福岡県竜門鉾山産閃ウラン鉾の産状と絶対年令

Mode of occurrence and absolute age of uraninite from
Ryuen mine, Fukuoka Prefecture

井 上 秀 雄 (Hideo Inone)*

佐 藤 和 郎 (Kazuo Sato)**

Abstract: There are three pegmatites in Ryuen mine, Fukuoka Prefecture, which intruded in Masaki granite of the middle Cretaceous. The U-Pb age of uraninite from a pegmatite has been chemically determined as 100×10^6 years by Kimura and Iimori (1937). Uraninite was collected from the other pegmatite, of which mode of occurrence was different from the above mentioned uraninite. It occurred in chlorite vein cut the pegmatite. In order to know whether or not any measurable time interval existed between the pegmatite solidification and the vein formation, isotopic U-Pb age was determined on the uraninite from the chlorite vein. The age of uraninite is 110×10^6 years and the formation of chlorite vein continued immediately after the solidification of pegmatite.

1. ま え が き

竜門鉾山は福岡県田川郡真崎にあり、古くからペグマタイト鉾床として稼行され、また希元素鉾物の産地として有名である。ペグマタイトはほぼ塊状の3つの鉾体(A, BおよびC)からなり、この中Aの閃ウラン鉾については木村、飯盛¹⁾によりウラン-鉛法による年令決定が行われている。最近Cにおいて上記のものと産状を異にする閃ウラン鉾を発見した。この閃ウラン鉾の産状、鉾物学的性質および鉛法による年令決定の結果を報告する。

この報告をまとめるにあたり、九州大学理学部唐木田芳文、地質調査所広渡文利の両氏に種々の助言を得た。こゝに深く感謝する。

2. 地 質 概 要

北九州の花崗岩類は富田達、唐木田芳文等²⁾によれば、古期および新期の2つに大別され、これを古い方から記載すると次のようになる。

古期花崗岩類 糸島花崗閃緑岩、深江花崗岩

新期花崗岩類 朝倉花崗閃緑岩、鞍手花崗閃緑岩、平尾花崗閃緑岩、真崎花崗岩、勝山花崗岩、嘉穂花崗岩、早良花崗岩、佐賀花崗岩

これらの花崗岩類中、古期のものの進入時期は明らかでないが、新期のもののうち鞍

* 地質調査所鉾床部

** 東京大学理学部化学教室・東京大学地震研究所

手, 真崎, 嘉穂の3岩型は, 上部白堊紀中部から下記白堊紀上部にかけての進入で, 関門層群の堆積後とされている。

鉾山および周辺の地質は田川変成岩類とこれを貫く花崗岩類, これらを不整合に被う第3紀層, および阿蘇熔岩から構成されている。

花崗岩類は東西に発達する断層を境として北側に真崎花崗岩, 南側に朝倉花崗閃緑岩が分布している。前者は粗粒の黒雲母花崗岩で後者を貫き, 多くのペグマタイトを伴う。また後者は一般に塊状で花崗閃緑岩質である。

第3紀層は始新世の福岡層群からなり, 鉾山の東側および西側に分布している。

3. 閃ウラン鉱の産状および外観

第1図 福岡県竜田鉾山附近の地質図
(稲井・広渡原図)

第1図に示した3つのペグマタイト鉱体は, いずれも直径20~30m前後で塊状を呈する。一般に鉱体の中心部は石英を主とし, 外殻部は長石からなり, ほゞ同心円状の累帯構造をなしている。

長島乙吉, 木村¹⁾により発見され, 木村, 飯盛により年令決定が行われた閃ウラン鉱は, A鉱体の長石を主とする部分に産するが, 今回発見した閃ウラン鉱は, C鉱体をN70°Wに切る切り面にそつた脈状部に見出された。この脈状部は緑泥石, 輝水鉛鉱, 黄銅鉱よりなる。

切り面の規模は延長約8mを有する。

閃ウラン鉱は肉眼的に認められ, 黒色で光沢が強い。大きさは

径0.5~1.0mm, 立方体結晶であり, つねに長石および葉片状の緑泥石中に濃集する。

4. 閃ウラン鉱の鉱物学的性質

(1) 反射顕微鏡下の性質 第2図に示すように主として単結晶として産出するが, ときにはこれらの単結晶が集合して産出する。光学的には等方性で, 反射色は磁鉄鉱より暗く, 淡褐灰色を呈する。研磨面には網目状の割れ目が顕著に発達している。

