 \times 10^3 \text{ y}$	$^{226}\text{Ra} = ^{222}\text{Rn} = ^{218}\text{Po} = ^{214}\text{Pb} = ^{214}\text{Bi} = ^{214}\text{Po}$ (3.8d) (3.0m) (27m) (20m) (164 μs)
	22.3y	$^{210}\text{Pb} = ^{210}\text{Bi}$ (5.0d)
138d	^{210}Po	
Th	$1.41 \times 10^{10} \text{ y}$	^{232}Th
	5.76y	$^{228}\text{Ra} = ^{228}\text{Ac}$ (6.1h)
	1.91y	$^{228}\text{Th} = ^{224}\text{Ra} = ^{220}\text{Rn} = ^{216}\text{Po} = ^{212}\text{Pb} = ^{212}\text{Bi} = ^{208}\text{Tl}, ^{212}\text{Po}$ (3.7d) (56s) (0.15s) (11h) (61m) (3.0m) (0.3 μs)

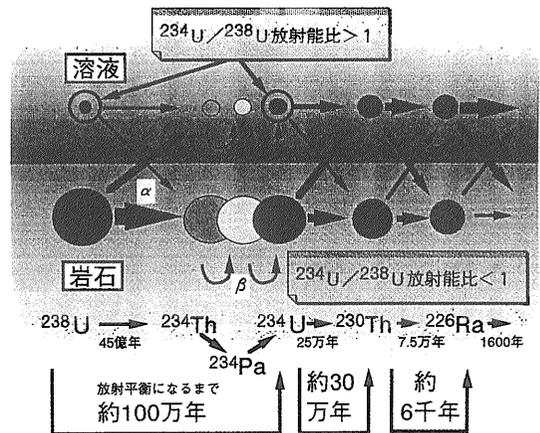
と同じであるかのように壊変する。一方、U-234の半減期は25万年でU-238よりは短い、Th-234やPa-234よりも長い、数十万年以内の事象を考えると個別の核種と考えてよい。しかし、数百万年となるとU-234もU-238と放射平衡となってしまふ。

ところが、親核種と娘核種とが別の挙動をすると平衡状態が崩れ、放射非平衡状態となる。第3表のウラン系列を見て分かるように、これらの核種の中には移動しにくいトリウムの化学形をとる核種がある。もし、系に物質移動があると系列核種はそこで分離され、両者の間には非平衡状態が生ずるのである(詳細は、金井, 1986参照)。

ウラン系列のU-234とU-238は、化学種としては同じウランであり化学的性質や挙動が同じはずであるが、放射壊変に伴う反跳効果やその他の効果で、実際にはU-234の方が移動しやすくなっている(例えば、Kigoshi, 1971; Eyal and Olander, 1990)。一例として、岩石・溶液間におけるウラン系列核種の間を示す模式図を第4図に示した。

U-234とU-238とは、間に半減期の非常に短い2核種をはさんでいるが(第3表)、先に述べたように実質的に親と娘の関係といってよい。両者の放射能比(U-234/U-238放射能比)は、閉じた系(物質移動が行われていない環境)で十分に長い時間が経過した時には1となるが(放射平衡)、系が開いて物質移動を生じ、娘のU-234が溶出すると放射能比は1よりも小さくなり、逆にU-234が蓄積されると放射能比は1よりも大きくなる。従って、U-234/U-238放射能比の値が1より大きい小さいかによってウランの挙動を探ることができる。

