

J A E R I - M  
93-023

ナチュラルアナログ研究：  
鉍物の変質とウランの移行

1993年2月

村上 隆

JAERI-Mレポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の間合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し込みください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費領布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokaimura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1993

編集兼発行 日本原子力研究所  
印刷 ニッセイエプロ株式会社

ナチュラルアナログ研究：鉍物の変質とウランの移行

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部

村上 隆

(1993年1月25日受理)

オーストラリア北部のクンガラウラン鉍床をサイトに、1987年から1992年までの5ヶ年  
間、アリゲーターリバーズアナログプロジェクト国際協力研究が行われた。本報告はその間、  
“鉍物の変質とウランの移行”に関する公刊出版物をレビューしたものである。鉍物の変質がウ  
ランの移行にどのような影響を与えているかを岩石の分析及びモデル計算より示した。

Natural Analogue Studies: Mineral Alteration and  
Uranium Migration

Takashi MURAKAMI

Department of Environmental Safety Research  
Tokai Research Establishment  
Japan Atomic Energy Research Institute  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received January 25, 1993)

The Alligator Rivers Analogue Project, an international project, was carried out from 1987 to 1992 using the Koongarra uranium ore deposit in northern Australia as a site. This report reviews the papers, published during that period, concerning "mineral alteration and uranium migration". The analyses of rocks and model calculations established that the uranium migration has been affected by the mineral alteration.

Keywords: Natural Analogue, Uranium Deposit, Mineral Alteration,  
Uranium Migration, Nuclide Migration

目 次

1. 緒 言 .....	1
2. 研究の目的 .....	1
3. 研究の内容 .....	2
4. 研究の成果 .....	2
4.1 緑泥石の風化過程とその速度 .....	2
4.1.1 緑泥石の風化過程 .....	2
4.1.2 緑泥石の風化速度 .....	3
4.2 緑泥石及びその風化生成物へのウランの分布 .....	4
4.3 クンガラウラン鉱床周辺でのウラン再分布のモデル計算 .....	5
5. 結 語 .....	6
謝 辞 .....	7
文 献 .....	7

Contents

1. Introduction .....	1
2. Aims of Research Project .....	1
3. Contents of Research Project .....	2
4. Results of Research Project .....	2
4.1 Weathering Process of Chlorite and its Rate .....	2
4.1.1 Weathering Process .....	2
4.1.2 Rate of Chlorite Weathering .....	3
4.2 Uranium Distribution between Chlorite and its Weathering Products .....	4
4.3 Modelling of Uranium Redistribution in the Vicinity of the Koongarra Ore Deposit .....	5
5. Conclusions .....	6
Acknowledgements .....	7
References .....	7

## 1. 緒言

アリゲーターリバーズアナログプロジェクト(Alligator Rivers Analogue Project, ARAP)は1987年から1992年までの5ケ年間、OECD/NEA主催の国際協力研究として行われた。オーストラリア北部のクンガラ(Koongarra)ウラン鉱床をサイトとし、ここ約百万年間でのウラン鉱床周辺におけるウランの移行挙動が、様々な分野の専門家により、様々な角度から調べられた。プロジェクトとしての研究項目は

- 1) 核種移行のモデル化
- 2) クンガラの水文地質学
- 3) 固相研究
- 4) 地下水研究
- 5) FP及びTRU研究

であった。物理学、化学、地質学の専門家をそろえた日本原子力研究所のナチュラルアナログ研究グループはこのうちの3)を主に担当した。固相、即ち、岩石鉱物から推定されるウランの移行挙動を野外実験、室内実験、モデリングにより研究した。この成果は文献(1)で詳述されている。ARAP全体の成果に関しては1993年に発刊される全16巻のARAP報告書を参照されたい。

## 2. 研究の目的<sup>1</sup>

放射性廃棄物処分地周辺では、放射性核種の運搬媒体たる地下水が岩石の割れ目を通過することにより、地質学的時間(数千年-数百万年)にわたり、母岩と地下水の反応が進行し、母岩が変質することが予想される。変質により母岩中の一次鉱物から準安定な粘土鉱物(複数)が生成し、それらは継続的に相変化する。母岩の変質は核種の移行経路(反応経路)の変化を意味する。従って、放射性核種が処分地から漏出した場合、それらは場所により、またさらに重要なことは、時間により、反応する対象鉱物が増える。つまり、核種移行の長期予測には鉱物の変質の過程、機構、速度の理解が必要となる。ナチュラルアナログ研究を利用し、地球の過去の歴史を定量化し、未来を予測することで、放射性廃棄物処分

## 1. 緒言

アリゲーターリバーズアナログプロジェクト(Alligator Rivers Analogue Project, ARAP)は1987年から1992年までの5ケ年間、OECD/NEA主催の国際協力研究として行われた。オーストラリア北部のクンガラ(Koongarra)ウラン鉱床をサイトとし、ここ約百万年間でのウラン鉱床周辺におけるウランの移行挙動が、様々な分野の専門家により、様々な角度から調べられた。プロジェクトとしての研究項目は

- 1) 核種移行のモデル化
- 2) クンガラの水文地質学
- 3) 固相研究
- 4) 地下水研究
- 5) FP及びTRU研究

であった。物理学、化学、地質学の専門家をそろえた日本原子力研究所のナチュラルアナログ研究グループはこのうちの3)を主に担当した。固相、即ち、岩石鉱物から推定されるウランの移行挙動を野外実験、室内実験、モデリングにより研究した。この成果は文献(1)で詳述されている。ARAP全体の成果に関しては1993年に発刊される全16巻のARAP報告書を参照されたい。

## 2. 研究の目的<sup>1</sup>

放射性廃棄物処分地周辺では、放射性核種の運搬媒体たる地下水が岩石の割れ目を通過することにより、地質学的時間(数千年-数百万年)にわたり、母岩と地下水の反応が進行し、母岩が変質することが予想される。変質により母岩中の一次鉱物から準安定な粘土鉱物(複数)が生成し、それらは継続的に相変化する。母岩の変質は核種の移行経路(反応経路)の変化を意味する。従って、放射性核種が処分地から漏出した場合、それらは場所により、またさらに重要なことは、時間により、反応する対象鉱物が増える。つまり、核種移行の長期予測には鉱物の変質の過程、機構、速度の理解が必要となる。ナチュラルアナログ研究を利用し、地球の過去の歴史を定量化し、未来を予測することで、放射性廃棄物処分

の安全評価をより確実にできる可能性がある。この概念に基づき、本小論ではオーストラリア、クンガラウラン鉱床近辺 (Fig.1 左図) において、鉱床から流れ出たウランの再分布に、母岩である緑泥石石英片岩の変質がどのように影響しているかを述べる。

### 3. 研究の内容

クンガラウラン鉱床は約20億年前に形成された。地表近くにあった一次鉱床の一部は1-3百万年前より地下水により、徐々に流された。その一部は現在の二次鉱床を形成している (Fig.1 左図)。この地下水は同時に母岩である緑泥石石英片岩を風化した。石英は風化に対し、安定であるが、緑泥石は風化により変質を受ける。ウランの再分布と鉱物の変質の関係を調べるための我々の研究内容は以下のものであった。

- 1) 緑泥石の風化過程とその速度
- 2) 緑泥石及びその風化生成物へのウランの分布
- 3) クンガラウラン鉱床周辺でのウラン再分布のモデル計算

研究成果をこの項目に沿って、次項で述べる。

### 4. 研究の成果

#### 4.1 緑泥石の風化過程とその速度

##### 4.1.1 緑泥石の風化過程<sup>1,2,3,4</sup>

クンガラウラン鉱床近辺では地表より25m以浅までは風化帯 (Weathered zone) と呼ばれ、緑泥石が変質を受けている (Fig.1 左図)。それより深い所は未風化帯 (Unweathered zone) と呼ばれ、緑泥石は風化されてない。25m付近は遷移帯 (Transition zone) と呼ばれ、緑泥石に変化が見られるものの完全には風化されていない所が存在する。風化は地表面に対して、ほぼ平行に進行している。ただし、地下水の下流側になるにつれ、風化帯の厚さは漸減する。緑泥石の変質の深さ方



の安全評価をより確実にできる可能性がある。この概念に基づき、本小論ではオーストラリア、クンガラウラン鉱床近辺 (Fig.1 左図) において、鉱床から流れ出たウランの再分布に、母岩である緑泥石石英片岩の変質がどのように影響しているかを述べる。

### 3. 研究の内容

クンガラウラン鉱床は約20億年前に形成された。地表近くにあった一次鉱床の一部は1-3百万年前より地下水により、徐々に流された。その一部は現在の二次鉱床を形成している (Fig.1 左図)。この地下水は同時に母岩である緑泥石石英片岩を風化した。石英は風化に対し、安定であるが、緑泥石は風化により変質を受ける。ウランの再分布と鉱物の変質の関係を調べるための我々の研究内容は以下のものであった。

