

人形峠ウラン鉱山，中津河鉱床南部鉱体の 微量元素について*

渡 辺 晃 二

岡山大学温泉研究所 地質学部門

1. 緒 言

人形峠鉱山，中津河鉱床（岡山県苫田郡上斉原村）は，その規模・鉱量からみて，本邦ウラン鉱床の代表的な存在であり，なかでも南部鉱体は，非酸化帯の鉱石（人形石など）を主とする富鉱体である（図1，図2）。

この南部鉱体は他地域の鉱床と異なり，酸化帯に伴なう鉱石が殆んど認められない事から，初期のウラン鉱床の賦存状態を察知するに好適な鉱体と推定される。この様な観点から，主としてX線分析により同鉱体に存在するウラン鉱物や，基盤岩・母岩の変質および微量元素について検討してきたが，ここでは微量元素のうち蛍光X線分析によって定量されるU, Zr, Y, Sr, As, Fe, Mnと，比色分析によるNi, Coの分析結果について報告する。

本研究を行うにあたり，終始御指導戴いた杉山隆二教授（現在，信州大学教授）ならびに佐藤元昭助教授（現在，U. S. G. S. 研究員）に厚く御礼申し上げる。また試料採取に際し便宜を与えられた原子燃料公社人形峠出張所，ならびに分析に際して御助言戴いた奥野孝晴研究員（原子燃料公社），山本雅弘助手に深謝する次第である。

2. 鉱床概説

中津河鉱体は本鉱体と南部鉱体に分けられ（図2），人形峠鉱山における主要鉱床である。高品位鉱が基盤花崗岩直上の礫岩，砂岩層に濃集する事実は，他地域のウラン鉱床と全く同様であるが，鉱床を規制する基盤の形態がチャンネル構造を呈するというよりは，むしろ盆状構造を示すのが大きな特徴といえる。

中津河鉱床における標準層序は表1の如くで，南部鉱体は殆んど非酸化帯で占められている。産出するウラン鉱物は人形石 $[Ca_{1-x}U_{1-x}R_{2x}(PO_4)_2 \cdot nH_2O]$ 以外殆んど認められず，随伴鉱物には花崗岩の風化碎屑物，黄鉄鉱などが認められ，全体に黒色を呈している。砂礫層及

び頁岩層は殆んど水平に堆積しているので，富鉱体の中心では平均品位 $0.n\% \sim n\%$ の鉱石が水平距離数十米にわたって産出されるが，垂直的には品位は急激に劣化する。また，南部鉱体の一つの特徴は，花崗岩と共に基盤をなす岩脈類（殆んど安山岩，一部半花崗岩）が富鉱体直下に各所で認められる事である（図3）。この岩脈は小規模ながら潜丘状の形態をなし，しかも周囲の岩石に比べて選択的に粘土化が著しく，鉱床生成との関連性につ

表1. 層 序

時代	層厚 (m)	岩 相	
鮮 新 世	100 ±	輝石角閃石安山岩熔岩	
	20 ±	凝灰角礫岩	
	3 ±	凝灰質砂岩～凝灰質頁岩	
世	2 ±	頁岩，一部アルコーズ砂岩との互層	含ウラン母層
	1 ±	アルコーズ砂岩	
	1 ±	基底礫岩（主に花崗岩の礫）	
中生代		基盤角閃石黒雲母花崗岩（安山岩，半花崗岩岩脈）	

いて注目されている。

基盤岩・母岩の変質は，非酸化帯の一般的な傾向に合致し，全般的に微弱である。X線回折によって確認される粘土鉱物は，カオリナイト（結晶度不良），モンモリロナイト，およびイライトであって，カオリナイトは微量ながら普遍的に認められるのに対し，モンモリロナイトは増減が著しく，酸化帯では急激に含有量の増加が認められる。しかし，各粘土鉱物とウラン鉱化作用との関連は明確でない。また，基盤花崗岩，安山岩岩脈中には濁

