

令和 2 年 5 月 12 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究

研究期間：2018～2019

課題番号：18K14168

研究課題名（和文）高次元数理統計解析と多元素同位体分析で読み解く深海底のレアアース濃集メカニズム

研究課題名（英文）Elucidation of the REY-enrichment mechanism on deep sea floor based on high-dimensional statistical techniques and multi-isotope analyses

研究代表者

安川 和孝（Yasukawa, Kazutaka）

東京大学・大学院工学系研究科（工学部）・講師

研究者番号：00757742

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：本研究は、南鳥島周辺海域に分布する有望な新規レアアース資源「超高濃度レアアース泥」の生成機構の解明を目的とした。本研究では、総計1646試料×41元素の大規模データセットを独立成分分析とクラスター分析により解析し、5つの独立成分と10個の地球化学クラスターを抽出した。これらの空間分布の特徴から、超高濃度レアアース泥直下に堆積層の削剥が存在することが示され、底層流の強化がレアアースホスト鉱物を物理的に濃集させた可能性が示唆された。さらに、上記10クラスターを代表する試料群についてSr-Nd-Pb同位体分析を行い、碎屑性成分はタクラマカン砂漠や伊豆小笠原島弧火山などに由来する可能性が示唆された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の学術的意義は、近年発展が目覚ましいデータ科学的アプローチを資源工学・資源地質学分野に応用することで、一見均質な深海粘土が化学組成の統計的な特徴により明瞭に区別できることを示し、海洋底層流の強化によるレアアース濃集鉱物の物理的選別作用が有望なレアアース資源の形成に寄与したことを明らかにした点にある。本研究により、現在および過去の海洋底層流の強弱や流路といった物理的因子が、有望なレアアース泥の分布を推定する上で考慮すべき重要事項となった。現代社会の様々なハイテク機器に欠かせないレアアースの新規資源探査における新たな指針を提示したという点で、本研究の社会的意義は非常に大きい。

研究成果の概要（英文）：The purpose of this study was to clarify the genesis of “extremely REY-rich mud” around Minamitorishima Island, in the western North Pacific Ocean. In this study, I statistically analyzed a huge geochemical dataset composed of 1646 samples x 41 elemental contents by using independent component analysis and k-means cluster analysis. Then, five independent components and ten clusters were extracted. The spatial distribution of the geochemical clusters in the real space demonstrated that the extremely REY-rich mud is accompanied by sedimentary erosion, suggesting that an enhanced bottom current could have physically accumulated REY-hosting minerals in the sediment. In addition, Sr-Nd-Pb isotopic analyses were performed on the samples representing these 10 clusters. The results indicated that the detrital components of the REY-rich mud could have originated from the Taklimakan Desert and Izu-Bonin volcanos.

研究分野：資源工学，地球化学

キーワード：レアアース泥 海底鉱物資源 多変量解析 独立成分分析 クラスター分析 同位体分析 深海堆積物 地球化学

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、研究者個人に帰属されます。

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

レアアースは、世界の産業を牽引する最先端のハイテク製品や低環境負荷技術にとって必要不可欠な元素群である。2013年1月に南鳥島周辺の排他的経済水域 (EEZ) で発見された「超高濃度レアアース泥」は、極めて高品位のレアアース (特に産業上重要な重レアアース) を含んでおり (Iijima et al., 2016)、日本が独自に開発可能な新規レアアース資源となりうることから、その分布や資源量の把握が資源工学分野における新たな重要課題となっている。

広大な海洋底に分布する海底鉱物資源の探査には、資源の成因を科学的に理解し、資源生成に必要な環境条件を満たす有望海域を絞り込むという、理論的なアプローチが欠かせない。レアアース泥については、堆積物中の生物源リン酸カルシウム粒子 (魚類の歯や骨片等) が主にレアアースを保持している (Kashiwabara et al., 2014)。超高濃度レアアース泥は、周囲の堆積層に比して粗粒な生物源リン酸カルシウム粒子が異常濃集した特異な堆積層である (Ohta et al., 2016)。このような堆積層は、遠洋性堆積物に関する様々な先行研究においても報告事例がなく、その生成機構は未だ謎に包まれている。

2. 研究の目的

本研究では、南鳥島 EEZ における超高濃度レアアース泥の生成機構を解明することを目的とした。そのために、(1) 多変量統計解析による堆積物の化学組成データ構造の解読と、(2) 代表試料の Sr-Nd-Pb 同位体分析による物質循環・環境変動に関する情報の取得を行った。