- 1) 緑泥石の風化過程とその速度
- 2) 緑泥石及びその風化生成物へのウランの分布
- 3) クンガラウラン鉱床周辺でのウラン再分布のモデル計算

研究成果をこの項目に沿って、次項で述べる。

### 4. 研究の成果

#### 4.1 緑泥石の風化過程とその速度

##### 4.1.1 緑泥石の風化過程<sup>1,2,3,4</sup>

クンガラウラン鉱床近辺では地表より25m以浅までは風化帯 (Weathered zone) と呼ばれ、緑泥石が変質を受けている (Fig.1 左図)。それより深い所は未風化帯 (Unweathered zone) と呼ばれ、緑泥石は風化されてない。25m付近は遷移帯 (Transition zone) と呼ばれ、緑泥石に変化が見られるものの完全には風化されていない所が存在する。風化は地表面に対して、ほぼ平行に進行している。ただし、地下水の下流側になるにつれ、風化帯の厚さは漸減する。緑泥石の変質の深さ方

の安全評価をより確実にできる可能性がある。この概念に基づき、本小論ではオーストラリア、クンガラウラン鉱床近辺 (Fig. 1 左図) において、鉱床から流れ出たウランの再分布に、母岩である緑泥石石英片岩の変質がどのように影響しているかを述べる。

### 3. 研究の内容

クンガラウラン鉱床は約 20 億年前に形成された。地表近くにあった一次鉱床の一部は 1 - 3 百万年前より地下水により、徐々に流された。その一部は現在の二次鉱床を形成している (Fig. 1 左図)。この地下水は同時に母岩である緑泥石石英片岩を風化した。石英は風化に対し、安定であるが、緑泥石は風化により変質を受ける。ウランの再分布と鉱物の変質の関係を調べるための我々の研究内容は以下のものであった。

- 1) 緑泥石の風化過程とその速度
- 2) 緑泥石及びその風化生成物へのウランの分布
- 3) クンガラウラン鉱床周辺でのウラン再分布のモデル計算

研究成果をこの項目に沿って、次項で述べる。

### 4. 研究の成果

#### 4.1 緑泥石の風化過程とその速度

##### 4.1.1 緑泥石の風化過程<sup>1,2,3,4</sup>

クンガラウラン鉱床近辺では地表より 25 m 以浅までは風化帯 (Weathered zone) と呼ばれ、緑泥石が変質を受けている (Fig. 1 左図)。それより深い所は未風化帯 (Unweathered zone) と呼ばれ、緑泥石は風化されてない。25 m 付近は遷移帯 (Transition zone) と呼ばれ、緑泥石に変化が見られるものの完全には風化されていない所が存在する。風化は地表面に対して、ほぼ平行に進行している。ただし、地下水の下流側になるにつれ、風化帯の厚さは漸減する。緑泥石の変質の深さ方

向での進行をX線回折法により調べた (Fig. 2)。1.4 nmと0.7 nmの位置にある回折ピークの変化より緑泥石の変質の進行の概要がわかる。他の様々な分析手法も用い、この変化は緑泥石→緑泥石/バーミキュライト混合層鉱物→バーミキュライト→(スメクタイト)→カオリナイトであることがわかった。これらの鉱物はすべて層状ケイ酸塩鉱物と呼ばれる一群に属するが、物理化学的性質は鉱物により異なる。従って、対象鉱物の変化により、ウランの移行も変化してくることは当然、予想される。

上述からわかるように緑泥石の変質の主要過程は緑泥石→バーミキュライト→カオリナイトと書ける。この過程における化学組成の変化を固相の分析から求めた (Fig. 3)。緑泥石の変質に伴い、上記鉱物以外に鉄、マグネシウム、アルミニウムが排出される。このうち、鉄は鉄鉱物として(フェリハイデライト、針鉄鉱、赤鉄鉱)残るが、マグネシウム、アルミニウムは反応場所から除かれる。このような元素の系からの除去に伴い、岩石の密度は母岩で $2.76\text{g/cm}^3$ であったものが風化帯の岩石では $2.19\text{g/cm}^3$ に減少する。密度の減少による岩石中の間隙の増加で、水が岩石中をより通りやすい環境を作る。

地下水の岩石鉱物中の通過経路を鉄の酸化及び鉄鉱物の生成から、野外観察から透過電子顕微鏡(約0.5 nmの分解能)に至るオーダーで、推定した。岩石の割れ目(Fracture)は地下水の優先経路であり、割れ目に沿い変質が優先的に起こり、岩石全体の変質はそれより数m遅れる(なお、未風化帯と完全に風化した地帯は深さで約5 mの差がある)。水の優先経路は割れ目以外には、岩石の片理組織沿い(数mmのオーダー)、鉱物粒界(0.1 mmのオーダー)、緑泥石とバーミキュライトの層状構造の層間(ミクロンオーダー)、厚さ10-100 nm、長さ100-1000nmの短冊微粒子の集合体である緑泥石粒子の構成微粒子間(ナノメートルオーダー)に認められた。

#### 4.1.2 緑泥石の風化速度<sup>1,4</sup>

緑泥石の風化速度は後述するウランの移行モデル計算に必要なパラメーターである。これは岩石中の各鉱物の存在割合(鉱物組成)の時間変化として表現され

る。Fig. 3で示した緑泥石の変質過程及びこの過程における化学組成の変化に従い、下記に示すような方法で鉱物組成の時間変化を求めた。

クンガラにおける風化は1-3百万年前から始まったと考えられている。我々は2百万年を仮定した。風化は地表から一定の速度で進行したと考えた (Fig. 4)。緑泥石の変質反応を一次の不可逆反応と考えると、

1緑泥石 →

1バーミキュライト + 1.66FeOOH →

0.88カオリナイト + 2.61FeOOHとなる。

これらに基づいて、鉱物組成の時間変化を数式化した。X線回折、岩石の化学分析、密度測定より求めた鉱物組成観測値に計算値をフィットさせ、鉱物組成の時間変化を最適化した。計算結果をFig. 5に示す。時間0年以前は未風化帯に、時間0-40万年は遷移帯に、時間40万年以降は風化帯に、それぞれ対応する。この結果を後述するウラン移行モデル計算結果に使った。また、計算の結果、速度定数に時間依存性があることがわかった。この速度定数の時間依存性は反応に固有なものでなく、風化の進行が、前述したように割れ目、片理等を介在するため時間とともに増大することによる。

#### 4.2 緑泥石及びその風化生成物へのウランの分布<sup>1,5,6,7,8,9</sup>

緑泥石とその風化生成物の存在比とウラン濃度の深さ方向のマクロな関係をFig. 1の右側に示してある。鉱物の変質の程度にウラン濃度の変化が対応しているのがわかる (なお、10m以浅は物理的風化が強くなるので今回は考慮しなかった)。ただ、この対応を鉱物の存在比の変化のみから説明するには無理がある。後で示すように緑泥石、バーミキュライト、カオリナイトへのウラン分配係数はオーダー的には差はない (Table 1)。変質の副産物を電子顕微鏡で調べると変質とともに鉄鉱物が析出してくることがわかった (Fig. 6)。初めミクロンオーダーで鉱物内に存在していたものが、鉱物粒界に析出し、さらに鉄鉱物の脈を形成する。鉄鉱物はウラン分配係数が大きく (Table 1)、変質の進行とともに量

的にも増加する (Fig. 5)。層状ケイ酸塩鉱物の変化とウラン濃度の変化の見かけの対応は変質の進行による鉄鉱物の増加が主因であろう。

各鉱物に含まれるウラン濃度は、各鉱物を段階的に溶解する連続抽出法で測定した。風化帯では、一般的に言えば、結晶質の鉄鉱物（針鉄鉱と赤鉄鉱）に約50%、非晶質の鉄鉱物（フェリハイドライト）と粘土鉱物にそれぞれ約10%、ウランが分配している。このようにウランは鉄鉱物と密接に結びついている。

鉱物の変質とウランの関係をmmからcmのオーダーで調べた。アルファトラック法を用い、光学顕微鏡により岩石の鉱物学的組織とそれに対応するウラン分布密度（フィルム上にエッチピットとして表現される）を比較した。変質してない鉱物ではウラン（正確にはアルファ線放射粒子）の分布密度は低いが、変質度に比例してウランの密度が高くなる。前述したように岩石の割れ目等は地下水の優先経路となっている。地下水の優先経路がある場合、鉱物の変質は不均一に起こる。このような場合、ウランの分布密度は数mm或は数cmの空間距離の差で大きく異なる (Fig. 7)。同一鉱物粒子でも変質に極端な不均一性があるような場合、同じ鉱物粒内で数十ミクロンしか距離がなくても、その部分に変質しているかないかでウランの分布密度が異なる。連続抽出法の結果から考えると、変質に伴う鉄鉱物の増加とともにウラン濃度が高くなったためと考えられる。