*昭和40年度・日本地質学会年次総会（大阪）において同鉱体の粘土化と共に発表。

沸石化が一部で認められ、それに伴って細脈状のハロイサイトが存在する事もあるが、不整合面より上位層では確認されない。

3. 分析法

3-1 U, Zr, Y, Sr, As, Fe, Mn の定量

これらの元素はウラン鉱床の非酸化帯には常に特徴的に存在し、しかも蛍光X線分析によって容易に検出される。蛍光X線によるこの種の元素の分析法は既に武田・片山(1961)や、奥野(1964)らの報告があり、今回の分析もそれらに従った。即ち、100メッシュ以下に細磨した一定量の岩石に白色X線を照射し、励起される各元素の蛍光X線のうち、強度の最強のものを対象として(Uは $L\alpha$, 残りの元素は $K\alpha$)、シンチレーションカウンターで計測する。この際問題となるのは、(イ)共存元素が与える影響(例: Feの存在する場合の吸収効果)と、(ロ)ピークの重複による妨害(例: $ZrK\alpha$ に対する $SrK\beta_1$, $UL_{\beta 6}$ など)があるが、これらの点については標準物質による基礎実験から補正式を求めて検量した。なお、Uについては、ペーパークロマトグラフィー法(阪上, 1958)分析によるも並行して行いチェックした。

実験装置は理学電機製のものを使用し、条件は次の如くである。

40kV, 20mA, 回折結晶: LiF, Detector: Scintillation Counter, X線管球: Machlett社製 W管球, Time Constant: 2, Linear Amplifier Gain: 64~10, Pulse Height Analyzer: Integral, P. H. A. Gain: 5V.

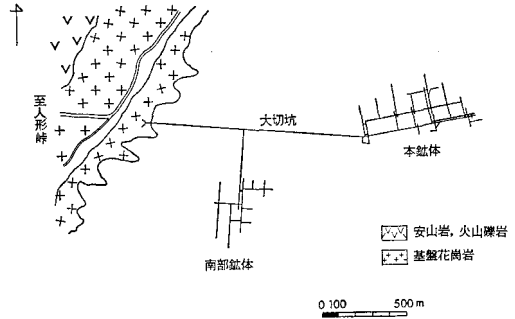


図 2. 中津河鉱床坑道図

3-2 Ni, Co の定量

南部鉱体の試料中に含有される Ni, Co は、蛍光X線分析の検出限界外であったが、鉱床成因解明に関連し注目される元素であるので、特に比色分析により定量した。

試料は細磨してフッ化水素酸および過塩素酸により分解し、Niはジメチルグリオキシムを用いて定量(柱, 1958), また Co はオルソニトロソモノメチルエーテル(鳥居, 1955)を発色剤に使用した。

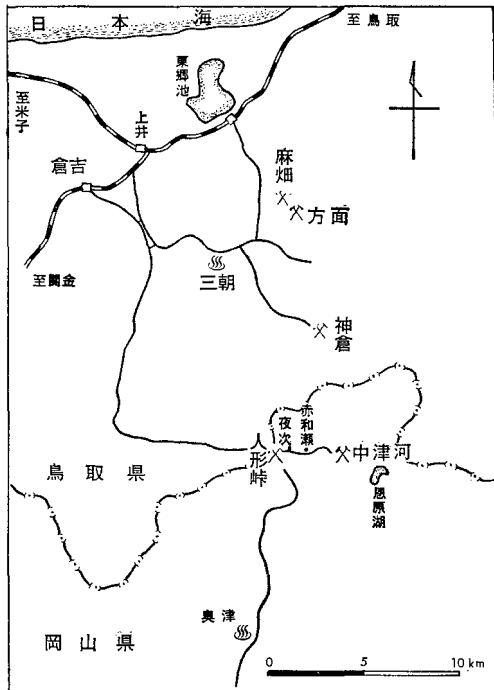


図 1. 人形峠鉱山附近地図 (×: ウラン鉱)

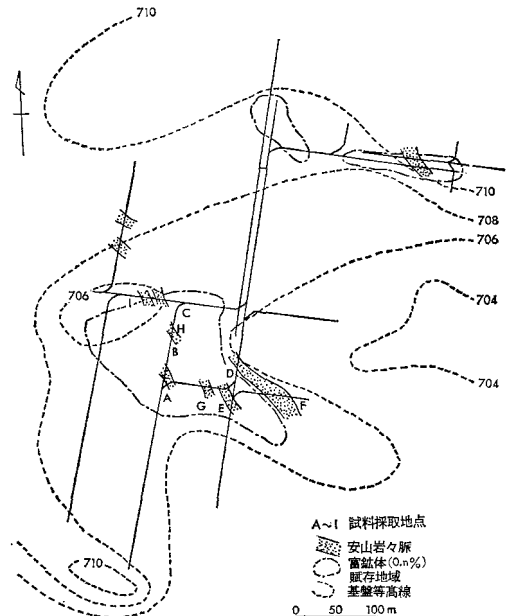


図 3. 中津河鉱床, 南部鉱体

4. 試料

富鉱体を中心に9カ所の地点で基盤から母岩へかけて垂直的なサンプリングを行ったが，試料総数は35個である．試料は次の表2の如くに分類し，分析検討を加えた．

表2. 試料の分類

		図における記号
基盤	非酸化帯	●
	酸化帯	⊙
	花崗岩	⊗
岩脈(基盤)	安山岩	△
	半花崗岩	▲
砂礫岩	鉱石を肉眼的に含有するもの	×
	非酸化帯	□
	酸化帯	▣
頁岩	頁岩	○