3. 研究の方法

本研究では、2013年から2018年にかけて南鳥島周辺で実施された KR13-02, MR13-E02, KR14-02, MR14-E02, MR15-E01, MR15-02, MR16-07, KM17-14C の計 8 航海により採取された深海堆積物コア試料を研究対象とした。このうち 2016年度末までに採取されたコアから分取された 1,516 試料については、研究開始時点で主成分・微量元素の全岩化学組成データが利用可能であった。本研究ではまず、2017年12月～2018年1月に行われた KM17-14C 航海で採取したコアから分取した 134 試料について新規に全岩化学分析を行った。

堆積物試料は 40℃ で乾燥させた後、メノウ乳鉢・乳棒を用いて均質になるまで粉末化し、全岩化学組成分析に供した。主成分元素濃度については、ガラスビード法を用いた蛍光 X 線分析により分析を行った。微量元素濃度についてはフッ酸-硝酸-過塩素酸により分解した試料溶液を誘導結合プラズマ質量分析 (ICP-MS) により測定した。分析はいずれも東京大学大学院工学系研究科において実施した。

本研究で新規に取得した化学組成データと既存のデータを統合し、南鳥島周辺の深海堆積物 1,650 試料×41 元素から成る包括的な化学組成データセットを構築した。このデータセットに対して、独立成分分析 (independent component analysis, ICA) と k-means クラスタ分析 (k-means cluster analysis, KCA) を組み合わせた新しい統合的な多変量解析手法 (Iwamori et al., 2017) を適用した。

さらに、上記の統計解析結果に基づいて少数の代表試料を選定し、Rea and Janecek (1981) の手法を用いて大陸起源ダスト等の碎屑性成分を分離した。この碎屑性成分を酸分解し、Sr-Nd-Pb 同位体分析に供した。また、南鳥島周辺堆積物の全岩試料の Sr-Nd-Pb 同位体比が示す特徴についても検討を行った。同位体分析に係る前処理作業は国立研究開発法人海洋研究開発機構海域地震火山部門火山・地球内部研究センターが所有・管理するクリーンルームにおいて実施し、分析は同センターの表面電離型質量分析装置及びマルチコレクター ICP-MS を用いて行った。

4. 研究成果

(1) 南鳥島レアアース泥のスカンジウム資源ポテンシャルの検討

多変量統計解析に先立ち、既存の化学組成データの特徴を検討した結果、次世代の低環境負荷技術の鍵を握るとされるスカンジウム (Sc) が南鳥島レアアース泥に多く含まれることが分かった。Sc は、アルミニウムに少量添加することで軽量・高強度・高耐熱性を併せ持つ新合金となり、航空宇宙産業や自動車産業等での需要が見込まれている。また、固体酸化物形燃料電池の固体電解質の新たな原料としても期待されている。本研究の結果、南鳥島レアアース泥は Sc についても非常に大きな資源ポテンシャルを有しており、特に有望な地点では $1\text{ km}^2 \times 6\text{ m}$ の堆積層に現在の世界需要の 3~7 年分が賦存していることが明らかとなった。また、南鳥島レアアース泥中の Sc の大部分は、レアアースと同時に希酸で浸出可能であることも実験により示された。このことから、レアアース泥の開発時には Sc も併せて回収することで、経済性の向上が見込まれることを提案した。以上により、南鳥島レアアース泥は、現在の先端産業に必須の重レアアースと次世代の低環境負荷技術をもたらす Sc を同時に供給可能とする、極めてユニークな新資源であることが初めて明らかとなった。

(2) 統合的多変量解析に基づく南鳥島周辺堆積物の地球化学データ解析

本研究で用いた ICA-KCA の統合的多変量解析により、5 つの独立成分 (IC) と 10 のクラスターが抽出された。この 5 つの IC で、南鳥島周辺堆積物の化学組成データが持つ全情報量の 94.7% が説明される。抽出された IC は、レアアースを濃集した生物源リン酸カルシウムの影響や、マンガン、コバルト、ニッケルなどを高濃度で含むマンガン酸化物の影響、堆積層の深度に伴い変

化する碎屑性成分の化学組成変化などに対応すると考えられる。

また、上記 10 個の地球化学クラスターでラベリングした堆積物試料の実空間分布（各コアにおける海底面からの深度方向分布）は、ランダムではなく、海底面から深部に向かって、ある特定の順序を持って系統的に並んでいることが分かった。すなわち、各データクラスターは、多元素の化学組成によって定義される堆積層序ユニットを構成していることが明らかとなった。これは、より少数の特徴的な元素に着目して議論された「化学層序」と整合的な結果である (Tanaka et al., 2020)。