鉱物とウランの分布の関係をさらにミクロンオーダーで見た。可視分光 (Fig. 8) の結果、サーレアイト（ウラニルリン酸塩鉱物の一種）と鉄鉱物の共沈及び収着が、鉱床下流域でのウランの鉱物への主な固定化機構であることがわかった。これは組成分析及びウラン鉱物の産出状況からも裏付けられた。後述するようにウランの移行予測は鉄鉱物とウランの関係だけからでは困難で、鉱物の変質全体を考える必要がある。

#### 4.3 クンガラウラン鉱床周辺でのウラン再分布のモデル計算<sup>1,5,10,11,12,13</sup>

ウランの移行は岩石の空隙率及びウラン分配係数の時間変化に密接に関連するので、これらを鉱物の変質の効果として、ウランの移行モデルに取り入れた。鉱物の変質のデータよりこれらのパラメーターは求められる。まず、各鉱物へのウラン分配係数及び各鉱物の密度を知る必要があるが、これは独立に求められる

(Table 1 及び 2)。岩石中の鉱物組成の時間変化はすでに述べた。Fig. 6 に示した鉱物組成の時間変化を考慮した各種鉱物の密度及び各種鉱物へのウラン分配係数を基に岩石の空隙率（初期値は観測値より求めた）、分配係数の時間変化を計算した（Fig. 9、10）。鉱物の変質の影響が空隙率、分配係数の時間変化にはっきり表れている。この二つのパラメーターの時間変化を考慮したウラン濃度の計算値は観測値ときわめてよく一致する（Fig. 11）。また、計算に使用したダグジー速度、地下水のウラン初期濃度も現在の観測値と矛盾せず、ウランの移行に鉱物の変質が影響していたことを実証した。比較のために、この二つのパラメーターの時間変化を考慮しないウラン濃度を計算したが、観測値と合わなかった。このような手法は将来のウランの濃度分布の予測の可能性を示唆している。

ウランの各鉱物への分配への鉱物の変質の影響をモデル化した。この結果、ウランが観測されるような鉱物へ分配されるためには、バーミキュライト、カオリナイトへウランの一部が固定される必要があることがわかった（Fig. 12）。従って、ウランの鉄鉱物への濃集の量からウランの鉄鉱物への収着のみ考慮しただけでは、ウランの移行は予測できない。

## 5. 結語

鉱物の変質の影響がウランの移行にどのような影響を与えているかを岩石の様々な分析及びモデル計算より示した。このような手法はウランの移行を予測する一手法として有効であるばかりか、ナチュラルアナログ研究をいかに実際の核種移行の予測に適用するかのデモンストレーションともなる。

鉱物の変質に示されるような地球化学的過程は、今後、核種移行のモデルで十分に考慮されるべきパラメーターである。さらに地球化学的過程そのものが時間を内包するので、移行の長期予測の観点からも過程の速度論的検討から得られた結果は重要となる。ナチュラルアナログ研究としては、地球化学的過程の理解と得られた”時間”を核種移行モデルへどのように反映させるかが課題である。

数十万年—数百万年のオーダーの自然現象を定量的に取り扱うことは、残念ながら現在のどの科学の分野も不得意としている。だからこそ、放射性廃棄物処分で課せられる数十万年—数百万年のオーダーの地球科学的現象の解明とその定量

(Table 1 及び 2)。岩石中の鉍物組成の時間変化はすでに述べた。Fig. 6 に示した鉍物組成の時間変化を考慮した各種鉍物の密度及び各種鉍物へのウラン分配係数を基に岩石の空隙率（初期値は観測値より求めた）、分配係数の時間変化を計算した（Fig. 9、10）。鉍物の変質の影響が空隙率、分配係数の時間変化にはっきり表れている。この二つのパラメーターの時間変化を考慮したウラン濃度の計算値は観測値ときわめてよく一致する（Fig. 11）。また、計算に使用したダグジー速度、地下水のウラン初期濃度も現在の観測値と矛盾せず、ウランの移行に鉍物の変質が影響していたことを実証した。比較のために、この二つのパラメーターの時間変化を考慮しないウラン濃度を計算したが、観測値と合わなかった。このような手法は将来のウランの濃度分布の予測の可能性を示唆している。

ウランの各鉍物への分配への鉍物の変質の影響をモデル化した。この結果、ウランが観測されるような鉍物へ分配されるためには、バーミキュライト、カオリナイトへウランの一部が固定される必要があることがわかった（Fig. 12）。従って、ウランの鉄鉍物への濃集の量からウランの鉄鉍物への収着のみ考慮しただけでは、ウランの移行は予測できない。

## 5. 結語

鉍物の変質の影響がウランの移行にどのような影響を与えているかを岩石の様々な分析及びモデル計算より示した。このような手法はウランの移行を予測する一手法として有効であるばかりか、ナチュラルアナログ研究をいかに実際の核種移行の予測に適用するかのデモンストレーションともなる。

鉍物の変質に示されるような地球化学的過程は、今後、核種移行のモデルで十分に考慮されるべきパラメーターである。さらに地球化学的過程そのものが時間を内包するので、移行の長期予測の観点からも過程の速度論的検討から得られた結果は重要となる。ナチュラルアナログ研究としては、地球化学的過程の理解と得られた”時間”を核種移行モデルへどのように反映させるかが課題である。

数十万年—数百万年のオーダーの自然現象を定量的に取り扱うことは、残念ながら現在のどの科学の分野も不得意としている。だからこそ、放射性廃棄物処分で課せられる数十万年—数百万年のオーダーの地球科学的現象の解明とその定量

化は新しい科学としてのチャレンジとなるはずである。

謝辞

本報告は多くの研究協力者・共同研究者により始めて実現可能であった。感謝の意を込め、氏名を下に記す。和達嘉樹、小林義威、妹尾宗明、磯部博志、大貫敏彦、柳瀬信之、佐藤努、木村英雄、関根敬一、上野隆、永野哲志（以上原研）、中嶋悟（東大）、R. Edis（Australian Nuclear Science and Technology Organisation）、A. J. Koppi、D. A. Klessa、C. Conoley（University of Sydney）、R. C. Ewing（University of New Mexico）

文献

- (1) T. Murakami, H. Isobe, T. Ohnuki, N. Yanase, T. Sato, H. Kimura, K. Sekine, R. Edis, A. J. Koppi, D. A. Klessa, C. Conoley, T. Nagano, S. Nakashima and R. C. Ewing: Alligator Rivers Analogue Project Final Report Vol. 9 "Weathering and its effects on uranium redistribution", DOE/HMIP/PR/92/079, SKI TR 92:20-9 (in press) (1993).
- (2) Murakami, T., Isobe, H., Edis, R.: Effects of chlorite alteration on uranium redistribution, Scientific Basis for Nuclear Waste Management XIV, Abrajano, Jr., T. & Lawrence, H. J. (Eds.), The Materials Research Society, Pittsburgh, PA, 741-748 (1991).
- (3) Murakami, T., Isobe, H.: Alteration of chlorite and its relevance to the uranium redistribution in the vicinity of the ore deposit at Koongarra, Northern Territory, Australia, Proceedings of GEOVAL-1990, Symposium on Validation of Geosphere Flow and Transport Models, OECD, Paris, 458-465 (1991).
- (4) Murakami, T.: Mineral alteration and uranium-mineral associations, Proceedings of EUR series (in press) (1993).
- (5) Ohnuki, T., Murakami, T., Sekine, K., Yanase, N., Isobe, H., Kobayashi, Y.: Migration behavior of uranium and thorium series nuclides in altered quartz-chlorite



化は新しい科学としてのチャレンジとなるはずである。

#### 謝辞

本報告は多くの研究協力者・共同研究者により始めて実現可能であった。感謝の意を込め、氏名を下に記す。和達嘉樹、小林義威、妹尾宗明、磯部博志、大貫敏彦、柳瀬信之、佐藤努、木村英雄、関根敬一、上野隆、永野哲志（以上原研）、中嶋悟（東大）、R. Edis（Australian Nuclear Science and Technology Organisation）、A. J. Koppi、D. A. Klessa、C. Conoley（University of Sydney）、R. C. Ewing（University of New Mexico）

