

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 31 年 5 月 2 日現在

機関番号：32689

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K06931

研究課題名(和文)花崗岩類に伴われる熱水性金属鉱床の生成機構の解明

研究課題名(英文)Elucidation of formation mechanism of hydrothermal ore deposits accompanied by granitic rocks.

研究代表者

内田 悦生(Uchida, Etsuo)

早稲田大学・理工学術院・教授

研究者番号：40185020

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：カンボジアの貫入岩は、Mea Ping断層によって分けられる。北東部の貫入岩は、磁鉄鉱系、Iタイプに属するのに対し、南西部の貫入岩はイルメナイト系、I-Sタイプに属する。Sr-Nd同位体は、北東部の貫入岩がマントル起源であるのに対し、南西部の貫入岩では大陸地殻物質の影響が大きいことを示している。Rb-Sr年代測定は4つの貫入時期があることを示している。輝コバルト鉱、硫砒鉄鉱、サフロ鉱および砒鉄鉱に対する多元素同時分配実験からCoおよびNiがこれらの鉱物に入りやすいことが明らかになった。得られた分配係数-イオン半径図から分配曲線の勾配は、珪酸塩鉱物や複合酸化鉱物と比べて急であることが判明した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

カンボジアの貫入岩に関する系統的な研究は本研究が世界で初めてであり、本研究結果によりインドシナにおける地質構造発達史がより明確になった。このことから、鉱物資源探査の候補地の選定において意義のある情報を得ることができた。

元素分配実験に関しては、今までに情報がなかった硫砒化鉱物および砒化鉱物に対する情報を得ることができ、元素の分配挙動を支配する要因の解明において重要な情報を得ることができた。

研究成果の概要(英文)：Intrusive rocks in Cambodia are separated by the Mea Ping fault. Northeastern intrusive rocks belong to magnetite series and I-type, while southwestern intrusive rocks belong to ilmenite series and I type. The Sr-Nd isotopes indicate that the northeastern intrusive rocks originated from the mantle, while the southwestern intrusive rocks were largely affected by the continental crustal material. Rb-Sr dating indicates that there are four periods of intrusion.

Simultaneous ion exchange experiments on cobaltite, arsenopyrite, saffloite and loellingite show that Co and Ni are more likely to enter these minerals. In addition, it was found from the obtained distribution coefficient vs ionic radius diagrams that the gradient of the distribution coefficient vs ionic radius curves are steeper than those of silicate minerals and multiple oxide minerals.

研究分野：岩石・鉱物・鉱床学

キーワード：花崗岩類 カンボジア ベトナム イオン交換実験 輝コバルト鉱 硫砒鉄鉱 サフロ鉱 砒鉄鉱

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

金属鉱物資源なくして、高度に発展した現代社会を構築・維持することは不可能である。近年、BRICS 諸国を初めとした発展途上国における金属資源に対する需要の急激な増大により世界における金属資源の消費量は急増している。このような背景から金属資源価格は 2003 年以降高騰を続け、今後も資源価格の上昇あるいは高止まりが続くことは疑いの余地のないところである。すでに鉱物資源に対する国際的な争奪戦が展開されており、鉱物資源の確保は国家における最重要課題の一つであり、このような状況は今後さらに激化することが予想される。本研究では、金属鉱物資源の内、花崗岩類に伴われ、花崗岩類から放出された熱水の活動、あるいは、花崗岩類が熱源となって周囲の水が温められることにより生じた熱水の活動に関連して生成された熱水性鉱床の生成機構を解明し、花崗岩類に関連した熱水鉱化作用がどのような条件下で生じるかを野外調査ならびに高温・高圧実験を通して探り、効率的な資源の探査活動において有益な情報を取得することを本研究の目的とする。

