

## 資 料

551.49 : 550.4

### 放射性水理地質学(その2)

A. N. Tokaref & A. V. Shcherbakof

小西善治訳

#### 地下水の化学的組成と電気化学的性質について

水の化学的組成は、放射性元素の水への移行→搬出→堆積を条件付ける主要な要因の一つである。水の化学的組成は、それぞれ次の主要因によつて決められる。すなわち水の塩組成その硬化度、水のガス組成と水の電気化学的組成である。

#### 水の塩類組成

地下水は、地殻の生命に大きな役割を演ずる。地下水の塩類組成は、地下水とその周辺岩石との間の相互作用を反映する。同時に、地下水の塩類組成は、地下水の生命のきわめて明確な indicator となる。

地下水の塩類組成は、地殻の上部熱力学帯に形成される。こゝでは地下水が発達し、それと結びついて水溶性塩類の活動が行なわれる。地下水の塩類組成の生成過程は、岩石の孔隙、空隙に行なわれる地下水の運動条件、すなわち岩石と水との接触条件によつて進行する。

水の塩類組成の生成は、主として含水岩石中にはいる水溶性塩類を媒介として発生する。風化過程で生成される水溶性塩類は、地下水によつて侵出され、そのためにこの種塩類は水中に濃集される。

極大分布を示す天然塩類の溶解度は第18表にみられるようにさまざまである。この種塩類は、硬化地下水の主要成分の溶存を条件付ける。

第18表 主要水溶性塩の溶解度

塩	溶解度 (g/l)	塩	溶解度 (g/l)
CaCO <sub>3</sub>	0.013	MgSO <sub>4</sub>	262.0
Ca(HCO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	0.385	Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	340.0
MgCO <sub>3</sub>	2.2	K <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	100.3
Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	178.0	NaCl	263.9
K <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	215.0	KCl	255.0
CaSO <sub>4</sub>	2.02	MgCl <sub>2</sub>	353.0
		CaCl <sub>2</sub>	427.0

したがつて一方では、水の運動と硬化度の増大によつて、塩類は溶解能力を失うが、他方において、水がある種の塩類を溶解する能力を依然としてもっている場合には、岩石中におけるこの種塩類の量的貧化は、緩慢に進行する。

2つの要因、すなわち運動状態の水と水を圍繞する岩石との相互作用によつて、地下水の塩

A. Н. Токарев, А. В. Щербakov : Глава 1 Условия обогащения природных вод радиоактивными Элементами, Радиогидрогеология, Глава 2 Типы природных радиоактивных вод и их Формирование, Радиогидрогеология, p. 43~75, 1956

類組成の生成過程が決定される。地下水の塩類濃集順序様式は、第19表に示されてある。

第19表 地下水の塩類濃集順序様式  
(Brodskomu による)

硬化帯	I	II	III
地下水の運動方向			
水の硬化によって生じた主要陰イオン	HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	Cl <sup>-</sup>
水に溶解される塩類	CaSO <sub>3</sub> ; MgCO <sub>3</sub> ; CaSO <sub>4</sub> ; NaCl	CaSO <sub>4</sub> ; NaCl	NaCl
水溶性岩石系における硬化前の塩類	CaCO <sub>3</sub> ; MgCO <sub>3</sub>	CaCO <sub>3</sub> ; MgCO <sub>3</sub> ; CaSO <sub>4</sub>	CaCO <sub>3</sub> ; MgCO <sub>3</sub> ; CaSO <sub>4</sub> ; NaCl

地下水の塩類組成の主生成状態を明らかにするためには、塩類の溶解現象をその基礎にとりあげることができる。

第19表からみられるように、硬化度が進むとともに、陰イオンの値の再分布化が起こり、硬化度の帯状分布が形成される。この種の帯状分布は、水平方向にも垂直方向にも追跡される。帯状分布は、河 (Maksimovich によつて確認されている) から始まつて深所の層間水 (Ignatovich により確認されている) に終わる任意の流動水中にみられる。

しかし各流動水は、質的に異なる帯状分布をもっている。この種の帯状分布は、(1)異なる硬化帯の異なる相関関係、(2)総硬化度の臨界値の変化、(3)硬化作用中にみられる少量成分の量的変化の出現の型をとつて現われる。この質的差は、(1)岩石と水との相関関係、(2)風化帯に隣接する水循環圏の影響度の変化に左右される。

地下水の硬化度の帯状分布は、Polynov および Pustovalov の著書に記載されている化学的分化作用 (chemical differentiation) の特定の場合である。したがつて地下水の総硬化過程は、水が循環する岩石の形成と存在条件ともに、物理・化学的相続性の法則と結び付いている。地下水は、風化帯における化学的分化作用の強力な動因である。一般的な場合には、地下水の硬化帯では水と岩石との間に長期間にわたる相互作用によつて、岩石の化学的分化帯の形成が促進される。

一般に見られる硬化作用過程は、水と岩石との硬化帯が一致しないか、または地下水の混合——さまざまな硬化帯の形成に帰する——かによつて錯雑化する。実例としては、第1硬化帯の水と第3硬化帯の岩石との接触によつて水の硬化作用が進行する場合や、反対に第3硬化帯の水と第1硬化帯の岩石とが接触して硬化が形成される場合があげられる。第1の場合には、アルカリ・炭酸水素塩・ナトリウム水、第2の場合には、高硬化、塩化物、ナトリウム、カルシウム水がそれぞれ形成される。あらゆる場合を通じて、上述の陰イオンの相関関係は、総硬化作用過程に対して典型的なものとして残存するが、陽イオンの相関関係は変わってくる。

水の塩類組成は、地下水における放射性元素の移動を促進する主要要因の一つである。この要因の役割は、さまざまな移動過程の下で、放射性元素によつて若干異なる。(このような現象が起きるのは、結晶元素の化学的性質が類似していないためである。)

ウランおよびラジウムによる天然水の富化の主要条件は、次のようである。

- 1) 元素の火成岩および深成鉱物から水への初期移行
- 2) 溶液における元素類の安定
- 3) 溶液から元素の沈殿——二次鉱物の元素の水への繰り返し移行

この種の条件は水の pH 値、水の陰イオンおよび陽イオンの性質とその硬化度によつて決定される。

## ウランおよびラジウムの溶液への移行とその沈殿とに及ぼす水の pH 影響について

ウランが分散状態で存在するすべての火成岩・水成岩および深成ウラン鉱物（タンタル・ニオブ酸塩・トリウム・ジルコン珪酸塩・チタン酸塩および酸化物）は、規準塩類組成——全硬化作用過程に対応する——をもつ地下水には、きわめて溶け難い。したがってウランおよびラジウムの水への初期移行は、主として特定の塩類組成（酸性および強アルカリ水で、多量の遊離酸素を伴う。この種の水は、6価ウラン化合物の4価ウランへの転移を促進する）の地下水によつて主として形成される。

第20表は岩石中における可動性ウランの分量に関する Sawkov その他のデータからとつたものである。

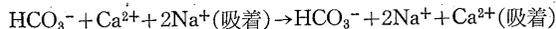
第20表 岩石中の可動性ウランの含有量  
(試料に対して%で表わされている)

岩 石	試 料 数	媒 質			
		2% HCl	0.75% HCl	0.5-N NaHCO <sub>3</sub>	0.1-N NaHCO <sub>3</sub>
閃 長 岩	1	2.4・10 <sup>-4</sup>	1.5・10 <sup>-5</sup>	—	—
石 英 斑 岩	2	1.4・10 <sup>-4</sup>	1.5・10 <sup>-5</sup>	—	—
花 崗 閃 緑 岩	3	3.3・10 <sup>-5</sup>	3.0・10 <sup>-5</sup>	—	—
花 崗 斑 岩	2	—	1.0・10 <sup>-5</sup>	—	—
花 崗 岩	9	4.4・10 <sup>-4</sup>	3.5・10 <sup>-5</sup>	—	—
粘 土	6	2.9・10 <sup>-4</sup>	—	2.2・10 <sup>-3</sup>	1.1・10 <sup>-3</sup>
砂 岩	1	1.0・10 <sup>-5</sup>	—	1.0・10 <sup>-5</sup>	—