#### 文献

- (1) T. Murakami, H. Isobe, T. Ohnuki, N. Yanase, T. Sato, H. Kimura, K. Sekine, R. Edis, A. J. Koppi, D. A. Klessa, C. Conoley, T. Nagano, S. Nakashima and R. C. Ewing: Alligator Rivers Analogue Project Final Report Vol. 9 "Weathering and its effects on uranium redistribution", DOE/HMIP/PR/92/079, SKI TR 92:20-9 (in press) (1993).
- (2) Murakami, T., Isobe, H., Edis, R.: Effects of chlorite alteration on uranium redistribution, Scientific Basis for Nuclear Waste Management XIV, Abrajano, Jr., T. & Lawrence, H. J. (Eds.), The Materials Research Society, Pittsburgh, PA, 741-748 (1991).
- (3) Murakami, T., Isobe, H.: Alteration of chlorite and its relevance to the uranium redistribution in the vicinity of the ore deposit at Koongarra, Northern Territory, Australia, Proceedings of GEOVAL-1990, Symposium on Validation of Geosphere Flow and Transport Models, OECD, Paris, 458-465 (1991).
- (4) Murakami, T.: Mineral alteration and uranium-mineral associations, Proceedings of EUR series (in press) (1993).
- (5) Ohnuki, T., Murakami, T., Sekine, K., Yanase, N., Isobe, H., Kobayashi, Y.: Migration behavior of uranium and thorium series nuclides in altered quartz-chlorite

化は新しい科学としてのチャレンジとなるはずである。

#### 謝辞

本報告は多くの研究協力者・共同研究者により始めて実現可能であった。感謝の意を込め、氏名を下に記す。和達嘉樹、小林義威、妹尾宗明、磯部博志、大貫敏彦、柳瀬信之、佐藤努、木村英雄、関根敬一、上野隆、永野哲志（以上原研）、中嶋悟（東大）、R. Edis（Australian Nuclear Science and Technology Organisation）、A. J. Koppi、D. A. Klessa、C. Conoley（University of Sydney）、R. C. Ewing（University of New Mexico）

#### 文献

- (1) T. Murakami, H. Isobe, T. Ohnuki, N. Yanase, T. Sato, H. Kimura, K. Sekine, R. Edis, A. J. Koppi, D. A. Klessa, C. Conoley, T. Nagano, S. Nakashima and R. C. Ewing: Alligator Rivers Analogue Project Final Report Vol. 9 "Weathering and its effects on uranium redistribution", DOE/HMIP/PR/92/079, SKI TR 92:20-9 (in press) (1993).
- (2) Murakami, T., Isobe, H., Edis, R.: Effects of chlorite alteration on uranium redistribution, Scientific Basis for Nuclear Waste Management XIV, Abrajano, Jr., T. & Lawrence, H. J. (Eds.), The Materials Research Society, Pittsburgh, PA, 741-748 (1991).
- (3) Murakami, T., Isobe, H.: Alteration of chlorite and its relevance to the uranium redistribution in the vicinity of the ore deposit at Koongarra, Northern Territory, Australia, Proceedings of GEOVAL-1990, Symposium on Validation of Geosphere Flow and Transport Models, OECD, Paris, 458-465 (1991).
- (4) Murakami, T.: Mineral alteration and uranium-mineral associations, Proceedings of EUR series (in press) (1993).
- (5) Ohnuki, T., Murakami, T., Sekine, K., Yanase, N., Isobe, H., Kobayashi, Y.: Migration behavior of uranium and thorium series nuclides in altered quartz-chlorite

- schist, in Scientific Basis for Nuclear Waste Management XIII, Oversby, V. A. & Brown, P. W. (Eds.), The Materials Research Society, Pittsburgh, PA, 607-614 (1990).
- (6) Yanase, N., Nightingale, T., Payne, T., Duerden, P.: Uranium distribution in mineral phases of rock by sequential extraction procedure, *Radiochemica Acta* 52/53, 387-393 (1991).
- (7) Yanase, N., Sekine, K., Murakami, T., Isobe, H., Ohnuki, T., Kobayashi, Y.; Natural analogue at the Koongarra uranium deposit, Australia - Distribution of uranium in Rock, The 3rd International Symposium on Advanced Nuclear Energy Research - Global Environment and Nuclear Energy, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai, 278-282 (1991).
- (8) Isobe, H., Murakami, T., Ewing, R. C.: Alteration of uranium minerals in the Koongarra deposit, Australia: Unweathered zone, *J. Nucl. Mater.* 190, 174-187 (1992).
- (9) Murakami, T., Isobe, H., Nagano, T., Nakashima, S.: Uranium redistribution and fixation during chlorite alteration at Koongarra, Australia, Scientific Basis for Nuclear Waste Management XV, Sombret, C. G. (Ed.), The Materials Research Society, Pittsburgh, PA, 473-480 (1992).
- (10) Ohnuki, T., Watanabe, S., Murakami, T.: Study on role of Th-234 in uranium series nuclides migration, Scientific Basis for Nuclear Waste Management XIV, Abrajano, Jr., T. & Lawrence, H. J. (Eds.), The Materials Research Society, Pittsburgh, PA, 733-740 (1991).
- (11) Murakami, T., Kimura, H.: A modelling study of the effect of rock alteration on the redistribution of uranium, in preparation for Scientific Basis for Nuclear Waste Management XVI, Interrante, C. G., Pabalan, R. T. (Eds.), The Materials Research Society, Pittsburgh, PA (in press) (1993).
- (12) Ohnuki, T., Murakami, T., Yanase, N.: A modelling study on the fractionation of uranium between minerals by rock alteration, in preparation for Scientific Basis for Nuclear Waste Management XVI, Interrante, C. G., Pabalan, R. T. (Eds.), The Materials Research Society, Pittsburgh, PA (in press) (1993).

- (13) Ohnishi, T., Watanabe, S.: Modelling study of effects of a short lived radionuclide fixation on decay chain radionuclides migration, J. Nucl. Sci. Technol. (in press) (1993).

Table 1 Distribution coefficient ( $K_d$ ).

Mineral	$K_d$ (ml/g) U	Conditions	
		pH	Temp.
Kaolinite	$4.1 \times 10^3$	6.2	20°C
Chlorite	$4.5 \times 10^3$	6.7	20°C
Vermiculite	$5.8 \times 10^3$	7.2	20°C
Goethite	$3.0 \times 10^5$	6.6	20°C

Table 2 Densities ( $\text{g}/\text{cm}^3$ ) of minerals.

Mineral	Density ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )
Chlorite	2.90*
Vermiculite	2.756
Kaolinite	2.62
Ferrihydrite	3.96
Goethite	4.28
Quartz	2.655

\* Average of clinocllore ( $2.70 \text{ g}/\text{cm}^3$ ) and chamosite ( $3.19 \text{ g}/\text{cm}^3$ ).

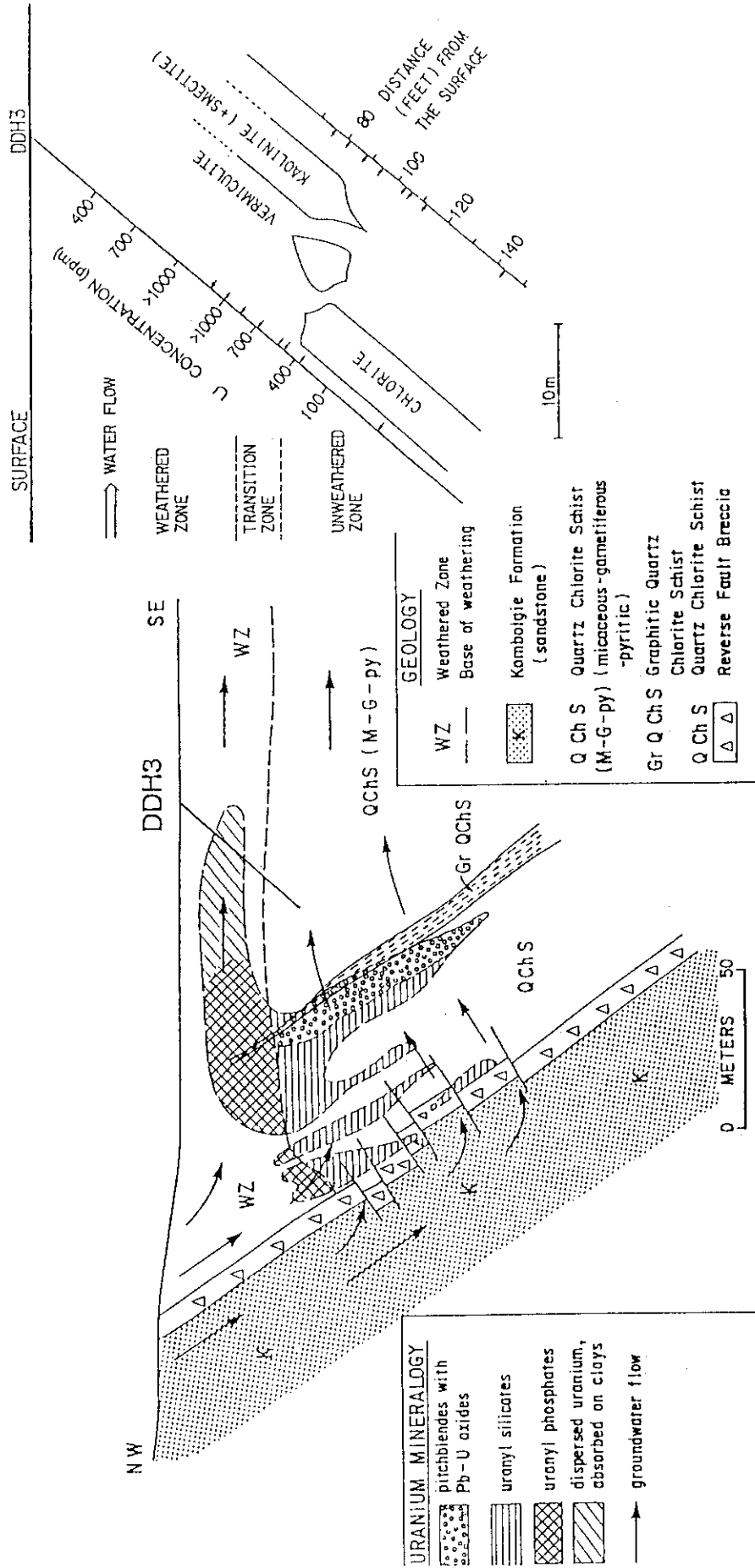


Fig.1 Cross section in the vicinity of the Koongarra ore deposit (left) and comparison of mineral composition and uranium concentration along the DDH3 core (right).

