

Köprübaşı uranyum yataklarındaki doğal radyoaktif dengesizlik hakkında

About natural radioactive disequilibrium in Köprübaşı uranium deposits.

HÜSEYİN YILMAZ Dokuz Eylül Üniversitesi, Mühendislik Fakültesi Jeoloji Bölümü, Bornova - İZMİR.

ÖZ : Köprübaşı'nda Neojen alüvyal yelpazesinin çakıltası ve kumtaşları içinde uzamış mercerler biçiminde bulunan uranyum yataklarının çoğu oksitlenmiştir. Metamorfik temelin hemen kıyısında yer alan oksitli yataklar jarosit - vaylandit tipi ve ilmenit - manyetit tipi olmak üzere ikiye ayrılmıştır. Oksitlenmemiş uranyum yatakları ise pirit - siderit tipindedir. Kumtaşı ve çakıltası içinde uranyum, kayaç hamurunda saçılmış olarak bulunur.

Laboratuvar gamma ışın spektrometresi ile bulunan uranyum miktarları (eU) kimyasal yolla bulunan değerlerden (U) oldukça daha yüksektir. Çoğu yatakların radyometrik uranyum miktarları kimyasal uranyum miktarlarından %30-40 daha yüksektir. Ayrıca aynı yataklarda bulunan toryum miktarlarının 40 ppm ile 340 ppm arasında değiştiği saptanmıştır. Böylece cevher sondajlarından elde edilen uranyum tenörü, gerçekte radyometrik uranyum (eU) ve toryumun toplam değeri olmalıdır. Bütün bu verilerin ışığı altında Köprübaşı'nda bulunan uranyum yataklarının rezervleri yeniden gözden geçirilmelidir.

ABSTRACT : At Köprübaşı most of the uranium deposits occurring in tabular lenses in conglomerates and sandstones of the Neogene alluvial fan are oxidized. These deposits can be divided into jarosite - vaylandite - rich and ilmenite - magnetite - rich types both of which occur near exposures of metamorphic basement rocks. The unoxidized uranium deposits are called as pyrite - siderite - rich type. Uranium is disseminated in the matrix of conglomerates and sandstones.

Uranium contents found by laboratory gamma - ray spectrometric measurements are mostly much higher than those found by fluorimetric analysis. Radiometric uranium contents (eU) in most deposits are 30 to 40 % greater than those of chemical uranium (U). Thorium contents found in the same deposits range between 40 to 340 ppm.

Therefore, ore grades in the deposits obtained by the gross gammabore hole techniques are, in fact, the total of radiometric uranium (eU) and thorium contents. Under the light of these data, the reserves of the uranium deposits in the Köprübaşı area must be reconsidered.

GİRİŞ

Bu çalışmada kullanılan örnekler Kasar, Tüllüce, Eciğ litaş, Tomaşa Beynamaz, Topallı ve Taşharman uranyum yatakları veya çevresinden alınmıştır (şekil 1, çizelge 1), Çalışmanın amacı Köprübaşı ve çevresindeki oksitli uranyum yataklarında görülen doğal radyoaktif dengesizlik ve bunun rezerv saptamaları sırasındaki olumsuz etkisini ortaya koymaktır. Ayrıca yataklardaki toryum miktarlarının yüksek oluşu ve bunun rezerv hesaplamalarında yaratabileceği sorunlar ortaya konmuştur.

