

## 2.2.3 阿蘇カルデラ噴出物の実験岩石学的検討

### 【実施内容】

火山噴火前においてマグマ溜まりの条件を決めることは、マグマの化学進化を考える上で基礎的な情報となると共に、地球物理学的観測と比較するための重要なテーマとなる。岩石学的にマグマ溜まりの条件を決めるために、斑晶鉱物同士やそれらとメルトとの平衡を考え、実験を基に定式化された熱力学的な関係から温度や圧力などを求めることが行われる。しかし、あらゆる組成・温度・圧力範囲で定式化することは難しく、それゆえ高温高压条件で平衡実験を行い、マグマ溜まりを再現することは非常に有力な手法である。阿蘇火山は日本で最大級のカルデラを持つと同時に、今後の噴火予測をするうえで阿蘇火山における最新の大規模カルデラ噴火である阿蘇4(Aso-4)を理解することは非常に重要である。Kaneko et al.(2007)はAso-4 噴出物に対し系統的な岩石学的研究を行い、Aso-4 のマグマ溜まりは珪長質なマグマと苦鉄質なマグマの成層構造であることを議論した。斑晶鉱物の平衡関係(鉄チタン鉱物・斜長石-メルト・斜方輝石・単斜輝石・角閃石-斜長石)を使い、珪長質なマグマに対し温度を 830~900°C、含水量を 4~6wt%と見積もったが、種々の観測と比較する上で重要なパラメータである圧力を決定できていない。産総研(2017)でAso-4 の珪長質端成分を対象に高温高压実験が実施された。斑晶組み合わせや斑晶組成を再現するような温度圧力含水量条件は、およそ 880°C, 200MPa かさらに低圧、全岩でおよそ 3wt% H<sub>2</sub>O 以下だと制約を行った。しかし、圧力・含水量において上限を与えたにすぎず、地球物理学的観測と比較するためには含水量や圧力の下限を決めることが必要である。本研究では、50, 100MPa における高温高压実験を行い、Aso-4 珪長質端成分マグマの噴火前温度圧力含水量条件をより精度よく求めることを目的とする。

また、マグマ溜まりにおけるメルトの情報を保持していると考えられている斑晶中に取り込まれたメルト包有物を測定することは、高温高压実験とは独立にマグマ溜まりの条件を制約できる重要な手法の一つである。揮発性成分(特に H<sub>2</sub>O と CO<sub>2</sub>)を測定することで飽和溶解圧力を決定できることから、マグマ供給系における理解が進むと期待できる。しかし、ガラス中の H<sub>2</sub>O, CO<sub>2</sub> 局所分析には電子線マイクロプローブを用いることが出来ず、二次イオン質量分析計(SIMS)などの装置が必要である。産業技術総合研究所には Cameca 製 Nano-SIMS が設置されており、斑晶メルト包有物の分析が進められつつあるが、SIMS 分析特有の測定試料が変わると顕著に表れるマトリックス効果が検量線作成に悪影響を及ぼすため、測定試料の組成に合った標準含水ガラスの合成が急務となる。本研究ではマグマ溜まりにおける温度圧力条件を決める高温高压実験のための出発物質として使用する含水ガラスや、SIMS 分析用高 H<sub>2</sub>O・高 CO<sub>2</sub> 濃度の標準ガラス作成も行ったので、合わせて報告する。

### 【研究成果】

#### (1) 高温高压実験を基にした Aso-4 噴出物珪長質端成分マグマの噴火前温度圧力条件 出発物質

珪長質端成分として見なせる Aso-4A 火砕流堆積物中に含まれる軽石(KJ5665: 星住(私信))を産総研(2017)と同様に高温高压実験に用いる出発物質として採用した。産総研(2017)で詳細な記載が報告されており、珪長質端成分であることから最も密度的に軽く、マグマ溜まりにおける最

