

## 鳥取県小鴨鉱山の含ウラン鉱床、とくにコッフィナイトの同定と産状について

浜地 忠男\* 関根 良弘\* 石原 舜三\*

## Uraniferous Ore Deposits at the Ogamo Mine, Tottori Prefecture, with Special References to the Identification and Occurrence of Coffinite

by

Tadao Hamachi, Yoshihiro Sekine &amp; Shunsō Ishihara

## Abstract

The Ogamo mine is noted for the second discovery of the hypogene uranium mineral in metallic ore deposits in Japan next to the occurrence of zeunerite in the pneumatolytic vein deposits of Miyoshi mine.

The uranium mineral of the mine was identified as coffinite,  $U(SiO_4)_{1-x}(OH)_{4x}$ , by the X-ray powder diffraction pattern, X-ray fluorescence analysis, nuclear emulsion technique, and optical properties under the transmitted and reflected light. The etch test under the reflecting microscope was also carried on.

The coffinite may be a tetragonal mineral of zircon type, and the X-ray powder diffraction pattern shows that the main lines, 3.47Å, 4.66Å and 1.795Å, and the unit cell dimension of  $a=6.94\text{Å}$  and  $c=6.26\text{Å}$  of the mineral concerned coincide well with those given by L. R. Stieff, T. W. Stern and A. M. Sherwood, and others.

The deposit of the Ogamo mine occurs in argillized shear zone in medium-grained biotite granite, and arsenopyrite dissemination zone and fissure-filling sulphide bearing quartz vein develop partly in the shear zone.

The deposit is assumed to have been formed in late Cretaceous or early Paleogene age with close genetical relation to aplitic biotite granite which intruded into the medium-grained biotite granite near the mining area.

The biotite granite of both walls suffered the variable grade of hydrothermal alteration; argillization, chloritization and silicification.

The coffinite is detected only in the arsenopyrite dissemination zone, in which the coffinite, together with bismutite (?), cements, penetrates and replaces the grains and fragments of arsenopyrite and quartz. The fact may prove that the arsenopyrite and coffinite are deposited in the earlier stage of the whole mineralization of the deposits. On the other hand, no radioactive primary minerals are yet found in the later stage sulphide-quartz vein which is composed of a small amount of pyrite, chalcopyrite, sphalerite and galena, and quartz gangue. The occurrences of gold and silver minerals are not proved in the present study. No other radioactive minerals of hypogene or supergene origin, beside coffinite, have yet been identified in any part of the deposit, though autunite- and torbernite-like minerals have been found in the waste of the mine.

The radioactivity detected in the argillized shear zone may be caused by the secondary sorption of uranium element or compounds in clay minerals of the shear zone.

## 要 旨

小鴨鉱山は、鳥取県倉吉市小鴨<sup>ナギノ</sup>字菅原にあつて、昭和18年まで金を目的に稼行された。昭和30年9月に、当鉱山の鉱石から放射能異常が確認され、地質調査所の調査班によつて、詳細な地質鉱床調査が行なわれたが、ウラン鉱物の存在の有無、および賦存状態については、未

解決であつた。

鉱床は、白堊紀末期ないし古第三紀に貫入したと推定される中粒黒雲母花崗岩中に胚胎し、粘土化破碎帯、このなかに部分的に賦存する石英脈、および硫化鉱物鉱染帯からなる。従来の調査から、粘土化破碎帯を主とする部分の塊状試料のウラン含有量は、0.03~0.14%Uのものが多いが、石英脈および鉱染帯は、粘土化破碎帯よりもかなり高い放射能強度を示す場合が多い。

\* 鉱床部

現在まで坑外の廃石中に、燐灰ウラン鉱の存在が認められただけで、坑内からは、早瀬一によりラジオコロイドの存在が確認されたにすぎなかつたが、硫化鉱物鉱染帯からコッフィナイト [Coffinite,  $U(SiO_4)_{1-x}(OH)_{4x}$ ] を同定した。コッフィナイトの分離は、非常に困難であるが、不純試料についてX線粉末回折、X線蛍光分析、研磨片および薄片による光学性および腐食試験、および $\alpha$ 飛跡による放射能強度によつて、コッフィナイトと同定された。コッフィナイトは、硫砒鉄鉱と密接に共生し、硫砒鉄鉱や石英の破片を充填して、微粒な集合体をなして産出する。コッフィナイトそのものの生成条件については、現状では詳細には研究されていないが、小鴨鉱山の鉱床では、コッフィナイトは硫砒鉄鉱よりは後期であるが、石英脈の主要構成鉱石鉱物である閃亜鉛鉱・方鉛鉱・黄鉄鉱あるいは黄銅鉱よりは、早期に晶出したものと推定される。

## 1. 緒言

昭和29年8月、岡山県三吉鉱山の錫タングステン石英脈において、わが国最初の金属鉱床におけるウラン鉱物(二次的生成の砒銅ウラン鉱)が発見されたのに次いで、昭和30年夏に、鳥取県小鴨鉱山含金石英脈鉱床から、顕著な放射能異常が報ぜられ、著しい注目を浴びるに至つた。同年夏から秋にかけて、同鉱床および周辺地区の地質・鉱床の概査が、地質調査所によつて実施されたが、地質・鉱床の概況の把握と、品位・鉱量の推定のための放射能強度の測定に、調査の重点がおかれた結果、鉱床の詳細な性質を把握し、かつ放射性鉱物を同定するまでには至つていながつた。今回、筆者らは、小鴨鉱山の鉱脈の鉱床学的な性質を明らかにし、放射性鉱物同定のための十分な試料を得るために、昭和31年11月6日から16日に至る11日間、本鉱山および周辺鉱床の調査を行なつた。採取した試料を、種々の方法により試験の結果、本鉱山の放射性鉱物の主体は、初成ウラン鉱物のコッフィナイト [Coffinite,  $U(SiO_4)_{1-x}(OH)_{4x}$ ] であることが決定された。

今回の調査、研究にあたり、X線の実験において助言を与えられた大津技官、鉱石研磨片作成の便宜を与えられた東大工学部今井秀喜助教授、X線回折試験および蛍光分析試験に際し、便宜を与えられた理学電機株式会社、諸種の測定・実験に援助された磯沼司郎氏、ならびに現地において便宜を与えられた鉱業権者石坂清福氏<sup>註1)</sup>、原子燃料公社倉吉出張所長中村宏氏および同所所員の各位に厚く感謝する。

註1) 鳥取県東伯郡関金町

## 2. 位置および交通

小鴨鉱山は、岡山県倉吉市小鴨字菅原にあつて、菅原部落の北東方約500mの地点に位置している。

本鉱山に至るには、山陰本線<sup>あけい</sup>上井駅から分岐する倉吉線の倉吉駅から南方約10km、または同線の上小鴨駅から南東方約7km、道路良好で、トラックを通ずるが、バスの便はない(第1図)。

## 3. 沿革および現況

本鉱山発見の端緒は、大正10年の風水害の際に、鉱床の露頭が発見されたときに始まる。昭和2年に現鉱業権者によつて若干の小規模な探鉱が行なわれた。引続き小鴨本鍾に沿う鍾押坑道が掘進され、昭和18年金山整備令により帝国鉱業開発株式会社の所有となつて、休山に至つた。そのときまでに金銀鉱石若干(最高、Au 30g/t, Ag 90g/t)を出鉱した。第二次世界大戦後、現鉱業権者の手に返つたが、休山のまゝこんにちに至つている。

現鉱業権者の談話によれば、ウラン鉱発見の経緯は次のようである。すなわち昭和初年のラジウムラッシュの頃、昭和4年に現鉱業権者が島田林太郎を通じて、藤原銀次郎に依頼して、小鴨本鍾鉱石のラジウム存否の試験を行なつたことがある。昭和29年以来、わが国における放射性鉱物資源の調査が行なわれるに及んで、昭和30年3月現鉱業権者が、東善作を通じ、同年6月アメリカ人Hopkinsに依頼して小鴨本鍾鉱石の放射能異常の試験を行なつたところ、放射能異常の存在を確認することができた。よつて東善作が、本鉱山本鍾の黄鉄鉱・閃亜鉛鉱・粘土からなる鉱石試料を、昭和30年7月に地質調査所鉱床部に持込み、放射能測定の結果、顕著な放射能と、定性分析の結果、ウラン元素の存在とをふたたび確認した。

