

ガンマ線の波高分析による人形峠地域等の花崗岩質岩石の天然放射性元素の分析

中井 順 二\*

Analysis of Natural Radioactive Elements in Granitic

Rock Samples by Gamma Ray Spectrometer

By

Junji NAKAI

Abstract

A radiometric method of analysis of natural radioactive elements by using gamma ray spectrometer was applied to granitic rock samples. Assuming that thorium series and two groups preceded by  $^{238}\text{U}$  and  $^{226}\text{Ra}$  in uranium series are in equilibrium, contents of uranium, thorium, radium and potassium can be sensitively determined by counting rates through four energy channels to each element.

This method was used to the analysis of the granitic rock samples collected in the neighbourhood of the boundary between Tottori and Okayama prefectures, where sedimentary uraniferous ore deposits are distributed. The samples from granitic bodies in Hiroshima prefecture, Asahidake area and Ashio area were also analysed.

It is needless to say that uranium is not in equilibrium in weathered granitic rocks and the disequilibrium is still observed in some samples collected from apparently fresh exposures. Thus, the equilibrium in uranium series is only expected in such the completely fresh samples that got from a quarry.

The average content of uranium found in the fresh granitic rock samples around Ningyō-tōge mine (Tōge district) and Tōgō mine (Misasa district) are 4.1 ppm and 5.3 ppm respectively. The latter may, thus, be higher than the average of granitic rocks in Japan.

The average Th/U ratios of fresh samples in these areas are higher than that in Ashio or Asahidake area. In all cases, the average ratios are within the range of the values already obtained by several investigators.

Uranium contained in granitic rocks is leached out in the progress of weathering. The elastic wave velocity of some samples was measured by super-sonic method, as an expression of the degree of weathering, and the relation between wave velocity and uranium or thorium content, or Th/U ratio was investigated. As the result, uranium content of the samples in the vicinity of sedimentary uraniferous deposits decreases sharply with the increasing grade of weathering, and it suggests that uranium in these granites are relatively leachable.

The granite based under the uraniferous ore deposit is sampled in the drifts of Ningyō-tōge mine and Tōgō mine. The adjacent beds under the unconformity partly consist of arkosic sediments or weathered granite at the Ningyō-tōge mine. It is generally detected that the uranium contents are extremely high in association with the uraniferous ore deposits.

要 旨

花崗岩質岩石のガンマ線エネルギー分析によって、含有する天然放射線性元素のウラン・トリウム・ラジウム

\* 物理探査部

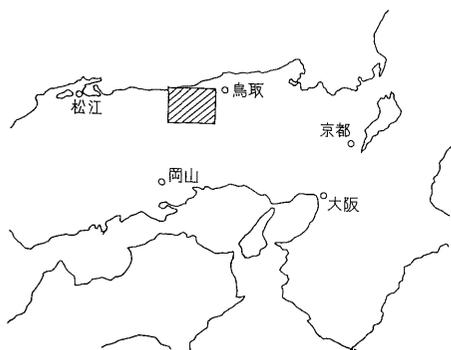
- ・カリウムの定量分析を行なった。
- 測定には次の地域に分布する花崗岩を対象とした。
- 1) 人形峠地域 (岡山県北部・鳥取県中南部地域)
- 2) 広島地域 (広島県瀬戸内海沿岸地域)

3) 朝日岳地域 (山形県朝日岳南部地域)

4) 足尾地域 (栃木県足尾南部地域)

なお堆積型ウラン鉱床の鉱石胚胎部付近の基盤花崗岩中のウラン・トリウム等の含有状況を知るため、人形峠鉱山および東郷鉱山の坑内試料の分析を行なった。

人形峠・倉吉付近の花崗岩は本邦の他の地域の花崗岩と比較して、ウランの含量はとくに高くはないが、Th/Uは、朝日岳・足尾地域のそれと比較した場合大きい。また人形峠鉱山・東郷鉱山麻畑鉱床近傍の花崗岩は、風化変質作用によるウランの減少が著しい傾向がある。



第1図 調査位置図  
Map showing the location

1. 緒言

岩石中の天然放射性元素の含有量、分布は興味ある問題であって、古くからこの方面の研究が行なわれている。一方原子力工業の隆盛をみせているこんにちにおいては、原子燃料潜在資源という見地からも岩石中のウランの含量、分布に関する問題が重要となっている。

わが国最大のウラン鉱床である人形峠鉱床は、花崗岩を不整合に覆う第三紀層を母岩として胚胎しているが、その基盤花崗岩中の天然放射性元素、とくにウランの含有状態を検討することはその成因、今後の探鉱方針に関連して必要と思われる。このような観点から測定分析には主として人形峠鉱山、倉吉鉱山、東郷鉱山を中心とする地域の花崗岩を対象とした、これらの露頭試料の採集はすべてカーボン調査作業中に行なったものである。また比較検討のためその他ウラン胚胎の示徴が発見されている山形県朝日岳地域、ウラン鉱床と関連性の比較的乏しいと思われる広島県三原・尾道・呉付近、北関東足尾地域の花崗岩について若干個取り扱った。

花崗岩中の天然放射性元素の分布は火成活動当時の一次的条件に支配されるとともに、風化変質作用等の二次的条件に支配される。風化変質の進行度を知るための物

理量として超音波法による弾性波伝播速度を測定し、ウラン・トリウム含量との関連をしらべた。

分析法はいわゆる放射能分析で HURLEY<sup>3)</sup>の方法を佐野・高橋<sup>4)</sup>が放射能鉱石、花崗岩の分析のために改良発展させた方法を取入れている。測定結果については、統計的処理や人形峠地域で行なわれている岩石学的、あるいは地球化学的研究の結果と対照して検討する必要があるが、今回とりあえず測定方法と測定結果の概略について発表することにした。

この研究を進めるにあたり、原子燃料公社人形峠出張所、同倉吉出張所各位の多大の御協力と御指導を賜った。ここに深謝する。

2. ガンマ線波高分析によるウラン・トリウム・ラジウム・カリウムの定量

2.1 従来の方法と本方法

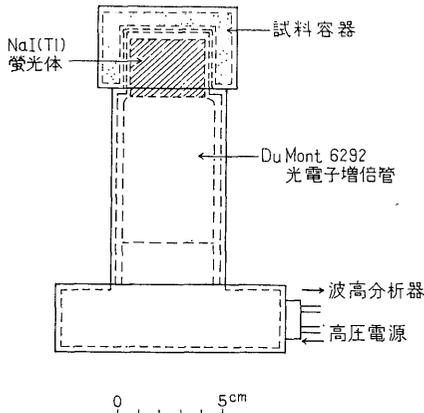
HURLEY<sup>3)</sup>はウラン系列・トリウム系列の各元素がおのおの平衡であると仮定して、岩石、鉱石中のウラン・トリウム・カリウムの含有量を求めた。すなわちウラン系列・トリウム系列・カリウムの各線源を別々に含む標準試料を作り、そのガンマ線スペクトルと試料のそれとを比較することにより試料中のこれら3元素の含量を決定している。本研究においては風化変質した試料も扱い、また見掛け上新鮮な試料でも、石切場等で採集したものは少なく、普通の露頭で採集したものがそのほとんどである。この場合<sup>238</sup>Uの天然における溶脱からウラン系列が完全に平衡であると仮定するのは不適當と考えた。

ROSHOLT<sup>5)</sup>はウラン系列の半減期からそれを数グループに分けているが、今回適用した方法ではそれらの中の<sup>238</sup>U~<sup>234</sup>Uグループと<sup>230</sup>Thをウラングループ、<sup>226</sup>Ra、<sup>222</sup>Rn~<sup>214</sup>Poグループ、<sup>210</sup>Pb~<sup>206</sup>Pbグループをラジウムグループとしてウラン系列を2分し、各グループの中では平衡であると仮定している。