このようにして、天然環境下では、可動ウランは、岩石から運び出される。

低 pH の水は (1) 土壌形成過程 (フミン酸) (2) 遊離炭酸の飽和水 (3) 鉱床地帯の硫化物の酸化によつて形成される。最初の2つの場合は、主として分散ウランの溶液への移行で特徴付けられるが、ウラン濃集物——鉱石を形成する——の溶解は、酸性硫酸塩溶液の作用によつて主として起きる。

天然では、アルカリ水——pH>7 の水——も広域に分布する。アルカリ水の生成は、低硬度水が著しく汚染 (salting) された岩石に作用した場合に発生するいわゆる“塩飽和”過程と関連性がある。



広域規模の天然条件下では、この種の現象は、火成岩と塩類汚染堆積岩との接触部かまたは化学的風化が強度に進行している地域の火成岩塊の内部かいずれかでしばしば出現する。アルカリ水に対しては、

$$\frac{r_{\text{Na}}}{r_{\text{Cl}} + r_{\text{SO}_4}} > 1$$

の相関関係で特徴付けられる。

普通の水では、二次ウラン化合物中の少数の化合物、主としてウラニル・グループの化合物が可溶性である。第21表は Scherbin のデータによつて、天然水におけるウラン・ラジウム化合物の溶解度が掲げられてある。

このように、塩化物ウランの硫酸塩および炭酸塩を除けば、すべての天然ウラン化合物は水

第21表 天然水におけるウラン・ラジウム化合物の溶解度

可溶性化合物		難溶性化合物	
化合物	溶解度 (g/l)	化合物	溶解度 (g/l)
UO <sub>2</sub> Cl <sub>2</sub> ·3H <sub>2</sub> O	745.5	UO <sub>2</sub> ·kUO <sub>3</sub> ·nH <sub>2</sub> O	7.0·10 <sup>-3</sup>
UO <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> ·3H <sub>2</sub> O	148.2	RaSO <sub>4</sub>	1.4·10 <sup>-3</sup>
U(SO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> ·4H <sub>2</sub> O	98.0	M(UO <sub>2</sub> )V <sub>2</sub> O <sub>8</sub>	9.0·10 <sup>-4</sup>
UO <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	74.0	UO <sub>2</sub>	5.4·10 <sup>-4</sup>
K <sub>4</sub> UO <sub>2</sub> (CO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	74.0	M(UO <sub>2</sub> )AS <sub>2</sub> O <sub>8</sub>	5.0·10 <sup>-4</sup>
UCl <sub>4</sub>	きわめて可溶性	珪酸塩類 U	きわめて難溶性
RaCl <sub>2</sub>	〃	UF <sub>4</sub>	〃
		M <sub>2</sub> O·nUO <sub>3</sub>	〃
		M(UO <sub>2</sub> )P <sub>2</sub> O <sub>8</sub>	〃

に難溶性を示し、pH値が高いかまたは低い場合にのみ、溶液へ多量に移行する。pH値の低下の極大影響は、ピッチブレンドに現われる。すなわちこの場合に、閃ウラン鉱の溶解度は僅か2~3倍増大するが、ピッチブレンドの溶解度は10~80倍増大する(第22表参照)。溶液のpHが一定の場合におけるウラン鉱石の溶解度は、第22表のようである。

第22表 さまざまなウラン鉱物の溶解度

鉱石	H <sub>2</sub> O 中におけるウラン含量		H <sub>2</sub> O+H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> (pH=4)の溶液におけるウランの含有量	
	g/l	試料に対する%	g/l	試料に対する%
閃ウラン鉱を伴う石英斑岩	5.4·10 <sup>-4</sup>	0.51	1.1·10 <sup>-3</sup>	1.66
雲母状ウランを伴う石英斑岩	5.1·10 <sup>-4</sup>	1.20	7.9·10 <sup>-3</sup>	1.78
ピッチブレンドを伴う石英斑岩	6.1·10 <sup>-3</sup>	5.10	4.3·10 <sup>-2</sup>	35.40
ピッチブレンドを伴う石灰石	4.3·10 <sup>-4</sup>	0.55	4.0·10 <sup>-2</sup>	41.36

Starikの実験結果によれば、ウランおよびラジウムの溶解度は、第23表にみられるように、溶液の酸性度またはアルカリ度の上昇によつて増加する。

第23表 ウランおよびラジウムの溶解度と酸性媒質との函数関係

媒質	溶液中のRaの含有量, 試料の%	溶液中のUの含有量, 試料の%	Ra/U
H <sub>2</sub> O	0.018	?	?
0.001-N. HCl	0.28	0.05	5.6
0.01-N. HCl	0.49	0.30	2.0
0.1-N. HCl	1.50	1.18	1.3
1.0-N. HCl	4.19	4.16	1.0

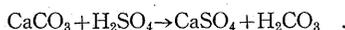
この数値はトルベルナイトを伴う花崗岩について求められたものである。

資 料

第 24 表 ウランおよびラジウムの溶解度とアルカリ媒質との函数関係

媒 質	溶液中における Ra の含有量, 試料の%	溶液中における U の含有量, 試料の%	$\frac{Ra}{U}$
H <sub>2</sub> O	0.81	?	?
0.01-N. NaHCO <sub>3</sub>	0.90	7.8	0.12
0.1-N. NaHCO <sub>3</sub>	1.23	15.4	0.08
0.5-N. NaHCO <sub>3</sub>	7.32	48.0	0.15

pH の値の低い水は水を圍繞する岩石と相互作用し、迅速に中和し、そのために酸性硫酸塩水は、一般には、硫化物で鉱化作用を蒙つた地帯にだけ分布している。中和が非炭酸塩岩石類との相互作用によつて起きるならば、溶液中のウランは、SO<sub>4</sub> イオンと平衡状態を保つて残存する。pH 値が上昇しはじめる時にだけ、ウラン硫酸塩類は加水分解され、溶液から沈殿する。このように、この種の条件下のウランは、鉱化作用帯の範囲内——精確にいえば酸化作用を蒙つた部分の範囲内——のみを移動する。中和作用が炭酸塩岩石との相互作用によつて出現する場合には、その作用は、次のような化学反応によつて進行する。



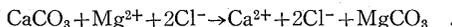
炭酸塩岩石と反応すると、炭酸が形成され、monocarbonate は、炭酸水素塩類(bicarbonate)へ転移し、水は HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> イオンによつて富化されるが、以下で述べるように、HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> イオンは、水に溶存するウランの安定性を条件付ける。したがつてこの場合ウランは、移動する可能性——wall rock の割れ目に沿つて循環する水を媒介として——を獲得する。溶液の中和が水のラジウム含量に及ぼす影響は表われない(第 25 表省略)。

ウラン・ラジウムの溶液への移行に及ぼす水のイオン組成影響

上述のように、地下水中に溶存する成分中最も広域分布を示す成分は HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>、Cl<sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、Ca<sup>2+</sup>、Mg<sup>2+</sup> と Na<sup>+</sup> イオンである。

実験結果によれば、ウランの溶液への移行に及ぼす溶存陽イオンの影響は、炭酸塩質岩石類にのみ顕著に表われ、そのうえ陽イオンがウラン鉱物の溶解に作用する度合は、次の順序 Mg<sup>2+</sup>>Ca<sup>2+</sup>>Na<sup>+</sup> に配列できる(第 26 表省略)。

Mg 含量の水と炭酸塩質岩石と接触すると、次のような置換反応が起きる。



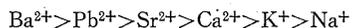
MgCO<sub>3</sub> は CaCO<sub>3</sub> と比較して溶解度が高いから、ウラン鉱物の溶解が起こり、MgCO<sub>3</sub>・nUO<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> 型の複塩が形成される。

第 27 表 さまざまな塩類によるラジウムの浸出 (Starik による)

