

別紙 4

報告番号	※	第	号
------	---	---	---

主 論 文 の 要 旨

論文題目 Age of ore-related intrusions and formation conditions of ore-bearing veins at Cerro Colorado porphyry copper mine, northern Chile.
チリ北部に位置するセロコロラド銅鉱山における鉱床形成に関連する貫入岩体の年代決定及び鉱石を含む鉱物脈の形成条件

氏 名 TSANG Pui Wai Debbie
曾 珮 蔚

論 文 内 容 の 要 旨

(日本語訳は下記)

Up to 70% of the world's copper and almost all of its molybdenum is hosted by porphyry copper deposits (PCDs). PCDs dominantly form in convergent plate margins spatially closely associated with volcanic arcs. The metals are brought to shallow levels in the crust in intermediate magma bodies. As these magmas crystallise, NaCl-rich brine fluids are released and these fluids scavenge the metals from the magma before transporting them into the surrounding country rock. Transport and precipitation of the ore-bearing NaCl-rich fluids involves flow through high-porosity domains and reaction with reduced sulphur to produce the observed metal sulphides. A prominent by-product of the ore-formation is widespread acidic alteration.

Although the overall framework for PCD formation is well understood, there remain numerous key aspects of the process that are contentious or unclear. Firstly, the genetic relationships between PCD formation and active volcanism are disputed. A major eruption or major release of Cu-bearing gasses would act to disperse the metal and prevent ore formation, and many workers have concluded that PCD formation must take place at times of volcanic

quiescence. In contrast, several field-based studies have documented evidence suggesting syn-eruption PCD formation. A second major issue is the source of the reduced sulphur needed to precipitate the metals. Most workers focus on SO_2 exsolved from the intermediate magma. Disproportionation of this SO_2 when it reacts with H_2O at temperatures less than 400°C produces sulphuric acid and H_2S . The H_2S can react with metal-bearing brines to form the metal sulphides seen in PCDs. In contrast, other workers propose the sulphur is introduced externally, perhaps from a deeper underlying mafic body. Whether or not tectonic setting plays an important role in controlling PCD formation is also disputed.

In this study, I use geochemical analyses, radiometric dating, and fluid inclusion studies of core samples from the Cerro Colorado mine site of N. Chile to document its geologic development and address general issues of PCD formation.

LA-ICP-MS U–Pb spot dating of zircon grains was carried out using samples from all the main geological units at the mine site. Microtextural observations combined with age results show the common presence of xenocrystic and antecrystic grains. The younger peaks in the age distributions reveals activity of the host volcanic rocks of the Cerro Empexa Formation (CEF) at 80–70 Ma. The CEF is cross cut and intruded by a volcanic breccia unit with an age of 57.2 ± 1.4 Ma. Regional magmatic activity at this time is confirmed by ca. 60 Ma aged zircon from porphyritic intrusions in the mine site and ca. 60 Ma Ar ages for plutons outside the mine. Field and microtextural observations combined with geochemical data suggest that the subvolcanic porphyritic intrusions within the mine site can be divided into early tonalite and later monzonite–quartz porphyry units. LA-ICP-MS U–Pb zircon dating yields weighted mean ages of 53.51 ± 0.80 Ma for the first tonalite unit, and 50.37 ± 0.79 Ma (monzonite) and 51.73 ± 0.88 Ma (quartz porphyry) for the second unit. To verify these results derived from multigrain analyses, I also carried out SHRIMP dating of the youngest grains from each unit. The analyses yield an age of 53.5 ± 1.2 Ma for the tonalite, and ages of 49.9 ± 0.64 Ma and 49.4 ± 0.78 Ma for the monzonite and quartz porphyry parts of the second unit, respectively. The texturally youngest porphyritic granodiorite yields an LA-ICP-MS U–Pb zircon age of

51–50 Ma. SHRIMP ages are given with 1σ errors whereas other ages are given with 2σ errors.

The new age results provide a framework for understanding previously reported Re–Os molybdenite ages of 55.5 ± 0.3 Ma and 53.8 ± 0.3 Ma. The Re–Os ages are older than or similar to the ages of the main subvolcanic intrusive bodies of the mine site suggesting they reflect an earlier mineralisation phase related to the ca. 60 Ma magmatic event in the same area. The youngest intrusive body of granodiorite only shows minor metal mineralisation. These results suggest mineralisation in the Cerro Colorado mine occurred in two main pulses 60–50 Ma both of which lasted several millions of years. Brecciation associated with the earlier phase of mineralisation implies a close link with volcanism.

