

氏 名（本 籍）	トゥパス カルメラ アレン ハイメ（フィリピン）
専攻分野の名称	博士（理学）
学 位 記 番 号	国博甲第 7 号
学位授与の日付	令和 2 年 9 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研 究 科 ・ 専 攻	国際資源学研究科・資源学専攻
学位論文題目（英文）	フィリピン，ベロングおよびインテックス ニッケルーコバルト ラテライト鉱床の鉱物学と地球化学 (Mineralogy and geochemistry of the Berong and Intex Ni-Co laterite deposits, Philippines)
論 文 審 査 委 員	(主査) 教授 渡辺 寧 (副査) 教授 Andrea Agangi (副査) 教授 大場 司

## 論文内容の要旨

Ni laterites developed above ultramafic rocks contain a significant amount of Ni, and to some extent, Co and Sc. Several works have been conducted to understand the formation of Ni laterite deposits in New Caledonia, Indonesia, Australia, among places. However, few studies have examined the nature of the different serpentine veins formed in the bedrock and saprolite horizon. More importantly, there is a current lack of information regarding the genesis of Ni laterite deposits in the Philippines. In this study, two Ni-Co laterite deposits from Berong, Palawan, and Intex, Mindoro, Philippines, are investigated. These profiles are typically divided from bottom to top into (i) serpentinized ultramafic bedrock (ii) saprolite horizon and (iii) limonite horizon. The primary olivine in the bedrock contains a substantial amount of NiO (up to 0.38 wt%) indicating this is the principal source of the ore in the saprolite and limonite horizons. Three types of serpentine veins are identified in the ultramafic bedrock. A minor amount of talc is found in the bedrock, which is marked by a low amount of NiO with a concentration of up to 0.07 wt%. Nickel is mainly hosted by garnierites (i.e. serpentine-like, talc-like and sepiolite-like) in the saprolite horizon. Six types of serpentine veins are identified in the Berong deposit, whereas five types of these veins are investigated in the Intex deposit. These serpentines show variable NiO concentrations of up to 6.65 wt%. Garnierite mineralization in the Berong deposit is characterized mainly by sepiolite-falcondoite and pimelite-kerolite series and hold a strikingly high amount of Ni (up to 34.86 wt%). Goethite and Mn-oxyhydroxides

host high amount of Ni in the limonite horizon with concentrations of up to 2.15 wt% NiO and 23.89 wt% NiO, respectively. Lithiophorite-asbolane intermediate and asbolane are the most common Co-bearing Mn-oxyhydroxides in the studied deposits. The degree of weathering of ultramafic rocks and laterite profiles plays an important role on the enrichment of Ni in laterites. The Berong deposit contains a higher bulk amount of Ni in laterites compared with the Intex deposit, which is attributed to the different degrees of weathering of the laterites. The Berong laterites experienced more advanced degree of weathering in contrast to the Intex laterites. During chemical weathering, Mg and Si are leached from the bedrock resulting in the enrichment of elements (Fe, Al, Ni) in the weathered horizons. All the profiles display increased amounts of Sc, and to some extent, REE and these elements have a close association with Fe- and Mn-oxyhydroxides in the limonite horizon. The chondrite-normalized REE patterns illustrate positive and negative Ce anomalies at the transition boundary between the limonite and saprolite horizons. The genesis of the Berong and Intex laterite deposits are consistent with the per descendum models proposed by previous authors. The studied laterite profiles evolved into two distinct processes: (i) development of the saprolite and limonite horizons and (ii) formation of secondary silicate minerals (garnierite), Mn-oxyhydroxides and silica.

## 論文審査結果の要旨

本論文提出者は、2017 年 10 月から秋田大学博士後期課程に所属している。本博士論文の研究では、資源的にレアメタルとして重要なコバルトとニッケルについて、フィリピン の 2 か所の異なるニッケルラテライト鉱床の産状および鉱物学的、地球化学的研究を実施し、その成因を議論し、学術的な貢献のみでなく、資源開発、資源回収のための基礎データを提供することを目標としている。

研究の対象として選ばれた 2 か所の鉱床では、オフィオライト中の超塩基性岩の風化により鉱床が形成されており、下部から母岩、サプロライト、リモナイト層に分けられる。詳細な岩石の観察から、ベロング鉱床では母岩には 3 ステージの、サプロライトには 6 ステージの蛇紋石脈が形成されていることが記載された。ステージ 1-3 は母岩とサプロライトに共通で、源岩のかんらんせき・輝石の分解により生じている。ステージ 4-6 はサプロライト層にのみ認められ、これらに加えてニッケルに富むガルニエライトが形成している。この後のステージの蛇紋石の一部は自生鉱物として形成している。リモナイト層は針鉄鉱と赤鉄鉱を主としマンガン水酸化物やアモルファスシリカを含んでいる。

これらの源岩、サプロライト、リモナイトでは、源岩からサプロライト上部にかけて pH が 9 から 7 に減少し、リモナイト層ではさらに減少して 6 程度を示す。pH の変化に対応しサプロライト層とリモナイト層にかけて顕著な鉄の増加とシリカ及びマグネシウムの減少が認められる。ニッケルはサプロライト層で濃集し、マンガンはリモナイト層最下部に濃集している。

このような岩相の変化と元素の濃集は、源岩の超塩基性岩が風化を受けることにより、もとも

とニッケルを含んでいたかんらん石や輝石、およびその風化物の蛇紋石が、地表に露出することにより風化し、ケイ酸塩鉱物の分解により針鉄鉱や赤鉄鉱が形成されたことを示す。その際コバルトやニッケルは間隙水に放出され、コバルトは主としてマンガン酸化物に吸着され、大部分のニッケルは下部のサプロライト層でガルニエライトとして沈殿したと説明された。

同様の過程はミンドロ島のインテックス鉱床でも確認されたが、大きな違いは、ミンドロ島ではニッケルに富むガルニエライトが見られず、コバルトはサプロライト層中の蛇紋石(ステージ 5)とリモナイト層の針鉄鉱に含まれている。この両鉱床の違いは、インテックス鉱床では風化の程度がベロング鉱床に比べて風化の程度が弱いためにニッケルのリモナイト層からの溶脱が完全に行われなかったためと説明された。

2020 年 2 月に実施された第 1 次論文審査の結果、この研究結果は、オリジナリティに富む内容で、学位論文にふさわしい研究内容であるとであると評価された。審査委員からのコメントに基づいた修正を加えること、研究成果が国際学術誌に受理されることをもって本審査に進むことが認められた。

その後これらの研究結果は、2 編の科学論文 Carmela Alen Tupaz, Yasushi Watanabe, Kenzo Sanematsu, Takuya Echigo (2020) Mineralogy and geochemistry of the Berong Ni-Co laterite deposit, Palawan, Philippines. *Ore Geology Review*, 125 103683, および Carmela Alen J. Tupaz, Yasushi Watanabe, Kenzo Sanematsu, Echigo Takuya, Carlo Arcilla, Cerisse Ferrer (2020) Ni-Co mineralization in the Intex laterite deposit, Mindoro, Philippines. *Minerals*, 10, 579 doi 10.3390/min10070579.として公表された。

2020 年 7 月 20 日から 8 月 13 日に第 2 次の論文審査が行われ、第 1 次審査で指摘された点が修正されたこと、研究成果が国際学術誌に受理・公表されたことを受け論文審査は合格と判断された。