## 4. 地質および鉱床の概況

### 4.1 地質概説<sup>註2)</sup>

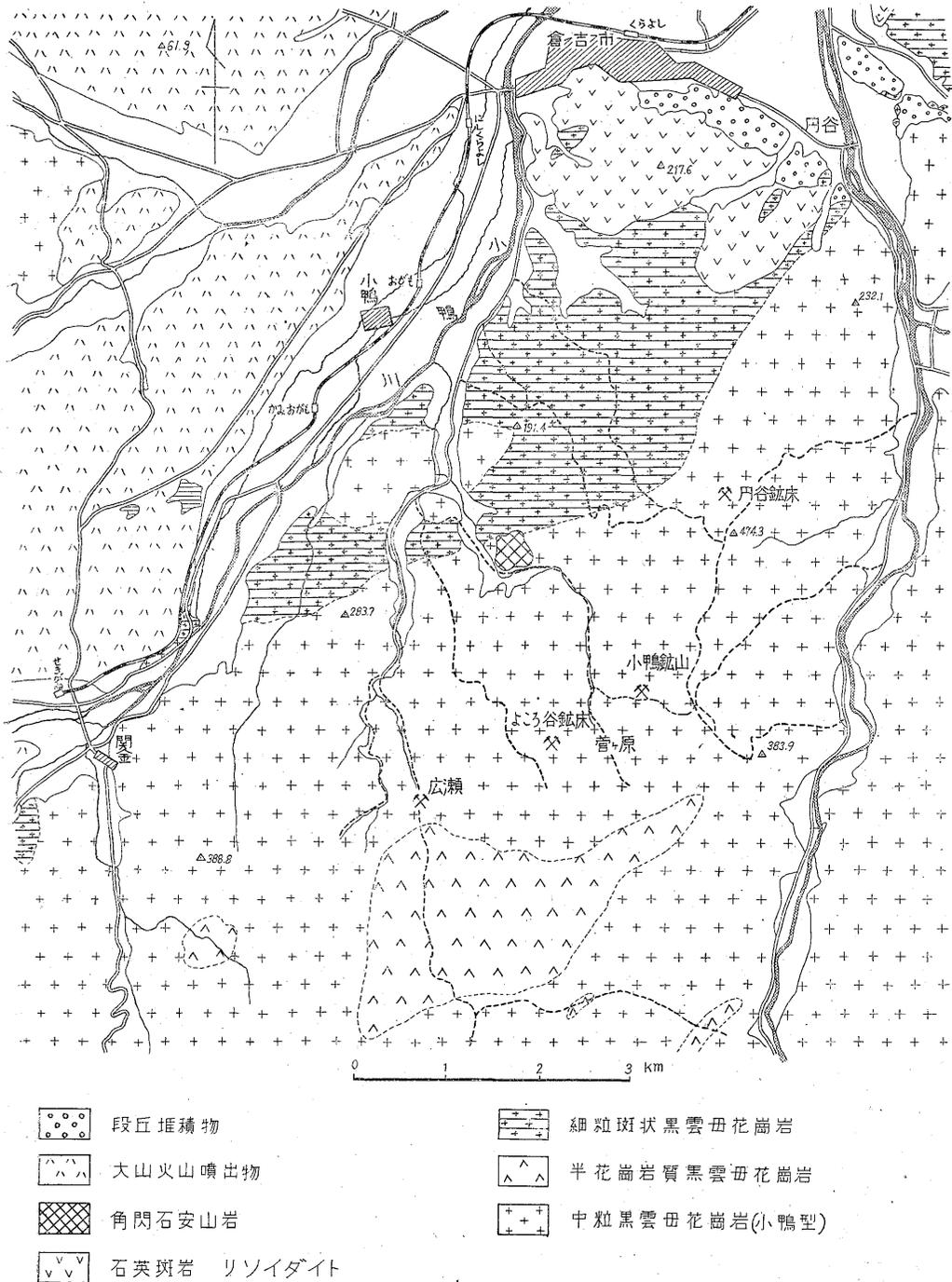
小鴨鉱山を含む地域は、倉吉市街の南方にあつて、北北東方に流れる小鴨川と、北方に流れる竹田川に挟まれる地帯で、標高500m前後の低平ではあるが、峻立する山からなつている。

本地域の地質は、主として花崗岩質岩からなり、第1図のような分布を示す。

花崗岩質岩石には3種類あり、中粒黒雲母花崗岩・半花崗岩質黒雲母花崗岩・細粒斑状黒雲母花崗岩に分類することができる。中粒黒雲母花崗岩<sup>註3)</sup>は、地域の大半

註2) 主として倉吉地質図幅調査中の村山正郎の談話による。

註3) 小鴨型花崗岩と称されている。



第1図 小鴨鉱山附近の地質図 (村山正郎による)

を占めて南部に分布し、その南部においては、中粒黒雲母花崗岩を貫ぬいているものと考えられる半花崗岩質黒雲母花崗岩が、巨大な岩株状をなして分布している。

この半花崗岩質黒雲母花崗岩の北縁部に沿つて、自然数よりもやゝ高い岩石の放射能が検出されている。細粒

斑状黒雲母花崗岩は、地域の北西部を占め、中粒黒雲母花崗岩を貫ぬいているものと考えられている。

以上の花崗岩質岩石を貫ぬいて、岩株状の角閃石安山岩が、岩倉の南東の城山の山体を構成し、倉吉市の南部において、前記細粒斑状黒雲母花崗岩を被覆して石英斑

岩・リソイダイトおよび段丘堆積層が分布する。

放射性鉍物を産する小鴨鉍山の鉍床およびその他の鉍床は、いずれも中粒黒雲母花崗岩中にある。

これらの花崗岩質岩石の時期的相互関係は詳かでないが中粒黒雲母花崗岩は、半花崗岩質黒雲母花崗岩および細粒斑状黒雲母花崗岩に貫ぬかれるが、後2者相互の前後関係は明らかでない。これらの岩石は、いずれも白堊紀末期ないし古第三紀に貫入したものと推定されているが、確かな時期は不明である。

#### 4.2 本地域の鉍床

本地域に分布する放射能異常を示す鉍床は、小鴨鉍山のほかには、円谷(ねこまた)鉍床・よころ谷鉍床および広瀬鉍床がある註4)。

小鴨鉍山本鍾鉍床については、後で詳しく述べるが、本鉍床は、中粒黒雲母花崗岩中の破碎粘土帯と、このうちの石英細脈からなる1条の鉍脈鉍床である。かつて金鉍として小規模に採掘されたことがあるが、主要富鉍部は1カ所で、地並坑道以上約10m間が採掘されたにすぎない。金鉍脈としては、すでに採掘済とみなされるべき貧鉍床である。

円谷鉍床は、昭和31年8月に丸山修司・土井啓司によって発見された鉍床で、倉吉市円谷から南南東約4.5kmにあり、小鴨鉍山の北北東方約2.5kmにあたる。鉍床は小鴨鉍床に類似し、中粒黒雲母花崗岩中の破碎帯とそのうちの石英細脈で、破碎帯の走向N50~55°NE、傾斜ほぼ垂直、走向延長約90m以上、2×2.5mのピットと6条のトレンチにより確認されている。破碎帯の幅は、ピットにおいては約1.5mであるが、膨縮がはなはだしい。破碎帯は、SE方向へ約70~80°傾斜し、褐鉄鉍で汚染された、弱粘土化中粒花崗岩を両盤とする破碎帯中には、淡桃色の緑泥石化花崗岩片の間を満たして著しく粘土化された部分があり、微粒土状の輝水鉛鉍の鉍染色と、径数cm程度の石英の小塊を伴なう。この破碎帯のなかを、幅5~15cmの石英脈が貫ぬいている。この石英脈中には、少量の黄鉄鉍・閃亜鉛鉍・方鉛鉍が産出する。

強度の放射能異常を示す部分は、粘土化した破碎部で、最高0.45 mR/HR (Detectron DS-235型による)の数値を示す。強放射能鉍物註5)は、黒色煤状の薄膜および