60–50 Ma corresponds to the time when there was a major change in the plate motion vectors in the south American realm. This change in plate motion is reflected in changes in the stress state of the South American margin from extensional or neutral to compressive adding to the body of data suggesting a link between weakly compressive tectonic stress states and PCD formation.

Mineralised veins consisting dominantly of quartz, chalcopyrite and molybdenite are closely associated with the porphyry intrusions and contain abundant brine- and gas-rich fluid inclusions. Transmitted and reflected light microscopy combined with cathodoluminescence (CL) reveals four distinct microstructural quartz domains: early amorphous (Q1), well-formed euhedral (Q2), late irregular pore-space filling (Q3) and dissolution and reprecipitation quartz veins (Q4). Most copper and molybdenum minerals form in close association with Q3 and these ore minerals locally grow cross-cutting Q1 and Q2 domains. Micro-thermometry reveals quartz growth at temperatures of 200–600 °C with the highest temperatures recorded in Q3 domains. The high-temperature group corresponds to magmatic temperatures and demonstrates the close relationship between mineralisation and magmatic activity. The high temperatures are above those appropriate for the reaction of SO_2 and H_2O to produce H_2S

implying that the source of reduced sulphur at this stage was not related to the generally proposed disproportionation reaction and an external source is more likely.

Entrapment pressures derived from the fluid inclusions are highly variable, scattering from sub-hydrostatic to supra-lithostatic for estimated depths of 1.6–3 km and densities of 1–2.8 g/cm³. The low pressures are best explained as representing localised and short-lived connectivity to the surface implying some combination of degassing, brecciation and eruption. This pressure release was followed by fracture healing and a return to lithostatic pressures. The presence of high temperature fluids associated with greatly fluctuating pressures are the conditions expected in an active volcanic system and reinforces the proposed link between active volcanism and PCD formation.

世界の銅(Cu)の7割とほとんどすべてのモリブデン(Mo)が斑岩銅鉱床 (porphyry copper deposits—PCD) に貯蔵されている。PCD は主として収束プレート境界に形成され、その分布は火山弧分布と一致する。鉱床の金属は、安山岩質マグマ中で地殻浅部まで運ばれ、マグマが結晶化すると同時に、NaCl に富むブライン流体が放出される。これらの流体がマグマから金属を抽出した後、周囲の母岩に鉱床となる金属を運搬する。金属を含むブライン流体が母岩に流入し、金属硫化物鉱物が沈殿するには、高い空隙率領域からなる流路の形成や還元された硫黄との反応が必要である。また、鉱床形成に伴って、広範囲にわたる酸による変質がPCDの一般的な特徴である。

PCDの形成について大枠がよく理解されているが、まだ未解明の部分や論議をよぶ課題が多く残っている。第一に、PCD形成が火山活動と直接関係があるかどうかについて共通見解が得られていない。大規模な噴火、あるいはCuを含むガスの放出があった場合、金属が分散され鉱床形成に不向きな状態になるため、多くの研究者がPCD形成には火山活動が休止している状態が必要であると推測している。一方で、野外調査において鉱床形成が火山噴火と同時に起きたとする証拠を報告する研究例もある。第二に、金属鉱床鉱物の沈殿に必要な還元された硫黄の起源が重要な未解決問題である。多くの研究者は、安山岩質マグマから放出されたSO₂に着目している。400°C以下の温度条件においてSO₂とH₂Oが起こす不均化反応によって硫酸とH₂Sが形成されるが、そこで発生したH₂Sが金属イオンと反応し、PCDを構成する金属硫化物を形成するメカニズムが注目されている。一方、硫黄が地殻深部に分布する塩基性マグマなど、外部から供給されるとの主張もある。他にも、PCD形成とテクトニックな応力状態との関係などが議論されている。

本研究では、チリ北部に位置するセロコロラド鉱山におけるコアの野外観察に加え、地球化学的な分析、放射年代測定、流体包有物分析の結果について報告する。主な成果として以下の2つが挙げられる。(1) ジルコンU-Pb年代測定により、鉱床形成に関連した貫入岩体の年代の制約を行った。また、(2) 石英の微細組織と対比させた流体包有物の均質温度決定な