5. 分析結果

全分析値を一括して表3に示す，また，Uと他の元素の相関についての検討を図4から図11に示した．更に，FeとNi, Co, Mnとの間の関係を図12から図14に示した．

5-1 ウラン

Uは砂礫層でも基盤直上で濃集し，肉眼で鉱石が判定される．今回の分析では，富鉱部では0.5~4%の品位を示し，更に高品位体も存在すると考えられる．層厚1m前後の砂礫層がほぼ水平に堆積しているので，品位も水平的にはかなりの連続性を示すが，垂直的には急激な品位低下がみられる．特に同じ砂礫層内でも，酸化帯の砂礫岩は非酸化帯に比べて著しく低含量になり，その境界も明確に把握される．それに対して基盤花崗岩では，酸化帯，非酸化帯におけるウラン含量が砂礫層における程の顕著な差異は示していないが，鉱床外の花崗岩の品位に比べて全体としてやや高品位である(0.001%~0.01%)．また，濁沸石化した試料では0.003%以下の低品位を示している．岩脈類も一部を除き低含量で0.01%以下であるが，半花崗岩岩脈および安山岩岩脈の一例に0.2%程度のUの濃集が認められ，この値は基盤花崗岩に比べて著しく多い．

5-2 ジルコニウム (図4)

鉱石を含む試料ではU品位とほぼ良好な正の相関を示すが(max. 0.034%)，他の岩石における相関は認められない．特徴的なのは，0.01%以上のU品位を有する安山岩岩脈に平均の2倍以上のZrが含有される事である．

花崗岩や鉱石の認められない砂礫岩では含有量にもかなりの幅があり，一定の規則性はみられず，頁岩中の品位も0.01%以下で，他の岩石に比べて少ない値を示している．

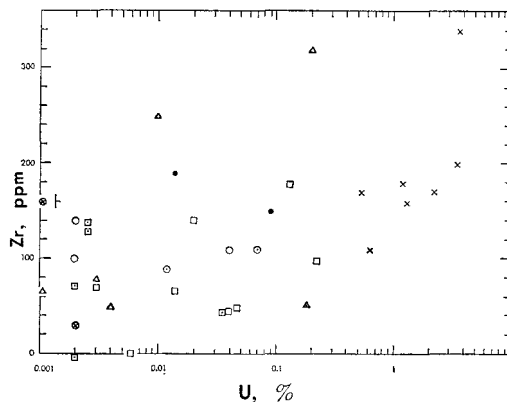


図4. U含量とZr含量との関係

5-3 イットリウム (図5)

ウラン鉱石の一部に著しく濃集するのが特徴であるが，U品位との間の明瞭な相関は認められない．即ち鉱石の一部で他の岩石類の6~7倍の濃集が認められるものもあれば(max. 0.055%)，非酸化帯の砂礫岩と殆んど変化のない値を示すものもあり，規則性は明確でない．しかし，他の岩石類に比較して一般に含有量が多く，人形峠に伴って濃集する元素の一つと考えられる．鉱石を含む岩石以外では，非酸化帯の砂礫岩が酸化帯のものに対してやや高含量であるのみで，それもU品位との関連性は見出せない．