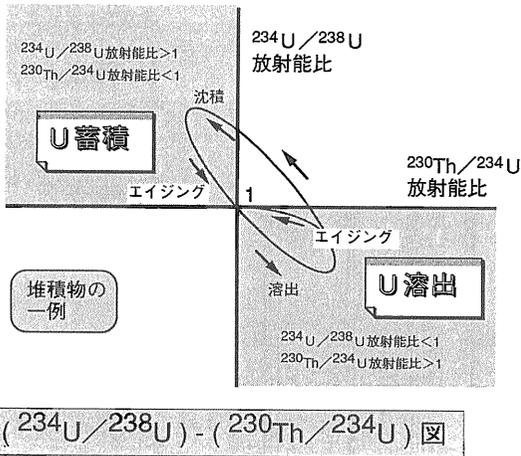
また、U-234の娘に比較的半減期の長い(7.5万



第4図 岩石・溶液間におけるウラン系列核種の挙動の模式図。岩石中の親核種 ^{238}U から生じた ^{234}Th は α 壊変に伴う反跳効果で一部溶液に移行すると、それから生じる ^{234}U は ^{238}U から推定される量よりも少なくなる。その場合 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比は1よりも小さく、放射非平衡である。移行が無くなると、最大約百万年で放射平衡に戻る。 $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 、 $^{226}\text{Ra}/^{230}\text{Th}$ についても同様な考え方ができる。

年)Th-230がある。Th-230は化学形もウランと異なり不溶性で移動しにくいトリウムであるため、この3者を組み合わせた(U-234/U-238)-(Th-230/U-234)図で溶出・蓄積の状況を見ることが出来る(第5図)。平衡状態からU-234が損失すると(U-234/U-238) < 1, (Th-230/U-234) > 1となりウランの溶出が、逆にU-234が過剰になると(U-234/U-238) > 1, (Th-230/U-234) < 1となり、ウランの蓄積が示唆される。途中で系が閉じると放射能比は1に近づき、長い時間が経過するとまた放射平衡状態となる。

このようなウランを用いたナチュラルアナログ研



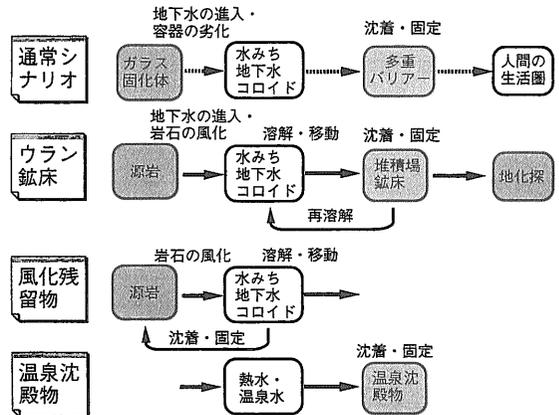
第5図 $^{238}\text{U}-^{234}\text{U}-^{230}\text{Th}$ の関係図。 ^{230}Th はほとんど移動しないので、 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U} > 1$ 、 $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U} < 1$ ではウランの蓄積が、 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U} < 1$ 、 $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U} > 1$ でウランの溶出が推定される。

究は、主としてウラン鉱床でなされる。それは、ウラン濃度が高く研究し易いという技術的な理由からだけでなく、(a)花崗岩等の岩石からのウランの溶脱、(b)地下水による移動、(c)吸着・沈澱などによる濃集・固定、(d)環境変化に伴う再移動、(e)再固定・保存、等ウラン鉱床形成保存のメカニズムが、廃棄物処理に絡んで考えられる物質移動のシナリオ、すなわち地下に埋設したキャニスターが万一破損した場合の固化体からの核種の溶出・移動・吸着・固定・保存等とよく類似しているからである。しかし、はじめに述べたように地球上のあらゆる場所においてナチュラルアナログ研究が可能であり、第6図にはウラン鉱床の他にいろいろな研究の場の一例を示した。

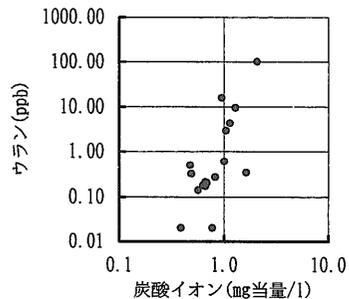
5. 地質調査所におけるナチュラルアナログの研究例

(1) 岩石と地下水・地表水との反応

岩石と水との反応においてウランが溶出する。昭和30年頃から始まった原子力特別研究によるウラン調査とも絡んで、ウラン濃度の高い岩石や鉱床胚胎岩体・鉱床を探索するために河川水や地下水中のウラン濃度・水質調査がなされた。これらの調査結果から、ウランの溶出を支配する水質に関わる因子が抽出され検討された。ウランは河川水のような酸