閃ウラン鉱に密接な随伴関係を有する鉱物は黄鉄鉱と鋭錐石で, 前者は閃ウラン鉱をとり囲むように産出し, 厚さ25~50μを有する。後者は大部分閃ウラン鉱の中, または周辺の長石あるいは緑泥石中認められる。

第2図 福岡県竜門鉍山産閃ウラン鉍の産状

U : 閃ウラン鉍 A : 鉍錐石 F : 長石 P : 黄鉄鉍
a : 未決定鉍物

研磨面の試薬テストの結果、反応は全く認められなかつた。使用した試薬は次のとおりである。KCN, KOH, HCl, HgCl_2 , FeCl_3 , $\text{KMnO}_4 + \text{H}_2\text{SO}_4$, $\text{KMnO}_4 + \text{KOH}$ 。

(2) X線粉末回折試験 アイソダイナミックセパレーターを使用し、網粋な閃ウラン鉍を分離採取してX線粉末試験の試料とした。第1表にこの結果を示す。

第1表 閃ウラン鉍のX線回折値

d	I/I ₀	dhkl
3.17 Å	100	111
2.74	40	002
1.93	50	122
1.653	45	113
1.580	12	222
1.370	10	004
1.255	16	133
1.224	15	024

Cu K α , Ni filter,

(3) T_α の測定 T_α の測定を、顕微鏡下で閃ウラン鉍と 同定した試料について試み、次の値を得た。(No.1 210, No.2 229, No.3 222) この中 3 個の閃ウラン鉍と比較のため、フランス産溼青ウラン鉍を実験に供した。乾板は ET-2E を使用した。

フランス、ボア、ノアール鉍山産溼青ウラン鉍の T_α は 174 である。

閃ウラン鉍は一般に $T_\alpha = 160 \sim 215^{3)}$ であり、上記の結果はこの範囲を若干上まわる値であるが、露出時間、 α 飛跡を数える面積のとり方による誤差によるものと考えられる。すなわち、 T_α の測定からも閃ウラン鉍であることが同定される。

4. 閃ウラン鉍の年令決定

鉍物学的に純粋に分離した閃ウラン鉍細粉を分析試料とし、(1) 0.22820g を鉛の抽出、同位体分析およびウランの定量に使用し、(2) 0.09367g を鉛の定量に供した。いずれも 6N の硝酸で分解したが、(2) に対しては分解処理後ただちに 3.07mg の鉛を spike して加えた。

(1) 鉛の同位体分析 通常の方法で鉛を分離し、精製して約 0.8mg のヨウ化鉛とし、テトラメチル鉛法⁴⁾ によりその同位体存在比を測定した。1 回の測定に使用できる鉛の

量が少いので、第2表に見られるごとく、 ^{204}Pb の存在度はその上限のみが得られた。

(2) ウランの定量 通常の方法により U_3O_8 として重量を測った。ウラン酸アンモニウム沈殿を濾別した溶液について回収操作を行い、この部分にウランが存在しないことを確めた。

(3) 同位体希釈法による鉛の定量 (1)と同一の方法によりヨウ化鉛を分離し、テトラメチル鉛として同位体分析を行つた。(1)により得られた閃ウラン鋳の鉛の同位体存在比および閃ウラン鋳の鉛と既知量の spike の鉛の混合物の同位体存在比から計算し、試料中の鉛の濃度を求めた。

閃ウラン鋳の放射性起源の鉛同位体中、 ^{208}Pb の存在度は小さく、この同位体を用いる年令の計算は、誤差から考えて無意味であつた。また ^{207}Pb の存在度測定誤差は $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ —年令を計算するためには大きすぎた。表にみられるとおり、残りの2種の年令は誤差の範囲内で一致し、年令概数は 110×10^6 年と見積られ、不確かさは $\pm 10 \times 10^6$ 年以内と考えられる。