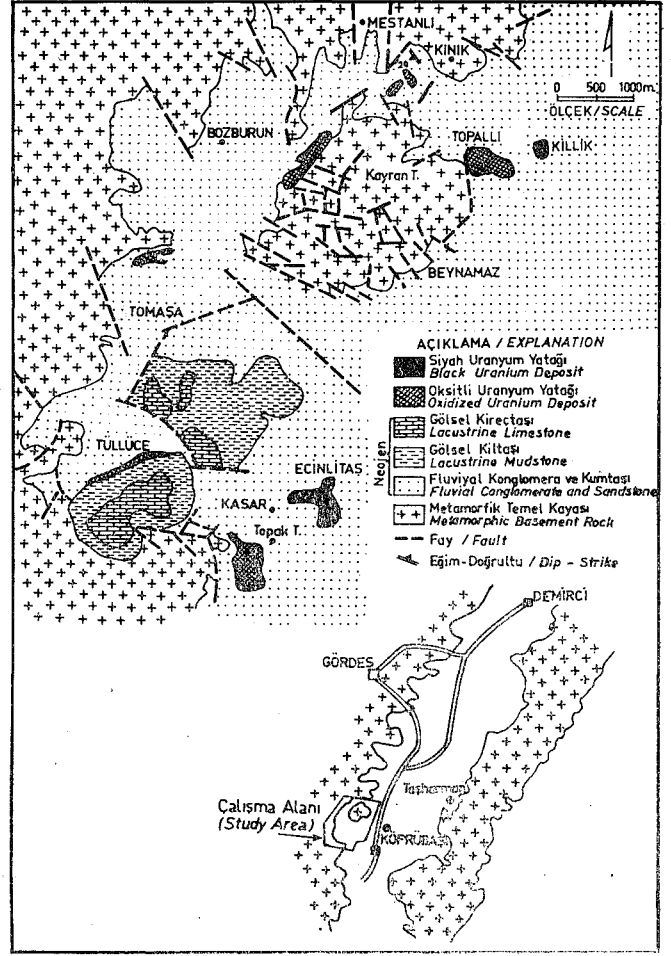
Uranyum analizleri Gamma - ışın - spektrometresi ile yapılmış ve eU değerleri (eşdeğer Uranyum) değerleri saptanmıştır. Bu yöntem ile 0.2 ppm'e kadar düşük miktardaki uranyum analiz edilebilir. Ayrıca kimyasal uranyum değerleri Florimetrik yöntem ile saptanmıştır. Bu yöntemin alt algılama sınırı 0.1 ppm dir. Toryum analizleri Gamma - ışın spektrometresi ile yapılmıştır. Bu yöntemin toryum için alt algılama sınırı 0.5 ppm dir. Gamma ışın spektrometresi ile elde edilen sonuçlarda % 2 lik bir hata payı vardır. Florimetrik yöntem ile yapılan analizlerin hata payı ise % 10 -15 arasındadır. Florimetrik analizde kullanılan örnek önce HF, HClO₄ ve HNO₃ ile çözülmüş ve elde edilen çözeltinin 1 mi si platin tabakta buharlaştırılmıştır. Geri kalan katı malzeme NaF - Na₂CO₃ karışımı ile ergitilmiştir.

Uranyum yataklarında rezerv saptamasında kullanılan olağan yöntem açılan kuyularda doğal gamma ışınlarının ölçümüdür. Ancak böyle bir ölçüm U²³⁸ ve bunun çürüme ürünlerinin (decay products) dengede olması durumunda geçerlidir. Radyoaktif cevherlerdeki dengesizlik uzun yıllar jeolog ve prospektörler için büyük bir sorun olmuştur. Dengesizliğin büyüklüğü ve sık rastlanması çoğunlukla umursanmamış ve bu nedenle uranyum rezervlerinin saptanmasında büyük yanlışlar olmuştur.

Eşdeğer uranyum (eU), radyoaktiviteyi üretecek olan beta - gamma radyoaktivitesinin ölçümüdür (Stuckless ve Ferreira, 1976; Rosholt, 1959). Radyoaktif dengesizlik sorunu gamma spektrometre ile uranyum tayini yapılması durumunda oldukça önemlidir. Laboratuvar ve saha spektrometre aygıtları ile kayalardaki uranyum yığılımlarını tayin etmede U²³⁸ çürüme serisindeki (decay chain) "Bi²¹⁴ ün ölçümünden yararlanılır; Bi²¹⁴ ün Po²¹⁴ e dönüşümü sırasında yayılan gamma ışınlarının ölçümü eU miktarlarının saptanmasında temeldir. Gamma ışın spektrometresi ile Bi²¹⁴ ölçülürse, Ra²²⁶ miktarı kendiliğinden ölçülmüş olur. U²³⁸ çürüme ürünleri il dengede olduğu zaman U²³⁵ miktarı da yukarıdaki ölçümden elde edilmiş olur (Rosholt, 1959). U²³⁸ in jeolojik işlevlerle zenginleşmesi veya kaybı dengesizliğe neden olur. Aynı durum U²³⁸ in çürüme ürünleri için de geçerlidir. Kimyasal uranyum (U) miktarı çoğunlukla florimetrik yöntemle tayin edilir.