また、熱水性鉱床の生成において、熱水が金属の良い運搬媒体となっていることから、熱水性鉱床の生成機構を明らかにする上で、超臨界条件下における熱水の物理化学的挙動を知ることが重要である。鉱床の生成に関与した熱水は、一般的には、NaCl を多く含有した塩化物水溶液である。このような塩化物水溶液の高温・高圧における物理化学的挙動に関して、今までに少なからず実験が行われているが、超臨界熱水条件下での実験は、実験の困難さや実験結果の解釈の困難さから、あまり行われていないのが実情である。このような背景から本研究では、鉱物と熱水間における元素分配に関する実験を通じて、超臨界熱水条件下での金属元素の挙動を探ることにより、熱水性鉱床の生成に適した条件を明らかにし、最終的に熱水性鉱床の探査活動において有益となる情報を得ることを目指す。

### 2. 研究の目的

地殻内での岩石 - 熱水間相互作用により熱水鉱化作用が生じ、この時、熱水は物質移動における重要な媒体となっている。本研究では、花崗岩類に伴って生成される熱水性鉱床を研究対象とし、その生成機構を明らかにすることを目的とする。この目的を達成するために、本研究では、カンボジアおよびベトナムの熱水鉱化作用に関連した花崗岩類を対象として野外調査を行うとともに、熱水性鉱床に産出する代表的な鉱物に対して高温・高圧における鉱物 - 熱水間元素分配実験を行い、超臨界熱水条件下での元素の挙動を明らかにする。今までに研究代表者が実施してきた鉱物 - 熱水間元素分配実験から、温度とともに圧力が鉱化作用に重大な影響を与えることが明らかになってきたことから、本研究では花崗岩類の固結深度と熱水性鉱床の生成との関係を明らかにすることを最終的な目標として、野外調査および高温・高圧実験を行い、熱水性鉱床の探査に有効な情報を得ることを目指す。

### 3. 研究の方法

花崗岩類の研究においてはカンボジアの花崗岩類を中心に調査を行うとともに、カンボジアに隣接するベトナムの南部においても調査を行った。調査では、花崗岩類の記載を行うとともに帯磁率測定を行った。また、できるだけ新鮮な花崗岩類を探して室内実験・分析のための岩石サンプルの採取を行った。持ち帰ったサンプルに対しては、薄片を作製して偏光顕微鏡を用いた記載を行った。さらに、採取したサンプルに対し、全岩化学組成分析、鉱物化学組成分析、および Sr-Nd-Pb 同位体分析を行った。これらの測定および分析結果を基に花崗岩類の成因に関する考察を行うとともに、鉱化ポテンシャルの評価を行った。

超臨界条件下における 2 価金属イオンと塩化物水溶液間における多元素同時分配実験では、輝コバルト鉱、磁鉄鉱、サフロ鉱、砒鉄鉱を対象に、Ni、Mg、Co、Zn、Fe、Mn に対する 500 から 800 °C、1kb の条件下で実験を行った。実験には標準的なコールドシール型高圧反応容器を使用して行った。実験後、固相と液相を分離し、固相に対しては粉末 X 線回折装置による生成物の同定およびエネルギー分散型 X 線マイクロアナライザーによる化学組成分析を実施し、液相に関しては ICP 発光分光分析装置による化学組成分析を行った。これらの結果を、分配係数 - イオン半径図 (PC-IR 図) としてプロットし、各元素の分配挙動に関する考察を行った。

### 4. 研究成果

#### (1) 貫入岩体に関する研究成果:

本研究では、特にカンボジアに産する貫入岩体を対象として調査・研究を行った。調査対象とした貫入岩体は図 1 に示した 21 岩体である。これらの岩体はカンボジアの北西部からトンレサップ湖を通って南東に至る Mea Ping 断層によって北東貫入岩体と南西貫入岩体とに分けられる。北東岩体には、Phnom Daek、Phnom Koy Rmeas、Svay Leu、Svay Chras、Phnom Soporkaley、Kon Mom、Koh Nheak、Andong Meas および Oyadav 岩体が属し、南西岩体には、Ba Phnom、Phnom Da、Kirivong、Phnom Tamao、Phnom Baseth North および South、Chumkiri、Phnom Aural North および South、Dar、Phnom Rab Bat および Ratanakmundol 岩体が属する。これらの岩体の帯磁率を測定した結果、北東岩体は、 $10 \sim 100 \times 10^{-3} \text{SI}$  単位の高い値を示し、南西岩体は、 $0.05 \sim 0.1 \times 10^{-3} \text{SI}$  単位の低い値を示した。これらの中に位置する Mae Ping 断層近くの Ba Phnom、Phnom Da、Phnom Aural North、Phnom Rab Bat および Dar 岩体では  $3 \times 10^{-3} \text{SI}$  単位前後の値を示し、このようにカンボジアでは帯磁率が北東から南西にかけて低くなることが明らかに