第6図 ナチュラルアナログ研究の場の一例。廃棄物処理に絡んで想定される物質移動のシナリオ(通常シナリオ)の各要素は、ウラン鉱床やいろいろな地球化学的試料に起こっている現象と類似している。

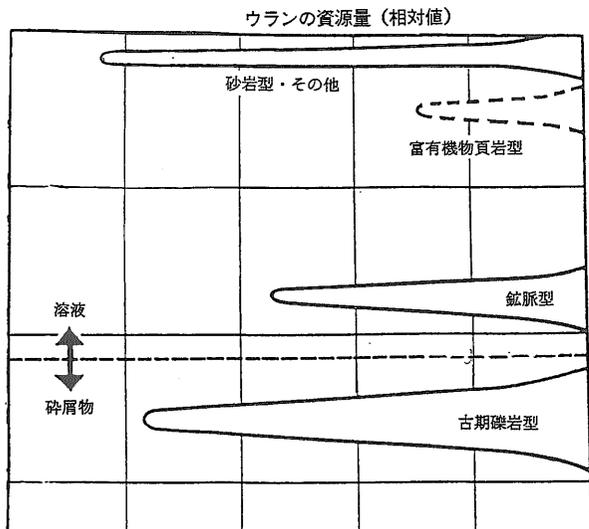


第7図 トンネル内の湧水中のウラン濃度と炭酸イオン濃度との関係。ウラン(ウラニルイオン)は炭酸イオンと錯形成して溶け易くなっている。

化的条件下では、フッ化物イオンやリン酸イオンの他、高アルカリ側でも炭酸イオンの効果で可溶化している。第7図はトンネル内の湧水中のウランと炭酸イオンとの関係を示したものである。地下水は岩石との相互作用でアルカリ側に水質が移行していくが、炭酸イオンの存在はウランの溶出における大きな因子となっている。

(2) ウラン鉱床の調査

同様に特別研究によるウラン調査の過程で、ウラン濃集体やウラン鉱床において鉱床形成メカニズムの解明研究がなされた。世界には何回か盛んにウラン鉱床が形成された時期があり、最近では砂岩堆積型のウラン鉱床である(第8図)。日本にはいくつかのタイプのウラン鉱床が存在するが(坂巻・金井(1991)を参照のこと)、堆積型のウラン鉱床は注目



第 8 図 ウラン鉱床の年代と年代尺度. 日本の堆積型ウラン鉱床である東濃ウラン鉱床の形成は約一千万年前と考えられており, その間現在の環境下でマクロ的には保持されてきた.

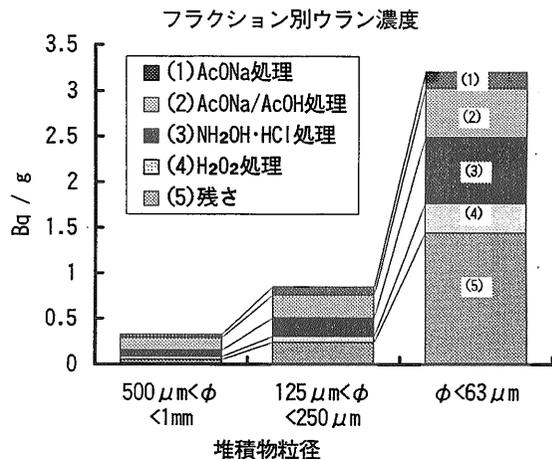
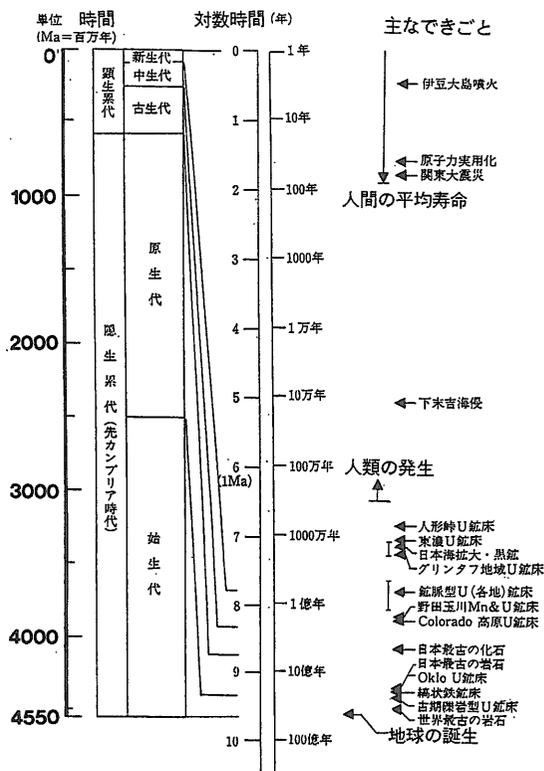
第 4 表 風化花崗岩堆積物から各種抽出試薬によって抽出される主な元素例