媒 質	浸 出 (%)	媒 質	浸 出 (%)
H <sub>2</sub> O	0.012	0.00001-N. BaCl <sub>2</sub>	0.040
0.001-N. NaCl	0.016	0.0001-N. BaCl <sub>2</sub>	0.080
0.001-N. CaCl <sub>2</sub>	0.032	0.001-N. BaCl <sub>2</sub>	0.15
0.001-N. SrCl <sub>2</sub>	0.036	0.01-N. BaCl <sub>2</sub>	0.15
0.001-N. PbCl <sub>2</sub>	0.088		

岩石および鉱物のラジウム浸出に及ぼす溶存陽イオンの影響は、一層顕著に出現する (第27表参照)。ラジウムに対する元素の化学的親和力が大きく、元素のイオン半径が、ラジウムのイオン半径に近ければ、ラジウムは、岩石および鉱物から激しく追い出される。

陽イオンのラジウム浸出量に及ぼす作用力は、次のようである。



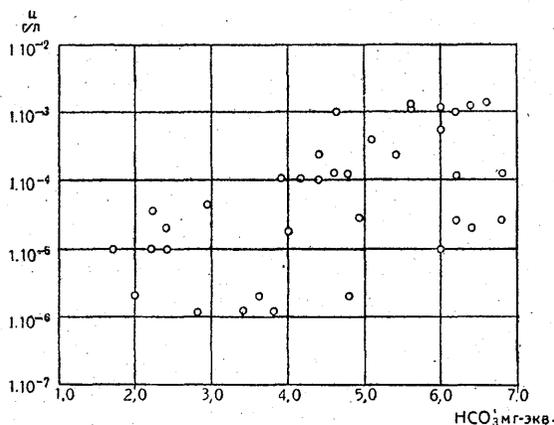
バリウムがカルシウムよりさらに多量に水に存在する場合には、ラジウムの収着効果の低下が促進される。したがって水のラジウム濃集が増進する。しかし水のバリウムイオンの存在は、硫酸塩イオンのきわめて危険な現象となる。天然水ではラジウムの濃集はきわめて低いから、 $\text{RaSO}_4$  の完全溶解には決して達しないが、不溶性  $\text{BaSO}_4$  が形成されると次のような現象が誘導される。すなわちバリウムは、ラジウムに近い化学的相似物質であるから、堆積物中に沈殿するときには、バリウムは、多量のラジウムを吸収して運ぶ。したがって含ラジウム水の大多数は、無硫酸塩水となる。

水の陰イオン組成は、陽イオンよりもウラン鉱物の溶解にとつて大きな意味をもっている。このような現象は、第28表をみれば、明らかである。

第28表 ウランの溶解度と溶液の陰イオン組成の函数関係

鉱石	0.05-N 塩類溶液と水とのウラン含有量							
	H <sub>2</sub> O		NaCl		Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>		NaHCO <sub>3</sub>	
	g/l	試料 %	g/l	試料 %	g/l	試料 %	g/l	試料 %
閃ウラン鉱を伴う石英斑岩	$5.4 \cdot 10^{-4}$	0.78	$3.3 \cdot 10^{-4}$	0.48	$2.0 \cdot 10^{-3}$	2.88	$4.3 \cdot 10^{-2}$	62.7
ピッチブレンドを伴う石英斑岩	$6.1 \cdot 10^{-3}$	5.10	$2.2 \cdot 10^{-3}$	1.80	$5.5 \cdot 10^{-3}$	4.90	$5.7 \cdot 10^{-2}$	47.6
雲母状ウランを伴う石英斑岩	$5.1 \cdot 10^{-4}$	1.20	$5.5 \cdot 10^{-4}$	0.13	$2.7 \cdot 10^{-4}$	0.56	$4.1 \cdot 10^{-2}$	93.1
ピッチブレンドを伴う石灰岩	$4.3 \cdot 10^{-4}$	0.55	$3.2 \cdot 10^{-3}$	2.6	$3.7 \cdot 10^{-3}$	3.88	$8.3 \cdot 10^{-2}$	86.0

ウラン鉱物の溶解度に極小影響を及ぼすものは、塩化物であり、極大影響を示すものは、炭酸水素塩である。後者は、きわめて可溶性の化合物型、 $\text{Na}_4\text{UO}_2(\text{HCO}_3)_3$  の形成を条件付けるからである (第1図)。



第1図 鉱床の酸化帯の地下水中にみられるウラン含量と炭酸水素塩イオン濃度との相関関係図表

水の炭酸水素塩の含有値は、炭酸塩の溶解度に左右される。最も広域分布を示すアルカリ土金属の炭酸水素塩の溶解度はきわめて低いから、炭酸水素塩イオンの含有量は、通常 400 ~ 600 mg/l 以下である。すなわち、この値を超える炭酸水素塩イオンの含有量は、次の場合のみ起きる。(1) 炭酸の partial pressure が高い場合、(2) 炭酸水素塩がナトリウムイオンと平衡状態を保っているアルカリ水中、(3) 有機物質と関連性のある硬(鈹)水、でそれぞれ起こる。現在のデータによれば、100 mg/l を超える炭酸水素塩の含量は、含有量の高いウランが安定状態で水に溶存するのに充分である。

炭酸水素酸の含有量が 100 mg/l 以下の場合には、水溶液中におけるウランの安定度は低下する。このような炭酸水素塩の含有量の低下は、低 pH 値か高 pH 値の下で起きる。

ウランおよびラジウムの水溶液への移行に及ぼす水の全硬化作用影響について

水の硬化度が上昇すると、ウラン鈹物の溶解度は僅か増大する。塩類が溶液中に著しく多量に濃集している場合には、ラジウムの浸出容量に表われる(第 29 表省略)。

天然条件では、ラジウムの高含有量の水が出現すると、ウラン鈹石と地下水との接触が促進されるとともに、水の高硬(度)化作用が進み、アルカリ土金属塩化物の溶存(塩化物-ナトリウム、カルシウム水)量が増大する。(ただしこの現象は、炭酸水素塩と硫酸塩との含有量が低い場合に起きる。)この現象は、次のように解釈される。すなわち一方では、水の高硬(度)化作用とアルカリ、アルカリ土金属塩化物の溶存とは、ラジウムの吸着力を低下させるとともに、他方においては、陽イオン交換過程を促進し、岩石から浸出するラジウム容量が増大する。

天然水をみれば、ウラン鈹物の溶解にとつて最も好ましい水は、炭酸水素酸塩、カルシウム水と炭酸水素塩、ナトリウム水である(第 30 表参照)。

第 30 表 天然水の組成に近い水溶液中におけるウランの溶解度

鈹 石	溶 解 ウ ラ ン 量							
	硬度 1.4 g/l の炭酸水素塩ナトリウム水		硬度 0.35 g/l の炭酸水素塩・カルシウム水		硬度 1.4 g/l の硫酸塩・カルシウム水		硬度 100 g/l の塩化物・ナトリウム・カルシウム水	
	g/l	試料 %	g/l	試料 %	g/l	試料 %	g/l	試料 %
閃ウラン鈹を伴う石英斑岩	—	—	—	—	7.6・10 <sup>-3</sup>	11.40	1.3・10 <sup>-2</sup>	18.90
ピッチブレンドを伴う石英斑岩	8.9・10 <sup>-2</sup>	7.42	1.0・10 <sup>-2</sup>	8.69	2.3・10 <sup>-2</sup>	18.92	1.3・10 <sup>-2</sup>	12.20
雲母状ウランを伴う石英斑岩	3.0・10 <sup>-2</sup>	77.3	1.7・10 <sup>-2</sup>	40.52	1.3・10 <sup>-2</sup>	29.50	7.4・10 <sup>-3</sup>	10.89
ピッチブレンドを伴う石灰岩	6.5・10 <sup>-2</sup>	59.8	6.8・10 <sup>-2</sup>	62.12	5.2・10 <sup>-2</sup>	47.30	5.6・10 <sup>-2</sup>	50.90
ピッチブレンドを伴うdolomitizationを受けた石灰岩	3.1・10 <sup>-2</sup>	32.3	2.7・10 <sup>-2</sup>	28.3	2.5・10 <sup>-2</sup>	26.0	2.8・10 <sup>-2</sup>	28.6
tyuyamunit を伴う大理石化石灰岩	1.4・10 <sup>-2</sup>	1.40	2.8・10 <sup>-3</sup>	0.29	2.2・10 <sup>-3</sup>	0.23	3.6・10 <sup>-3</sup>	0.37