KÖPRÜBAŞI URANYUM YATAKLARININ MİNERALOGİSİ

Köprübaşı uranyum yataklarında gözlenen detritik mineraller kuvars, feldispat, biyotit, muskovit, rutil, turmalin, zirkon, ilmenit manyetit, apatit ve diştendir; klorit ve illit gibi kil mineralleri de taşınmışlardır (Yılmaz, 1981). Plajiyoklamların çoğu illit tarafından ornatılmıştır. Biyotitler hemen hemen bütünü ile bozmuş ve klorite dönüşmüştür. İlmenitlerin çoğu lökoksit ve anatasa, man-



Şekil 1 : Köprübaşı uranyum yataklarının yeri ve jeolojisi.

Figure I : Location and geology of the Köprübaşı uranium deposits.

yetitler ise limonit veya hematite dönüşmüşlerdir. Oksitli uranyum yataklarında gözlenen otojenetik mineraller uranyum içeren jarosit - vaylandit karışımı ve schroecingerittir. Sarımsı ve sarımsı kahverenklerde beliren jarosit - vaylandit karışımı içinde, uranyum vaylandit bileşimindeki kalsiyumun bir bölümünün yerini almıştır; kayac gözeneklerini doldurur ve ince taneli yığılımlar biçiminde bulunur.

Oksitlenmemiş uranyum yataklarında gözlenen otojenetik mineraller ise pirit ve çok ince taneli kristal yığılımları biçiminde beliren siderit yumrularıdır. Bu tip yataklar içinde herhangi bir uranyum minerali saptanamamıştır. Ancak kayac hamuru içinden alınan preslenmiş malzemenin autoradyograf filimleri üstünde gösterdiği etki sonucu yalnızca uranyum varlığı saptanabilmiştir. Oksitli ve oksitsiz yataklar içinde gözlenen otojenetik kil mineralleri, çakılları bir film şeklinde gözlenen saran koyu yeşil renkli montmorillonit, feldispatları ornatılan illit ve biyotitler üstünde gelişen kloritlerdir.

KİMYASAL ÇALIŞMALAR

Cevherli ve cevhersiz zonlardan alınan örneklerin kimyasal uranyum (U), eşdeğer uranyum (eU) ve Toryum

Örnek No.	U (ppm)	eU (ppm)	Th (ppm)	Th/U	Açıklamalar	U için		eU için	
						\bar{x}	\bar{x}	\bar{x}	\bar{x}
SS - 6	26	70	38	1.46					
KOS ₃	11	98	29	2.64					
MG - 2	140	201	40	0.30					
MG - 4	380	762	57	0.15	Kasar oksitli uranyum cevheri				
KOS ₄	4	14	23	5.75					
KGS ₅	390	312	23	0.06	Kasar Yatağının Doğu Ucu	171		241	
KGS ₆	250	230	48	0.20					
S - S - 3 - 2	23	88	35	1.52	Tüllüce Oksitli Uranyum Yatağı				
SS - 32 - 2	399	514	73	0.18	Tüllücenin Kuzey Böğürü	211		301	
ECTS ₉	1600	202	202	0.13	Ecincitaş Oksitli Uranyum Zuhuru	1300		191	
ECTS ₂	1000	180	217	0.22					
SS - 36	350	1251	191	0.55	Tomaşa Oksitli Uranyum Yatağı	675		1960	
SS - 37	1000	2130	347	0.35					
SS - 48	40	106	38	0.95	Oksitli Uranyum Zuhuru Beynamaz Doğusu	40		106	
SS - 42	4.8	36	26	5.42	Topallı Yatağı Çevresi ve Tüf Tabakası	4		26	
Tf - 4	3.2	16	50	15.6					
Tf - 6	26	70	55	2.12	Mestanlı Cevheri Tüf Tabakası	26		70	
MQ - 12	2.8	121	25	9.6	Taşharman Metamorfik Şist				
MQ - X	3.8	1.0	186	49					
ECTA - 4	100	129	35	0.35	Ecincitaş Oksitsiz Uranyum	270		385	
ECTA - 3	440	642	88	0.20	yatağı.				

