

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 4 年 6 月 24 日現在

機関番号：11401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K03984

研究課題名(和文) 超塩基性深成岩体に胚胎される熱水性白金鉱床の生成モデル構築

研究課題名(英文) Formation of hydrothermal PGE deposits in ultramafic plutonic rocks

研究代表者

越後 拓也 (Echigo, Takuya)

秋田大学・国際資源学研究所・准教授

研究者番号：30614036

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究課題では、南アフリカ共和国ブッシュフェルト複合岩体北部に存在するウォーターバーグPGM鉱床についての鉱物学的・岩石学的・地球化学的研究を行った。なお、PGMとはルテニウム Ru、ロジウム Rh、パラジウム Pd、オスミウム Os、イリジウム Ir、白金 Ptの総称である。本研究では、熱水変質鉱物の詳細な記載および分析を行ったことで、酸化還元状態の異なる複数の熱水変質作用が存在したことが明らかになった。Sr-Mg同位体比分析からは、これらの現象を引き起こした熱水が岩体の外部由来ではなく、岩体が固結する際に発生したマグマ水によるものであることが示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

これまで白金族元素を含む鉱床はマグマが固まった出来たものと考えられてきたが、本研究結果によって、マグマが固結した後に発生するマグマ水による熱水変質作用がウォーターバーグ鉱床の形成やペグマタイト質超塩基性岩の形成に大きく寄与したことが明らかになった。これらの結果は、ウォーターバーグ鉱床に類似したPGM鉱床の探査に有用な成果であり、今後の脱炭素社会の形成に欠くことのできない白金族元素を確保するために有効な成果である。

研究成果の概要(英文)：We conducted mineralogical, petrological, and geochemical studies of the Waterberg PGM deposit in the northern part of the Bushveld Complex, South Africa. PGM consists of ruthenium (Ru), rhodium (Rh), palladium (Pd), osmium (Os), iridium (Ir), and platinum (Pt). Unlike other PGM deposits, the Waterberg deposit differs from other PGM deposits in that the re-migration of platinum group elements by hydrothermal alteration contributes to the formation of the deposit. The detailed description and analysis of the hydrothermal alteration minerals in the present study indicate the existence of multiple hydrothermal alteration events with different redox states and that chlorine-containing hydrothermal fluids contributed to the PGM remigration. The Sr-Mg isotope ratio analysis indicates that the hydrothermal fluids that caused these events was not derived from outside the intrusion, but from magmatic water generated during the solidification of the intrusion.

研究分野：鉱物学、金属鉱床学、地球化学

キーワード：南アフリカ共和国 成 Mg同位体組成 ブッシュフェルト複合岩体 結晶粒径分布 ウォーターバーグPGE鉱床 熱水変質作用 Sr同位体組成

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

## 1. 研究開始当初の背景

白金 (Pt) やパラジウム (Pd) に代表される白金族元素 (Platinum Group Elements: PGE) は排ガス浄化触媒や燃料電池材料に多用されるため、我が国にとり重要鉱種であるが、資源の地域的な偏在が著しい。例えば、2017 年における世界の白金生産の約 70%、白金埋蔵量の約 90% は南アフリカ共和国 (以下、南アと略記) 一国に集中している (USGS, 2018)。南アには世界最大の層状貫入岩体である Bushveld Igneous Complex (BIC) が存在し、その中にはメレンスキーリーフ、UG2 (Upper Group 2 の略)、プラットリーフをはじめとする大規模な PGE 鉱化帯が多数胚胎する。BIC には世界全体の PGE 資源量の 88% が潜在するとも言われ、近年も盛んに新規鉱床の探査が行われている。

本研究で主な研究対象とした Waterberg Project 鉱床 (以下 WP 鉱床と略記) は、日本の (独) 石油天然ガス・金属鉱物資源機構 (JOGMEC) とカナダの鉱山会社および南ア政府との国際合弁会社によって 2011 年に発見された比較的新しい PGE 鉱床である。2018 年 3 月に JOGMEC の権益の多くが日本の大手商社に引き継がれ、WP 鉱床は日本にとって最も重要な PGE 供給源のひとつとなった。WP 鉱床は前述のメレンスキーリーフや UG2、プラットリーフとは異なった岩石学的・鉱物学的特徴を示すため、その生成機構の理解や新規鉱脈の探査にあたり、これら既存の鉱床の研究から作られたモデルをそのまま適用することはできない。本研究では、WP 鉱床の岩石学的・鉱物学的特徴を詳細な観察および分析によって抽出し、新規 PGE 鉱床探査や PGE 鉱床開発の高効率化に貢献することを目的に設定した。

