

## 資 料

553.495 : 552.513 : 551.77+553.1 : 546.791

### 砂岩中のウランの分布について\*

D.F. Korolev, A.K. Miguta

黒田 吉益 訳

外因性のウラン鉱床において、ウランの含有量は有機物質や粘土質部分とのみ関係するのではなく、いろいろの大きさの陸生の砂粒（噴出岩・長石の）にも関係する。砂岩中にある噴出岩や長石中にウランが濃集することがたしかめられた。

研究した鉱床は、結晶質岩石の基盤の上の沈降部 (trough) に形成された第三紀および第四紀の堆積岩層中にある。基盤は下部古生系の結晶片岩と、それを貫く後期古生代の優白質花崗岩からなっている。花崗岩のマッシュには粗粒なものも、細粒なものもあり、アプライト質花崗岩・花崗閃緑岩、まれには花崗閃長岩の岩脈もみられる。花崗質岩石は曹長石化作用・珪化作用・絹雲母化作用のような熱水変質をわずかばかりうけている。すべての結晶質基盤岩類は第三紀にはげしい風化作用をうけて、厚さ 60 m にも達する風化層をつくっている。とくに、花崗質岩石の上の風化層にはカオリナイトや加水雲母が生じている。

新生代の堆積岩層はシルトを挟む砂岩層で始まる。それは3枚の褐炭を含む含炭アージライト層により整合に覆われている。この2層は上部漸新世層と考えられている。含炭層は、不整合でもって、鮮新世下部第四紀の礫岩層と現世の粘土層に覆われている。新生代層は河成層と湖成層で、その全体の厚さは約 150 m である (訳注1)。

鉱床地域には、鉱染ウラン鉱の2つの鉱体群がある。1つは下部のシルト-砂岩層にある。鉱体は、お互いにくっついた、またはうねうねしたレンズ状の集まりで、主として砂岩の中にある。いま1つは含炭層中にあり、長くのびたレンズ状をなし、大部分褐炭中にある。この論文では砂岩中のウランの分布を調べた。

砂岩は花崗質砂岩で、古生代基盤岩類の風化・侵食によって形成されたもので、粘土質物質でわずかに固められている。砂岩をつくる粒は円いが、大きさはきわめて不均一である。小さいものは石英や片岩の円粒で、大きいものは噴出岩や長石の円粒である。砂粒はわずかに sorting をしている。それは、垂直方向へも、水平方向へも数 10 cm の範囲で、粒度組成が変化することからわかる。

ウランの分布の特徴をしらべるのに、鉱床地域内の隣接した2つのボーリングから12のサンプルをえらんだ。この部分では、肉眼的には砂岩中に二次的な変化（褐鉄鉱化作用・硫化物化作用など）がみられなかったことは強調すべきことである。したがって、鉱石の濃集はおそい時期の変質作用によるものではない。

砂岩の粒度組成やウラン含有量は第1表にあげてある。その中には、極粗粒(訳注2) から細粒

\* Д.Ф. Королев, А.К. Мигута : О распределении урана в песчаниках,

Геология рудных месторождений, No. 6, p.72~78, 1961

訳注1) このような記述はあるが、原著論文に地名は書いてない。

訳注2) Грубо зернистый 1.0~2.0 mm をいう。крупнозернистый は 0.5~1.0 mm をいい粗粒砂岩と訳した。

第 1 表

サンプル No.	粒 度 区 分 (重量%)						ウランの含有量 (重量%)	岩石の見かけ
	1 mm 以上	1.0~ 0.5mm	0.5~ 0.25mm	0.25~ 0.1mm	0.1~ 0.01mm	0.01mm 以下		
39	30.2	23.68	9.23	7.37	13.79	14.63	0.0016	極粗粒
40	9.45	18.35	18.60	15.43	23.84	14.33	0.025	中粒
41	2.22	10.72	25.05	30.72	15.68	15.61	0.015	"
43	9.53	21.75	12.00	14.60	19.60	22.50	0.140	粗粒
45	29.22	19.22	10.05	15.70	15.53	9.13	0.024	極粗粒
46	7.80	12.45	17.63	19.76	21.04	21.20	0.015	細粒
47	3.10	2.80	16.60	22.58	24.81	30.11	0.006	"
60	0.61	0.35	9.53	65.87	12.00	11.60	0.004	中粒
61	0.90	1.08	28.60	17.00	43.90	8.30	0.059	細粒
62	25.43	21.64	9.62	13.12	12.21	15.60	0.100	極粗粒
64	37.65	18.37	15.58	14.94	8.08	5.38	0.019	"
65	16.09	17.96	7.48	16.37	21.09	19.07	0.003	細粒