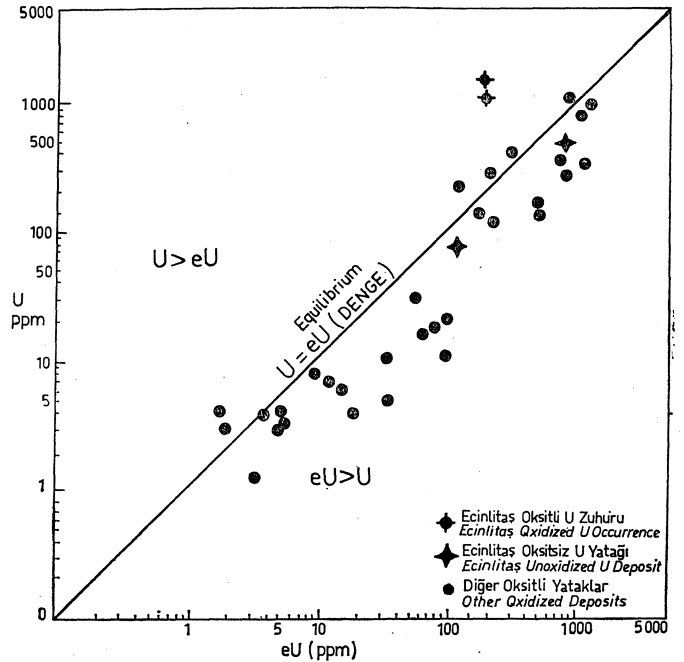
Çizelge 1 : Köprübaşı uranyum yataklarında U, eU ve Th miktarları.

Table 1 : U, eU and Th contents in uranium deposits in the Köprübaşı area.

(Th) değerleri ve Th/U oranları Çizelge 1 de verilmiştir. Burada görüldüğü gibi Kasar, Tüllüce, Tomaşa, Mestanlı ve Topallı oksitli uranyum yataklarındaki (şekil 1) eU değerleri, U değerlerinden çoğunlukla daha yüksektir (şekil 2). Ancak Ecincitaş yöresinde bulunan oksitli uranyum cevherleşmesinin eU değerleri U değerlerinden çok daha düşüktür (çizelge 1). U/eU oranı Kasar yatağının batı ve güney kıyılarından doğu kısmına doğru artış gösterir ve bu oran Toprak Tepede birden daha büyüktür.

U ve eU arasındaki dengesizlik çoğunlukla eU lehine gelişmiştir. eU ve U arasında oluşan dengesizlik yüzdesi düşük tenörlü örneklerde %900 e (çizelge 1, şekil 2) yüksek tenörlü örneklerde ise %200 e ulaşır. Ancak eU ve U arasındaki dengesizlik U lehine de gelişmiştir (çizelge 1), bu durumda dengesizlik %20 yi geçmez. Tüm yataklar için ortak özellik, kimyasal uranyum kaybının yüksek olmasıdır. Dengesizliğin kimyasal uranyum zenginleşmesi yönünde %800 e ulaştığı oksitlenmiş Ecincitaş cevherinde görülür. Oksitlenmemiş olan Ecincitaş cevherleşmesinde eU değerlerinin U nunkinden yüksek olduğu görülür.

Akarsu tortulları içindeki toryum miktarları oldukça yüksektir (çizelge 1). Kasar uranyum yatağındaki ortalama toryum değerleri 37 ppm dir. Ancak bu Tüllüce, Ecincitaş (oksitli zuhurda), Tomaşa, Beynamaz, Topallı ve Mestanlı'da toryum değerleri olağanın üstünde yüksektir. Özellikle Tomaşa ve Ecincitaş'ta 200 ppm nin üstündedir. Oksitlenmemiş Ecincitaş uranyum yatağında 80 ppm Th miktarı saptanmıştır. Ayrıca Taşharman uranyum yatağının güney ucunda bol jarosit damarları içeren milonitleşmiş metamorfik temelden alınan bir örnek 25 ppm Th ve 121 ppm eU ve 2.8 U içerir. Bundan başka aynı yörede meta-



Şekil 2 : Cevherli kayalardaki eşdeğer uranyum (eU) ve kimyasal uranyum (U) arasındaki denge ilişkileri.

