

**POWSTAWANIE ANOMALII URANOWYCH W ALUWIACH
I ICH WYKRYWALNOŚĆ ZALEŻNIE OD UZIARNIENIA
ANALIZOWANYCH FRAKCJI**

UKD 553.495:551.312.3:550.84:552.123(438.25:234.57)

Pierwszym podstawowym etapem geochemicznych poszukiwań uranu jest zdjęcie regionalne, mające za zadanie określenie rejonów perspektywicznych dla dalszych szczegółowych poszukiwań. Najczęściej stosuje się w tym celu uranometryczne zdjęcia hydrochemiczne i aluwialne.

Zdjęcie aluwialne wykonywane przeważnie w terenach górskich, a więc na ogół dobrze odsłoniętych, o silnie rozwiniętej sieci drobnych bystrych potoków, polega na odkryciu tzw. potoków rozsiania uranu, występujących w pobliżu złóż uranu. Potokiem rozsiania nazywamy odcinek o zwiększonej zawartości danego pierwiastka w aluviach. Zwiększenie zawartości może powstać na drodze mechanicznej (mechaniczny potok rozsiania) lub chemicznej (chemiczny potok rozsiania).

Wokół złóż uranu powstają na ogół chemiczne potoki rozsiania. Mechaniczne potoki rozsiania, wskutek słabej odporności na wietrzenie większości minerałów uranowych, powstają niezwykle rzadko.

Powstanie chemicznych potoków rozsiania tłumaczy się sorpcją uranu przez frakcję ilastą z wód o podwyższonej jego zawartości, genetycznie związanych z mineralizacją uranową. Proces powstania chemicznego potoku rozsiania można podzielić na dwa zasadnicze etapy:

- a — powstanie wód o podwyższonej zawartości uranu,
- b — sorbowanie uranu przez ilastą frakcję aluwiiów.

**POWSTAWANIE WÓD O PODWYŻSZONEJ ZAWARTOŚCI
URANU**

Zawartości uranu w wodach potoków rzek i jezior wahają się w dość znacznych granicach od $2 \cdot 10^{-8}$ do $5 \cdot 10^{-5}$, średnio $6 \cdot 10^{-7}$ g/l (8). Y. Murakami i inni (5) na podstawie prac metodycznych przeprowadzonych w Japonii podają, że w większości wód powierzchniowych zawartości te wynoszą średnio $1 \cdot 10^{-7}$ g/l U. W poszczególnych anomalnych przypadkach zawartości te mogą wzrosnąć do $2 \cdot 10^{-4}$ g/l U.

Wody podziemne wykazują jeszcze większe różnicowanie zawartości uranu, np. zawartości te w wodach podziemnych na terenie ZSRR wahają się w granicach $3 \cdot 10^{-8}$ do kilku gramów na litr (1).

Wzbogacenie w uran omawianych wód, których pierwotnym źródłem są w głównej mierze nie zawierające uranu wody atmosferyczne, następuje w przypowierzchniowych warstwach skorupy ziemskiej w strefie wietrzenia. Wody descenzyjne przepływające przez górne warstwy skorupy ziemskiej, zależnie od swego charakteru, a więc potencjału utleniająco-redukcyjnego (Eh), pH, jakościowego oraz ilościowego składu rozpuszczonych soli, ilości substancji organicznej itp., wywołują różnorodne reakcje chemiczne w skałach i w występujących w nich złożach. Kierunek i nasilenie tych reakcji uzależnione są od litologii i tektoniki rejonu, rodzaju i gęstości szaty roślinnej, warunków klimatycznych (ilość i roczny roz-

kład opadów atmosferycznych, warunki nasłonecznienia), rzeźby terenu itd.

Decydującym czynnikiem w procesie ługowania uranu jest potencjał utleniająco-redukcyjny, mniejszą rolę odgrywa pH roztworów, ponieważ uran może być ługowany roztworami kwaśnymi i alkalicznymi. Wody utleniające z dużą zawartością rozpuszczonego wolnego tlenu, o wysokim potencjale utleniająco-redukcyjnym (powyżej 300 mV) (1) powodują utlenienie trudno rozpuszczalnego U^{4+} do U^{6+} . Uran sześciowartościowy przechodzi stosunkowo łatwo do roztworów wodnych.