註4) 小鴨鉍床は、最近探鉍中の原子燃料公社により、歩谷鉍床と命名され、円谷鉍床・よころ谷鉍床の3鉍床を併せて倉吉鉍山と称されている。

註5) この鉍物のX線粉末回折像は得られなかったが、物理的性質・光学的性質およびオートラジオグラフによる放射能強度分布は、コッフィナイトに一致している。その後坑道探鉍中に得られた試料について試験の結果、昭和32年7月にX線粉末回折像から、コッフィナイトであることが同定された。これについては別に報告される予定である。

小塊で、石英・粘土および微細な鱗片状の輝水鉛鉍および黄鉄鉍の微粒を伴なう。

よころ谷鉍床は、菅原部落の南西方約500mにあり、広瀬鉍床は、広瀬部落の南方約2.5kmにあつて、いずれも昭和30年11月地質調査所の調査班により、小鴨鉍床の南西方走向方向地帯を調査中に発見されたものである。前者は、中粒黒雲母花崗岩の、やゝ風化した部分に賦存する燐銅ウラン鉍(Torbernite)の鉍染鉍床で、昭和31年8月に探鉍坑道が開坑された。後者は、中粒黒雲母花崗岩中に存在する、暗褐~黒色の直径2~3mに達する捕獲岩様岩塊群である。この鉍床の放射能異常の実態に関しては、まだ不明である。

#### 5. 調査・研究の経過

小鴨鉍山における放射能異常が、昭和30年夏に確認されて以来、同鉍床に対する坑内外の地質鉍床ならびに放射能測定調査註6)は、地質調査所の木村・中沢・菊池・高瀬・井上・丸山らによつて行なわれてきた。これらの調査結果は、追つて報告される予定であるが、地質鉍床の調査ならびに放射能強度の測定に重点がおかれ、鉍床および鉍石の鉍床学的な研究ならびに放射性鉍物の同定にまでは至らなかつた。本鉍床は、粘土化破碎帯を主とする鉍脈であるために、放射性鉍物は、肉眼的には確認されず、調査の初期においては、鉍脈が強度の放射能異常を示し、かつ採取サンプルが最高0.14%Uの品位を示すにもかかわらず、放射性鉍物の実在が疑われ、粘土にウランが取着されているのではないかと考えられたりまたは人工的に含ウラン溶液が撒布注入されたのではないかと疑われたこともあり、含ウラン鉍物の決定は、きわめて重要な急務となつていた。

筆者らは、前調査者の調査資料をもとにして、小鴨鉍山の鉍脈で、とくに高い放射能強度を示す4部分を計数器註7)により確認し、縮尺1/10のスケッチを行ない、計数器に高い放射能強度を示す鉍脈の部分の試料を採取した。採取した鉍石試料から、顕微鏡薄片ならびに研磨片を製作して放射性鉍物の所在を確かめるとともに、とく

註6) これらの調査に使用された放射能測定計数器は、カナダ製 Scintillometer Model 963, オランダ Philips 社製 Pocket Battery Monitor, 神戸工業製 Surveyrometer SM 6, 医理学研究所製 DC-P3型ガイガーカウンターである。

註7) 使用した計数器は、Detectron Corp. 社製 Scintillation type の Detectron DS-235型 (結晶燐光体 NaI 1 1/2" × 1", 測定条件 time constant 2秒, full scale 0.5 mR/HR, 密着) と医理学研究所製 DC-P3型(β線用)である。倉吉市内における background count は Detectron 0.01 mR/HR, DC-P3型 37 cpm 程度である。

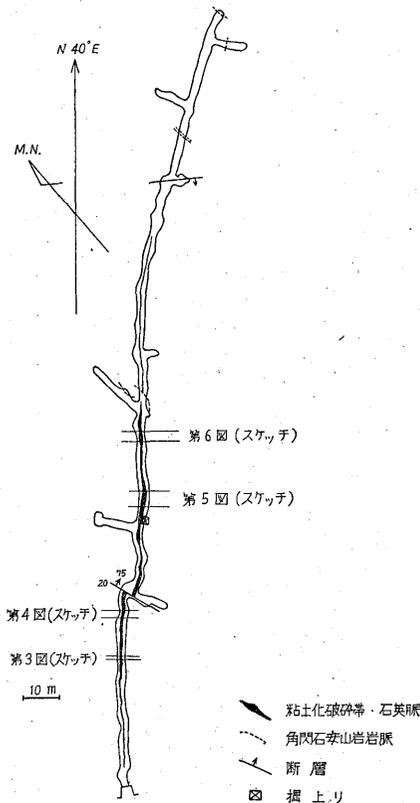
に高放射能部を -150 ないし +200 mesh 程度に粉碎して選別し、諸種の試験のための濃集試料を得た。

## 6. 小鴨鉱床の性質

### 6.1 小鴨鉱床の規模・性状(第2~6図参照)

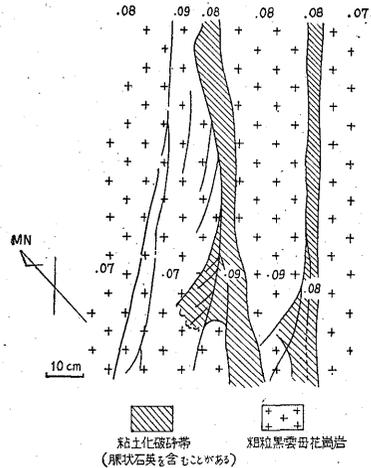
小鴨鉱山の本鍾鉱床は、中粒黒雲母花崗岩中の粘土化破碎帯と、この破碎帯中に部分的に賦存する石英脈であつて、一般走向 N 40~45°E、傾斜 70~90°NW、走向延長約 140 m、傾斜延長は、金鉱富鉱部で約 15 m、脈幅は最大 70~80 cm、平均 30 cm である。

本鉱脈は、剪断・破碎された中粒雲母花崗岩片とこれらの間を満たす灰白色~灰褐色の粘土からなり、すべり面または小規模の走向断層に沿つて灰黒色の粘土帯が発達している。本鍾の上盤際、または下盤際に沿つて、幅 1~15 cm の石英細脈が、破碎帯または粘土帯中を走り、または粘土化破碎帯に脈状をなす石英塊が点在している。



第2図 小鴨鉱山坑道図

粘土化破碎帯を切つて角閃石英安山岩が5カ所に認められ、そのあるものは、破碎帯中を走る小規模な走向断層によつてさらに変位しており、破碎帯形成の運動が鉱床形成後にも、引続いて行なわれたことを示している。



第3図 小鴨本鍾スケッチ(1)

### 6.2 構成鉱物と母岩の変質作用

本鍾形成のおもな変質作用は、粘土化作用であつて、粘土化破碎帯の粘土は、絹雲母およびモンモリロナイトであり、部分的に少量の緑泥石を伴なう。本盤の花崗岩は、絹雲母化・モンモリロナイト化・緑泥石化・赤鉄鉱化・珪化などの変質作用を受け、珪化作用は、とくに石英細脈の存在する附近において著しい。

鉱脈は構造的に、粘土化破碎帯、石英細脈、硫砒鉄鉱-石英鉱染帯の3部分に分けられるが、全般的に金属鉱物はきわめて少量であつて、硫砒鉄鉱染帯のおもな金属鉱物は硫砒鉄鉱で、少量の黄鉄鉱を伴なう。石英細脈は黄銅鉱・黄鉄鉱・閃亜鉛鉱・方鉛鉱を伴なうが、それらの量は少なく、また硫砒鉄鉱は認められない。

金鉱石富鉱部を採掘した当時における品位は、Au 10~30 g/t、Ag 30~90 g/t と伝えられており、金および銀鉱物の産状は明らかにしえなかつたが、主として硫化物石英脈中に含まれるものと思われる。

### 6.3 放射能強度と鉱脈の構造

粘土化破碎帯と石英細脈からなる本鍾は、走向延長約 140 m に達し、自然数の数倍以上の放射能強度を示す部分は、坑道総延長(約 250 m)にわたつて認められる。これは鉱床中に含まれているウラン元素、およびそれに由来する崩壊元素によるものである。とくに高い放射能強度を示す部分は、第2図中に示したようにスケッチを行なつた部分(第3~6図)であつて、粘土化破碎帯中に前記の石英脈を伴なう部分のみが、常にきわめて高い放射能強度を示している。