一般に放射能測定によるウランの分析では、ウランの同位体からの放射線を必ずしも測定できないし、天然においてウラン系列が平衡にあるとは限らないので、高精度を期待することは困難である。さらに微量のウランやトリウムを分析する方法は現在ではいくつかのすぐれた方法が開発されているが、ガンマ線を利用すると比較的少量の試料からの放射線が測定できること、およびガンマ線スペクトルを利用するとウラン・ラジウム・トリウムおよびカリウムの4つの元素が同時に分析できることなどの理由で、この方法を採用することにしたのである。

## 2.2 測定装置

測定には東芝製シングルチャンネルパルス波高分析器 (E. D. S-3401型) および128チャンネルパルス波高分析器 (E. D. S-3403型) を使用した。検出用蛍光体として NaI (TI) ; 1 1/2"φ×1", 光電増倍管は DuMont 6292 を使用した。



第2図 検出装置  
Detector and sample container

試料よりの放射線のうちベータ線を除き、かつ光を遮るため検出部を真鍮で覆い、この上に試料容器を設置している (第2図)。検出装置を厚さ5cmの鉛レンガで遮蔽し、自然計数を減少させている。

## 2.3 標準試料および測定試料

ウラン・トリウムに対する標準試料は、U. S. AEC の New Brunswick Laboratory より輸入したもので前者は Pitchblende を、後者は Monazite Sand をおのおの Dunite で希釈したものである。これらはともに平衡状態にある。ラジウムは北投石を使用した。これはウラン系列のうち <sup>226</sup>Ra 以下の各元素を平衡状態の形で含有していると仮定している。カリウムは臭化カリを使用した。測定試料は40メッシュに粉碎したものを用い標準試料とともに井戸型に作られた真鍮製試料容器にそれぞれ220g ずつ密封しラドンに関する放射平衡を得たのち測定に使用した。標準試料のガンマ線シンチレーションスペクトルを図示する (第3図)。

## 2.4 分析の原理および方法

試料のウラン・ラジウム・トリウム・カリウムの含有率をそれぞれ、[U] [Ra] [Th] [K], あらかじめ定められた各チャンネルの計数率を  $I_1 I_2 I_3 I_4$  とし、ウラン・ラジウム・トリウム・カリウムの  $I_i$  への寄与を  $\alpha_i \beta_i \gamma_i \delta_i$  とすると

$$\begin{pmatrix} I_1 \\ I_2 \\ I_3 \\ I_4 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \alpha_1 & \beta_1 & \gamma_1 & \delta_1 \\ \alpha_2 & \beta_2 & \gamma_2 & \delta_2 \\ \alpha_3 & \beta_3 & \gamma_3 & \delta_3 \\ \alpha_4 & \beta_4 & \gamma_4 & \delta_4 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} [U] \\ [Ra] \\ [Th] \\ [K] \end{pmatrix} \dots\dots\dots(1)$$

の形で表わされる。これから未知数 [U] [Ra] [Th] [K] を求める

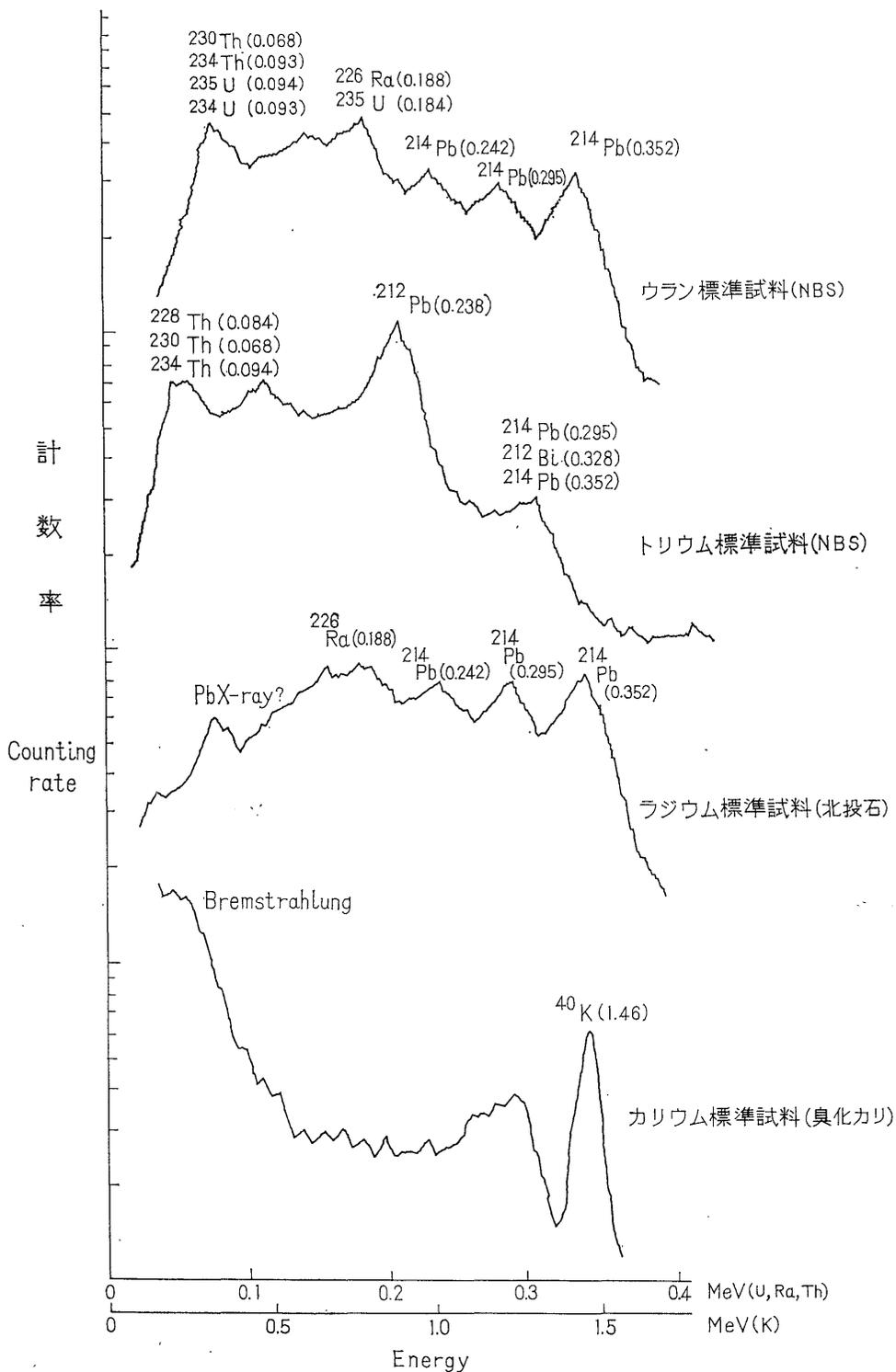
$$[U] = \frac{1}{D} \begin{vmatrix} I_1 & \beta_1 & \gamma_1 & \delta_1 \\ I_2 & \beta_2 & \gamma_2 & \delta_2 \\ I_3 & \beta_3 & \gamma_3 & \delta_3 \\ I_4 & \beta_4 & \gamma_4 & \delta_4 \end{vmatrix} \quad [Ra] = \frac{1}{D} \begin{vmatrix} \alpha_1 & I_1 & \gamma_1 & \delta_1 \\ \alpha_2 & I_2 & \gamma_2 & \delta_2 \\ \alpha_3 & I_3 & \gamma_3 & \delta_3 \\ \alpha_4 & I_4 & \gamma_4 & \delta_4 \end{vmatrix} \dots\dots\dots(2)$$

$$[Th] = \frac{1}{D} \begin{vmatrix} \alpha_1 & \beta_1 & I_1 & \delta_1 \\ \alpha_2 & \beta_2 & I_2 & \delta_2 \\ \alpha_3 & \beta_3 & I_3 & \delta_3 \\ \alpha_4 & \beta_4 & I_4 & \delta_4 \end{vmatrix} \quad [K] = \frac{1}{D} \begin{vmatrix} \alpha_1 & \beta_1 & \gamma_1 & I_1 \\ \alpha_2 & \beta_2 & \gamma_2 & I_2 \\ \alpha_3 & \beta_3 & \gamma_3 & I_3 \\ \alpha_4 & \beta_4 & \gamma_4 & I_4 \end{vmatrix}$$