ウランは、吸着状態にある含ウラン石炭から溶液へ最も容易に移行する。現有のデータによれば、ウランは、酸性およびアルカリ水溶液ばかりでなく、蒸溜水(ある種実験で、ウランは蒸溜水によつて抽出することが困難であることを示していても)によつて、ほとんど浸出される。

とくに水成 origin のピッチブレンドのウランの水溶液への移行は、比較的低い。閃ウラン

鈹, 雲母状ウラン, tyuyamunite のウランの浸出度は, 著しく低い。さらに浸出し難いウランはウラン頁岩のウランである。Scherbin の研究によれば, dictyonema 頁岩のウランは, 酸性およびアルカリ水溶液のみによつて多量に浸出される (30~50%)。

水の気体組成

多量に産出する天然ガスのうちで, 地下水中に多量に溶存するものは僅かである。そのおもなものは, O<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, 重炭化水素, 稀ガスである。放射性元素の移動におけるこの種ガスの地球化学的役割は, さまざまである。

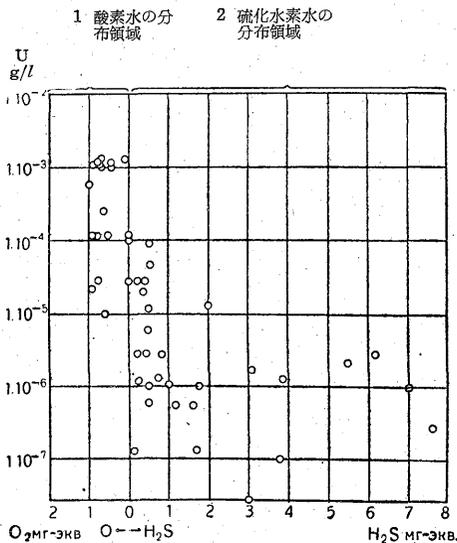
酸素 (O<sub>2</sub>) :

深所地球化学的現象は, 一般にみられるように, 遊離酸素の欠失環境下で起る。反対に地表変成帯では, 遊離酸素は, 大気組成の主要部分を占め, 水圏の可溶性ガス (O<sub>2</sub> の溶解度は 10 cm<sup>3</sup>/l に達する) の主要移動要因として働く。岩圏では, 遊離酸素の含有量は, 深度が深まるとともに徐々に低下する(酸素のポテンシャルの減少)。したがつて酸素の下部分布限界——酸素の限界分布面——すなわちある限界分布面上では, 主として酸化現象, その下部では, 還元現象が起るといえる。酸素限界分布面の深度は, 変数であつて, 地下水面の位置とその運動方向, 地域の気候条件, 水の浸透容量, 造構構造等によつて変わつてくる。深度変数の変動は, 数 cm~1 km 以上にわたる。

遊離酸素の主要な役割は, 酸化過程でみられる。可変性原子価をもつ元素は, この過程で, 低原子価イオンから一層高原子価 (Fe, Mn, U など) のイオンへ移行し, 無酸素化合物 (硫化物類, 砒化物等) は, 酸化物 (硫酸塩類, 炭酸塩類等) へ移行し, 酸素ポテンシャルは, 溶液から沈殿するそれぞれの酸化化合物の沈殿順位にも, 大きな影響を与える。

炭酸ガス (CO<sub>2</sub>) :

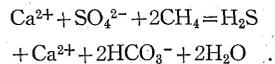
地下水中の炭酸ガスは, 大気源 (熱拡散過程), 火成源であつて, 炭酸塩岩石の分解産物である。地下水における炭酸ガスの含量は, 3.7g/l に達する。水に溶存する炭酸塩類は溶存遊離酸素よりも, ウランの移動にとつて重要な意味をもっている。炭酸は一方では, 内成ウラン鈹物の溶解を条件づけるとともに, 一方では炭酸水素塩化合物の型態で水溶液中の溶存ウランの移動を促進する。



第2図 地下水における酸素・硫化水素の濃度とウラン含有量の相関関係図

メタン (CH<sub>4</sub>) :

メタンおよび重炭化水素は, 有機物の分解のさいに発生するさまざまな生化学的過程を媒介として, 地下水中に濃集する。水のメタン含有量は 50cm<sup>3</sup>/l に達する。メタンそれ自体は, ウランの移動に影響を及ぼさない。しかし硫酸カルシウムが存在すると, メタンは, ウランの沈殿剤となる硫化水素水の形成を促進する。



窒素 (N<sub>2</sub>) :

窒素および稀ガスは, 不活性気体であるから, ウランの移動には, なんらの影響を及ぼさない。

酸素は, ウランの閃ウラン鈹および

ピッチブレンドから溶液への移行に最も大きな影響を与えるが、炭酸はウランの炭酸塩質岩石からの移行を促進する（以下の表参照）。酸素がウランの水溶液への移行に及ぼす影響は第2図に示した。

第 31 表 ウランの溶解度と水のガス組成

鈾 石	溶液へ移行するウラン含量					
	H <sub>2</sub> O		H <sub>2</sub> O+O <sub>2</sub>		H <sub>2</sub> O+CO <sub>2</sub>	
	g/l	%	g/l	%	g/l	%
閃ウラン鈾を伴う石英斑岩	5.4・10 <sup>-4</sup>	0.51	2.3・10 <sup>-3</sup>	2.99	1.9・10 <sup>-3</sup>	1.80
ピッチブレンドを伴う石英斑岩	6.1・10 <sup>-3</sup>	5.10	1.5・10 <sup>-2</sup>	12.51	8.4・10 <sup>-3</sup>	6.91
雲母状ウランを伴う石英斑岩	5.1・10 <sup>-4</sup>	1.20	9.1・10 <sup>-4</sup>	2.10	6.2・10 <sup>-3</sup>	13.95
ピッチブレンドを伴う石灰岩	4.3・10 <sup>-4</sup>	0.55	1.9・10 <sup>-2</sup>	20.99	3.6・10 <sup>-2</sup>	38.96

地下の電気化学的性質地下水の変成作用

地下水の電気化学的活性度は、鈾床の破壊過程で大きな役割を演じている。この種活性度は、多くの性質、そのなかで第一におかれるのは地下水の酸化還元ポテンシャルで (Eh) 決定される。“電気化学的”と名付けられる酸化還元電位によつて、濃度、弾性度、電子——酸化還元過程に関与する能力をもつ——が理解される。この物理的の大きさは、非反応性のプラチナまたは金の電極と溶液との間の電位差によつて測定される。この値は、物質のある量が酸化または還元へ支出される電気的仕事の強さを特色づけ、Nernst の方程式で表わされる。

$$Eh = E_0 + \frac{0.058}{n} \lg \frac{Ox}{Red}, \quad (5)$$

Eh : 媒質の酸化還元電位

E<sub>0</sub> : 規準酸化還元電位。この場合には、酸化部分と還元部分との濃度はそれぞれ自体相等しい (ウランでは 0.410 ボルトに等しい)