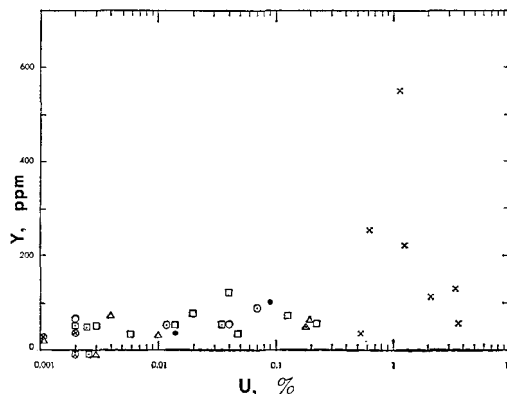


図5. U含量とY含量との関係

表 3. 分 析 結 果

		U 0.0n%	Fe %	Ni ppm	Co ppm	Mn 0.00n%	As 0.00n%	Zr 0.00n%	Y 0.00n%	Sr 0.00n%
(A)										
S 1	濁沸石化花崗岩	0.1	5.24	—	—	120	—	16.0	3.1	14.0
S 2	酸化帯花崗岩	7.0	3.21	37.0	5.0	96	15.0	11.0	8.6	11.0
S 3	酸化帯花崗岩	1.2	7.38	6.2	12.0	330	—	8.9	5.2	11.0
S 4	ウラン鉱石(砂礫岩)	120.0	4.27	148.0	26.0	—	11.0	18.0	55.0	28.0
S 5	非酸化帯砂礫岩	2.0	1.87	19.0	15.2	43	9.7	14.0	7.8	14.0
S 6	頁 岩	4.0	2.74	16.2	6.0	28	39.0	11.0	5.4	5.9
(B)										
S 7	頁 岩	0.2	3.08	26.8	8.8	42	20.0	10.0	6.5	7.4
S 8	酸化帯砂礫岩	0.2	14.76	9.0	4.0	1020	—	—	—	+
S 9	酸化帯砂礫岩	0.2	0.76	11.4	9.2	+	—	7.2	4.8	7.0
S 10	酸化帯砂礫岩	3.5	0.82	6.0	12.8	—	5.8	4.2	5.0	8.2
S 11	ウラン鉱石(砂礫岩)	375.0	2.89	107.4	53.2	—	110.0	34.0	5.5	50.0
S 12	非酸化帯花崗岩	1.4	1.58	11.6	20.0	—	3.7	19.0	3.0	22.0
(C)										
S 13	非酸化帯花崗岩	9.0	1.83	10.0	10.8	+	—	15.0	10.0	22.0
S 14	ウラン鉱石(砂礫岩)	63.0	4.53	91.6	88.0	—	130.0	11.0	25.0	18.0
S 15	非酸化帯砂礫岩	0.3	1.14	8.0	—	16	—	7.2	5.0	8.2
(D)										
S 16	安山岩々脈	0.1	4.71	72.0	63.6	24	3.9	6.5	2.7	25.0
S17G	安山岩々脈	0.3	6.0	86.8	19.2	18	17.0	7.9	—	3.5
S17W	濁沸石化花崗岩	0.2	1.81	—	—	—	—	2.9	—	18.0
S 18	酸化帯砂礫岩	0.25	12.48	44.0	33.2	47	—	13.0	—	13.0
S 19	酸化帯砂礫岩	0.25	1.41	7.0	10.0	+	—	14.0	4.2	11.0
(E)										
S 20	安山岩々脈	20.0	4.59	134.8	12.0	+	93.0	32.0	6.0	16.0
S 21	ウラン鉱石(砂礫岩)	130.0	3.25	28.0	12.0	—	150.0	16.0	22.0	25.0
(F)										
S22-1	安山岩々脈	0.4	4.64	100.8	24.0	19	+	4.9	7.1	27.0
(G)										
S22-2	半花崗岩々脈	18.0	1.36	16.4	12.8	+	—	5.1	4.7	2.2
S 23	安山岩々脈	1.0	4.88	204.0	26.0	19	8.4	25.0	2.9	3.4
S 24	非酸化帯砂礫岩	4.8	2.23	51.2	34.8	16	7.2	4.9	3.5	9.9
S 25	ウラン鉱石(砂礫岩)	53.0	3.55	72.0	35.0	17	11.0	17.0	3.1	27.0
S 26	濁沸石化花崗岩	0.2	2.14	7.0	13.4	21	—	15.0	3.8	13.0
(H)										
S 27	ウラン鉱石(砂礫岩)	344.0	6.12	132.0	77.6	+	210.0	20.0	13.0	31.0
S28A	非酸化帯砂礫岩	1.4	0.86	4.4	7.0	—	+	6.7	4.7	8.6
S29B	非酸化帯砂礫岩	22.0	1.05	37.2	16.0	+	6.9	10.0	5.7	13.0
S28C	ウラン鉱石(砂礫岩)	219.0	3.86	26.8	14.0	+	82.0	17.0	11.0	33.0
S 29	非酸化帯(砂礫岩)	13.0	3.73	46.0	17.0	33	3.4	18.0	7.3	14.0
(I)										
S 30	非酸化帯砂礫岩	4.0	3.42	48.0	7.0	88	120.0	4.4	12.0	8.7
S 31	非酸化帯砂礫岩	0.6	0.72	36.4	1.0	—	16.0	+	3.4	+

5-4 ストロンチウム (図6)

ウラン鉱石ではU品位と良好な正の相関を示し, 最大値で他の岩石類の平均含有量の2倍以上の値を示す(max. 0.05%). 他の岩石では0.025%以下に不規則に分散し, U品位との関連も認められないが, 岩脈の一部, 濁沸石化した花崗岩および非酸化帯の花崗岩に多少多く認められる.

