

鳥取・岡山県下，人形峠地域の堆積型 ウラン鉱床における鉱物共生

渡 辺 晃 二

信州大学理学部地質学教室

(1976年9月16日受理)

目 次

1 緒 言	(A)—1 緑れん石化
2 人形峠地域のウラン鉱床	(A)—2 濁沸石化
2—1 地質概説	(A)—3 加水ハロイサイト化
2—2 鉱床概説	(B) 温泉変質作用
(A) 東郷鉱山	(C) 風化変質作用
(A)—1 方面・麻畑鉱床	4—2 鉱床母岩類の変質
(A)—2 神倉鉱床	(A) 熱水変質作用
(B) 人形峠鉱山，中津河鉱床	(B) 風化変質作用
3 ウラン鉱物	5 ウラン鉱床に関連するその他の鉱物
3—1 人形石	5—1 鉄鉱物
3—2 センウラン石	5—2 マンガン団塊
3—3 コフィン石	5—3 オパール
3—4 リンカイウラン石	5—4 石 膏
3—5 ベーターウラノフェン	6 ウラン鉱床生成に関連する地球化学的デー タ
3—6 ウラノフェン	6—1 各種花崗岩からのウランの溶脱実験
3—7 ボルトウッド石	6—2 高温下におけるウラン鉱物の挙動
3—8 カルノー石	6—3 水素イオン濃度・酸化還元電位とウラ ン鉱床に関する実験
3—9 ランキル石	6—4 微量元素の挙動に関する実験
3—10 ウィークス石	6—5 EPMAによる検討
3—11 リンウラニル石	7 各鉱物の共生関係および考察
3—12 ウラノピル石	7—1 非酸化帯と酸化帯の関係
3—13 ジッペル石	7—2 ウラン鉱物間における共生関係
3—14 リービヒ石	7—3 ウラン鉱物の化学組成と生成条件
3—15 リンアルミウラン石	7—4 母岩の種類と鉱物共生
4 ウラン鉱床における基盤岩・母岩の変質鉱 物	8 文 献
4—1 基盤花崗岩類の変質	Plate
(A) 熱水変質作用	

1. 緒 言

鳥取・岡山両県の県境附近から鳥取県へかけて、いわゆる人形峠地域の堆積型ウラン鉱床が存在し、その賦存地域は約 200km² におよんでいる。この地域内には、人形峠鉱山、東郷鉱山など本邦においても代表的な堆積型ウラン鉱床があり、また鉱脈型ウラン鉱床も小規模ながら各所に認められている。

この地域の鉱床は、昭和30年11月地質調査所のカー・ボンによる人形峠鉱山の第一露頭確認以来、地質調査所、原子燃料公社（現在、動力炉核燃料開発事業団）などにより、鉱床学的、地質学的調査が精力的になされ、並行して鉱物学的、地球化学的研究も各研究機関によってなされた。

放射能鉱物に関しても、人形峠鉱山における人形石の発見、あるいは東郷鉱山の各鉱床における多くの二次ウラン鉱物の確認など、興味ある事実が判明してきた。

人形石については、武藤によるその発見、安定関係など、すぐれた研究が報告されているが (MUTÔ, *et al.* 1959, 1962, 1965), 本地域全般にわたる各ウラン鉱物と共存鉱物の関係について総括的な報告は未だなされていない。

筆者は、昭和35年以来主として岡山大学温泉研究所において、人形峠地域に賦存するウラン鉱床に関連する諸問題について研究に従事してきた。また、昭和47年度には文部省内地研究員として早稲田大学大学院理工学研究科において、今井直哉教授の御指導を仰ぎ、これらの問題についてさらに研究をすすめ、その間に本邦初産のウラン鉱物2種類（リンアルミウラン石： $\text{HAU}(\text{UO}_2)_4(\text{PO}_4)_4 \cdot 16\text{H}_2\text{O}$ 、リービッヒ石： $\text{Ca}_2(\text{UO}_2)(\text{CO}_3)_3 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$ ）を同定するにいたった。

この論文は、人形峠地域において、ウラン鉱物およびそれに随伴する鉄鉱物、粘土鉱物などから、鉱物共生の観点にたって生成環境を論じたものである。なお、この論文において研究の対象とした鉱床は、人形峠鉱山では中津河鉱床、東郷鉱山では^{かたも}方面・^{かんのくら}麻畑・神倉の各鉱床である。

この研究をすすめるにあたり、終止懇切なる御指導をいただいた早稲田大学今井直哉教授に深く感謝する。また、東海大学杉山隆二教授には、鉱床学的な問題をはじめとして、この研究の全般にわたり多くの御教示をたまわったが深謝する次第である。鉱物学的問題に関しては、岡山大学逸見吉之助教授、地球化学的問題に関しては、金沢大学阪上正信教授の御指導を仰いだ。あわせて深く感謝する。また、動力炉核燃料開発事業団の奥野孝晴氏には、岡山大学温泉研究所において共に研究する過程で有益な御助言を得ることができた。さらに、鉱床調査、試料採取に際しては、原子燃料公社（現在の動力炉核燃料開発事業団）から常に便宜をいただいた。ここに改めて厚く御礼申しあげる。

2. 人形峠地域のウラン鉱床

日本におけるウラン鉱物は、従来ペグマタイトおよびそれに源をもつ漂砂鉱床にのみ認められていた。しかし、昭和29年に岡山県三吉鉱山のタングステン・石英脈に砒銅ウラン石とコフィン石が確認され、つづいて昭和30年、鳥取県小鴨鉱山の含金・銀石英脈中にリンカイウラン石と燐銅ウラン石が発見されるにいたった。すなわち、これら気成鉱脈および熱水鉱

脈中よりのウラン鉱物の発見は、鳥取・岡山両県下の放射能探査に拍車をかけ、県境を中心に堆積型ウラン鉱床としては当時本邦最大の人形峠鉱山が、さらに鳥取県下では同じ型の鉱床である東郷鉱山が発見され、探鉱されるにいたったものである。

2-1 地質概説

本地域の地質層序を第1表に示す。



この地域の地質は基盤岩類と第三紀堆積物に大別される。

基盤岩類は、一部で三郡変成岩類，“本地山火成岩類”^{*1)}を認めるが、ほとんど大半をしめるのは花崗岩類である。ウランの供給根源として鉱床の生成に直接関連をもつと推定されるこれら花崗岩類は、後期中生代から新生代初期へかけての進入と、新生代中期に進入したものとに分けられ（“鉛山石英閃緑岩”），さらに前者は岩相によって“奥津型花崗岩”^{*2)}“小鴨型花崗岩”^{*3)}および“人形峠型花崗岩”^{*3)}に分けられている。

“奥津型花崗岩類”は三者のなかで最も古期の深成岩類で、花崗閃緑岩質の岩相を示す場合が多い。また，“小鴨型花崗岩類”は“奥津型花崗岩類”を北東～南西方向に貫く、ベグマタイト質～優白質黒雲母花崗岩である。“人形峠型花崗岩類”は“奥津型花崗岩類”と“小鴨型花崗岩類”の接触部，すなわち人形峠を中心に北東南西にのびるレンズ状の分布を示し、カリ長石の巨晶の存在で特徴づけられる。そして、一般に不均一な組織を呈する花崗岩類であって、一種の花崗岩化作用による産物と考えられる。

第1表 各ウラン鉱床の層準と火山活動の輪廻

時代	火山輪廻	火山岩類	東郷鉱山		人形峠鉱山
			方面・麻畑鉱床	神倉鉱床	中津河鉱床
鮮新世	3期	中津河石英安山岩		V V V	V V V
		三徳山安山岩		V V V	V V V
		羽衣石玄武岩		V V V	V V V
後期中世	2期	(高橋斜長流紋岩)		火山閃緑岩類 基岩砂岩緑岩類	基岩砂岩緑岩類 基岩砂岩緑岩類
		神倉石英安山岩			
		管ヶ谷安山岩	V V V		
		麻畑玄武岩	V V V		
新世	1期	方面斜長流紋岩	V V V X 基岩砂岩緑岩類		
		基盤岩類	小鴨型花崗岩	人形峠型花崗岩	奥津型花崗岩