ただし

$$D = \begin{vmatrix} \alpha_1 & \dots & \dots & \dots \\ \dots & \beta_2 & \dots & \dots \\ \dots & \dots & \gamma_3 & \dots \\ \dots & \dots & \dots & \alpha_4 \end{vmatrix}$$

ここでは  $\alpha_i \beta_i \gamma_i \delta_i$  は測定装置、試料の形状、吸収係数等で決まる。粉末試料の見掛密度がほぼ一定しているので、この係数は常数として取り扱った。各係数を標準試料で決定したうえ、測定試料による  $I_i$  を計数し、(2) 式を計算すれば、おのおのの含有率が決まる。計数チャンネル  $i$  での位置は、ある1つの系列またはグループのガンマ線シンチレーションスペクトルの特徴的な光電ピークを中心とした位置をとっており、他の系列またはグループによる計数の寄与が小さくなるように考慮している。ウラン系列、トリウム系列の各元素のおもなガンマ線のエネルギーについては、SEABORG<sup>7)</sup> のアイソトープ表を参照した。  $I_1$  はウラングループ <sup>234</sup>Th, <sup>234</sup>U の93 KeV,  $I_2$  はトリウム系列 <sup>212</sup>Pb の238KeV,  $I_3$  はラジウムグループ <sup>214</sup>Pb の295KeV の光電ピークを計数する位置においた。チャンネル幅はおのおの 36KeV とした。  $I_4$  は <sup>40</sup>K の1.46 MeV を中心とした位置におき、チャンネル幅は170KeV とした。ウラングループが平衡でない場合、原理的には、<sup>230</sup>Th についての計数チャンネルを、またラジウムグループが平衡でない場合、<sup>210</sup>Pb 以下についてさらに計数チャンネルを設けるべきである。しかし、<sup>230</sup>Th のガンマ線が微弱で、かつ分岐率20%、エネルギー 68KeV のガンマ線はスペクトルへの寄与が小さい。またラジウムグループに関しては比較的短期間で平衡に達し、<sup>214</sup>Pb, <sup>214</sup>Bi の寄与が圧倒的に大きいこと、<sup>210</sup>Pb のガンマ線が微弱で 47KeV のガンマ線もスペクトルへの寄与がないこと、<sup>210</sup>Pb の79KeV のガン



第 3 図 128 チャンネル波高分析器による標準試料のガンマ線シンチレーションスペクトル  
Gamma ray spectra of standard samples by 128 channel pulse height analyzer

マ線が微弱であることから、分析試料のウラン・ラジウム両グループの平衡を仮定してもかなりの信頼度が予想される。

なお、HURLEYが3チャンネルの計数による分析法を提唱した後、WHITFIELD<sup>8)</sup>らは計数チャンネルとして、2.62MeV (<sup>208</sup>Tl), 1.76MeV (<sup>214</sup>Bi), 1.46MeV (<sup>40</sup>K)を使用し、さらに0.6MeVをチェックのため計数している。計数率が相対的に小さい高エネルギー部を測定するため計数時間を長くするとともに、試料 350g を用い"3×3" NaI (Tl)をもつ大型の検出器で計数の減少を防ぎ、かなりの精度を得ている。コンプトン散乱線の

影響を少なくするためウランに対する計数チャンネルとして高エネルギー部を使用することは確かに合理的である。しかしウラン系列の非平衡を考慮している今回の測定では、ウラングループに特有な光電ピークを計数する必要があるので必然的に低エネルギー部を使用した。

花崗岩についての分析結果例を化学分析の結果と比較して第1表に示した。誤差は標準試料の各元素含量に0.5%の誤差があり、計数値には統計的変動による誤差があるものとして、(2)によって計算したものである。

第1表 花崗岩の分析例 (放射能分析と化学分析)

Comparison of radiometric analysis with chemical analysis

試料名	γ-ray analysis				Chemical analysis			
	U (ppm)	Th (ppm)	Ra (10 <sup>-12</sup> g/g)	K (%)	U (ppm)	Th (ppm)	Ra (10 <sup>-12</sup> g/g)	K (%)
TG-2	5.1±2.0	16.2±3.2	0.9±0.5	3.3±0.4				3.2**
HS-5	6.6±2.5	17.8±2.7	1.3±0.6	4.8±0.5	5.0**	<10**		
HS-11	7.4±4.6	23.3±3.5	3.6±1.2	3.5±0.5	8.4**	<10**		
Chelmsford Granite S.S. No. 4979	7.3±2.9	17.8±3.0	4.2±0.8	4.7±0.4	8.4**	17.2**	2.9***	4.5***
NG-46*	27.6±4.2	21.3±4.5	7.7±1.3	5.2±0.7	17**	16**		
NG-55*	40.8±5.2	25.8±5.8	11.0±1.6	3.7±0.7	32**	18**		

注) γ-ray による結果は標本平均および標準偏差

\* 人形峠中津河鉱床の坑内基盤花崗岩

\*\* 地質調査所技術部において分析

\*\*\* N. B. S. 資料

### 3. 測定試料

測定を行なった人形峠・広島・朝日岳・足尾の各地域の花崗岩体について略記する。

#### 3.1 人形峠地域

鳥取県倉吉・三朝・人形峠に至る鳥取県中南部地域および奥津・恩原・倉見地区を含めた岡山県北部地域をさし、いわゆる山陰花崗岩が分布している。村山<sup>4)</sup>・山田<sup>9)</sup>は、その侵入時期によってこれを3区分しているのをこれを参考にして、この地域を峠・小鴨・三朝・倉見の4地区に区分した(第4図)。村山・山田の報告に基づいて各地区の花崗岩を略述する。

##### 3.1.1 峠地区

岡山県人形峠・奥津・上斎原・鳥取県木地山・座性寺・田代付近を指す。花崗岩は底盤状に貫入していて、主体は第二期侵入の閃雲花崗閃緑岩で、中性から酸性へ中粒から粗粒へと岩相の変化を示している。