## 2. 研究の目的

WP 鉱床とその他の PGE 鉱床の大きな違いは、熱水変質作用が PGE 鉱床の形成に大きく関与している点である。前述のメレンスキーリーフや UG2 は典型的な正マグマ性 PGE 鉱床であり、マントルから発生したマグマが地殻上部に貫入し、徐々に冷え固まる間に PGE を含む硫化鉱物がマグマから晶出して鉱床を形成したものである。WP 鉱床もこれらの鉱床と生成機構は一部類似しており、PGE を含む初生的なマグマが貫入した後、冷え固まる間に PGE を高濃度で含む硫化鉱物が晶出する段階までは共通している。しかし、WP 鉱床では PGE 含有硫化鉱物がマグマから晶出した後、熱水変質作用によってそれらの硫化鉱物が分解し、PGE が再移動して鉱床が形成されている。本研究課題では、WP 鉱床の形成に寄与した熱水変質作用に着目し、以下の 3 つの疑問を明らかにすべく、鉱物学的あるいは地球化学的研究を行った：

- (2-1) WP 鉱床を作った熱水はどのような物理・化学的性質を持っていたのか？
- (2-2) 熱水の起源は超塩基性マグマなのか、鉱床を胚胎する珪長質岩や堆積岩なのか？
- (2-3) 熱水の寄与が大きい PGE 鉱石にはどのような組織が特徴的に発達するのか？

## 3. 研究の方法

本研究課題では、WP 鉱床における初生および二次的な PGE 鉱物の生成機構、熱水変質作用をもたらした熱水の起源 (マグマ由来か周囲の堆積岩由来か)、PGE 鉱化帯の岩石組織の発達過程を明らかにするため、(a) PGE 鉱物に付随する熱水変質鉱物の詳細な観察と分析、(b) 鉱石や母岩の微量元素組成および Sr-Mg 同位体比測定、(c) PGE 鉱化帯の岩石組織の定量的な解析を行った。それぞれについて、具体的な方法を以下簡単に説明する。

(a) PGE 鉱物に付随する熱水変質鉱物の詳細な観察と分析：秋田大学内に保有している WP 鉱床の岩石・鉱石試料の薄片を作成し、熱水変質で生じる二次鉱物の相同定、晶出順序の検討、化学組成の分析に基づく記載を行った。その後、変質鉱物組み合わせや変質進行度の違いに基づく変質強度の分類や温度・圧力条件の推定を行い、PGE 鉱化作用との関連を考察した。また、鉱物化学組成は秋田大学国際資源学部に設置されている電子プローブマイクロアナライザー (Electron-Probe Micro-Analyzer: EPMA, 日本電子社製 JXA-8230) で定量分析を行った。

(b) 鉱石や母岩の微量元素組成および Sr-Mg 同位体比測定：WP 鉱床を含む BIC 北リム地域には Hout River Shear Zone (HRSZ) をはじめとする大規模な断層帯が発達しているため、断層に沿って母岩や周囲の岩体から熱水が供給された可能性があるが、マグマが大部分固化した後に残るマグマ性流体による変質 (メタソマティズム) の可能性もある。WP 鉱床の形成モデルを構築するには、PGE 鉱化に関与した熱水の起源や流路を知ることが必要不可欠であるため、Sr-Mg 同位体比分析を行った。約 20.5 億年前に形成された BIC の Sr 同位体比 ( $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ) 初生値は 0.705 と当時のマントルの値 (0.702) に比較してやや高いが、花崗岩質岩石や堆積岩の一般的な値 (> 0.710) に比べると十分に低い。本研究課題では、熱水変質した PGE 鉱石の Sr 同位体比を測定することで、PGE 鉱化作用をもたらした熱水の起源が超塩基性マグマ由来なのか、珪長質岩や堆積岩といった鉱床を胚胎する母岩由来なのかを推定した。実際の測定は、(国研) 産業技術総合研究所・地圏資源環境研究部門・鉱物資源研究グループ (以下、産総研と略記) に設置されているマルチコレクター型 ICP-MS を用いて、荒岡博士 (研究分担者) が行った。