Wody redukcyjne z dużą zawartością substancji organicznej i węglowodorów, o niskim potencjale utleniająco-redukcyjnym (od 100 do 500 mV) nie sprzyjają ługowaniu uranu i zawierają go w niewielkich ilościach ($x \cdot 10^{-7}$ g/l i poniżej). Niskie zawartości uranu w wodach redukcyjnych stwierdzono nie tylko w obszarach bezrudnych, lecz także w bezpośrednim sąsiedztwie złóż uranu.

W procesie ługowania uranu pH roztworów nie posiada decydującego znaczenia ilościowego, wyznacza jednak kierunek i przebieg reakcji ługowania. Ługowanie uranu w środowisku kwaśnym zachodzi przy utlenianiu siarczków, które dostarczają kwaśnych roztworów siarczanowych. Uran przechodzi do roztworu w postaci siarczanu uranylu. Kwaśne roztwory nie są trwałe w warunkach naturalnych i po wydośnianiu się poza obręb strefy utleniania siarczków szybko ulegają zobojętnieniu. Przy pH ok. 4,2 następuje wytrącanie wodorotlenków uranu z roztworów siarczanowych. Mimo to część uranu pozostaje nadal w roztworze. Obecność uranu w takich roztworach można tłumaczyć występowaniem w roztworach koloidalnej krzemionki i wodorotlenków żelaza, które absorbują uran (2). Wydaje się, że nie można również wykluczyć występowania uranu w postaci koloidalnych wodorotlenków. Uran w tych wodach utrzymuje się dopóki koloidy występują w stanie dyspersyjnym.

Na ługowanie uranu w środowisku obojętnym i alkalicznym, oprócz warunków utleniających, wpływa w głównym stopniu obecność agresywnego CO_2 , dzięki któremu powstają dwuwęglany $Ca/HCO_3/2$ i $NaHCO_3$. Uran sześciowartościowy przechodzi w tych warunkach do roztworu w postaci rozpuszczalnego kompleksu typu $Na_4 [UO_2/CO_3/3]$ (7). Kompleks ten jest trwały w granicach pH = 6,6 i powyżej (4), dlatego też w przeważającej masie wód hydrosfery uran występuje głównie w tej postaci.

Zawartość uranu w wodach danego obszaru zależy nie tylko od warunków fizykochemicznych. Zawartość ta nie jest stała, lecz waha się zależnie od pór roku, zwiększa się w przypadku zmniejszenia ilości opadów, maleje zaś z ich wzrostem. Wzbogacenie wód w uran w pobliżu ciała rudnego zależy również od stopnia utlenienia rud uranowych. Złoża uranu bezsiarczkowe, wtórnie utlenione, składające się głównie z mik uranowych, trwałych w warunkach hipergenicznych, zasilają wody w uran w mniejszym stopniu niż złoża tlenkowych rud uranu, zwłaszcza współwystępujących z siarczkami innych metali. W tym ostatnim przypadku przy zwiększeniu się opadów atmosferycznych może nastąpić nawet wzrost zawartości uranu w wodach.

Przejście uranu do roztworu wodnego jest pierwszym etapem powstania chemicznego potoku rozsiania. Wody zawierające uran są odprowadzane ciekami i strumieniami, a następnie rzekami.

PROCESY SORPCJI URANU W ALUWIACH

Skład aluwii jest uwarunkowany składem litologicznym skał otaczających, niszczonej przez procesy wietrzenia. W terenach, na których nie występuje mineralizacja uranowa, zawartość uranu w aluwii jest uzależniona od jego zawartości w skałach i bywa z reguły niższa od tej zawartości. Mamy tu do czynienia prawdopodobnie z pierwotnym uranem zawartym w mechanicznie rozartym materiale skalnym, zubożonym w uran wskutek procesów wietrzeniowych.

Tabela I
ŚREDNIE ZAWARTOŚCI URANU W SKAŁACH I ALUWIACH
WSCHODNIEJ CZĘŚCI MASYWU KARKONOSZY ORAZ
MASYWU KŁODZKO-ZŁOTOSTOCKIEGO

Rejon	Skały		Aluwia	
	g/t U	ilość oznaczeń	g/t U	ilość oznaczeń
Masyw kłodzko-złotostocki	7,7	9	5,0	209
Karkonosze (okolicznie Karpacza)	12,0	17	10,4	28
Karkonosze (okolicznie Janowic Wlk.)	18,1	13	5,8	11

Procesy sorpcji odgrywają w tym przypadku mniejszą rolę, gdyż niska koncentracja uranu w wodzie powoduje szybkie wytworzenie się równowagi sorpcyjnej między roztworem a odpowiednimi sorbentami (minerały ilaste, wodorotlenki żelaza, manganu itp.).