第3~6図のスケッチからも明らかのように、硫砒鉄鉱染帯が、最も高い放射能強度を示し、粘土化破碎帯がこれに次ぎ、石英細脈自身は、前2者に較べて低い数値しか示さない。これら各部分の放射能強度の概数は、

第1表に示す通りである。

従来の鉱床概査におけるウランの品位分析によれば、粘土化破碎帯を主とする部分の、塊状試料のウラン分析値は、0.03~0.14%U程度のもが多く、鉱染帯・石英細脈については分析を行なっていないために明らかでないが、第1表の数値からみても、かなり高いウラン含有

量を示すものと思われる。

放射能源であるウラン鉱物とその産状のうち、鉱染帯のウラン鉱物については後述するが、粘土化破碎帯の放射能源と考えられるウラン鉱物については、まだ確認されていない(註8)。

7. 放射性鉱物の分離と同定

7.1 放射性鉱物の分離

坑内における測定ならびに採取試料について、最も高い放射能強度を示すものが、硫砒鉄鈷鉱染帯であることを確かめたので、本帯の試料から、研磨片・研磨薄片を製作し、オートラジオグラフィによつて放射性鉱物の存在を確認した後に、鈷染帯採取試料のなかでなるべく放射

註8) 粘土化破碎帯のウランは、その大部分が粘土鉱物に吸収または吸着されているものと考えられる。ただし、本鍾脈の研からは、燐灰ウラン鈷様鉱物および燐銅ウラン鈷が発見されており、また最近実施されている本鍾下部向立入探鈷坑道中で発見された、同様な粘土化破碎帯からなる上盤側平行脈においても、燐灰ウラン鈷が発見されている。

第1表 小鴨鉱山本鍾各部分の坑内における放射能強度

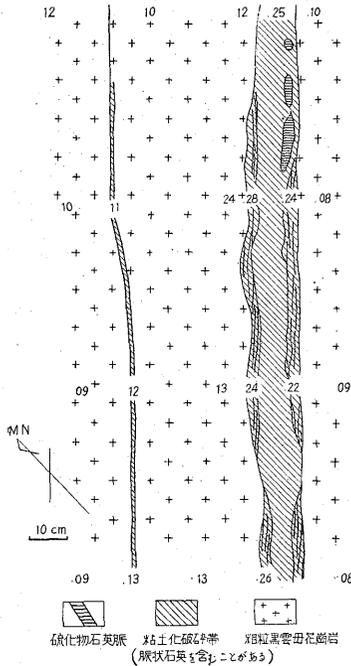
	放射能強度(mR/HR)
(上盤) 中粒黒雲母花崗岩	0.07 ~ 0.11
硫砒鈷物鈷染帯	0.14 ~ 0.42
硫化鈷物石英細脈	0.13 ~ 0.28
粘土化破碎帯	0.08 ~ 0.31
暗色粘土帯	0.11 ~ 0.25
(下盤) 中粒黒雲母花崗岩	0.07 ~ 0.16

註) ある程度の指向性を有する Detectron による密着測定値。ただし測定値には空気中のラドンによる放射能の影響が含まれている。測定地点における坑道中央にて坑口へ向かつての水平方向での測定値は 0.08~0.11 mR/HR に達している。

第2表 Coffinite の X線粉末回折線

A				B		C		D (Ogamo)				
d(Å) (meas.)	I	d(Å) (calc.)	hkl	d(Å)	I	d(Å)	I	d(Å)	I	Mineral component		
4.66	S	4.66	011	10.39	10	4.62	Ms	4.66	25	Coffinite		
				4.62	1b						4.26	37
				4.24	4*						3.73	30
				3.86	1						3.67	30
3.47	S	3.47	200	3.46	4	3.48	S	3.47	34b	Coffinite, Bi		
				3.336	8*						3.34	100
				3.173	2						3.22	28
				2.901	6b						3.14	30
				2.761	2						2.96	64
2.78	W	2.78	121	2.761	2	2.73	38b	2.73	38b	Bi		
											2.64	M
2.64	M	2.65	112	2.665	1	2.64	M	2.67	69	Ars		
				2.597	3							
2.46	F	2.45	220	2.453	6*	2.44	64	2.44	64	Ars		
				2.225	2*						2.28	18
2.18	W	2.17	031	2.125	5*	2.21	22	2.21	22	Bi		
				1.987	3*						2.13	18b
2.01	F	2.01	013	1.987	3*	1.943	20b	1.943	20b	Bi		
				1.841	321						1.821	44
1.841	W	1.841	321	1.805	3b*	1.80	M	1.795	23	Coffinite		
											1.801	312
1.737	W	1.740	123	1.735	400	1.636	40	1.636	40	Ars		
											1.629	411
1.556	F	1.552	420	1.537	6	1.544	22	1.544	22	Ars, Q		
				1.451	332						1.376	3*
1.451	F	1.452	332	1.376	3*	1.229	2	1.229	2	Ars, Q		
				1.435	024						1.182	1

- A: Coffinite, Arrowhead Mine, Gateway Mining District, Mesa County, Colorado, (Stieff, Stern, and Sherwood, Am. Min., Vol. 41, 1956)
  - B: Carbonized wood, Carlile deposit, Crook County, Wyoming, (Bodine, USAEC, Ann. Rept., 1954) Cu/Ni, \* は一部または全部石英の回折線
  - C: Coffinite, (Weeks and Thompson, USGS, TEI, Rept., 334, 1953, Bodine の文献による)
  - D: Coffinite, Ogamo Mine, Ogamo, Kurayoshi City, Tottori Pref., Cu/Ni
- Q: Quartz, Bi: Bismutite, Ars: Arsenopyrite



第4図 スケッチ(2)

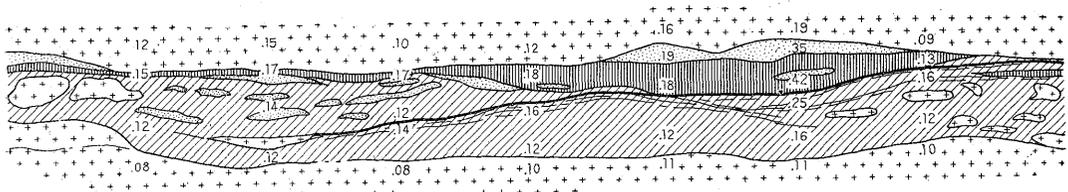
能強度の高いものを集めて，150~200 mesh 程度に粉碎し，まず superpanner で選別した。Pan 上においては硫砒鉄鉱を主とする硫砒化鉱物粒が，head の部分に集まり，放射能強度は，第1 middling の部分が最も高く第2 middling 部でもかなり高く，tailing 部では低い。

このことから放射性鉱物は head よりも middling 部に濃集されていることと，放射性鉱物の比重は，硫砒鉄鉱(約6.0)よりも軽く，非金属鉱物よりも重いことがわかる。煤状の微粉が使用流水面上を浮遊するため，濃集度と実収率は，必ずしも良くないようである。150 mesh よりも粗粒粉では単体分離が悪く，また200 mesh よりもさらに微粉においては浮遊するものが多いために，濃集度と実収率はさらに低下するようである。superpanner でできる限り濃集した粉末試料を，次に分液漏斗において Clerici 溶液により分別した。分離度は必ずしも良くないが，硫砒化鉱物をできる限り除き，乾燥した後にさらにフランス社製 Isodynamic Separator (0.5~0.3 A) にかけて選別濃集を行なつたが，これも必ずしも有効ではなかつた。これらの操作を経て最終的に得た試料は，ほぼ15% U 相当の放射能強度を示したが，なお硫砒鉄鉱その他の不純鉱物を含有している。

### 7.2 X線粉末回折試験

上記分離試験によつて得た濃集粉末試料を，自記X線回折装置(理学電機株式会社製 Geigerflex)により，X線粉末回折試験を行なつたところ，第2表Dに示す結果を得た。

X線粉末回折像からも明らかなように，試料にはなおかなりの不純鉱物の含まれているのが認められるが，第2表に示した既知のX線粉末回折像の資料ともよく一致しており，主要な3回折線(4.66 Å, 3.47 Å, 1.795 Å)<sup>註9)</sup>から小鴨鉱山の放射性鉱物は，X線分析的には，既知の