(c) PGE 鉱化帯の岩石組織の定量的な解析：WP 鉱床では、PGE 鉱化帯の斜長石 (白色部) や輝石 (暗灰色部) が非鉱化帯に比べて粗粒化しており、不均質な組織を呈する。このような不均

質な組織は、マグマの冷却速度の急激な変化や固化後の熱水変質、あるいはメタソマティズムに伴う再結晶作用に起因する可能性が高い。一方、非鉱化帯のような均質な組織は、全ての鉱物粒子がほぼ同時に核形成し、静的な環境下で結晶成長したことを示唆する。本研究課題では、塩基性岩を構成する鉱物粒子が粗粒化するメカニズムを明らかにするため、結晶粒径分布 (Crystal Size Distribution: CSD) を測定し、結晶成長機構の考察を行った。

#### 4. 研究成果

(a) PGE 鉱物に付随する熱水変質鉱物の詳細な観察と分析: WP 鉱床では、PGE 鉱化帯として「F-zone」と「T-zone」の2つがある。F-zone は WP 鉱床を構成する岩相のうち、最下部の「marginal zone」直上に位置し、主にハルツバージャイト、トロクトライト、パイロクシナイトといった超塩基性岩で構成される。その層厚は最大で 60m に達し、WP 鉱床の主要な PGE 鉱化帯と言える。T-zone は F-zone の上位に位置する「トロクトライト - ガプロノーライト - アノソサイト (TGA) 帯」から「磁鉄鉱含有ガプロ - ガプロノーライト帯」への遷移帯に位置し、その層厚は最大で 30m である。これら PGE 鉱化帯を構成する鉱物について、顕微鏡観察および局所化学分析によって熱水変質作用で生じた二次鉱物を詳しく検討した。その結果、F-zone では著しく蛇紋石化したカンラン石の粒間に磁硫鉄鉱、黄銅鉱、ペントランド鉱といったマグマ性硫化物が晶出していることが判明した。さらに、これらの硫化鉱物の一部は磁鉄鉱に置き換わっていることも明らかになった。このことは、F-zone での熱水変質作用は酸素分圧の高い熱水によるものであることを示している。一方、T-zone では斜長石や緑泥石の粒間に磁硫鉄鉱、黄銅鉱、ペントランド鉱、黄鉄鉱といったマグマ性硫化物が晶出していた。さらに、それらの硫化物は変質した斜長石の粒内に鉱染状に分布したり、石英脈に囲まれたりする産状を示す。このことは、T-zone での熱水変質作用は酸素分圧の低い熱水によるものであることを示している。

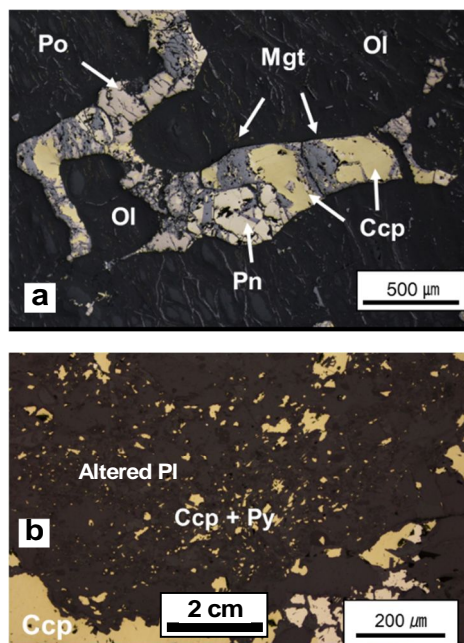


図 1. WP 鉱床における PGE 鉱化帯の熱水変質作用の違い: (a) F-zone (b) T-zone  
Ol: カンラン石 Po: 磁硫鉄鉱 Pn: ペントランド鉱  
Mgt: 磁鉄鉱 Ccp: 黄銅鉱 Py: 黄鉄鉱  
Altered Pl: 熱水変質した斜長石

