

特集：東濃地域の地球化学

東濃ウラン鉱床周辺の瑞浪層群に産する堆積岩類中のウラン、
トリウム及びランタノイドの分布と挙動
永田 寛*・本多照幸**・岩月輝希***・水野 崇***

Distribution and behavior of uranium, thorium and lanthanoids in some lithofacies in sedimentary rocks from the Tono Uranium Deposit
Hiroshi Nagata*, Teruyuki Honda**, Teruki Iwatsuki*** and Takashi Mizuno***

* 武蔵工業大学工学部, Faculty of Engineering, Musashi Institute of Technology

** 武蔵工業大学原子力研究所, Atomic Energy Research Laboratory, Musashi Institute of Technology

*** (独) 日本原子力研究開発機構, Japan Atomic Energy Agency

緒言

東濃ウラン鉱床周辺の瑞浪層群に産する堆積岩類中の U, Th, その他微量元素を中性子放射化分析により定量し, 特に酸化還元や炭酸塩の有無など, 各岩相の違いによる微量元素の分布と挙動について, ナチュラルアナログの視点から解明することを目的とする。

表1. 試料の記載

Gr.	No.	コア試料	地質	深度(m)	種類	特徴
①	1	MSB-2	明世累層	8.6	砂岩	未変色
	2			8.7	砂岩	未変色
	3			8.7	砂岩	酸化部
	4			8.9	砂岩	酸化部
②	5	MSB-2	明世累層	19.2	砂岩	未変色
	6			19.7	砂岩	酸化部
	7			19.9	砂岩	酸化部
	8			20.0	砂岩	未変色
③	9	MSB-2	土岐 夾炭 累層	98.2	細礫岩	炭酸塩非充填部
	10a			98.3	細礫岩	炭酸塩非充填部
	10b			98.3	細礫岩	炭酸塩充填部
	10c			98.4	細礫岩	炭酸塩充填部
	10d			98.5	細礫岩	炭酸塩充填部
④	11	MSB-2	土岐 夾炭 累層	119.1	砂岩	炭酸塩非充填部
	12			119.3	砂岩	炭酸塩非充填部
	13			119.4	砂岩	炭酸塩充填部
	14			119.5	砂岩	炭酸塩充填部
	15			119.8	砂岩	炭酸塩非充填部
	16			120.0	砂岩	亜炭部
⑤	17	MSB-4	土岐 夾炭 累層	85.1	砂岩	凝灰質砂岩
	18			87.9	砂岩	炭酸塩非充填部
	19			87.9	細礫岩	炭酸塩充填部
	20			92.0	砂岩	亜炭部
⑥	21	MSB-4	土岐 夾炭 累層	93.1	砂岩	亜炭部
	22				砂岩	炭酸塩充填部
	23				砂岩	炭酸塩充填部
	24				砂岩	黄鉄鉱
	25				砂岩	方解石脈
	26				砂岩	基質部

実験

試料と照射試料作製

試料は, 日本原子力機構瑞浪超深地層研究所が掘削した MSB-2 と MSB-4 のボーリングコア試料から採取した。試料についての記載を表1に示す。この全 29 試料をメノウ乳鉢で粉体状にし (Gr.③は 2 mm以上の礫を除去), 100 Mesh に篩い分けて照射試料とした。

中性子放射化分析

中性子照射は日本原子力機構の JRR-4 を使用し, 短寿命核種の測定は JRR-4 にて, 長寿命核種の測定は武蔵工業大学原子力研究所にて, 何れも Ge 半導体検出器及び多チャンネル波高分析器を用いて測定を行なった。

結果および考察

酸化部 (Gr.①及び②)

Ce/U-Th/U の相関を図1に示す。これはプロットが高い位置なら酸化傾向を, 低い位置なら還元傾向を示す。図1から No. 1-8 の中で No. 4 が比較的酸化傾向にあることがわかった。