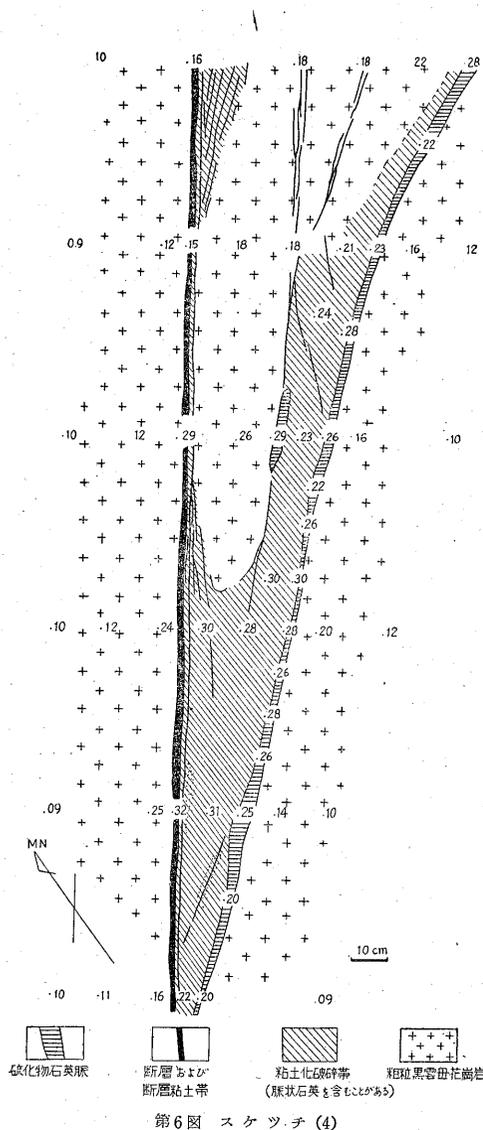
### Explanation

-  Au-Ag-sulfide-quartz vein
-  Impregnation zone chiefly consisted of arsenopyrite
-  Argillized sheared zone
-  Medium-coarse grained biotite granite
- 17 Measured radioactive intensity (m/hr) by Detectron Ds. 235
-  Fault

Scale  
0 0.5 1m

Nov. 1956. Mapping after Y. Sekine, T. Hamachi & S. Ishihara

第5図 スケッチ(3)



第6図 スケッチ (4)

コッフィナイトと完全に一致する。元来コッフィナイトの同定は、きわめて困難なものであつて、Stieff, Stern および Sherwood<sup>7)</sup>の研究によつても、同定のためにはX線粉末回折試験が最善の方法とされている。また小鴨鉱石の3個の濃集試料について行なつた結果でも、4.66 Å および 3.47 Å の主要回折線は常に認められ、小鴨試料の再現性のあることは明らかである。

コッフィナイトは、すでに Weeks および Thompson Stieff et al.<sup>7)</sup>らによつて、正方晶系ジルコン型の結晶構造と同じ結晶構造をもっているものとされており、それに従つて、格子恒数を計算すると、第3表のようになり、小鴨鉱山産コッフィナイトの格子恒数は、Arrowhead 鉱山産のものによく一致している。

### 7.3 X線蛍光分析試験

後に詳しく述べるが、ジルコン型の結晶構造を有し、ウランおよびトリウム、あるいはウランまたはトリウムを主成分とする珪酸塩鉱物には、thorite, thorogummite uranothorite などがあり、コッフィナイトと同定されるためには、ウランが主成分であつて、トリウムの存在しないことが必要とされる。したがつて、前記X線粉末回折試験に用いた試料を、そのままX線蛍光分析による定性分析試験に供した。その結果を第4表および第7図に示す。Wは管球からくるものであり、As, Bi, Pb, Uは試料中に含まれるものである。問題のThについては、Th  $L\alpha_1$  は、0.956 Å であり、Bi  $L\beta_1$  のやゝ高角度の方に peak が表われるので、この程度の精度では、 $2\theta = 27.45^\circ$  の peak が果して Bi であるか、Th であるかはなかなか識別し難い。しかし、Bi  $L\alpha_1$  は、Bi のみの特性であり、Bi  $L\beta_1$  の高角度部は第7図にみられるように、きわめてなめらかである点から (他に Bi  $L\alpha_1$  と Bi  $L\beta_1$  との強度の比率が、Bi のみの試料の場合とほぼ等しい点も考慮して) トリウムはほとんど存在しないと

註9) Geigerflex の $1/10$ 度ごとの stop counting によつて再確認した。

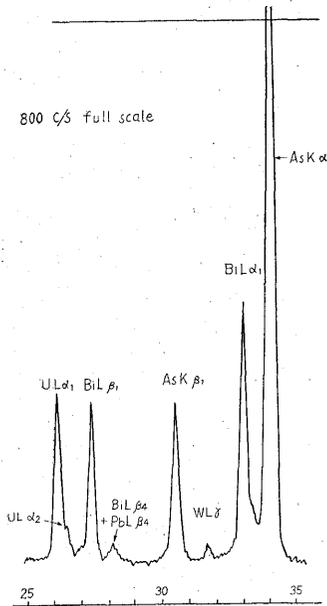
第3表 Coffinite および類似のトリウム珪酸塩鉱物の格子恒数

Mineral	$a_0$ (Å)	$c_0$ (Å)	$a_0 : c_0$	Ref.
Coffinite (Ogamo mine)	6.94	6.26	0.902	Present Study
Coffinite (Arrowhead mine)	6.94	6.31	0.909	
Coffinite (Synthetic)	6.977 kX	6.307 kX		
Thorite (Sicily)	7.03	6.25	0.8857	Frondel (1953) から引用
Thorogummite (Manchuria)	7.08	6.28		
Uraniothorite (New Zealand)	7.12	6.32		
Thorogummite (Texas)	7.068	6.260		
ThSiO <sub>4</sub> (Synthetic)	7.117	6.295*		

第4表 Coffinite (Ogamo mine) の X線蛍光分析試験

Element	2 (observed)	A	I
As K $\alpha$	34.1	1.17714	scale out
Bi L $\alpha_1$	33.1	1.144	400
W L $\alpha_1$	31.7	1.098	40
As K $\beta_1$	30.5	1.057	250
Pb L $\beta_4$		1.007	} 40
Bi L $\beta_4$		0.977	
Bi L $\beta_1$	27.45	0.952	250
U L $\alpha_2$	26.5	0.923	80
U L $\alpha_1$	26.2	0.911	250

(Analyzer, LiF 結晶 (002) 面の反射による。  
Background count: 30 counts per second,  
full scale: 800 c/s)



第7図 小鴨産 Coffinite の X線蛍光分析

考えてさしつかえない。したがって、小鴨鉍山産コッフィナイトには、トリウムは含まれていないことは明らかであろう。

#### 7.4 $\alpha$ 飛跡によるオートラジオグラフィ

顕微鏡下で放射性鉍物の所在を確認し、鉍物中に含まれるウラン、またはトリウムの含有量の概数を知るために、小鴨産放射性鉍物の研磨片を作成し、オートラジオグラフィにより $\alpha$ 飛跡を計算した。

使用乾板は、富士写真フィルム社製オートラジオグラフ乾板(コンタクト用) EM type ET-2E 15 microns で、露出時間は乾板のみで、放射性鉍物の有無を確かめ、 $\alpha$ トラック数を数えるためには2~3日、重ね合せて鉍物と対照して確認する濃度をだすには、約1週間を要し