V V : 火山岩およびその火山砕屑岩
 : 堆積岩
 : 欠除層
 X : ウラン鉱床
 ~~~~~ : 不整合

\*1) 古第三紀?

\*2) 三疊紀?

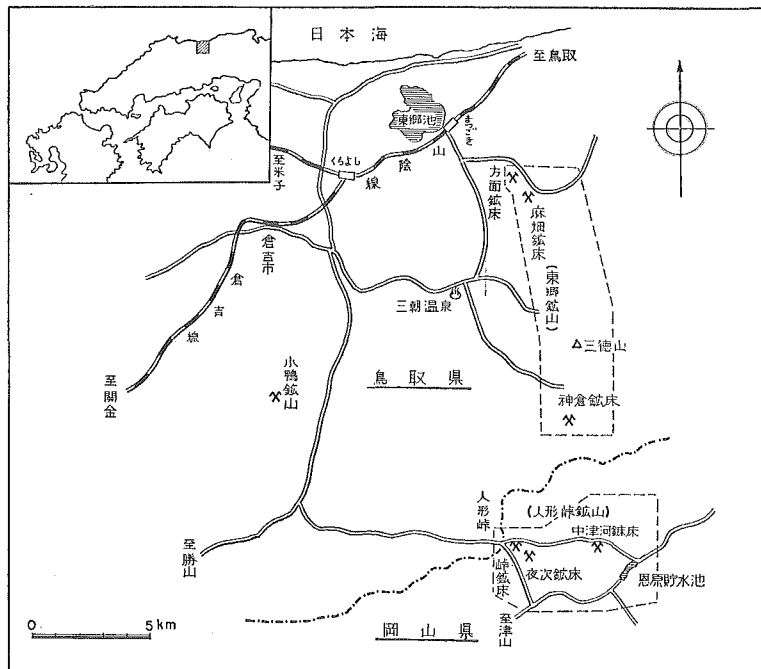
\*3) 白亜紀～古第三紀

そして、地質時代を決定する明確なデータは得られていないが、現在では一応後期中新世から鮮新世に対比されている。

(A) 東鄉鉦山

東郷鉦山は、方面・麻畑<sup>かたも</sup>・神倉<sup>あきばたけ</sup>の三鉦床がその主なものであるが、神倉鉦床は位置的に人形峠鉦山に近く、したがって鉦床の層準からすれば、むしろ人形峠鉦山に共通する点が多い。一方、方面・麻畑両鉦床は非常に近接した位置関係にあり、神倉鉦床と比較すると下位層に鉦床を胚胎しているので、ここでは方面・麻畑鉦床を一括して述べ、神倉鉦床は別個に記述する。

両鉾床は鳥取県東伯郡東郷町にあり、山陰線松崎駅南方約4 kmの地域に近接して存在する。鉾床の基盤は“小鴨型花崗岩”に分類される優白ペグマタイト質黒雲母花崗岩で、長石



第1図 人形峠地域の各ウラン鉱床

\*4) 動力炉核燃料開発事業団の福岡らは4回の輪廻を考えているが(福岡他, 1969), 杉山や筆者は3回の輪廻を推定している(杉山他, 1963)。

類は斜長石に乏しくカリ長石が卓越し、とくに微斜長石の多いのが特徴である(杉山, 1965)。

鉱床母岩は、基盤花崗岩を不整合に覆うアルコーズ質基底礫岩・砂岩層と、その上位層の三朝層群火山層序第1期の輪廻に相当する方面斜長流紋岩の凝灰岩層ないし凝灰角礫岩層(最大層厚10m±)である。礫岩・砂岩層はほとんど基盤花崗岩に由来する礫種を示し、また凝灰岩・凝灰角礫岩層は、富鉱部の存在する地域ではいちじるしい粘土化を呈して後述するように結晶度の良好なモンモリロナイトに変化している。鉱床母岩の上位には、第2期の輪廻に相当する玄武岩、同凝灰角礫岩類、安山岩および石英安山岩が約400~600mの厚さで堆積するが、これらの地層中での鉱化作用は認められず、変質作用もほとんど確認されない。

第三紀層の地質構造は、上部では全般的に水平に層位しているが、鉱床の富鉱部は基盤花崗岩の侵蝕面が形成するチャンネルによって明瞭な構造支配を受け、主にチャンネルの底部に鉱化作用が集中し、両翼部は上位の玄武岩層によって覆われることにより鉱床が尖滅する場合が多い。チャンネルは大規模のもので長さ600m、幅100m、厚さ3mに達する。

鉱床はほとんど酸化帯によってしめられているが、火山礫凝灰岩層の一部に非酸化帯が残存し、前者ではリンカイウラン石、ペーターウラノフェン、ウラノフェン、カルノー石、ウィークス石などの二次鉱物が産し、後者では人形石、センウラン石など一次鉱物を産する。

鉱床の富鉱部はチャンネルの構造に規制され、扁平レンズ状の形態を呈し、ウラン鉱物の大半はリンカイウラン石によってしめられている。非酸化帯も小規模ながら層状の鉱床形態を呈し、ほとんど人形石によってしめられている。

変質作用は、凝灰岩・凝灰角礫岩層は局部的に若干のセリサイト、ハロイサイトを含むが、全般的にはモンモリロナイト化が顕著であり、また基盤花崗岩もセリサイト、ハロイサイトの含有度が増加するものの、モンモリロナイトの存在量が大きく、しかも普遍的に存在する。そして鉱床直下の基盤岩は、このような粘土化によって非常にぜい弱化している。アルコーズ質砂岩・礫岩層も酸化帯ではモンモリロナイト化が著しく、とくにマトリックス部分の粘土化が大である。

アルコーズ質砂岩中の石英は、鉱床附近では煙石英に転じ、その黒化度は富鉱体探査の一つの指準になっている。

要するに、方面・麻畑鉱床は、基盤岩と不透水性の上位層に夾在する孔隙率の高い地層に富鉱体が濃集しているとみてよい。

#### (A)―2 神倉鉱床

神倉鉱床は鳥取県東伯郡三朝町にあり、山陰線倉吉駅南方約14km、鳥取・岡山県境近くに賦存する。

基盤岩はほとんどが“人形峠型花崗岩”よりなるが、一部で“奥津型花崗岩”も認められる。

人形峠型花崗岩は岩相変化がいちじるしく、典型的な岩相は微斜長石の斑状変晶を有する斑状花崗岩であるが、一般には中粒の角閃石・黒雲母花崗岩であって、灰曹長石成分の斜長石の他に、カリ長石として正長石と微斜長石が共存し、微斜長石は斑状変晶を形成する。

不整合面が海拔約660mに位置し、方面・麻畑鉱床の250~270mにくらべてかなり上位にあることから、ほぼ水平に層位する三朝層群火山活動第1期の斜長流紋岩類は、本地域では欠如している。

鉱床母岩は基底礫岩・砂岩層、泥岩層(全層厚0.3~5m±)を主とし、さらにその上位

を10~50mの厚さで堆積する第2期の石英安山岩の礫を含む火山円礫岩層の下部に、局部的ではあるが鉍化が認められる。これより上位では、第3期に属する玄武岩、安山岩、石英安山岩の各層が各々最大層厚約100mで母岩をほぼ水平に覆っているが、これらの層には鉍化作用は認められない。

鉍床の形態は、原則的には方面・麻畑鉍床と同じくチャンネル構造に支配されているが、本鉍床がかなり不規則な不整合面を形成していることから、それに支配される礫岩・砂岩層の分布はかなり断続的である。その結果、幅200mにおよぶ大きなチャンネルでは、単に底部に鉍体が濃集するばかりでなく、両翼部に富鉍体が存在することもある。

砂岩・礫岩層、火山円礫岩層中には、しばしば炭質物、炭化木、珪化木を含み、泥岩、頁岩層中には植物化石を産することが本鉍床のひとつの大きな特徴であって、多種類のウラン鉍物の産出およびそれらの多様性に関連している。

非酸化帯と一次鉍物、酸化帯と二次鉍物の関係は、方面・麻畑鉍床と全く同じであるが、神倉鉍床は非酸化帯の残存部がかなり広範囲にわたる。一次ウラン鉍物としては、人形石、コフィン石、センウラン石が認められ、炭質物との共生が特徴的である。二次ウラン鉍物にはリンカイウラン石のほか、珪化木などと共存してウラノフェン、ペーターウラノフェン、カルノー石、ランキル石、リンウラニル石、ウラノピル石、ジッペル石などと多産し、また早稲田大学において本研究をまとめる段階において、リンアルミウラン石とリービッヒ石を同定したが、両鉍物とも本邦初産のものである。

非酸化帯は、岩質からみると一般にアルコーズ砂岩層に多く、頁岩層では急激に劣化する傾向を示す。しかし、頁岩中に炭質物を夾在する場合には一次鉍物の存在がみられる。非酸化帯の規模は小さく厚さも1m以下の場合が多く、鉍石としては人形石が量的に圧倒的に多い。一方、酸化帯は透水性の良好な粗粒砂岩・礫岩層を母岩とする場合が多く、非酸化帯に比べて規模も大きくなって、厚さ約2mに達する場合もあり、層状あるいは塊状鉍体を呈する。主要鉍石はリンカイウラン石であって、非酸化帯に比べて品位はやや落ちるが、前述のように、多種の二次鉍物の存在は地球化学的見地から注目される。

変質作用は、酸化帯では基盤花崗岩を含めて比較的広範囲にモンモリロナイト化が認められるが、一方、非酸化帯ではモンモリロナイト化が微弱で、若干のハロサイト存在を認める。しかし、方面・麻畑鉍床に比べて、変質度は全般的に小さい。

#### (B) 人形峠鉍山、中津河鉍床

人形峠鉍山は、昭和30年11月、鳥取・岡山県境人形峠附近の切割において放射能異常が発見され、峠鉍床開発の端著になったが、以後は夜次、赤和瀬、中津河、恩原、辰巳峠、清水、十二川、長者など大小の鉍床が発見されるにいたった。この論文では、人形峠鉍山最大の規模を有し、かつ人形石を多産する中津河鉍床を主にとりあげる。

中津河鉍床は岡山県苫田郡上斉原村にあり、山陰線倉吉駅南方約29kmに位置する。

基盤は“人形峠型花崗岩”が大半をしめ、一部で“奥津型花崗岩”も存在する点で、東郷鉍山神倉鉍床に酷似する。前者は岩相変化がいちじるしいが、一般には粗粒斑状黒雲母花崗岩であり、後者は中粒黒雲母角閃石花崗岩ないし花崗閃緑岩である。

人形峠鉍山の十二川鉍床は東郷鉍山神倉鉍床のチャンネルの上流部の鉍床にあたり、神倉鉍床と人形峠鉍山の諸鉍床の地質的な関連が判明している。中津河鉍床の不整合面は海拔約

700～710mで、神倉鉱床の660mに比較するとやや高位置に存在する。

鉱床母岩は、不整合面にそって盆状構造あるいは大きなチャンネル構造によって支配され堆積した人形峠層である。本層は内陸性堆積物によって特徴づけられるアルコーズ質礫岩（1 m土）、同砂岩（1 m土）、頁岩層（2 m土）で構成され、頁岩中にはしばしば炭質物を夾在する。人形峠層は最も厚く堆積する所で9 m土で、平均4～5 mの層厚を有し、全般的に水平に堆積している。

また、神倉鉱床のチャンネルがかなり急傾斜を示すのに対して、中津河鉱床のチャンネルは平坦に近く規模も大きくなっている。<sup>\*5)</sup>

人形峠層の上位をしめる高清水層は、全般的に凝灰岩質へ移行し、凝灰質砂岩・頁岩互層（3 m土）、あるいは凝灰角礫岩（5～20m）によって構成され、鉱化作用は認められていない。高清水層の上位は、三朝層群火山層序第3期の玄武岩、安山岩、石英安山岩の熔岩流およびその火山砕屑物の厚い堆積物がほぼ水平に堆積するが、これらの各層も鉱化作用は認められない。

中津河鉱床は母岩が盆状構造あるいは大きなチャンネルによって構造規制を受けているため、鉱床の横への連続性は非常に良好でその結果大規模な鉱床を形成している。この鉱床の特徴は、非酸化帯が広範囲に残存する事実で、主要鉱石は人形石を主とする平均品位約0.2 %  $U_3O_8$  の鉱床である。

基盤花崗岩を貫き不整合面によって切られるいちじるしく粘土化した安山岩岩脈が幅1 m程度の規模で各所に認められるが、その一部には鉱化作用も確認される。

産出するウラン鉱物の種類は、本鉱床がほとんど非酸化帯によってしめられることにより圧倒的な量をしめる人形石の他に、一部でセンウラン石も認められる。その他、鉱床北部の一部では酸化帯が存在し、リンカイウラン石が認められ、共存する硫化鉱物の酸化の影響によって、二次ウラン鉱物としてジッペル石も確認されている。

非酸化帯が広範囲に残存することにも関連して、母岩の変質度は弱いが、基盤岩類においては方面・麻畑鉱床にはおよばないものの、かなりの粘土化がみられ、モンモリロナイト、ハロイサイトの存在が認められる。特に安山岩岩脈は、原岩の組織をほとんど認めぬ程度に変質し、モンモリロナイトに変化している。また、この変質作用に並行して、基盤花崗岩類の鉄苦土鉱物は緑泥石化を示す場合が多い。

### 3. ウ ラ ン 鉱 物

本地域に産するウラン鉱物は、ほとんどが堆積型ウラン鉱床に産するウラン鉱物の特徴を示し、pH, Eh 条件によって強く規制された産状を示す。すなわち、非酸化帯ではウランは4価の形で一次ウラン鉱物を形成し、酸化帯では6価の形でウラニルイオンを形成して、二次ウラン鉱物が安定に存在している。したがって各ウラン鉱物の安定性は、母岩の賦存状況、透水性、変質度に関連し、鉱物共生の項でのべるように、各ウラン鉱物は粘土鉱物や鉄鉱物など他の鉱物との間に密接な共生関係を有している。

第2表に示すように、多くのウラン鉱物がこの地域より産出し、とくに二次ウラン鉱物は10種以上におよんでいる。しかし、量的には一次鉱物では人形石、二次鉱物ではリンカイウ

\*5) 長さ1700m, 幅500～600m, 厚さ1 m土

第2表 人形峠地域のウラン鉱物の種類

|                                            | ウ ラ ン 鉱 物           |             | 化 学 組 成                                         | 産 地          | 主 な 共 生 鉱 物            |
|--------------------------------------------|---------------------|-------------|-------------------------------------------------|--------------|------------------------|
| 一<br>次<br>鉱<br>物                           | ningyoite           | 人形石         | $U_{1-x}Ca_{1-x}R_{2x}(PO_4)_2 \cdot 1-2H_2O$   | 人形峠鉱山・東郷鉱山全般 | 閃ウラン石・コフィン石・黄鉄鉱        |
|                                            | uraninite           | 閃ウラン石       | $UO_2$                                          | 〃            | 人形石・コフィン石              |
|                                            | coffinite           | コフィン石       | $U(SiO_4)_{1-x}(OH)_{4x}$                       | 神倉鉱床         | 人形石・閃ウラン石              |
| 二<br>次<br>鉱<br>物<br><br>(酸<br>化<br>鉱<br>物) | autunite            | リンカイウラン石    | $Ca(UO_2)_2(PO_4)_2 \cdot 10-12H_2O$            | 人形峠鉱山・東郷鉱山全般 | 他の二次ウラン鉱物・モンモリロナイト・褐鉄鉱 |
|                                            | meta-autunite       | メタ・リンカイウラン石 | $Ca(UO_2)_2(PO_4)_2 \cdot 8H_2O$                | 〃            | リンカイウラン石               |
|                                            | $\beta$ -uranophane | ベーターウラノフェン  | $Ca(UO_2)_2(SiO_3)_2(OH)_2 \cdot 5H_2O$         | 方面鉱床・麻畑鉱床    | リンカイウラン石・ウラノフェン        |
|                                            | uranophane          | ウラノフェン      | $Ca(UO_2)_2(SiO_3)_2(OH)_2 \cdot 5H_2O$         | 東郷鉱山全般       | ベーターウラノフェン             |
|                                            | boltwoodite         | ボルトウッド石     | $K_2(UO_2)_2(SiO_3)_2(OH)_2 \cdot 5H_2O$        | 方面鉱床         | ウラノフェン                 |
|                                            | carnotite           | カルノー石       | $K_2(UO_2)_2(VO_4)_2 \cdot 3H_2O$               | 神倉鉱床・麻畑鉱床    | リンカイウラン石               |
|                                            | ranquillite         | ランキル石       | $1.5CaO \cdot 2UO_3 \cdot 5SiO_2 \cdot 12H_2O$  | 神倉鉱床         | リンカイウラン石・カルノー石         |
|                                            | weeksite            | ウィークス石      | $(K \cdot Na)_2(UO_2)_2(Si_2O_5)_3 \cdot 4H_2O$ | 麻畑鉱床・神倉鉱床    | リンカイウラン石・カルノー石         |
|                                            | phosphuranylite     | リンウラニル石     | $Ca(UO_2)_4(PO_4)_2(OH)_4 \cdot 7H_2O$          | 神倉鉱床         | リンカイウラン石               |
|                                            | uranopilite         | ウラノピル石      | $(UO_2)_6(SO_4)(OH)_{10} \cdot 12H_2O$          | 〃            | 人形石・閃ウラン石・コフィン石・黄鉄鉱    |
|                                            | zippeite            | ジツベル石       | $K_4(UO_2)_6(SO_4)_3(OH)_{10} \cdot H_2O$       | 中津河鉱床・神倉鉱床   | 人形石・閃ウラン石・黄鉄鉱・メランテライト  |
|                                            | liebigitite         | リービツヒ石      | $Ca_2(UO_2)(CO_3)_3 \cdot 10H_2O$               | 神倉鉱床         | リンカイウラン石               |
|                                            | sabugalite          | リンアルミウラン石   | $HAl(UO_2)_4(PO_4)_4 \cdot 16H_2O$              | 〃            | ハロトリカイト・メランテライト        |

註 R: 希土類元素



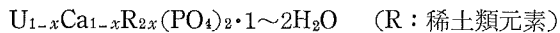
ラン石が圧倒的に多く，そのほかのウラン鉱物は特殊な生成環境の産物とみなすことができる。

ウラン鉱物の種類を大局的にみて特徴的なことは，人形石，リンカイウラン石のように磷酸塩鉱物が大部分をしめ，ウランの酸化物はセンウラン石のみで，その産出もまれなことである。また，ウランの珪酸塩鉱物は，一次鉱物ではコフィン石，二次鉱物ではベーターウランフェンなど6種をかぞえるが，これらの各鉱物がいずれも珪化木と密接な共存関係を示している。また，酸化帯へかけて局部的にウラノピル石やジッペル石のようなウランの硫酸塩鉱物の存在が確認されるが，これらの鉱物は共生する鉄鉱物との関係からみて，抗道掘進後の水和作用と酸化作用による生成鉱物と推定される。

リンカイウラン石，人形石をのぞくほかのウラン鉱物は，不純物を含まないで純粋に単一の鉱物として産出する場合が少なく，2種以上の微細なウラン鉱物の共生体，あるいは粘土鉱物や鉄鉱物との混在状態で認められることが多い。しかも，それらの分離は非常に困難で，X線回折によって鉱物種は同定し得ても，個々の光学的データを得ることが少ない場合が多い。

以下に，各ウラン鉱物について記載をする。

### 3-1 人形石 Ningyoite



人形石は，人形峠鉱山，東郷鉱山の各鉱床における非酸化帯の主要ウラン鉱物である。

世界でも本地域の鉱床にのみ認められ，発見の端初は1957年峠鉱床より黒色ウラン鉱として採取され，1959年に武藤らによって新鉱物として報告されたものである (MUTÔ, *et al.*, 1959)。

人形石は，肉眼的には淡緑色～灰黒色の粉状結晶であるが，電子顕微鏡下の観察によると，単結晶は10 $\mu$ 土の大きさで，針状，菱形ないし短冊形の形態を示す。

産状は一般に非酸化帯の礫岩・砂岩のマトリックス中に，いわゆる黒色鉱として濃集し，共生する微粒黄鉄鉱や炭質物の影響もあって周辺一帯は黒色～灰黒色を呈している。

それは，砂岩，礫岩を構成する造岩鉱物や黄鉄鉱の表面を薄く皮膜状に覆って存在する場合が多い。また，基盤花崗岩を貫き，不整合面によって切られる安山岩岩脈あるいはアブライト脈に人形石が伴う場合には，小塊状または岩脈にそって細脈状を呈して産出する。

共生鉱物としては，黄鉄鉱のほかに石膏や，黄鉄鉱の変質物と考えられる緑ばん，鉄明ばんなどがある。

人形石の比重は3.2～3.5であって，顕微鏡下では $n = 1.64 \sim 1.65$ の値を示すが，結晶水の含有度でこの屈折率はかなり変化する傾向がある。複屈折は低く弱い多色性を示す場合もあり，平行消光をなして伸長方向は(+)である。

第3表にX線回折データを示す。武藤によって同定された峠鉱床の人形石のデータに対比しているが，一般に結晶度が非常に悪く，したがって回折線もブロードでかつ数少ない場合がほとんどである。

なお，蛍光X線分析による微量元素の検討では，稀土類元素のほかに，Zr, As, Y, Sr, Ni, Co の各元素が確認されているが，Ni, Co, As は共生する黄鉄鉱による影響が考えられる (Plate 1, 3 参照)。

Table 3 X-ray powder diffraction data for ningyoite

| (1)   |     | (2)   |    | (3)   |    | (hkl) |
|-------|-----|-------|----|-------|----|-------|
| d (Å) | I   | d (Å) | I  | d (Å) | I  |       |
| 12    | f   |       |    |       |    | 010   |
| 6.8   | f   |       |    |       |    | 100   |
| 6.35  | vw  |       |    |       |    | 001   |
| 5.99  | wb  | 5.98  | w  |       |    | 020   |
| 5.65  | vw  |       |    |       |    | 011   |
| 4.49  | vw  |       |    | 4.49  | 2  | 120   |
| 4.33  | m   | 4.37  | sb | 4.30  | 5  | 111   |
| 4.02  | f   | 4.01  | w  |       |    | 030   |
| 3.45  | w   |       |    |       |    | 130   |
| 3.38  | mb  | 3.38  | m  | 3.38  | 4  | 200   |
| 3.19  | f   |       |    |       |    | 002   |
| 3.02  | vsb | 3.02  | s  | 3.02  | 10 | 201   |
| 2.81  | s   | 2.82  | s  | 2.80  | 7  | 112   |
| 2.73  | vw  |       |    |       |    | 041   |
| 2.69  | vw  |       |    |       |    | 221   |
| 2.35  | w   |       |    |       |    | 132   |
| 2.33  | f   |       |    |       |    | 202   |
| 2.26  | f   |       |    |       |    | 240   |
| 2.22  | f   |       |    |       |    | 310   |
| 2.13  | s   | 2.13  | s  | 2.13  | 6  | 241   |
| 2.01  | f   | 2.01  | w  |       |    | 060   |
| 1.926 | f   |       |    |       |    | 061   |
| 1.903 | vw  | 1.90  | w  | 1.902 | 2  | 331   |
| 1.845 | wb  | 1.85  | m  | 1.844 | 3  | 242   |
| 1.740 | w   | 1.73  | w  |       |    | 043   |
| 1.728 | f   |       |    |       |    | 223   |
| 1.692 | vw  | 1.68  | w  |       |    | 400   |
| 1.681 | vw  |       |    |       |    | 332   |
| 1.653 | vw  |       |    |       |    | 350   |
| 1.634 | f   |       |    |       |    | 420   |

(1) Tôgô Deposit, C1M Mutô (1959)

(2) Nakatsugawa Deposit, S11

(3) Asabatake Deposit, WA6

## 3-2 センウラン石 Uraninite

UO<sub>2</sub>

センウラン石は、人形石と同じく非酸化帯にのみ産出するが、量的には非常に少ない。しかし、方面、麻畑、神倉、中津河の各鉱床からその産出が確認されている。

その産状は鉱床ごとに若干の相違を示し、方面・麻畑鉱床では凝灰角礫岩層中に、神倉・中津河鉱床では炭質物や炭化木に伴なって認められる。センウラン石はこれまでの研究によ

Table 4 X-ray powder diffraction data for uraninite

| (4)   |    | (5)   |    | (6)   |     | (hkl) |
|-------|----|-------|----|-------|-----|-------|
| d (Å) | I  | d (Å) | I  | d (Å) | I   |       |
| 3.142 | 10 | 3.12  | 10 | 3.13  | 100 | 111   |
| 2.725 | 3  | 2.71  | 4  | 2.71  | 60  | 002   |
| 1.641 | 2  | 1.632 | 6  | 1.634 | 50  | 113   |
| 1.573 | 1  | 1.562 | 2  | 1.566 | 10  | 222   |

 $a_0 : 5.446 \text{ \AA}$  $a_0 : 5.41 \text{ \AA}$  $a_0 : 5.41 \text{ \AA}$ 

(4) Kannokura Deposit, WK23

(5) Kannokura Deposit, TgKl Okuno (1961)

(6) Yotsugi Deposit, Mutô (1961)

ると炭質物の存在するような強還元環境で安定とされているが，それを裏づけるように，方面・麻畑鉱床など炭質物のほとんど存在しない鉱床ではその産出はごく限定されており，しかもその場合には地下水の流入からとどされ，酸化をまぬかれて残存した形跡がうかがえる。

共存鉱物は，人形石，黄鉄鉱で，神倉鉱床の一部ではコフィン石と共存する。

センウラン石のX線回折データは第4表に示すとおりであるが，出現する回折線は一般に幅広く，結晶度が不良であることを示している。

センウラン石は従来多様な産状を示すことで知られ，(1)ペグマタイトに伴うもの，(2)熱水脈に伴うもの，および(3)砂岩・礫岩に伴うもの，の三つの型に大別した場合，結晶度は前者から後者へかけて一般に劣化することが明らかにされ，さらに FRONDEL (1958) によれば，センウラン石の格子定数とその産状によって変化し， $a_0$  を測定することによっておよそ三つの型に対応する値が得られることが報告された。すなわち，それらの鉱物は産状からみて，pegmatite type, vein type, および sandstone type の三つの型に分けられ，前者から後者へかけて結晶度は劣化し，かつ格子定数も小さくなる傾向が認められている。約 200 個の試料の測定から，次に記すような平均値が得られているが，人形峠地域に産するセンウラン石は，ほとんど sandstone type に近い値が得られた。しかし，神倉鉱床の一部の試料では vein type に近い値も得られている。

|                |        |
|----------------|--------|
| pegmatite type | 5.47 Å |
| vein type      | 5.44 Å |
| sandstone type | 5.41 Å |
| 人形峠鉱山夜次鉱床      | 5.41 Å |
| 東郷鉱山神倉鉱床       | 5.45 Å |

小さい格子定数の値は，単に生成状態を示すのみでなく， $\text{UO}_2$  の  $\text{U}^{4+}$  の一部が  $\text{U}^{6+}$  に酸化することによる格子の縮小とも考えられる。したがってその意味では神倉鉱床産のセンウラン石が非酸化帯の中心部に存在することからみると，この鉱物が変質をまぬかれて，新鮮なまま残存しているという考えも成りたつであろう。

Table 5 X-ray powder diffraction data for coffinite

| (7)   |    | (8)   |      | (9)   |   | (hkl) |
|-------|----|-------|------|-------|---|-------|
| d (Å) | I  | d (Å) | I    | d (Å) | I |       |
| 4.64  | 8  | 4.66  | 74   | 4.66  | s | 011   |
| 3.48  | 10 | 3.47  | 100b | 3.47  | s | 200   |
| 2.81  | 4  |       |      | 2.78  | w | 121   |
| 2.63  | 5  |       |      | 2.64  | f | 220   |
| 2.17  | 2  |       |      | 2.18  | w | 031   |