(b) 鉱石や母岩の微量元素組成および Sr-Mg 同位体比測定: 本研究課題では、WP 鉱床を構成する岩石のうち、最下部の「Marginal Zone」、PGE 鉱化帯である「F zone」および「T zone」、それら鉱化帯の上位に位置する不毛帯の「Upper Zone」の試料について  $(^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr})$  初生値と  $\delta^{26}\text{Mg}$  (‰) =  $[(^{26}\text{Mg}/^{24}\text{Mg})_{\text{sample}} / (^{26}\text{Mg}/^{24}\text{Mg})_{\text{DSM3}} - 1] \times 1000$  を測定した。測定結果は表 1 に示すとおり、「Upper Zone」および「T Zone」は  $(^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr})$  初生値の変化幅が小さく、起源物質が比較的均質だったことを示唆する。「F zone」では  $(^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr})$  初生値が 0.7038 と最も低い箇所の近傍に Pt + Pd 濃度が高くなっており、初生的なマグマの注入があった可能性がある。「Marginal Zone」では他の試料に比べて  $(^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr})$  初生値が高くなっており、基盤岩である花崗岩やグラノフェルス (花崗岩と超塩基性岩が混在した岩石) と反応したことを示唆している。

表 1. WP 鉱床における  $(^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr})$  初生値分析の結果

分析試料	$(^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr})$ 初生値範囲	$(^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr})$ 初生値平均値
Upper Zone and T Zone	0.7071 ~ 0.7075	0.7072
F Zone	0.7038 ~ 0.7121	0.7076
Marginal Zone	0.7193 and 0.7235	左記 2 試料のみ測定

$\delta^{26}\text{Mg}$  (‰)については、全ての岩石が  $-0.43 \pm 0.09$  ‰ ~  $-0.20 \pm 0.09$  ‰の狭い範囲に収まること判明した(図 2)。これらの測定値はいずれも火成岩の典型的な  $\delta^{26}\text{Mg}$  (‰)範囲に収まるものであり、堆積岩のような幅広い  $\delta^{26}\text{Mg}$  (‰)を示さなかった。このことは、WP 鉱床における熱水変質作用には、周囲の堆積岩からの影響はほぼ無かったことを示唆する。

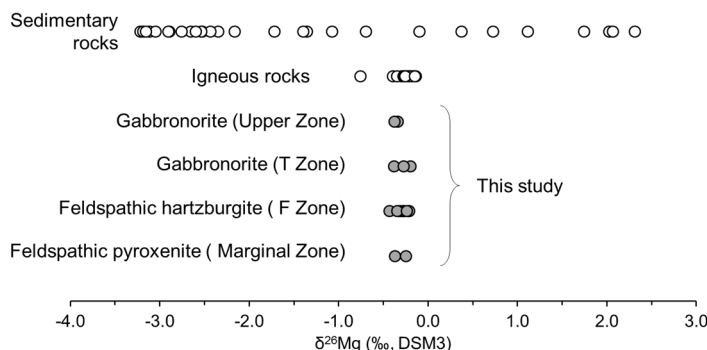


図 2. WP 鉱床を構成する岩石の  $\delta^{26}\text{Mg}$  (‰)と他の岩石の比較

(c) PGE 鉱化帯の岩石組織の定量的な解析：

本研究課題では、WP 鉱床のみならず BIC に一般的に見られる「Pegmatoidal pyroxenite」の形成機構について考察した。分析試料は「Tweefontein Pipe」とよばれるアノーソサイトに超塩基性岩が貫入した露頭で得られた試料である(図3)。この試料は単斜輝石を主とする超塩基性岩であるが、アノーソサイトとの境界部に近い領域では鉱物粒子が粗大化しており、境界部から離れると鉱物粒子が小さくなるという特徴を有する。通常、マグマが既存の岩体に貫入して固結する際には、壁となる母岩と接触する部分は急冷するために鉱物粒子が小さくなり、貫入岩体の中心部に近づくにつれて徐冷するために鉱物粒子が粗大化するのが一般的であるため、本研究課題で分析した試料は直感に反する岩石組織的特徴を示すといえる。一般的にペグマタイト質と呼ばれる岩石は花崗岩をはじめとする珪長質なものが多く、超塩基性岩や塩基性岩では鉱物粒子の粗大化メカニズムはよく分かっていない。本研究課題では、こうした粒径の違う超塩基性岩について薄片観察および SEM-EDS による鉱物化学組成分析、結晶粒径分布 (Crystal Size Distribution : CSD) 解析を行うことで、ペグマタイト質な超塩基性岩が形成するメカニズムを考察した。