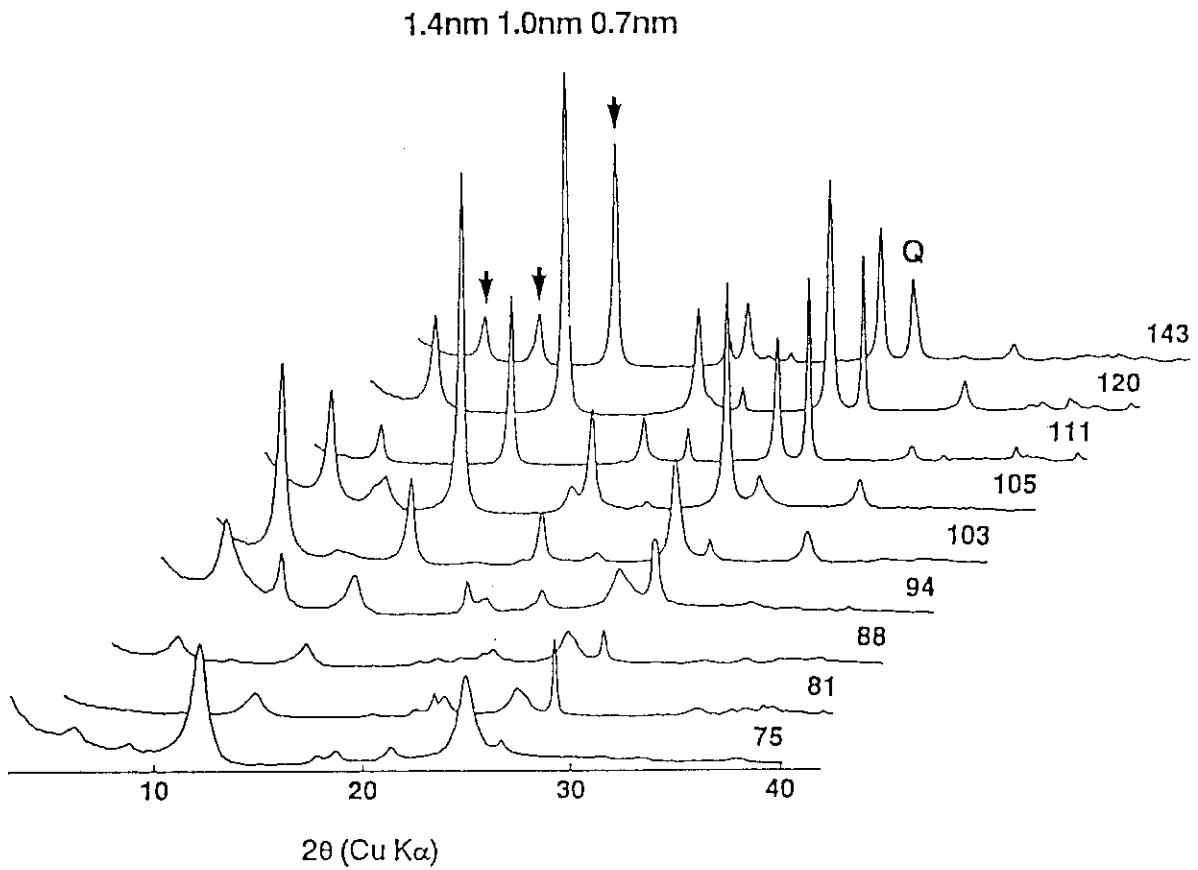


Fig.2 Variation of X-ray diffraction patterns with depth. The figures on the right-hand side indicate depths along the core in feet.

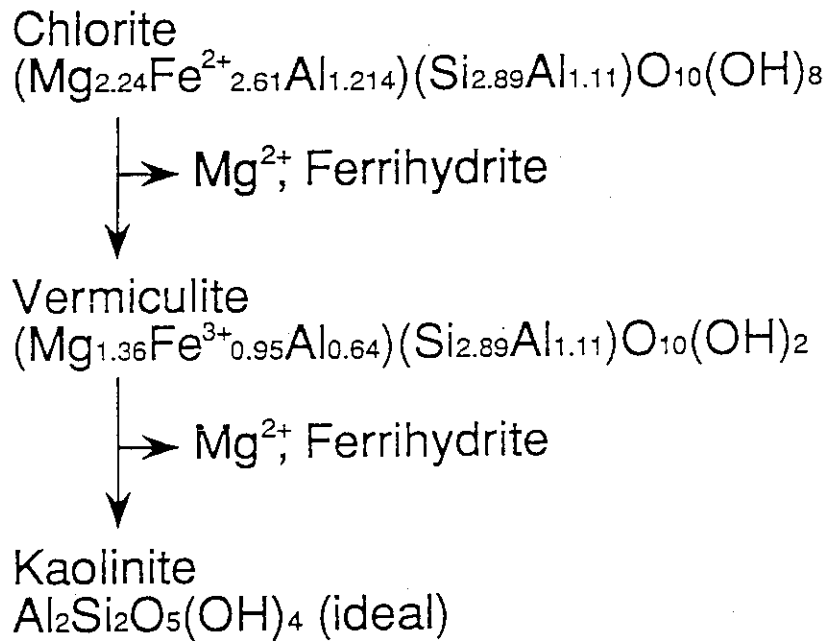


Fig.3 Weathering process of chlorite and average compositions of minerals.

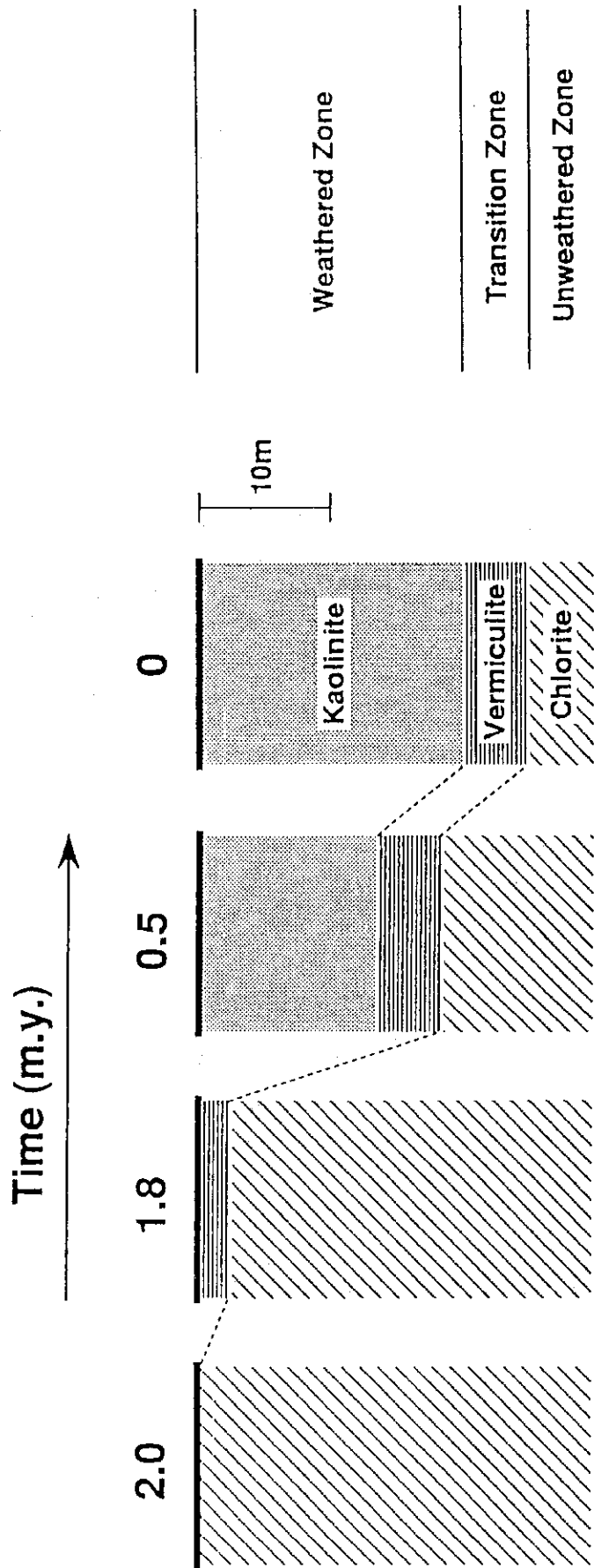


Fig.4 Schematic of weathering process at Koongarra.