| 1.99  | 1  |       |      | 2.01  | f | 013   |
| 1.845 | 2  |       |      | 1.841 | w | 321   |
| 1.797 | 4  | 1.795 | 68   | 1.801 | m | 312   |
|       |    |       |      | 1.737 | w | 123   |
|       |    |       |      | 1.626 | f | 411   |
|       |    |       |      | 1.525 | f | 420   |
|       |    |       |      | 1.452 | f | 332   |
|       |    |       |      | 1.435 | f | 024   |

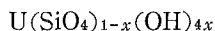
(7) Kannokura Deposit, WK4

(8) Ogamo Deposit, Inoue (1958)

(9) Arrowhead Mine, Colorado, Stieff (1956)

中津河鉱床では、センウラン石は微量にしか存在しない。かつ、それは炭化木、炭質物、黄鉄鉱と共生し、しかも微粒であるため純粋な試料は得られない。また、神倉鉱床では、炭質物に集中的に濃集し純粋に近いセンウラン石が得られ、一部でコフィン石と共存する。しかし、この場合鉱物の結晶粒は非常に微粒である。

### 3—3 コフィン石 Coffinite

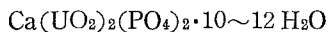


コフィン石は、人形峠地域では神倉鉱床の非酸化帯にのみ認められ、炭質物、炭化木、炭質頁岩、黄鉄鉱に伴ってかなり広い範囲の分布を示す。随伴するウラン鉱物は主として人形石で、まれにセンウラン石が認められる。東郷鉱山に近接する小鴨鉱山（鳥取県倉吉市小鴨）は鉱脈型のウラン鉱床であるが、ここでもコフィン石が認められ、神倉鉱床のセンウラン石が鉱脈型の格子定数を有する点から考えあわせ注目すべき問題である。コフィン石はセンウラン石と同様に黒色で、かつ炭質物と共存し微粒であることなどから、鏡下においても純粋な試料分離は困難であるが、バルク試料のX線回折によってかろうじて同定される。

第5表にX線回折データを示す。

格子定数は、神倉鉱山産のものが  $a_0 : 6.94\text{\AA}$ ,  $c_0 : 6.22\text{\AA}$ , 小鴨鉱山産のものが  $a_0 : 6.94\text{\AA}$ ,  $c_0 : 6.26\text{\AA}$  である。

### 3—4 リンカイウラン石 Autunite



非酸化帯において人形石が主要鉱物であるのに対して、本地域の酸化帯でもっとも普遍的に存在するのがリンカイウラン石である。したがって、その産出は各鉱床で確認される。

Table 6 X-ray powder diffraction data for autunite

| (10)  |    | (11)  |    | (12)  |     | (13)  |     | (hkl) |
|-------|----|-------|----|-------|-----|-------|-----|-------|
| d (Å) | I  | d (Å) | I  | d (Å) | I   | d (Å) | I   |       |
| 10.4  | 10 | 10.5  | 10 | 10.4  | 100 | 10.48 | 100 | 002   |
|       |    |       |    | 8.72  | 2   |       |     |       |
|       |    |       |    | 8.24  | 2   |       |     |       |
| 6.65  | 1  |       |    | 6.67  | 6   | 6.74  | 6   | 011   |
| 5.21  | 5  | 5.21  | 4  | 5.19  | 50  | 5.19  | 86  | 044   |
| 4.95  | 4  | 4.98  | 3  | 4.96  | 25  | 4.91  | 35  | 110   |
| 4.48  | 2  | 4.51  | 2  | 4.48  | 20  | 4.46  | 15  | 112   |
| 3.573 | 9  | 3.59  | 5  | 3.58  | 45  | 3.565 | 83  | 015   |
| 3.513 | 3  | 3.53  | 2  | 3.51  | 20  | 3.495 | 18  | 020   |
| 3.324 | 2  | 3.34  | 2  | 3.33  | 18  | 3.317 | 22  | 022   |
| 2.908 | 1  | 2.93  | 1  | 2.91  | 6   | 2.899 | 8   | 024   |
| 2.835 | 1  | 2.86  | 1  | 2.86  | 8   | 2.861 | 13  | 213   |
| 2.728 | 2  | 2.74  | 1  | 2.73  | 10  | 2.727 | 16  | 017   |
|       |    | 2.59  | 1  | 2.60  | 2   | 2.596 | 5   | 008   |
| 2.506 | 1  |       |    | 2.50  | 4   | 2.495 | 3   | 215   |
| 2.479 | 1  |       |    | 2.48  | 4   |       |     | 220   |
|       |    |       |    |       |     | 2.440 | 5   |       |
| 2.409 | 1  | 2.42  | 1  | 2.41  | 6   | 2.418 | 7   | 222   |
| 2.396 | 1  | 2.30  | 1  | 2.30  | 4   | 2.299 | 9   | 118   |
| 2.215 | 1  | 2.22  | 1  | 2.22  | 6   | 2.219 | 14  | 224   |
| 2.189 | 1  | 2.19  | 1  | 2.19  | 6   | 2.193 | 26  | 310   |
|       |    | 2.17  | 1  | 2.17  | 6   | 2.181 | 22  | 312   |
| 2.152 | 2  | 2.16  | 1  | 2.15  | 8   | 2.161 | 16  | 217   |
|       |    |       |    |       |     | 2.143 | 17  |       |
| 2.074 | 2  | 2.08  | 2  | 2.08  | 16  | 2.080 | 45  | 028   |
|       |    |       |    |       |     |       |     | 00.10 |

 $a_0 : 7.02 \text{ \AA}$  $c_0 : 20.74 \text{ \AA}$  $a_0 : 7.06 \text{ \AA}$  $c_0 : 20.80 \text{ \AA}$  $a_0 : 7.00 \text{ \AA}$  $c_0 : 20.67 \text{ \AA}$  $a_0 : 6.969 \text{ \AA}$  $c_0 : 20.76 \text{ \AA}$ 

(10) Katamo Deposit, W1

(11) Nakatsugawa Deposit, N58

(12) Daybreak Mine, G.W.Leo (1960)

(13) Tôge Deposit, Y. Takano (1961)

一般的な傾向として，この鉱物は不整合面直上の花崗岩質基底礫岩，アルコーズ砂岩層に，礫の表面や粒間あるいは鉱物の結晶粒や割れ目にそって発達するが，中津河鉱床では砂岩・礫岩層の上位の縞状頁岩中に，微粒結晶が層理に対して平行に数ミリ単位の薄層のくり返しで存在することもある。この場合，頁岩中に存在する炭質物の濃集部に規制される場合が多い。この事実は，一次ウラン鉱物が酸化によって二次鉱物を生成する場合，ほとんど移動せずに原位置で転移する可能性を示している。また，一方，方面・麻畑鉱床では，この鉱物が単にアルコーズ質基底礫岩・砂岩層のみでなく，モンモリロナイト化した凝灰岩・凝灰角礫

Table 7 X-ray powder diffraction data for meta-autunite

| (14)  |    | (15)  |     | (16)  |    |
|-------|----|-------|-----|-------|----|
| d (Å) | I  | d (Å) | I   | d (Å) | I  |
| 8.4   | 10 | 8.54  | 100 | 8.51  | 10 |
| 5.40  | 4  | 5.37  | 32  | 5.39  | 7  |
| 4.95  | 3  | 4.93  | 14  | 4.96  | 5  |
| 4.27  | 4  | 4.28  | 17  | 4.28  | 6  |
|       |    | 4.25  | 30  |       |    |
| 3.63  | 7  | 3.62  | 86  | 3.63  | 8  |
| 3.48  | 4  | 3.50  | 28  | 3.50  | 9  |
| 3.23  | 5  | 3.24  | 18  | 3.24  | 8  |
|       |    | 3.20  | 10  |       |    |
| 2.928 | 3  | 2.93  | 11  | 2.94  | 4  |
| 2.688 | 2  |       |     | 2.68  | 1  |
|       |    | 2.62  | 48  | 2.61  | 3  |
| 2.527 | 1  | 2.51  | 7   | 2.51  | 2  |
| 2.453 | 1  | 2.45  | 9   | 2.47  | 2  |
| 2.366 | 1  | 2.38  | 3   | 2.38  | 3  |
|       |    | 2.25  | 4   | 2.25  | 3  |
| 2.199 | 1  | 2.21  | 7   | 2.21  | 3  |
|       |    | 2.19  | 6   |       |    |
| 2.125 | 5  | 2.11  | 63  | 2.14  | 3  |
|       |    | 2.095 | 18  | 2.10  | 3  |
| 2.043 | 1  | 2.037 | 8   | 2.04  | 3  |

(14) Katamo Deposit, W16

(15) Tôgô Deposit, Y. Takano (1961)

(16) Sabugal, Portugal, Frondel (1958)

岩の割れ目にそって濃集する場合も多い (第6表)。

随伴鉱物としては、モンモリロナイトや褐鉄鉱のほか、局部的にメランテライトなど鉄の硫酸塩鉱物と共生する。共生ウラン鉱物の発達は、中津河鉱床では顕著でないが、東郷鉱山の各鉱床では多種類の鉱物の存在が確認される。すなわち、乾燥箇所ではメタリンカイウラン石が存在し、そのほかにウラノフェンやペーターウラノフェン、まれに存在するボルトウッド石は、リンカイウラン石の存在によって共存を規制されているというよりは、後述するように珪化帯と密接不離の関係にある (第7表)。そして、これらのウランの珪酸塩鉱物は、リンカイウラン石の細脈によって切られて存在する場合が多く、その生成がかなり早期であることを示している。

リンカイウラン石の結晶は1 mm 程度に成長する場合もあるが一般には微細で0.  $n$  ~ 0.0  $n$  mm 程度の微小な結晶が多く、淡緑色~淡黄色でかつ半透明である。大きい粒子は鱗片状を呈し、ほかのウラン鉱物に較べて純粋な試料の採取がより容易である。また、紫外線の照射によって黄緑色の強い蛍光作用を呈する (Plate 2, 3 参照)。

鏡下における光学的性質は下に記すとおりである。

形 状：鱗片状，不定形板状

色：淡緑色～淡黄色～緑色

多色性：colorless～pale yellow

屈折率： $\alpha = 1.556$

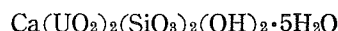
$\beta = 1.574$

$\gamma = 1.576$

光学性：biaxial  $2V(-) \cong 20^\circ$

なお，蛍光X線分析による微量成分の検討結果では，Sr の存在は確認されるが，人形石に認められた Zr, As, Y， 稀土類元素は検出されず，したがって，ウランの酸化に並行してこれらの元素は移動したものと考えられる。なお，Sr は主成分元素の Ca に附随するものと考えられる。

### 3-5 ベーターウラノフェン $\beta$ -Uranophane



この鉱物は人形峠鉱山においては確認されていないが，東郷鉱山の各鉱床の酸化帯に産する。二次ウラン鉱物としては，リンカイウラン石について多量に産するが，相対的な存在量からすれば非常に少ない。

ベーターウラノフェンはほとんど酸化帯の基底礫岩，あるいはアルコーズ砂岩中に含まれる珪化木中に選択的に集中して存在する。

珪化木は肉眼で明確に判別できるものから，顕微鏡観察によって組織の交代が判別できるものまで，珪化木自体の保存度には各種の段階が認められる (Plate 2, 3 参照)。

また，アルコーズ砂岩中に層理面に平行して薄くフィルム状に存在することもあるが，この場合も砂岩中にかつて炭質物が存在した痕跡がうかがえる。まれに，珪化木，炭質物に全く無関係に存在する場合もあるが，おそらく鉱物生成後に二次的に多少移動したものであらう。いずれにしても，全般的にみてこの鉱物は珪化木と密接な関連があることは確かである。

共存する鉱物は，リンカイウラン石，ウラノフェンで，一部で褐鉄鉱，モンモリロナイトによって汚染される場合もある。純粋な結晶では単独に約 1 mm 程度におよぶ針状結晶として認められる場合もあり，黄色～黄褐色を呈する。

鏡下における光学的性質は下記の通りである。

○麻畑鉱床 2 号坑 113m W 9-2

屈折率： $\alpha = 1.665$

$\beta = 1.687$

$\gamma = 1.698$

多色性： $\alpha = \text{nearly colorless}$

$\beta = \text{pale canary yellow}$

$\gamma = \text{pale canary yellow}$

光学性： $2V(-) \cong 5^\circ$

elongation：(+)

なお，ベーターウラノフェンの X 線回折データを第 8 表に示す。

Table 8 X-ray powder diffraction data for beta-uranophane

| (17) |    | (18) |    |
|------|----|------|----|
| d(Å) | I  | d(Å) | I  |
| 7.83 | 10 | 7.83 | 10 |
| 6.71 | 1  | 6.66 | 4  |
| 6.15 | 1  | 6.15 | 4  |
| 5.07 | 2  | 5.07 | 4  |
| 4.90 | 1  | 4.85 | 4  |
| 4.58 | 2  | 4.55 | 4  |
| 4.15 | 1  | 4.11 | 3  |
| 4.10 | 1  |      |    |
| 3.90 | 6  | 3.90 | 9  |
|      |    | 3.75 | 1  |
| 3.56 | 3  | 3.51 | 6  |
|      |    | 3.41 | 1  |
| 3.30 | 2  | 3.35 | 2  |
| 3.19 | 3  | 3.19 | 5  |
| 3.04 | 1  | 3.04 | 4  |
| 2.98 | 2  | 2.99 | 3  |
| 2.92 | 1  | 2.91 | 2  |
| 2.83 | 3  | 2.83 | 4  |
| 2.78 | 1  | 2.78 | 3  |
| 2.60 | 3  | 2.59 | 5  |

(17) Asabatake Deposit, W9-2

(18) Joachimsthal, Bohemia, Frondel (1958)

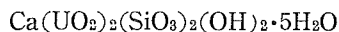
Table 9 X-ray powder diffraction data for uranophane

| (19) |    | (20) |    |
|------|----|------|----|
| d(Å) | I  | d(Å) | I  |
| 7.96 | 10 | 7.88 | 10 |
| 6.65 | 2  | 6.61 | 4  |
| 6.41 | 2  |      |    |
| 5.47 | 3  | 5.42 | 4  |
| 4.82 | 3  | 4.76 | 5  |
| 4.33 | 1  | 4.29 | 2  |
| 3.97 | 6  | 3.94 | 9  |
| 3.90 | 1  |      |    |
| 3.60 | 3  | 3.60 | 4  |
| 3.52 | 3  | 3.51 | 4  |
|      |    | 3.41 | 1  |
|      |    | 3.35 | 1  |
| 3.22 | 3  | 3.20 | 5  |
|      |    | 3.09 | 1  |
| 3.00 | 3  | 2.99 | 8  |
| 2.92 | 3  | 2.91 | 8  |
| 2.70 | 1  | 2.69 | 4  |
| 2.64 | 1  | 2.63 | 5  |
| 2.56 | 1  | 2.57 | 2  |

(19) Katamo Deposit, K26

(20) Ruggles, New Hampshire, Frondel (1956)

### 3-6 ウラノフェン Uranophane



ウラノフェンはペーターウラノフェンと常に共存し、両者の肉眼および鏡下における識別は結晶が粉状微細なため不可能であって、X線回折によってのみそれらの存在が確認される。両者の量的比率についてみると、ウラノフェンはかなり少量である。この共生関係からみて、ウラノフェンも炭質物、珪化木に成因的な関係を有するものとみてよい。

そのほかの共生鉱物は、リンカイウラン石、ボルトウッド石、モンモリロナイト、褐鉄鉱など酸化帯に特徴的な鉱物である。これら各鉱物の量的な関係は、珪化木の場合には、中心から外側部へかけてペーターウラノフェンが急激に減少するのに対して、ウラノフェンは微量ながらもかなり普遍的に存在し、外側部で減少する。

一方、リンカイウラン石とモンモリロナイトは外側部に多量に存在し、砂岩層のリンカイウラン石に連続する。このような場合、中心部はあまり珪化せず、むしろ外側部のオパール化が強く、堅硬な状態を示す (Plate 2, 3)。

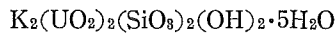
ウラノフェンとペーターウラノフェンは同質異像の関係にあり、ウラノフェンがむしろ安



定な鉱物とされているが，本地域の鉱床ではベーターウラノフェンが多産する。ベーターウラノフェンを摩砕することによってウラノフェンに転移することは，実験的によく知られているが，本地域の両者の関連については明確でない。

ウラノフェンのX線回折データを第9表に示す。

### 3-7 ボルトウッド石 Boltwoodite



東郷鉱山方面鉱床下1号坑の酸化帯にのみボルトウッド石は確認され，アルコーズ砂岩中に塊状，淡黄色を呈し埋れ木を交代して産する。共生するウラン鉱物は，ウラノフェン，ベーターウラノフェンであるが，これらの鉱物には螢光作用がないのに対して，ボルトウッド石は微弱ながら淡黄色の螢光を発する。

ボルトウッド石もウランの珪酸塩鉱物であって，珪化木にウラノフェンなどと共存することは，ウラノフェンなどと同様に埋れ木のオパール化に伴う生成条件が推定される。

なお，微量元素では Zr, Y が濃集している。微粒粉状結晶のため，共存するほかのウラン鉱物からの分離は不可能であるが，鏡下ではリンカイウラン石の細脈によって切れ，早期生成の二次ウラン鉱物であることが推定される。

本来，このボルトウッド石は合成実験により，Kの位置をNaの置換による固溶体の形成が考えられているが，方面鉱床産のボルトウッド石はX線回折（第10表）によって“K—ボルトウッド石”に非常に良好な一致がみられる（HONEA, 1961）。

Table 10 X-ray powder diffraction data for boltwoodite

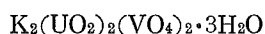
| (21) |    | (22) |    | (23) |    |
|------|----|------|----|------|----|
| d(Å) | I  | d(Å) | I  | d(Å) | I  |
|      |    | 7.53 | 2  |      |    |
| 6.86 | 10 | 6.81 | 10 | 6.84 | 10 |
| 6.44 | 3  | 6.40 | 5  | 6.35 | 5  |
| 5.47 | 3  | 5.45 | 5  | 5.47 | 4  |
| 4.73 | 4  | 4.74 | 4  | 4.74 | 3  |
| 4.33 | 3  | 4.32 | 4  | 4.35 | 2  |
|      |    | 4.11 | 2  | 4.11 | 1  |
|      |    | 3.91 | 1  | 3.88 | 2  |
|      |    | 3.75 | 1  | 3.75 | 1  |
| 3.56 | 5  | 3.54 | 7  | 3.55 | 8  |
| 3.44 | 6  | 3.40 | 9  | 3.41 | 6  |
| 3.16 | 5  | 3.13 | 5  | 3.16 | 8  |
|      |    | 3.07 | 1  |      |    |
| 2.97 | 5  | 2.95 | 8  | 2.96 | 7  |
| 2.92 | 6  | 2.91 | 7  | 2.91 | 6  |

(21) Katamo Deposit, K32

(22) Delta Mine, Utah, R. M. Honea (1961)

(23) Synthetic K-boltwoodite, R. M. Honea (1961)

## 3-8 カルノー石 Carnotite



カルノー石はボルトウッド石と同じく、ここでとり扱う諸鉱床を通じて産出は非常にまれで、わずかに東郷鉱山麻畑鉱床2号坑、神倉鉱床1号坑にのみ認められるにすぎない。

神倉鉱床では、酸化帯のアルコーズ砂岩層中に夾在する珪化木の割れ目や、あるいはその一部を交代して、鮮黄色状を呈して存在し、麻畑鉱床では酸化帯の凝灰質粘土の割れ目にそって存在する。

両鉱床とも、共生鉱物は主にリンカイウラン石、モンモリロナイトで、まれに神倉鉱床ではランキル石、麻畑鉱床ではウィークス石と共存する。ほかの二次ウラン鉱物と同じく、リンカイウラン石の細脈によって切られる産状を示す場合が多い。

諸外国のウラン鉱床（とくに、アメリカ・コロラド高原の各堆積型ウラン鉱床）では、カルノー石は非常に一般的な鉱物である。本地域でこの産出が少ないのは一つの特徴といえる。

人形峠地域の各鉱床では、炭質物中に Zr と V が濃集することが蛍光 X 線分析の結果判明しているが、その点を考慮すると酸化帯になって稀土類元素などが移動したのに対し、局部的に V が残存した結果カルノー石の生成をみたものと推定される。

X線回折データは第11表のとおりで、鏡下での性質は下記のごとくである。

Table 11 X-ray powder diffraction data for carnotite

| (24)  |    | (25)  |     |
|-------|----|-------|-----|
| d(Å)  | I  | d(Å)  | I   |
| 6.55  | 10 | 6.56  | 10  |
| 5.12  | 3  | 5.12  | 1   |
| 4.57  | 2  | 4.53  | 0.5 |
| 4.23  | 4  | 4.25  | 3   |
| 3.79  | 2  |       |     |
| 3.53  | 5  | 3.53  | 5   |
| 3.24  | 5  | 3.25  | 3   |
| 3.10  | 10 | 3.12  | 7   |
| 2.71  | 2  | 2.715 | 1   |
| 2.600 | 2  | 2.571 | 2   |
|       |    | 2.495 | 1   |
| 2.161 | 3  | 2.156 | 3   |
| 2.030 | 2  | 2.032 | 1   |
| 1.943 | 2  | 1.942 | 2   |

(24) Kannokura Deposit, W16-3

(25) Olary, South Australia,  
Fron del (1958)

Table 12 X-ray powder diffraction data for ranquillite

| (26)  |     | (27)  |    | (hkl) |
|-------|-----|-------|----|-------|
| d(Å)  | I   | d(Å)  | I  |       |
| 9.31  | 10  | 9.26  | vs | 002   |
| 8.12  | 3   | 8.12  | s  |       |
| 6.51  | 0.5 | 6.62  | f  | 120   |
| 5.10  | 3   | 5.10  | w  | 203   |
|       |     | 4.63  | m  | 004   |
| 4.46  | 3   | 4.47  | vs | 104   |
| 3.77  | 0.5 |       |    |       |
| 3.68  | 1   | 3.68  | f  | 421   |
| 3.56  | 2   | 3.58  | m  | 040   |
| 3.40  | 3   |       |    |       |
| 3.33  | 2   | 3.34  | m  | 205   |
| 3.21  | 2   | 3.21  | m  | 512   |
| 3.06  | 3   |       |    |       |
| 3.03  | 2   | 3.03  | vs | 106   |
| 2.81  | 1   | 2.81  | w  | 523   |
| 2.637 | 2   | 2.63  | w  | 425   |
| 2.528 | 1   | 2.508 | vf | 540   |

(26) Kannokura Deposit, WK-7

(27) Mendoza Prov., Argentina, Abeledo  
et al. (1960)

形 状：0. *n* mm程度の粉状結晶

色：鮮黄色～淡緑黄色

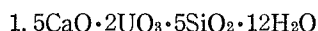
屈折率： $\alpha = 1.760$

$\beta = 1.925$

$\gamma = 1.980$

多色性：colorless～canary yellow

### 3—9 ランキル石 *Ranquillite*



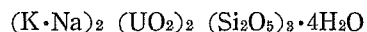
ランキル石は神倉鉱床1号坑においてのみ，酸性凝灰角礫岩層中に含有される埋れ木を交代して産出する。埋れ木は珪化しているが，木質のせんい構造が残存し，肉眼でも明瞭に判別しうる。この場合，珪化木は若干褐鉄鉱によって汚染され，全体に淡黄色を呈する。ランキル石は木質の構造にそって，あるいは珪化木の割れ目にそって細長くのびて存在するが，個々の結晶は黄色粉末状で非常に微細である。

共生鉱物は，リンカイウラン石，カルノー石，モンモリロナイト，オパール，褐鉄鉱などで，直接共存はしないがその附近にはウィークス石も産出する。

ランキル石は，わずかながら淡黄色の螢光作用が認められるが，リンカイウラン石など共生鉱物の存在と微粒粉状結晶のため，光学的性質は明らかでない。

X線回折データを第12表に示す。

### 3—10 ウィークス石 *Weeksite*



ウィークス石は麻畑鉱床2号坑の酸化帯においてモンモリロナイト化した軽石質凝灰岩の割れ目にそって0.5～1mm程度の黄緑色の細脈を呈して存在する。リンカイウラン石，モンモリロナイトと共生し，近接してカルノー石も存在する。神倉鉱床2号坑では珪化木中に黄緑色粉状で認められるが，この場合はモンモリロナイト，オパール，ランキル石のほかに，微量のリンカイウラン石と共生する。

ウィークス石は斜方晶系に属し，第13表に示すようにX線回折データは Thoma Range, Utah における堆積起源のウィークス石の値に良好な一致をみる。

◦ WA26麻畑鉱床2号坑

$a_0 : 14.26\text{\AA}$   $b_0 : 35.82\text{\AA}$   $c_0 : 14.20\text{\AA}$

◦ Thoma Range, Utah

$a_0 : 14.26\text{\AA}$   $b_0 : 35.82\text{\AA}$   $c_0 : 14.20\text{\AA}$

鏡下における光学的性質は下記のとおりである。

色：淡黄色～淡緑黄色

螢光：微弱，淡緑黄色

形態：0.1mm以下の針状結晶，小球状集合体

elongation：(+)

多色性：微弱，淡緑色

屈折率： $n = 1.601 \sim 1.598$

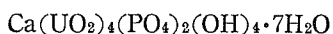