注) ソ連の区分は, 0.01 mm 以下を粘土, 0.1~0.01 mm をアレロリット (キシルトなのでこの訳文ではシルトと訳してある), 0.1~2.0 mm を砂という。

までの砂岩がある。粒度組成とウラン含有量との間には関連性がみられない。たとえば, 同じく極粗粒の砂岩でも, 43, 62のサンプルのようにウランの多いものもあれば, 39, 65のように比較的少ないものもある。

砂岩中のウランの測定は, 放射線測定法——DP-100 による  $\beta$ -線や  $\gamma$ -線の測定——や, ルミネセンス法などのいろいろの方法を使って行なった (ジェレズノフ, 1957; レオノフ, 1956)。化学分析は A.A. マトヴェエフと A.F. ノビコフによって行なわれた。放射線法は L.I. クルイジュノフによって行なわれた。放射線測定法ではサンプル全体のウランの量が, 化学分析では 1 岩石中の粒度ごとのウランの量が定量された。それは第 2 表にあげてある。

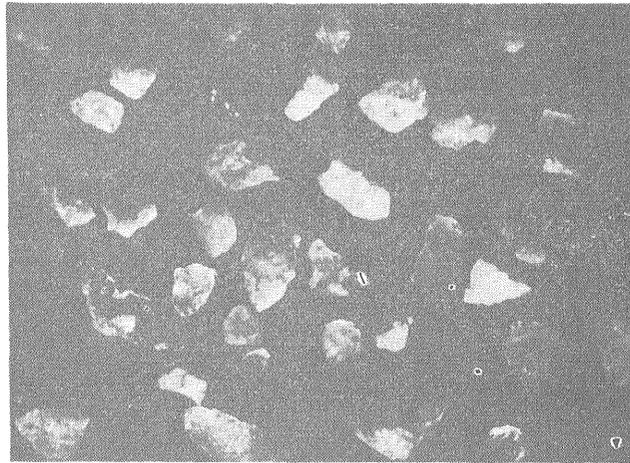
第 2 表

サンプル No.	ウ ラ ン 含 有 量 (重量%)						
	全サンプル	1.0mm 以上	+0.5mm	+0.25 mm	+0.1mm	+0.01mm	0.01mm 以下
39	0.0016	0.0003	0.0003	0.0002	0.0004	0.0012	0.006
40	0.025	—	0.0031	0.0025	—	—	—
41	0.015	—	0.0013	0.0014	—	—	—
43	0.140	0.013	0.019	0.026	0.031	0.039	0.32
45	0.024	—	0.0014	0.0018	—	—	—
46	0.015	—	0.0009	0.0007	—	—	—
47	0.006	—	0.0006	0.0003	—	—	—
60	0.004	—	0.0015	0.0008	0.0006	0.0021	—
61	0.059	—	0.021	0.011	0.015	0.022	—
62	0.100	0.018	0.029	0.030	0.019	0.025	0.30
64	0.019	—	—	—	—	—	—
65	0.003	0.0006	0.0008	0.0006	0.0010	0.0016	0.0090