抽出試薬	推定される形態	主な元素例
(1) 1M AcONa	イオン交換性	Ca
(2) 1M AcONa-AcOH (pH 5)	炭酸塩態	Ca, Mn, U
(3) 0.04M NH ₂ OH·HCl / 25% AcOH	還元試薬可溶性	Mn, Fe, Mg, V, P, U
(4) 30% H ₂ O ₂ (pH 2)	酸化試薬可溶性	
(5) HNO ₃ -HClO ₄ -HF	珪酸塩鉱物など	Ca, Mn, Fe, Mg, V, P, Al, Ti, Sr, Ba 等

に値する. というのは, 日本の東濃鉱山のように 1 千万年以上も昔に形成されたウラン鉱床が現にそこにあるということは, 巨視的にはある環境下で保持され続けていることになる. こうした堆積型ウラン鉱床の場合には, 地下水と堆積場の環境が重要であることが認識された.

(3) 鉱床地域における系列核種の存在形態

堆積物の中にウラン系列核種が存在している場合, 形態によって挙動が異なる, すなわち自由に移動し易い形態と動きにくい形態とがある, と考えられる. その系列核種を形態別に分類して検討するため, ウラン鉱床胚胎層の基底にある風化花崗岩由来の堆積物に分別溶解法を適用した(第 4 表). その結果, 堆積物の炭酸塩態部分と鉄酸化物態部分に多くのウランが存在していることが明らかになった(第

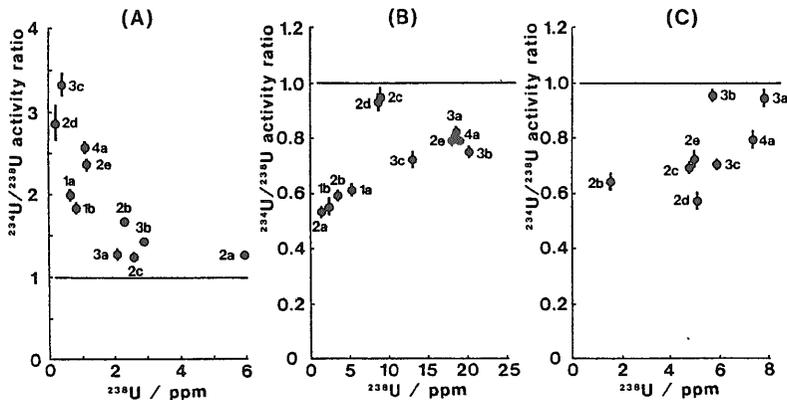


第 9 図 ウラン鉱床胚胎層基底の風化花崗岩堆積物におけるフラクション別ウラン濃度. (2)・(3)のフラクションに多くのウランが分布している. 堆積物の粒径別では細粒ほどウラン濃度が高い.

9 図).

(4) 鉄質沈澱物におけるウランの挙動

ウランやいろいろな核種は, 鉄の水酸化物と共沈したりそれに吸着したりする. それは, 天然バリアーの一つと考えられ, その挙動を明らかにするため



第10図 ポークサイト試料におけるフラクション別の²³⁴U/²³⁸U放射能比(Kanai, 1992). (A) : HCl 処理で溶出したウラン, (B) : HF 処理で溶出したウラン, (C) : 不溶解残さ.