図2に全試料中の Ce*/La*比を示す。Ce*/La*比は La, Ce を Leedey chondrite で規格化し, 比を

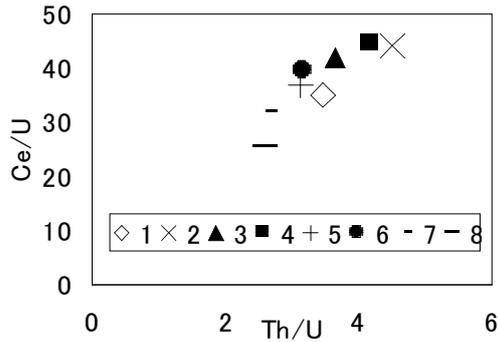


図1. Gr.①及び②の Ce/U-Th/U の相関

とったもので、1.0 よりも大きいと酸化傾向を示す指標となる。図2から Gr.①及び②の試料はそれぞれ 1.0 を超えておらず、明瞭な酸化傾向を示さなかったが、No. 4 は最も 1.0 に近い約 0.9 を示し、他に比べると酸化傾向にあることがわかった。

U, Th, ランタノイドの濃度分布の増加減少を定量的に表すため、二つの基本試料間の変動に対する対象試料の変動度 (R) を次式のように定義する。

$$R = \frac{(B - M)}{|A - M|} \quad \dots (1)$$

式 (1) で M は二つの基本試料における各元素濃度の平均、A は二つの基本試料のうちの一つにおける各元素の濃度値、B は対象試料における対応する各元素の濃度値である。R が ± 2 の範囲であれば基本試料間の変動範囲内にあり明確な増加減少とは言えない。ここで、M を各グループの二つの未変色部 (No. 1, 2 と No. 5, 8) の平均、A を未変色部の濃度値 (No. 1 及び No. 5)、B を酸化部 (No. 3, 4 と No. 6, 7) の濃度値とし、未変色

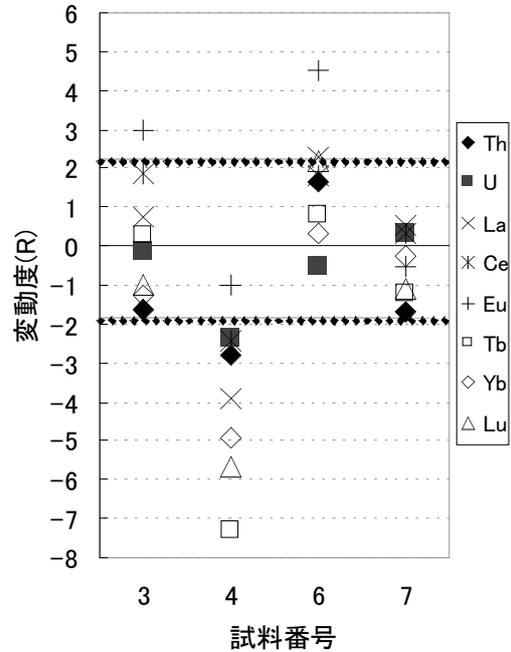


図3. 未変色部間に対する酸化部での各元素の変動 (R)

部間に対する酸化部での各元素の変動度 R を図3に示す。図3から No. 3, 6, 7 はほとんど ± 2 の範囲にあるが、No. 4 では U, Th, ランタノイドで濃度の低下を示した。

このことから明世累層 (表1参照) の酸化部での微量元素の挙動は、4 試料のうち 3 試料では明確な増加減少を示さなかったが、他より比較的酸化傾向の強い割れ目部直上の No. 4 で U, Th, ランタノイド濃度の減少が示された。

炭酸塩充填部 (Gr.③～⑥)

