

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 10 日現在

機関番号：82626

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23760796

研究課題名(和文)イオン吸着型希土類鉱床の探査法の確立と資源量評価

研究課題名(英文) Establishment of exploration methods of ion-adsorption type REE ores and evaluation of resources

研究代表者

実松 健造 (Sanematsu, Kenzo)

独立行政法人産業技術総合研究所・地圏資源環境研究部門・主任研究員

研究者番号：40462840

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円、(間接経費) 1,020,000円

研究成果の概要(和文)：風化花崗岩を鉱体とするイオン吸着型希土類鉱床は重希土類の主要な供給源である。本研究ではミャンマー及びタイ南西部でイオン吸着鉱の成因解明、探査法の確立、資源ポテンシャルを見積もりを行った。イオン吸着鉱の形成には希土類含有鉱物の種類と風化耐性が重要であり、花崗岩中の希土類フッ素炭酸塩、褐レン石、チタン石が鉱化作用に望ましいことが分かった。風化花崗岩のCeの枯渇が大きい程、イオン交換性の希土類の割合・量は大きく、このCe異常が探査において重要な指標となる。調査地の風化殻の厚さは10m以下が多く、資源量は中国でいう小型(<1万t)や中型(5～50万t)に匹敵するものと見積もられた。

研究成果の概要(英文)：Heavy rare earth elements (HREE) are predominantly produced from ion-adsorption type REE (rare earth elements) deposits consisting of weathered granites. This study aims to elucidate the genesis of ion-adsorption type deposits, to develop an exploration method and to estimate a resource potential of REE.

Occurrences and weathering susceptibility of REE-bearing minerals have important roles in the ore formation. REE fluorocarbonates, allanite and titanite are preferable REE-source minerals for the ion-adsorption ores. Since Ce depletion of weathered granite is positively correlated with percentage or concentration of ion-exchangeable REE, the Ce anomaly is a good indicator in exploration of the REE ores.

Thickness of weathering crusts is mostly less than 10m in the surveyed areas. The mineral resources are estimated to small (<10,000 tonnes) to middle (50,000 - 500,000 tonnes) based on the definition of China.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・地球・資源システム工学

キーワード：希土類 資源 イオン吸着鉱 花崗岩 風化 吸着 熱水変質 ミャンマー

## 1. 研究開始当初の背景

(1) 希土類(REE: La-Lu)の中でも軽希土類(LREE: La-Eu)に比べ重希土類(HREE)は特に需給が逼迫しており、そのほとんどが中国南部のイオン吸着型鉱床から供給されている。この鉱床はイオン吸着鉱と呼ばれる風化花崗岩から構成され、REEが粘土等に吸着しているために、電解質溶液によるイオン交換でREEを回収できるという特徴を持つ。鉱石のREY(REE+Y)品位は280~3800ppm程度であり、高REY品位の鉱石はLREEに富むため必ずしもHREEには富まない。鉱石中の約50%以上のREYがイオン交換性である。風化殻の厚さは数m~29mであり、平均で10m程度である。鉱床が地表付近にしか発達しないため、一般に資源量は他のREE鉱床に比べて少ない。中国では鉱床を大型(鉱量50万t以上)、中型(5万t~50万t)、小型鉱床(1万トン以下)と分類しているが、イオン吸着型で大型鉱床なのは一部であり、ほとんどが中型・小型鉱床に分類されている。

(2) 中国以外ではイオン吸着型鉱床についてほとんど報告例がなく、中国国外ではどのような国に資源ポテンシャルがあるのか不明であった。また、中国ではこの鉱床に関する研究は元来国家機密であったこともあり、100箇所以上で鉱床が確認されているにも関わらず、公表された鉱床成因や探査法に関する研究は現在に至るまで極端に限られていた。

## 2. 研究の目的

(1) 本研究の目的は、イオン吸着型鉱床の成因を解明し、効率的な探査法を確立することである。特に、どのようなREE含有鉱物が風化してREEが粘土に吸着されたか、どのような過程でHREEに富むイオン吸着鉱が形成するかを明らかにする。