Ox : 化合物の酸化型態の濃度

Red : 化合物の還元型態の濃度

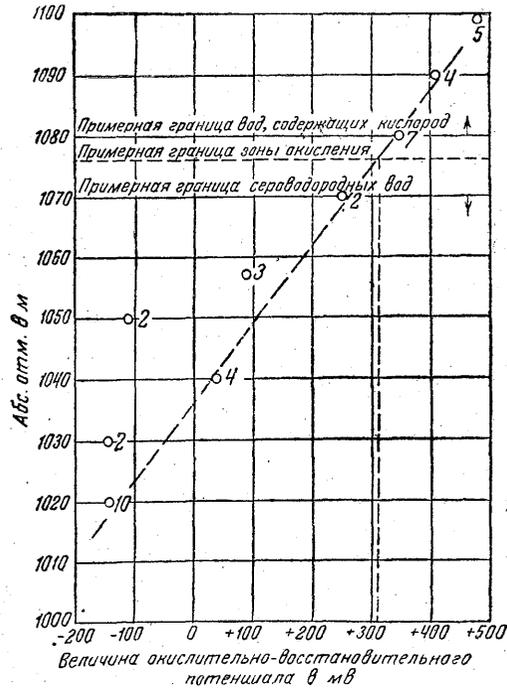
n : 酸化または還元に関与する電子量

Eh 値は、酸化過程の活性度の指標となる。したがつてさまざまな地球化学的過程を理解するうえにおいて重要な意味をもっている。さらに Eh 値によれば、任意の金属——その内にはウランを含む——の酸化度が決定される。換言すれば、Eh 値によれば、どのような型態——6 価か 4 価か——でウラン鈾床が存在するかが推定できる。

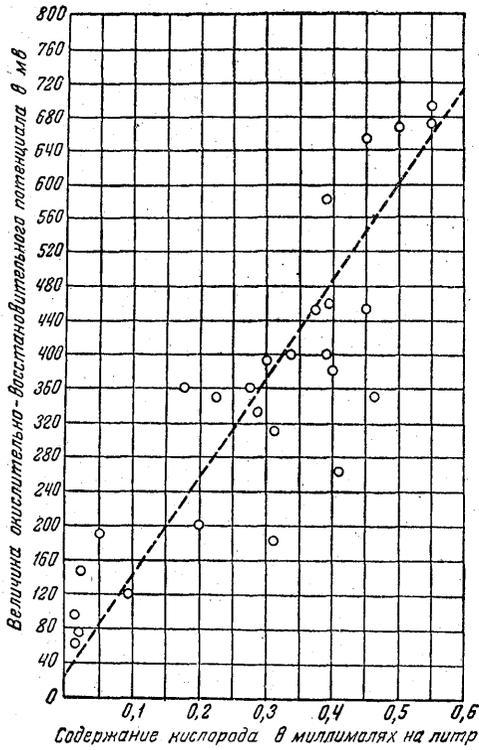
多くの研究者によつて次のことが確認されている。すなわち水の酸化還元電位は、深度とともに減少し、そのうえ電位の低下はきわめて規則的に現われる(第3図参照)。しかし地殻の各地域の電位曲線の性質は、もちろん地質学的構造条件と水理地質学的条件とによつて異なるであろう。

Shcherbakof のデータによれば、酸化帯の下部限界の値は約 250~300 mV である。このように地下水の酸化還元電位値によれば各地域で酸化帯の深度が決定できる。

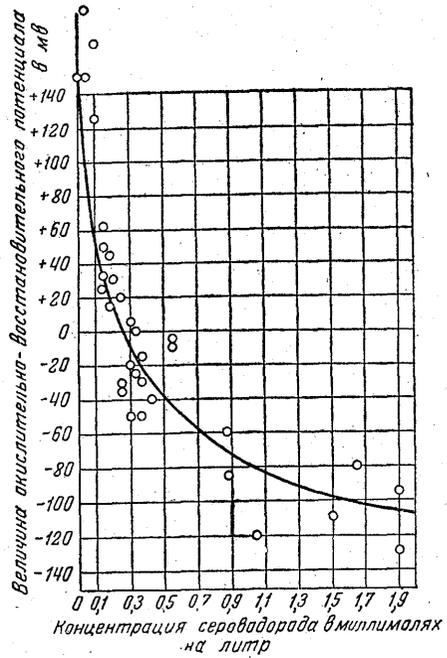
酸化還元電位値は、地下水の塩類組成ならびに気体組成によつて左右される酸化現象の強さの指標となる(第4, 5図参照)。Shcherbakof はとくに地殻の上部層では Eh 値と水の酸素含有量とが相関関係(2比例)を示し、下部層では Eh 値と硫化水素の含有量とが逆比例を表わすことを確認している。



第3図 酸化還元電位と採取試料との相関関係図



第4図 酸化還元電位と水の酸素含有量との相関関係図

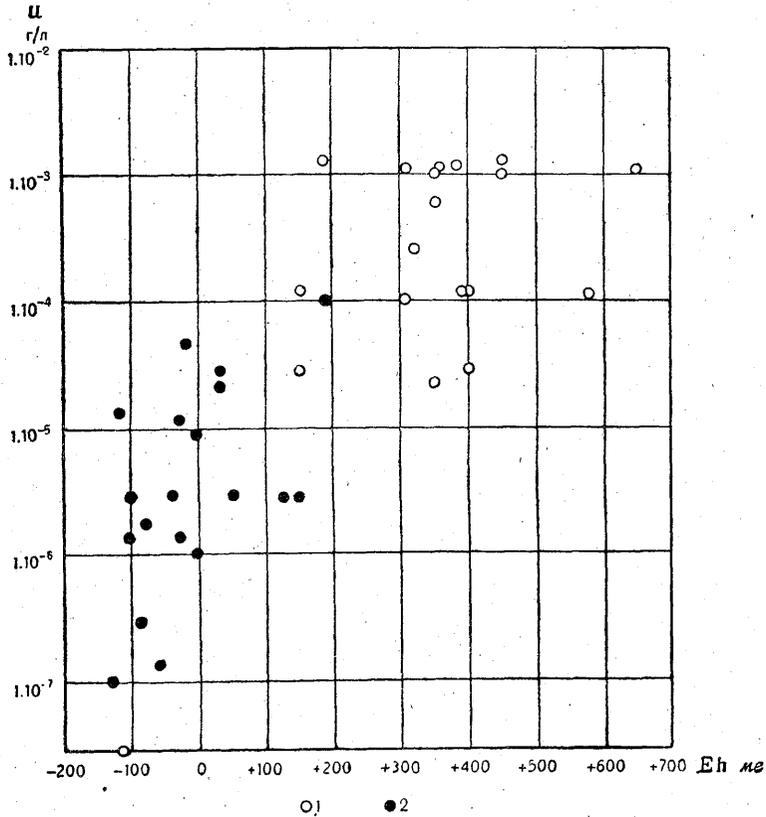


第5図 酸化還元電位と水の硫化水素濃度との相関関係図

ウラン鉱石に対する地下水の破壊作用の強さと酸化還元電位の値とは結び付いているから、ウラン鉱床の破壊度指標として Eh 値を利用できるであろう。

ウラン鉱床は酸化条件にあつて、地下水は高 Eh 値で特色付けられるとするならば、ウランは、可溶性の 6 価化合物の状態にあることが知られる。低 Eh 値の場合には、ウランは、主として水に難溶性の 4 価型態で存在することが推定されるであろう。

Eh 値の大きな水は、これから、ウラン鉱化作用に際して大きな破壊力を持ち、ウランで富化されていることが理解される (第 6 図参照)。反対に、Eh の値の低い水は、きわめて弱い破壊活性力を持ち、ウランの富化度は低い。

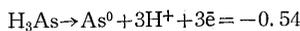


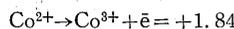
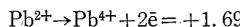
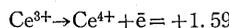
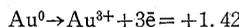
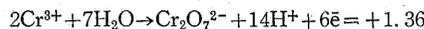
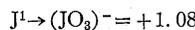
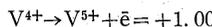
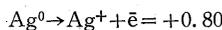
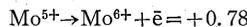
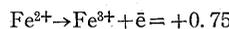
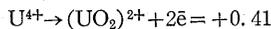
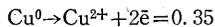
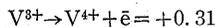
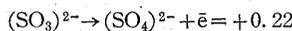
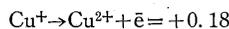
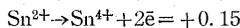
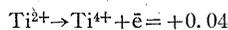
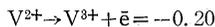
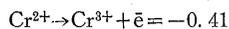
○ 1 酸素の溶存する試料  
● 2 硫化水素の溶存する試料  
第 6 図 水のウラン含有量と酸化還元電位値との相関関係図