さらに、超高濃度レアアース泥層の直下に位置するデータクラスターは、コアによりまちまちであることが分かった。このことは、超高濃度レアアース泥層が堆積層内の不整合面に相当し、下位層準がコア毎に異なる割合で浸食されていることを示唆している。これら一連の特徴は、先行研究 (Ohta et al., 2016) により提案された以下の仮説を支持している。すなわち、強い底層流が生じたことにより、堆積粒子のうち細粒な粒子は吹き流され、粗粒で密度の大きい生物源リン酸カルシウム粒子が海底面付近に取り残された。この生物源リン酸カルシウム粒子は、周囲の海水からレアアースを非常に高濃度になるまで濃集する。こうした物理的な選別作用による生物源リン酸カルシウム粒子の選択的堆積が、堆積層内におけるレアアースの異常濃集に寄与した可能性がある。

(3) Sr-Nd-Pb 同位体比に基づく南鳥島周辺堆積物の起源の考察

まず、ICA を用いた予察的な検討を踏まえて選定した南鳥島周辺堆積物 26 試料の全岩 Sr-Nd-Pb 同位体比データと想定される堆積物起源成分の比較を行った。その結果、超高濃度レアアース泥は海水に近い値を示す一方で、南鳥島周辺堆積層序の最上位クラスターに相当する非レアアース泥の同位体比はアジア内陸部のタクラマカン砂漠～黄土高原の碎屑性成分に近い値を示した。このことは、太平洋プレートの移動に伴い、南鳥島周辺の堆積物中で卓越する成分の供給源が変化していることを意味する。すなわち、レアアース泥が堆積していた期間は大陸から遠く離れた遠洋域で、生物源リン酸カルシウムが海水由来の Sr や Nd を取り込みつつ堆積層内に蓄積され、レアアース泥が形成された。その後、現在の位置に近づくにつれて、偏西風により運搬されるタクラマカン砂漠～黄土高原由来の大陸起源ダストの堆積が卓越するようになったと考えられる。

続いて、上記 (2) で抽出された 10 個の地球化学クラスターについて、その中心 (centroid) に最も近い試料を各クラスターの代表試料とみなし、試料を選定した。これら 10 試料について、碎屑性成分を分離し、Sr-Nd-Pb 同位体分析を行った。その結果、全岩堆積物試料での検討結果と同様に、最表層とその直下に位置する 2 クラスターはタクラマカン砂漠に近い値を示した。また、最深部とその直上に位置する 2 クラスターも Sr 及び Nd の同位体比 ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 及び $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$) は最上位の 2 クラスターに近い値を示したが、 $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ の値にやや違いが見受けられた。南鳥島周辺堆積物の地球化学クラスター層序において、各クラスターの年代値は正確には分かっていないが、最表層部と最深部では少なくとも数千万年 (第四紀と白亜紀後期) 程度の年代差は存在すると考えられるため (Lancelot et al., 1990)、最深部クラスターの碎屑性成分の供給源については引き続き検討が必要と考えられる。一方、超高濃度レアアース泥の直上のクラスターは他の試料と異なる傾向を示し、火山起源成分の影響が考えられる。南鳥島周辺の北西太平洋には多数の海山やプレート沈み込みに伴う島弧火山が存在するが、同位体比の総合的な特徴から、上記クラスターに影響を与えているのは伊豆-小笠原弧のような島弧火山由来の成分であることが示唆された。最後に、非常にレアアース濃度の高い試料群においては、一般的な遠洋性粘土の処理法である Rea and Janecek (1981) の手法では生物源リン酸カルシウム成分の影響が除去し切れていないことも分かった。今後、全ての試料について碎屑性成分の起源を明らかにし、超高濃度レアアース泥層を含む南鳥島周辺堆積物の堆積史を系統的に読み解くため、リン酸カルシウム成分の影響を確実に除去するような前処理過程の改善が必要であることが示唆された。

(引用文献)

Iijima, K. et al. (2016) *Geochem. J.* **50**, 557-573.; Kashiwabara, T. et al. (2014) *Chem. Lett.* **43**, 199-200.; Ohta, J. et al. (2016) *Geochem. J.* **50**, 591-603.; Iwamori, H. et al. (2017) *Geochem. Geophys. Geosyst.* **18**, 994-1012.; Rea, D. and Janecek, T. (1981) *Init. Repts. DSDP.* **62**, 653-659.; Tanaka, E. et al. (2020) *Ore Geol. Rev.* **119**, 103392.; Lancelot, Y. et al. (1990) *Proc. ODP. Init. Repts.* **129**, 33-89.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Kazutaka Yasukawa, Junichiro Ohta, Kazuhide Mimura, Erika Tanaka, Yutaro Takaya, Yoichi Usui, Koichiro Fujinaga, Shiki Machida, Tatsuo Nozaki, Koichi Iijima, Kentaro Nakamura, Yasuhiro Kato	4. 巻 102
2. 論文標題 A new and prospective resource for scandium: Evidence from the geochemistry of deep-sea sediment in the western North Pacific Ocean	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Ore Geology Reviews	6. 最初と最後の頁 260-267
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.oregeorev.2018.09.001	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 -

