

花崗岩の浸透変質に伴うウラニナイトの溶解と沈殿の数値シミュレーション

A numerical simulation of dissolution and precipitation of uraninite during infiltration alteration of granite

曾我部 由香 [1]; 星野 健一 [2]

Yuka Sokabe[1]; Kenichi Hoshino[2]

[1] 広大・理・地球惑星; [2] 広島大・理・地球惑星システム

[1] Earth and Planetary Systems Science, Hiroshima Univ.; [2] Dept. Earth and Planet. Sci., Hiroshima Univ.

地下水が浸透することによる花崗岩の変質に伴うウラニナイトの溶解・沈殿の平衡過程を、MIX99 (Hoshino et al., 2000) を用いてシミュレートした。浸透溶液の初期値は、pH が 6, $\log fO_2$ が -1.1 である平均的な河川水の組成を想定した。モデル花崗岩は、石英 (60 mole %)、カリ長石 (25 %)、斜長石 (アルバイト (9.1 %) + アノーサイト (3.9 %)) 及び黒雲母 (アナイト (1.4 %) + フロゴパイト (0.6 %)) からなるとし、微量のウラニナイトを伴い、初生的に黄鉄鉱が含まれる場合と含まれない場合について、数値解析を行った。斜長石と黒雲母は理想固溶体を仮定した。

解析の結果、平衡過程では、地下水の浸透に伴う斜長石の溶解前縁の移動速度は速く、黒雲母の溶解前縁の移動はこれに比べかなり遅いことが示された。また、カリ長石のそれは更に遅い。石英は、斜長石とカリ長石の溶解前縁で沈殿する。解析で現れた変質鉱物は、白雲母、カオリナイトおよびフェリハイドライトである。フェリハイドライトを考慮しない場合には、スメクタイトがこれに替って沈殿する。

解析された条件下では、黄鉄鉱とフェリハイドライトは平衡に共存しない。その理由は、前者の溶解前縁の fO_2 が極めて低いために、後者との共存には現実的に不可能な高濃度の溶存鉄が必要となるからである。フェリハイドライトは、黒雲母 (アナイト) が溶解する前縁で、これにより生じた溶存鉄が浸透溶液により酸化されて沈殿する。この前縁が、最も上流側に位置する酸化還元前縁となる。以降本文では、この前縁を第 1 酸化還元前縁と呼ぶ。黄鉄鉱は、通常この第 1 前縁より下流側で溶解し、第 2 酸化還元前縁を形成する。初生の黄鉄鉱が少量で、その溶解前縁が斜長石の溶解前縁より速い場合には、斜長石と平衡な浸透溶液の pH が高いために (11 以上)、黄鉄鉱は速やかに溶解する。

ウラニナイトは、第 1 酸化還元前縁かまたはその直ぐ下流側で溶解する。更に、その直後の下流側と第 2 酸化還元前縁で再沈殿し、両所でウランの二次富化作用を生じる。

本解析から得られた最も重要な結論は、黄鉄鉱などの還元剤が初生に存在しなくても、ウランの二次富化作用が生じる可能性が示されたことである。即ち、黄鉄鉱が存在しない場合でも、上述のように、第 1 酸化還元前縁かその直後の下流側で溶解したウランは、更にその溶解前縁の直後の下流側で再沈殿し、富化作用を生じる。この二次富化作用によるウラニナイトの沈殿量は、初生のウラニナイトの含有量が多い場合には、第 1 酸化還元前縁の前進とともに増加するが、少ない場合には、一定量の増加に留まる。

また、本解析から、平衡過程でウラニナイトの溶解と沈殿を制御するのは、黒雲母の溶解とこれにより生じた溶存鉄の酸化に伴うフェリハイドライトの沈殿であることが明らかにされ、黄鉄鉱の溶解による酸化還元前縁での二次富化作用は、副次的なものであることが示された。また、フェリハイドライトがその遅い反応速度により沈殿しない場合には、スメクタイトが同様の役割を果たすことも示された。