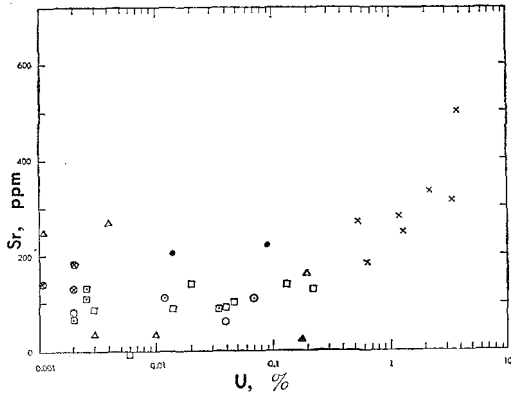


図 6. U 含量と Sr 含量との関係

5-5 鉄 (図7)

ウラン鉱石は比較的平均した含有量を示し(3~6%), U品位との関連は認められない. X線回折によって確認されるように, おそらく随伴鉱物の黄鉄鉱によるものと推定される. また, 安山岩岩脈もU品位に関係なく5%前後に比較的一定した値を示す. 非酸化帯の砂礫岩が低含量なのに比べて酸化帯の砂礫岩は一般にFe含量が多く, しかもU品位の少ない傾向がある. なかにはFe 10%以上の試料も認められ, これは褐鉄鉱の存在によるものと思われる.

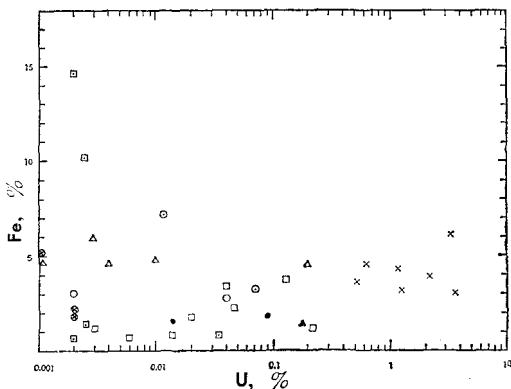


図 7. U 含量と Fe 含量との関係

5-6 ヒ素 (図8)

ウラン鉱石を含む砂礫岩では, U品位との関係は明確ではないが, 一般に高含有量を示し(0.01%以上), 特徴的な元素の一つとなっている. 既に阪上(1960)によって, 人形峠鉱床周辺の黄鉄鉱のAs含有量が一般に高い事が報告されているが, Feと同様人形石に密接に伴なう黄鉄鉱の含有による影響と考えられ, これは酸化帯の砂礫岩に殆んどA[∞]の含有を認めない事からも推定される. また, 非酸化帯の砂礫岩には一般に含有量が多く平均0.07%程度の値を示すが, U品位との関連は見出せない. 一方, 基盤岩類では, 岩脈類に比較的多く, 花崗岩ではそれに比べると少ない傾向がある.

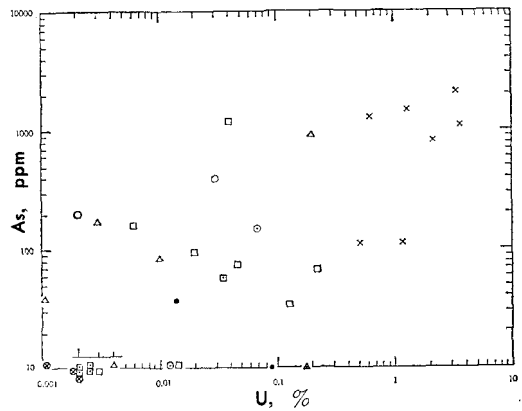


図 8. U 含量と As 含量との関係

5-7 ニッケル (図9)

ウラン鉱石には20~130ppmの範囲内で認められ, 他の試料に比べると比較的平均し, かつ多少多く認められる.