1. 著者名 Yasukawa Kazutaka, Ohta Junichiro, Miyazaki Takashi, Vaglarov Bogdan Stefanov, Chang Qing, Ueki Kenta, Toyama Chiaki, Kimura Jun Ichi, Tanaka Erika, Nakamura Kentaro, Fujinaga Koichiro, Iijima Koichi, Iwamori Hikaru, Kato Yasuhiro	4. 巻 20
2. 論文標題 Statistic and Isotopic Characterization of Deep Sea Sediments in the Western North Pacific Ocean: Implications for Genesis of the Sediment Extremely Enriched in Rare Earth Elements	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Geochemistry, Geophysics, Geosystems	6. 最初と最後の頁 3402-3430
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.1029/2019GC008214	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 -

1. 著者名 Mimura Kazuhide, Nakamura Kentaro, Yasukawa Kazutaka, Machida Shiki, Ohta Junichiro, Fujinaga Koichiro, Kato Yasuhiro	4. 巻 186
2. 論文標題 Significant impacts of pelagic clay on average chemical composition of subducting sediments: New insights from discovery of extremely rare-earth elements and yttrium-rich mud at Ocean Drilling Program Site 1149 in the western North Pacific Ocean	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Asian Earth Sciences	6. 最初と最後の頁 104059
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.1016/j.jseaes.2019.104059	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 Tanaka Erika, Nakamura Kentaro, Yasukawa Kazutaka, Mimura Kazuhide, Fujinaga Koichiro, Iijima Koichi, Nozaki Tatsuo, Kato Yasuhiro	4. 巻 119
2. 論文標題 Chemostratigraphy of deep-sea sediments in the western North Pacific Ocean: Implications for genesis of mud highly enriched in rare-earth elements and yttrium	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Ore Geology Reviews	6. 最初と最後の頁 103392
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.1016/j.oregeorev.2020.103392	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 -

〔学会発表〕 計8件（うち招待講演 2件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 安川和孝, 藤永公一郎, 中村謙太郎, 岩森光, 加藤泰浩
2. 発表標題 新生代深海堆積物の地球化学データの多変量統計解析: 顕生代を通じた遠洋域の進化の解読へ向けて
3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2018年大会 (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Kazutaka Yasukawa, Chiaki Kawarabata, Erika Tanaka, Kazuhide Mimura, Kentaro Nakamura, Koichiro Fujinaga, Yasuhiro Kato
2. 発表標題 A quantitative constraint on the distribution of extremely REY-rich mud based on mass balance calculations of Nd in the ocean
3. 学会等名 Goldschmidt2018 (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 安川和孝, 中村謙太郎, 藤永公一郎, 岩森光, 加藤泰浩
2. 発表標題 資源成因研究における多変量統計解析の展開: レアアース泥への応用例
3. 学会等名 資源・素材2018 (福岡) (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 安川和孝・大田隼一郎・見邨和英・田中えりか・高谷雄太郎・白井洋一・藤永公一郎・町田嗣樹・野崎達生・飯島耕一・中村謙太郎・加藤泰浩
2. 発表標題 新規スカンジウム資源としての南鳥島レアアース泥のポテンシャル
3. 学会等名 第35回希土類討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 安川和孝・中村謙太郎・藤永公一郎・岩森光・加藤泰浩
2. 発表標題 統合的多変量解析に基づく北西太平洋深海堆積物の地球化学データ解析
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

1. 発表者名 Kazutaka Yasukawa, Kentaro Nakamura, Koichiro Fujinaga, Hikaru Iwamori, Yasuhiro Kato
2. 発表標題 Geochemical Characterization of REY-Rich Mud in the Western North Pacific Ocean by an Integrated Multivariate Analysis
3. 学会等名 Goldschmidt2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 安川和孝・田中えりか・宮崎隆・Vaglarov Bogdan・大田隼一郎・中村謙太郎・藤永公一郎・岩森光・加藤泰浩
2. 発表標題 南鳥島周辺レアアース泥の地球化学クラスター層序
3. 学会等名 日本地質学会第126年学術大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 安川和孝・田中えりか・宮崎隆・Vaglarov Bogdan・常青・大田隼一郎・中村謙太郎・藤永公一郎・町田嗣樹・岩森光・加藤泰浩
2. 発表標題 多変量解析及び同位体分析に基づく北西太平洋深海堆積物の地球化学的特徴
3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2020年大会
4. 発表年 2020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
--	---------------------------	-----------------------	----