### 3—11 リンウラニル石 *Phosphuranylite*

Table 13 X-ray powder diffraction data for weeksite

| (28)  |     | (29)  |     |
|-------|-----|-------|-----|
| d (Å) | I   | d (Å) | I   |
| 8.94  | 8   | 8.98  | 8   |
| 7.91  | 0.5 | 7.87  | 1   |
| 7.12  | 10  | 7.11  | 10  |
|       |     | 6.17  | 1   |
| 5.57  | 9   | 5.57  | 9   |
| 4.83  | 2   | 4.83  | 3   |
| 4.56  | 4   | 4.58  | 4   |
| 4.47  | 3   | 4.48  | 3   |
| 4.25  | 0.5 |       |     |
| 4.09  | 0.5 |       |     |
| 3.86  | 5   | 3.84  | 4   |
|       |     | 3.79  | 0.5 |
| 3.55  | 8   | 3.55  | 8   |
| 3.34  | 3   | 3.34  | 4b  |
| 3.31  | 7   | 3.30  | 7   |
| 3.18  | 7   | 3.20  | 5   |
| 3.14  | 1   | 3.13  | 1   |
|       |     | 3.06  | 1   |
| 2.99  | 4   | 2.99  | 4   |
| 2.92  | 8   | 2.91  | 6   |
| 2.80  | 1b  | 2.80  | 3   |
| 2.734 | 0.5 |       |     |
|       |     | 2.69  | 0.5 |
| 2.515 | 2   | 2.51  | 3   |
| 2.408 | 3   | 2.41  | 4   |
| 2.376 | 3   | 2.37  | 5   |
| 2.283 | 3   | 2.28  | 5   |
| 2.236 | 2   | 2.24  | 4   |
| 2.198 | 2   | 2.20  | 3   |
|       |     | 2.17  | 0.5 |
| 2.134 | 2   | 2.13  | 4   |
| 2.104 | 3   | 2.11  | 4   |
| 1.991 | 2   | 1.994 | 4   |
| 1.974 | 3   | 1.973 | 3   |
| 1.926 | 2   | 1.922 | 3   |
| 1.901 | 4   | 1.905 | 4   |
| 1.895 | 3   | 1.899 | 4   |
| 1.871 | 1   | 1.872 | 1   |
|       |     | 1.854 | 0.5 |
| 1.828 | 1   | 1.831 | 2b  |
| 1.789 | 1   | 1.791 | 3   |
| 1.777 | 2   | 1.778 | 4   |
|       |     | 1.763 | 0.5 |
| 1.739 | 2   | 1.741 | 3b  |
| 1.723 | 2   | 1.723 | 1   |
| 1.689 | 3   | 1.689 | 4   |

(28) Asabatake Deposit, WA-26

(29) Thema Range, Utah, Outerbridge et al. (1960)



この鉱物は，神倉鉱床 2 号坑の亜炭を夾在する非酸化帯の近くに，二次酸化ウラン鉱物として存在する。この非酸化帯は主にセンウラン石，コフィン石によってしめられ，若干の人形石をも伴っている。また，リンウラニル石と共生するウラン鉱物はリンカイウラン石とリービヒ石である。

リンウラニル石は橙黄色～黄褐色を呈し，アルコーズ砂岩の空隙を埋めフィルム状に薄く附着して存在するが蛍光作用はない。

鏡下における光学性は下記のとおりである。

色：黄緑色～黄色

形態：0.05mm程度の微細な針状結晶の集合体

elongation：(+)

多色性：微弱～淡黄色

Table 14 X-ray powder diffraction data for phosphuranylite

| (30)  |    | (31)  |     |       |
|-------|----|-------|-----|-------|
| d(Å)  | I  | d(Å)  | I   | (hkl) |
| 10.15 | 7  | 10.16 | 1   | 101   |
| 7.86  | 7  | 7.83  | 10  | 200   |
|       |    | 7.10  | 5   |       |
|       |    | 6.33  | 10  |       |
| 5.85  | 4  | 5.83  | 8   | 220   |
|       |    | 5.37  | 0.5 |       |
|       |    | 4.96  | 1   | 131   |
|       |    | 4.73  | 2   |       |
| 4.32  | 1  | 4.33  | 3   | 013   |
| 3.976 | 5  | 3.97  | 9   | 400   |
| 3.850 | 3  | 3.83  | 1   | 240   |
| 3.411 | 2  | 3.44  | 1   | 421   |
|       |    | 3.76  | 2   | 313   |
| 3.129 | 8  | 3.12  | 6   | 204   |
| 3.076 | 9  | 3.07  | 4   | 214   |
|       |    | 2.94  | 2   | 440   |
| 2.873 | 10 | 2.86  | 6   | 060   |
|       |    | 2.71  | 1   |       |
|       |    | 2.59  | 1   |       |
|       |    | 2.43  | 2   |       |

(30) Kannokura Deposit, K2-11

(31) Flat Rock Mine, North Carolina, Frondel (1960)

Table 15 X-ray powder diffraction data for uranopilite

| (32) |    | (33) |    |
|------|----|------|----|
| d(Å) | I  | d(Å) | I  |
| 9.18 | 3  | 9.18 | 8  |
| 8.04 | 4  | 8.21 | 2  |
| 7.70 | 1  |      |    |
| 7.13 | 10 | 7.12 | 10 |
|      |    | 5.99 | 2  |
|      |    | 5.51 | 4  |
|      |    | 5.13 | 1  |
|      |    | 4.76 | 1  |
| 4.60 | 1  | 4.61 | 1  |
| 4.27 | 5  | 4.28 | 8  |
|      |    | 4.02 | 1  |
|      |    | 3.86 | 2  |
|      |    | 3.65 | 5  |
| 3.48 | 2  | 3.48 | 2  |
| 3.30 | 1  | 3.31 | 4  |
|      |    | 3.08 | 1  |
| 2.98 | 1  | 2.99 | 3  |
|      |    | 2.90 | 3  |
|      |    | 2.75 | 1  |
| 2.69 | 2  | 2.69 | 2  |
|      |    | 2.59 | 2  |

(32) Kannokura Deposit, K2-8

(33) Wheal Owles, England, Frondel (1958)

屈折率： $\alpha=1.690$

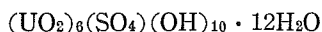
$\beta=1.705$

$\gamma=1.705$

リンウラニル石は Ca の位置に Mg 置換の固溶体が存在し、分光分析の結果からかなりの Mg の存在が確認された。理想式からみられる化学成分は、リンカイウラン石にほとんど一致するにもかかわらず、このリンウラニル石が存在することは、Mg 置換の形をとった種類に属するものとみてよい。

X線回折データを第14表に示すが、対象にあげた Flat Rock Mine の試料は Mg 含有量の多い種類のものである。

### 3-12 ウラノピル石 Uranopilite



神倉鉄床南 1 号坑において、非酸化帯のアルコーズ砂岩中の亜炭とともに、センウラン石、コフイン石、黄鉄鉱の濃集部が存在する。ウラノピル石は、これらにともなって各鉱物をフィルム状に皮覆しながら黄橙色の二次鉱物として認められる。

非酸化帯の暗灰色部において生成するので、その黄橙色の存在は非常に鮮明で明確であるが、その産出は局部的に限定されている。

共生鉱物は石膏とメランテライトで、高品位な一次ウラン鉱物と黄鉄鉱の存在を考えあわせると、ウラノピル石は湿潤状態において黄鉄鉱の酸化による  $\text{SO}_4$  の生成に伴って二次的に生成したものであろう。この推定はメランテライトの存在によっても裏づけられる。ジッペル石と同じくこの鉱物は坑道掘進後の新しい生成鉱物であるが、非常に不安定で地下水などですぐ変質溶脱されてしまう。

鏡下における光学的性質は下記のとおりである。

色：鮮橙黄色

形状：皮膜状、塊状、一部針状

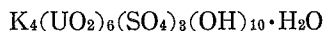
螢光：強、橙黄色

多色性：colorless～yellow

屈折率： $n=1.62\sim1.64$

なお、X線回折データを第15表に示す。

### 3-13 ジッペル石 Zippeite



ジッペル石は、中津河鉄床南部鉱体 2 号坑において、非酸化帯のアルコーズ砂岩層中にメランテライトや石膏と共生し、微量ながら鮮黄色を呈して産する。人形石や黄鉄鉱も附近に産出しウラノピル石の産状に酷似すること、また両鉱物ともウランの硫酸塩鉱物であることを考慮すると、黄鉄鉱の酸化による  $\text{SO}_4$  の生成がジッペル石の成因に結びついていると推定される。

ジッペル石は、一般にはアルコーズ砂岩層の礫の表面を薄く皮覆して産し、時には礫の割れ目にも附着して存在する。

ジッペル石はウラノピル石と肉眼的に識別することは不可能で、X線回折によってはじめて両者は区別しうる。また、ジッペル石はウラノピル石に較べると多少量的に多く産出する

Table 16 X-ray powder diffraction data for zippeite

| (34)  |    | (35)  |    |
|-------|----|-------|----|
| d(Å)  | I  | d(Å)  | I  |
| 10.7  | 1  |       |    |
| 8.60  | 1  | 8.65  | 4  |
| 7.68  | 1  |       |    |
| 7.07  | 10 | 7.06  | 10 |
|       |    | 6.45  | 2  |
| 5.60  | 1  | 5.44  | 4  |
|       |    | 4.27  | 5  |
| 3.86  | 1  | 3.88  | 3  |
|       |    | 3.63  | 4  |
| 3.51  | 6  | 3.51  | 8  |
| 3.11  | 1  | 3.12  | 9  |
|       |    | 2.86  | 6  |
|       |    | 2.71  | 2  |
|       |    | 2.65  | 5  |
|       |    | 2.47  | 5  |
| 2.34  | 2  | 2.34  | 2  |
|       |    | 2.21  | 4  |
|       |    | 2.14  | 3  |
|       |    | 2.09  | 2  |
|       |    | 2.05  | 5  |
|       |    | 1.935 | 6  |
|       |    | 1.876 | 2  |
|       |    | 1.856 | 2  |
|       |    | 1.816 | 5  |
| 1.755 | 1  | 1.745 | 6  |

(34) Kannokura Deposit, W9-B

(35) Joachimsthal, Bohemia, Frondel (1952)

Table 17 X-ray powder diffraction data for liebigite

| (36)  |    | (37)  |    |
|-------|----|-------|----|
| d(Å)  | I  | d(Å)  | I  |
| 8.66  | 10 | 8.68  | 9  |
|       |    | 8.27  | 1  |
| 6.75  | 3  | 6.81  | 10 |
|       |    | 6.11  | 2  |
| 5.40  | 5  | 5.40  | 9  |
|       |    | 4.95  | 1  |
| 4.50  | 3  | 4.55  | 6  |
|       |    | 4.17  | 1  |
|       |    | 4.04  | 2  |
|       |    | 3.95  | 1  |
|       |    | 3.75  | 2  |
|       |    | 3.58  | 3  |
|       |    | 3.33  | 5  |
|       |    | 3.31  | 5  |
|       |    | 3.19  | 1  |
| 3.097 | 5  | 3.10  | 6  |
|       |    | 3.02  | 1  |
|       |    | 2.84  | 1  |
|       |    | 2.77  | 1  |
|       |    | 2.66  | 1  |
|       |    | 2.57  | 3  |
|       |    | 2.44  | 1  |
| 2.372 | 3  | 2.37  | 2  |
|       |    | 2.30  | 2  |
|       |    | 2.26  | 2  |
| 2.149 | 3  | 2.15  | 4  |
| 2.092 | 3  | 2.10  | 1  |
|       |    | 2.02  | 1  |
|       |    | 1.998 | 5  |
|       |    | 1.957 | 1  |

(36) Kannokura Deposit, W12

(37) Joachimsthal, Bohemia, Evans et al. (1950)

が結晶度はかなり悪く不安定である。

第16表にX線回折データを，また鏡下における光学的性質を下記に示す。

色：鮮黄色～鮮黄橙色

形状：微粒粉状，皮膜状

螢光：強，黄緑色～緑色

多色性：pale yellow～yellow

屈折率： $n=1.65\sim1.68$

### 3-14 リービッヒ石 Liebigit



神倉鉱床 2 号坑のアルコーズ砂岩中の非酸化帯において、局所的にリンカイウラン石、リンウラニル石、石膏などとともにリービッヒ石が確認された。

共存ウラン鉱物の量比はリンカイウラン石が大半をしめるが、リービッヒ石、リンウラニル石が微量の存在にもかかわらず、その特有な鮮緑黄色の色によって明瞭に識別さる。しかし、リービッヒ石は緑色～黄緑色の色彩を呈し、蛍光も強い黄緑色を示すことから、ほとんど同じ性質のリンウラニル石との分離は不可能で、X線回折によってのみ両鉱物は識別される。すなわち、両鉱物はリンカイウラン石などとともにアルコーズ砂岩の空隙にフィルム状に附着して存在するが、両者とも同じく非常に不安定で容易に溶脱あるいは変質してゆく。微量の存在と、リンウラニル石との共存から詳細な光学量性質は得られない。

Table 18 X-ray powder diffraction data for sabugalite

| (38)  |    |       | (39) |     |
|-------|----|-------|------|-----|
| d(Å)  | I  | Idt.  | d(Å) | I   |
| 9.71  | 10 | s     | 9.69 | 10  |
|       |    |       | 6.56 | 1   |
| 6.02  | 9  | Ha    |      |     |
|       |    |       | 5.59 | 1   |
| 5.33  | 9  |       |      |     |
| 4.84  | 9  | S, M  | 4.86 | 9   |
| 4.77  | 7  | Ha    |      |     |
| 4.299 | 4  | Ha    |      |     |
| 3.767 | 10 | M, Ha |      |     |
| 3.462 | 5  | M     |      |     |
| 3.450 | 6  | S     | 3.47 | 8   |
| 3.373 | 4  | S     | 3.36 | 1   |
| 3.252 | 4  | M     |      |     |
|       |    |       | 3.22 | 0.5 |
| 3.087 | 4  | S, Ha | 3.06 | 0.5 |
| 2.966 | 4  |       |      |     |
| 2.831 | 3  | S, Ha | 2.82 | 1   |
| 2.642 | 3  | M     |      |     |
| 2.612 | 3  | Ha    |      |     |
| 2.547 | 6  | Ha    |      |     |
|       |    |       | 2.45 | 2   |
|       |    |       | 2.39 | 2   |

(38) Kannokura Deposit, W9

(39) Sabugal, Portugal, Frondel (1951)

S : Sabuglite

M : melanterite

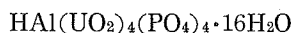
Ha : halotrichite



酸化帯では炭酸塩鉱物として微量ではあるが方解石、菱鉄鉱が存在し、リービッヒ石も同じような生成条件が推定される。

X線回折データを第17表に示す。

### 3-15 リンアルミウラン石 Sabugalite



リンアルミウラン石は、神倉鉱床の2号坑の酸化帯のアルコーズ砂岩層中に微量に存在する。

共生鉱物は黄鉄鉱の酸化に由来するハロトリカイト、メランテライトで、これら鉄の硫酸塩鉱物が白色化しているのに対して、リンアルミウラン石は黄褐色を呈し、微量ながらその存在は鮮明である。

同定されたのは一試料のみで、微量かつ共存鉄鉱物と混在していることから、明確な光学的性質は得られないが、緑黄色のかなり強い螢光作用を有する。

リンアルミウラン石は、リンカイウラン石と同じく脱水状態によって meta-phase を形成するが、湿潤状態で安定とされている。

本地域では、鉄の硫酸塩鉱物と共存する特異な産状を示すが、黄鉄鉱の酸化と同時に母岩の風化による Al の供給によって、ジッペル石などと同じくかなり最近に生成した鉱物と推定される。

リンアルミウラン石のX線回折データを第18表に示す。

## 4. ウラン鉱床における基盤岩・母岩の変質鉱物

### 4-1 基盤花崗岩類の変質

鳥取・岡山県境を中心に広く両県下に分布する各種花崗岩類は、ウラン鉱床直下の基盤においては、いちじるしい変質を被っている。この変質作用は、変質鉱物の共生関係、結晶度、野外における観察などによって、熱水変質作用、温泉変質作用、そして風化変質作用の三種に大別され、かつ基盤花崗岩類の岩種によってそれらの変質も多少異なる。

“奥津花崗閃緑岩”、“人形峠花崗岩”および“小鴨花崗岩”のなかで、大局的にみれば最も古期侵入の奥津花崗閃緑岩が新鮮な部分を残存するケースが多いが、しかし局部的にはかなりの熱水変質も認められ、カオリン鉱床を形成する場合がある。

また、小鴨花崗岩は全般的に浅所侵入型で、一部ではベグマタイト質あるいはアプライト質な岩相をみせ山陰地方における諸温泉の熱源に関連する深成岩と考えられ、従って各所で温泉変質作用が認められる。

しかし、奥津花崗閃緑岩にみられる緑れん石化を伴ういわゆる熱水変質作用は確認されない。

人形峠鉱山の各鉱床および東郷鉱山神倉鉱床の基盤の大半をしめる人形峠花崗岩は、熱水変質作用、温泉変質作用も若干認められるがとくに顕著な現象はなく、むしろ全般的に風化作用が卓越し、とりわけ鉱床直下の不整合面を形成する個所ではその傾向が強い。

#### (A) 熱水変質作用

熱水変質作用の典型的な現象は、緑れん石化、加水ハロイサイト化および濁沸石化によって特徴づけられる奥津花崗閃緑岩の自変質作用である。人形峠南部の奥津カオリン鉱床、

神目カオリン鉱床は、この変質作用に伴う白色粘土化帯（加水ハロイサイト）を採掘稼行しているもので、緑れん石帯に伴って Th の濃集がある点でも注目される（奥野，渡辺，1964）。

人形峠鉱山の各ウラン鉱床の基盤花崗岩類は、緑れん石化はほとんど認められないが、加水ハロイサイトおよび濁沸石は細脈状に存在することが多く、かつこの細脈が不整合面によって切断されている点からみて、この種の変質作用は、明らかに鉱床母岩を胚胎する上位層堆積以前の活動といえる。

以下に各変質生成鉱物の特徴を記す。

#### (A)―1 緑れん石化

緑れん石は花崗閃緑岩の組織を残存して全般を徐々に交代する場合や、数ミリ程度の細脈状に存在する場合などがある。鏡下では、緑れん石は自形ないし半自形の結晶で認められる場合もあり、変質度の高い場合にはクリノゾイサイト、二次的石英が共生し、そのほかにクサビ石や褐鉄鉱も副成分として認められる。褐鉄鉱の濃集する部分は放射能異常を呈する場合もあり、トール石が認められることもある（林，1965）。

しかし、この緑れん石化は熱水変質作用がとくにいちじるしい場合にかぎられる局所的な存在にしかすぎず、ウラン鉱床の基盤ではほとんど認められない。

#### (A)―2 濁沸石化

濁沸石化は一般に珪化作用と並行しておこなわれ、この濁沸石は珪化帯中に細脈状に存在する。緑れん石と共存するような変質度の高い地域では、幅数10センチの脈状あるいは塊状に産することもある。このような高変質地域では、原岩の花崗閃緑岩には曹長石化が認められ、鉄苦土鉱物も緑泥石化を被っている。濁沸石は緑れん石と異なり、ウラン鉱床の基盤においてもしばしば認められ、この沸石の細脈は単に花崗閃緑岩を貫くだけでなく、基盤の一部を形成する変質安山岩中にも認められ、かつ不整合面によって上位層と切られている。

濁沸石のX線回折データを第19表に、電子顕微鏡写真を Plate 2 に示す。

#### (A)―3 加水ハロイサイト化

加水ハロイサイトはかなり広地域に普遍的に存在し、緑れん石化がいちじるしい地域では花崗閃緑岩を交代して塊状に産することもある。これがカオリン鉱床として採掘稼行の対象となる場合もあるが、一般には数ミリ程度の細脈状に産する。

共生鉱物としては、若干のセリサイト、 $\alpha$ -クリストバライトが高変質地域で認められる。後述するように、風化生成によるカオリン化（ハロイサイト化）と混同しやすいが、熱水変質作用に伴う白色粘土化はこの加水ハロイサイトが大半をしめ、細脈状の産状、X線回折による  $9\text{ \AA}$  の回折線（001）と高結晶度、示差熱分析による約  $100^{\circ}\text{C}$  附近の大きな脱水反応、針状～長柱状の結晶形態が特徴的なものであり、ハロイサイトとは区別しうる（第19表，第2図，Plate 2）。

#### (B) 温泉変質作用

小嶋花崗岩にとくに多く認められる変質現象で、モンモリロナイト化によって特徴づけられる。前述のように、この種の花崗岩は山陰地方のラジウム泉をはじめとする多くの温泉の熱源と考えられ、したがってその変質作用は現在まで進行、継続しているものとみてよい。

このモンモリロナイト化は花崗岩の割れ目にそって顕著に発達し、周辺の鉄苦土鉱物は緑

Table 19 X-ray powder diffraction data for altered minerals

| (40)  |    |     | (41)  |    |      | (42)  |    |     |
|-------|----|-----|-------|----|------|-------|----|-----|
| d(Å)  | I  | Idt | d(Å)  | I  | Idt  | d(Å)  | I  | Idt |
| 9.51  | 10 | L   | 10.05 | 10 | H, H | 16.1  | 10 | Mo  |
| 6.86  | 4  | L   | 7.31  | 4  | H, H | 5.2   | 2  | Mo  |
| 6.24  | 1  | L   | 5.01  | 5  | Mu   | 4.48  | 5  | Mo  |
| 5.07  | 1  | L   | 4.484 | 6  | H, H | 2.56  | 3  | Mo  |
| 4.770 | 3  | L   | 4.250 | 3  | Q    | 1.499 | 3  | Mo  |
| 4.529 | 1  | L   | 4.058 | 5  | C    |       |    |     |
| 4.171 | 7  | L   | 3.351 | 10 | Q    |       |    |     |
| 3.678 | 2  | L   | 3.209 | 10 | Pl   |       |    |     |
| 3.520 | 4  | L   | 2.564 | 5  | H, H |       |    |     |
| 3.330 | 1  | L   | 2.504 | 3  | Mu   |       |    |     |
| 3.363 | 1  | L   | 2.002 | 3  | Mu   |       |    |     |
| 3.278 | 3  | L   |       |    |      |       |    |     |
| 3.209 | 3  | L   |       |    |      |       |    |     |
| 3.164 | 1  | L   |       |    |      |       |    |     |
| 3.038 | 1  | L   |       |    |      |       |    |     |
| 2.969 | 1  | L   |       |    |      |       |    |     |
| 2.885 | 1  | L   |       |    |      |       |    |     |
| 2.797 | 1  | L   |       |    |      |       |    |     |
| 2.614 | 1  | L   |       |    |      |       |    |     |
| 2.578 | 1  | L   |       |    |      |       |    |     |
| 2.522 | 1  | L   |       |    |      |       |    |     |
| 2.462 | 2  | L   |       |    |      |       |    |     |
| 2.308 | 1  | L   |       |    |      |       |    |     |

(40) laumontite, OK4, Okutsu Deposit

(41) hydrated halloysite, OK-7, Okutsu Deposit

(42) montmorillonite, K-G, Katamo Deposit

L : laumontite

H, H : hydrated halloysite

Mu : muscovite

Q : quartz

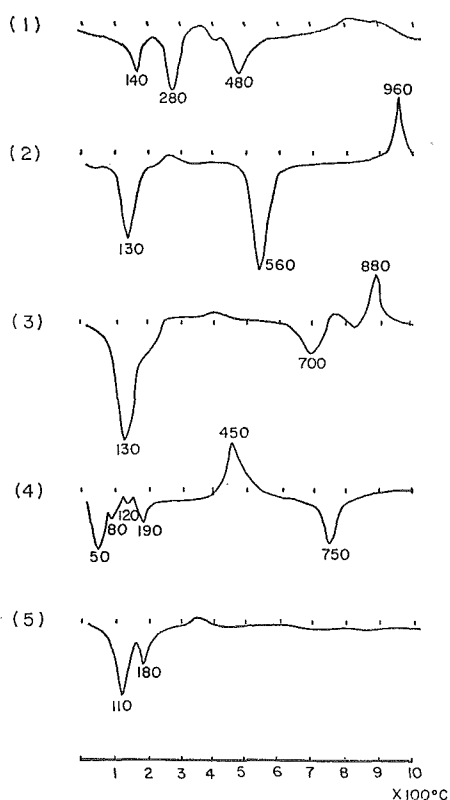
Pl : plagioclase

Mo : montmorillonite

C :  $\alpha$ -cristobalite

泥石に変質している場合が多い。また、長石類のセリサイト化が一部で認められ、とくに方面・麻畑鉱床の基盤花崗岩類にはセリサイトの細脈の発達がかなりいちじるしい。このセリサイト脈は一般にモンモリロナイトを切り、後期生成を指示しているが、鉱床母岩にも存在することから、温泉変質作用による生成ではなく、三朝層群の火山活動による産物とも考えられるが、詳細は不明である。

温泉変質作用に伴うモンモリロナイトは、母岩における凝灰岩類のモンモリロナイトに較べてかなり結晶度は低く、両者の生成機構は一応異なるものと考えられるが、原岩の相違に



第2図 示差熱分析曲線

- (1) リンカイウラン石  
W1 方面鉱床2号坑
- (2) 加水ハロイサイト  
OK7 奥津カオリン
- (3) モンモリロナイト  
KG 方面鉱床2号坑
- (4) マンガンノジュール  
W13 方面鉱床下1号坑
- (5) 石膏  
NT-G 峠鉱床

よる変質度の差異の可能性も残り、若干の問題を今後にとり残している。