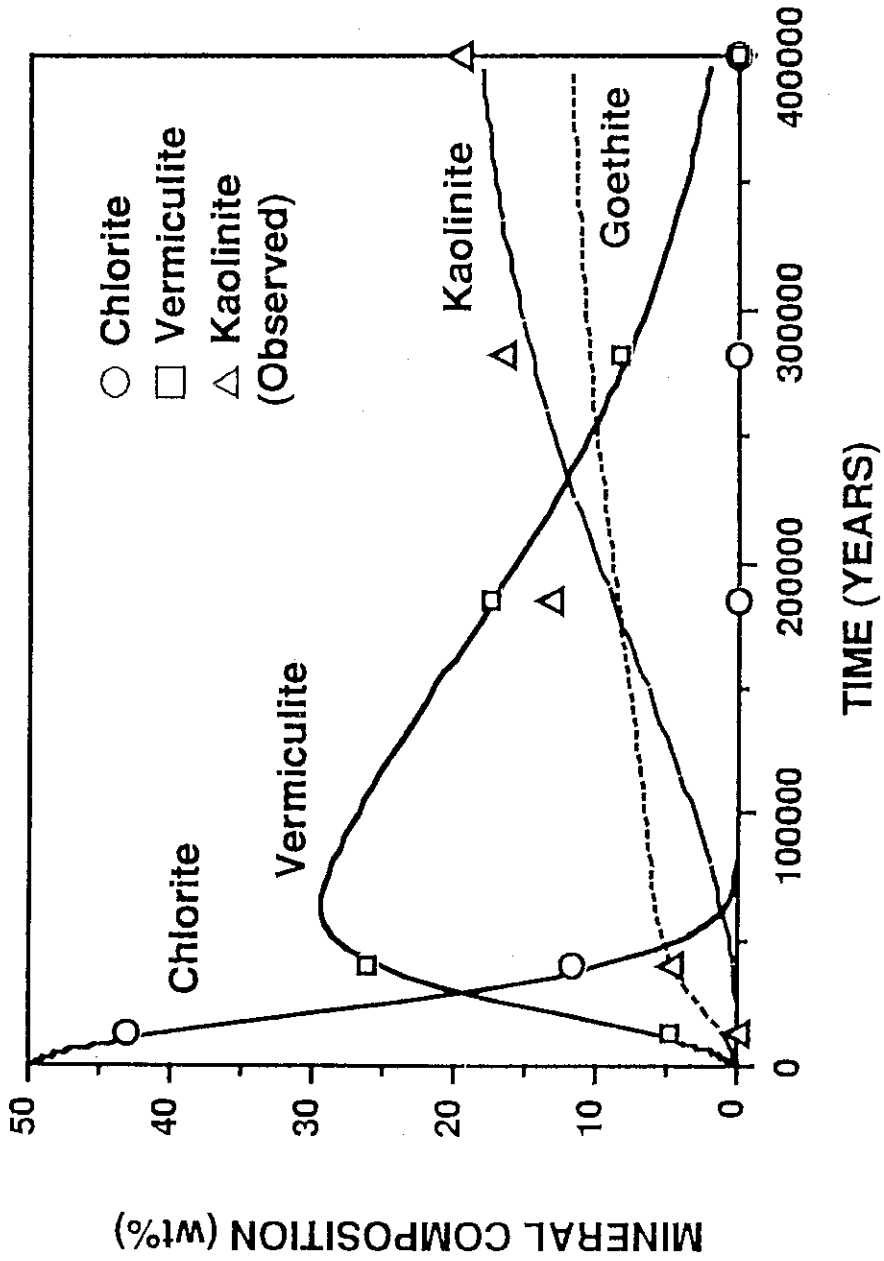


Fig.5 Variation of mineral composition in the transition zone.

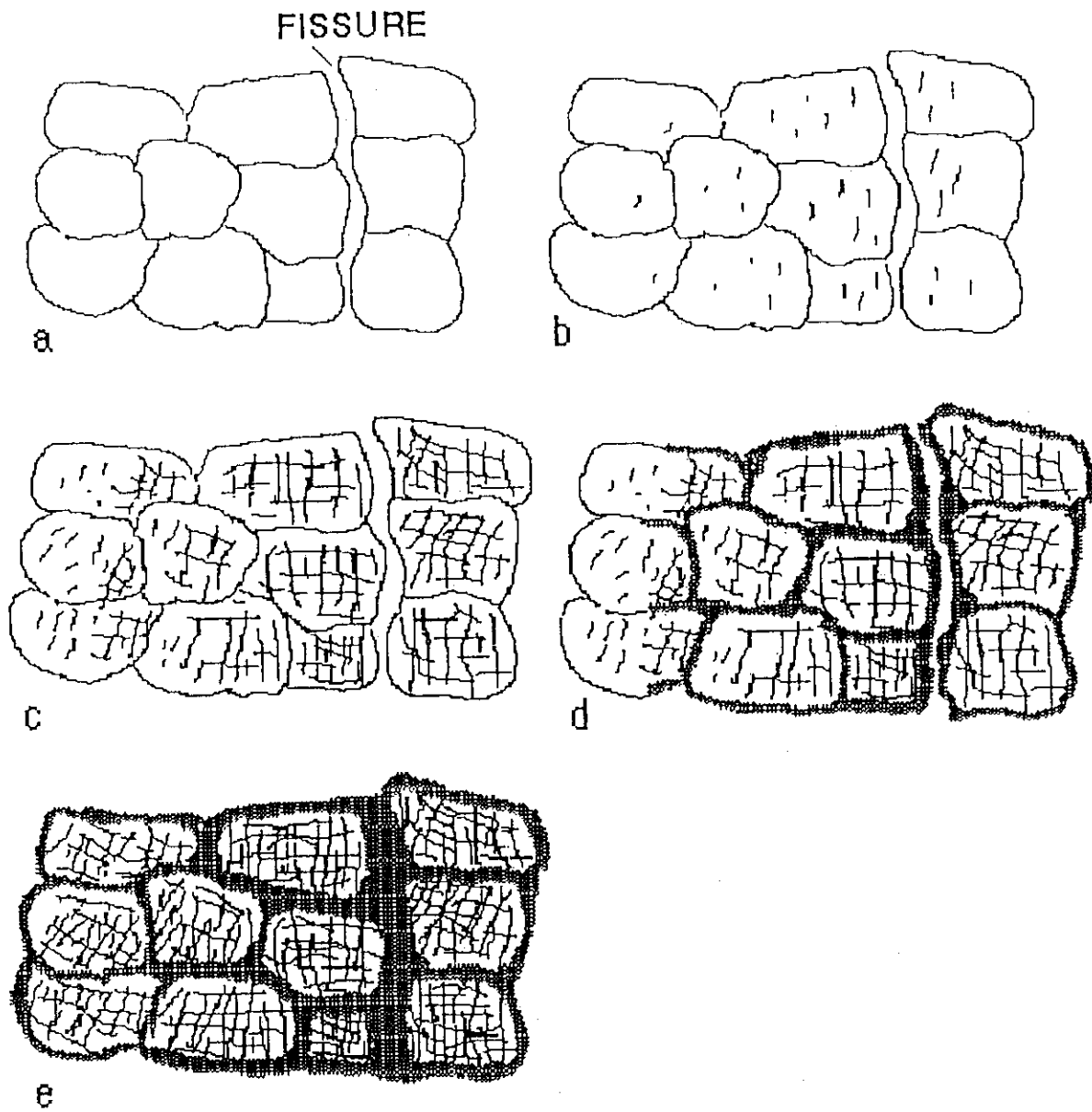


Fig.6 Schematic of change in distribution of iron minerals with weathering.