(2) もう一方の目的は、研究対象地のREY(REE+Y)品位、REY吸着率、風化殻厚さ、花崗岩の分布等から、資源ポテンシャルを評価することである。

## 3. 研究の方法

(1) 特にHREEに富む花崗岩が分布するミャンマー南部、タイ南西部を中心に野外調査を行い、花崗岩及び風化花崗岩を採取した。また、風化花崗岩の厚さについても調べた。

(2) 花崗岩・風化花崗岩は乾燥後、産業技術総合研究所において一部を破碎・粉碎し、全岩化学分析用の試料とした。四ホウ酸リチウムと混合した後、ビードサンプラー(ハルツォク HAG-M-HF)で溶融してガラスビード化した。主成分はXRF(リガク ZSX Primus III+)にて分析した。微量成分はALS Canada, Ltd.においてガラスビード化、混酸分解の後にICP-MSにより分析した。

(3) 風化花崗岩中のイオン交換性REYは産業技術総合研究所において分析をした。風化花崗岩試料を0.5mol/L硫酸アンモニウム水溶

液と24時間反応させ、遠心分離後に濾過液を抽出した。適当に希釈した後に、REEを含む微量元素濃度をICP-MS(Agilent 7500cx)を用いて分析した。

(4) 花崗岩の一部からは研磨薄片を作成し、風化花崗岩の一部からは研磨片を作成した。偏光顕微鏡またはSEM-EDSを用いてREE含有鉱物の同定と産状の観察を行った。

## 4. 研究成果

(1) ミャンマー南部、タイ南西部から角閃石含有黒雲母花崗岩、黒雲母花崗岩、白雲母含有黒雲母花崗岩等と、これらの風化花崗岩を採取した。ミャンマー南部では風化殻の厚さは5m以下と薄く、タイ南西部では3~12m程度と比較的厚かった。風化花崗岩は広く確認されるものの、中国南部の経済的なイオン吸着型鉱床の風化殻の厚さが平均10m程度であるのに比べると、調査地域は風化殻の厚さが十分でないといえる。

(2) 調査地域の花崗岩のREY含有量は39~770ppmと幅広い値を示した。特に、REY含有量が高かった地域は、ミャンマー共和国Thandaung地域や、タイ王国プーケット島であった。これらの花崗岩の多くはアルミナ飽和度[モル濃度で $Al_2O_3 / (Na_2O + K_2O + CaO)$ ]が1.1以下であり、 $P_2O_5$ 含有量は0.15%以下と比較的低い値であった。

(3) 先に示したREYに富む花崗岩は必ずしもHREEに富むわけではない。特にHREEに富む花崗岩が見られたのは、ミャンマーのThandaung地域の他に、タニンダーリ管区Myiek市周辺であった。HREEに富む花崗岩は結晶分化作用が進行しており、 $SiO_2$ 含有量がおおよそ74%以上で、特に $P_2O_5$ 含有量に乏しい(0.06%以下)特徴が見られた。HREEに富む理由としては、結晶分化作用によりリン灰石が晶出し、残りのメルトが相対的にLREEに乏しくHREEに富むようになったものと推定される。

(4) 風化花崗岩中のREY含有量は原岩花崗岩のREYを反映しており、最大で1158ppmであった。風化花崗岩中のLREE/HREE比は原岩花崗岩中のその影響を強く受けていた。すなわち、LREEまたはHREEに富む花崗岩は、それぞれLREEまたはHREEに富む風化花崗岩を形成していた。このことから風化または吸着過程におけるLREEとHREEの分別の影響は小さいと考えられる。

(5) 風化花崗岩中のREY吸着率(100×イオン交換性REY濃度/全岩REY含有量)はミャンマー南部では2~63%であり、タイ南西部では7~82%であった。中国のイオン吸着鉱は約50%以上のREYが吸着して存在しているため、調査地の風化花崗岩の一部は中国の鉱石に匹敵するものであると言える。