W tabeli I zestawiono wyniki oznaczeń zawartości uranu w granitach wschodnich części masywu Karkonoszy i w granodiorytach masywu kłodzko-złotostockiego (3) oraz zawartości uranu w aluwiiach potoków przecinających te skały.

W przypadku występowania wód anomalnych o podwyższonej zawartości uranu, ilość uranu w aluwii może ulec zwiększeniu w procesie sorpcji uranu z tych wód. Sorpcja uranu jest procesem złożonym, szczegółowo omówienie różnych rodzajów sorpcji znajduje się w pracy A. Jęczalika (4).

Badania E. W. Rożkovej (6) nad zdolnościami sorbcyjnymi różnych substancji naturalnych m.in. montmorillonitu, kaolinitu, uwodnionych tlenków żelaza i fosforanów wykazały, iż sorpcja uranu przez te substancje zależy od wielu czynników, przede wszystkim od koncentracji jonów uranowych w roztworze oraz rodzaju sorbenta i jego potencjału elektrokinetycznego. Substancje o ujemnym potencjale elektrokinetycznym będą sorbować głównie uran występujący w roztworze w postaci kationowej UO_2^{2+} , w przeciwieństwie do substancji o dodatnim potencjale elektrokinetycznym, które sorbują uran w postaci anionowej $[UO_2/CO_3/3]^{4-}$. Wielkość potencjału elektrokinetycznego dla danego sorbenta zależy od pH środowiska zmienia się w dość znacznych granicach, przyjmując w określonym przedziale pH wartości maksymalne. W granicach tego pH sorbowanie uranu przez dany sorbent zachodzi najintensywniej.

W warunkach naturalnych występują sorbenty zarówno o ujemnym (minerały ilaste, fosforany, substancje organiczne), jak i dodatnim (wodorotlenki żelaza i glinu) potencjale elektrokinetycznym. Substancje te w większej lub mniejszej ilości występują na ogół we wszystkich aluwiiach, tak że niezależnie od formy, w jakiej występuje uran w wodach (kationowej czy anionowej) istnieją warunki sprzyjające jego sorpcji.

URAN W ALUWIACH

Mechanizm powstawania chemicznych potoków rozsiania na drodze sorpcyjnej stwarza konieczność pobierania materiału możliwie najbardziej drobnoziarnistego, o stosunkowo dużej zawartości frakcji ilastej, którą powinno się wydzielać do analizy chemicznej. Niestety w praktyce terenowej, przy systematycznym opróbowaniu potoków górskich spotyka się często odcinki o aluwiiach gruboziarnistych i niedostatecznej zawartości frakcji ilastej dla potrzeb analizy chemicznej. W związku z tym powstaje problem wyboru frakcji optymalnej z punktu widzenia zawartości w niej uranu oraz dostatecznego występowania tej frakcji w aluwiiach.

Problem ten zbadano na dużych próbkach (o wadze 2 - 3 kg) pobranych z obszaru wschodniego obrzeżenia Karkonoszy. Następnie rozdzielono je na sitach na poszczególne frakcje i w każdej z nich oznaczono zawartość uranu. Wyniki zawartości ura-

Tabela II
ZAWARTOŚĆ URANU WE FRAKCJACH I UDZIAŁ FRAKCJI
W PRÓBKACH ALUWIÓW ZE WSCHODNIEGO OBRZEŻE-
NIA KARKONOSZY

Numer próbki	a - udział w % frakcji w uranum w g/t b - zawartość	Wielkość frakcji w mm						
		0,075	0,075-0,1	0,1-0,25	0,25-0,4	0,4-0,75	0,75-1,5	1,5-10,0
L1	a	1,4	0,6	6,0	6,2	7,9	11,9	66,6
	b	35,0	27,0	12,0	9,0	4,2	5,5	3,7
L2	a	2,1	0,7	6,1	6,2	8,2	17,6	59,1
	b	9,0	9,0	3,7	6,3	3,7	2,5	3,7
L3	a	3,0	0,8	6,2	9,0	14,7	17,4	49,0
	b	1,5	1,9	2,5	2,5	1,9	1,1	2,5
L4	a	2,1	1,0	9,3	13,0	17,0	20,4	35,2
	b	1,5	3,2	1,9	1,1	2,2	1,5	1,1
W5	a	2,1	0,8	6,8	8,0	18,0	29,1	35,1
	b	15,0	23,5	12,0	5,5	8,0	4,8	5,5
W6	a	0,2	0,2	0,3	0,9	3,5	10,6	84,3
	b	9,0	9,0	3,7	9,0	5,5	4,2	2,5
W7	a	0,4	1,2	1,2	0,4	10,1	16,6	69,9
	b	20,5	10,5	13,5	12,0	5,5	5,5	4,8

nu w poszczególnych frakcjach i procentowy udział frakcji w próbkach aluwiów zestawiono w tab. II oraz przedstawiono graficznie na ryc. 1.