なった。

採取した岩石を粉碎し、カナダの Activation Laboratory にて主要元素及び微量元素を分析した結果、次のことが明らかになった。

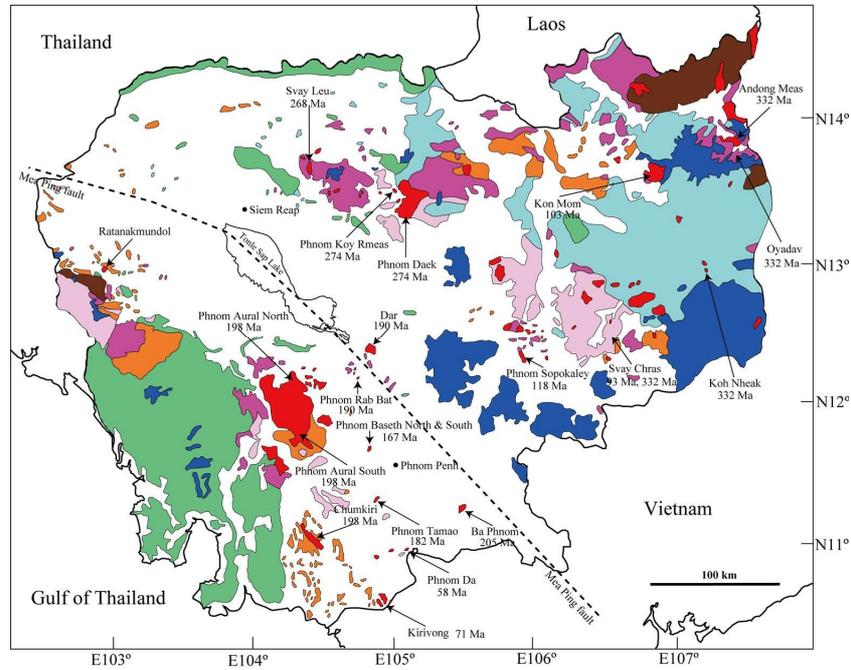


図1 カンボジアにおいて調査を行った貫入岩体の分布

**岩石の分類：**  $\text{Na}_2\text{O}+\text{K}_2\text{O}$  対  $\text{SiO}_2$  図 (図2) より、北東岩体は、非アルカリ岩に加えアルカリ岩が存在しているとともに、 $\text{SiO}_2$  含有量の範囲も広く花崗岩から斑レイ岩まで存在している。それに対し、南西岩体は  $\text{SiO}_2$  が高く、すべてが花崗岩に分類される。