また, 安山岩岩脈には平均100ppm程度の高含有量

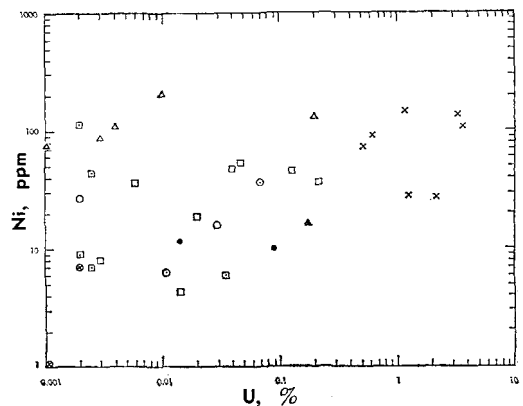


図 9. U 含量と Ni 含量との関係

がU品位とは無関係に認められる。これは、酸性岩に対し、塩基性岩石にNiが濃集しやすい事にもよるが、安山岩の一般的な平均値よりも多少多く定量されている。その他の岩石では含有量には全く規則性は認められず、平均20 ppm程度の定量値を得ている。

5-8 コバルト (図10)

Niと同様に鉱石中に比較的多く認められ、かつU品位との関係が認められない(10~100 ppm)。他の岩石もNiとほぼ同じ傾向を有し、安山岩岩脈には比較的多く、その他の試料では含有量に規則性がみられない。しかし、NiとCoとの間の関係は、おおよその相関は認められるものの、かなりの例外も存在する。

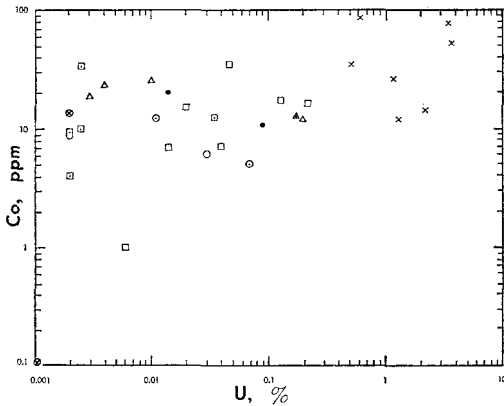


図 10. U含量とCo含量との関係

5-9 マンガン (図11)

一例を除き鉱石には全く検出されない。また、他の試料でも半数以上は殆んど検出されず、0.01%以上の値で定量される試料は、安山岩岩脈、および頁岩であって、非酸化帯の砂礫岩の一部にも認められる。

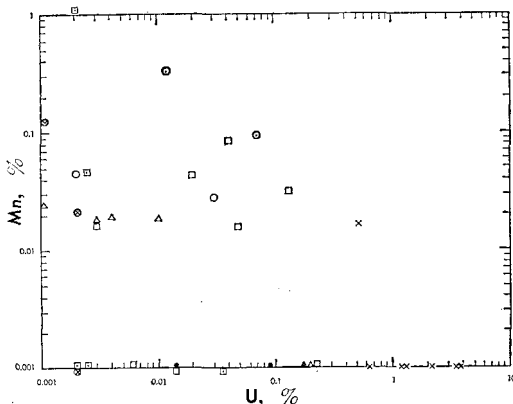


図 11. U含量とMn含量との関係

5-10 その他の傾向

Ni, Coは一部の例外を除き、全試料を通じてFeとの正の相関を示す(図12, 図13)。例外の試料は、濁沸石化した花崗岩、および酸化帯の花崗岩・砂礫岩のうちFeの特に多い試料で褐鉄鉱の存在が考えられるものである。また、Mnについても、検出される試料についてはFeとの正の相関がほぼ認められる(図14)。その他FeとAsとの関係は、明確な相関はみられないが、ウラン鉱石では一般にAsが多く、黄鉄鉱との関連を推定させる。