上部に溜まっていたと期待できる.. Aso-4 噴出物は、全体を通して不均質に混合している噴出物が見られるが、KJ5665 は軽石を肉眼で観察してそのような箇所は見られない。

産総研(2017)により、KJ5665 の岩石学的特徴が以下のように報告された。石基ガラスは縞状構造など不均質な組織は見られない。KJ5665 は斑晶として斜長石・斜方輝石・磁鉄鉱・イルメナイト・普通角閃石を含む。斜長石は弱く反復累帯構造を示す。斜方輝石は均質なコアを持ち、リムに向けて弱く逆累帯構造を持つ。磁鉄鉱・イルメナイト・普通角閃石は顕著なゾーニングは見られない。観察された全ての斑晶組成は、ユニモーダルな頻度分布を示す。斜長石のコア組成はおよそ An30 から An50 の間に入り、ピークは An35 でリム組成も同じ傾向を示す。斜方輝石はコア組成は Mg#72-75 と狭い範囲に入り、ピークは Mg#74 である。斜方輝石のリム組成もほぼ同じ範囲に入るが、ピークは Mg#75 ほどと若干コア組成よりも高い。斜長石・磁鉄鉱中に含まれる斜方輝石包有物についても、これらの組成範囲に入る。磁鉄鉱斑晶のコア・リム組成は両者とも  $X_{\text{usp}} = 0.25 \pm 0.01$  と非常に狭い範囲に収まり、斜長石・斜方輝石・普通角閃石中の磁鉄鉱包有物も近い組成をとるものが多い。イルメナイト斑晶においても、コア・リム組成は両者とも  $X_{\text{ilm}} = 0.75 \pm 0.01$  の間に収まり、斜長石・斜方輝石・普通角閃石中に含まれるイルメナイト包有物もほぼ同じ組成をとる。KJ5665 の各斑晶はお互いに包有関係をとるものも多く、これらの斑晶はほぼ同時に晶出したと見なすことが出来る。また、斑晶コア組成の頻度分布から非平衡なコア組成を持つ斑晶が共存していないことがわかる。KJ5665 の全岩組成は、Hunter (1998)や Kaneko et al.(2007), 星住(私信)で測定されている阿蘇 4 噴出物の分析値の中で、最も  $\text{SiO}_2$  に富む組成を持つ。KJ5665 の石基ガラスは非常に狭い組成範囲を持つ。斜長石・斜方輝石中のメルト包有物組成は、石基組成と非常に近い組成を持つ。これらのことから、斑晶は石基組成の均質なメルトから晶出したことが示唆される。磁鉄鉱・イルメナイト間平衡の温度・酸素雰囲気計((Lepage 2003; Andersen and Lindsley 1985)を斑晶リム組成に適応すると、温度が 870-880°C, 酸素雰囲気が FMQ+2 と求まった。

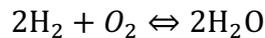
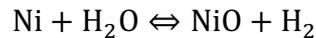
斑晶量比を各斑晶のコア組成の最頻値・石基ガラス組成・全岩組成から Miyagi et al.(2017)の手法によりマスバランス計算で算出すると、石基ガラス、斜長石、斜方輝石、普通角閃石、マグネタイト、イルメナイトがそれぞれ 89.9wt%, 7.9wt%, 0.2wt%, 1.7wt%, 0.5wt%, 0.1wt%となる。軽石断面観察や結晶分離により確認された斜方輝石・角閃石・鉄チタン鉱物はどれもおよそ 1wt%以下となり、これらは相平衡実験を行う上で相関係に大きく影響を与えないと考えることができる。実験で用いる出発物質として、KJ5665 粉末を表 2.2.3-1 の条件の通り 5 種の含水ガラスを合成し、これを粗く砕いたものを実験に用いた。

以上の KJ5665 軽石の岩石学的特徴から、KJ5665 はマグマ混合の証拠がなく斑晶鉱物はマグマ溜まり中で石基組成のメルトと平衡に共存していた。マグマ溜まりにおける平衡条件を高温高压実験により再現することでマグマ溜まりの温度圧力条件を決定する。