現像には FD 111 現像液を用いて、約3~7分(18~20°C) 定着には F 5 定着液を用いた。

小鴨鉍山のコッフィナイトのオートラジオグラフを、図版1, 2に示すが、後にも述べるように、きわめて微細な粒度であつて、bismutite・石英その他の鉍物と混在しているために、反射顕微鏡下で研磨面上のコッフィナイトの面積を測定することは、きわめて困難であつた。研磨片数個について、 $\alpha$ トラックを計算した結果、 $T\alpha=30\sim40$ を得た。 $T\alpha$ は、単位面積( $\text{cm}^2$ )、単位時間(秒)当りの $\alpha$ トラック数である。 $\alpha$ 飛跡はいずれも短かく、 $46\mu$ に達するものはなく、また星形の飛跡形を示すものがきわめて少なく、ウラン系列元素の崩壊による $\alpha$ 飛跡と考えられる。放射能平衡状態にあるウラン鉍物の含有ウラン量に対応する $\alpha$ トラック数は、Yagoda<sup>9)</sup>によれば、U1%当り  $T\alpha=1.3$ とされている。コッフィナイトの理論的ウラン含有量は、約80%に近いが、一般には多くの不純物を含み、Arrowhead 鉍山の場合でも  $\text{UO}_2$  46.37~58.60%<sup>10)</sup>で、これからみると  $T\alpha=50\sim65$ 位になるから、前記小鴨鉍山の場合の  $T\alpha=30\sim40$ は少なすぎる数値である。これは研磨片上に $\alpha$ 飛跡の乾板を重ねて、面積ならびに $\alpha$ 飛跡を計量する際に、面積が微小で複雑な構造を示すため測定が困難なことにより、正確な面積の測り難いことか、あるいはまた放射能平衡状態にないことによるものとも考えられる。たゞし、早瀬<sup>11)</sup>によれば、小鴨鉍山鉍石の黄鉄鉍の周辺にある黒色鉍物の $\alpha$ 飛跡は、 $T\alpha=66$ と報告<sup>10)</sup>されている。

#### 7.5 物理的ならびに光学的性質

小鴨鉍山のコッフィナイトは、微細な集合のため肉眼的には識別し難いが、詳細に観察すると、煤黒色を呈し比重は混入不純物のため測定し難いが、硫砒鉄鉍(約6)よりも軽く、石英などの非金属鉍物よりも遙かに重い。Stieff<sup>12)</sup>によれば約5.0とされている。

硫砒鉄鉍鉍染帯におけるコッフィナイトは、鏡下において観察すると、微粒の集合体で、bismutiteの微粒を混え(図版3)、硫砒鉄鉍と石英との境界部に硫砒鉄鉍を縁取り(図版4)、または硫砒鉄鉍ならびに石英の角礫片を充填し(図版1~3)、一部は交代するような構造を示している。この鉍染帯においては、少量の黄鉄鉍のほかには他の硫化鉍物はほとんど認められない。

##### 7.5.1 薄片における観察

小鴨鉍山のコッフィナイトの薄片を顕微鏡下で観察すると、形態は、径数ミクロン程度の微細な粒状または葉片状の集合で、透過色は淡褐~濃褐色、厚い薄片ではほとんど不透明になる。多色性は認められず、屈折率は1.8よ

註10) 第2回ウラン・トリウム鉍物研究委員会の議事録による。

りも高く、光学的異方性は明らかでない。コッフィナイトは、長柱状の bismutite<sup>註11)</sup> (Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>CO<sub>3</sub>) と複雑な集合をなしている。コッフィナイトを含む試料の薄片の透過顕微鏡写真を図版3に示す。

7.5.2 研磨片における観察

反射顕微鏡観察のためのコッフィナイトの研磨片は、きわめて作成し難く、綿密な注意をもつて研磨しなければ、良好な研磨片は得られない。これは、コッフィナイトがきわめて脆く、琢磨性が低いためである。

反射色は暗灰色で、反射多色性を示さず、内部反射も認められない。反射能は閃ウラン鉱・鉄マンガン重石よりも低く、石英よりも高く、錫石と同程度である。十字ニル間における反射異方性は認められない。反射顕微鏡写真を図版1, 2, 4に示す。

以上の透過、反射顕微鏡下における性質は、Stieff et al.<sup>7)</sup> の記載したコッフィナイトによく一致している。

反射顕微鏡下におけるコッフィナイトの標準試薬による腐食試験の結果は、第5表に示すようである。

第5表 標準腐食試薬による小鴨鉱山産 Coffinite の腐食試験

Reagent	Etch reaction
HNO <sub>3</sub> (1 : 1)	Etches strongly along cracks and grain boundaries
HCl (1 : 1)	Etches slightly with dark staining
KCN (20% Sol.)	Negative
FeCl <sub>3</sub> (20% Sol.)	Stains dark brown
KOH (40% Sol.)	Negative
NaOH (20% Sol.)	Negative
HgCl <sub>2</sub> (5 % Sol.)	Negative
Aqua Regia	Etches strongly
H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> (3 % Sol.)	Negative

硝酸・塩酸ならびに王水には腐食され、塩化第二鉄には銹色を呈するが、他の試薬には反応しない。塩化第二鉄による濃褐色の銹色が、コッフィナイトの識別に役立つことは Gross<sup>8)</sup> も記載している。

7.6 コッフィナイトの同定に関する諸問題

コッフィナイトは、1951年に La Sal No. 2 鉱山 (Colorado 州 Mesa 郡) で初めて発見されたウラン鉱物で、Reuben Clare Coffin に因んで命名されたものである。元来 ThSiO<sub>4</sub> (thorite) 中に、U の存在が認められることから、USiO<sub>4</sub> なる化学組成を有する鉱物の存在が Goldschmidt により予見されていたのであるが、コロラド高

註11) 研磨片においては、bismutite は識別し難い。なお、顕微鏡によつても、まだ自然蒼鉛・輝蒼鉛鉱などは発見されていない。

原型鉱床に産する黒色鉱石中の含ウラン鉱物に関する Stieff et al.<sup>6)7)</sup> の研究により USiO<sub>4</sub> 中の (SiO<sub>4</sub>)<sup>4-</sup> イオンの一部が (OH)<sup>-</sup> によつて置換されているものとして、コッフィナイトの化学組成が決定された。

Stieff et al.<sup>7)</sup> の研究によれば、コッフィナイトは微細な鉱物粒で、他の鉱物と集合体をなして産することが多いため、詳細な物理的・化学的・光学的性質は決定され難く、また肉眼的には閃ウラン鉱とコッフィナイトとは識別困難で、同定のためには X線粉末回折像と赤外線吸収試験が有効とされている。

正方晶系のジルコン型の結晶構造を有するウランまたはトリウム含有鉱物には、ジルコンを初めとして数種の鉱物があげられる。一方 Thorogummite を初めとする一群の (OH) イオンを含有し、類似の結晶構造を有する変質産物とされる鉱物があり、Fronde<sup>12)</sup> の研究に鑑みても、次のような関係があるとされている。

ジルコン—Cyrtilite

Thorite—Thorogummite

Uranothorite—Enalite<sup>註12)</sup>

Coffinite (USiO<sub>4</sub>)—Coffinite (U (SiO<sub>4</sub>)<sub>1-x</sub> (OH)<sub>4x</sub>)

このうち左列に記した鉱物は、ジルコン・ウランあるいは、トリウムの珪酸塩であつて、右列に記した鉱物はそれぞれ対応する左列の鉱物中の (SiO<sub>4</sub>)<sup>4-</sup> の一部が (OH)<sup>-</sup> によつて置換されているものである。

これらの鉱物は、互に類似する X線粉末回折像を示しまた第3表に示したような格子恒数の類似性を示しているが、詳細に検討すれば、コッフィナイトはやゝ異なつた格子恒数 a<sub>0</sub> をもっている。