##### 3.1.2 小鴨地区

上井、倉吉、関金にかける一帯の花崗岩は第三期侵入

のいわゆる小鴨花崗岩で、中・粗粒の黒雲母花崗岩を主体としている。

##### 3.1.3 三朝地区

東郷、三朝温泉、麻畑付近を指し、小鴨地区と類似した花崗岩が分布している。

##### 3.1.4 倉見地区

岡山県加茂町倉見川流域、険所峠、鳥取県用ケ瀬付近を指している。花崗岩の調査結果はほとんど未発表であるが、峠地区の第二期侵入花崗岩に属するようである。

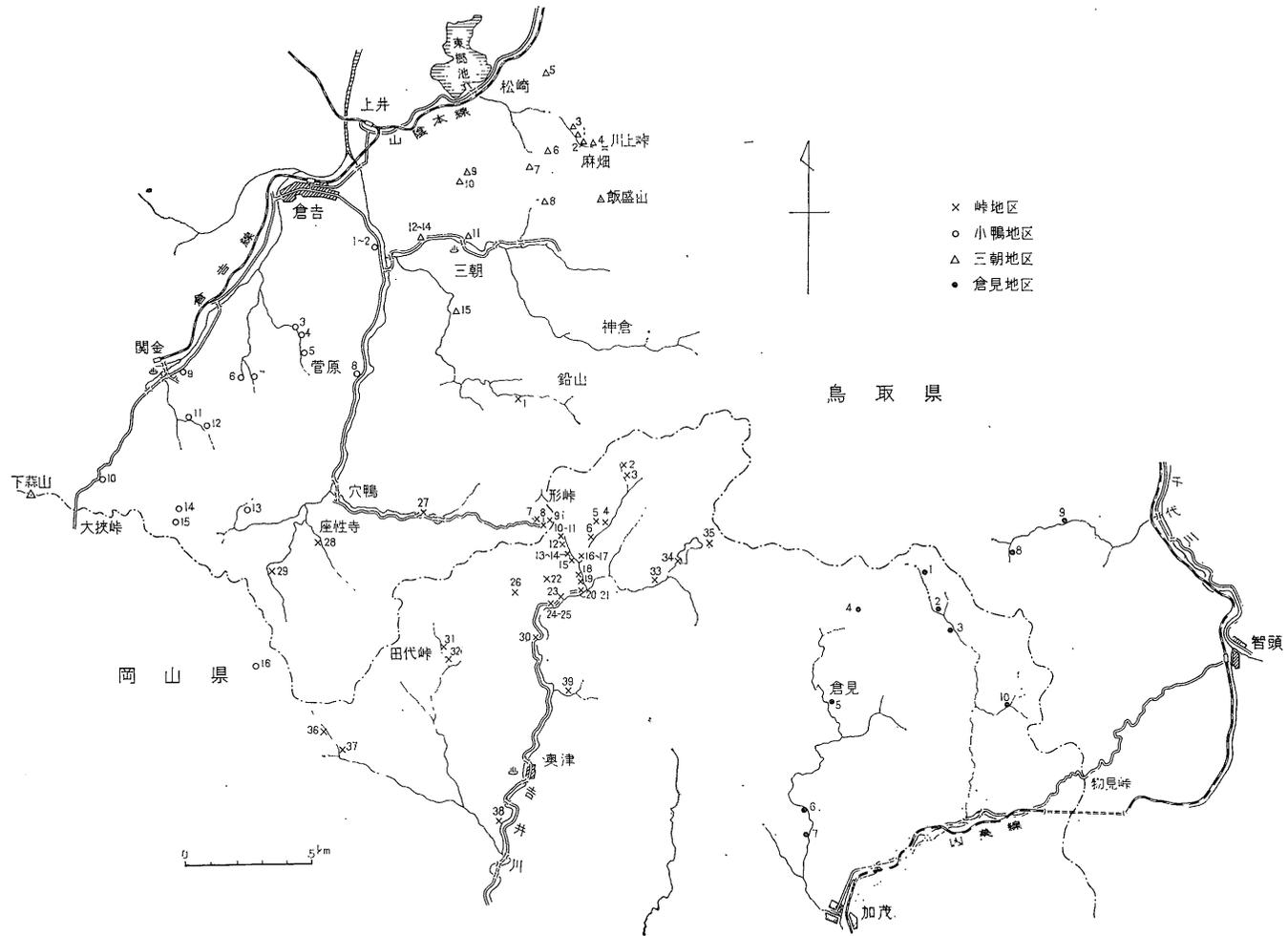
#### 3.2 広島地域

広島市周辺から呉・尾道・福山・岡山に至る黒雲母花崗岩を主体とする底盤体で、広島花崗岩と呼称されている。岩相は深さ、壁岩からの距離に対応して、細・中・粗粒相に変化している。

#### 3.3 朝日岳地域

##### 3.3.1 小国地区

新潟県金丸・下関・中東・山形県小国町・長井市木地山付近を指す。主として斑状花崗岩・花崗閃緑岩・細粒花崗岩からなる。これらを覆う第三系中新世堆積物に含



第4图 人形峠地域試料採集位置图  
Sampling localities

ウラン砂層が認められている。

状細粒花崗閃緑岩が大部分を占める。

3.3.2 長井地区

長井市赤湯付近では、阿武隈新期花崗岩に属する中粒

花崗閃緑岩・黒雲母花崗岩が分布する。

3.4 足尾地域

群馬・栃木県境付近に分布する貫入型花崗岩で、沢入花崗岩と称されている。粗粒および斑状花崗閃緑岩・斑

4. 分析結果

4.1 新鮮な試料についての結果

分析結果を第2表および第5, 6図に示した。

4.1.1 ウラン

1) 人形峠地域

第2表 本邦花崗岩の U, Th, Ra, K の含有率  
Uranium, Thorium, Radium and Potassium contents of granitic rock samples in Japan.

地 域	試料数	U (ppm)*	Th (ppm)*	Ra (10 <sup>-12</sup> g/g)*	K (%)	備 考 (報 告 者)	
人 形 峠	29	4.1±2.1	17.8±5.9	1.3±1.0	2.5±0.7	著 者	
	小 鴨	7	4.4±1.9	19.3±3.5	1.2±0.5	"	
	三 朝	7	5.3±2.0	17.7±4.5	1.0±0.9	"	
	倉 見	6	3.2±1.9	15.1±2.9	0.9±0.4	"	
広 島	17	3.9±2.7	17.2±6.1	1.0±0.6	2.6±0.5	"	
朝 日 岳	小 国	14	5.6±2.1	16.0±6.0	1.1±0.8	3.2±0.9	"
	長 井	4	2.5±1.0	10.7±3.6	0.9±0.5	2.0±0.6	"
足 尾	16	4.6±2.0	14.1±2.5	1.2±0.7	3.0±0.7	"	
阿 武 隈 新 期	11	3~6				佐藤源郎他	
朝 日 岳	9	3.4				島津光夫他***	
領 家 新 期	10	2~9				佐藤源郎他	
愛 知 ・ 岐 阜	14	4.6				**	
山 陽	13	2~8				佐藤源郎他	
因 美	10	2~10				"	
高 縄 半 島	3	3.4				**	
西 日 本 外 帯	10	3~7				佐藤源郎他	
鹿 川	4	4.0				野沢保他***	
南 九 州 外 帯	10	3.6				河内洋佑他***	
大 隅 半 島	5	5.0				**	
西 日 本 内 帯	27			1.49		浅山哲二	
比 叡 山	14			1.25		"	
田 ノ 上	13			2.04		"	
三 段 雲	11			0.86		"	
対 戸 島	10			0.57		"	
大 崩 山	5			1.22		桃井 斉	
市 房 山	5			1.83		"	
紫 尾 山	5			0.92		"	
内 之 浦	6			1.94		"	
	6			1.58		"	
北 上	15				1.8	****	
筑 波	37				3.2	****	
足 尾	35				3.0	****	
瀬 戸 内 海	16				2.7	****	
田 ノ 上	26				3.1	****	
Silicic intrusive (with compilation)	?	3~4	10~15			J.A.S. Adams	
Granitic rock (Canada and U.S.A.)	49	3	11		2.7	J.M. Whitfield	

\* 標本平均および標準偏差で示したもの。その他は平均値または変域  
\*\* 地質調査所技術部において分析

\*\*\* 原論文より計算  
\*\*\*\* 本邦産花崗岩質岩石の化学成分 (地質調査所版) より抜萃

49個の試料を得たがこのうち峠地区は比較的標本数が多い。含有率の頻度分布は比較的単純で平均値よりやや低い部分に極大を示す。小鴨・三朝両地区はともに7個の試料についての結果であるが、前者は峠地区とあまり変わらず、0~8 ppmの変域を有し、後者はこの地域でもっとも高い平均含有率5.3ppmが認められ、4~6ppmに極大を有する。倉見地区は以上の地区と比較すると一般に低い。