## 高温高压実験

Aso-4A 噴出物である KJ5665 の斑晶組み合わせ、斑晶組成を再現する温度・圧力・含水量・酸素雰囲気の条件を決定するために、産業技術総合研究所と東京工業大学に設置された内熱式ガス圧装置(それぞれ SMC8600(最高圧力 850MPa), HARM200(最高圧力 196MPa))を用いて高温高

圧実験を行った。これらの装置は産総研(2016, 2017)で概要が報告されている。これらの装置はアルゴンガスを圧縮することで高圧を発生させる装置で、また急冷機構を備えているため実験試料を回収後に各出現相やメルト(ガラス)を容易に測定できる。鈴木・他(2004)で SMC-8600 の構成や加圧方式、圧力の見積もり手法などが報告されている。圧力容器内は鉄チタン鉱物による酸素雰囲気計により  $\text{NNO}+3\sim 4$  ほどであると見積もられており(Tatsumi and Suzuki, 2009), KJ5665 中の斑晶組成から見積もられた QFM+2 よりも高いことから、実験中は酸素雰囲気をバッファ材を入れることで制御することが必要となる。本研究では、産総研(2016, 2017)で使用したカプセル構成とほぼ同じであるが、図 2.2.3-1 (a), (b)のように水素センサー(Frantz and Eugster, 1973; Chou, 1978)のカプセルを同時に入れ、アウターカプセル内の酸素雰囲気を見積もっている。酸素雰囲気は、以下の反応式により水素を介して制御を行う。



アウターカプセルは水素透過率の乏しい金(Chou 1986)を用い、アウターカプセル内の水素を閉じ込めることにより酸素雰囲気を制御する。通常は図 2.2.3-1(a)のカプセル構成を用いるが、Au-Ni 系の共融点が  $940^\circ\text{C}$ 前後に存在するため、比較的高温の実験は(b)のカプセル構成を用いた。Chou(1978)により 200MPa, 400MPa において既知のバッファ ( $\text{MnO-Mn}_3\text{O}_4$ (MNO), NNO, Fayalite-Magnetite-Quartz(FMQ), Hematite-Magnetite(HM))における水素センサー中の水素イオン濃度(Cl濃度)が測定されている。これらの報告値を任意の温度・酸素雰囲気において線型に内挿することで酸素雰囲気を見積もった。実験後の水素センサーを純水内で開封し、超音波洗浄機で水素センサーの内容物を十分に溶液内に拡散させ、その Cl濃度をイオンクロマトグラフィーで測定した。