(6) 花崗岩の研磨薄片を偏光顕微鏡及びSEM-EDSで観察・分析した結果、以下のREE含有鉱物がイオン吸着鉱のREEとして重要であることが分かった。褐レン石-(Ce)、リン

灰石、チタン石、ジルコンが主要な希土類含有鉱物であった。特に分化した花崗岩においては、褐レン石-(Ce)やチタン石があまり産出しなくなる一方、熱水性の REE フッ素炭酸塩、モナズ石、ゼノタイム、褐レン石-(Y)らしき鉱物などが確認された。

(7) 先行研究および本研究での顕微鏡・SEM 観察の結果から、REE フッ素炭酸塩や REE 含有珪酸塩(褐レン石やチタン石)は風化過程で変質し、酸性の土壤水中に REE が溶出しやすいことが分かった。REE 含有珪酸塩は花崗岩の自生変質作用の過程において REE フッ素炭酸塩などを含む二次鉱物に置換されることが多い(図 1)。このような変質鉱物は細粒であり比表面積も大きいいため、マグマ性の鉱物に比べてより風化しやすいと推測される。

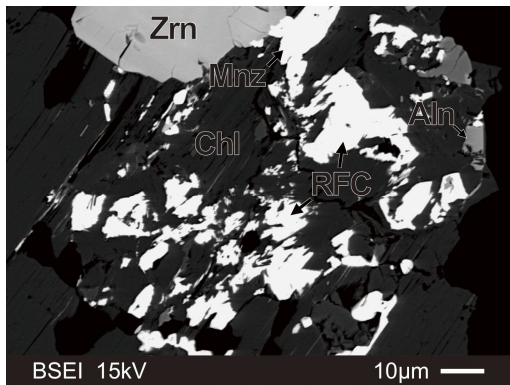


図 1 自生熱水変質作用を被った花崗岩の SEM 反射電子像写真。マグマ性び「褐レン石(Aln)が熱水性の REE フッ素炭酸塩やモナズ石に置き換えられている。黒雲母は緑泥石(Chl)に変質している。ジルコン(Zrn)はほとんど変質していない。

(8) 先行研究および本研究での顕微鏡・SEM 観察の結果から、REE リン酸塩(モナズ石やゼノタイム)はイオン吸着鉱物の形成に適さないことが分かった。これらの鉱物は他の REE 含有鉱物に比べて風化耐性が強く、長期間の風化を被っても REE の大部分を鉱物中に保持したままである。REE 含有リン酸塩であるアパタイトは花崗岩に普遍的に含まれる鉱物であり、風化耐性は弱いだが、二次 REE リン酸塩鉱物(ラドフェーンやフローレンス石など)に置換されるため、土壤中に溶解する REE は少ない。結果として、リン酸塩に乏しい花崗岩がイオン吸着鉱物の原岩として適する。

(9) (8)で示したようなリン酸塩に乏しく、REE フッ素炭酸塩、褐レン石、チタン石などを含む花崗岩地表に付近に露出すると化学風化を被る。地表付近は二酸化炭素と腐植酸により土壤水が酸性であるため、これらの鉱物中の REE は土壤水中に溶解し風化殻の下部に移動する。ただし、地表付近は酸化的な環境であるため、Ce は 4 価の  $CeO_2$  として固定されることが多く、その他の 3 価の REE は、風化殻の下部程風化の程度が弱く、より未風化の造岩鉱物が存在するために酸性土壤水が

造岩鉱物と接触すると pH が上昇する。また、そこに地下水面が存在する場合、地下水は pH が高いために、土壤水の pH が増加する。これらの影響で pH が上昇すると REE の溶解度は下がり、粘土に吸着されるか、二次鉱物中に取り込まれるかして REE が固定される。結果として、一般に風化殻上部は REE に乏しく相対的に Ce に富む REE 溶脱帯であり、風化殻下部は REE が濃集し相対的に Ce に乏しい REE 濃集帯である傾向がある。