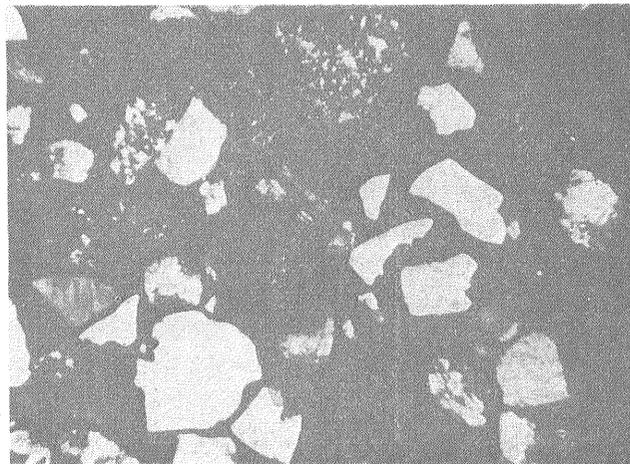
注) —はウランの定量を行なわなかったもの。

ウランはシルトの大きさの粒度部分, とくに粘土に近い細粒部分に濃集することがわかるが, これは陸生堆積物の岩石のあらゆる facies のものについてよく知られている事実である。しか

し、他の法則性もみられる。すなわち、サンプル中のウランの総量がふえると、砂の大きさの粒度部分におけるウランの量も多くなる。この関係は、ウランの総量から2つに分けられたサンプル間でみると明らかである。すなわち、ウランの総量が0.1%のオーダのサンプル (No. 43, No. 62) では、砂の大きさの粒度部分のウランは0.01%のオーダであるが、ウランの総量が0.001%のオーダのもの (No. 65, No. 60 など) では、砂の大きさの粒度部分のウランの含有量は0.0001%のオーダとなるわけである。したがって、砂の大きさの粒度部分のウランの量から、上述のサンプルは2つのグループに分けられる。金属 (ウラン) の含有量の増加は大量の炭質物や粘土質セメントの存在と関係があると考えられることは可能かも知れない。しかし、いろいろの粒度のものを、顕微鏡下で詳しく観察すると、炭質物はそれほど多く含まれていないし、砂粒はたいへんきれいである (図版1, 2)。砂粒が全部きれいになっているのは、粘土質物質でわずかにセメントされ、弱く固められているので、洗浄によってかんたんに粘土質物質が分けられたのであろう。砂の大きさの粒度部分のウランはどのような鉱物と関係しているかということをしらべてみた。この目的のために、砂—シルトの大きさの粒度部分の鉱物組成を研究し、個々の鉱物についてウランの分析を行なった。



図版 1 洗浄によって分けた No. 62 のサンプルの +0.5mm 部分 20倍



図版 2 No. 62 のサンプルの +0.5mm 部分。セメントして作った薄片。  
白—石英; 不均一な部分—岩石片; 中央—斜長石の集片双晶  
+ニコル 40倍

第 3 表

サンプル No.	粒 度 (mm)	容 量 (%)				
		石 英	長 石	岩 石 片	雲母および 緑泥石	炭 質 物
39	+1.0	50	12	38	—	0.3
	+0.5	52	17	31	—	0.02
	+0.25	39	26	35	—	0.01
	+0.1	31	21	47	0.7	0.04
	+0.01	22	10	66	1.5	0.08
43	+1.0	61	18	21	—	—
	+0.5	52	14	34	—	0.005
	+0.25	43	28	29	0.5	0.01
	+0.1	17	43	38	2	0.06
	+0.01	12	21	59	8	0.09
62	+1.0	66	10	24	—	—
	+0.5	61	19	20	—	0.003
	+0.25	52	13	35	0.2	0.004
	+0.1	41	16	42	1.5	0.02
	+0.01	14	20	63	—	0.06
65	+1.0	52	9	39	—	—
	+0.5	46	13	41	—	0.002
	+0.25	37	25	38	—	0.01
	+0.1	26	14	59	1	0.03
	+0.01	16	10	72	1.2	0.08