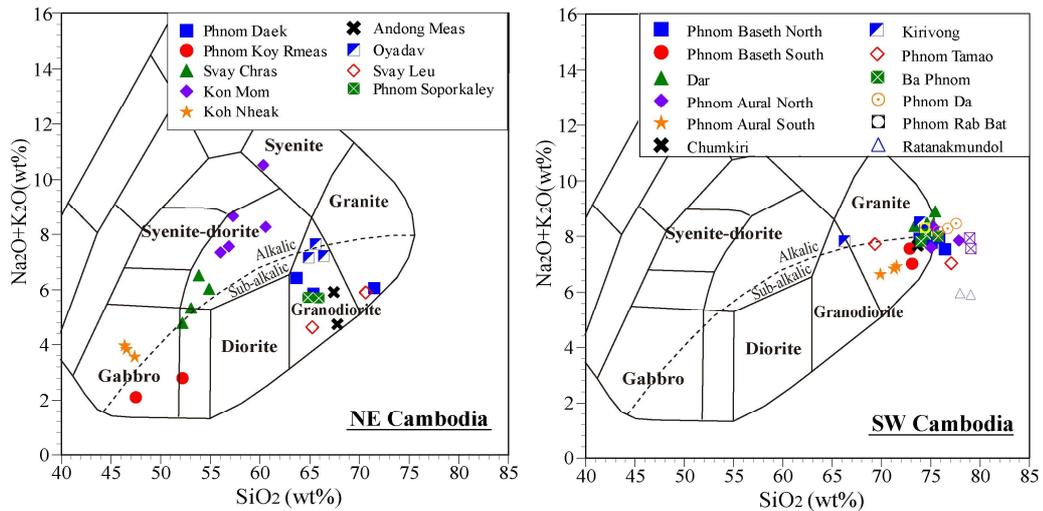


図2 カンボジアの貫入岩体の  $\text{Na}_2\text{O}+\text{K}_2\text{O}$  対  $\text{SiO}_2$  分類図

$\text{Na}_2\text{O}$  対  $\text{K}_2\text{O}$  図および  $\text{Al}_2\text{O}_3/(\text{Na}_2\text{O}+\text{K}_2\text{O})$  対  $\text{Al}_2\text{O}_3/(\text{CaO}+\text{Na}_2\text{O}+\text{K}_2\text{O})$  図によれば、北東岩体は、典型的な I タイプであり、metaluminous であるのに対し、南西岩体は、I タイプであるが、その多くが peraluminous である。なお、北東岩体の Kom Mon および南西岩体の Kirivong、Phnom Tamao および Phnom Da 岩体は A タイプに分類される。

Pearce (1984) の構造分類図によれば、北東岩体は基本的に火山弧岩体に分類されるが、南西岩体は、火山弧、衝突帯およびプレート内岩体の中間に分類される。

Defant and Drummond (1990) によるアダカイトの分類図によると北東岩体のうち、Koh Nheak、Andong Meas および Oydav 岩体はアダカイト質岩体に分類される。

**REE パターン：** コンドライトで標準化した REE パターンにおいて、北東岩体ではほとんど Eu の負の異常が見られないが、南西岩体ではすべての岩体において明らかな Eu の負の異常が認められ、南西岩体が還元的な条件下において生成されたことを示し、大陸地殻物質の影響が考えられる (図3)。