Scherbin によれば、酸化還元反応の進行に大きな影響を与えるものは、変移性原子価をもつさまざまな溶存化学元素である。さまざまな酸化度を示す地表帯の天然鉱物中で出会う元素は、Fe(2, 3), Mn(2, 3, 4), V(3, 4, 5), Ti(3, 4), Cr(3, 6), Co(2, 3), Ni(2, 3), Mo(5, 6), U(4, 6), N(-3, +5), J(-1, +5), Cu(1, 2), Pb(2, 4), As(-3, +3, +5), Sb(-3, +3, +5), Se(4, 6), Te(4, 6) である。

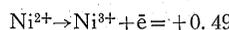
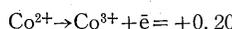
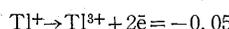
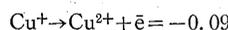
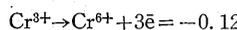
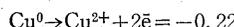
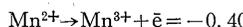
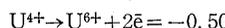
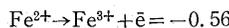
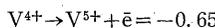
反応過程の方向および強度は、イオン系に關与する酸化還元電位の値で決定される。上述の元素に対しては、増加の順位に配列されている次の値が存在するであろう。この値は温度 18°, 1-N の水溶液で求められたものであつて、ボルトで表わされている。

弱酸性媒質





アルカリ媒質



与えられた酸化還元対の任意のものは、上方に配列されたものに対しては酸化剤、下方に配列されたものに対して還元剤となる。電位差が大きくなれば、反応は強烈に進行する。

$\text{U}^{4+} \rightarrow (\text{UO}_2)^{2+}$  反応より上方の反応系の左部分にある全イオンまたは全化合物は、酸性媒質中では、 $(\text{UO}_2)^{2+}$  との会合 (association) が不安定であるが、反対に、この反応系より下方に配列されている化合物および  $(\text{UO}_2)^{2+}$  との会合は、安定である。 $\text{U}^{4+}$  に対して禁制的なイオンは、 $\text{U}^{4+} \rightarrow (\text{UO}_2)^{2+}$  反応より下方に配列されている反応系の右部分のイオンである。さらにこの種のものとしては、この反応より上方に配列されているすべての反応系および  $\text{TiO}_2$  を除くこの種の反応より下方の反応系の左部分のイオンがあげられる。

酸性媒質中で  $\text{U}^{4+}$  と会合して溶存するイオンは、 $\text{Fe}^{2+}$ ,  $\text{Mo}^{5+}$ ,  $\text{Ag}$ ,  $\text{V}^{4+}$ ,  $\text{Mn}^{2+}$ ,  $\text{Cr}^{3+}$ ,  $\text{Au}$ ,  $\text{Ce}^{3+}$ ,  $\text{Pb}^{2+}$ ,  $\text{Co}^{2+}$ ,  $\text{J}^-$ ,  $\text{Ni}^{2+}$ ,  $\text{W}^{5+}$ ,  $\text{W}^{6+}$ ,  $\text{H}_2\text{S}$ ,  $(\text{SO}_4)^{2-}$ ,  $\text{H}_3\text{As}$ ,  $\text{Sn}^{2+}$ ,  $\text{Sn}^{4+}$ ,  $\text{Ti}^{3+}$ ,  $\text{Ti}^{4+}$ ,  $\text{V}^{3+}$  および  $\text{Cr}^{2+}$  であつて、禁制イオンは  $\text{Fe}^{3+}$ ,  $\text{Mo}^{6+}$ ,  $\text{Ag}^+$ ,  $\text{V}^{5+}$ ,  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{MnO}_2$ ,  $\text{Cr}^{6+}$ ,  $\text{Au}^{3+}$ ,  $\text{Ce}^{4+}$ ,  $\text{PbO}_2$ ,  $\text{Co}^{3+}$ ,  $\text{Ni}^{3+}$  である。反対に、酸性媒質中では、 $\text{U}^{4+}$  イオンとの

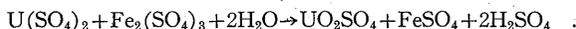
## 資 料

会合が禁制されているすべてのイオンが  $U^{6+}$  と会合して溶存する。そのほかに、 $Fe^{2+}$ ,  $Co^{2+}$ ,  $Mn^{2+}$ ,  $W^{6+}$ ,  $(SO_4)^{2-}$ ,  $Ce^{3+}$ ,  $Ag$ ,  $Au$ ,  $Ti^{4+}$ ,  $V^{4+}$ ,  $Cr^{3+}$ ,  $Pb^{2+}$ ,  $Mo^{5+}$  が  $U^{4+}$  と会合する。禁制イオンは、 $Sn^{2+}$ ,  $H_3As$ ,  $V^{2+}$ ,  $V^{3+}$ ,  $Ti^{3+}$ ,  $Cr^{2+}$  である。

アルカリ媒質中では、 $Mn^{2+}$ ,  $Cu$ ,  $Cr^{3+}$ ,  $Cu^+$ ,  $Tl^+$ ,  $Co^{2+}$ ,  $Ni^{2+}$ ,  $Fe^{2+}$ ,  $V^{4+}$ ,  $Fe^{3+}$ ,  $V^{5+}$  が  $U^{4+}$  と会合して溶存し、禁制イオンは  $Mn^{3+}$ ,  $Cu^{2+}$ ,  $Cr^{6+}$ ,  $Tl^{3+}$ ,  $Co^{3+}$ ,  $Ni^{3+}$  である。反対に、アルカリ媒質中では、 $U^{4+}$  との会合が禁制されているすべてのイオンが  $U^{6+}$  と共存する。そのほかの会合イオンは  $Mn^{2+}$ ,  $Cu$ ,  $Cr^{3+}$ ,  $Cu^+$ ,  $Tl^+$ ,  $Co^{2+}$ ,  $Ni^{2+}$ ,  $Fe^{3+}$ ,  $V^{5+}$  であつて、禁制イオンは、 $V^{4+}$  と  $Fe^{2+}$  である。

地殻中で最も広域分布を示す元素は、鉄である。それがために、鉄は、さまざまな酸化度で出会し、酸化還元反応系列ではやゝ中央の位置を占め、地球化学的過程の酸化媒質か還元媒質かの indicator となつている。したがつて最も興味があるのは、第1、第2酸化鉄と異なる原子価のウランイオンとの反応である。

酸性媒質（環境）中では、鉄の酸化化合物と共生関係をなして出会するものは、ウランの6価化合物だけである。



アルカリ媒質中では、ウラン酸化化合物は二次黒色粉状ウランの形成を伴う鉄の下級酸化化合物に還元される。



ウラン地球化学にとつて少なからざる意義をもっているのは、さまざまな原子価のバナジウム化合物とウランの酸化還元反応である。



4価ウランの存在する酸性媒質中では、バナジン酸塩の分解が起きる。



アルカリ還元媒質中では、carnotite は生成されない。これはウランがピッチブレンドの形態で *insitu* に沈殿するが、バナジン酸塩がバナジン酸アルカリおよびカルシウムの形態で移動できるからである。

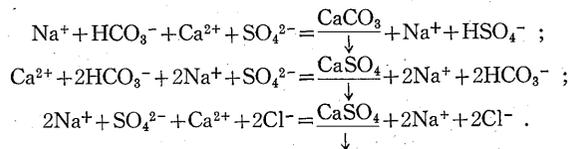
### 地下水の変成作用

地下水は上述のように、供給源地域から流動する場合には、地下水の塩類、ガス組成が変わる。すなわち変成する。炭酸水素塩水は硫酸塩、塩化物水へ、カルシウム水はナトリウム水へ移行する。多くの場合、炭酸の完全喪失または部分喪失が起こり、とくに含油構造の発達地域では、硫化水素による水の飽和が起きる。