第2表 閃ウラン鋳の分析結果と年令
鉛の同位体存在比 (原子数百分率)

質量分析試料		^{204}Pb	^{206}Pb	^{207}Pb	^{208}Pb
閃ウラン鋳	I	< 0.1	91.07 ± 0.71	4.94 ± 0.17	3.82 ± 0.19
"	II	< 0.1	91.85 ± 0.30	4.75 ± 0.14	3.42 ± 0.11
Spike の鉛		1.364 ± 0.002	24.93 ± 0.05	21.38 ± 0.04	52.33 ± 0.20
閃ウラン鋳+spike	I	1.068 ± 0.029	40.92 ± 0.16	17.39 ± 0.23	40.63 ± 0.37
"	II	1.131 ± 0.018	41.14 ± 0.28	17.24 ± 0.46	40.49 ± 0.60

ウランおよび鉛の同位体含有量 (mg./g.)

U: 639.6		Pb: (10.45 $\pm$ 0.24)	
^{238}U	635.0*	^{207}Pb (放射性起源)	$9.47 \pm 0.37^{**}$
^{235}U	4.61	^{207}Pb (")	0.431 ± 0.097

閃ウラン鋳の年令* (単位: 10^6 年)

$^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$ -年令	$^{207}\text{Pb}/^{235}\text{U}$ -年令
111 ± 5	104 ± 23

[注] * 現在のウランの同位体存在比として $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}=137.8$ (Inghram, 1946)⁶⁾ を用いた。また壊変定数として $^{238}\text{U}: \lambda=1.54 \times 10^{-10} \cdot \text{y}^{-1}$ (Kovarík and Adams, 1955)⁷⁾, $^{235}\text{U}: \lambda=9.72 \times 10^{-10} \cdot \text{y}^{-1}$ (Fleming, Ghiorso and Cunningham, 1952)⁸⁾ を用いた。

** 非放射性起源の鉛(original common lead)の同位体存在比として $^{204}\text{Pb}=1.355\%$, $^{106}\text{Pb}=25.05\%$, $^{207}\text{Pb}=21.13\%$, $^{208}\text{Pb}=52.46\%$ を仮定した。この値は年令 $(30-150) \times 10^6$ 年の鉛鋳の鉛についての実測値の範囲内にある⁵⁾。

6. 年 令 値 に つ い て

竜田鉾山の3つのペグマタイト鉾体の中、A鉾体の年令はその閃ウラン鉾についての木村、飯盛の測定によれば 96×10^6 年であった。今回発見された閃ウラン鉾はC鉾体の沁り面に発達した緑泥石脈中にあり、その年令は $(110 \pm 10) \times 10^6$ 年である。鉛法による年令決定の精度から考えて、これらの閃ウラン鉾の年令の間には差を認め難く、ほぼ一致するといえる。したがって緑泥石脈はペグマタイト鉾体の晶出直後に生成したものと推定して差支えないと考えられる。なお、この閃ウラン鉾を伴うペグマタイト（および真崎花崗岩）の絶対年令も $(110 \pm 10) \times 10^6$ 年で、上部白堊紀に相当する。

引 用 文 献

- 1) 木村健二郎, 飯盛武夫, 日化, **58**, 1135~1143, 1937.
- 2) 富田 達, 唐木田芳文, 私信による。
- 3) Yagoda, H., Radioactive measurements with nuclear emulsions, John Wiley, N. Y., 1949.
- 4) 佐藤和郎, 斎藤信房, 質量分析, No. 15, 43~51, 1960.
- 5) Collins, C. B., Russell, R. D. and Farquhar, R. M. Canad. J. physics, **31**, 402~418, 1953.
- 6) Inghram, M. G., Manhattan Project Technical Series, Div. 2, Gaseous Diffusion Project, **14**, V, 35, 1946.
- 7) Kovarik, A. F. and Adams, N. I., Phys. Rev., **98**, 46, 1955.
- 8) Fleming, E. H., Ghiorso A. and Cunningham, Phys. Rev, **88**, 642~652, 1952.
- 9) 広渡文利, 稲井信男, 福岡県竜田鉾山のウラン鉾床, ウラン, **457~458**, 1961.