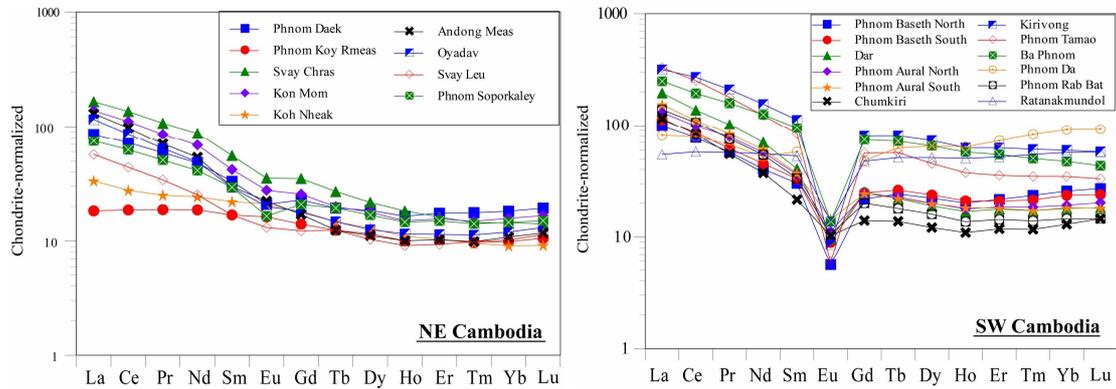


図3 カンボジアの貫入岩体に対するコンドライトで規格化したREEパターン

**Sr-Nd 同位体組成** : Sr および Nd 同位体初生値より(図4)、北東岩体はマントル物質起源であるのに対し、南西岩体では大陸地殻物質の影響が大きいことが明らかになった。

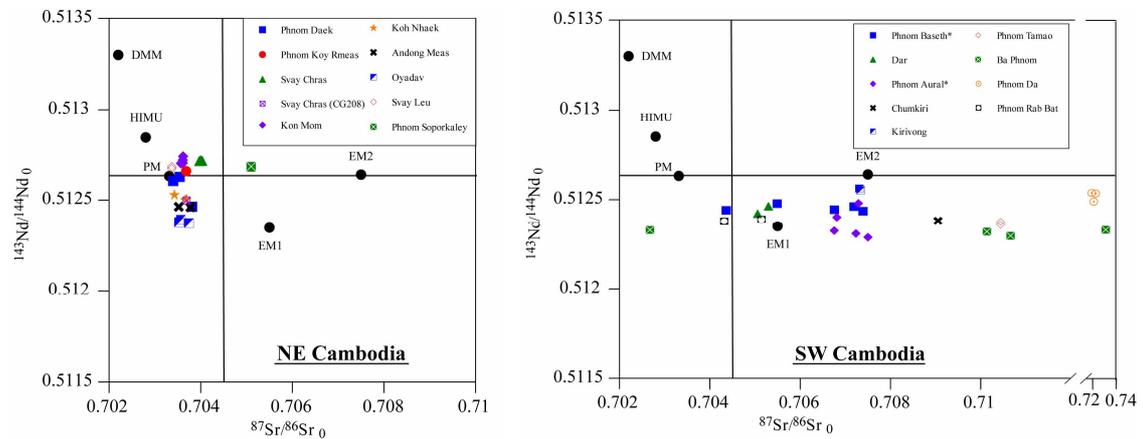


図4 カンボジアの貫入岩体に対する Sr - Nd 同位体初生値

**貫入岩体の Rb-Sr 年代と貫入岩体生成のテクトニクス** : Rb - Sr 年代測定値を図1に示す。年代は大きく4つに分けられる。北東岩体でベトナムの近くに分布する Andong Meas、Koh Nheak および Oyadav 岩体が 332Ma で最も古く、次に北東岩体の内、コラート高原近くに位置する Phnom Daek、Phnom Koy Rmeas、Sway Leu 岩体が古く、270Ma 前後の年代を示している。その次が、南西部の Phnom Aural、Dar、Phnom Rab Bat、Phnom Baseth、Chumkiri、Phnom Tamao、Ba Phnom 岩体が古く、およそ 180~200Ma の年代を示す。新しい年代を示す岩体は、Kon Mon、Phnom Sopokaley、Kirivong および Ba Phnom であり、60~120Ma の年代を示している。これらのことから、ベトナムの中部に存在する Kontum ブロックが、332Ma 頃にコラートブロックと衝突することより Andong Meas、Koh Nheak および Oyadav 岩体が生成され、次に、コラートブロックとカンボジア - マレーシア沖ブロックとが 270Ma 前後に衝突し、Phnom Daek、Phnom Koy Rmeas、Sway Leu 岩体が生成された。180~200Ma 頃になるとカンボジア - マレーシア沖ブロックとシブマス地塊とが衝突することにより Phnom Aural、Dar、Phnom Rab Bat、Phnom Baseth、Chumkiri、Phnom Tamao、Ba Phnom 岩体が生成された。その後、白亜紀になって古太平洋プレートがベトナム南東部から沈むことにより Kon Mon、Phnom Sopokaley、Kirivong および Ba Phnom 岩体が生成されたと考えられる。