すべてのこの種過程は、水に溶存するウランの移動に大きな影響を与えると同時に、ウランの溶液から沈殿を促進する。

#### 水の塩類組成の変化

炭酸水素塩、ナトリウム水と硫酸塩、ナトリウム水、炭酸水素塩、カルシウム水と硫酸塩、ナトリウム水および硫酸塩、ナトリウム水と塩化物、カルシウム、ナトリウム水とが混合すると、さまざまな塩類の沈殿が起こり、水の塩類組成は、変わつてくる。



溶液からは堆積物の塩類が沈殿するとともに、ウランが沈殿する。この種反応の特徴は、塩

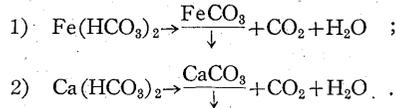
化ナトリウムがウランの沈殿を妨害することである。

第 33 表 さまざまな塩類が水溶液に導入された場合に起きるウラン(水溶液)の沈殿

水溶液におけるウランの含有量 (g/l)							
NaHCO <sub>3</sub>	NaHCO <sub>3</sub> +CaSO <sub>4</sub>	NaHCO <sub>3</sub> +CaSO <sub>4</sub> +NaCl	Ca(HCO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	Ca(HCO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> +Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	Ca(HCO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> +Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> +NaCl	Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> +CaCl <sub>2</sub>
8.4・10 <sup>-3</sup>	4.3・10 <sup>-3</sup>	5.2・10 <sup>-3</sup>	7.9・10 <sup>-2</sup>	4.4・10 <sup>-2</sup>	—	5.5・10 <sup>-3</sup>	5.4・10 <sup>-3</sup>
7.8・10 <sup>-2</sup>	5.5・10 <sup>-2</sup>	7.1・10 <sup>-2</sup>	3.8・10 <sup>-2</sup>	8.8・10	—	2.7・10 <sup>-4</sup>	8.8・10 <sup>-4</sup>
3.9・10 <sup>-1</sup>	1.8・10 <sup>-1</sup>	2.2・10 <sup>-1</sup>	1.8・10 <sup>-1</sup>	1.1・10 <sup>-1</sup>	1.8・10 <sup>-1</sup>	3.7・10 <sup>-3</sup>	3.4・10 <sup>-3</sup>
8.4・10 <sup>-3</sup>	2.2・10 <sup>-3</sup>	3.6・10 <sup>-3</sup>	7.1・10 <sup>-3</sup>	6.5・10 <sup>-3</sup>	6.0・10 <sup>-3</sup>	2.0・10 <sup>-3</sup>	9.2・10 <sup>-4</sup>

炭酸の除去

地下水の脱ガス化かまた炭酸水素塩と炭酸との結合かによつて起きる炭酸の喪失は、地下水に溶存するウランの多量喪失を誘導する (第34表参照)。この場合には、まず第一に、鉄の炭酸塩、次いでカルシウム炭酸塩、ウラン炭酸塩の沈殿が起きる。鉄とカルシウムとの炭酸塩の生成は、次の反応式により進行する。



第 34 表 CO<sub>2</sub> の喪失した場合に起きる水溶液からのウランの沈殿

CO <sub>2</sub> の溶存する端初水溶液 (g/l)	脱ガス化後 (遊離 CO <sub>2</sub> の除去)		CO <sub>2</sub> の溶存する端初水溶液 (g/l)	CaCl <sub>2</sub> が溶液に搬入後の状態 (CO <sub>2</sub> と結合して除去)	
	(g/l)	(%)		(g/l)	(%)
8.4・10 <sup>-3</sup>	6.9・10 <sup>-3</sup>	82.1	4.3・10 <sup>-2</sup>	3.0・10 <sup>-3</sup>	7.0
6.2・10 <sup>-3</sup>	4.9・10 <sup>-3</sup>	79.8	4.2・10 <sup>-2</sup>	3.0・10 <sup>-3</sup>	7.0
3.6・10 <sup>-2</sup>	2.6・10 <sup>-2</sup>	72.2	8.2・10 <sup>-2</sup>	6.0・10 <sup>-3</sup>	7.3
			5.5・10 <sup>-2</sup>	2.7・10 <sup>-3</sup>	5.8

上述データは溶存遊離 CO<sub>2</sub> の喪失は、溶液から比較的少量のウランの沈殿 (端初含有量の 17.9~27.8%) を誘導する。

硫化水素による水の飽和

地下水中における硫化水素は、硫酸塩の還元過程および生物化学的過程の生成物として濃集する。水の硫化水素含量は 2 g/l に達する。

資 料

還元環境では、硫化水素は、6価ウランの4価ウランへの変移を促進するとともに、4価ウランの沈殿が進行する（第35表参照）。硫化水素がウラン溶存溶液に作用する場合には、ウランは黒色粉状ウランの形態で沈殿する。（この場合、初めにウラニール硫化物(UO<sub>2</sub>S)が形成され、次でそれが加水分解されて黒色粉状ウランが生成される。）

第35表 H<sub>2</sub>S で飽和されている場合に起きる水溶液からのウランの沈殿

端 初 溶 液 (g/l)	ウ ラ ン 含 有 量	
	H <sub>2</sub> S 飽 和 後	
	(g/l)	(%)
8.2・10 <sup>-3</sup>	3.5・10 <sup>-4</sup>	4.2
1.0・10 <sup>-2</sup>	4.3・10 <sup>-4</sup>	4.3
6.7・10 <sup>-3</sup>	5.6・10 <sup>-4</sup>	8.3
5.7・10 <sup>-2</sup>	2.0・10 <sup>-3</sup>	3.5
2.8・10 <sup>-2</sup>	5.7・10 <sup>-4</sup>	2.0
1.3・10 <sup>-2</sup>	4.4・10 <sup>-4</sup>	3.4

現有のデータによれば、1つの鉱床では、水のウラン含有量は、その内に溶存する硫化水素の含有量に逆比例する（第2図参照）。

天然の放射水の型とその生成について

天然水中の放射性元素の含有量と放射水の種類原則について

最近、ウランの放射水地質学的探査と関連して、ラドンおよびラジウムばかりでなく、ウランの溶存量に関する多数の野外データが求められている。ある種の型の天然水では、上述の放射性元素の含有量は、著しい量に達し、そのため特定の水理地質学的様式かまたは、放射性元素の濃集度かによつて条件付けられるようになっている。

地表水は一般にいわれているように、地下水よりも放射性元素の含量が低い。例外は吐口のないある種の湖沼で、その水のウラン含有量は4・10<sup>-2</sup> g/l に達する。Vinogradovによれば、海水のラジウムの含量は、平均1・10<sup>-13</sup> g/l で、ウランの含量は2・10<sup>-6</sup> g/l であつて、ラジウムとウランとの間に平衡を欠くことを示している。

地下水中では、放射性元素の含有量は、著しい変動を蒙る。このような現象は、第一に、山嶽地帯では、放射性元素の含有量が多様で、かつ賦存形態が多様であること（放射性元素による岩石の汚染度、富化度がまちまちであること）。第二に、水の移度条件、速度およびその組成の特性（放射性元素の水への移行を条件付ける動水学的様式と水理地質学的環境）とによつて解釈できる。地下水の平均ラジウム含量は、4・10<sup>-12</sup> g/l、ウランの含量は7・10<sup>-6</sup> g/l であつて、その比率は6・10<sup>-7</sup> に相当している。岩石中における含有量はそれの1/100以下である。

放射元素の最大含量は、ウラン鉱床地帯の水（ウランの含量9・10<sup>-2</sup> g/l 以下、ラジウム9・10<sup>-9</sup> g/l 以下、ラドン50,000エマネション）で観察されている。強烈な水代謝（循環）条件下にあるウラン鉱床地帯外では、放射性元素の含量の増大が酸性火成岩、主として花崗岩地帯（ウラン3・10<sup>-5</sup> g/l 以下、ラジウム6・10<sup>-12</sup> g/l 以下、ラドン400エマネション以下）の水で認められている。さらに堆積岩、変成岩地帯（ウラン鉱床地帯外）の水でも、放射性元素の含量が増大する（ウラン6・10<sup>-6</sup> g/l 以下、ラジウム5・10<sup>-10</sup> g/l 以下、ラドン150エマネション以下）。水代謝のきわめて緩慢な地帯では、含放射性元素の含有量の増加は、規準放射性元素量を示す堆積岩中で知られている（ラジウム2・10<sup>-8</sup> g/l 以下、ウラン3・10<sup>-6</sup> g/l 以