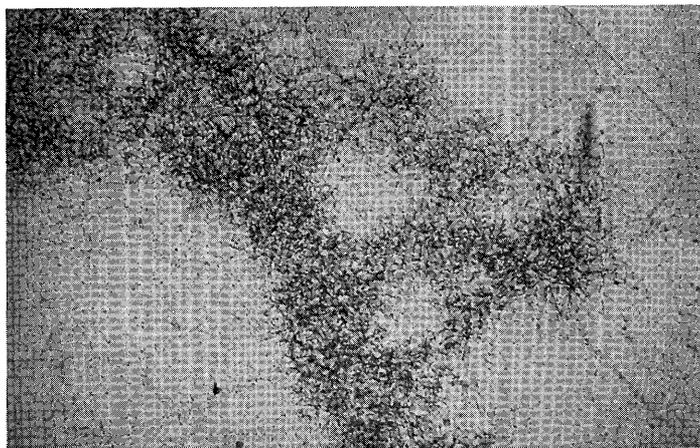
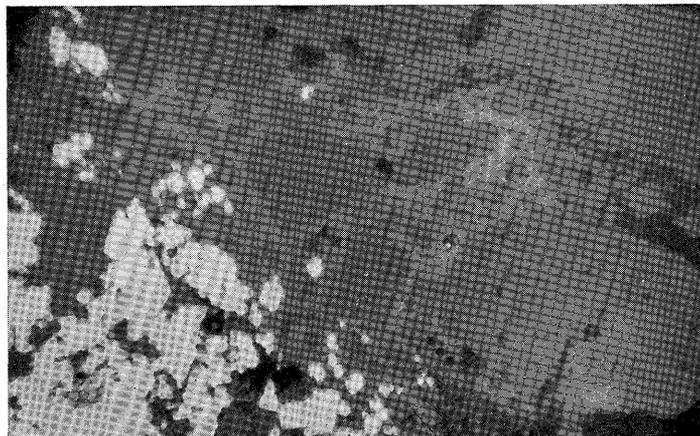
なおコッフィナイトの同定には、(OH) の存在ならびに化学組成を必要とするが、各種試験に用いた濃集粉末試料には、なお不純物が混入して、化学分析のために必要にして十分な試料が得られなかつたので、化学分析は行なつていない。しかしながら、先に述べた各種試験 (X線分析、顕微鏡的観察など) から、小鴨鉱山産の当該放射性鉱物は、コッフィナイトと同定されるべきものである。

8. 小鴨鉱山の鉱化作用

8.1 コッフィナイトの産状と小鴨鉱床

1951年に、La Sal No. 2 鉱山で初めて発見されてか

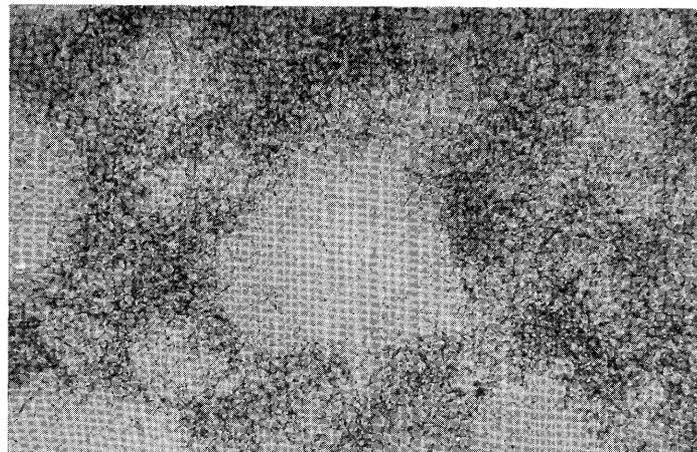
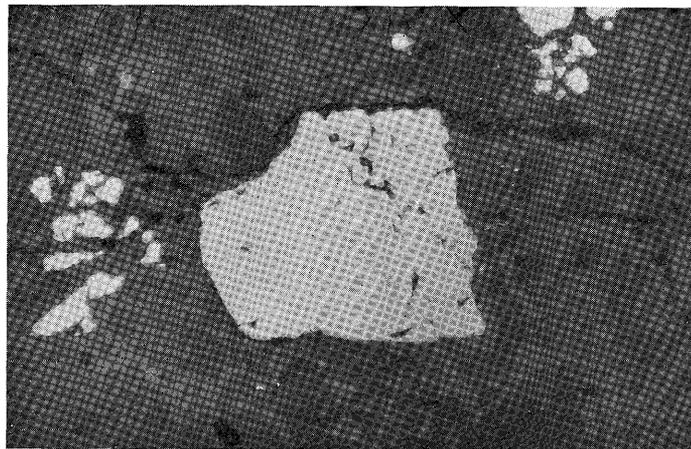
註12) 恵那石の化学組成は、木村健二郎により 2 (Th, U) O<sub>2</sub> · SiO<sub>2</sub> · 4 H<sub>2</sub>O と与えられているが、薄片では metamict の部分が一部変質しているようにみられ、これらの X線粉末回折像は、ジルコン型であり、筆者らは uranothorite-enalite をも同様な関係にあるものと考えたい。



0 0.1 0.2mm

図版 2 小鴨鉱山産コツファイナイトの反射顕微鏡写真(上)  
およびオートラジオグラフ(下) (試料 019 A, オートラジオ  
グラフの露出時間 117 時間 40 分)

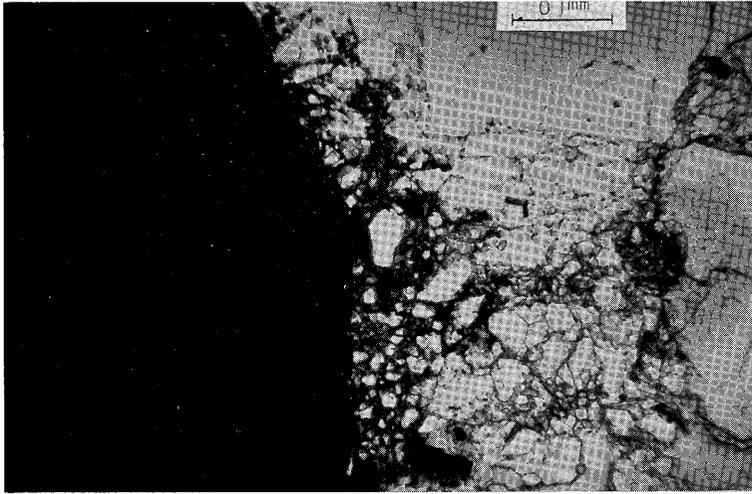
白色： 硫砒鉄鉱  
淡灰： コツファイナイトおよび bismutite  
暗灰： 石英  
黒色： 割れ目



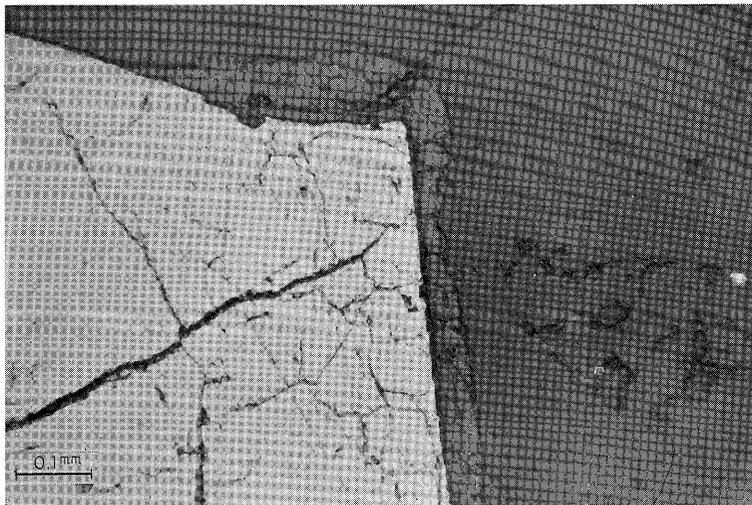
0 0.1 0.2mm

図版 1 小鴨鉱山産コツファイナイトの反射顕微鏡写真(上)  
およびオートラジオグラフ(下) (試料 019 A, オートラジオ  
グラフの露出時間 117 時間 40 分)

白色： 硫砒鉄鉱  
淡灰： コツファイナイトおよび bismutite  
暗灰： 石英  
黒色： 割れ目



図版 3 小鴨鉱山産コツファイナイトの透過顕微鏡写真  
 左方の黒色部は硫砒鉄鉱、中央部に硫砒鉄鉱、石英の破砕片を充填するのが  
 コツファイナイトおよび bismutite の集合



図版 4 小鴨鉱山産コツファイナイトの反射顕微鏡写真  
 硫砒鉄鉱(白色)と石英(灰色)との境界部に産するコツファイナイト  
 コツファイナイトは硫砒鉄鉱の一部を交代し始めている