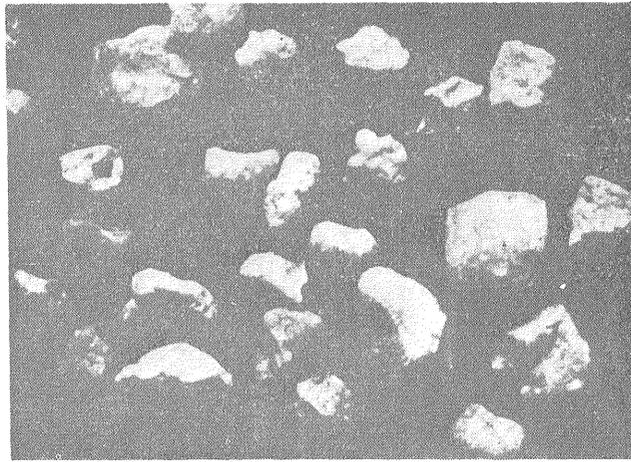
4つのサンプルについて鉱物容量比をしらべ、第3表にあげてある。これからわかるように、砂—シルトの大きさの粒度部分ほとんど完全に陸生鉱物からなっている。すなわち、石英・長石・雲母・岩石のかけらである。

次に、個々の鉱物のかんたんな特徴を述べる。

石英 大部分は円くないが、まれにやや円味をおびたものもある。不規則な形をした薄ねずみ色で、粉状その他の包有物をもっている。時々、無色のや、ばら色のや、煙状のものがあるが、それらは普通透明で、よく面が残っている。石英の量は、粒度の粗い部分から細かい部分にかけて、規則的に減少する (30~50%→14~20%)。粒度が +0.5 mm の部分の石英中のウランの量は、サンプル No. 43 で 0.0025%、サンプル No. 62 で 0.0014% である。

長石 カリ長石 (正長石が多い) と斜長石 (灰曹長石) である。これは柱状の形を示し、弱く、あるいは中位に円磨されている。カリ長石はあまり変質 (pelitization やソーシュライト化作用) をうけていない。灰曹長石はいろいろの程度に変質をうけている。あるものは石英で置換されていたり、あるものは曹長石と石英で、あるものは曹長石・石英の他に絹雲母によっても置換されていたりする。長石の量を計算するときには、新鮮なものか、わずかに変質したものだけをとった。はげしく分解した長石 (とくに、-0.1+0.01 mm の粒度の部分) は岩石片からはなれにくいので、計算では岩石片に入れた。変質した噴出岩片と長石とを1つの“岩石片”という分類に入れることは不都合ではない。なぜなら、それらは2つとも放射能を多く含むからである。未変質の長石 (+0.5 mm の粒度部分) 中のウランの量は、No. 62 で 0.0077%、No. 43 で 0.0025% である。

岩石片 (図版3) 酸性および塩基性噴出岩にとみ、花崗質岩石や各種の片岩 (緑泥石-絹雲母片岩、石英片岩など) はきわめて少ない。後者は1~6%しかなく、とくにウランにとんだサンプルでは少ない。その他、岩石片として計算したものの中に、はげしく変質した長石がある。岩石片の量は、砂の大きさの粒度部分では、粒度が小さくなるとともに減少するが、シルトの大きさの粒度部分では、また増加する。すなわち、+0.25 mm の粒度部分では、岩石片の量は29~38%であるが、シルトの大きさの粒度部分では2倍以上 (63~72%) となる。岩石片では、そのサイズと風化の程度との間に関係があることは強調すべきことである。これは、



図版 3 No. 62 のサンプルの +0.5mm の部分岩石片 (噴出岩・長石) 40倍

+1.0 mm と +0.1 mm の粒度部分を較べると明らかで、+0.1 mm の粒度部分にははるかに風化がはげしい。風化の産物は主として粘土質なもの(加水雲母・カオリナイト)である。岩石片中のウランの量は、+0.5 mm の粒度部分で、No. 62 で 0.112%、No. 43 で 0.077%である。

雲母と緑泥石 あまり量が多くない。とくに、砂の大きさの粒度部分(中粒・細粒)では2%を超えない。シルトの大きさの粒度部分では、2~4倍多くなり、まれに8%に達する。雲母は主として黒雲母で、白雲母は少ない。黒雲母は、石英-緑泥石または緑泥石の集合物で置換されている。黒雲母のへき開に沿って酸化鉄が生じていることもまれではない。白雲母はあまり変質していない。緑泥石は黒雲母を交代して生じているものである。

雲母と緑泥石中のウランの定量は、その分離が困難なために行なわれなかった。しかし、No. 62 と No. 43 のサンプルの黒雲母粒について、ルミネセンス法で準定量分析を行なったところ、ウランの量は0.05~0.01%を超えなかった。