(10) REE は風化過程で(9)のように移動・固定するため、コンドライト規格化などによる Ce 異常(両隣の La, Pr に対して Ce が相対的に富んでいるか枯渇しているかの指標)を求めると、負の Ce 異常が強いほど(相対的に Ce に乏しいほど)、吸着している REE の割合・濃度が高いことが分かった(図 2, 3)。つまり、風化花崗岩が Ce に枯渇しているかどうかを調べれば、イオン交換の実験を行わずに、吸着している REE の割合・濃度を大まかに見積もることができる。これは、イオン吸着型鉱床の探査において重要な指標となる。

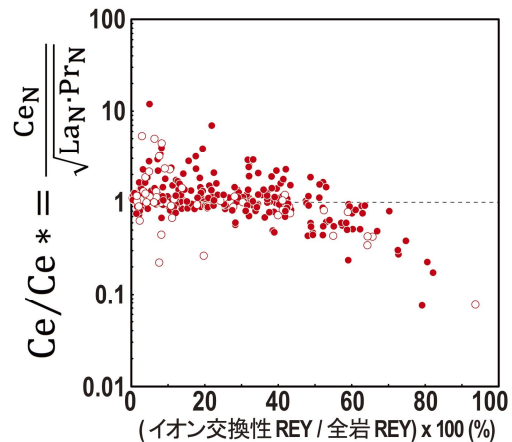


図 2 Ce 異常 ( $Ce/Ce^*$ ) と全岩 REY 含有量に対するイオン交換性 REY 濃度の割合との関係図。下付き N はコンドライト隕石の値で割って規格化したことを示す。赤塗りは風化岩で白抜きは熱水変質卓越風化岩。

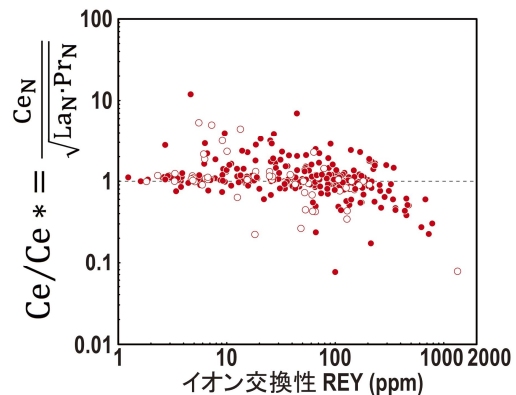


図 3 Ce 異常とイオン交換性 REY 濃度の関係図。

(11) イオン吸着鉱物の形成のために花崗岩は

化学風化を被る必要があるが、鉱床が現在に至るまで保存されるためには、削剥速度が遅い方が望ましい。一般に、削剥速度は年間降水量と正の相関があることが知られている。最近の削剥速度や年間降水量は花崗岩が風化を被ってきた時代のそれらとは若干異なるが、イオン吸着型鉱床が多数確認されている中国南部やベトナム北部は、ケッペンの気候区分において「温帯」に分類される。一方、本研究地のミャンマー南部やタイ南西部は、より降水量の多い「熱帯」に分類される。熱帯地域にもイオン吸着鉱は形成されるが、高い降水量はREEの脱着や、風化岩の削剥を促進する可能性も高い。よって、イオン吸着鉱の形成には温帯地域の方が熱帯地域よりも適すと推定される。