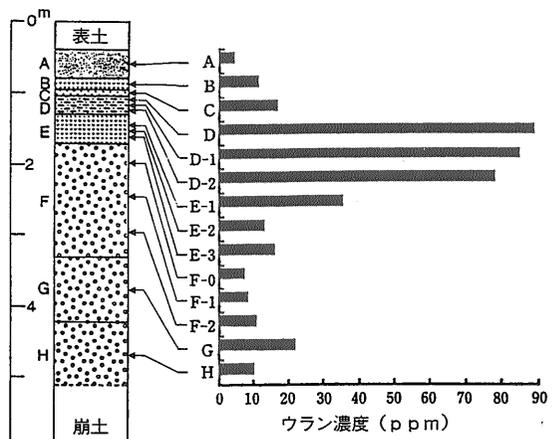
に、鉄質沈澱物や石灰華が生じている温泉沈澱物を採取し、湧水と沈澱物における核種の分配を検討した。

(5)風化残留鉱床におけるウランの挙動

アルミニウムの原料となるポークサイト鉱床や、ニオブ・タンタルを多く含む風化カーボナタイト鉱床におけるウランを調べ、風化に伴うウランの挙動が検討された。ポークサイト鉱床の調査では、ウランは30 ppm 程度含まれていた。試料に HCl や HF 処理して得た各フラクションのウランの U-234/U-238 放射能比は、HCl 処理フラクションでは1よりも大きく、HF 処理フラクション及び不溶解残さフラクションでは1よりも小さかった(第10図)。このことからウランを含む鉱物から飛び出たウラン(U-234)は、HCl に可溶性形態として鉱物の回りに吸着しているものと推定された(Kanai, 1992)。

(6)ウラン濃集体におけるウラン移動

リン灰石を含む堆積場において、地層の鉛直方向にウラン濃度が二つの山を持つ濃度変化が認められた(第11図)。地層のマトリックス、ならびに形態別にウランを分別してウランの挙動を検討した。全岩の U-234/U-238 放射能比は二つの山のうち上部で1よりも小さく、下方で1よりも大きくなっていった。一方、6 個のウランの U-234/U-238 放射能比は全てで1よりも大きく、自由に動ける状態で存在していると考えられた(第12図)。これらのことは上方でウランの溶出が、下方でウランの蓄積が行われている可能性を示唆している。下方には粘土鉱物も多く存在しており、これがウランの保持