(2)多元素同時分配実験に関する研究成果

今までに多くの珪酸塩鉱物および複合酸化鉱物に対して塩化物水溶液との間における多元素同時分配実験を行ってきた。そこで、本実験では、珪酸塩鉱物および複合酸化鉱物のようなイオン結合性の強い鉱物ではなく、共有結合性の強い硫化鉱物(硫砷化鉱物)および砷化鉱物を用いて実験を行った。硫化鉱物としては既に、黄鉄鉱および磁硫鉄鉱を対象に実験を行っているので、本研究では、硫砷化鉱物である輝コバルト鉱(CoAsS)と硫砷鉄鉱(FeAsS)および砷化鉱物であるサフロ鉱(CoAs<sub>2</sub>)と砷鉄鉱(FeAs<sub>2</sub>)を対象に Ni、Mg、Co、Zn、Fe および Mn の同時分配実験を行った。出発物質としてはいずれの鉱物に対しても天然のものを使用した。実

験は、コールドシール型高圧反応容器を用いて 1kb の条件下で行い、温度は、安定性の関係から輝コバルト鉱に対しては 500 ~ 800 °C で、その他の鉱物に対しては 500 ~ 600 °C で行った。

実験後、固相と液相を分離し、固相に対してはエネルギー分散型 X 線マイクロアナライザーを用いて化学組成を求めるとともに、粉末 X 線回折分析装置を用いて相同定を行った。液相に対しては ICP 発光分光分析装置を用いて化学組成分析を行った。得られた固相および液相の化学組成分析結果から分配係数を求め、6 配位金属イオンに対するイオン半径を用いて分配係数 - イオン半径図 (PC-IR 図) を作成した。その結果を図 5 に示す。なお、他の温度における PC-IR 図も 600 °C における PC-IR 図と大きな違いは認められなかった。

いずれの鉱物に対する PC-IR 曲線の勾配は、珪酸塩鉱物や複合酸化鉱物に対するものと比べて急である傾向が認められた。Co を主成分とする輝コバルト鉱およびサフロ鉱に対する PC-IR 曲線は互いに似ており、また、Fe を主成分とする硫砒鉄鉱および砒鉄鉱に対する PC-IR 曲線も互いによく似ている。また、硫砒鉄鉱および砒鉄鉱に対する PC-IR 曲線は既に行った鉄を主成分とする鉱物である黄鉄鉱および磁硫鉄鉱に対する PC-IR 曲線と似ている。Co を主成分とする輝コバルト鉱およびサフロ鉱では、PC-IR 曲線のピークは Co よりイオン半径が若干大きなところに位置している。それに対し、Fe を主成分とする硫砒鉄鉱および砒鉄鉱に対する PC-IR 曲線のピークは、Co を主成分とする輝コバルト鉱およびサフロ鉱の PC-IR 曲線のピークより若干イオン半径の大きなところに位置している。そのため、Fe の分配係数には両者において大きな違いがあり、輝コバルト鉱およびサフロ鉱に対して、硫砒鉄鉱および砒鉄鉱では Fe の分配係数が大きくなっている。

また、いずれも鉱物においても Ni は正の分配異常を示しているが、その分配係数は Co の分配係数よりも小さくなっている。Zn に関しては、いずれの鉱物においても明らかに負の分配異常を示しており、輝コバルト鉱、サフロ鉱、硫砒鉄鉱および砒鉄鉱において 2 価金属イオンが 6 配位席を占めていることから、同じく 6 配位席を持つ珪酸塩鉱物および複合酸化鉱物と同じ結果を示していると考えられる。