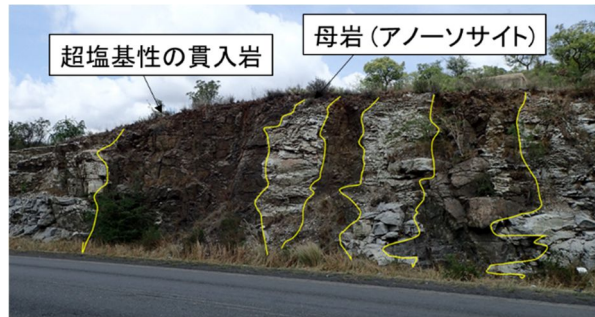


図 3. アノーソサイトに超塩基性岩が貫入した露頭

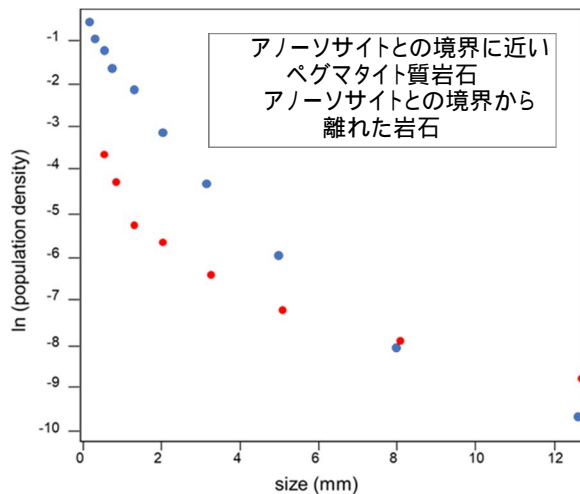


図 4. 超塩基性岩の粒径分布図

アノーソサイトとの境界に近いペグマタイト質岩石とアノーソサイトとの境界から離れた岩石について、それぞれ作成した粒径分布図を図4に示す。ペグマタイト質岩石の方が細粒結晶は少なく、粗大な結晶が多いことがわかるが、両方とも極大値を持たない分布を示し、粒径が小さいものから大きいものまで単調に減少する傾向を示した。このことは、「時間が経つにつれて小さい結晶は消滅し、大きな結晶はより大きくなる」というオストワルド・ライブニングに代表される粒径分布を大きく変化させる作用を被っていないことを示唆している。つまり、いずれの岩石も構成鉱物が核形成してから結晶成長するプロセスにおいて、一度発生した結晶はほぼ消滅することなく、一定の速度で成長したことになる。もしそうだとすると、アノーソサイトとの境界からの距離で粒径分布が大きく違うことの説明が出来ないが、薄片観察の結果、輝石や斜長石といった主成分鉱物ではな