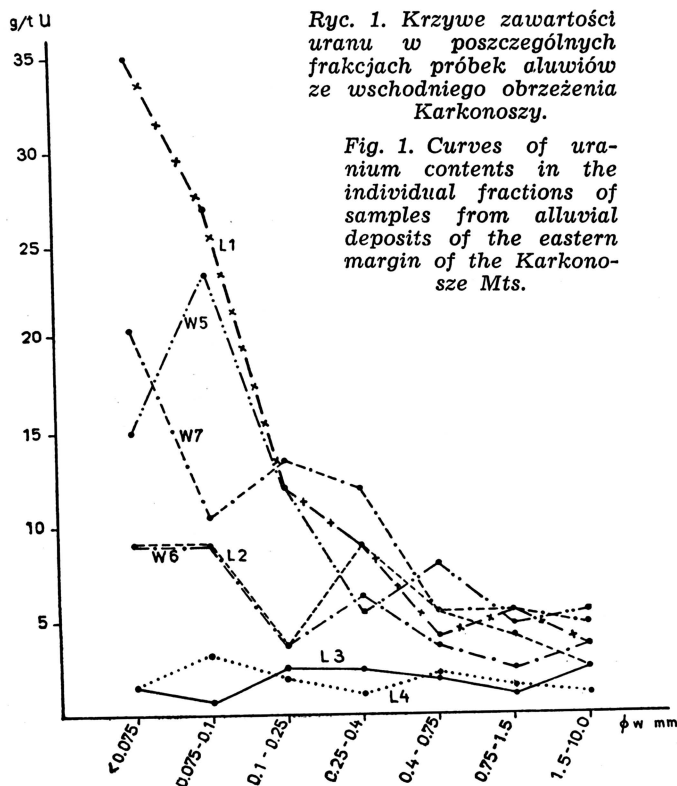
Z analizy tego wykresu wynika, że zawartości uranu we frakcji powyżej 0,4 mm są słabo zróżnicowane i odpowiadają prawdopodobnie nieco obniżonym zawartościom uranu w skałach macierzystych dla tych aluwiów. We frakcjach poniżej 0,4 mm zawartości uranu są znacznie zróżnicowane. W niektórych próbkach we frakcji o dużym udziale części ilastych zawartości uranu są znaczne i mamy tu prawdopodobnie do czynienia z uranem nagromadzonym na drodze sorpcyjnej.

Na podstawie uranometrycznego zdjęcia aluwialnego wschodniego obrzeżenia Karkonoszy obliczono średnią zawartość uranu (\bar{X}) oraz odchylenie standardowe (σ). Obliczenia dokonano na 246 próbkach zdjęcia aluwialnego. Średnia zawartość (\bar{x}) wynosi 1,8 g/t uranu, przy odchyleniu standardowym (σ) równym 1,03.

Przyjmując, że prawdopodobieństwo występowania wartości powyżej $\bar{X} + 3\sigma$ (zgodnie z rozkładem normalnym) dla danej populacji wynosi 0,0027, wszystkie próbki powyżej tej zawartości z prawdopodobieństwem powyżej 0,9973 można uznać za próbki anormalne nienależące do populacji tła. Wartość $\bar{X} + 3\sigma$ dla aluwiów wschodniego obrzeżenia Karkonoszy wynosi 4,9 g/t uranu.