下)。

そのほかあらゆる水型に対しては、岩石のウラン濃集の上昇と関連性のある水を除くと、放射性平衡は、ラジウムの側に普通乱されている。 $\left(\frac{Ra}{U} = 3.4 \cdot 10^{-7}\right)$  (第36表印刷省略)

さまざまな地下水型のウラン・ラジウム含有量と海水および岩石中におけるその含有量とを対比すれば、さまざまな型のウランおよびラジウムの濃度係数(富化または貧化)が決定できる。

水圏の総バランスでは、海水は90%以上占めている。したがって海水中の平均含有量( $U = 2 \cdot 10^{-7} \%$ ,  $Ra = 1 \cdot 10^{-14} \%$ )は、水圏のこの種元素類のクラーク値としてとられる。地殻のクラーク係数は、ウラン  $4 \cdot 10^{-4} \%$ 、ラジウム  $2 \cdot 10^{-10} \%$  に相当するから、水圏および岩圏のクラーク比は次のようになる。

$$r_u = \frac{\text{水圏のUクラーク値}}{\text{岩圏のUクラーク値}} = 5 \cdot 10^{-4},$$

$$r_{Ra} = \frac{\text{水圏の Ra クラーク値}}{\text{岩圏の Ra クラーク値}} = 5 \cdot 10^{-5}.$$

この値は、岩石および地殻の水のウラン・ラジウム分布係数である。この係数は、水圏では、ウランの貧化度は、岩圏に比較して、2,000倍、ラジウムの貧化度は20,000倍であることを示している。

クラーク値の地下水のラジウム・ウラン含有量、水圏岩圏のラジウム含量とを比較すると、次表に掲げられてあるある種の地下水型のウラン・ラジウム濃集係数が求められる。表中の  $n_u$ ,  $n_g$  は次の算出式によつた。

$$n_u = \frac{\text{与えられた水型のクラーク値}}{\text{岩圏のクラーク値}}$$

$$n_g = \frac{\text{与えられた水型のクラーク値}}{\text{水圏のクラーク値}}$$

第37表 さまざまな地下水型のウラン・ラジウムの濃集係数

水型	自然環境	$n_u$		$n_g$	
		U	Ra	U	Ra
堆積岩水	水代謝の激しい地帯	$n \cdot 10^{-3}$	$n \cdot 10^{-4}$	$n$	$n$
	水代謝の緩慢地帯	$n \cdot 10^{-4}$	$n \cdot 10^{-1}$	$n$	$n \cdot 10^{-3}$
酸性火成岩水	水代謝の激しい地帯 (風化帯水)	$n \cdot 10^{-3}$	$n \cdot 10^{-4}$	$n$	$n$
	水代謝の緩慢な地帯 (深所造構裂か水)	$n \cdot 10^{-3}$	$n \cdot 10^{-3}$	$n$	$n \cdot 10$
ウラン鉱床水	水代謝の激しい地帯 (酸化帯水)	$n \cdot 10^{-1}$	$n \cdot 10^{-1}$	$n \cdot 10^{-3}$	$n \cdot 10^{-3}$
ウランで富化された岩石水	水代謝の緩慢な地帯 (初成鉱床帯水、環元帯水)	$n \cdot 10^{-3}$	$n \cdot 10^{-1}$	$n$	$n \cdot 10^{-2}$

最近、全放射性水は、3グループに分けられる。

- 1) ラドン水 ラドンのエマネションの高い水
- 2) ラジウム水 ラジウム塩の含有量の高い水
- 3) ラドン・ラジウム水 ラジウムの含有量が高く、ラドン量が過剰で、超平衡状態にある。Iranov は1946年に上述の3群をさらに2群に分類している。
- 4) 熱水性鉱床のウラン・ラジウム水
- 5) 水成鉱床のウラン・ラジウム水

この分類は、放射能学的によく裏付けられているが、残念なことには、形式的な特性を帯び、放射性水の地質学的・水理地質学的・地球化学的生成条件をあまり反映していない。

Tokarev は 1948 年に初めて地下水の成因論的分類を行なった。

この分類法によれば、全放射性水は 3 群に分けられる。

- 1) ラドン系水
- 2) ラジウム系水
- 3) ウラン系水

以下で述べる放射性水の分類は、最近集められた多くの野外データを普遍化して既図式をさらに発展させたものである。

提案された分類の基礎は、2つの原則によつていものである。

- 1) 放射性元素による地下水の富化の可能性を決定する、岩石中における放射性元素の含有量および分布型態
- 2) 岩石および鉱石から放射性元素の天然水への移行の地球化学的條件を決定する  
岩石層圏の水理地質学的動態帯状性（化学的、ガス組成 電気化学的性質および水の温度様式）

水を放射性水に区分するためには、そのなかの放射性元素の限界含有量が次のようにとられている。

$$Rn > 50 \text{ エマネシヨシ}, Ra > 1 \cdot 10^{-11} \text{ g/l}; U > 3 \cdot 10^{-5} \text{ g/l}$$

放射水の生成図式（第 39 表省略）を検討するならば、同一流体力学的地帯においては、岩石型が異なつても、同一の放射性水型が形成される。しかしさまざまな流体力学地帯では、同一岩石類でも、放射学的組成の異なる水型が形成される。したがつて放射水型の合理的な分類は、それぞれの元素の含有量（量的）でなく、成因的指標に基づかなければならない。

この指標によれば、全放射水または“放射性水鉱床”<sup>註</sup>は次のように分類できるであろう。

1. 酸性火成岩塊における水代謝の緩慢な地帯およびその強烈な地帯と関連性のあるラジウム水  
分散状態のウランで富化された堆積岩および変成岩地域の高水代謝帯と関連性のある地表集水盆地のウラン水または地表水のウラン水
2. 分散状態のウランで富化された堆積岩・変成岩地域の緩慢な水代謝帯と関連性をもつウラン・ラジウム水
3. 熱水性および水成ウラン鉱床の酸化帯と関連性のあるウラン・ラドン水、まれには、ウラン・ラドン水型に副次的鉱物類で富化された火成岩地帯の高水代謝帯の放射水および火成岩の fracture 帯、または火成岩と堆積岩との接触地帯の高水代謝帯の水が入られる。
4. 熱水性鉱床・水成鉱床地帯と関連性のあるウラン・ラドン・ラジウム水
5. ウラン鉱床の初成、還元帯と関連性のあるラドン・ラジウム水

### ラドン水型

ラドン水型は、最も広域に分布する放射性グループで代表され、放射性元素の含有量の高い酸性火成岩の発達地域に生成される。この型の水は、褶曲（構造）setting の中央帯および縁端地帯の開かれた（露出）構造帯に本来形成され、地下水の強循環 intensive circulation（ときには緩循環）および酸化過程の発達によつて特徴付けられる。この種水型は、放射学的には、ラドンの含量 50 エマネシヨシ以上、ラジウムの含量  $1 \cdot 10^{-11}$  g/l、ウランの含量  $3 \cdot 10^{-5}$  g/l で

註) Orchinikov は“放射性水鉱床”について次のように規定している。放射性鉱床とは、それぞれの地質構造の発達範囲内に包有される特異な動力学的物体であつて、その固有な特質として、水理化学的地熱、気体条件関係および動力学とその様式によつて特徴付けられる。

特色付けられる。

この水型の地熱 (geothermal), ガス特性, 水理化学的特質, 水の循環等の3群によつて分けられる。

- 1) 風化皮殻帯水 (erosion crust water)
- 2) 造構裂か水
- 3) エマネション捕集 (emanation collector) 水