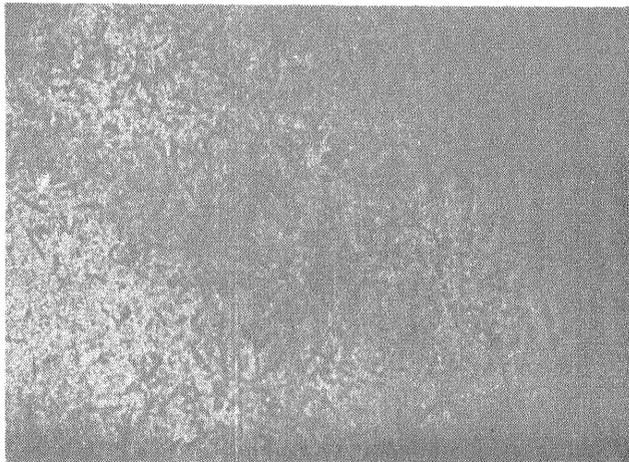
炭質物 双眼顕微鏡下で、黒く輝いた粒である。薄片下では赤褐色で光を通す。組織はあまりみられない。細粒の部分では、陸生鉱物(石英・長石など)粒を包んでいることもまれではない。砂の大きさの粒度部分では、炭質物の量は0.01%のオーダーである。シルトの大きさの粒度部分では1.5~2倍にふえる。サンプル No. 62 と No. 43 の炭質物中のウランの量は0.05~0.3%である。ウランの濃集に対する有機物質の役割をしらべるために、炭質物を酸素流の中で燃焼させて有機炭素の含有量を求めた。A. F. ノビコフによって行なわれた結果によると、No. 62 と No. 65 のサンプルの粘土の大きさの粒度部分の有機炭素は、それぞれ0.97%と1.28%である。これらのサンプル全体中の有機炭素の量は、それぞれ0.43%と0.40%である。No. 62 と No. 65 のサンプルを比較すると、全体の有機炭素の量はほぼ同じであるのに、No. 62 の方が粘土の大きさの粒度部分中の有機炭素の量が少ない。これは部分的な酸化(ロジューコーワ、ラズムナヤ他、1959)によるものであろう。そのことは No. 62 のサンプル中には自生硫化物の量が多いことから確かめられる。炭酸塩の炭素は No. 62 の粘土の大きさの粒度部分からのみ明らかにされている(0.08%)。しかし、顕微鏡下では炭酸塩は1つも発見されていない。

副成分鉱物 -0.1+0.01mm の粒度部分からプロロホルムを使って分離された。サンプル中のその量は0.1%を超えない。しかし、鉱床地域に露出している花崗岩を粉砕したものでは0.01か0.001%である。重鉱物は自生か陸生かの形をしている。自生鉱物中には、小さい球顆状や、いろいろの鉱物粒を包んだフィルム状の鉄の硫化物や褐鉄鉱がある。陸生鉱物には不透

明鈹石・ジルコン・電気石・緑れん石・雲母がある。No. 62 と No. 43 のサンプルの重鈹物について、ルミネセンス法によりウランの定量を行なったところ、0.01%のオーダを超えなかった (0.01~0.03%)。

砂の大きさの粒度部分におけるウランの濃集は、どのような成分と関係しているのかを明らかにしようとした。砂の大きさの粒度部分では、もっとも高いウランの含有量は有機物質 (0.3% まで) と変質岩の岩石片 (0.1% まで) にみられる。後者は、主として、いろいろの噴出岩と長石である。得られた結果から、砂の大きさの粒度部分の炭質物と岩石片に、総量の何%のウランがあるかを計算することができる。No. 62 のサンプルの +0.5mm の粒度部分をみてみよう。この部分のウランの総量は 0.029% または 100 g につき 0.029 g である (第2表)。この部分の岩石片は全体の20%、すなわち 100 g 中の 20 g である (第3表)。20 g の岩石片中のウランの量は、0.1%の含有量だとすると、0.02 g となり、+0.5mm の粒度部分の総量の69%となる。同様の方法で、炭質物部分には全体の5%のウランがあることが計算できる。炭質物そのものの中ではウランの含有量は高いのに、全体としてそのように低い値を示すのは、炭質物そのものの量が少ないからである。他のサンプル (No. 43, 65) の砂の大きさの粒度部分のウランの存在状態についても、似たような結果がえられている。それから考えると、陸生の成分では、少なくとも全体の95%のウランは砂-シルトの大きさの粒度部分に入っているといえる。