炭酸塩岩中では Al, Na, Fe の濃度が低くなり、逆に Ca の濃度が高くなるという特徴がある

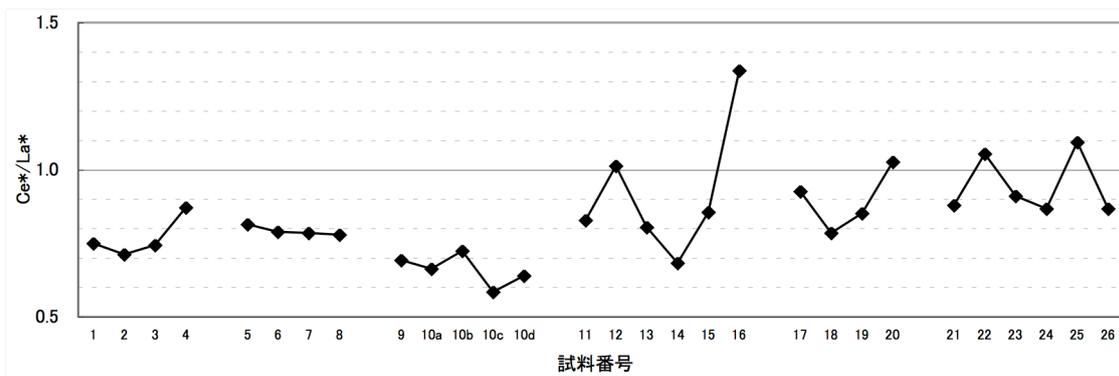


図2. 全試料中の Ce*/La*比

(Guodong and Chunhan, 1991). 本研究でこの特徴を示したのは、Gr.③と Gr.⑥の充填部 (No. 10b-10d と No.23), Fe を除いた場合 Gr.④と Gr. ⑥の充填部 (No. 13, 14 と No. 22) であり、この場所に炭酸塩が充填したことを示唆している。なお、No. 19 は礫を含む全岩を分析したためその特徴を示さなかった可能性がある。

Gr.③~⑥での U, Th, ランタノイドの濃度分布から、充填部の縁にあたる Gr.③の No. 10b で U, Th の濃度が明かに高くなっている。次に、式 (1) に M を各グループの非充填部の 2 試料 (No. 9, 10a と No. 11, 12 と No. 18, 26) の濃度平均, A を非充填部の濃度値 (No. 9, 11 及び No. 18), B を充填部 (No. 10b-10d と No. 13, 14 と No. 19, 22, 23) の濃度値とし、非充填部間に対する充填部の変動度 R を図 4 に示した (No. 10b の U ($R = 192$), Th ($R = 269$) は除く)。図 4 から、No. 19 で Th がやや濃度が高いことを除けば、どの充填部試料とも U, Th で低濃度を示した。ランタノイドでは Eu を除いて、No. 10b-13 まではあまり変動がないが、全体的に濃度の低下傾向を示した。

このことから、炭酸塩は U, Th を溶かし込みながら岩石中を浸透し、滞留したところで U, Th が濃集した可能性がある。ランタノイドは各岩相で差があるが、全体的には減少傾向にあることから、炭酸塩に伴って流れた可能性がある。

黄鉄鉱 (Gr.⑥)

黄鉄鉱は還元環境で生成するもので、ウラン鉱

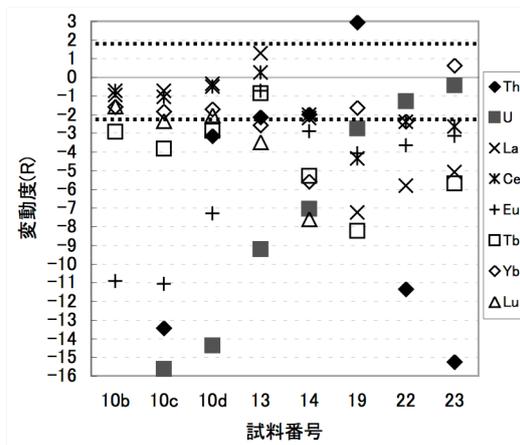


図 4. 炭酸塩非充填部間に対する充填部での各元素の変動度 (R)