2) 広島地域

広島地域からは20個の新鮮な試料を得た。このうち3個はペグマタイト質花崗岩およびアプライト質花崗岩で

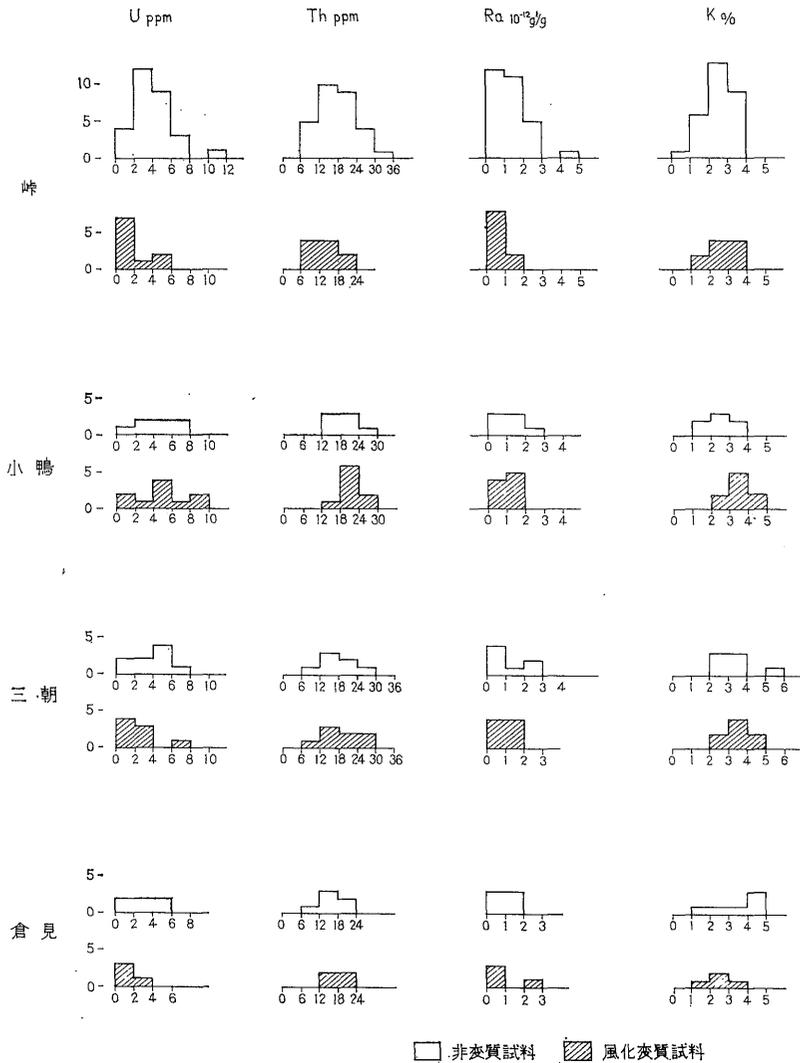
あるので、これらを除外した17個の結果が示してある。含有率のパラツキが著しく0~10 ppmに分布し、標準偏差も大きい。2個の極大が認められる。

3) 朝日岳地域

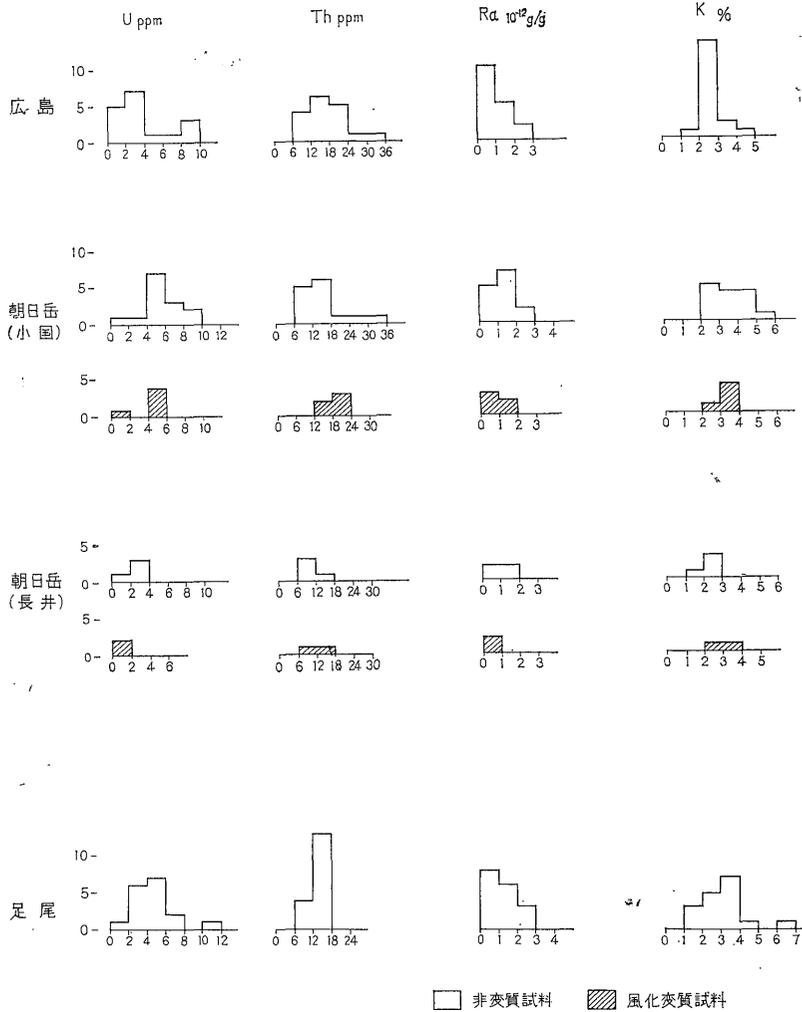
小国地区では14個の試料について、0~10 ppmに分布し、4 ppm以上を示す場合が多い。4~6ppmに極大を有し平均値は人形峠地域よりも高い。長井地区の試料は中性岩に近いので4個とも3 ppm以下である。

4) 足尾地域

試料17個のうち1個は岩体周縁部のアプライト質花崗岩であり、含有率も10ppmで高い。これを除外する



第5図 人形峠地域花崗岩のU, Th, Ra, Kの含有率頻度分布  
Histograms of the contents of Uranium, Thorium, Radium, and Potassium in granitic rocks in Ningyō-tōge area



第 6 図 本邦諸地域花崗岩の U, Th, Ra, K の含有率頻度分布

Histograms of the contents of Uranium, Thorium, Radium and Potassium in granitic rocks in Japan

と、分布の変域は 0~8ppm となり、平均値は峠・小鴨地区と差異はない。

#### 4.1.2 トリウム

##### 1) 人形峠地域

峠地区・三朝地区ともに平均値は類似している。峠地区では分布の変域は 9~35ppm で広く、極大は低い側に寄っている。三朝地区もこれと似た分布をしている。小鴨地区はこれらの地区と比較して高く、また倉見地区は低い。

##### 2) 広島地域

6~36ppm に分布し、12~18ppm に極大を有する。平均値は 17.2ppm で峠・三朝地区のそれと変わらない。

##### 3) 朝日岳地域

小国地区では 6~36ppm に分布するが極大は低い方に寄っており、ほとんどが 6~18ppm である。長井地区は 6~18ppm の変域を示すが、全般に著しく低い。