### (C) 風化変質作用

基盤花崗岩類において風化作用によって生成された典型的な粘土鉱物はハロイサイトであって、各花崗岩類を通じて微量ながら量的にはあまり変化なく、しかも普遍的に存在する。しかしながら、産状からみて局部的にはモンモリロナイト、イライト、ハロイサイトも風化生成によって若干存在するものとおもわれる。

典型的なハロイサイト化は花崗岩類のマサ土化した地域にみられ、比較的鉱床より離れた地点に多く、このような場合にはモンモリロナイト、イライトなど他の粘土鉱物は共存しない。

鉱床直下およびその附近ではハロイサイトとモンモリロナイトが共存する場合が多く、イライトは量的には少ない。両鉱物共存の理由としては、ハロイサイトは侵蝕時における地表面の風化による生成が考えられ、一方、モンモリロナイトは上位に堆積岩が堆積し、地表面からかなり下位に位置した際、溶脱陽イオンを伴った地下水の浸透による生成が考えられる。

鉱床地域の各所に認められる安山岩岩脈は不整合面によって切られ基盤の一部を形成しているが、これら岩脈類は顕著なモンモリロナイト化を示し、これも熱水変質の産物とみるより、地下水に飽和した結果の風化生成によるものと推定される。

### 4-2 鉱床母岩類の変質

母岩の種類は各鉱床によって多少異なるが、花崗岩質の基底砂岩・礫岩は共通して不整合面

上に認められる。この砂岩、礫岩層は周辺の花崗岩類の風化二次堆積層であり、その結果これら堆積層の変質は不整合面直下の基盤花崗岩類の変質に類似する点が多い。

基底砂岩・礫岩層の上位をしめる堆積層は各鉱床によって異なり、その変質はむしろ原岩の組成によって大きく規制され、したがって変質程度も各鉱床で差異が認められる。

### (A) 熱水変質作用

鉱床母岩堆積前に緑れん石化などで特徴づけられる“熱水変質作用”は終了し、したがって母層中にはこれらの変質鉱物が認められることは少なく、ごくわずかにアルコーズ質砂岩礫岩層中においてのみ存在し、しかも脈状にこれら堆積層を切ることもない。

結局，母層中における緑れん石，濁沸石などの存在は，基盤花崗岩が侵蝕運搬され二次的に再堆積した結果にすぎない。母層堆積後の火山作用は，三朝層群の三輪廻におよぶ火山活動の確認から，これらの活動が下位層に対してかなりの変質を与えたことが推定されるが，基底砂岩・礫岩層への影響については明確でない。すなわち，前述のようにすでにいろいろな経過で変質した花崗岩類が侵蝕作用によって二次堆積し，さらに湖沼やチャンネルを形成する段階で風化変質作用が加わり，変質作用もかなり重複しているものとみてよい。したがって，堆積層形成後の火山活動による影響についてはかなり識別しにくい場合が多く，基盤岩の変質でなされた細かい分類は不可能である。

ただし，方面・麻畑鉱床においては砂岩・礫岩層上位の10mにおよぶ酸性凝灰岩～凝灰角礫岩層がいちじるしいモンモリロナイト化によって特徴づけられ，明らかに熱水変質作用の存在を示している。局部的には若干のハロイサイト，イライトを含む場合もあるが，大部分は純粋高結晶度のCa—モンモリロナイトで，凝灰岩類が熱水変質を選別的に受けたものである。しかし，これが三朝層群のどの時期の火山活動によるものかは明らかでない。

化学分析値（第20表）より得られた構造式は下記のとおりであるが，CaOが異常に多くアルカリ元素が少ないのが特徴的である。

Table 20 Chemical composition of montmorillonite clays

|                                | (1)   | (2)   |
|--------------------------------|-------|-------|
| SiO <sub>2</sub>               | 50.30 | 48.90 |
| TiO <sub>2</sub>               | tr    | tr    |
| Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | 18.60 | 18.40 |
| Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | 1.49  | 1.21  |
| FeO                            | 0.09  | 0.07  |
| MnO                            | tr    | n. d  |
| CaO                            | 2.15  | 2.25  |
| MgO                            | 1.92  | 1.88  |
| Na <sub>2</sub> O              | 0.41  | 0.35  |
| K <sub>2</sub> O               | 0.32  | 0.28  |
| H <sub>2</sub> O(+)            | 16.67 | 8.44  |
| H <sub>2</sub> O(-)            | 7.81  | 17.64 |
| P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>  | 0.02  | 0.05  |
| Total                          | 99.78 | 99.47 |

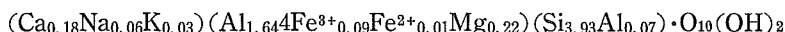
(1) Katamo Deposit, No. G Analyst K. Watanabe

(2) Endani Deposit, No. E6 Analyst K. Yoshikawa

Table 21 X-ray powder diffraction datum for weathered granite

| (43) |    |        |
|------|----|--------|
| d(Å) | I  | Idt    |
| 16.4 | 2  | Mo     |
| 7.3  | 1  | K      |
| 6.51 | 1  | Pl, KF |
| 5.01 | 1  | Mo     |
| 4.55 | 2  | Mo     |
| 4.27 | 1  | Q      |
| 4.06 | 6  | Pl     |
| 3.80 | 1  | Pl, KF |
| 3.69 | 1  | KF     |
| 3.36 | 10 | Q      |
| 3.24 | 6  | KF     |
| 3.20 | 8  | Pl     |
| 3.15 | 4  | Pl     |
| 2.99 | 2  | Pl     |

(43) weathered granite, KC,  
Katamo Deposit  
Mo : montmorillonite  
K : halloysite  
Pl : plagioclase  
KF : K-feldspar  
Q : quartz



X線回折では(001)の回折線が、16.4~16.1 Åとモンモリロナイトとしては大きな層間隙を示し、Ca—モンモリロナイトの特性を示している。

電子顕微鏡による観察では、ヒトデ状のモンモリロナイト特有の形態を示し(Plate 2)、示差熱分析でも典型的なCa—モンモリロナイトの熱反応(第2図)を示す(渡辺, 1964)。

### (B) 風化変質作用

方面・麻畑鉱床では、モンモリロナイト化した酸性凝灰岩層が母岩の一部をしめるが、各鉱床は共通して基底砂岩・礫岩層が主なる母岩であり、しかも前述のように異なる変質作用が重複し、それらの解析には困難な点が多い。しかし、全般的にみて風化変質作用は普遍的に認められ、とくにチャンネルを形成している底部では一般に変質度が高い。

変質生成鉱物としては、ハロイサイト、モンモリロナイト、イライトが認められるが、イライトは量的に少ない。モンモリロナイトは、熱水変質によるモンモリロナイトに較べて結晶度は不良であるが、量的に少なくかつハロイサイトと共存することなどから、二種のモンモリロナイトの明確な差異はつけにくい。

風化作用による変質度の点に関しては、砂岩・礫岩層とそれに接する基盤花崗岩類は類似する場合が多いが、堆積層が透水性の高い個所では若干の差異が認められ、その場合にはアルコーズ質砂岩・礫岩層の変質度が高くなる傾向が認められる。

また、鉱床内では同じ種類の母岩でも酸化帯と非酸化帯では風化変質度が明らかに異なり、それぞれ粘土鉱物の種類、存在量に明瞭な相関が認められ、ひいてはウランの鉱化作用に影響を与えている。すなわち、酸化帯は全般的に粘土化は顕著でモンモリロナイトの存在が特徴的であるのに対し、非酸化帯では粘土化は微弱で、モンモリロナイトはほとんど存在せず、結晶度の低いハロイサイトがわずかに認められるのが通常である。

また、酸化帯は非酸化帯と比較すると、かつてかなり長期間湿潤状態であった場合がほとんどで、一方非酸化帯は乾燥状態の持続が長く、坑道掘進などにより地下水が導びかれると直ちに酸化し、非常に不安定な状態といえる。

これらのことから、非酸化帯では堆積時からのハロイサイトが存在するのみでその後の風化変質は少なく、それに対して酸化帯では堆積以後もモンモリロナイト化が進展したものと考えられる(第21表)。

酸化帯、非酸化帯における鉱物共生関係は、単に粘土鉱物のみでなく、後述するようにウラン鉱物、鉄鉱物などの安定関係に大きく関係している。

## 5. ウラン鉱床に関連するその他の鉱物

### 5-1 鉄鉱物

鉱床母岩中には鉄鉱物として主に黄鉄鉱(一部で白鉄鉱)が存在し、とくに非酸化帯では一次ウラン鉱物と密接に共存する。この黄鉄鉱は酸化帯では褐鉄鉱化することが多く、したがってこれらの関係は酸化帯、非酸化帯の定義に一つの基準を与えている。

つまり、非酸化帯における黄鉄鉱と一次ウラン鉱物、酸化帯における褐鉄鉱と二次ウラン鉱物の共生関係は明瞭である。

しかし、黄鉄鉱が褐鉄鉱化する過程において、次のようなそれらの中間生成物としての鉄

Table 22 X-ray powder diffraction data for altered minerals

| (44)  |    |     | (45)  |    |        | (46) |    |     |
|-------|----|-----|-------|----|--------|------|----|-----|
| d(Å)  | I  | Idt | d(Å)  | I  | Idt    | d(Å) | I  | Idt |
| 5.500 | 1  | IS  | 9.71  | 10 | Sa     | 7.71 | 1  | Gy  |
| 4.870 | 10 | Me  | 6.02  | 3  | Ha     | 5.96 | 1  | Ba  |
| 3.241 | 2  | Me  | 5.33  | 9  | Me     | 4.29 | 10 | Gy  |
| 3.140 | 1  | Py  | 4.84  | 9  | Sa, Me | 3.48 | 1  | Ba  |
| 2.712 | 3  | Py  | 4.77  | 7  | Ha     | 3.07 | 2  | Gy  |
| 2.554 | 2  | IS  | 4.299 | 4  | Ha     | 3.00 | 4  | Ba  |
| 2.428 | 2  | Py  | 3.767 | 10 | Me, Ha | 2.88 | 5  | Gy  |
| 2.220 | 2  | Py  | 3.462 | 5  | Me     | 2.81 | 2  | Ba  |
| 1.920 | 2  | Py  | 3.450 | 6  | Sa     | 2.68 | 4  | Gy  |
| 1.638 | 2  | Py  | 3.373 | 4  | Sa     |      |    |     |
|       |    |     | 3.252 | 4  | Me     |      |    |     |
|       |    |     | 3.087 | 4  | Ha     |      |    |     |
|       |    |     | 2.966 | 4  | Ha     |      |    |     |
|       |    |     | 2.831 | 3  | Ha     |      |    |     |
|       |    |     | 2.642 | 3  | Me     |      |    |     |
|       |    |     | 2.612 | 3  | Ha     |      |    |     |
|       |    |     | 2.347 | 6  | Ha     |      |    |     |

(44) melanterite, iron sulphate hydrate after pyrite, W6, Kannokura Deposit

(45) sabugalite, halotrichite, melanterite, W9, Kannokura Deposit

(46) gypsum, bassanite, NT-G, Tôge Deposit

IS : iron sulphate hydrate

Sa : sabugalite

Me : melanterite

Ha : halotrichite

Py : pyrite

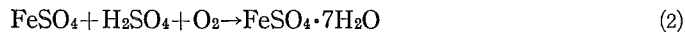
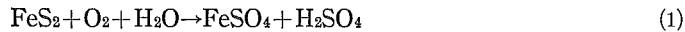
Gy : gypsum

Ba : bassanite

鉱物がしばしば観察される。すなわち，メランテライト（緑ばん，melantelite,  $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ ）と，iron sulphate tetrahydrate ( $\text{FeSO}_4 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ ) がその主なもので，これらは黄鉄鉱 ( $\text{FeS}_2$ )，人形石と共存し，石膏 ( $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ) が存在すること多い（第22表）。

これらの鉄の硫酸塩鉱物は黄鉄鉱が， $\text{O}_2$ ， $\text{H}_2\text{O}$ の附加によって酸化したものと考えられ，野外観察もこの堆定を裏づけている。

これらの酸化反応は次の式によって考えられる。



すなわち $\text{H}_2\text{O}$ の附加と酸化により鉄の硫酸塩鉱物と硫酸が生じ，このまま反応が進展するとメランテライトは針鉄鉱（goethite,  $\alpha\text{-FeO}(\text{OH})$ ）に移行し，いわゆる褐鉄鉱化をたどると考えられるが，一旦 $\text{H}_2\text{O}$ の附加がとまり乾燥状態になっている坑内などでは，逆に脱水反応が進展して  $\text{FeSO}_4 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$  の形で安定化している。したがって，人形石を含む鉱石はまっ

たく酸化していない地点では黄鉄鉱と共生し、若干水和・酸化作用が生じている地点ではメランテライト、iron sulfate tetrahydrate が生じ、さらに酸化が進むといわゆる褐鉄鉱化して針鉄鉱を生成するに至っている。

そして、針鉄鉱が生成するような環境では、ウラン鉱物もリンカイウラン石など二次ウラン鉱物へ変化している。

一部でメランテライトと共にハロトリカイト、(halotrichite,  $\text{FeAl}_2(\text{SO}_4)_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ) の認められる場合もあるが、これは酸化の過程で母岩の変質に伴う Al の附加による生成と推定される。

このように、いくつかの鉄の硫酸塩鉱物が生成する地点では、人形石など一次ウラン鉱物も酸化し、ウラノピル石などウランの硫酸塩鉱物が生成して両者の密接な共生関係を明示している (Plate 2)。

また一部では緑黒状のゲル状物質が確認され、それが非晶質に近い X 線回折では回折線が明確でないが、おそらく一旦生成した針鉄鉱が還元環境下でレピドロサイト、(lepidocrocite,  $\gamma\text{-FeO}(\text{OH})$ ) へ転移したものと考えられる。

逆に酸化帯の一部では菱鉄鉱 ( $\text{FeCO}_3$ ) の存在も確認されている。

## 5-2 マンガン団塊

方面・麻畑鉱床においてモンモリロナイト化した酸性凝灰岩類の下部に、直径 1 cm 数 mm 程度の大きさで暗黒灰色のマンガン団塊が塊状結晶を呈して多数確認される。

X 線回折パターンには幅広い回折線のみが出現し、結晶質には至っていないが、常に若干のモンモリロナイトが混在している。

試料によってはモンモリロナイトが中心核を形成したり、あるいは縞状に夾在することもある。

蛍光 X 線分析の結果、Mn 20~25%、Fe 7~15% を主成分とし Co も若干認められるが、試料によって各元素の量比は大きく変化する。

また、 $\text{H}_2\text{O}$  (±) も 5~10% に達している。

示差熱分析では数次にわたる脱水反応が認められ、しかも脱水温度は試料によって多少の変動がみられる。これらを総合して考察すると、非晶質のマンガン、鉄の水酸化物の集合体といえる (第 2 図参照)。

このマンガン団塊の生成については、地表水、地下水によって基盤岩あるいは母岩から溶脱されたマンガン、鉄などの元素が、不整合面や地層の境界にそって流入し酸化帯を形成すると同時に、Ca—モンモリロナイト化した酸性凝灰岩層では環境が弱アルカリ性へと変化することによって、各元素の水酸化物の沈積が急激に促進されたものと推定される。

人形峠鉱山周辺においても、しばしば不整合面上の堆積岩層に縞状のマンガン、鉄の濃集部が認められ、この場合はむしろ鉄が多く、マンガンの含有量が少ない。

結局これらの現象は、水素イオン濃度と酸化還元電位に規制され、それらの条件の微妙な変化がマンガン、鉄の比率に表われてくるものであろう。

## 5-3 オパール

人形峠地域のウラン鉱床、とくに神倉鉱床においては堆積岩層に珪化木が多く存在する。すなわち、神倉鉱床の堆積物中には木片、炭質物、炭化木などが存在するが、とくに石英安



山岩質火山礫凝灰岩層の酸化帯において，直径 5 cm 内外の木幹部がオパールによって交代されている。しかも，顕微鏡観察では植物組織が明瞭に残存している場合が多い (Plate 3)。この場合，木片が小さく葉片化してくると珪化されることが少なくなり，この珪化作用が木片の大きさに依存し，かつ石英安山岩層の酸化帯にのみ限定されるという事実が認められる。

炭質物はウランを吸着し，しばしば非酸化帯の富鉄部を形成するが，同一木質が非酸化帯，酸化帯にまたがって存在する場合は，前者は炭化木に後者は珪化木として存在する。

そして，ウランの珪化作用がある場合には，炭化木には人形石，コフィン石の一次ウラン鉱物と黄鉄鉱が，珪化木にはオパールと共にリンカイウラン石やウィークス石などの二次ウラン鉱物と褐鉄鉱が共生し，年輪にそってこれらウラン鉱物が存在する関係がオートラジオグラフによって明瞭に示される (Plate 3)。

このように，ウランの珪酸塩鉱物が珪化木にのみ集中して存在することは，珪化作用との関連から興味深い現象である。

珪化木を構成するオパールは，X線回折によって全般的に幅広い回折を示して非晶質に近い状態が推定されるが，そのなかでβ-クリストバライトの主要回折線に一致する回折線が数本認められ，一部結晶化が進展していることがうかがえる。なお，オパール化は一般に木質部の中心よりは外側部へかけて顕著である。

#### 5-4 石膏

各鉱床の非酸化帯の富鉄部には，一次ウラン鉱物，鉄鉱物とともに，1 mm程度の針状の石膏 ( $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ) が共生することがある (第2図，第22表)。同じ堆積層でも鉱床から離れた地域ではほとんど認められず，ウランや鉄の硫酸塩鉱物と共存する点から，ウランの珪化作用に関連した生成と推定される。

また，単に石膏のみでなく，一般には不安定なバッサナイト ( $\text{bassanite}$ ,  $\text{CaSO}_4 \cdot \frac{1}{2}\text{H}_2\text{O}$ ) が認められる場合もあり，これは共存する硫化鉄の酸化によって生じた硫酸が，石膏の水分を吸収脱去した結果生じたものと考えられる。

### 6. ウラン鉱床生成に関連する地球化学的データ

#### 6-1 各種花崗岩からのウランの溶脱実験

＜目的＞本地域のウラン鉱床におけるウランの根源（供給源）の問題は，ウランが溶脱される過程は一応別として，ウラン元素の存在度からみて花崗岩に求める以外考えられない。

しかし，本地域には既述のごとく，三種類に大別される花崗岩類が存在し，鉱床形成にどの種の花崗岩が最も関連したか興味のある問題といえる。

このような見地から，各種花崗岩について新鮮な岩石から風化した岩石へかけて試料を選び，ウランの溶脱実験をおこなってみた。

また，花崗岩からウランが溶脱された機構についても多くの論議があるので，四種の溶媒をもちいて比較検討した。

##### ＜実験試料＞

- a : 小鴨型黒雲母花崗岩
- b : 人形峠型角閃石黒雲母花崗岩
- c : 奥津型黒雲母花崗閃緑岩

第23表 各種花崗岩からのウランの溶脱実験結果

|            |         | A    |      | B    |       | C     |       | D     |       |
|------------|---------|------|------|------|-------|-------|-------|-------|-------|
| 奥津型花崗閃緑岩   |         | (c)  | (f)  | (c)  | (f)   | (c)   | (f)   | (c)   | (f)   |
| F1         | 120405  | 0.20 | 1.00 | 3.30 | 14.05 | 8.50  | 31.03 | 10.03 | 32.54 |
| 2          | OKU-4   | 0.20 | 0.81 | 2.70 | 9.21  | 6.10  | 11.02 | 8.30  | 24.32 |
| 3          | OKU-12  | 0.23 | 0.94 | 3.02 | 10.63 | 7.03  | 20.04 | 9.12  | 27.55 |
| 4          | O-6     | 0.22 | 1.08 | 3.38 | 11.62 | 6.98  | 21.08 | 9.02  | 28.67 |
|            | Av.     | 0.21 | 0.96 | 3.10 | 11.37 | 7.16  | 20.79 | 9.12  | 28.27 |
| W1         | OKU-16  | 0.25 | 0.62 | 1.62 | 5.34  | 4.25  | 10.55 | 8.70  | 22.76 |
| 2          | OKU-8   | 0.23 | 0.58 | 1.55 | 4.77  | 4.08  | 9.32  | 7.45  | 18.95 |
| 3          | OKU-25  | 0.28 | 0.74 | 1.48 | 3.85  | 3.95  | 8.65  | 8.21  | 20.70 |
|            | Av.     | 0.25 | 0.65 | 1.55 | 4.65  | 4.09  | 9.50  | 8.12  | 20.80 |
| 人形峠型花崗岩    |         |      |      |      |       |       |       |       |       |
| F1         | 120514  | 0.05 | 0.05 | 0.60 | 1.05  | 4.30  | 12.04 | 9.80  | 25.08 |
| 2          | 36-417  | 0.10 | 0.25 | 0.90 | 2.87  | 4.42  | 10.43 | 8.30  | 24.68 |
| 3          | NK-12   | 0.15 | 0.53 | 1.40 | 3.24  | 6.40  | 12.10 | 10.58 | 28.70 |
| 4          | NK-G4   | 0.12 | 0.19 | 0.97 | 2.30  | 4.87  | 11.40 | 9.50  | 26.10 |
| 5          | TG-G5   | 0.15 | 0.22 | 0.98 | 2.48  | 5.04  | 10.80 | 10.88 | 25.86 |
| 6          | 120536  | 0.14 | 0.20 | 0.80 | 2.37  | 4.90  | 11.53 | 10.90 | 24.37 |
|            | Av.     | 0.12 | 0.24 | 0.94 | 2.39  | 4.99  | 11.38 | 9.99  | 25.80 |
| W1         | NK-32   | 0.10 | 0.28 | 1.35 | 4.20  | 4.15  | 7.90  | 8.50  | 26.43 |
| 2          | NK-28   | 0.10 | 0.15 | 0.95 | 3.40  | 3.25  | 8.72  | 7.40  | 15.20 |
| 3          | NK-15-2 | 0.15 | 0.20 | 1.32 | 2.41  | 3.74  | 6.52  | 10.42 | 17.66 |
| 4          | NK-11-3 | 0.20 | 0.45 | 1.43 | 4.87  | 6.32  | 12.10 | 11.37 | 36.28 |
| 5          | 36-29   | 0.10 | 0.25 | 1.56 | 3.41  | 3.56  | 9.42  | 7.80  | 18.32 |
| 6          | 36-40   | 0.15 | 0.35 | 1.21 | 2.93  | 4.21  | 11.31 | 9.60  | 20.18 |
|            | Av.     | 0.13 | 0.28 | 1.30 | 3.54  | 4.21  | 9.33  | 9.18  | 22.35 |
| 小鴨型花崗岩     |         |      |      |      |       |       |       |       |       |
| F1         | SH-5    | 0.23 | 0.78 | 0.58 | 5.18  | 4.00  | 2.83  | 6.25  | 22.52 |
| 2          | MIH-7   | 0.25 | 0.45 | 0.43 | 3.72  | 6.30  | 7.64  | 9.74  | 20.33 |
| 3          | G1      | 0.12 | 0.10 | 1.30 | 1.50  | 2.40  | 2.00  | 3.40  | 15.37 |
| 4          | OG-G5   | 0.20 | 0.45 | 0.82 | 3.47  | 4.54  | 4.18  | 6.78  | 19.41 |
| 5          | OG-G16  | 0.23 | 0.48 | 0.98 | 3.20  | 4.62  | 4.21  | 6.85  | 18.50 |
| 6          | PG-8    | 0.24 | 0.44 | 1.20 | 3.50  | 4.23  | 4.55  | 7.20  | 20.23 |
|            | Av.     | 0.21 | 0.45 | 0.89 | 3.43  | 4.35  | 4.24  | 6.70  | 19.39 |
| W1         | G7      | 0.30 | 0.20 | 4.90 | 7.28  | 13.82 | 11.95 | 36.54 | 96.59 |
| 2          | G2      | 0.55 | 1.19 | 2.75 | 3.95  | 6.80  | 3.93  | 10.41 | 14.03 |
| 3          | NA-8    | 0.15 | 0.25 | 1.20 | 3.70  | 3.45  | 3.35  | 5.25  | 34.04 |
| 4          | AS-G5   | 0.20 | 0.35 | 2.43 | 3.65  | 5.43  | 6.24  | 6.38  | 20.41 |
| 5          | AS-G21  | 0.25 | 0.30 | 4.70 | 6.24  | 9.42  | 12.49 | 21.63 | 84.92 |
| 6          | KA-GW-3 | 0.29 | 0.44 | 3.21 | 3.98  | 7.72  | 7.43  | 16.30 | 45.22 |
|            | Av.     | 0.29 | 0.46 | 3.20 | 4.80  | 7.77  | 7.57  | 16.09 | 49.20 |
| blank test |         | 0.10 |      | 0.05 |       | 0.05  |       | 0.08  |       |

A : 沢水

B : 5% NaHCO<sub>3</sub> 溶液 (Boiling liquid)

C : 1N HCl 溶液

D : 1N HCl (Hot liquid)

(c) : 48-100 mesh

(f) : 100 mesh under

F : Fresh rock

W : Weathered rock

(γU/5g)

上記各花崗岩の新鮮岩，風化岩各々数種選び，ステンレス乳鉢で粉碎し，48～100メッシュ，および100メッシュ以下の二群に分けた。