(12) 調査地域は風化殻の厚さ 10m 以下が多く、中国南部の鉱床(風化殻厚さ 10m 程度)と比べても資源量が少ないことが分かる。最も風化殻が厚かった(12m)タイのプーケット北部において、仮に風化殻 10m で 500m×500m の地域がイオン吸着鉱からなるとすると、適当な見かけ密度を用いて計算すると、資源量は 50 万 t と大まかに見積もられ、中国の中型鉱床に匹敵する規模である(中国の 5 万 t ~50 万 t)。一方、ミャンマー南部は風化殻が薄いため、小規模(資源量 1 万 t 以下)の鉱体と推定される。ただし、REE 品位、REE 実収率、LREE/HREE 比は鉱体によって様々であるため、資源ポテンシャルの評価は複雑である。例えば、本研究の結果、前述したプーケットの鉱体は比較的資源量は多そうであるが HREE には乏しく、ミャンマー南部は資源量は乏しいが、HREE には富むことが分かった。今後も LREE よりも HREE の方が資源として比較的需給が逼迫することが予想されるため、このような HREE に富む花崗岩体を対象に調査・探査する必要があると考えられる。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 3 件)

実松 健造、昆 慶明、Geochemical characteristics determined by multiple extraction from ion-adsorption type REE ores in Dingnan County of Jiangxi Province, South China, Bulletin of Geological Survey of Japan, 査読有、vol.64, no. 11/12, 2013, p. 313-330

URL: [https://www.gsj.jp/data/bulletin/64\\_11\\_01.pdf](https://www.gsj.jp/data/bulletin/64_11_01.pdf)

今井 亮、米津 幸太郎、実松 健造、生野 貴士、石田 晋吾、渡邊 公一郎、PISUTHA-ARNOND, Visut, NAKAPADUNGRAT, Somchai, BOOSAYASAK, Jarupong, Rare earth elements in hydrothermally altered granitic rocks in the Ranong

and Takua Pa tin-field, southern Thailand, Resource Geology, 査読有、vol. 63, no. 1, 2013, p. 84-98

DOI: 10.1111/j.1751-3928.2012.00212.x

実松 健造、昆 慶明、今井 亮、渡邊 公一郎、渡辺 寧、Geochemical and mineralogical characteristics of ion-adsorption type REE mineralization in Phuket, Thailand, Mineralium Deposita, 査読有、vol. 48, no. 4, 2013, p. 437-451

DOI: 10.1007/s00126-011-0380-5

[学会発表](計 6 件)

実松 健造、間中 崇行、Khin Zaw、Geochemical and geochronological characteristics of granites and Sn-W-REE mineralization in the Thanintharyi Region, southern Myanmar, 13th Regional Congress on Geology, Mineral and Energy Resources of Southeast Asia (GEOSEA2014)、2014年3月11日、ミャンマー連邦共和国ヤンゴン  
実松 健造、渡辺 寧、Characteristics and genesis of ion-adsorption type REE ores, Goldschmidt Conference 2013、2013年8月28日、イタリア共和国フィレンツェ

実松 健造、昆 慶明、間中 崇行、Khin Zaw、渡辺 寧、Geochemical and geological characteristics of ion-adsorption type REE ores in Indochina, Southeast Asia, 10th Annual Meeting of Asia Oceania Geosciences Society (AOGS2013)、2013年6月25日、オーストラリア連邦ブリスベン

実松 健造、昆 慶明、今井 亮、間中 崇行、Khin Zaw、渡辺 寧、Potential of weathering REE deposits in Southeast Asia, 資源地質学会第 62 回年会講演会、2012年6月27日、東京

実松 健造、昆 慶明、渡辺 寧、Genesis of ion-adsorption type REE ores in Thailand, European Geoscience Union (EGU) General Assembly 2012、2012年4月26日、オーストラリア共和国ウィーン

実松 健造、昆 慶明、今井 亮、渡邊 公一郎、渡辺 寧、Geochemical and mineralogical characteristics of ion-adsorption type REE mineralization: Implications for exploration, 資源地質学会第 61 回年会講演会、2011年6月23日、東京

## 6. 研究組織

(1) 研究代表者

実松 健造 (SANEMATSU, Kenzo)

産業技術総合研究所・地圏資源環境研究部門・主任研究員

研究者番号：40462840