##### 4) 足尾地域

含有率は低く、そのほとんどが 12~18ppm でバラツキが小さく、標準偏差は 2.5ppm で他に比較して著しく小さい。

#### 4.1.3 ラジウム

##### 1) 人形峠地域

峠地区ではそのほとんどが  $0 \sim 3 \times 10^{-12}$ g/g に分布する。小鴨・三朝両地区とも変域は  $0 \sim 3 \times 10^{-12}$ g/g

であるが、後者は不規則な分布の型をしている。倉見地区では  $0 \sim 2 \times 10^{-12} \text{g/g}$  である。

#### 2) 広島地域

$0 \sim 1 \times 10^{-12} \text{g/g}$  に分布の極大を有する。

#### 3) 朝日岳地域

小国地区では  $0 \sim 3 \times 10^{-12} \text{g/g}$  の変域を有し、 $1 \times 10^{-12} \text{g/g}$  に極大を有する。長井地区は  $0 \sim 2 \times 10^{-12} \text{g/g}$  に分布する。

#### 4) 足尾地域

峠地区・広島地域と類似した分布を示す。

#### 4.1.4 カリウム

##### 1) 人形峠地域

峠・小鴨両地区ともに  $2 \sim 3\%$  に極大を有し、三朝地区ではその大部分が  $2 \sim 4\%$ 、倉見地区では  $1 \sim 5\%$  に分布し、 $4 \sim 5\%$  に極大を示す。

##### 2) 広島地域

$2 \sim 3\%$  に著しく集中している。

##### 3) 朝日岳地域

小国地区では、そのほとんどが  $2 \sim 5\%$  にまた長井地区では、 $1 \sim 3\%$  に分布する。

##### 4) 足尾地域

分布の変域は広く、 $1 \sim 7\%$  であるが、 $3 \sim 4\%$  に極大を有する。

以上が今回測定した新鮮な露頭試料による結果の大略である。各元素の含量の間に大きな変動は認められないが、三朝・小国両地区のウランがやや高いことが注目される。長井地区が各元素ともに低いのは、岩相が閃緑岩に近いことから肯ける。

#### 4.2 本邦産花崗岩との比較

従来本邦産花崗岩についての天然放射性元素の分析試料は比較的少なく、とくにトリウムについては見当らない。ここでは主として国内文献による資料および今回の結果を第2表に示した。標本も限られたものであり、また根本的には採集位置の地質条件の相違を検討すべきである。一方、分析方法の相違についてもなお問題をのこしているけれども、概略的な比較はできると考えられる。一般に岩石中の微量元素の分布は正規型よりもむしろ対数型あるいは二項型の分布を示すといわれており、前節の結果もそれを表わしているように考えられる。したがって、平均値をもってある岩体または地域の平均を表わすことには適切でないかも知れない。しかし、試料数が少ない場合には分布型を推定することが困難であり、平均値を用いても以下の議論には差支えないと考えられる。ウランはそれぞれの平均、変域から、三朝・小国地区を除外すると各地域の結果と今回の結果との間に

著しい差異はないと考える。とくに試料数の比較的大きい愛知・岐阜地域あるいは南九州外帯の平均値がそれぞれ、4.6ppm, 3.6ppm であることはとくにこの傾向を強くする。堆積型および鉱脈型ウラン鉱床に関連する、峠・小鴨地区はきわめて平均的な含有率といえる。なお、大隅半島地域の試料には高隈山の標本が加えられているので平均値はやや高い。

ラジウムに関しては、今回の結果は  $0.9 \sim 1.3 \times 10^{-12} \text{g/g}$  であって、地質的に特殊な田ノ上(ペグマタイト)を除いて比較すると今回の結果の方が低い。しかし早瀬<sup>2)</sup>は、本邦花崗岩のラジウム含量について、 $1 \times 10^{-12} \text{g/g}$  前後のものが普通であると総括していることから、これらも普通の値といえよう。

カリウムは長井地区・北上地域の低い値は例外として、他は変動が小さい。

これらをADAMS<sup>1)</sup>らが総括した値、あるいはWHITFIELD<sup>8)</sup>らが分析した値と比較すると全般にトリウム含有量の高いことが目立つ。

#### 4.3 U/RaおよびTh/U

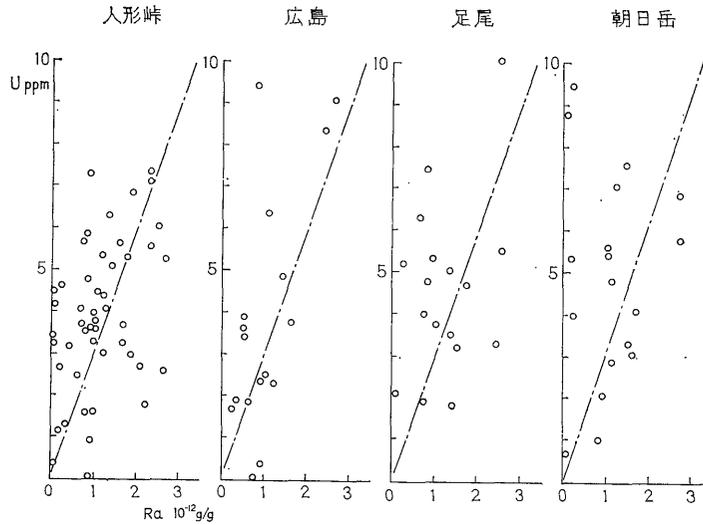
U/Ra については、ウラン—ラジウム含有率関係図上の点が理論的な平衡関係よりずれている場合がある(第7図)。これはラジウムの分析の相対誤差が、他の成分のそれとくらべて大きいことにもよるが、想像されたように見掛け上新鮮な試料とされていても、ウラン系列<sup>228U~226Ra</sup>間の平衡が成立しないことにもよっている。

Th/U は本来それが岩漿分化に関連して、種々の値が報告されている。ADAMS<sup>1)</sup>によると Siliceous rock では  $2 \sim 6$  で平均  $3 \sim 4$ 、WHITFIELD<sup>8)</sup>による49個のgranitic rock の平均は4.4である。自然におけるウランの溶脱から多少本来の値から大きくなっていることもあろうが、今回得られた山陰花崗岩および広島花崗岩の平均的な値は約4であり、上述の範囲に入る。足尾・朝日岳地域では3.3および2.5に平均化され、山陰花崗岩はこれらの値に比較すると、トリウムに対しウラン含有量が小さいといえる(第8図)。

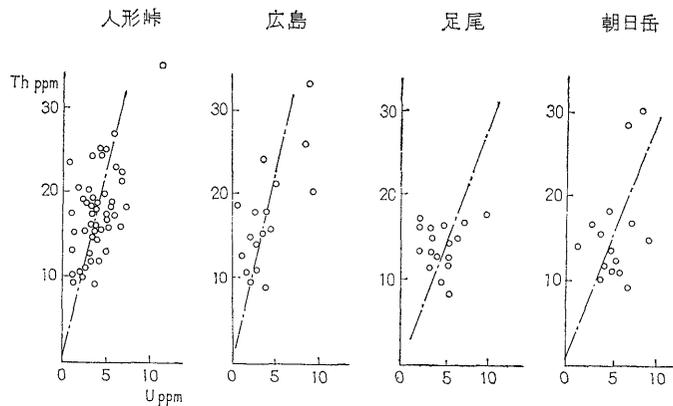
#### 4.4 風化変質花崗岩についての結果

##### 4.4.1 ウラン

一般に花崗岩が風化するとウランの溶脱が行なわれ、含量は新鮮なものにくらべ小さくなる(第3表)。峠地区では著しく低減し、分布の極大は  $0 \sim 2 \text{ppm}$  に変動し、平均値は1.5ppmとなる。三朝・倉見地区においても同様の傾向がある。また小国地区においても多少ではあるが減じている。小鴨地区のみは減少は認められない。