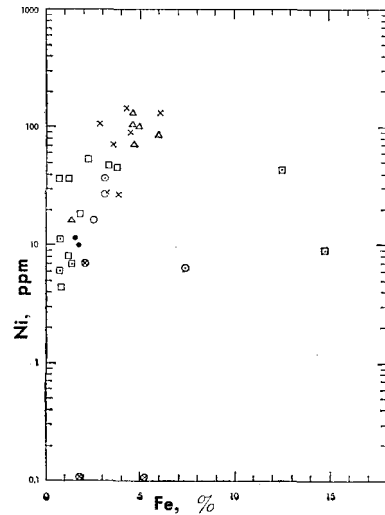


図 12. Fe含量とNi含量との関係

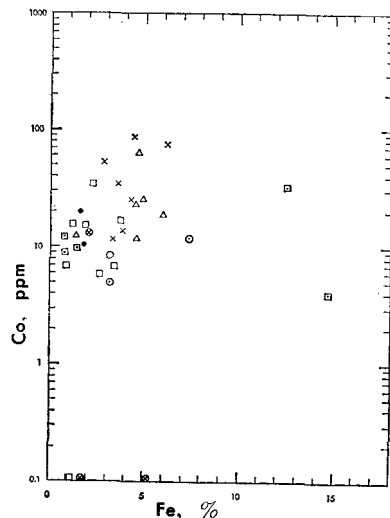


図 13. Fe含量とCo含量との関係

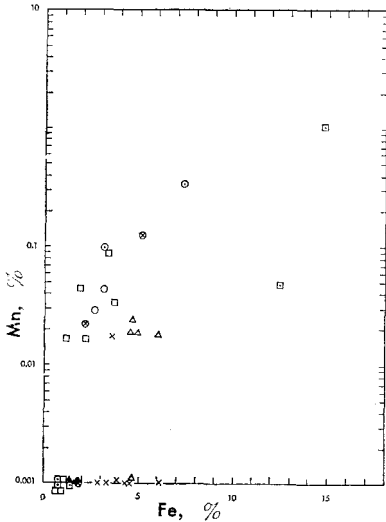


図 14. Fe 含量と Mn 含量との関係

6. 考 察

今回の実験で検討された元素のうち、鉱石の存在する砂礫岩では、U の濃集と共に、Zr, Y, Sr, As, Ni, Co などが高含量認められる事が判明した。このうち、U 品位と明瞭な相関を示すのは、Zr, Y, Sr で、As はその殆んどが人形石と共に共存する黄鉄鉱に含有されるものと推定される。黄鉄鉱には元来 Ni, Co も高含量含まれるものであるが、南部鉱体における富鉱部の場合も、Fe との良好な相関などからその影響は充分考えられる。ただ、酸化帯で、黄鉄鉱が存在せず、As も全く検出されない場合にも、Ni, Co が非酸化帯における一般の岩石と同程

度に定量されるのは、黄鉄鉱と無関係の Ni, Co の存在の可能性を示している。

酸化帯、非酸化帯の関係をみると、酸化帯では U の減少と共に、Y, Sr, As, Zr の含有量が極度に減少するが、[例:南部鉱体，三号西延，50m 南 43m (図15)]，それに対し、Ni, Co, Fe などの元素は、鉱石帯で特に濃集する他は、非酸化帯、酸化帯における差異は認められない。南部鉱体では酸化帯の存在が非常に少ないものの、このような傾向は鉱床一般に通ずるものと考えられ、Y, Zr, Sr は人形石に伴って 4 価の U と行動を共にして沈積、移動するものと推定される。中津河鉱床の本鉱体の一部では、酸化帯にリン灰ウラン石が存在し、その富鉱部では非酸化帯に認められるような Zr, Y, Sr の濃集は確認されないが、二次的な酸化変質作用は、4 価の U を 6 価に酸化させ、一部の地域で二次富鉱体を形成すると同時に Zr, Y, Sr の大半を逸脱し去ったものと考えられる。一方、花崗岩からの U の集積の一つの考え方として、温泉作用や熱水作用による過程が考えられるが、それに関連して南部鉱体の岩脈の存在が注目される。例えば、熱水性の鉱床に伴う元素の一つとして Ni, Co, Bi などが考えられるが、南部鉱体の安山岩岩脈では U は上位の砂礫岩に比べ少ないが、Ni, Co は塩基性火成岩の平均値 (Ni : 130ppm, Co : 48ppm, TUREKIAN and WEDEPOHL, 1961) などから検討すると、安山岩としては多少濃集の傾向を示す。しかし、その他の微量元素では特徴的な傾向は認められず、Zr, Sr などの元素で一部の岩脈に異常に濃集する事は判明したものの、U が岩脈を通路として導入されたと考える積極的な裏付けは得られない。