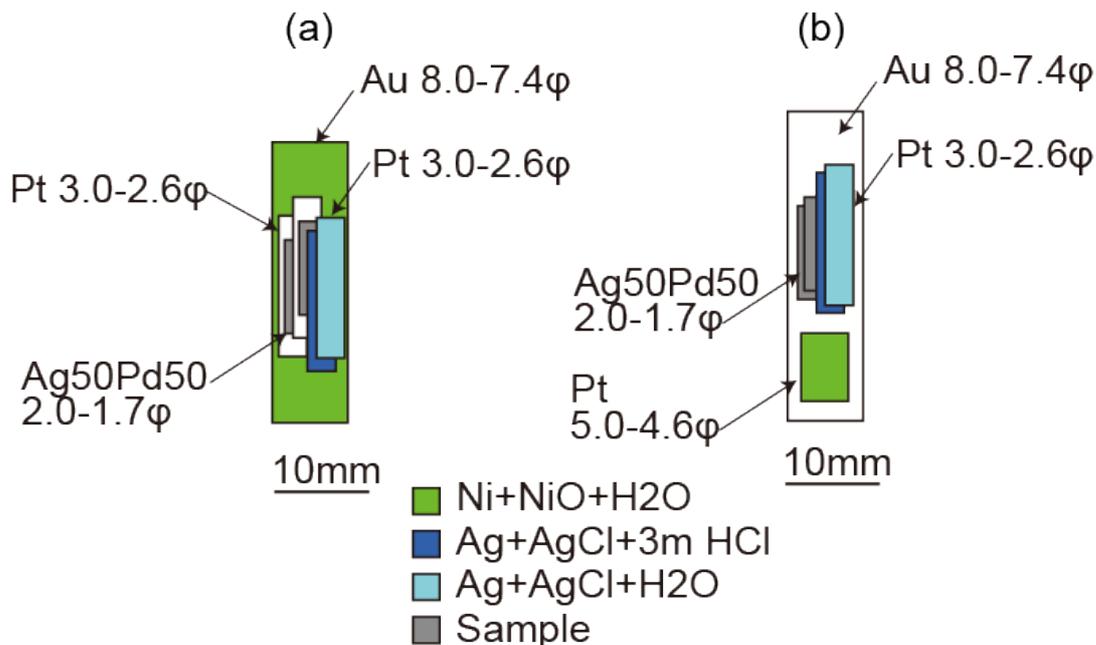


図 2.2.3-1 実験のカプセル構成図。

## 分析手法

軽石(KJ5665)・出発物質の含水ガラス・実験生成物の組織観察・化学組成分析は産総研設置の電子線マイクロプローブ(JEOL JXA-8900R と JEOL JXA-8530F plus)を用いた。10 $\mu\text{m}$  よりも小さい結晶を除き、加速電圧 15kV, 試料電流 12nA もしくは 10nA で測定を行った。10 $\mu\text{m}$  よりも小さい結晶は、試料の電子線による励起領域を狭めるため、また電子線をより絞るために 10kV, 6nA で測定した。結晶分析時は focused beam, ガラス分析時は 20 $\mu\text{m}$  にビーム径を広げた。12 元素(Si, Ti, Al, Fe, Mn, Mg, Ca, Na, K, P, S, Cl)をピーク位置で 20 秒, バックグラウンド位置で 10 秒を標準値として測定したが、結晶種類により濃度の乏しい元素(およそ 1wt%以下: Ti, Mn, Fe, Mg, P, S, Cl)はカウント数を稼ぐためにピーク位置で 40~60 秒, バックグラウンド位置で 20~30 秒測定した。Na のみ, 電子線を照射することによる Na ロスの影響を考慮し, 各分析において最初に 10 秒(バックグラウンドは 5 秒)で測定した。出発物質のガラス中の含水量は, 産業技術総合研究所設置のフーリエ変換型赤外分光光度計(FTIR)(Jasco FT/IR-600 plus)により試料の透過光を測定することで求めた。4500 $\text{cm}^{-1}$ , 5200 $\text{cm}^{-1}$  のピーク高さを使用し, Dixon et al.(1995)のモル吸光係数を用いた。試料は両面を研磨した薄片(厚さは 168-297 $\mu\text{m}$ )を用意し, アパーチャーサイズは 100  $\times$  100  $\mu\text{m}$ , それぞれの分析点で 256 回積算して分析を行った。