コッフィナイトはコロラド高原の各種のウラン鉍床中に発見されてきた。とくに、ジュラ紀の Morrison 層、三疊紀の Chinle 層中の黒色ウラン鉍石 (black ore) の鉍床 (Mi Vida 鉍山, Jackpile 鉍山など) にはとくに多く、Shinarump 礫岩中の Denise No. 1 鉍山の鉍床にも産する。これらの鉍床においては、コッフィナイトは瀝青ウラン鉍・黄鉄鉍・黄銅鉍・閃亜鉛鉍・方鉛鉍や、バナジン鉍物とともに産し、主として有機物質・木質の細胞組織を交代している。また Wind River Basin の砂岩中のウラン鉍染鉍床、変成珪岩中の Dripping Springs 鉍染鉍床、また Old Leyden 石炭鉍床 (Colorado) やアスファルト質地球中にも発見されている。一方鉍脈に産する場合としては、Copper King (Colorado) 鉍山や Joachimsthal 鉍山の鉍脈中にも閃ウラン鉍と共存しているコッフィナイトが知られている (Stieff<sup>7)</sup>, Gross<sup>8)</sup>, Nininger<sup>9)</sup> などによる)。コロラド高原型のウラン・バナジン鉍床の成因に関しては、従来河成堆積鉍層説が主流を占めていたが、多量の瀝青ウラン鉍および硫化鉍物を伴うカルノー石・バナジン鉍床および銅ウラン鉍床などが発見されるに及んで、高原型鉍床の成因に関しては、熱水成因説が台頭し、最近ではこの説の賛成者が多い。コッフィナイトは初めて発見されている、コロラド高原のみでも 30 を超える鉍床において発見され、木質細胞を交代して、瀝青ウラン鉍とともに密接な共生関係を示しており、コッフィナイトは、表成二次成の鉍物でなく、熱水性初成鉍物と考えられている。さらに前記のように、熱水性鉍脈に産する場合には明らかに初成鉍物と認められる。

コッフィナイトの熱水合成実験は、すでに多くの研究者により行なわれていたが、Hoekstra と Fuchs<sup>10)</sup> によつて 1956 年に成功をみた。実験操作は、Uranium tetrachloride と Sodium metasilicate の各 1 m モルを 10 m モルの水に溶かし、pH 8~10 でゲル状沈殿ができるまで NaOH 溶液を加え、ゲル状沈殿をシリカ管に入れ、Inconel bomb tube におさめて窒素気流中で 250°C、4~5 日間熱する。合成されたコッフィナイトは、X線粉末回折試験によつて天然産のものと同様の回折像を示し、コッフィナイトと認められるが、SiO<sub>4</sub> が OH により置換されているか否かは明らかでない。しかしコッフィナイトが上記のような条件によつて合成されたことにより、同鉍物が熱水性初成鉍物であることには疑いがないものと考えられる。

上記の事実からみて、小鴨鉍山に産するコッフィナイトは二次成のものでなく、硫砒鉄鉍その他の初成鉍化作用の時期に生成したものである。

## 8.2 小鴨鉍山の鉍化作用

小鴨鉍山の鉍脈の概況についてはすでに記したが、鉍脈の構造からみて、破碎帯の形成後に、鉍化作用が行なわれ、破碎帯の粘土化作用が行なわれるとともに、硫砒鉄鉍・石英の鉍染帯が形成された。その後、微量の黄鉄鉍・黄銅鉍・閃亜鉛鉍・方鉛鉍を伴う石英細脈が、粘土化破碎帯中に形成されたものと解釈される。

すでに述べたように、この石英細脈は、きわめて小規模であつて、放射能強度のとくに著しい異常を示す部分はいずれも、顕微鏡観察の結果からも放射性鉍物は認められていない。コッフィナイトは、前記の硫砒鉄鉍・石英の鉍染帯に限つて認められ、図版 1, 2, 4 の産状からみても、硫砒鉄鉍よりもおくれて晶出したものである。

本鉍床は、熱水性鉍脈で、生成環境の物理的条件を推定する積極的資料に乏しいが、産状ならびに鉍物共生関係からみて、中熱水性ないし浅熱水性鉍床と考えられるが、やゝ高温条件のもとで形成されたものであろう。

鉍床生成の時期を考察する資料はないが、地質概説の項で述べたように、白堊紀末ないし古第三紀と推定されるのみである。中粒黒雲母花崗岩を貫ぬく半花崗岩質黒雲母花崗岩体の周辺部に、とくに放射能異常を示す粘土帯あるいは捕獲岩様岩塊の多くが認められ、ウラン鉍化作用は、この半花崗岩の貫入に密接な成因的關係を有するものと考えられる。

## 9. 結 論

(1) 鳥取県小鴨鉍山 (現在の倉吉鉍山歩谷鉍床) は、中粒黒雲母花崗岩中の粘土化破碎帯と、これに伴う硫砒鉄鉍-石英鉍染帯ならびに硫化物石英細脈からなる熱水性鉍脈であつて、中粒黒雲母花崗岩を貫ぬく半花崗岩質黒雲母花崗岩の貫入と成因的關係をもつて、白堊紀末ないし古第三紀に生成された中熱水性ないし浅熱水性鉍脈である。

(2) 本鉍山の初成ウラン鉍物はコッフィナイト (Coffinite, U(SiO<sub>4</sub>)<sub>1-x</sub>(OH)<sub>4x</sub>) である。

(3) 本鉍山産のコッフィナイトは、分離濃集した粉末試料の X線粉末回折試験、X線蛍光分析と、オートラジオグラフならびに薄片、研磨片の顕微鏡観察により、既存の資料とよく一致する性質を示しており、コッフィナイトと同定した。

(4) 標準腐食試薬による腐食試験を行なつた。硝酸・塩酸・王水には腐食され、塩化第二鉍には暗褐色の銹色を呈し、他の試薬には反応しない。

(5) コッフィナイトは、鉍脈生成の比較的初期の段階の硫砒鉄鉍・石英鉍染帯中に、Bismutite を伴うきわ

めて微粒の集合体をなして、硫砒鉄鉱および石英の破砕片を充填し、また硫砒鉄鉱を取巻いて交代する組織を示して産し、後期の硫化物—石英細脈や粘土化破砕帯にはほとんど認められない。

(6) 鉱床の母岩の変質としては、中粒黒雲母花崗岩の絹雲母化、モンモリロナイト化、緑泥石化、赤鉄鉱化、珪化作用が認められ、部分的に変質作用の組合せと程度は異なる。粘土化破砕帯の粘土は、主として絹雲母およびモンモリロナイトである。

(7) 小鴨鉱床の初成放射性鉱物はコッフィナイトであるが、さらに他の初成放射性鉱物が存在するか否かは、いまだ明らかでない。さらに研からは燐灰ウラン鉱様鉱物および燐銅ウラン鉱が発見されているが、粘土化破砕帯中にはまだ明確な放射性鉱物は認められておらず、この帯の放射能は粘土鉱物によるウランの二次的な吸収または吸着からおもに生ずるものと考えられる。

(昭和31年11月調査)

#### 文 献

- 1) Bodine, Marc W. Jr. : Mineralogy of the Car-lile Deposit, Crook County, Wyoming. U. S. A. E. C. Annual Report for June 30, 1953 to April 1, 1954, p. 16~37, 1954
- 2) Frondel, Clifford : Hydroxyl Substitution in Thorite and Zircon, Amer. Mineral., Vol. 38, p. 1007~1018, 1. 53
- 3) Gross, Eugene B. : Mineralogy and Paragenesis of the Uranium Ore, Mi Vida Mine, San Juan County, Utah, Econ. Geol., Vol. 51, No. 7, p. 632~648, 1956
- 4) Hoekstra, H.R. & Fuchs, Louis, H. : Synthesis of Coffinite— $USiO_4$ , Science, Vol. 123, No. 3186, p. 105, 1956
- 5) Nininger, R. D. : Minerals for Atomic Energy, 2nd ed., Van Nostrand, New York, 1956
- 6) Stieff, L.R., Stern, T.W. & Sherwood, A.M. : Preliminary Description of Coffinite—a new uranium mineral, Science, Vol. 121, No. 3147, p. 608, 1955
- 7) Stieff, L.R., Stern, T.W. & Sherwood, A.M. : Coffinite, a uranous silicate with hydroxyl substitution; a new mineral, Amer. Mineral., Vol. 41, No. 9~10, p. 675~688, 1956
- 8) Yagoda, Herman : Radioactive Measurement with Nuclear Emulsions, John Wiley & Sons, Inc., New York, 1949