床場に広く分布している。式 (1) の M に未変質砂岩 (No. 18, 26) の平均を, A に未変質砂岩の濃度値 (No. 18) を, B に黄鉄鉱 (No. 24), 方解石脈 (No. 25), 亜炭部とその周辺など (No. 15-21) の濃度値を代入し、未変質砂岩間に対する対象の変動度 R を図 5 に示す。図 5 から黄鉄鉱 (No. 24) は Th, ランタノイドとも低濃度を示したが、この黄鉄鉱は No. 22 の炭酸塩充填部に隣接しており、No. 24 は Fe で最も高い濃度を示すが、それ以外の元素では No. 22 と極めて近い濃度値を示した。従って No. 24 の黄鉄鉱は鉱物生成後、炭酸塩の影響を受け、炭酸塩充填部 (No. 22) と近似の濃度値になった可能性がある。

方解石脈 (Gr.⑥)

No. 25 の方解石脈では、未変質部 (No. 18, 26) に比べて Ca 濃度が高く、その他は低濃度を示すことから、炭酸塩岩の特徴が示された。次に、図 5 から方解石脈 (No. 25) において U, Th, ランタノイドは著しく低い濃度を示した。方解石は淡水中の炭酸カルシウムを取り入れた生物に由来すると考えられるが、その生成過程で微量元素をほとんど取り込まずに鉱物化し、生成後も微量元素をほとんど取着しなかったと推測される。

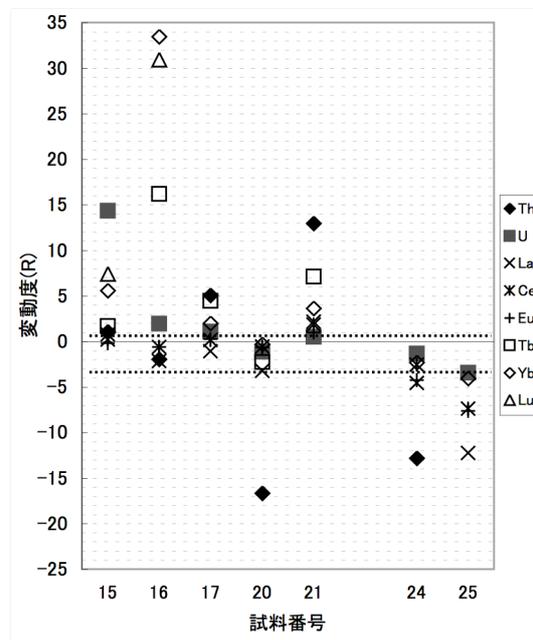


図 5. 未変質砂岩間に対する対象での各元素の変動度 (R)

亜炭部 (Gr.④～⑥)

亜炭部は U を収着しやすい炭質物質で、ウラン鉱床の周りに広く分布している (Doi and Hirono, 1990)。図 2 から、亜炭部の No. 21 と亜炭部周辺の No. 15 では明確な酸化傾向を示さなかったが、亜炭部の No. 16 と 20 では酸化傾向を示した。次に、図 5 から、酸化傾向を示さなかった No. 21 では Th, Yb, Tb で、No. 15 では U, Yb, Lu で高濃度を示した。酸化傾向を示した No. 16 では重ランタノイド (Tb, Yb, Lu) 以外の元素で、No. 20 は Th 以外の元素では明瞭な変動を示さなかった。このことから、亜炭部では未変質砂岩中より微量元素を多く含んでいる可能性があるが、地下水等によって酸化環境にある場所ではこれら元素濃度

は減少するのではないかと推測される。また、No. 16 での重ランタノイドの高濃度は、酸化とは異なる条件で重ランタノイドを多く収着し、そのまま移動しなかった可能性がある。No. 15 において U 等一部元素の高濃度がみられるのは、No. 16 で有機錯体を形成した元素が、高分子量のため近くの No. 15 で収着濃集した可能性がある。

文献

- Doi, K. and Hirono, S., 1990, WASTE MANAGEMENT, 10, 275-284.
- Guodong, L. and Chunhan, T., 1991, J. Radioanal. Nucl. Chem., 147, 363-370.