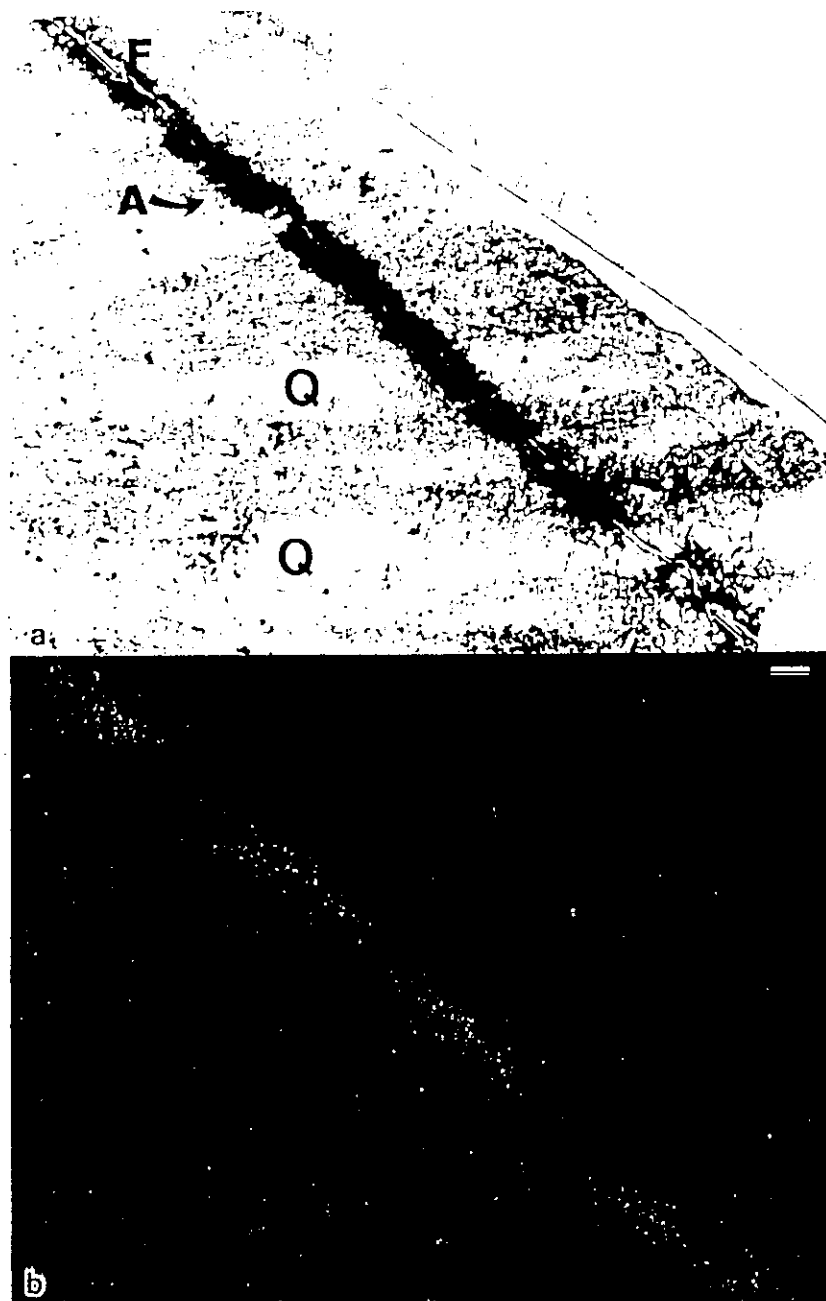


Fig.7 Micrograph without polars (a) and its corresponding alpha track map (b) of DDH6-99. Thinner arrows with F show a fracture accompanied by a strongly altered zone (indicated by thicker arrows with As). White areas running parallel to the schistosity consist of quartz grains (Qs), and gray areas, mostly chlorite grains. A bar indicates 1 mm.

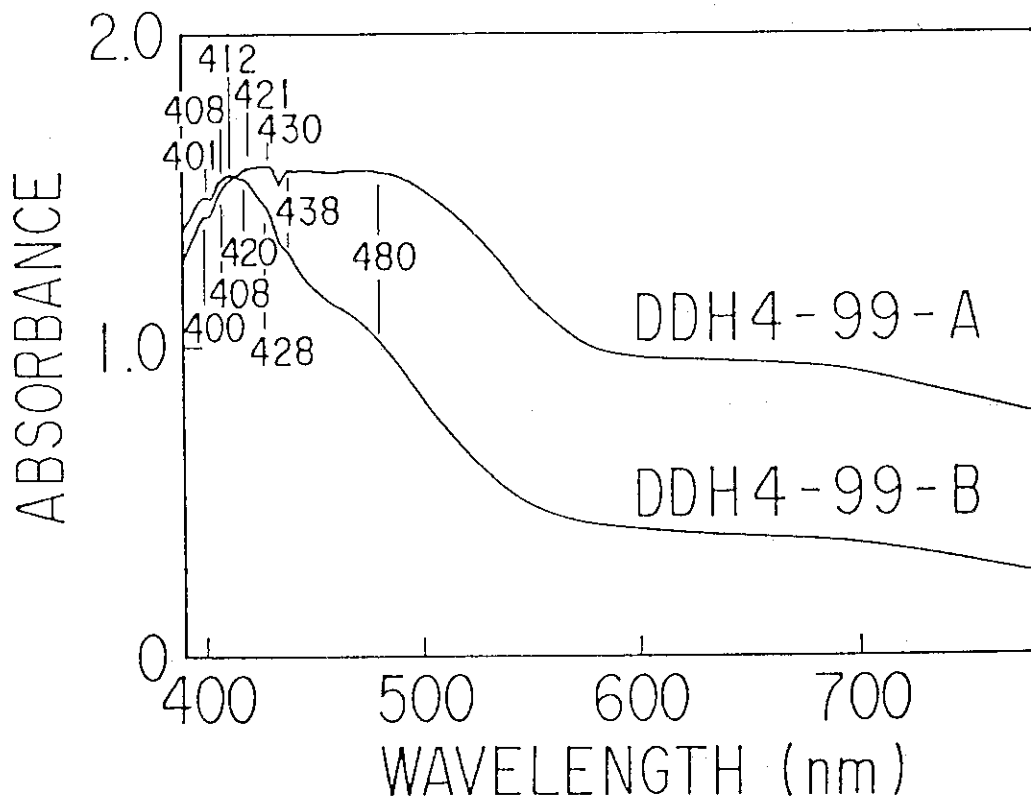


Fig.8 Transmission visible spectra of DDH4-99.

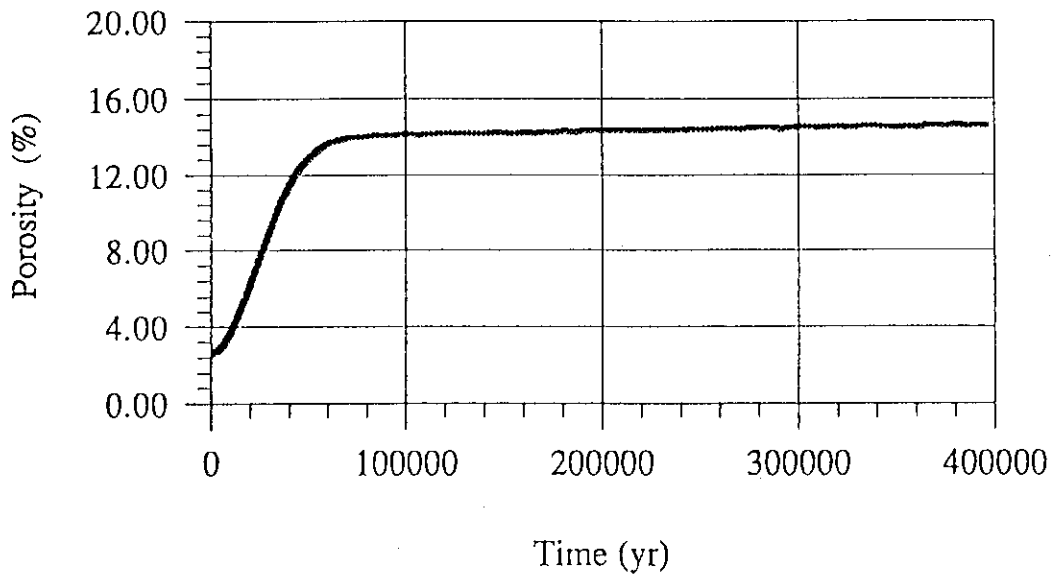


Fig.9 Change in calculated porosity (%) of rock with time resulting from weathering.