どにより鉍床に含まれる鉍物脈の形成温度・圧力の推定を行った。

LA-ICP-MS を用いて、鉍山の主要な構成岩体ユニットから分離したジルコンのスポット年代測定を行い、年代の分布や微細組織観察から数多くの xenocrystic と antecrystic 粒子の存在が確認された。得られた年代分布のうち、若いピークから鉍山の母岩である Cerro Empexa Formation (CEF)の形成を伴う火山活動が 80–70 Ma にあったことが明らかになった。また、 57.2 ± 1.4 Ma の年代を示す火山性角礫岩ユニットが CEF の地層を横切って貫入したことが判った。鉍山内に分布する斑岩から見出された ca. 60 Ma のジルコン、及び鉍山周辺域に分布する貫入岩体から報告された ca. 60 Ma の Ar 年代の存在は、同地域において角礫岩と同時期に広域的な火成活動があったことを示す。野外・微細組織の観察および地球化学的データに基づいて鉍山内の斑岩貫入岩類をトータル岩ユニットとその後貫入したモンゾニ-石英斑岩ユニットに大別できることが明らかになった。LA-ICP-MS ジルコン U-Pb 年代測定値の加重平均から、これらの岩相の年代が 53.51 ± 0.80 Ma (トナル岩)と 50.37 ± 0.79 Ma (モンゾニ岩) 及び 51.73 ± 0.88 Ma (石英斑岩)であることが明らかになった。組織的に一番若い花崗閃緑斑岩の LA-ICP-MS U-Pb ジルコン年代は 51–50 Ma であった。また、複数の粒測定結果を確認するために一番若いジルコン粒について、SHRIMP 年代測定も行った。その結果、 53.5 ± 1.2 Ma (トナル岩)、 49.9 ± 0.64 Ma (モンゾニ岩)、 49.4 ± 0.78 Ma (石英斑岩)の晶出年代を得た。なお、SHRIMP 年代誤差が 1σ であり、それ以外の年代測値が 2σ の誤差で示されている。

上記の年代測定の結果は、セロコロラド鉍床形成年代を示す既存のモリブデナイト Re-Os 年代値 (55.5 ± 0.3 Ma, 53.8 ± 0.3 Ma)を解釈するための新しい枠組みを提供してくれる。Re-Os の年代が鉍山内に分布する主要な貫入岩の形成年代と同等かそれらより古いので、鉍床形成が同地域内で起こった ca. 60 Ma の火成活動に関連すると考えられる。一番若い花崗閃緑岩中には、限られた金属硫化物の成長しか認められないので、セロコロラド鉍山では、60–50 Ma の間に数 my 継続する 2 回以上の主要な鉍床形成イベントがあったと推定される。最初のイベントが火山性角礫岩の形成を伴うことは、鉍床形成は火山活動と関係があったこ

とを示唆する。

60–50 Ma は、南米域においてプレート運動ベクトルが大きく変化した時期であると報告されている。同プレート運動ベクトル変化によって南米収束域における応力状態は、伸張あるいは neutral から圧縮状態へ転換した。今回の結果は、PCD 形成と圧縮応力場形成の関連性を示唆する新たな研究例である。

鉱山では、主として石英、黄銅鉱、モリブデナイトで構成される鉱物脈が斑岩の周辺に密集しており、石英中に無数の気体と液体を含む流体包有物が分布する。透過・反射光学顕微鏡、またカソドルミネセンス像を用いた微細組織観察を行い、石英は4つの異なる微細領域に区分できることが明らかになった。これらの領域の特徴は次の通りである。i) 無構造 Q1、ii) 自形結晶の多い Q2、iii) 空隙を充填する不規則な形を示す Q3、iv) 溶解・沈殿プロセスを示す二次的な石英脈 Q4。多くの Cu と Mo 鉱物が Q3 領域に分布し、局所的に同鉱物が Q1 と Q2 領域を横切るように成長していた。脈全体に分布する流体均質温度から石英形成温度が 200–600 °C であり、一番高い温度が Q3 に集中することを見出した。鉱脈中の包有物の一部がマグマ固相線を越えた高温流体の存在を示し、マグマ活動と鉱床形成との関係が浮き彫りになった。また、高温流体の温度は SO₂ と H₂O の不均化反応が起こるより高温であるため、還元された硫黄は外部から供給された可能性が高い。

流体包有物から圧力及び深度も推定できる。形成深さを 1.6–3 km とし、密度を 1–2.8 g/cm³ とすると、推定された圧力が静水圧より低い状態から静岩圧より高い状態まで値が大きくばらつく。低い圧力が急な脆性変形による短期的な圧力解放と地表までの流路の形成で最もよく説明でき、具体的なプロセスとして角礫化と脱ガス、または噴火が起きたと推定される。そして、圧力解消の後、鉱物沈殿により亀裂が修復し、静岩圧に戻ると考えられる。高温かつ大きく変動する圧力を示す流体の存在はマグマ活動が活発な活火山の山体における状態と一致し、火山活動と PCD 形成の関連性を裏付ける結果である。