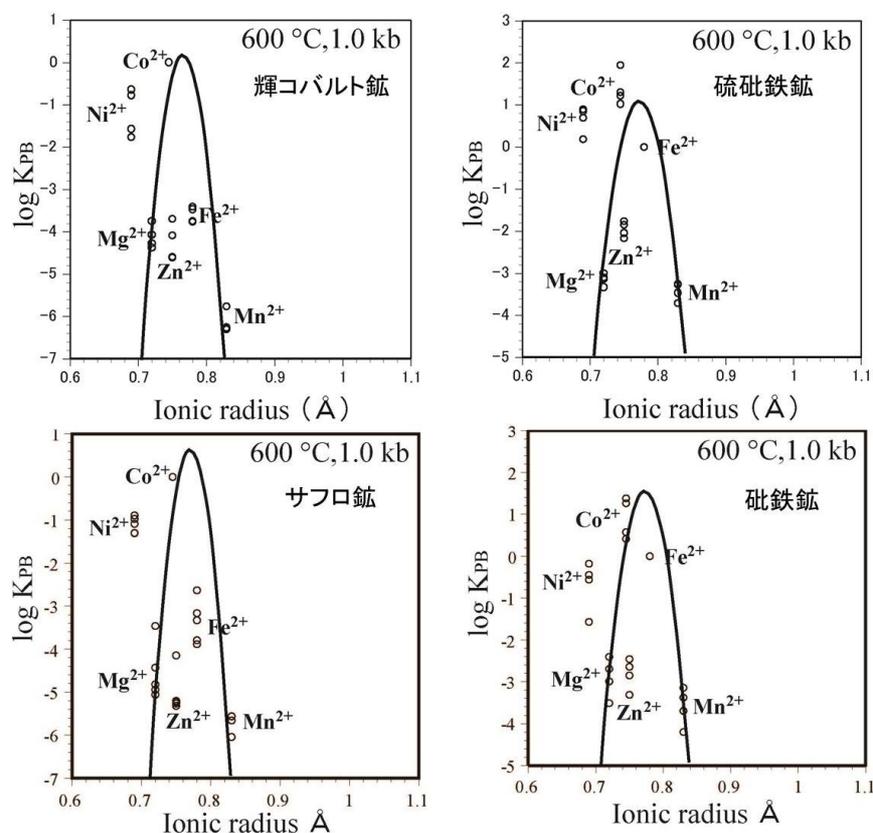


図 5 輝コバルト鉱、硫砒鉄鉱、サフロ鉱および砒鉄鉱に対する 600 °C、1kb における PC-IR 図

## 5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 3 件)

内田 悦生、和泉 裕也、渡辺 光、超臨界条件下における硫砒鉄鉱および輝コバルト鉱と塩化物水溶液間における 2 価金属イオンの同時分配実験、岩石鉱物科学、査読有、48 巻、2019、受理済

DOI: 10.2465/gkk.181112

内田 悦生、秦 佑輔、上村 宙生、超臨界条件下における黄鉄鉱あるいは磁硫鉄鉱と 2M 塩化物水溶液間での 2 価金属イオンの同時分配実験、岩石鉱物科学、査読有、46 巻、2017、124 - 134

DOI:10.2465/gkk.161219

Etsuo UCHIDA、Masakazu OSADA、Koki NAKAO、Major and minor element chemical compositional signatures of some granitic rocks related to metal mineralization in Japan、Open Journal of Geology、査読有、7、2017、559 - 576

DOI:10.4236/ojg.2017.74038

〔学会発表〕(計 2件)

鎌水 孝星、片寄 雅仁、CHENG Rathborith、申 基澈、内田 悦生、中野 孝教、カンボジア南西部に産する花崗岩類の化学組成と Sr-Nd-Pb 同位体組成、資源地質学会、2018年6月

片寄 雅仁、CHENG Rathborith、申 基澈、内田 悦生、中野 孝教、カンボジア北東部に産する花崗岩類の化学組成と Sr-Nd-Pb 同位体組成、資源地質学会、2017年6月

〔図書〕(計 0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0件)

名称：

発明者：

権利者：

種類：

番号：

出願年：

国内外の別：

取得状況(計 0件)

名称：

発明者：

権利者：

種類：

番号：

取得年：

国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

## 6. 研究組織

### (1) 研究分担者

研究分担者氏名：

ローマ字氏名：

所属研究機関名：

部局名：

職名：

研究者番号(8桁)：

### (2) 研究協力者

研究協力者氏名：片寄雅仁

ローマ字氏名：KATAYOSE Masato

研究協力者氏名：鎌水孝星

ローマ字氏名：YARIMIZU Kosei

研究協力者氏名：笠原直人

ローマ字氏名：KASAHARA Naoto