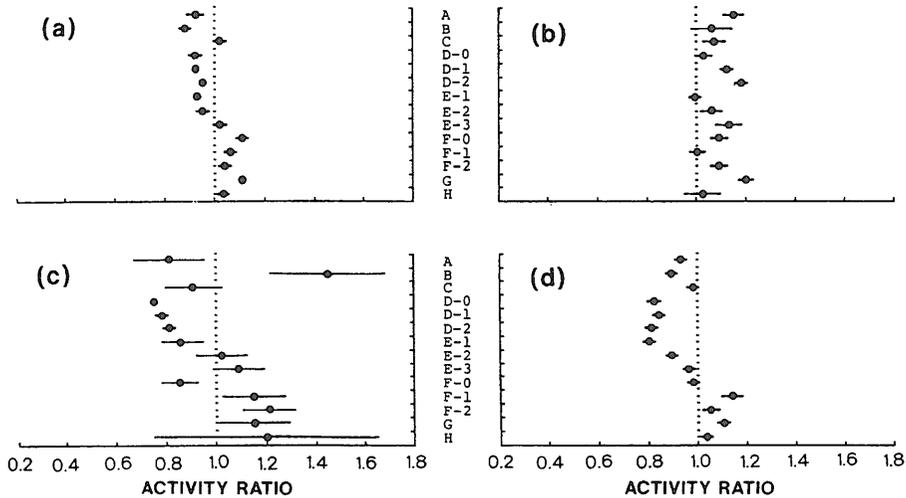


第11図 リン灰石を含む堆積場におけるウラン濃度変化。D層は高濃度で、G層にも小さな山が見える。

に大きな役割を担っていると考えられた(Kanai and Sakamaki, 1994)。

6. 今後の研究課題

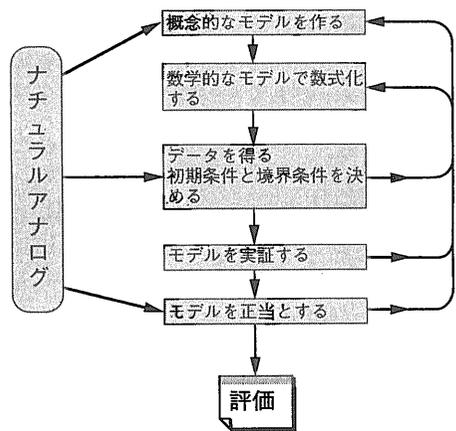
1984年10月にアメリカで高レベル放射性廃棄物の最終処分場の環境についてのナチュラルアナログに関するワークショップがもたれ、現状の把握と今後の課題が討議された(Chapman and Smellie, 1986)。そして世界的な作業部会(NAWG; Natural Analog Working Group)を運営していくことが必要と認識され、翌年ブリュッセルでCEC(the Commission of the European Communities)の主催で会議が開かれ、その後も継続されている。



第12図 フラクション別の²³⁴U/²³⁸U放射能比の鉛直分布(Kanai and Sakamaki, 1994). (a) : 全岩, (b) : 6 箇のウラン, (c) : 4 箇のウラン, (d) : 残さ. 全岩では上位で放射能比>1, 下方で放射能比<1となっているが, 6 箇のウラン(図の(b))では放射能比>1である.

このように放射性廃棄物の研究は全世界的であり, ウラン研究に関わる研究者の多くは大なり小なりナチュラルアナログ研究に関与している. ウラン系列を用いたナチュラルアナログ研究は当調査所を始め幾つかの機関でも精力的に行われている. 一例を挙げると, ブラジルでは Minas Gerais 州のポンスデカルダス鉱床を用いてスイスの放射性廃棄物貯蔵全国組合(NAGRA)・スウェーデンの SKB・英国環境省・米国エネルギー省等の協力の下で27研究機関が研究を進め(Chapman et al., 1992a; 1992b), オーストラリアではアリゲータリバーのクンガラウラン鉱床で(ARAP; Alligator Rivers Analog Project) オーストラリア原子力科学技術機構(ANSTO)が中心となり, 米国原子力規制委員会(NRC)や日本原子力研究所も研究に加わっている(例えば, Yanase et al., 1995a; 1995b). 日本の東濃鉱山でも, 動力炉核燃料開発事業団が中心となってナチュラルアナログ研究が進められている(例えば, Yoshida, 1994a; Yoshida et al., 1994b).

今までのナチュラルアナログ研究は定性的なものが多く, 挙動といってもこうなるだろうと言う程度で, どのくらいの量がどのくらいの早さでという定量的な議論はあまりなされていないものが多い. 今後は定量的な研究が重要になっていくと考えられる. 定量化を行うためには, 適切なモデル化とそのためのパラメータデータの収集と設定がある(第13



第13図 ナチュラルアナログ研究におけるモデル化の概念

図). モデル化には適当な仮定・パラメータを入れたモデルを作りそれを検証して最初の仮定・パラメータの修正を繰り返していく方法と, いくつかの実験データから適正なパラメータを決めてモデルを作る方法とがある. ウランが溶出するときの速度が, 0次反応, 1次反応としてのモデルや, より複雑であるが蓄積時の速度論的なモデル等も検討されている(Latham and Schwarcz, 1989). 今後の課題として, 核種の溶解度や存在状態, 移行の遅延や酸化還元環境状態等, 低温で遅い反応条件下でのモデルの実証などがあり, ナチュラルアナログ研究の重要性