Figure 2 : Equilibrium relationships between equivalent uranium (eU) and chemical uranium (U) in mineralized rocks.

morfik temelden alınan bir örnek de 3.8 ppm U ve 186 ppm toryum içerir, fakat eli miktarı gamma spektrometrenin duyarlılık sınırı altındadır.

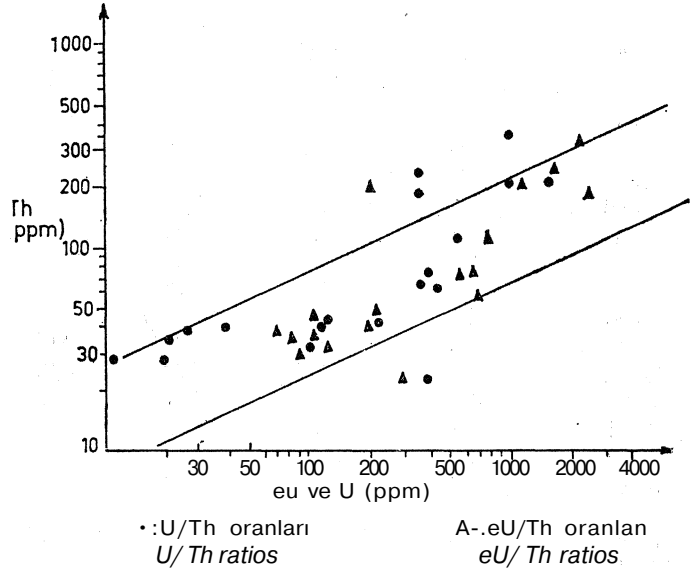
eU-Th ve U-Th miktarları arasındaki ilişki Şekil 3 te görülmektedir. eU 100 ppm ve Th ise 50 ppm den küçük olduğunda eU ve Th arasında pozitif bir korelasyon yoktur. Ancak eU ve Th miktarlarının yukarıda sözü edilen değerlerden yüksek olması durumunda ikisi arasında pozitif bir korelasyon bulunur (Şekil 3). U nun Th a göre davranışı da eU nunkine benzerdir.

TARTIŞMA VE SONUÇLAR

Eğer kimyasal uranyumdan (U) daha yüksek eşdeğer uranyum (eU) söz konusu ise, burada dengeye ulaşıldıktan sonra çürüme ürünlerinin bir dış kaynaktan kayaca katılması veya bir miktar kimyasal uranyumun (U^{238}) ortamdan uzaklaşması olasılığı vardır. Eşdeğer uranyumdan daha çok uranyum söz konusu ise, radyoaktif çürüme ürünleri kayacık içinde dengeye ulaştıktan sonra ortamdan uzaklaşmış veya U^{238} çürüme ürünleri ile henüz dengeye ulaşmamıştır. Uranyum (U) bileşikler, eşdeğer uranyum (eU) olarak bilinen ve radyoaktiviteden sorumlu çürüme ürünleri bileşiklerinden daha kolay çözünür. Böylece U ile eU arasında beliren dengesizliğin olduğu yerde uranyum (U) bileşiklerinin çözündüğü ve ilksel yığılma alanından uzaklaştığı ($eU > U$) veya uranyum bileşiklerinin çözeltiden çökelindiği ve henüz dengeye ulaşmadığı ($eU < U$) söz konusudur (Ostryhansky, 1976). Böylece kayalarda görülen U - eU dengesizliği çürüme ürünlerinden çok uranyumun zenginleşmesi veya bunun çökme ortamından uzaklaşmasının bir sonucudur, $U > eU$ olduğu kayalarda mineralleşme en az 250 bin yıl önce gerçekleşmiş olmalıdır ve yaklaşık bu süre içinde uranyumca zenginleşme olmuş veya uranyum son 250 bin yıl içinde yataklanmış ve henüz dengeye ulaşmamıştır (Pipiringos ve diğerleri, 1965).