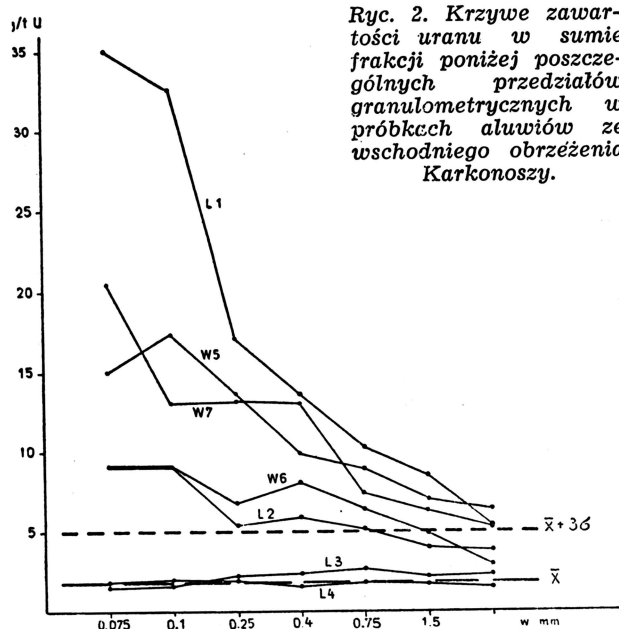
Na ryc. 2 przedstawiono zawartości uranu w sumie frakcji poniżej poszczególnych przedziałów granulometrycznych. Po przyjęciu wartości 4,9 g/t uranu, jako dolnej granicy dla próbek anormalnych, próbki L1, L2, W5, W6 i W7 są anormalne, natomiast próbki L3 i L4 należą do populacji normalnej. Zawartość uranu w próbkach normalnych nie zależy od wielkości frakcji oddanej do analizy i jest prawie stała o wartości zbliżonej do średnicy (\bar{X}).

Zawartości uranu w próbkach anormalnych są zróżnicowane zależnie od grubości frakcji. Najwyższe zawartości uranu występują we frakcjach najdrobniejszych, a więc zawierających znaczne ilości substancji ilastej. Ze wzrostem ziarnistości frakcji zawartość uranu maleje. Graniczną wartością grubości frakcji, przy której zawartości uranu są jeszcze anormalne (powyżej $\bar{X} + 3\sigma$) w stosunku do populacji tła, jest frakcja poniżej 0,75 mm. Wynika z tego, że przy uranometrycznym zdjęciu aluwialnym najbardziej



Ryc. 1. Krzywe zawartości uranu w poszczególnych frakcjach próbek aluwiów ze wschodniego obrzeżenia Karkonoszy.

Fig. 1. Curves of uranium contents in the individual fractions of samples from alluvial deposits of the eastern margin of the Karkonosze Mts.



Ryc. 2. Krzywe zawartości uranu w sumie frakcji poniżej poszczególnych przedziałów granulometrycznych w próbkach aluwiów ze wschodniego obrzeżenia Karkonoszy.

Fig. 2. Curves of uranium contents in all fractions below the individual granulometric ranges in samples of alluvial deposits of the eastern margin of the Karkonosze Mts.

kontrastowe zdjęcie uzyskuje się przy analizie chemicznej frakcji poniżej 0,1 mm. Wydzielanie frakcji drobniejszej od 0,1 mm nie ma istotnego znaczenia dla kontrastowości zdjęcia. Przy analizowaniu frakcji poniżej 0,25 lub poniżej 0,4 mm kontrastowość zdjęcia maleje niemniej zawartości uranu w próbkach anormalnych wyraźnie mieszczą się w przedziale zawartości anormalnych w stosunku do populacji tła.

Przy analizowaniu frakcji poniżej 0,75 mm w zasadzie wszystkie próbki anormalne mieszczą się jeszcze w przedziale zawartości anormalnych, lecz istnieje

je już niebezpieczeństwo, że przy słabych anomaliach mogłyby być uznane jako próbki tła. Analizując frakcję poniżej 1,5 mm lub próbki nie rozfrakcjonowane część próbek anomalnych może nie zostać wykryta.

WNIOSKI

1. W próbkach normalnych należących do populacji tła zawartość uranu nie zależy od grubości frakcji i utrzymuje się dla wszystkich frakcji mniej więcej na stałym poziomie.

2. W próbkach anomalnych występuje wyraźne zróżnicowanie zawartości uranu. Najbogatsze w uran są frakcje najdrobniejsze (poniżej 0,1 mm), ze wzrostem grubości frakcji zawartość uranu maleje. Potwierdza to sorpcję uranu z wód o anomalnych zawartościach uranu przez substancję ilastą.

3. Przy aluwialnych zdjęciach uranometrycznych najkorzystniejsze jest wydzielanie do analizy frakcji poniżej 0,1 mm. Zapewnia to maksymalną kontrastowość zdjęcia.