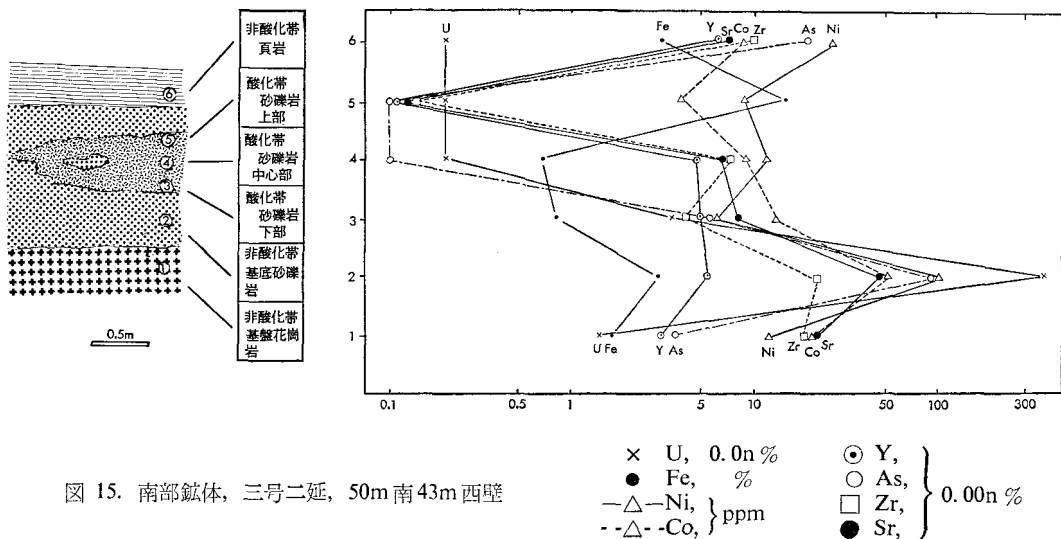


図 15. 南部鉱体，三号二延，50m 南 43m 西壁

文 献

- 桂 敬 (1958). 実験化学講座, 第15巻, 下 (岡宗治郎編), pp. 330-331, 丸善. 東京.
- 奥野孝晴 (1964). 溶液法蛍光 X線分析におけるウラン・ジルコニウム・イットリウム・ストロンチウムの定量. 岡大温研報, **34**, 11-20.
- 阪上正信 (1958). 前線反応を利用するペーパークロマトグラフィーによるウランの簡易微量定量法. 分析化学, **7**, 292-296.
- , (1960). 放射性堆積物の地球化学的研究 (第三報), 人形峠堆積層中のウラン・リン・ヒ素. 日化, **81**, 898-902.
- 高橋 清 (1963). 硫化鉱物の微量成分の地球化学的研究. 地調報告, **199**, 9-19.
- 武田弘・片山信夫 (1961). 人形峠鉱床中のストロンチウムおよびイットリウム. ウラン—その資源と鉱物, ウラン・トリウム鉱物研究委員会編集, pp. 392-411.
- 鳥居鉄也 (1955). オルソニトロソレゾルシンモノメチルエーテルによるコバルトの新比色定量法. 日化, **76**, 328-333.
- TUREKIAN, K. K. and WEDEPOHL, K. H. (1961). Distribution of the elements in the major units of the earth's crust. *Geol. Soc. Am. Bull.*, **72**, 175-192.

**MINOR ELEMENTS OF THE NANBU KÔTAI
OF NAKATSUGÔ DEPOSITS, NINGYÔ TÔGE
URANIUM MINE**

by Kôji WATANABE, *Institute for Thermal Spring
Research, Okayama University*

Abstract. The Nakatsugô Deposits are the main

deposits of the Ningyô Tôge Mine which is located in the northern part of Okayama Prefecture. Nakatsugô Deposits consists of the two main ore body, namely, Nanbu Kôtai (southern ore body) and Hon Kotai (main ore body).

Nanbu Kôtai is occupied mostly by the unoxidized zone and high grade ores containing ningyoite ($n\%$ U) are widely found in the basal conglomerates.

Minor elements in the common rocks such as basal granites, conglomerates, sandstones, dikes, and shales as well as the uraniferous ores were determined quantitatively by fluorescent X-ray spectrometric analysis (for U, Zr, Y, Sr, As, and Fe) and spectrophotometric analysis (for Ni and Co).

As the results of this study, it is found that the uraniferous ores are characterised by extremely high contents of Zr, Y, Sr, and As, which show positive and linear correlation with the U contents. It is confirmed that As is concentrated in pyrite which is usually associated with the uraniferous ores.

Elements such as Ni and Co are slightly concentrated both in the uraniferous ores and andesite dikes. This fact may suggest some genetic relationship among them. However, it does not seem to be plausible to draw any definite conclusion on the origin of the uranium deposits from these relationships.

As to the minor element distribution in common rocks, no systematic variation was found except for the rock samples closely associated with the ore deposits.