第7図 花崗岩の U-Ra 関係  
Relation between Uranium content and Radium content



第8図 花崗岩の Th-U 関係  
Relation between Thorium content and Uranium content

第3表 風化変質花崗岩の U, Th, Ra, K の含有率  
Uranium, Thorium, Radium and Potassium contents of weathered granitic rock samples

地 域	試料数	U (ppm)	Th (ppm)	Ra (10 <sup>-12</sup> g/g)	K (%)	
人形峠	峠	10	14.5±5.0	0.6±0.4	2.5±0.7	
	小鴨	9	4.7±2.4	21.4±3.0	1.1±0.5	3.4±0.6
	三朝	8	2.3±1.8	18.5±5.9	0.9±0.6	3.5±0.6
	倉見	4	1.5±1.2	16.6±3.3	0.9±0.5	2.5, 0.7
朝日岳	小国	5	4.4±1.4	17.0±3.0	0.8±0.6	3.2±0.4
	長井	2	0.1, 2.0	11.4, 14.1	*0, 0.1	2.6, 3.0

注) 長井地区を除いては標本平均値および標準偏差  
\* 検出限界以下

#### 4.4.2 トリウム

風化に際してトリウムの変動は一般に小さい。それは低い溶解性と、水酸化物の二次的な固定とによるものとされている。今回の結果においても峠地区において減少しているほかは、ほとんど変化がないか、あるいは見掛け上増加している。これは溶出され易い他の成分が失われた結果生じた相対的な現象と考えられる。

#### 4.4.3 ラジウム

ラジウムも一般に変動は小さい。しかし峠地区における減少は顕著で、 $1 \times 10^{-12} \text{g/g}$  以下の場合が多く、平均値は  $0.6 \times 10^{-12} \text{g/g}$  となる。小国地区でも多少減少している。

地表の風化作用でラジウムが減少する場合  $^{238}\text{U}$  が溶出したのち、平衡量より過剰の  $^{234}\text{Th}$  または  $^{226}\text{Ra}$  が漸

次崩壊した結果と考えられる。しかし今回の峠地区の結果では、ラジウムの減少の割合が大きいこと、あるいは風化変質したときから現在までの時間が $^{234}\text{Th}$ または $^{226}\text{Ra}$ の半減期に比較して、おそらく短かいと考えられる点から、 $^{238}\text{U}$ ・ $^{226}\text{Ra}$ は個々に溶出したのではないかと思われる。

4.4.4 カリウム

一般にカリウムは地表面の化学的環境の下では安定な二次鉱物として普通に存在し、 $\text{K}_2\text{O}$ の形として失われ難いとされている。今回の結果においても、この傾向が充分認められ、風化による変動が小さい。とくに小鴨地区では見掛け上では増加している。

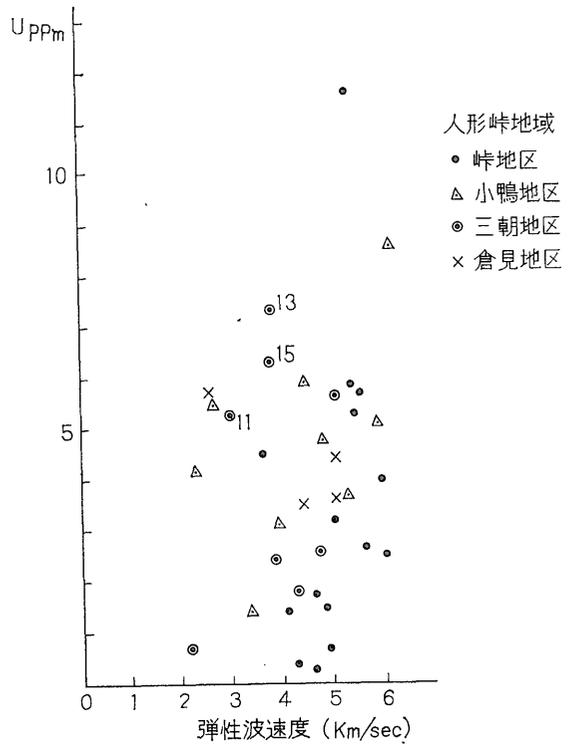
試料の分析に際しては肉眼的にみて新鮮なものと、風化変質したものとに二分して扱ったが、後者については予想したようにウランの減少が明らかとなり、一部の地域ではラジウムの減少が認められた。また、ラジウムの不変に対し、ウランのみの溶脱減滅の認められた地区がある。このように風化の影響も地域によって変化することが明らかになった。

5. 風化変質に伴う弾性波速度とウラン・トリウム含量の変化

肉眼的にみた場合の風化変質による含量の変化の概略を検討したので、人形峠地域の試料の一部について、風化変質の進行度を物理量として測定し、ウラン・トリウム含量との関連をしらべた。肉眼的に風化変質が進んでいる試料ほど、弾性波伝播速度が減少することがほぼ明らかであるので、超音波法による速度測定を行なった。

速度とウラン含量との関係を第9図に示す。3km/sec以下の試料数は少ないので、充分な資料とはいえないが、比較的明らかな傾向は、4~5 km/secの速度を有する峠地区の試料のウラン含量が、5 km/sec以上のそれと比較して急激に低くなっていることである。三朝地区においては、3~4 km/secの速度を有し、かつ5ppm以上の含有率を示す試料はいずれも三朝温泉付近からのものであり(試料No. 11, 13, 15)、むしろ小鴨地区に近い。これらを除外すると、麻畑、川上峠付近の試料では、速度の減少とともにウランの減少する傾向が、峠地区と類似している。

峠地区を除いた山陰花崗岩あるいは小国地区ですでに認められたように、風化変質作用はトリウムを量的に溶脱移動させることは比較的少ない。トリウムの含有状態が不変であるとして、ウランの変動を $\text{Th}/\text{U}$ で表わし、弾性波速度との関連を第10図に示す。峠地区の4~5 km/secの速度を有する試料は、5~6 km/secの



第 9 図 弾性波速度とウラン含有率  
Elastic wave velocity and uranium content

それと比較して $\text{Th}/\text{U}$ が大となり、わずかの風化変質によるウランの急激な減少がこのような検討法からもうかがえる。また、三朝地区でも前記3個の試料を除くとやはりこの傾向がみられる。このように人形峠地区あるいは三朝地区の麻畑鉱床付近の花崗岩が風化の初期にウラン溶脱が効果的であることは、将来ウラン鉱床探査に何らかの指針を与えるかもしれない。

6. 坑内における基盤花崗岩のウラン・ラジウム・トリウム含量

ウラン鉱床近傍の花崗岩、とくに坑内の不整合面付近の試料について、ウラン・トリウム等の含有状況をしらべた。試料採集は人形峠鉱山中津河鉱床および峠鉱床、東郷鉱山麻畑鉱床において行なった。採集位置を2区分し、不整合面からの深度2m以下を沿層坑道、その他を探鉱坑道とかりに名づけた。分析結果を第4表に示す。結果について次に列挙しよう。