4. W przypadku braku odpowiedniej ilości materiału drobnoziarnistego w aluwialach można wydzielać do analizy frakcje poniżej 0,25 lub poniżej 0,4 mm. Powoduje to wprawdzie obniżenie kontrastowości zdjęcia, niemniej pozwala na wykrycie wszystkich próbek anomalnych.

5. Podwyższenie granicy grubości analizowanej frakcji powyżej 0,4 mm nie powinno być stosowane, ponieważ część próbek anomalnych może pozostać nie wykryta.

6. Dla porównywania wyników danego rejonu geologicznego należy wydzielać do analizy zawsze tę samą frakcję.

SUMMARY

The paper deals with the process of appearance of uranometric anomalies in alluvial deposits. The researches made in several areas of Sudetes have shown that uranium content in stream alluvial deposits is lower than that in granitic (Tab. I). The study on uranium content in granitic granulometric fractions of the alluvial deposits concerns samples comprised in anomalous population and those characteristic of uranium content enclosed within the geochemical background of the sampling area. The results of uranium determination in the individual fractions are shown on Tab. II.

These results indicate that:

a) in normal samples belonging to the population of geochemical background, the uranium content does not depend upon the coarseness of fraction and keeps more or less steady,

b) in anomalous samples a distinct differentiation is observed in the uranium content. Highest uranium content appears in the finest fractions (below 0,1 mm in diameter). With the increase of grain size the uranium contents decrease.

When the finest fraction is lacking, the uranium determination for prospecting purposes may be made using a fraction below 0,4 mm in diameter. In analysing this fraction, the contrast of a survey becomes worse, nevertheless, all anomalous samples may be detected. Therefore, to obtain comparable results only identical fractions should be used for analysis.

LITERATURA

1. Giermanow A. J., Batulin S. G., Wołkow G. A., Lisicin A. K., Sieriebriennikow W. S. — Niektóre zakonomiornosti raspriedielenija urana w podziemnych wodach. Tr. II miezd. konf. po mirn. ispolz. atom. energii. Genewa 1958.
2. Illsley C., Bills C., Pollork G. — Some geochemical methods of uranium exploration. Proc. Intern. Conf. Peac. Uses of Atomic Energy, Geneva 1958.
3. Jeliński A. — Geochemia uranu w granitowym masywie Karkonoszy z uwzględnieniem innych masywów granitoidowych. Dolnego Śląska. 1962 (w druku).
4. Jęczalik A. — Rola substancji organicznej w geochemicznym cyklu uranowym. Prz. geol. 1959, nr 5.
5. Murakami Y., Fujiwara S., Sato M., Ohashi S. — Chemical prospecting of uranium deposits in Japan. Proc. Intern. Conf. Peac. Uses of Atomic Energy, Geneva 1958.
6. Rożkova J. W., Rozumnaja J. G., Sieriebriakowa M. B., Szczerbak O. W. — Rol sorbcji w koncentracji uranu w osadocznym poroach. Tr. II miezd. konf. po mirn. ispolz. atom. energii. Genewa 1958.
7. Szczerbina W. W. — Geochemija uranu w zonie okislenia rudnych miestorożdienij na osnowie eksperymentalnych issledowanij. Ibidem.
8. Tokariew A. N., Szczerbakow A. W. — Radiogidrogeologija. Gosgeotiechizdat. 1958.

РЕЗЮМЕ

В статье рассматривается процесс образования уранометрических аномалий в аллювиальных отложениях. По данным нескольких районов Судет доказывається, что содержание урана в аллювиальных отложениях ниже содержания этого элемента в породах (табл. I). Определялось содержание урана в различных гранулометрических фракциях аллювия. Исследованиями подвергались так пробы с аномальным содержанием, как и пробы с содержанием в пределах геохимического фона для данного района. Результаты определения урана в отдельных фракциях представлены в таблице II.

Результаты исследований приводят к следующим заключениям.

В нормальных пробах, располагающихся в пределах геохимического фона, содержание урана не зависит от величины фракции и находится приблизительно на одном уровне.

В аномальных пробах отмечается отчетливая дифференцированность содержания урана. Наибольшее содержание урана содержится в самой мелкой фракции (ниже 0,1 мм). С увеличением зерен содержание урана снижается.

При отсутствии самой мелкой фракции для поисковых целей можно использовать фракцию ниже 0,4 мм. При анализе этой фракции уменьшается контрастность съемки, однако удается выявить все аномальные пробы. Для возможности проведения корреляций необходимо выделять и анализировать всегда одну и ту же фракцию.