く、副成分鉱物である角閃石に違いがあることが判明した。

アノーソサイトとの境界に近いペグマタイト質岩石を薄片観察すると、輝石や斜長石の粒間に角閃石が存在することが判明した。しかし、アノーソサイトとの境界から離れた岩石には角閃石はほとんど認められなかった。Cawthorn (2000) によると、同じ露頭から得られた岩石の Sr 同位体組成及び酸素同位体組成から、この貫入岩体は堆積岩由来の流体の影響を受けていないとされている。そのため、ペグマタイト質超塩基性岩に見られたホルンブレンドは貫入したマグマに含まれる水に由来するものと思われる。水などの揮発性成分を含むケイ酸塩メルトは無水のケイ酸塩メルトより粘性が低い (Giordano et al. 2008)、ペグマタイト質超塩基性岩を形成したマグマの粘性は相対的に低く、核形成ではなく結晶成長に優位な環境だったために構成鉱物が粗粒化した可能性がある。以上のように、BIC に特徴的なペグマタイト質超塩基性岩の形成は、揮発性成分の有無に大きく影響されていることが判明した。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 6件/うち国際共著 4件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Tupaz Carmela Alen J., Watanabe Yasushi, Sanematsu Kenzo, Echigo Takuya, Arcilla Carlo, Ferrer Cherrisse	4. 巻 10
2. 論文標題 Ni-Co Mineralization in the Intex Laterite Deposit, Mindoro, Philippines	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Minerals	6. 最初と最後の頁 57901 ~ 57932
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/min10070579	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 Tupaz Carmela Alen J., Watanabe Yasushi, Sanematsu Kenzo, Echigo Takuya	4. 巻 125
2. 論文標題 Mineralogy and geochemistry of the Berong Ni-Co laterite deposit, Palawan, Philippines	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Ore Geology Reviews	6. 最初と最後の頁 103686
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.oregeorev.2020.103686	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Suzuki Teruhiro, Satori Shota, Fujimaki Yuho, Watanabe Yasushi	4. 巻 70
2. 論文標題 Early Miocene metallogenic event formed the Bosawa low sulfidation epithermal gold deposit, Northeast Japan arc	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Resource Geology	6. 最初と最後の頁 378 ~ 388
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1111/rge.12248	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Sulaksono Adi, Watanabe Yasushi, Arribas Antonio, Echigo Takuya, Al Furqan Reza, Leys Clyde A.	4. 巻 -
2. 論文標題 Reduction of oxidized sulfur in the formation of the Grasberg porphyry copper-gold deposit, Papua, Indonesia	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Mineralium Deposita	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s00126-021-01040-9	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Bounliyong Patthana, Itaya Tetsumaru, Arribas Antonio, Watanabe Yasushi, Wong Henry, Echigo Takuya	4. 巻 71
2. 論文標題 K-Ar geochronology of orogenic gold mineralization in the Vangtat gold belt, southeastern Laos: Effect of excess argon in hydrothermal quartz	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Resource Geology	6. 最初と最後の頁 161 ~ 175
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1111/rge.12258	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Takuya Echigo, Mitsuyoshi Kimata, Misahiro Shimizu	4. 巻 70
2. 論文標題 Organic matters and acid-sulfate alteration in Itomuka mercury mine, Hokkaido, Japan: implications for the transportation and deposition mechanisms of Hg	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Resource Geology	6. 最初と最後の頁 204-213
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1111/rge.12225	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計7件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 1件)

1. 発表者名 吉田 柊平、越後 拓也、渡辺 寧
2. 発表標題 南アフリカ共和国ブッシュフェルト貫入岩体東部におけるペグマタイト質 輝岩の形成機構
3. 学会等名 JpGU-AGU Joint Meeting 2020: Virtual (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 吉田 柊平、越後 拓也、渡辺 寧
2. 発表標題 南アフリカ共和国ブッシュフェルト貫入岩体東部における ペグマタイト質輝岩の形成機構
3. 学会等名 日本鉱物科学会2020年年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 尾留川万季・渡辺寧・越後拓也
2. 発表標題 ブッシュフェルト複合岩体東縁 リンボ鉱山における白金族鉱化作用
3. 学会等名 日本鉱物科学会2020年年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 越後拓也
2. 発表標題 鉱山や火山に産する 非常識な鉱物結晶
3. 学会等名 2021年 応用物理学会春季学術講演会（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 越後拓也・河原礼佳・渡辺寧
2. 発表標題 北海道北見地域生田原周辺の含アンモニウムカリ長石
3. 学会等名 日本鉱物科学会年会2019年年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 越後拓也・河原礼佳・渡辺寧
2. 発表標題 北海道北見地域生田原周辺の含アンモニウムカリ長石
3. 学会等名 資源地質学会第69回年会学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 越後拓也・木股三善・清水雅浩
2. 発表標題 北海道イトムカ水銀鉱山における有機物の産出と硫酸酸性変質作用：水銀の運搬と沈殿に関する示唆
3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2019年大会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	星出 隆志 (Takashi Hoshide)  (20647565)	秋田大学・国際資源学研究科・助教  (11401)	
研究分担者	荒岡 大輔 (Daisuke Araoka)  (60738318)	国立研究開発法人産業技術総合研究所・地質調査総合センター・主任研究員  (82626)	
研究分担者	渡辺 寧 (Yasushi Watanabe)  (90358383)	秋田大学・国際資源学研究科・教授  (11401)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------