試料は5gずつ秤量し，100mlの溶媒中でシェーカーによって連続2時間振とうし，ウランの抽出をおこなった。

溶媒は次の四種である。

- (1) 地表水（鳥取県三朝町，岡山大学温泉研究所附近を流れる沢水）
- (2) 5%  $\text{NaHCO}_3$  溶液（熱溶液）
- (3) 1N HCl 溶液
- (4) 1N HCl 溶液（熱溶液）

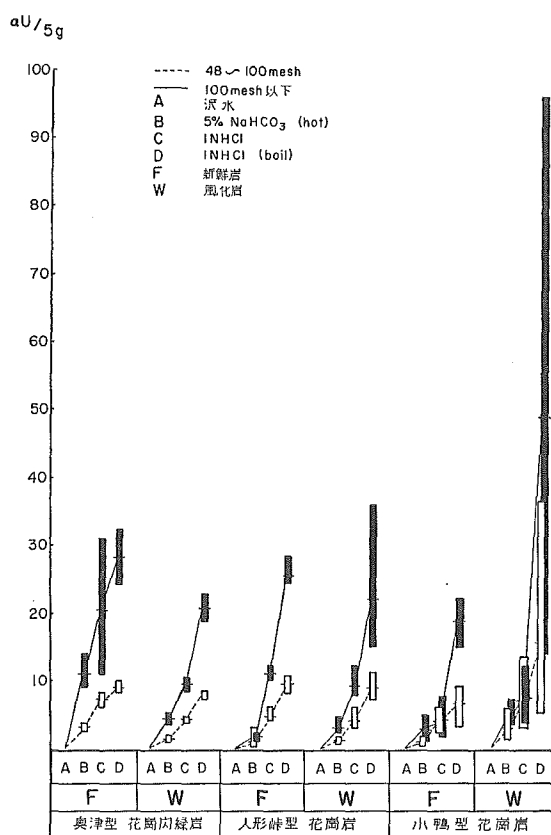
なお，(1)は地下水，地表水によるウランの溶脱を考えた場合であり，(2)は温泉水（単純泉）による溶脱機構を想定したものである。(3)，(4)は非酸化帯がかなり酸性条件を示していることを考慮し，酸性溶液下でのウランの挙動を求めたものである。

＜実験方法＞抽出された溶液に硝酸アルミを加え硝酸酸性にし，酢酸エチルによってウランを抽出した。

硝酸アルミはウランの抽出を妨害する  $\text{SO}_4$  や  $\text{PO}_4$  と錯塩をつくり，しかもウランの蛍光を弱めないのので有効である。抽出したウランは，融剤として  $\text{NaF} + \text{Na}_2\text{CO}_3 + \text{K}_2\text{CO}_3$  の合剤と共に650°C 20分間加熱溶解後，冷却固化し，固体蛍光装置をとりつけた分光光度計によって蛍光分析をおこない定量をおこなった。

＜実験結果＞定量実験の結果を第23表，および第3図に示す。これらの結果を要約すると次のような考察が可能になる。

- (1) 花崗岩の種類によってはウランの溶出度に大差は認められないが，小鴨型花崗岩の風化岩では試料によってかなり含有量に変動があり，一部で多量の溶脱がみられるものがある。
- (2) 全般的に100メッシュ以下の粒度の細かい場合は48～100メッシュの試料よりは溶脱量が大きく，約2.5～3倍に達する。
- (3) 新鮮な岩石，風化した岩石の違いは各花崗岩によって異なり，奥津型および人形峠型花崗岩では大差は認められないが，小鴨型花崗岩では風化岩の方がかなり高い溶脱度を示す。
- (4) 沢水による溶出では，花崗岩の種類，粒度に関係なく各試料ともほとんど溶脱量に変化はないが，温泉水成分の溶出に較べて約1/10程度にしかすぎない。



第3図 各種花崗岩類からのウラン溶脱実験結果

(5) 各試料とも酸性溶液では溶脱率が上昇し、とくに熱酸性溶液下では冷酸性溶液における2倍以上の溶脱率を示す。

以上の諸事実から総括すると、小鴨型花崗岩を例にとると、沢水では17U/5g以下の溶脱しかみられない場合でも、溶脱状態如何によっては100倍以上の溶出がみられ、鉱床形成にあたってウランの溶脱条件が大きく影響することを示している。

また、花崗岩の種類については、ペグマタイト質の小鴨型花崗岩よりのウランの供給が一番多いことが考えられる。

現実に鉱床を形成する場合、今回実験に用いたような強酸性溶液は存在しえないが、非酸化帯における坑内水がpH4以下の酸性であることや、小鴨型花崗岩に関連して放射能温泉が現在でも湧出していることを考えれば、本地域の鉱床を形成するための第一段階である花崗岩類からのウランの溶出は、単に地表水、地下水による風化作用だけでなく、温泉水などの影響も無視できないといえる。

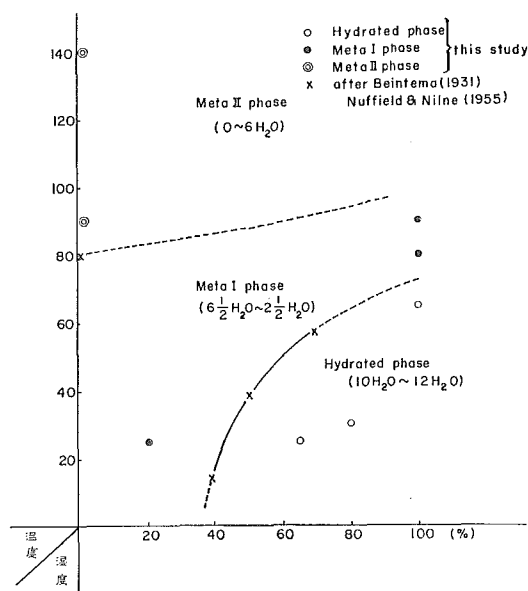
## 6-2 高温下におけるウラン鉱物の挙動

本地域に産するウラン鉱物に共通する点は、センウラン石を除いて $H_2O$ あるいは $OH$ の形でかなりの水分を含有することで、とくに二次ウラン鉱物でその含有量が多い点である。

リンカイウラン石、ペーターウラノフェン、およびカルノー石について加熱実験による層間隙変化をX線回折によって調べた結果が第4図および第24表である。

この結果からわかるように、リンカイウラン石をのぞいてほかの二次ウラン鉱物は、脱水によってもほとんど層間隙に変化は認められず、一種の沸石水的挙動をとっている。

一方、リンカイウラン石は含水状態によって hydrated phase ( $10\sim12H_2O$ ), meta I



第4図 リンカイウラン石の脱水に伴う相変化

第24表 二次ウラン鉱物の加熱による相変化

|                              | autunite<br>(002)          | $\beta$ -uranophane<br>(020) | carnotite<br>(120) |                                | autunite<br>(002)          |
|------------------------------|----------------------------|------------------------------|--------------------|--------------------------------|----------------------------|
| (1)<br>↓ 常 温                 | 10.5Å<br>hydrated<br>phase | 7.9Å                         | 3.1Å               | (1)飽和水蒸気中<br>↓ 常 温<br>65°C 1時間 | 10.5Å<br>hydrated<br>phase |
| (2)<br>↓ 90°C, 1時間<br>飽和水蒸気中 | 8.6Å<br>meta I<br>phase    | 7.9Å<br>(1)と殆んど不変            | 3.1Å<br>結晶度低下      | (2)<br>↓ 90°C 1時間<br>飽和水蒸気中    | 8.6Å<br>meta I<br>phase    |
| (3)<br>↓ 140°C, 1時間<br>乾燥器中  | 8.2Å<br>meta II<br>phase   | 7.9Å<br>結晶度低下                | 3.1Å<br>(2)と殆んど不変  | (3)<br>風乾, 2日                  | 10.5Å<br>hydrated<br>phase |
| (4)<br>↓ 風乾, 1日              | 8.2Å<br>meta II<br>phase   | 7.9Å<br>(1)の状態に復元            | 3.1Å<br>(3)と不変     |                                |                            |
| (5)<br>風乾, 2日                | 8.3Å<br>meta II<br>phase   |                              |                    |                                |                            |

phase ( $6\frac{1}{2} \sim 2\frac{1}{2} \text{H}_2\text{O}$ )，および meta II phase ( $0 \sim 6\text{H}_2\text{O}$ ) の三種の存在が認められ層間隙が脱水に従って段階的に順次縮小してゆく。

しかも，この実験から明らかのように，hydrated phase と meta I phase は可逆反応で瞬間的に容易に転移するが，meta I phase と meta II phase は不可逆反応で，一旦 meta II phase が生成すると meta I phase あるいは hydrated phase にはもどらない。

各鉱床において圧倒的に多産するのは hydrated phase であり，坑道掘進後極度に乾燥状態にある地点ではまれに meta I phase も確認されている。しかし，この meta I phase も常温，常湿下では瞬間的に hydrated phase にもどり，meta I phase は非常に不安定な状態といえる。

また meta II phase は本地域の鉱床ではまったく存在しない。これは，ウラン鉱物は高温下では一般に一次鉱物の産出が多く，したがって meta II phase が初生的には存在しえず，おそらく 80°C 以上の高温では層状構造を有するリンカイウラン石は不安定で，その場合は酸素分圧も低下し還元状態で安定な一次鉱物を主とするウラン鉱物が生成するものと考えられる。

もしも，meta II phase が鉱床内で存在するならば，hydrated phase が一旦生成し，その後単なる加熱作用を受けることによって生成する可能性はあるが，火山作用にしても一般には熱水溶液を伴い，100°C 前後の加熱作用のみを伴う変成作用は本地域では考えられず，事実 meta II phase の存在は確認されていない。酸化帯のウラン鉱床に，いわゆる熱水作用が作用した場合，リンカイウラン石は安定に存在しえないことが推定され，meta II phase が認められない点からだけでは鉱床形成後の火山作用を全面的に否定する根拠とは

なり得ない。しかし、酸化帯と非酸化帯の良好な連続性およびそれらが攪乱されていない状態をみれば、本地域に現在みられる鉱床はおそらくリンカイウラン石生成後、火山作用による熱水変質作用は受けていないものと考えられる。

### 6—3 水素イオン濃度・酸化還元電位とウラン鉱床に関する実験

＜目的＞一般に  $U^{4+} \rightarrow U^{6+}$  の酸化に伴う一次ウラン鉱物と二次ウラン鉱物の安定関係は、水素イオン濃度と酸化還元電位に大きく支配されている。代表的なウラン鉱物（センウラン石、カルノー石、リンカイウラン石、人形石）については、合成実験を基礎に pH Eh に関する安定領域はすでに求められている（H. T. EVANS *et al.* 1958., T. MUTO, 1965）。

しかし、実際に鉱床内では現在地下水が侵潤している地点では、一次ウラン鉱物は溶脱しやすく不安定であり、とくに非酸化帯では鉱物生成後、乾燥条件下で一次ウラン鉱物は安定であって、ウラン鉱床の天然における pH, Eh 条件を察知することは非常に困難である。この実験は、天然における酸化帯、非酸化帯の各ウラン鉱物が安定に存在しうる pH, Eh 条件を知るため、各鉱床よりの採取試料を地下水成分に近い溶脱水によって懸濁し pH, Eh を測定したものである。また、同時に共存鉱物との関連を調べるため、粘土鉱物の種類とウラン品位を測定した。

＜実験方法＞第25表に示すように各鉱床の酸化帯、非酸化帯の採取試料について風乾後100メッシュ以下に粉碎した。試料10gに pH7.2, Eh+290mV に調整した溶液（蒸溜水より調整）30ml によって懸濁し直ちに測定した。測定機器は東亜電波製ガラス電極 pH・Eh メーター HM5A 型である。同一粉末試料について X線回折による粘土鉱物の同定実験および半定量実験をおこない、一方、蛍光法によってウラン品位を求めた。

＜実験結果＞測定結果は第25表に示す。

#### (1) 酸化帯と非酸化帯の試料

各鉱床とも酸化帯と非酸化帯における pH, Eh 値は明瞭に区別され、各々かなり集中した値を示す。とくに酸化帯の Eh 値についてはその傾向が強い。

pH の値は酸化帯が7.0～8.3の弱アルカリ性を示すのに対して、非酸化帯の試料は3.5～6.2とかなりの幅を有するが強酸性にかたより、両者には明らかな相違が認められる。

Eh の値は、酸化帯の試料が+150～+190mV に集中し、一方非酸化帯では+200～+400 mV に分散して存在するが、しかし pH の値と同様に両者の差異は明瞭である。これらの実験値を検討すると、酸化帯の pH, Eh 値は一応妥当ものと考えられるが、非酸化帯については pH 値については問題がないものの、Eh 値については合成実験より推定されるデータとかなり異なり、酸化帯の値よりも高い酸化還元電位値を示すにいたっている。

一般に炭質物と共存する地下水は -400～-500mV 程度の値とされているが、本地域の非酸化帯も炭質物が多く、本来はこの値に近いものと考えられる。測定値が+300mV におよぶ高い酸化電位を示す原因は、ウラン鉱物と共存する硫化鉄鉱物の水和、酸化による影響が最大なものと考えられ、その他有機物の影響も推定される。

すなわち、硫化鉄、炭質物に含有される S は酸化により  $SO_4^{2-}$  になって強い酸性を示し、人形石などに含まれる P は  $H_2PO_4^-$  になって水溶液中で  $H^+$  を解離し酸性を示すと同時に  $e$  を放出することによって酸化電位の急激な上昇を招くものであろう。このような環境は一次ウラン鉱物をも酸化させ、二次ウラン鉱物の生成、すなわち非酸化帯より酸化帯への移

第25表 pH, Eh, ウラン品位, 粘土鉱物の関係

| No. |     | 採取地点      | 岩質      | pH  | Eh (mV) | U <sub>3</sub> O <sub>8</sub> (%) | Mo. | Kao. | Ser. |
|-----|-----|-----------|---------|-----|---------|-----------------------------------|-----|------|------|
| 1   | 非   | 中津河鉱床     | 花崗岩質砂岩  | 5.3 | 223     | 1.21                              |     | ○    |      |
| 2   |     | 580m南3号坑  | 〃       | 4.0 | 387     | 0.15                              |     | ○    |      |
| 3   |     |           | 花崗岩質シルト | 4.2 | 370     | 0.12                              | ●   | ○    |      |
| 4   |     |           | 花崗岩質砂岩  | 3.7 | 425     | 1.53                              |     | ○    |      |
| 5   |     |           | 〃       | 4.5 | 380     | 0.72                              |     | ○    |      |
| 6   | 酸化帯 | 神倉鉱床      | 炭質頁岩    | 4.4 | 350     | 0.87                              | ●   | ●    |      |
| 7   |     | 南1号坑230mW | 〃       | 3.8 | 412     | 1.84                              | ●   | ●    |      |
| 8   |     |           | 〃       | 5.2 | 310     | 1.21                              | ●   | ●    |      |
| 9   |     |           | 炭質砂岩    | 3.5 | 416     | 2.14                              |     | ○    |      |
| 10  |     |           | 〃       | 4.0 | 315     | 1.50                              |     | ○    |      |
| 11  |     |           | 〃       | 5.1 | 256     | 0.87                              |     | ○    |      |
| 12  |     |           | 炭質頁岩    | 4.8 | 316     | 0.30                              | ●   | ○    |      |
| 13  |     |           | 〃       | 4.7 | 355     | 0.21                              | ●   | ○    |      |
| 14  | 酸化帯 | 麻畑鉱床      | 火山礫凝灰岩  | 5.3 | 240     | 0.75                              |     | ○    |      |
| 15  |     | 2号坑200m附近 | 〃       | 4.0 | 285     | 0.65                              |     | ○    |      |
| 16  |     |           | 凝灰質砂岩   | 5.8 | 295     | 0.32                              |     | ○    |      |
| 17  |     |           | 〃       | 6.2 | 290     | 0.07                              | ○   | ○    | ●    |
| 18  |     |           | 凝灰質粘土   | 7.0 | 170     | 0.14                              | ◎   | ○    | ●    |
| 19  |     |           | 〃       | 7.5 | 185     | 0.24                              | ◎   | ○    |      |
| 20  |     |           | 花崗岩質砂岩  | 8.0 | 190     | 0.87                              | ○   |      |      |
| 21  |     |           | 〃       | 7.8 | 175     | 0.71                              | ○   |      |      |
| 22  | 酸化帯 | 方面鉱床      | 塩基性凝灰岩  | 7.5 | 180     | 0.36                              | ○   |      |      |
| 23  |     | 2号坑第二北延   | 花崗岩質砂岩  | 7.8 | 186     | 0.05                              | ○   |      |      |
| 24  |     | 分岐点附近     | 〃       | 8.2 | 186     | 0.14                              | ○   |      |      |
| 25  |     |           | 凝灰質粘土   | 7.2 | 195     | 0.23                              | ◎   |      |      |
| 26  |     |           | 〃       | 7.8 | 180     | 0.47                              | ◎   |      | ●    |
| 27  |     |           | 花崗岩質砂岩  | 8.0 | 172     | 0.23                              | ○   |      |      |
| 28  |     |           | 基盤花崗岩   | 8.3 | 150     | 0.09                              | ○   |      |      |
| 29  |     |           | 〃       | 8.1 | 175     | 0.15                              | ○   |      |      |

Mo : Montmorillonite

Kao : Kaolin (Halloysite)

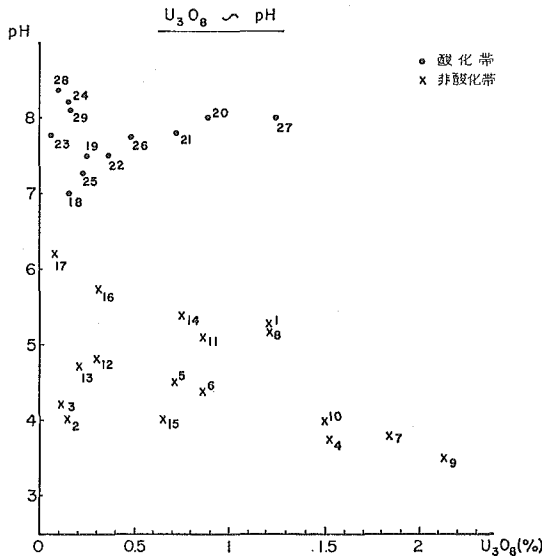
Ser : Sericite

◎ &gt; ○ &gt; ●

行を導びく主因となりうるものである。

(c) ウラン品位とpH, Eh 値との関係

pH について検討すると (第5図), 非酸化帯ではウラン品位が高くなる程, pH の値が低くなる傾向が明らかである。これは前述のごとく, 一次ウラン鉱物と硫化鉄鉱物との相関を如実に示すものである。また酸化帯では, ウラン品位が低い場合には pH 7~8 へ分散しているが, 品位が高くなるにしたがって pH 8 へ収れんする。酸化帯が全般的に弱アルカリ性を示すことは, 共存するモンモリロナイトの Ca など層間陽イオンが溶脱水の水素イオン濃度を高めているものと考えられる。



第5図 ウラン品位と水素イオン濃度の関係

Eh の値について検討すると、酸化帯ではウラン品位に関係なく +180mV を平均に集中した値を示す。非酸化帯では全般的に大きく分散し、明確な関係は認められないが、 $U_3O_8$  が1.5%以上の高品位になると +400 mV の高い酸化電位を示す。これは非酸化帯における低い pH 値と同じような原因が考えられ、硫化鉄鉱物が pH, Eh のみでなく、S の pH, Eh 図を考慮にいれると6価のウランと硫化水素が共存すると両者はたがいに酸化還元反応をおこなって4価のウランを生成する可能性を示し、ウランが花崗岩より溶出後に非酸化帯を形成する機構が指示される。

#### (v) 粘土鉱物と pH, Eh 値

第25表にみられるように、非酸化帯とカオリン（ハロイサイト）、酸化帯とモンモリロナイトの間には明瞭な正の相関関係が存在し、したがって pH, Eh 値と粘土鉱物の間にも関連が認められる。

方面・麻畑鉱床の酸化帯は主として顕著なモンモリロナイト化によってしめられ、このモンモリロナイト自体の懸濁 pH が、Ca など交換性陽イオンなどの影響でほとんど pH 8 程度に一定していることと、さらに酸化帯では鉄鉱物が酸化し全般的に褐鉄鉱化していることなどを考慮すると、酸化帯における pH, Eh の値とモンモリロナイト、酸化鉄との関連が理解しうる。

鉱床形成後も、このような条件下ではモンモリロナイトが安定に存在し、さらにまたモンモリロナイト化が助長され、逆にカオリンの存在、生成には不安定な環境であって、事実酸化帯にはカオリンはあまり存在しない。

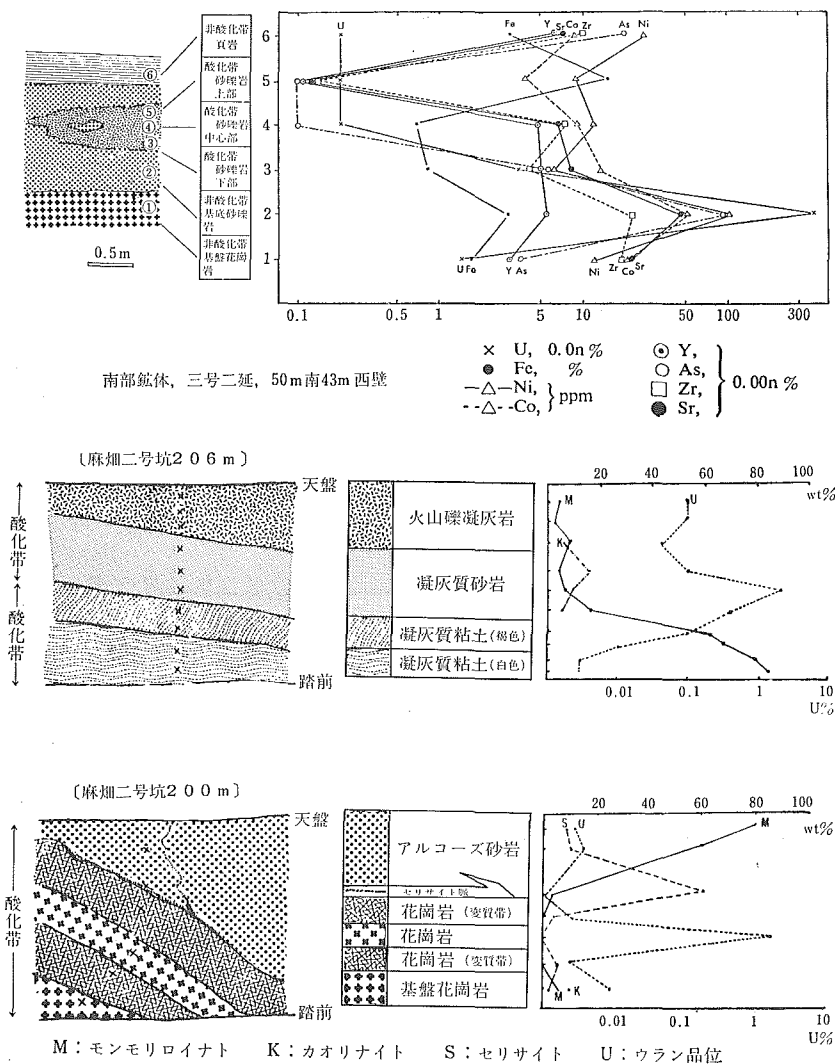
酸化帯にともなう若干のセリサイトは、母岩の変質の項でのべたように、基盤花崗岩の風化による供給と、後期の熱水変質に由来する二種が考えられるが、いずれにしても微量の存在で pH, Eh の値に大きな影響を与えるまでには至っていない。

また、非酸化帯においては、pH の値と本来合成実験で求められている Eh の値を考慮すると、概してモンモリロナイトは安定に存在し得ず、カオリンが安定に存在しうる条件であって、実際に量的には少ないがカオリン（ハロイサイト）が普遍的に存在し、モンモリロナイトはほとんど認められない。換言すれば、カオリンが安定に存在しうる pH 領域と、炭質物などが存在する還元環境が一次ウラン鉱物の安定領域（非酸化帯）に合致するものとみてよい（第6図、第7図参照）。

#### 6-4 微量元素の挙動に関する実験

＜目的＞非酸化帯から酸化帯へかけて、ウランが酸化されると同時に鉄鉱物の酸化、安定



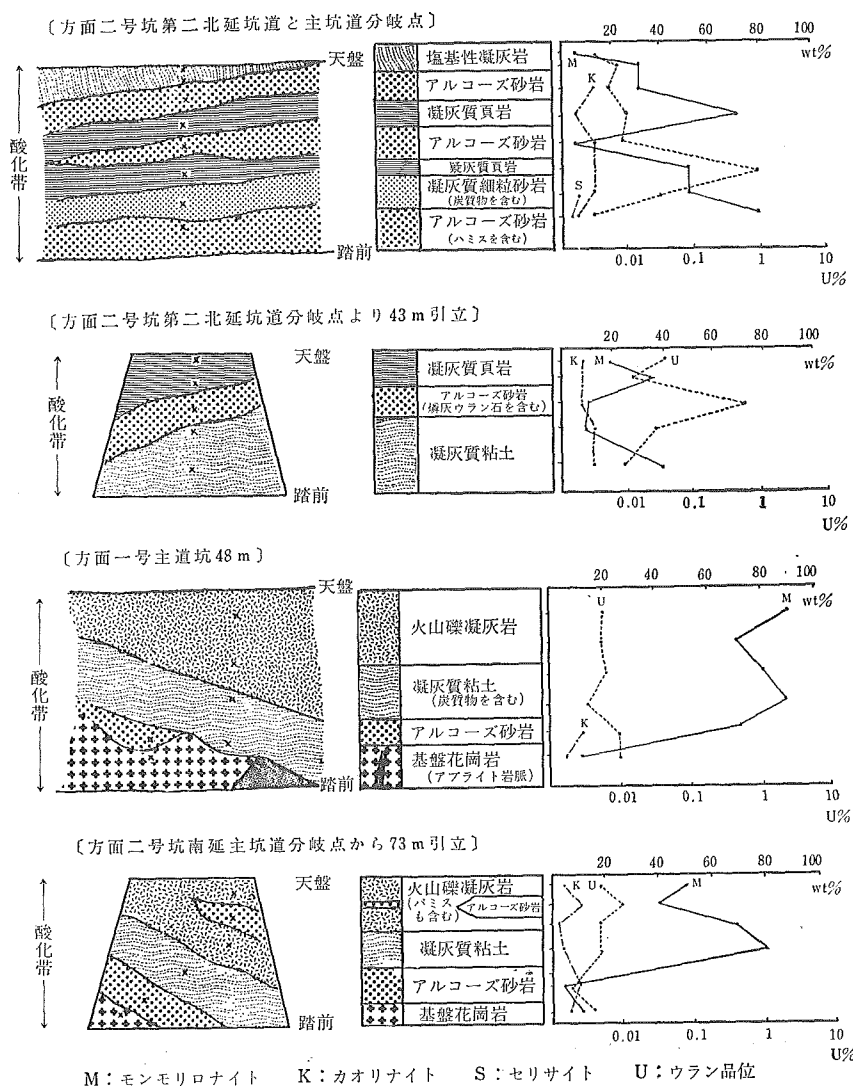


第6図 ウラン品位と微量元素・粘土鉱物の関係

粘土鉱物であるモンモロロナイトの生成など両者の間にかかなり明瞭な区分がされるが，化学成分から当量的な検討を加えると，全般的に酸化に伴って基盤岩，母岩の風化に由来すると考えられる Ca, K, Na などアルカリ，アルカリ土類元素の附加が考えられる。

一方，主要元素とともに，それらに伴う微量元素の酸化還元反応の際における挙動は，ウラン鉱物の生成条件を知る上にも興味のある問題であるので，関連するいくつかの元素について定量分析をおこなった。

#### ＜実験試料＞



第7図 ウラン品位と粘土鉱物の関係

中津河鉱床南部鉱体の非酸化帯、酸化帯の試料35ヶについて分析をおこなった。南部鉱体は非酸化帯が多く、初期におけるウラン鉱床の賦存状態を察知するに好適な鉱床と判断したためである。また、ウラン鉱化作用を火山作用に関連させる議論もあるので、基盤岩を貫く変質安山岩や含濁沸石礫岩も一部に試料として加えた。

なお、X線分析の結果、この実験にもちいた試料中にはウラン鉱物として人形石のみしか認めていない。

＜実験方法＞分析の対象とした元素は U, Zr, Y, Sr, As, Fe, Mn, Ni, Co の各元素である。

Ni, Co を除く他の元素は蛍光 X 線分析によって定量した。この分析法はすでに阪上，奥野 (1964) によって報告されており，100メッシュ以下に細磨した一定量の試料に白色 X 線 (W 対陰極) を照射し，励起される各含有元素の特性 X 線のうち他元素の妨害のない強度の最大のものを対象として，シンチレーションカウンタで計測した。共存元素である Fe の含有度は測定値に影響を与えるため補正を加えた (渡辺，1966)。

また，Ni, Co の含有量については上記分析法の検出限界外であったが，鉱床生成解明に関連し注目される元素であったので，とくに比色分析により定量をおこなった。試料は細摩して弗化水素酸，過塩素酸により分解し，Ni はジメチルグリオキシム (桂，1958)，Co はオルソニトロソモノメチルエーテル (鳥居，1955) を発色剤として比色分析をおこなった。

＜実験結果＞分析結果を第26表に示す。

#### (1) U

実験試料中には人形石を含み，ウラン品位0.5～4%の高品位を示すものもある，砂礫層も非酸化帯ではかなり高含有量を示すが，酸化帯では急激に減少している。

基盤花崗岩では，母岩砂礫層における酸化帯，非酸化帯のようにウラン含有量に顕著な差異はみられないが，鉱床外の花崗岩類に較べればかなりの高品位といえる (0.001～0.01%)。安山岩岩脈は局部的に人形石を伴って存在することもあるが，安山岩そのものは低品位であり，また濁沸石化試料もその含有量は低い。

#### (2) Zr

人形石を含む試料では，Zrとウラン品位はほぼ正の相関を示し，この元素の濃集の傾向は明らかであるが，その他の試料では相関関係は認められず，かなり散乱した値を示す。

特徴的なのは，安山岩岩脈には平均の約2倍以上のZrの濃集が認められることである。

#### (3) Y

Yは人形石に伴っていちじるしく濃集する傾向を示すが，かなり含有量の変化にとみ，Yとウラン含有量との間には明確な相関はない。すなわち，人形石を含む砂礫岩は一部で他試料の6～7倍濃集するものもあれば (max. 0.055%)，ほとんど同程度の含有量を示すものもあり，規則性は明らかでない。

しかし，人形石生成にともなって希土類元素と共に濃集する元素であることは推定できる。非酸化帯の砂礫岩は酸化帯のそれに対してやや高含有量であるが，しかしウラン品位との関連性はみられない。

#### (4) Sr

人形石が存在する試料では，Srはウラン品位と正の相関を示す。したがって他試料に較べて若干多く存在する結果となるが，おそらくウラン鉱物に含まれる Ca と相関を有するものであろう。ウラン品位が0.025%以下になるとSrの値は不規則に分散し，相関関係は認められなくなる。

#### (5) Fe

人形石が存在する試料では，Feは平均3～6%とほぼ安定した含有量を示すが，ウラン品位とは相関はない。分析値は全鉄の値として示されているが，黄鉄鉱の共在が与える影響が大きい。非酸化帯の砂礫岩が低含有量なのに較べて，酸化帯の砂礫岩はやや含有度が高く，しかもウラン品位が少ない。

第26表 中津河鉱床南部鉱体におけるウラン品位と微量元素の分析結果

|       |            | U<br>0.0n<br>% | Fe<br>% | Ni<br>ppm | Co<br>ppm | Mn<br>0.00n<br>% | As<br>0.00n<br>% | Zr<br>0.00n<br>% | Y<br>0.00n<br>% | Sr<br>0.00n<br>% |
|-------|------------|----------------|---------|-----------|-----------|------------------|------------------|------------------|-----------------|------------------|
| (A)   |            |                |         |           |           |                  |                  |                  |                 |                  |
| S1    | 濁沸石化花崗岩    | 0.1            | 5.24    | —         | —         | 120              | —                | 16.0             | 3.1             | 14.0             |
| S2    | 酸化帯花崗岩     | 7.0            | 3.21    | 37.0      | 5.0       | 96               | 15.0             | 11.0             | 8.6             | 11.0             |
| S3    | 酸化帯花崗岩     | 1.2            | 7.38    | 6.2       | 12.0      | 330              | —                | 8.9              | 5.2             | 11.0             |