はますます高まっている。

最後に、本小論は第8回地質調査所研究講演会(1995年6月)での講演をもとに手を加えてまとめたものである。発表する機会を与えて下さった加藤碩一首席研究官をはじめ関係各位に感謝申し上げます。

参考文献

- Brookins, D. G. (1984): Geochemical aspects of radioactive waste disposal, Springer-Verlag, 347p.
- Chapman, N. A. and Smellie, J. A. T. (1986): Natural analogues to the conditions around a final repository for high-level radioactive waste. *Chem. Geol.*, **55**, 167-173.
- Chapman, N. A., Mckinley, I. G., Shea, M. E. and Smellie, J. A. T. (1992a): The Pocos de Caldas Project: Natural analogues of processes in a radioactive waste repository, part I. *J. Geochem. Explor.*, **45**, 1-603.
- Chapman, N. A., Mckinley, I. G., Shea, M. E. and Smellie, J. A. T. (1992b): The Pocos de Caldas Project: Natural analogues of processes in a radioactive waste repository, part II. *J. Geochem. Explor.*, **46**, 1-146.
- Eyal, Y. and Olander, D. L. (1990): Leaching of uranium and thorium from monazite: I. Initial leaching. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **54**, 1867-1877.
- 藤井 勲(1985): 天然原子炉. 東京大学出版会, 131p.
- 藤井 勲(1991): 20億年前の天然原子炉(オクロ鉱床)を訪ねて. *地質ニュース*, no. 439, 30-39.
- 日高 洋(1994): オクロ鉱床におけるナチュラル・アナログ研究の現状と展望. *地球化学*, **28**, 143-154.
- 金井 豊(1986): 天然における放射非平衡と地球化学. *地質ニュース*, no. 382, 48-55.
- 金井 豊(1987): 原子が奏でる不思議なメロディー—ぶんせきと放射線—. *地質ニュース*, no. 396, 14-25.
- Kanai, Y. (1992): Uranium distribution and $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ activity ratios in a sedimentary bauxite deposit, from Yangwa mine, China, and its implication for sedimentation process. *Geochem. J.*, **26**, 207-218.
- Kanai, Y. and Sakamaki, Y. (1994): Uranium redistribution implied by $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ disequilibrium study on apatite-bearing sedimentary rocks at Nakamaruke district, central Japan. *Applied Geochem.*, **9**, 547-552.
- Kigoshi, K. (1971): Alpha-recoil thorium-234: Dissolution into water and the uranium-234/uranium-238 disequilibrium in nature. *Science*, **173**, 47-48.
- Latham, A. G. and Schwarcz, H. P. (1989): Review of the modeling of radionuclide transport from U-series disequilibria and of its use in assessing the safe disposal of nuclear waste in crystalline rock. *Applied Geochem.*, **4**, 527-537.
- 坂巻幸雄・金井 豊(1991): ナチュラル・アナログとしてみたウラン・トリウム鉱床. *地質ニュース*, no. 439, 40-49.
- Yanase, N., Payne, T. E. and Sekine, K. (1995a): Groundwater geochemistry in the Koongarra ore deposit, Australia (I): Implications for uranium migration. *Geochem. J.*, **29**, 1-30.
- Yanase, N., Payne, T. E. and Sekine, K. (1995b): Groundwater geochemistry in the Koongarra ore deposit, Australia (II): Activity ratios and migration mechanisms of uranium series radionuclides. *Geochem. J.*, **29**, 31-54.
- Yoshida, H. (1994a): Relation between U-series nuclide migration and microstructural properties of sedimentary rocks. *Applied Geochem.*, **9**, 479-490.
- Yoshida, H., Kodama, K. and Ota, K. (1994b): 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.
- 湯佐泰久・新井 隆・佐々木憲明・角田直己・高野 仁(1988): 火山ガラスのナチュラル・アナログ研究(I)—降下堆積性玄武岩質ガラスについてのケーススタディー—. 昭和63年日本原子力学会年会講演要旨, 41.

KANAI Yutaka (1996): Natural analogue studies on radionuclide migration revealed by uranium-series nuclides.

〈受付: 1995年12月13日〉