Köprübaşı uranyum yataklarında bilinen dengesizliğin iki nedeni olmalıdır. Bunlardan birincisi uranyum yataklarının oluşumundan sonra oksitleyici yeraltı suyu veya dış kaynaklarca oksidasyona uğraması sonucu U^{238} yeniden çözülmüş ve bir bölümü aynı yatak içinde daha yüksek zenginleşmeye neden olmuştur. Buna en iyi örnek Kasar uranyum yatağıdır. Ancak çözünen U^{238} in büyük bir bölümü yataktan uzaklaşıp çökeltiler içinde dağılmıştır. Çoğu yataklar içinde $eU > U$ dur ve böylece yataklardaki eU^{238} un son 250 bin yıl içinde yıkanıp ortamdan uzaklaştırıldığı söylenebilir. Dengesizliğin bir diğer nedeni ise Köprübaşı graben fayları boyunca getirilmesi olası radyumdur. Ancak bunu kanıtlayacak herhangi bir çalışma yapılmamıştır.

Köprübaşı uranyum yataklarının rezervlerinin saptanmasında sondaj kuyularında kullanılan «Gamma - ışım ölçüm yöntemi» yalnız başına etkin olamaz. Gamma - ışım spektrometrik ve florimetrik tayinlerden anlaşılacağı gibi uranyum yataklarındaki U^{238} in bir bölümü (en az %30) kaybolmuştur. Bu kayıp %60 ile en çok Tomaşa'da görülür. Bunun yanında Th miktarlarının da yüksek olması rezerv toplamını etkileyecek en önemli bir katkıdır. Normal kayacın Th ve K undan gelen katkılar uranyumun 100 ppm den daha küçük olması durumunda oldukça önemlidir (Dodd ve Eschliman, 1972). Ancak Th miktarlarının normalin üstünde olduğu Köprübaşı uranyum yataklarında bu katkının çok daha yüksek tenörlü uranyum cevherlerinde de etkili olması gerekir. Bilindiği gibi duyarlı gamma ölçümleri yalnızca kuyulardaki toplam gamma aktivitesindeki değişim-



Şekil 3 : Analizi yapılan örneklerdeki Th ve eU, Th ve U arasındaki ilişki.

Figure 3 : Relationships between Th and eU and Th and U in analysed samples.

leri algılayabilir (Dodd ve Eschliman, 1972). Bu nedenle elde edilen değerler uranyum, toryum ve potasyumun toplam miktarlarına eşit olmalıdır. Kuyularda gamma ışın ölçümleri yapılırken potasyum ve toryumdan gelen değerler önemsenmez ve tümünün uranyumdan kaynaklandığı düşünülür. Ancak uranyum tenorunun genelde düşük ve toryum değerlerinin yüksek olduğu bu tip yataklarda toryum ve potasyumun da toplam aktiviteye katkıda bulunması olağandır. Kuyularda gamma ölçümlerine ilişkin ayrıntılı bilgi ilgili kaynaktan genişçe verilmiştir.

Sonuç olarak eU-U arasında beliren dengesizlik ve yüksek oranlardaki Th varlığı, Köprübaşı uranyum rezervlerinin, özellikle oksitlenmiş olanlarının saptanmasında önemli sorunlar doğuracaktır. Bu günkü bilinen rezervlerin güvenilirliği tartışmaya açıktır.

Yazının ilk geliş tarihi : Mart 1982

Yayıma verildiği tarih : Aralık 1982

DEĞİNİLEN BELGELEE

- Dodd, P.H., ve Eschliman, D.H., 1972, Borehole logging techniques for uranium and evaluation; Uranium Prospecting Handbook aa: Ins. Min. Metal., London, 244 - 276.
- Ostryhansky, L., 1976, Radioactive disequilibrium investigations, Elliot Lake Area, Ontario: Geol. Surv. Canada, Pap. No : 75 - 38.
- Pipiringos, G.N., Chisholm, W.A., ve Kepferle, R.C., 1965, Geology and uranium deposits in the Cave Hills Area, Harding County South Dakota: U.S. Geol. Surv. Prof. Pap., No : 476 - A, 1 - 60.
- Rosholt, J.N., 1959, Natural radioactive disequilibrium of the uranium series: U.S. Geol. Surv. Bull., No. 1084 - A, 1 - 29.
- Stuckless, J.S., ve Ferreira, C.P., 1976, Labile uranium in granitic rocks: IAEA - SM - 208/17, 717 - 728.
- Yılmaz, H., 1981, Genesis of Uranium deposits in Neogene sedimentary rocks overlying the Menderes Metamorphic massif, Turkey : Chem. Geol., 31,185-210.