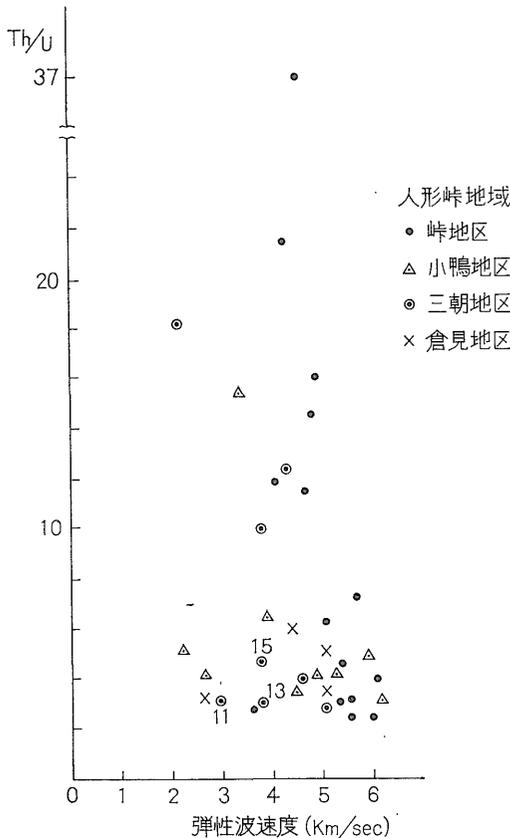
(1) 中津河鉱床、麻畑鉱床坑内探鉱坑道の新鮮な試料のウラン平均含量はおのおの3.5ppm, 4.2ppmであり、これらは鉱床基盤花崗岩本来のウラン含量として考えてよいであろうが、山陰花崗岩の一部として、特異な

第4表 坑内花崗岩の U, Th, Ra, K の含有量  
Uranium, Thorium, Radium and Potassium contents of granitic rock samples at drifts of uranium deposits

鉍山	鉍床	位置 (坑道)	採集状況	試料数	U (ppm)	Th (ppm)	Ra ( $10^{-12}g/g$ )	K (%)
人形峠	中津河	探鉍	新鮮	34	3.5±2.3	17.8±3.8	0.7±0.8	3.1±0.8
			質	9	2.3~48	9.4~26.0	0.1~13.2	1.5~4.0
	沿層	新鮮	11	3.8~89	13.2~24.1	0.9~48	3.5~7.5	
		質	9	6.4~78	20.0~25.8	2.2~34	3.7~7.8	
	峠	探鉍	新鮮	7	5.8±2.3	17.0±6.0	1.3±1.1	4.0±1.2
			質	2	2.6, 19.2	13.1, 18.1	0.1, 8.4	0.9, 1.0
沿層	新鮮	9	2.2~78	11.1~32.0	0.6~22	2.5~5.9		
	質	10	2.7~2200	0*~34	0.7~700	0*~4.7		
東郷	麻畑	探鉍	新鮮	23	4.2±1.9	19.0±4.1	0.4±0.5	2.3±0.8
			質	18	1.4~8.7	10.5~30.3	0*~2.1	0.8~3.6
	沿層	新鮮	1	3.0	14.1	1.5	2.0	
		質	3	2.1~5.3	18.9~23.9	0*	2.1~2.5	

注) 標本平均値および標準偏差

\* 検出限界以下



第10図 弾性波速度と Th/U  
Elastic wave velocity and Th/U

ものであるとは考えられない。一方峠鉍床探鉍坑道の一部の試料では、7~9 ppm を示し平均は 5.8 ppm と高く、必ずしも山陰花崗岩の一般的な値に類しない。基盤花崗岩にウラン鉍床と関連のあるウラン高含有率部が存在し特異なものであるかもしれない。

(2) 露頭試料では、風化変質とともにウランは一般に減少していたが、坑内試料では増加する場合がしばしばある。人形峠鉍山の不整合面付近および探鉍坑道の風化変質試料の一部では、ウラン含有率が著しく高くなり、酸化帯の燐灰ウラン石胚胎部下部においても著しい。これらがウラン鉍床生成胚胎に関して同時的なものか、後生的なもの、例えば、鉍床から溶脱したウランによる汚染であるかは不明である。なお麻畑鉍床試料では、このような高ウラン含有状態のものは認められない。

(3) 探鉍坑道の新鮮な試料についてのラジウム含量は、中津河鉍床においてやや低く、また麻畑鉍床において著しく低く平均  $0.4 \times 10^{-12}g/g$  である。これは花崗岩からきわめて容易にラジウムが溶出した結果であるか、あるいは仮定している放射平衡以外の状態にあるため、見掛け上ラジウム含量が小さくなっていることも考えられるが、いずれか明白でない。

(4) 坑内各所におけるトリウム含量は、坑外の露頭試料のそれと類似した値を示している。すなわち、各探鉍坑道の新鮮な試料の平均はいずれも 17~19 ppm であって標準偏差も小さい。

(5) 一般に金属鉱床では、地球化学的な元素の含量の分布の型は対数正規分布ないしは、二項分布に近い分布をするといわれているが、中津河鉱床の探鉱坑道におけるように、比較的狭い範囲から相当多数の新鮮な試料が得られた場合に限って統計すると、ウランは二項分布型、トリウムは対数正規分布型を示す。

## 7. 結 論

人形峠鉱山、東郷鉱山付近の山陰花崗岩、その他本邦産の2、3の花崗岩体からの試料について、ガンマ線エネルギー分析によって、ウラン・トリウム・ラジウム・カリウムの分析を行なった。結果を総括すると、

(1) 風化変質した花崗岩はもちろんであるが、見掛け上新鮮な試料とみなされても、予想したように $^{238}\text{U}$ — $^{226}\text{Ra}$ 間の非平衡が認められた。

(2) ウラン含量として今回の結果は、他の本邦花崗岩のそれと比較して、ほとんど平均的な値を示し、三朝・小国地区でわずかに高くなっているにすぎない。したがって人形峠鉱山の後背地の花崗岩がとくにウランを多量に含有しているとは考えられない。鉱床に近い坑内花崗岩についても、これとほぼ同様のことをいいうる。

(3) Th/Uを足尾・朝日岳地域と較べると、人形峠地域のそれの方が大きい。

(4) 花崗岩が風化変質することによって、一般にウランは溶脱して含量が減るが、とくに峠・三朝地区で目立つ。このことはウラン、あるいはTh/Uと風化変質の度合を表わす弾性波伝播速度との関係からもわかる。

基盤花崗岩のウランの溶脱の容易さは、ウラン鉱床の成因に何らかの関係があるかもしれない。

一部の地域ではウランとともにラジウムも減少することが認められた。

(5) 露頭試料、坑内試料ともにトリウムの含量は風化変質による変動が小さい。

## 文 献

- 1) ADAMS, J. A. S., OSMOND, J. K. & ROGERS, J. J. W. (1959): The Geochemistry of Thorium and Uranium, *Physics and Chemistry of the Earth*, vol. 3, Pergamon Press (London).
- 2) 早瀬~ (1957): 岩石放射能——特に日本の花崗岩の放射能について——, 地学雑誌, vol. 66, no. 3
- 3) HURLEY, P. M. (1956): Direct Radiometric Measurement by Gamma-ray Scintillation Spectrometer. *Bulletin of Geological Society of America*, vol. 67, p.395~412.
- 4) 村山正郎・大沢穠 (1961): 5万分の1地質図「倉吉」および同説明書, 地質調査所
- 5) ROSHOLT, J. N. (1959): Natural Radioactive Disequilibrium of the Uranium series, Washington, U.S. Govt. Print. Off.
- 6) 佐野俊一・高橋且 (1959): ガンマ線の波高分析による自然放射性元素の分析, 第3回原子力シンポジウム報文集
- 7) SEABORG et alv. (1953): Table of Isotopes. *Review of Modern Physics*, vol. 25. no. 2, p. 469~651.
- 8) WHITFIELD, J. M. ROGERS, J. J. W. & ADAMS, J. A. S. (1959): The Relationship between the Petrology and the Thorium and Uranium contents of some Granitic rocks. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, vol. 17, p. 248~271.
- 9) 山田直利 (1961): 5万分の1地質図「奥津」および同説明書, 地質調査所