有機物質中のウランの存在はよく研究されていて、くわしくしらべる必要はない。しかし、砂の大きさの粒度部分の陸生成分中にウランの量が多くなることは、いままで注目されていなかった。これと関連して、上述の陸生の鈹物粒の中のウランがどんな形で存在するかということをも明らかにしようとした。この目的で、No. 62 のサンプルの microradiograph をとってみたが、それによると  $\alpha$ -粒子がうすく均一に分布していることがわかった。しかし、No. 62 の資料についてきれいな写真を撮ることに成功しなかった。図版4には、となりの部分の砂岩で若干ウラン含有量の多いサンプル No. 207 のものがあげてある。しかし、その特徴は No. 62 のサンプルによる microradiograph と似ている。radiograph による研究のほかに、柔らかい条件の下で (クルイロフ, アトラシェノク, 1959) No. 62 のサンプルを  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  の 0.2 規定液で3日間処置する方法でリーチングしてみた。その結果、92~97%のウランが溶液中に溶け出た。このことと、 $\alpha$ -粒子が均一に分布していることから、ウランは多分変質した粒の粘土のところに吸着されているのであろうと考えられる。多分、4価のウランの水酸化物  $\text{U}(\text{OH})_4 \cdot n\text{H}_2\text{O}$  のゾルとして吸着されていると思われるが、それは古くなるとピッチブレン



図版4 207の薄化の microradiograph 長石の上の  $\alpha$ -粒子の跡  
露出 10日間

ド (黒) の spherulite になるであろう。4 個のウランのゾルが吸着しているという考えは、鉍石のサンプルの中に、 $-0.1+0.01$  mm の粒度部分で小さい球やフィルム状の自生の硫化物があるということに基礎をおいている。硫化物があるということは、還元状態が続いていたことの証明であることは知られているとおりである。

ウランが砂—シルト部分と粘土部分との両方に分布することが明らかになったのは興味深いことである。しかしそれらの間の正確な分布をきめることは、サンプルを洗うと溶液中にウランが溶け出るために、むづかしいことである。しかし、溶液中に溶け出るウランがすべて、粘土質部分からきたもので、うすく分散しているものももっともリーチングされやすいとすると、ウランはほとんどが粘土部分にあるということになる。たとえば、No. 62 のサンプルでは、砂—シルトの大きさの粒度部分には $1/5$ 、粘土の大きさの粒度部分には $1/5$ のウランがあることになる。同様に、No. 43 と No. 65 についても、それぞれ全体の $1/7$ 、 $1/4$ が粘土の大きさの粒度部分にあることになる。細かな分散している部分に大部分のウランがあるということとはよく知られている事実である。

粘土の大きさの粒度部分に、ウランはどのような形で存在するのであろうか？ この問題に対する本当の証拠をうることはできなかった。しかし、実験データ (クルイロフ, アトラシェノク, 1959; ロジュコワ, ラズムナーヤ他, 1959; Miller, 1958) や以前に研究された鉍床との比較 (ネクラソワ, 1959; ロジュコワ, ラズムナーヤ他, 1959; Frondel, Vickers, 1959) などから、ウランは粘土質物質や有機物質にピッチブレンドの小さい球顆としてあることが考えられる。これが砂岩のそのような部分へウランの量を増加させる原因となっている。その砂岩は自生鉍物、または有機物質の量などから、堆積物のいろいろの段階において還元状態がつづいていたことを示している。