| S4    | ウラン鉱石(砂礫岩) | 120.0          | 4.27    | 148.0     | 26.0      | —                | 11.0             | 18.0             | 55.0            | 28.0             |
| S5    | 非酸化帯砂礫岩    | 2.0            | 1.87    | 19.0      | 15.2      | 43               | 9.7              | 14.0             | 7.8             | 14.0             |
| S6    | 頁 岩        | 4.0            | 2.74    | 16.2      | 6.0       | 28               | 39.0             | 11.0             | 5.4             | 5.9              |
| (B)   |            |                |         |           |           |                  |                  |                  |                 |                  |
| S7    | 頁 岩        | 0.2            | 3.08    | 26.8      | 8.8       | 42               | 20.0             | 10.0             | 6.5             | 7.4              |
| S8    | 酸化帯砂礫岩     | 0.2            | 14.76   | 9.0       | 4.0       | 1020             | —                | —                | —               | +                |
| S9    | 酸化帯砂礫岩     | 0.2            | 0.76    | 11.4      | 9.2       | +                | —                | 7.2              | 4.8             | 7.0              |
| S10   | 酸化帯砂礫岩     | 3.5            | 0.82    | 6.0       | 12.8      | —                | 5.8              | 4.2              | 5.0             | 8.2              |
| S11   | ウラン鉱石(砂礫岩) | 375.0          | 2.89    | 107.4     | 53.2      | —                | 110.0            | 34.0             | 5.5             | 50.0             |
| S12   | 非酸化帯花崗岩    | 1.4            | 1.58    | 11.6      | 20.0      | —                | 3.7              | 19.0             | 3.0             | 22.0             |
| (C)   |            |                |         |           |           |                  |                  |                  |                 |                  |
| S13   | 非酸化帯花崗岩    | 9.0            | 1.83    | 10.0      | 10.8      | +                | —                | 15.0             | 10.0            | 22.0             |
| S14   | ウラン鉱石(砂礫岩) | 63.0           | 4.53    | 91.6      | 88.0      | —                | 130.0            | 11.0             | 25.0            | 18.0             |
| S15   | 非酸化帯砂礫岩    | 0.3            | 1.14    | 8.0       | —         | 16               | —                | 7.2              | 5.0             | 8.2              |
| (D)   |            |                |         |           |           |                  |                  |                  |                 |                  |
| S16   | 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             |
| S18   | 酸化帯砂礫岩     | 0.25           | 12.48   | 44.0      | 33.2      | 47               | —                | 13.0             | —               | 13.0             |
| S19   | 酸化帯砂礫岩     | 0.25           | 1.41    | 7.0       | 10.0      | +                | —                | 14.0             | 4.2             | 11.0             |
| (E)   |            |                |         |           |           |                  |                  |                  |                 |                  |
| S20   | 安山岩々脈      | 20.0           | 4.59    | 134.8     | 12.0      | +                | 93.0             | 32.0             | 6.0             | 16.0             |
| S21   | 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              |
| S23   | 安山岩々脈      | 1.0            | 4.88    | 204.0     | 26.0      | 19               | 8.4              | 25.0             | 2.9             | 3.4              |
| S24   | 非酸化帯砂礫岩    | 4.8            | 2.23    | 51.2      | 34.8      | 16               | 7.2              | 4.9              | 3.5             | 9.9              |
| S25   | 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             |
| S26   | 濁沸石化花崗岩    | 0.2            | 2.14    | 7.0       | 13.4      | 21               | —                | 15.0             | 3.8             | 13.0             |
| (H)   |            |                |         |           |           |                  |                  |                  |                 |                  |
| S27   | 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              |
| S28B  | 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             |
| S29   | 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)   |            |                |         |           |           |                  |                  |                  |                 |                  |
| S30   | 非酸化帯砂礫岩    | 4.0            | 3.42    | 48.0      | 7.0       | 88               | 120.0            | 4.4              | 12.0            | 8.7              |
| S31   | 非酸化帯砂礫岩    | 0.6            | 0.72    | 36.4      | 1.0       | —                | 16.0             | +                | 3.4             | +                |

酸化によってウラン品位が低下すると同時に、黄鉄鉱をはじめ鉄分は酸化し針鉄鉱などいわゆる褐鉄鉱化するが、Feとしては残存するためと考えられる。

(6) As

ウラン鉱物を含む砂礫岩では、Asとウラン品位との関係は明確でないが一般に高含有量を示す(0.01%以上)。人形峠の各鉱床周辺に産する黄鉄鉱はAs含有量が高いことが報告されているが(阪上, 1960), 人形石と共存する黄鉄鉱の影響とも考えられる。このことは、酸化帯の砂礫岩にAsがほとんど存在しないことから裏づけられ、酸化と共にAsも逸脱するものであろう。基盤岩類では安山岩岩脈に比較的多く含まれるが、花崗岩類では低い含有量を示している。

(7) Ni

Niはウラン品位の高い試料では20~140ppmの高含有量で存在し、ほかの試料に較べれば比較的平均した値を示す。安山岩岩脈には平均100ppm程度含まれるが、これは酸性岩に対して塩基性岩には初生的にNiが濃集しやすいことによるものであろう。酸化帯の試料ではNiの含有量には規則性は認められず、平均20ppm程度の含有量にしかすぎない。

また、Fe含有度との間には正の相関がみられ、Niが鉄鉱物に依存する可能性もある。

(8) Co

Coはウラン鉱物に関連して濃集する傾向があるがNiほど高含有量でなく、あまり明確な規則性は認められない。しかし、Niとの間にはほぼ正の相関があり、またFe含有量との間にも同じ関係が認められる。

(9) Mn

一例をのぞき、ウランの高品位試料中にはMnの高含有量のものはない。おそらくこの場合はマンガン酸化物あるいは水酸化物が混在した結果であろう。Mnが0.01%以上の値で定量される試料は、安山岩岩脈、頁岩などでこれらはFe含有量との間に相関は認められる。要するに、Mnはウラン鉱床形成には直接関係のない元素とみられる。

〈総括〉今回の実験で検討された元素のうち、ウラン鉱物の存在する砂礫岩ではUの濃集とともにZr, Y, Sr, As, Ni, Coなどがある程度高含量認められることが判明した。このうちUと正の相関を示すのはZr, Y, SrでAsは黄鉄鉱との関連性が推定される(第6図参照)。Ni, Coも黄鉄鉱など鉄鉱物との関連が考えられ、黄鉄鉱から褐鉄鉱への変質に伴ってFeと共存し、両者にわたって存在する結果となっている。

酸化帯、非酸化帯の関係をみると、酸化帯ではUの減少とともにY, Sr, As, Zrが極度に減少するが、それに対しFe, Ni, Coなどの元素は鉱化帯でとくに濃集するほかは、酸化帯、非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少なく、しかも顕著な二次富鉱体の形成がないが、酸化とともに6価のウランイオンはほとんど逸散したものと考えられる。

以上のような各元素の挙動は、本質的には他のウラン鉱床全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とともに行動し定着するものであろう。たとえば、中津河鉱床の本鉱体の一部では酸化帯にリンカイウラン石が存在し、そこではZr, Y, Srは濃集せず、結局Uの酸化作用と同時にZr, Y, Srの大半は逸散し、二次ウラン鉱物中では安定に存在しえない傾向が認められている。

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も考えられ、安山岩岩脈の存在が問題になる。

この場合、熱水性のウラン鉱床に伴なう元素として Ni, Co, Bi などが考えられるが、安山岩岩脈でのUの含有量は上位の砂礫層に較べて低いが、Ni, Co は塩基性火成岩の一般的平均値 (Ni : 130ppm, Co : 48ppm, TURKIAN, WEDEPOHL, 1961) などから検討すると多少濃集の傾向はある。しかし、安山岩岩脈に伴なうUの局所的な濃集は、鉱床母岩からのたれさがりの可能性が強い。

#### 6—5 EPMAによる検討

微量元素の分析によっても黄鉄鉱と人形石の共生がいくつかの元素によって推定され、また、X線分析によっても両鉱物の密接な共存関係が裏づけられている。

両鉱物の間における共生関係、元素分布を知るため、EPMA による検討をおこなった。

測定機器は明石製作所製 Tronalyzer, Model TRA-25型 Electron Micro Analyzer で実験条件は次のとおりである。

|                               |                  |
|-------------------------------|------------------|
| Accelerating potential        | : 30KV           |
| Probe current                 | : 0.06 $\mu$ A   |
| Crystals                      | : LiF, Mica      |
| Detector                      | : Propor. Count. |
| Electron-beam impact diameter | : 1~2 $\mu\phi$  |

＜実験結果および考察＞実験試料は、峠鉱床産のウラン鉱石 (W15) でアルコーズ砂岩中に人形石が炭質物、黄鉄鉱と共存する (Plate 1)。

最初にスポット分析をおこない、検出された元素はU, P, Ca, S, Fe, Si, As の各元素であった。次に、各元素の示性X線像を求めたのが Plate 1, ②~⑧である。

なお、Uは示性X線として  $L\alpha$  線を用い、残る他の元素は  $K\alpha$  線によった。

人形石が黄鉄鉱といかなる共生関係を示すかについてこの実験から判明することは、人形石が黄鉄鉱をはじめ各鉱物の表面を薄く皮覆して存在する事実の実証である。すなわち、U, P, Ca の濃集する部分が人形石であって、厚さ約10 $\mu$ の帯状分布を示し、それに接する Fe, Sの濃集部分が黄鉄鉱である。

Si の分布する部分はアルコーズ砂岩を形成する長石類で、それらの表面にも人形石の被覆がみられる。

注目されるのは As の分布であって、微量元素の分析では非酸化帯における Fe との相関から黄鉄鉱のSを置換して存在するものと考えられたが、この試料に関する限り黄鉄鉱、長石類における As の含有量の差異は明確でない。人形石には As はほとんど認められず黄鉄鉱などには As の存在度がかかなり高いことは明らかであるが、この As の分布状態は今後問題になろう。

この実験によって提示されるさらに一つの大きな問題は、人形石が長石類などアルコーズ砂岩の本来の構成物質の表面を被覆するのみでなく、常に共存する黄鉄鉱の表面をも覆い、両鉱物が同時生成ではなく、黄鉄鉱生成後に人形石が生成したことを指示する点である。

結局、アルコーズ砂岩が炭質物、有機物の存在により還元環境が導入され黄鉄鉱が生成し、その後ウランの鉱化作用がもたらされたことが推定される。

## 7. 各鉱物の共生関係および考察

各ウラン鉱物の種類，それに随伴する変質鉱物などについてはすでに記載し，共生関係についても若干ふれてきたが，ここで全体的に総括しかつ鉱床生成の過程についても考察を加えてみる。

### 7-1 非酸化帯と酸化帯の関係

すでに述べてきたように，非酸化帯と酸化帯におけるウラン鉱物の安定関係は第8図にまとめたように，前者では4価のウランを，後者では6価のウランを含むウラン鉱物の存在によって明瞭に区別しうる。

坑内における酸化帯の形態は非酸化帯に地下水が浸透し，再びその地下水の後退する間に酸化状態が導びかれ，その結果両帯はかなりシャープな境界で区分されることが多い。

したがって現在見られる酸化帯の富鉱部は，一次ウラン鉱物の酸化により，ほとんどウランは移動せず直接二次ウラン鉱物が生成したものが多く推定される。

一方，非酸化帯の富鉱体の近くに酸化帯が存在しながら，二次富鉱体を形成しない場合もある（例，中津河鉱床，南部鉱体）。

この場合にはウラニルイオンはかなり移動して逸散あるいは二次富鉱体を形成したものと考えられる。

ウラン元素は天然の元素としては最も重い元素であるが，地球化学的には錯塩を形成しかなりの移動は可能である。すなわち，ウラニル基  $(\text{UO}_2)^{2+}$  は  $\text{CO}_2$  の存在のもとで pH11 以下では  $[\text{UO}_2(\text{CO}_3)_2]^{2-}$  などの陰錯イオンを形成するので，本地域の花崗岩地帯ではその可能性が強い。石膏の存在や，リービヒ石などウランの炭酸塩鉱物の存在もその可能性を指示し，酸化帯の富鉱部は非酸化帯からかなり離れて沈積しうるものであろう。

ウランが花崗岩類から溶脱し，非酸化帯の富鉱部を形成する場合も同じような機構が考えられる。すなわち，6価のウランは4価のウランに較べて水に可溶性であり，可溶性錯イオンを形成して花崗岩類から溶出した6価のウラニルイオンは，炭質物などの存在によって還元環境下の非酸化帯において飽和状態となり，4価に還元されると同時に一次ウラン鉱物を沈積したものであろう。

ウラン鉱物の酸化と良好な対応がみられるのが鉄鉱物である。すなわち，非酸化帯では黄鉄鉱（一部白鉄鉱）が安定であるが，酸化にともなって鉄の硫酸塩鉱物が生じ，究極的には針鉄鉱に変質する。この過程において一次ウラン鉱物も酸化し，ウランの硫酸塩鉱物も生成する。強還元環境下ではレピドロサイトも認められるが，坑道掘さく後には，急激に酸化鉄へ転ずる不安定なものである。おそらく，酸化の過程にはいった鉄鉱物が再び還元環境が導びかれたことによってレピドロサイトが生成したものと推定される。

また，酸化帯の一部では菱鉄鉱の存在も確認されるが，ウランが炭酸根と錯イオンを形成し移動することを考えると興味深い存在である。

粘土鉱物については，非酸化帯に較べて酸化帯は変質度が圧倒的に顕著で，酸化帯では粘土化が進展するとモンモリロナイトが量的に多くなり，非酸化帯ではハロイサイトが微量ながら普遍的に存在する。このような傾向はウラン鉱物，鉄鉱物にみられるような明確な境界は認められず，漸移するのが特徴である。これはウラン鉱物，鉄鉱物が常温に近い状態でも

pH, Eh 条件に敏感に反応してすぐ新しい安定な鉱物相へ移行しうるが、粘土鉱物の生成は低温では反応速度が遅く、加えて酸化帯、非酸化帯の境界が地下水面の変動などによってかなり変化しうる可能性を有し、その結果粘土鉱物については現在みられるような漸移的な共存関係を示すものと推定される。

炭質物と還元環境との間には密接な関連がみられるが、酸化帯では残存する木質は珪化作用を受け珪化木に転じ、この現象は神倉鉱床においてとくに顕著である。神倉鉱床に木質の存在が多かったことと、それを含有する層準が石英安山岩の火山円礫岩層に相当し、コロイドシリカの移動の時期的問題は別として、 $\text{SiO}_2$  の供給に恵まれたことは指摘できる。したがって本地域の各鉱床の酸化帯に珪化木が出現する可能性は少なく、転じてウランの珪酸塩鉱物がほとんど神倉鉱床において認められることも、人形峠地域のウラン鉱床の特殊性といえる。

石膏は人形石と共存する長石類を交代して生ずることが多く、したがって常に人形石と共存することから第27表では非酸化帯に区分してあるが、本来は鉄の硫酸塩鉱物と同じく、人形石、硫化鉄鉱物の酸化の第一段階として生成しているとみてよい。石膏は乾燥条件下で一部脱水しバッサナイトに変化しているが、これはメランテライト、ハロトリカイトなどが一部脱水し、 $\text{FeSO}_4 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$  の相へ移行する場合と同じ条件といえる。

## 7-2 ウラン鉱物間における共生関係

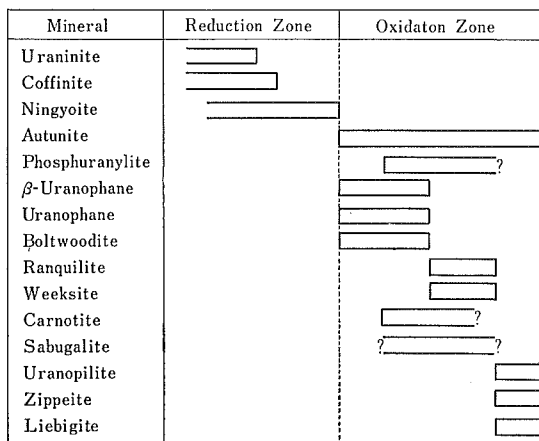
各鉱床に認められるウラン鉱物の晶出順序をまとめたのが第8図である。

非酸化帯、酸化帯に対応して、一次ウラン鉱物、二次ウラン鉱物が各々共生関係にあることは既述のとおりであるが、各ウラン鉱物の間での関係はまだ明確でない場合が多い。

一次ウラン鉱物是人形石が圧倒的に多く、ほかのセンウラン石、コフィン石は神倉鉱床以外の産出は少ない。したがって、一次ウラン鉱物の間における共生関係をつかむには神倉鉱床が最も適しているが、人形石以外はほとんど二種以上重複して存在し、生成の前後関係も明確には判断しえない。

世界的には、非酸化帯における4種のウラン鉱物にはこれらのほかにデービッヒ石も知ら

れているが、デービッヒ石が高温熱水性鉱床に特徴的な鉱物であり、しかも本地域にこの鉱物が認められないのは、生成条件を指示する一つのデータともいえる。また、一般にはセンウラン石が最も安定な形でかつ多産するのに対して、ほかの地域でまったく存在しない人形石が主要鉱物である点に関しては、 $\text{PO}_4^{3-}$  のアニオンの存在が必要条件になる。センウラン石は、一般には還元環境下でややアルカリ性の条件での生成を指示する場合が多いが、実験的には低温から高温まで、かつ広い pH 条



第8図 各ウラン鉱物の生成関係



件のもとで合成されている。一方、コフィン石も低温から中温へかけて、すなわち堆積型鉱床から熱水鉱脈へかけて認められるのが普通で、実験的には pH8~10.5, 200~360°C の条件で合成されている。しかし、中性~酸性になるとケイ酸イオンが存在してもセンウラン石が生成し、また 177°C 以下ではアルカリ性でも コフィン石は不安定で、センウラン石が生成する。

人形石は、Ca その他のカチオンに見合う以上の  $\text{PO}_4^{3-}$  を溶液を含む場合には、上限は明確でないが、70°C以上、pH 1.2~7.6で生成することが確かめられている。しかし、コフィン石、人形石も実験上における生成温度は反応速度を考慮するとそのまま天然には適用できない。

奥野によれば、神倉鉱床においては、非酸化帯の中心部より酸化帯へかけて各鉱物の重複はあるものの、順次、センウラン石—コフィン石—人形石—二次ウラン鉱物の累帯配列が認められるとしている（奥野、1964）。

一次ウラン鉱物におけるこの配列が、まったく初生的なものか、pH 条件の変化に伴っての再配列なのか、上記の実験結果から考慮しても明確ではない。ただ、神倉鉱床におけるセンウラン石の層間隙が単に堆積型生成を指示していないことや、人形石が風化生成による産出が推定されていることを考えると、非酸化帯富鉱部形成後まったく変動がなかったとは断言できない。

非酸化帯内のウラン鉱物の配列に較べると酸化帯における晶出関係は二次的酸化作用が明確なだけに、かなり判別しやすい。しかし、各二次ウラン鉱物も化学組成が生成条件に密接な規制を与えている場合が多い。

したがって、化学組成との関連についての検討は次項にゆずるが、少なくとも多量に存在するリンカイウラン石は、酸化帯形成の初期より末期にかけて広く安定に存在したことは明らかである。たとえば、人形石の濃集部に接する酸化帯に、人形石よりの変質生成物（リンカイウラン石）として存在する初期生成の場合や、珪化木にそった二次鉱化作用に対しその年輪を垂直方向に切る割れ目に存在する中期生成の場合、あるいはウランの硫酸塩鉱物と共存して末期生成を指示する場合などが認められる。

### 7-3 ウラン鉱物の化学組成と生成条件

各鉱物の化学組成と非酸化帯、酸化帯の関係を調べたのが第27表である。

＜磷酸塩鉱物＞鉱石の大半をしめる人形石とリンカイウラン石は共に磷酸塩鉱物に属し、非酸化帯と酸化帯の連続関係がつかめる個所では、人形石の富鉱部が酸化によってリンカイウラン石を含む富鉱部へ変化していることが観察される。人形石から直接リンカイウラン石に転移しなくても、化学組成からみれば酸化による人形石の分解後、 $\text{U}^{6+}$ 、Ca、 $\text{PO}_4$  など大部分の元素はリンカイウラン石の生成に関与することができ、主要元素で変動のある元素は  $\text{H}_2\text{O}$  の附加と希土類元素の逸脱のみである。

したがって、方面・麻畑鉱床のように非酸化帯の少ない鉱床でもリンカイウラン石が多量に認められる個所は、ウランが錯塩などの形で非酸化帯からかなり移動して沈積したことを考えれば、生成機構は理解しうる。

また、リンアルミウラン石や、リンウラニル石は、鉱床母岩などの風化による Al、Mg などのカチオンの附加により容易に生成しうる可能性があり、リンカイウラン石とともに実

第27表 非酸化帯，酸化帯における各鉱物の分帯

| 非 酸 化 帯<br>(還 元 環 境)             |                                                 | 酸 化 帯<br>(酸 化 環 境)                                                                                                           |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                              |
|----------------------------------|-------------------------------------------------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| ウ<br>ラ<br>ン<br>鉱<br>物            | 酸化物<br>化鉱                                       | セノウラン石<br>$\text{UO}_2$                                                                                                      |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                              |
|                                  | 珪酸塩鉱物                                           | コフィン石<br>$\text{U}(\text{SiO}_4)_{1-x}(\text{OH})_{4x}$                                                                      | ベーターウラノフェン $\text{Ca}(\text{UO}_2)_2(\text{SiO}_3)_2(\text{OH})_2 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$<br>ウラノフェン $\text{Ca}(\text{UO}_2)_2(\text{SiO}_3)_2(\text{OH})_2 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$<br>ボルトウッド石 $\text{K}_2(\text{UO}_2)_2(\text{SiO}_3)_2(\text{OH})_2 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$<br>ランキル石 $1.5\text{CaO} \cdot 2\text{UO}_3 \cdot 5\text{SiO}_2 \cdot 12\text{H}_2\text{O}$<br>ウィークス石 $(\text{K} \cdot \text{Na})_2(\text{UO}_2)_2(\text{Si}_2\text{O}_5)_3 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ |
|                                  | 磷酸塩鉱物                                           | 人形石<br>$\text{U}_{1-x}\text{Ca}_{1-x}\text{R}_{2x}(\text{PO}_4)_2 \cdot 1\sim 2\text{H}_2\text{O}$                           | リンカイウラン石 $\text{Ca}(\text{UO}_2)_2(\text{PO}_4)_2 \cdot 10\sim 12\text{H}_2\text{O}$<br>メタ・リンカイウラン石 $\text{Ca}(\text{UO}_2)_2(\text{PO}_4)_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$<br>リンアルミウラン石 $\text{HAl}(\text{UO}_2)_4(\text{PO}_4)_4 \cdot 16\text{H}_2\text{O}$<br>リンウラニル石 $\text{Ca}(\text{UO}_2)_4(\text{PO}_4)_2(\text{OH}_4) \cdot 7\text{H}_2\text{O}$                                                                                                                                       |
|                                  | バナジウム酸塩鉱物                                       |                                                                                                                              | カルノー石 $\text{K}_2(\text{UO}_2)_2(\text{VO}_4)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                   |
|                                  | 硫酸塩鉱物                                           |                                                                                                                              | ウラノビル石 $(\text{UO}_2)_6(\text{SO}_4)(\text{OH})_{10} \cdot 12\text{H}_2\text{O}$<br>ジッペル石 $\text{K}_4(\text{UO}_2)_6(\text{SO}_4)_3(\text{OH})_{10} \cdot \text{H}_2\text{O}$                                                                                                                                                                                                                                                                                                                |
|                                  | 炭酸塩鉱物                                           |                                                                                                                              | リービツヒ石 $\text{Ca}_2(\text{UO}_2)(\text{CO}_3)_3 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                  |
| 鉄<br>鉱<br>物                      | 黄鉄鉱<br>白鉄鉱<br>$\text{FeS}_2$                    | メランテライト<br>$\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$<br>ハロトリカイト<br>$\text{FeAl}_2(\text{SO}_4)_4 \cdot 22\text{H}_2\text{O}$ | 針鉄鉱<br>$\text{FeO}(\text{OH})$<br>レビドクロサイト<br>$\text{FeO}(\text{OH})$<br>菱鉄鉱<br>$\text{FeCO}_3$                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                              |
| 木<br>質                           | 炭化木<br>(C)                                      | 珪化木<br>( $\text{SiO}_2 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ )                                                                          |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                              |
| 硫酸<br>塩<br>ウ<br>ラ<br>ン<br>鉱<br>物 | 石膏<br>$\text{CaSO}_4 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ | バッサナイト<br>$\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$                                                                          | (方解石 $\text{CaCO}_3$ )                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                       |
| 粘土<br>土<br>質                     | ハロイサイト<br>(セリサイト)                               | モンモリロナイト                                                                                                                     | (Ca-モンモリロナイト)                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                |

際には多量の存在が推定される。長野県飯田市萩坪で同定したウラノシルサイトも，ウランのバリウム磷酸塩で，リンカイウラン石と同じ層状構造を有することから，やはり本地域にも存在する可能性は強い（渡辺，1970）。

メタリンカイウラン石は，乾燥状態でリンカイウラン石の脱水により生じ，かつ可逆変化を容易におこすのでリンカイウラン石と同じにあつて考えられる。

化学組成の面で問題が残るのは  $\text{PO}_4$  の起源の問題であり，武藤は燐灰石より人形石の合成に成功しているが (MUTO, 1959, 1962)，人形石やリンカイウラン石など多量の燐酸塩鉱物の存在を考えると，花崗岩中の燐灰石だけをその起源として考えることには若干の疑問が残る。

＜珪酸塩鉱物＞ウランの珪酸塩鉱物は一次鉱物ではコフィン石のみであるが，二次鉱物ではウラノフェンのほか多種類が存在する。しかし，量的には全体をあわせても非常に少ない。

両者の関係をみると，酸化作用，加水作用によってコフィン石から直接ウランの二次珪酸塩鉱物が生成した証拠はまったく認められず，むしろ否定的である。

ウランの二次珪酸塩鉱物の存在を規制しているのは明らかに珪化木中のオパールであって，したがって神倉鉱床において最も多産する。

炭質物には遊離のウランやバナジンが濃集しやすく，コフィン石や人形石が安定して存在しうるが，酸化帯では木質が珪化作用を選択的に受けることによってコロイダルなシリカと6価のウランが結びつき，さらに造岩鉱物の風化によるK, Na, Ca,  $\text{H}_2\text{O}$  の附加が多種にわたる二次珪酸塩鉱物の生成に関与したものと考えられる。

また，これら各珪酸塩鉱物は一般にほかの二次ウラン鉱物に較べて早期の晶出を示す場合が多いのも一つの特徴といえる。

いずれにしても  $(\text{SiO}_4)^{4-}$  の存在が必須条件であって，溶解度から考えるとかなりアルカリ性のもとのシリカの移動が推定しうる。

＜酸化鉱物＞酸化鉱物はセンウラン石が存在するのみで二次ウラン鉱物は認められず，しかも全体的にみてごく微量にしか存在しない。

センウラン石は酸化鉱物であるが，一次ウラン鉱物として各鉱床の強還元環境の地域に存在し，とくに神倉鉱床では非酸化帯の中心部に存在する。既述のように，神倉鉱床のセンウラン石の $a_0$ の値からすれば一部で低温熱水作用による生成も考慮されるが，母岩の変質などからみてもその確証はない。

＜バナジン酸塩鉱物＞この種の鉱物は二次鉱物のカルノー石のみである。カルノー石は酸化条件下では，pH7 を中心に酸性からアルカリ性にかけてかなり広い範囲で安定で，コロラド高原など堆積型ウラン鉱床では世界的にその産出は多いが，人形峠地域での産出は少ない。これはバナジンの存在度にも関連するが，たとえば神倉鉱床の炭質物にはかなりのバナジンが認められるが，珪化木にはほとんど存在せず，酸化に伴って希土類元素などと共に逸散した可能性が強い。

＜炭酸塩鉱物＞ウランの炭酸塩鉱物は，二次鉱物のリービッヒ石のみが神倉鉱床において認められる。

リービッヒ石は本来不安定な鉱物で一次ウラン鉱物の表面を被覆し，しかもアルカリ性の炭酸溶液中で生成するのが普通とされている。また，石膏や方解石と共存することが多い点から考えれば，人形峠地域におけるこの鉱物の産出には共通点が見出される。

しかし，本地域では石膏や方解石の存在は一般には微弱であり，また非酸化帯近くのアルカリ性炭酸溶液の存在する可能性が少ないことを考えれば，リービッヒ石の存在度が小さいことも理解できる。また，附近にはウランの硫酸塩鉱物も認められ，生成時期はごく新らしいものと推定される。

＜硫酸塩鉱物＞ウランの硫酸塩鉱物として確認されるのは、ウラノピル石、ジッペル石の二種の二次鉱物である。これらの鉱物は、非酸化帯の人形石や黄鉄鉱と共存してそれらの変質に伴うウラン鉱物であることは明確である。

すなわち、鉄の硫酸塩鉱物の共生からも、 $U^{6+}$  と  $SO_4^{2-}$  の結合が考えられ、この種のウラン鉱物の生成にはウランと共に黄鉄鉱などイオウの存在が必須条件となる。硫化物と同じく酸化、水和による変質過程は容易に理解でき、しかも坑道掘進後のごく新しい時期の生成であることも確認されているが、一方非常に不安定な鉱物で地下水の作用などにより容易に分解することも事実である。

おそらく地質時代を通じて、この種のウラン鉱物は本地域においても生成分解をくり返したものと考えられる。

#### 7-4 母岩の種類と鉱物共生

ウラン鉱床の富鉱部は、アルコーズ質砂岩・礫岩、頁岩類、凝灰岩～凝灰角礫岩、火山円礫岩などチャンネルを埋める地層がそれらのいずれかであることによって、かなりの地域性を有する。

そのなかでも、不整合面に接する孔隙率の高い砂岩・礫岩層など高透水性岩層に富鉱体が集中するのは当然であるが、その場合も地下水がチャンネルの底部にそって浸透し、上位層が非酸化帯としてとり残される場合や、逆に地下水が上部より浸透して酸化帯が上部に存在し、非酸化帯が下部に残存するなど、母岩も地下水の挙動によって鉱物の共生に大きな影響を受けている。

しかし、同じ条件下において最も酸化変質を受けやすい岩層は、本地域では酸性凝灰岩～凝灰角礫岩であって、ほとんどモンモリロナイト化によって特徴づけられる酸化帯を形成し、方面・麻畑鉱床や神倉鉱床の一部に認められる。

非酸化帯のもっとも顕著に残存する地層は含炭質物頁岩・砂岩類であって、アルコーズ質砂岩・礫岩層はそのしめる場所や環境によっていずれの場合をもとりうる。たとえば、神倉鉱床では含炭質物頁岩層中にはセンウラン石が主に濃集し、アルコーズ質砂岩・礫岩層の非酸化帯にはコフィン石、人形石が、その酸化帯には二次ウラン鉱物が存在し、そして石英安山岩質凝灰角礫岩層は酸化帯を形成してウランの珪酸塩鉱物を主とする二次ウラン鉱物が存在するのが一般的なパターンである。これら各地層はほぼ水平に堆積するため、炭質頁岩と凝灰角礫岩が直接に接する地点は還元環境と酸化環境の両極端の条件が接する地点ともなっており、その結果ウランの硫酸塩鉱物や炭酸塩鉱物を生成する環境を導びくものである。

また、神倉鉱床に石英安山岩質円礫岩層と珪化木の共存からくるウランの珪酸塩鉱物の共生も、母層の性質が鉱物種を規制している例といえる。

さらに、方面・麻畑鉱床のように完全にモンモリロナイト化した酸性凝灰岩類は、酸化環境と弱アルカリ性条件を導びき、それがリンカイウラン石など二次ウラン鉱物の生成と、その後の安定な存在に大きな影響を与えているものである。

## 8. 文 献

- ABELDO, M. J. (1960), *Ranquillite, a Calcium Uranyl Silicate* : *Am. Min.*, Vol. 45, pp.1078-1086.
- FRONDEL, C. (1952), *Studies of Uranium Minerals (X) Uranopilite* : *Am. Min.*, Vol 37, pp. 950-959.
- \_\_\_\_\_ (1958), *Systematic Mineralogy of Uranium and Thorium* : *U.S.G.S. Bull.* 1064.
- 福岡 勇, 久保恭輔 (1969), 人形峠・東郷鉱山周辺の地質 : 地調報告., No.232., pp.863-880.
- GARRELS, R.M., CHRIST, C.L. (1965), *Solutions, Minerals, and Equilibria* : *Harper & Row, New York*.
- GORMAN, P.H. *et al.* (1955), *Studies of Radioactive Compounds (8) Uranophane and Beta Uranophane* : *Am. Min.*, Vol.40, pp.634-645.
- GRUNER, J.W. (1956), *Concentration of Uranium in Sediments by Multiple Migration-Accretion* : *Am. Min.*, Vol.51, No.6, pp.485-520.
- 林昇一郎 (1965), 奥津カオリン中のトリウム : 日本原子力学会, 第4回現地討論会., pp.26-30.
- 逸見吉之助 (1961), ウラン雲母族 : ウラン, その資源と鉱物, 朝倉書店., pp.227-238.
- HONEA, R.M. (1961), *New Data on Boltwoodite, An Alkali Uranyl Silicate* : *Am. Min.*, Vol. 46, pp.12-25.
- IMAI, *et al.* (1970), *Geology and Mineral Deposits of the Akenobe Mine and Ningyôtôge Uranium Deposits* : *I.M.A. 7th General Meeting, Guide Book* 8.
- 桂 敬 (1958), ジメチルグリオキシムによるニッケルの定量, 実験化学講座, No.15, 下, pp.330-331.
- MUTO, T. *et al.* (1959), *Ningyoite, A New Uranous Phosphate Mineral from Japan* : *Am. Min.*, Vol.44, pp.633-650.
- MUTO, T. (1961), *Paragenesis of the Minerals of the Ningyôtôge Mine* : *Min. Jour.*, No.3, pp.195-222.
- \_\_\_\_\_ (1962), *The Precipitation Environment of Ningyoite* : *Min. Jour.*, No.3, pp.306-337.
- \_\_\_\_\_ (1965), *Thermochemical Stability of Ningyoite* : *Min. Jour.*, No.4, pp.245-274.
- 奥野孝晴 (1964 a), 溶液法蛍光X線分析によるウラン, ジルコニウム, イットリウム, ストロントニウムの定量 : 岡山温泉研究所報告., No.34, pp.11-20
- \_\_\_\_\_ (1964 b), 人形峠地域のウラン鉱床の帯状分布 : 日本鉱業会誌講演要旨., Vol.80., No.915, pp.750-752.
- 阪上正信 (1960 a), 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, ヒソ : 日本化学会誌., Vol.81, No.6, pp.888-902.
- \_\_\_\_\_ (1960 b) 放射性堆積物の地球化学的研究(第五報) 堆積型ウラン鉱床におけるイオウとウラン : 日本化学会誌., Vol.81, No.10, pp.1523-1527
- 相馬徳蔵 (1963), 鳥取・岡山県境人形峠産リンカイウラン石について : 鉱物学雑誌., No.3, pp.214
- 杉山隆二他 (1963), 鳥取県東郷鉱山のウラン鉱床 : 日本鉱業会誌., Vol.79, No.902, pp.543-553.
- 杉山隆二 (1965), 山陰地方の地質展望—山陰の基盤花崗岩類— : 岡山大温泉研究所報告., No.35, pp.85-99.
- 高瀬 博 (1969), 鳥取県東郷鉱山のウラン鉱床 : 地調報告., No.232, pp.881-921.
- 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 :

- 日本化学雑誌., No.76, pp.328-333.
- TRAILI, R.J. *et al.* (1952), Synthesis and X-ray Study of Uranium Sulfate Minerals : *Am. Min.*, Vol.37, pp.394-406.
- TURKIAN, K.K. *et al.* (1961), Distribution of the Elements in the Major Units of the Earth's Crust : *Geol. Soc. Am. Bull.*, Vol.72, pp.175-192.
- 渡辺晃二他 (1964 a), 岡山県奥津カオリン鉱床の放射能異常 : 岡山大温泉研究所報告., No.34, pp.1-10.
- 渡辺晃二 (1964 b), 鳥取県東郷鉱山ウラン鉱床の基盤岩ならびに母岩の変質 : 岡山大温泉研究所報告., No.34, pp.11-20.
- \_\_\_\_\_ (1966), 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 : 岡山大温泉研究所報告., No.36, pp.23-30.
- WATANABE, K. (1970), Uranocircite from Ogitsubo, Iida City, Nagano Prefecture : *Jour. Fac. Scie. Shinshu Univ.*, Vol.5, No.1, pp.65-78.
- WRIGHT, R.J. (1955), Ore Controls in Sandatone Uranium Deposits of the Colorado Plateau : *Econ. Geol.*, Vol.50, pp.135-155.
- YOSHIKAWA, K. *et al.* (1961), Quantitative Estimation of Montmorillonite in Uranium Deposits, Tottori Pref. : *Clay Scie.*, Vol.1, No.1-2, pp.1-8

*Mineral Paragenesis of Uranium Ore-Minerals  
in the Ningyôtôge Deposit, Southwest Japan*

By KÔJI WATANABE

Department of Geology, Faculty of Science, Shinshû University

(Received September 16, 1976)

ABSTRACT

The uranium ore deposits, which are epigenetic sedimentary deposits, are widely distributed in the Ningyôtôge district.

In these deposits many uranium minerals have been found. In the unoxidized zone the minerals are ningyoite, uraninite and coffinite, and in the oxidized zone those are autunite, meta autunite, uranophane,  $\beta$ -uranophane, boltwoodite, carnotite, ranquillite, weeksite, phosphuranylite, uranopilite, liebigite and sabugalite. Among them autunite and ningyoite of calcium phosphate are the most widespread and abundant minerals. Uranophane,  $\beta$ -uranophane, coffinite and uraninite are also abundant, but are restricted in their occurrences. Two of them, liebigite and sabugalite, were first identified in Japan by the author.

There are two types of occurrence of uranium minerals. One is the evenly disseminated type which is characterized by disseminated tiny grains in arkosic sandstone, tuff breccia, clay and arkosic matrix of conglomerate, and thin coated film on the surface of pebbles and along the cracks. In this type ningyoite, autunite, phosphuranylite, carnotite, and uranopilite are included. The other is the concentrated type selectively in wood and other carbonaceous materials. The occurrence of uranium silicate minerals, coffinite, uranophane,  $\beta$ -uranophane, boltwoodite, ranquillite, and weeksite, is restricted only within opaline wood and carbonaceous matters.

Some uranyl sulphate minerals, uranopilite and zippeite, are closely associated with iron sulphate mineral such as melanterite, halotricite and iron sulphate tetrahydrate.

These uranyl sulphate minerals are recently formed as an efflorescence on the wall of digging gallery through the decomposition of pyrite found in lignite and arkosic sediments under the condition of high humidity.

It is suggested that uranium is originated mainly in the basement pegmatic biotite granite of "Ogamo type". Uranium has extracted from the complex ion as  $[\text{UO}_2(\text{CO}_3)_2]^{-2}$ . Under the condition of closed basins it was accumulated in the sediments. It is indicated that the hydrogen ion concentration and the redox potentials are the important factors for determining the mineral paragenesis in these deposits.

## 図版の説明

*Plate 1*

人形石，黄鉄鉱など非酸化帯のウラン鉱石  
のX線マイクロアナライザー像

## 1 吸収電子イメージ

N : 人形石 Py : 黄鉄鉱 Pl : 斜長石  
峠鉱床 W15

|   |          |              |
|---|----------|--------------|
| 2 | 示性X線イメージ | UL $\alpha$  |
| 3 | 同 上      | CaK $\alpha$ |
| 4 | 同 上      | PK $\alpha$  |
| 5 | 同 上      | FeK $\alpha$ |
| 6 | 同 上      | SK $\alpha$  |
| 7 | 同 上      | SiK $\alpha$ |
| 8 | 同 上      | AsK $\alpha$ |



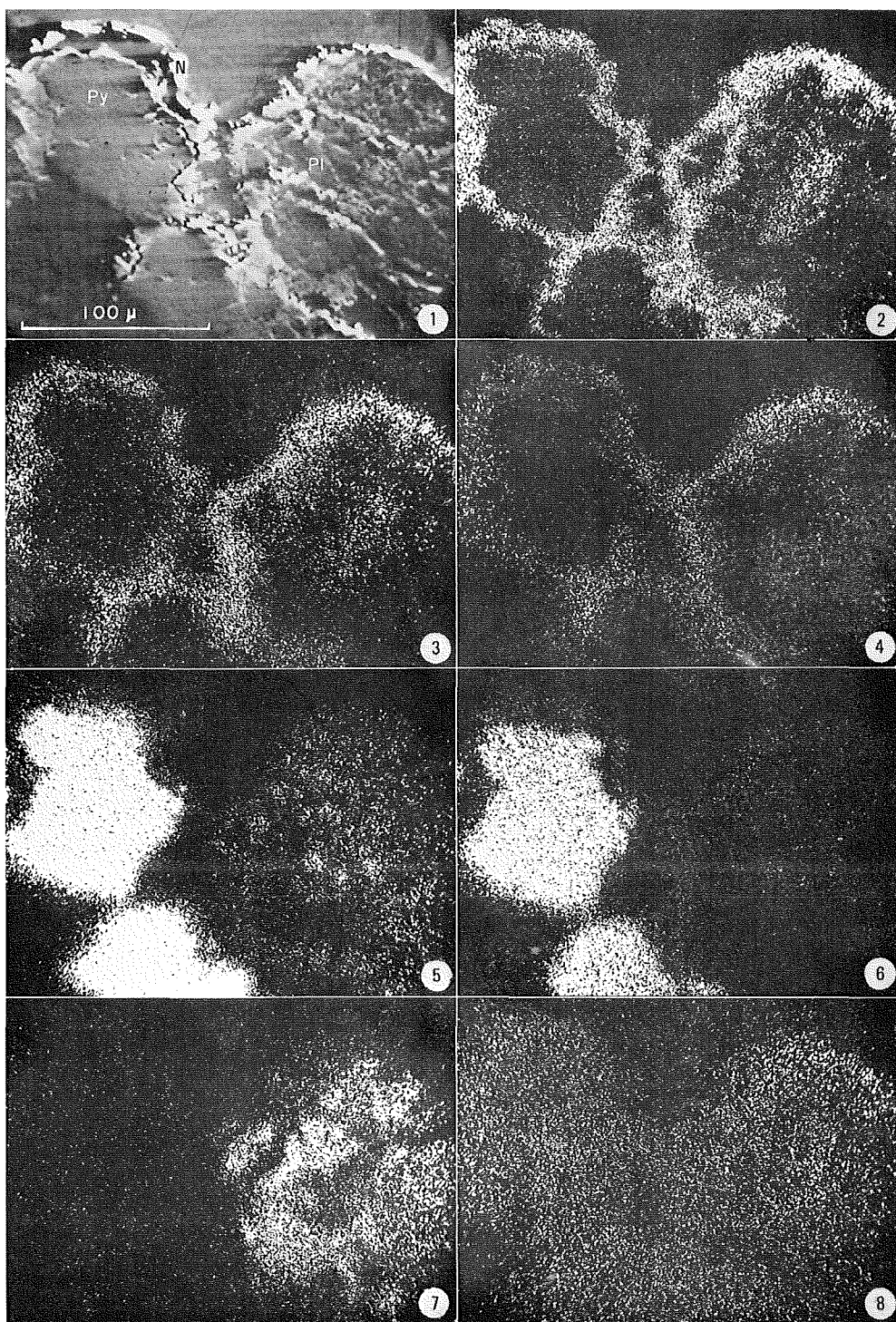


Plate 1

## Plate 2

- 1 珪化木中のリンカイウラン石，ペーター  
ウラノフェン，ウラノフェン，オパール，  
神倉鉱床 2 号坑 W 2
- 2 同上  
紫外線照射による螢光発生
- 3 炭質物と非酸化帯の関係  
炭質物には人形石が存在し，母岩の砂岩  
層は一部酸化が始まり，黄鉄鉱の褐鉄鉱化  
がみられる  
神倉鉱床 2 号坑 KW. K31
- 4 人形石，黄鉄鉱と共存するウランの硫酸  
塩鉱物（ジッペル石，ウラノピル石など）と  
鉄の硫酸塩鉱物（メランテライト，ハロト  
リカイトなど）  
神倉鉱床南 1 号坑 W 6
- 5 電子顕微鏡写真 モンモリロナイト（熱  
水性起源）方面鉱床 KG
- 6 電子顕微鏡写真 加水ハロイサイト（熱  
水性起源）  
奥津カオリン OK-7
- 7 電子顕微鏡写真 アロフェン，加水ハロ  
イサイト（堆積性起源）  
方面鉱床 KC
- 8 電子顕微鏡写真 濁沸石（熱水性起源）  
奥津カオリン OK-4

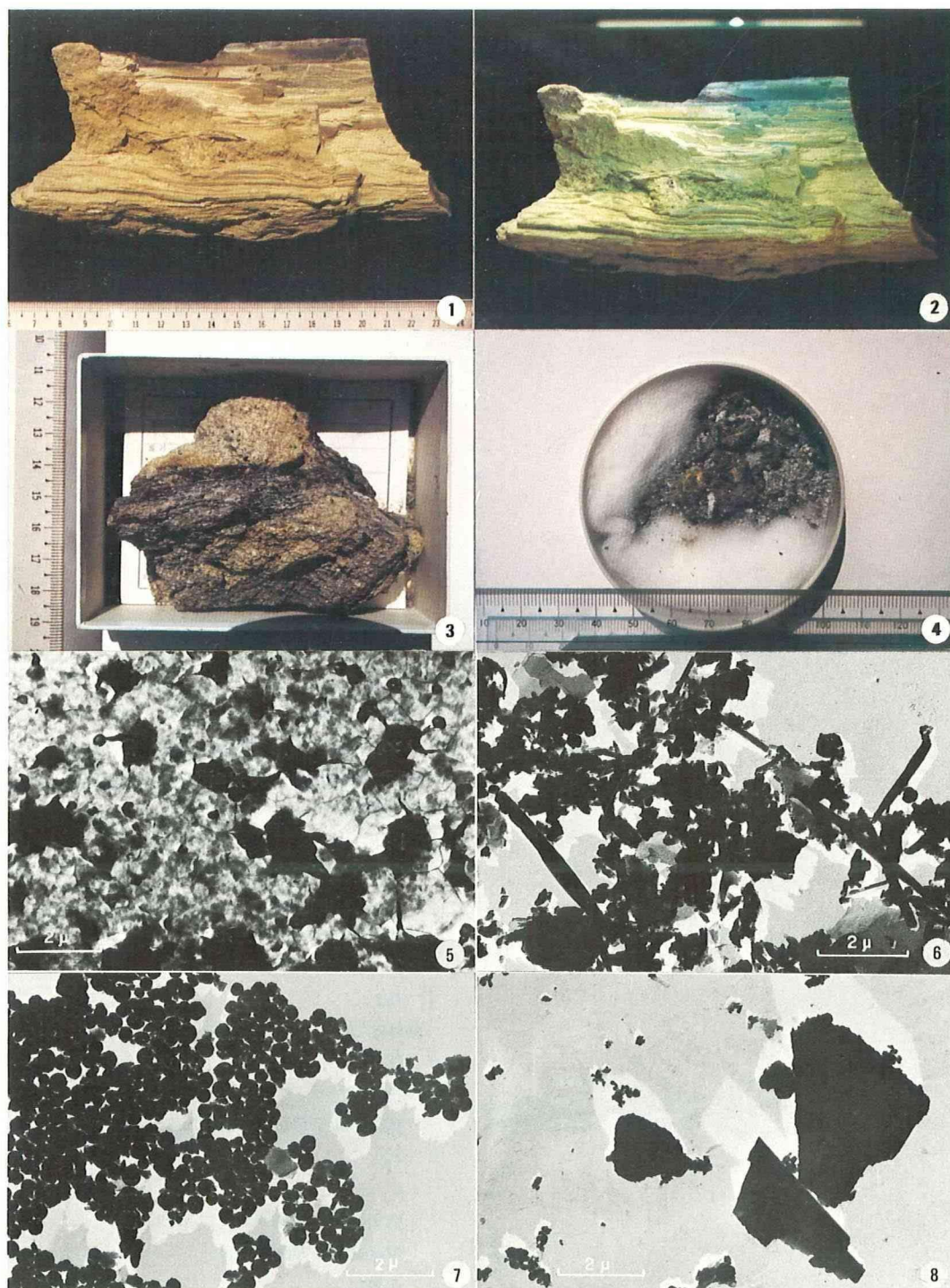


Plate 2

*Plate 3*

- 1 酸化帯，アルコーズ砂岩中のリンカイウラン石と褐鉄鉱化の関係，褐鉄鉱化は地下水面に規制されて水平に濃集する。麻畑鉱床 KW 0-7
- 2 同上  
紫外線照射による螢光発生
- 3 珪化木中に濃集するリンカイウラン石  
ウラノフェン，オパール  
神倉鉱床 2 号坑 KW・K26
- 4 同上  
紫外線照射による紫外線発生
- 5 珪化木を交代するリンカイウラン石，  
ペーターウラノフェン  
麻畑鉱床 2 号坑 W 9-2
- 6 同上  
オートラジオグラフ，露出 7 日間
- 7 珪化木の顕微鏡写真，（植物組織）  
神倉鉱床 2 号坑 W 2
- 8 人形石  
峠鉱床 W15



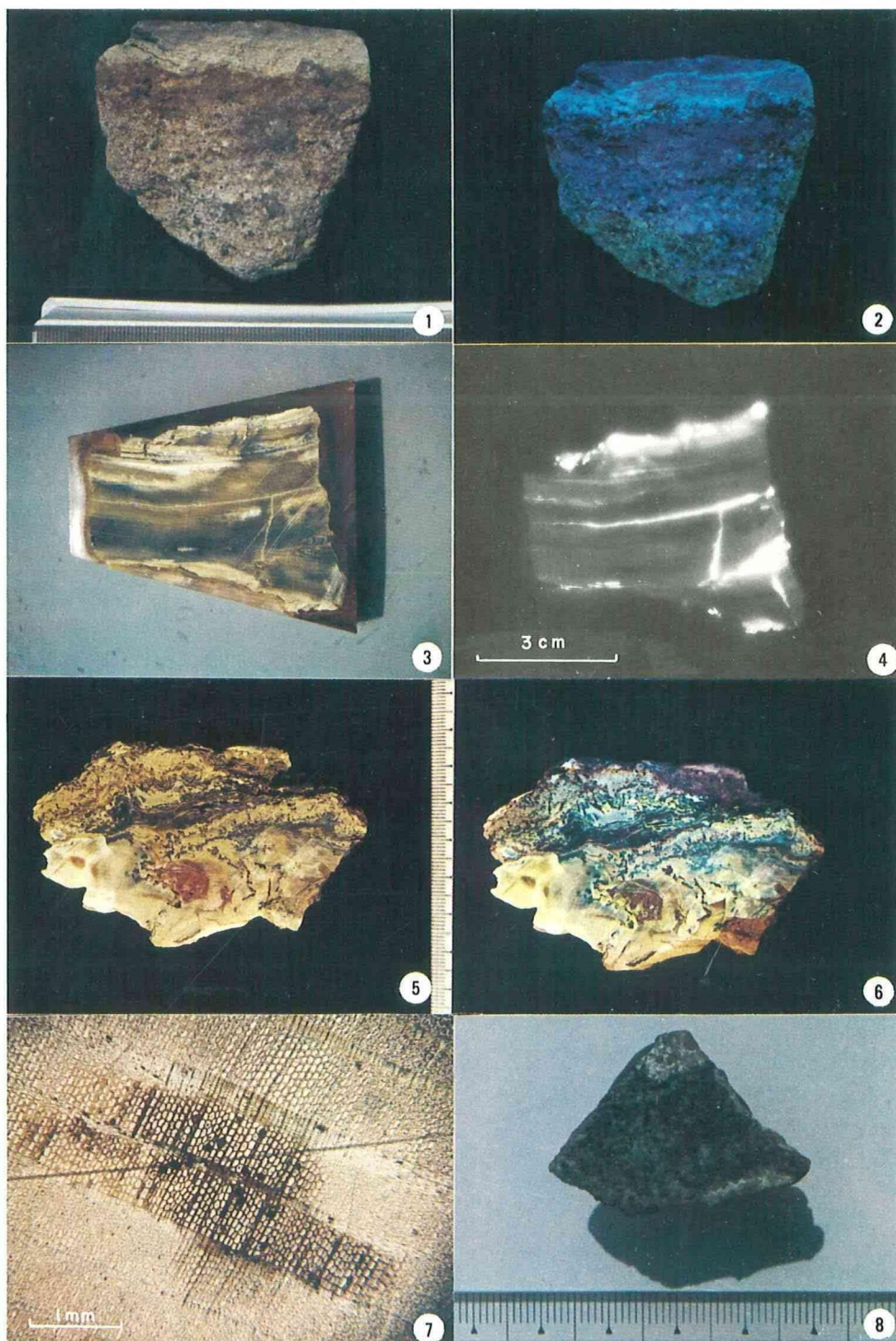


Plate 3