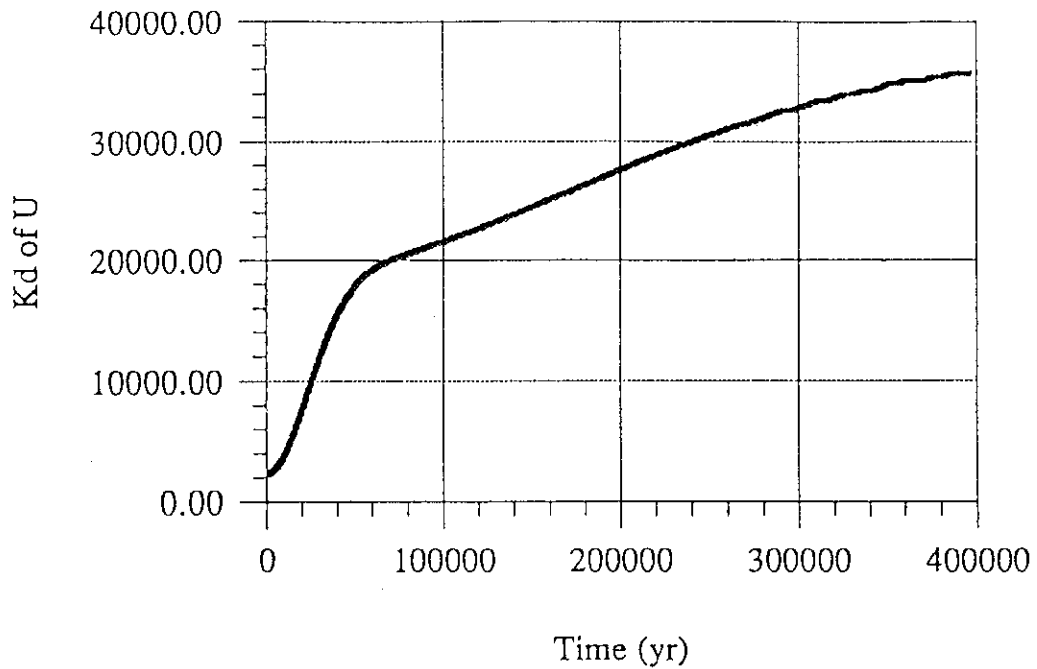
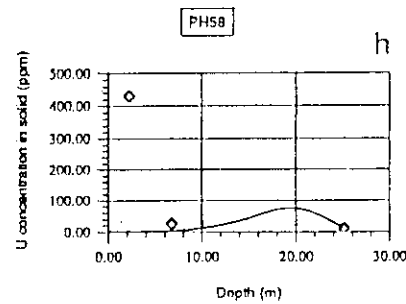
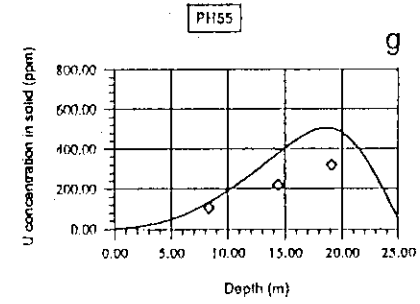
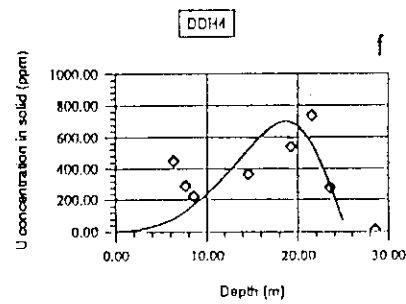
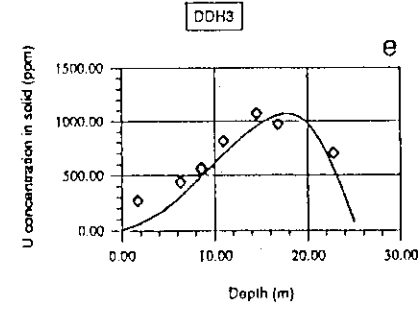
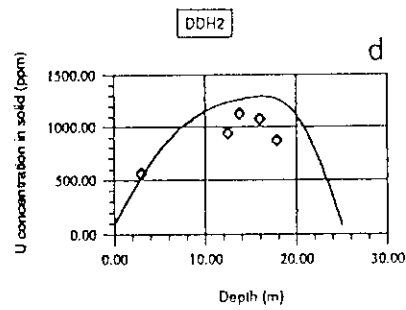
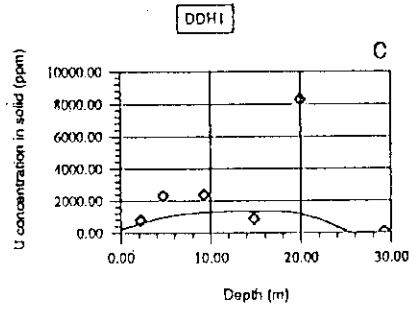
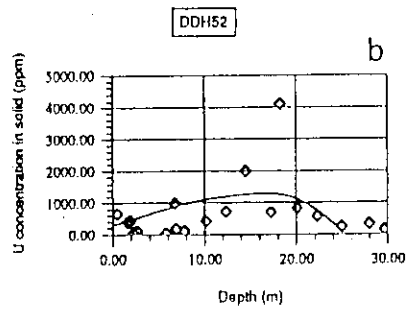
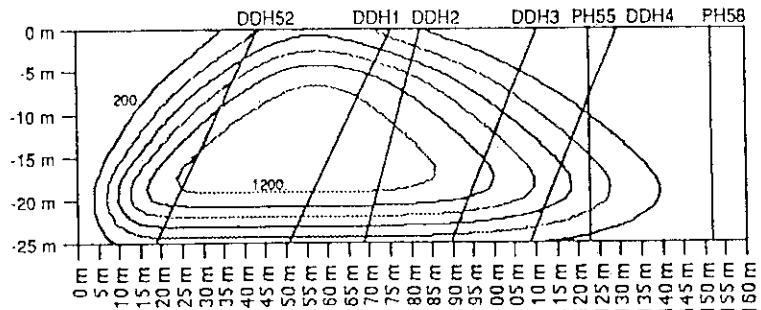


Fig.10 Change in calculated distribution coefficient of U with time resulting from weathering.



— Calculated ◊ Observed

Fig.11 Calculated uranium concentrations (ppm) in the 6109mN section (a), and comparisons of calculated and observed uranium concentrations (ppm) in DDH52(b), DDH1(c), DDH2(d), DDH3(e), DDH4(f), PH55(g), and PH58(h).

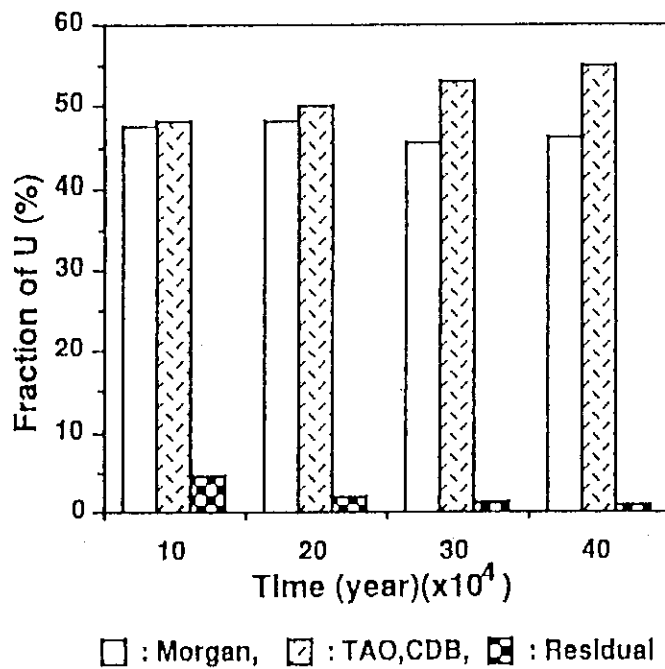
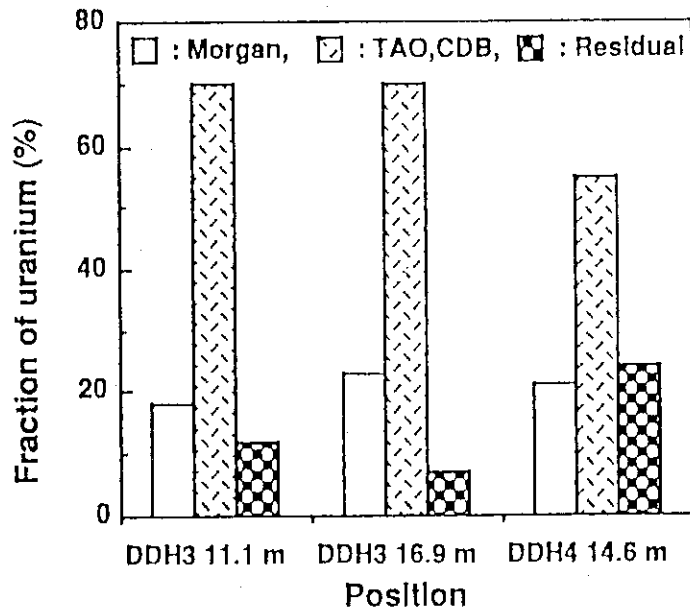


Fig.12 Observed fractions of uranium in the weathered zone (top) and calculated fractions of uranium in the transition zone (bottom).