砂岩中におけるウランの濃集の原因については、その方面のかなりの進歩があったにもかかわらず、いままで一致した見解がなかった。堆積岩中のウランの成因について、現在いわれている多くの説をここで繰り返し述べる必要はない (ベテフティン, 1959; ネクラソワ, 1959; ロジュコワ, ラズムナーヤ他, 1959; Katayama, 1960; Nininger, Everhart, 1960)。われわれは、この鉍化作用にとって、もっとも認められやすい考えは次のものであることを明らかにしたい。ウランの濃集は堆積物が岩石に変わる全段階において、いろいろの作用が生じている。syngensis の段階では、有機物質や粘土成分の吸着力—正確には adsorption potential によるウランの吸収が起こる。しかし、還元作用をうけなかった天然の物質中で、ウランの量の増加がないことは、吸収のみが鉍石を濃集する唯一の方法でなかったということを語っている。砂岩の個々の部分におけるウランの比較的大量の集積は、主として、吸収によるウランがダイアゲネシスの段階で、再配分されることもありうるし、また、天然水によって外からウランが部分的に運び込まれることも除外できないということを示している。結局、再配分のメカニズムについて、なにか決定的なことをいうことはできない。これらの問題については、N.M. ストラホフ (1960) がいろいろの元素について研究中である。再配分のおもなファクターとして、ある場所では粘土質物質とウランの desorption があり、ある場所では還元作用の影響下の沈殿ということがあるのであろう。鉍床の horizon の場所場所によって鉍化作用が不均一であることが、このことの間接的な証拠である。epigenesis の段階では、再配分 (集合的な再結晶作用など) が完成したり、その方向をかえたりすることがおこる。砂岩中のウランの再配分のメカニズムについては将来の研究が必要である。

## 結 論

1. 研究された砂岩中のウランの大部分は岩石中の粘土質成分と関係している。砂—シルト部分では、全体の $1/4$ から $1/7$ までしか含んでいない。砂の部分ではウランの大部分は、噴出岩や長石の変質粒と関係している。

2. リーチングや radiophotograph のデータは、噴出岩や長石中のウランは変質粒の粘土状成分に吸着されたものであることを示している。

最後に、著者は V.L. パルスコフ, I.N. ガバロフ, V.A. ユーストラホフ, U.B. ナウモフ, D.G. サボジュニユフ, N.T. ソコロフ, V.V. シェルビンナには、研究上の援助と注意をうけた。深く感謝する。

#### 文 献

- Бетехтин А. Г. Об экзогенных процессах образования урановых месторождений. Геол. рудн. месторожд., No. 6, 1959.
- Железнова Е. И. Методы лабораторных радиометрических измерений. В сб. Радиометрические методы поисков и разведки урановых руд под ред. В. В. Алексеева. Госгеолтехиздат, 1957.
- Крылов А. Я. Атрашенков Л. Я. О формах нахождения урана в гранитах. Геохимия, No. 3, 1959.
- Леонова Л. Л. Люминесцентный метод определения малых количеств урана в изверженных горных породах. Геохимия. No. 8, 1956.
- Некрасова З. А. К вопросу о формах нахождения урана в некоторых углях. Доклад 2082. Тр. II. Междунар. конф. по мирному использованию атомной энергии, 1953. Доклады советских ученых, т. 3, Изд-во АН СССР, 1959.
- Рожкова Е. В., Разумная Е. Г. и др. Роль сорбции и концентрации урана в осадочных породах. Доклад 2059. Тр. II. Междунар. конф. по мирному использованию атомной энергии, 1958. Доклады советских ученых, т. 3. Изд-во АН СССР, 1959.
- Страхов Н. М. Основы геории литогенеза, т. 2, Изд-во АН СССР. 1960. стр. 452—464.
- Фрондель К., Уикс Э. Современные успехи в области описательной минералогии урана. Доклад 2019. Избр. доклады иностр. ученых на II Междунар. конф. по мирному использованию атомной энергии, т. 8, Изд-во ин. лит., 1959.
- Katayama N. Genesis of uranium deposits in sedimentary rock. Report XXI session Intern. Geol. Congr., part XV, 1960.
- Miller L. J. The chemical environment of pitchblend. Econ. Geol. vol. 53, No. 5, 1958.
- Ninger R. D., Everhart D. L. a. o. The genesis of uranium deposits. Report XXI session Intern. Geol. Congr., part XV, 1960.