表 2.2.3-1 Aso-4 珪長質端成分組成 (KJ5665) の高温高圧実験のための出発物質化学組成

Capsule #	CG81	CG82	CG83	CG136	CG176	KJ5665
Run #	HG554	G184	G186	G194	G211	whole-rock
P(MPa)	420	195	100	195	107	(XRF)
T(°C)	1250	1250	1400	1280	1300	
run duration(h)	1	1	1	3	3	
Capsule	Au80Pd20	Au80Pd20	Pt	Au80Pd20	Au80Pd20	
n	46	66	87	62	221	
(wt.%)						
SiO <sub>2</sub>	64.10	70.83	67.16	70.42	70.49	70.34
	0.24	0.32	0.38	0.25	0.49	0.49
TiO <sub>2</sub>	0.42	0.47	0.46	0.49	0.47	0.43
	0.03	0.10	0.08	0.04	0.04	0.04
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	13.63	15.06	14.60	15.31	15.26	15.53
	0.17	0.16	0.21	0.13	0.29	0.29
FeO	1.85	2.04	1.79	1.88	2.02	2.01
	0.14	0.08	0.22	0.08	0.21	0.21
MnO	0.10	0.11	0.10	0.11	0.10	0.10
	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01
MgO	0.45	0.50	0.51	0.53	0.51	0.51
	0.04	0.02	0.03	0.02	0.05	0.05
CaO	1.42	1.57	1.50	1.57	1.56	1.49
	0.03	0.04	0.05	0.03	0.07	0.07
Na <sub>2</sub> O	3.73	4.12	4.15	4.35	4.30	4.33
	0.06	0.08	0.08	0.09	0.09	0.09
K <sub>2</sub> O	4.72	5.22	5.01	5.25	5.20	5.19
	0.07	0.06	0.08	0.06	0.05	0.05
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.09	0.10	0.10	0.10	0.09	0.08
	0.02	0.03	0.07	0.08	0.02	0.02
SO <sub>3</sub>	0.02	0.02	0.01	0.02	0.02	0.01
	0.01	0.01	0.01	0.02	0.01	0.01
Cl	0.01	0.01	0.01	0.01	0.00	0.00
	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00
total	90.53	100.00	95.40	100.00	98.55	99.99
	0.39(n=13)	0.12(n=12)	0.07(n=17)	0.11(n=11)	~1	
H <sub>2</sub> O(FTIR)	6.69	4.37	2.92	3.64	0.11(n=11)	

表 2.2.3-2a KJ5665 を用いた高温高圧実験のランテータブル 1 (産総研 2017 を含む)

Run #	Capsule #	P (MPa)	T (°C)	Run duration (h)	pre-heat (h)	buffer check <sup>1</sup> (residual phase)	H <sub>2</sub> O (wt.%) (bulk)	H <sub>2</sub> O in melt (wt.%)	H <sub>2</sub> O solubility (wt.%)	phase <sup>2</sup>	FO <sub>2</sub> <sup>3</sup> (ANNO)	Capsule assemblage <sup>4</sup>
SHG71	CG89	700	850	168		NiO+Ni+H <sub>2</sub> O	saturated		16.6	melt, ilm		(a)
CG90	700	850	168		NiO+Ni+H <sub>2</sub> O	6.7	6.8			melt(98.4), bt(1.6), ilm(0.1)		(a)
SHG72	CG98	700	810	164		NiO+Ni+H <sub>2</sub> O	4.4	5.9		melt(72.1), pl(21.4), K-feldspar(2.7), bt(3.4), ilm(0.3)		(a)
CG99	700	810	164		NiO+Ni+H <sub>2</sub> O	6.7	6.8			melt(96.6), bt(2.7), ilm(0.6)		(a)
SHG73	CG100	700	900	165		NiO+Ni+H <sub>2</sub> O	4.4	4.7		melt(91.7), pl(5.9), bt(1.6), ilm(0.8)		(a)
CG101	700	900	165		NiO+Ni+H <sub>2</sub> O	2.9	4.0			melt(72.3), opx(2.6), pl(22.3), K-feldspar(1.8), ilm(0.5)		(a)
SHG74	CG105	400	900	166		NiO+Ni+H <sub>2</sub> O	2.9	3.4		melt(84.2), opx(1.8), pl(13.3), ilm(0.7) bt(tr)		(a)
CG106	400	900	166		NiO+Ni+H <sub>2</sub> O	4.4	4.4			melt(97.7), pl(0.3), bt(1.9)		(a)
SHG75	CG111	400	850	185		NiO+Ni+H <sub>2</sub> O	4.4	4.8		melt(90.0), pl(6.8), bt(2.4), ilm(0.7)		(a)
CG113	400	850	185		NiO+Ni+H <sub>2</sub> O	6.7	6.8			melt(98.1), bt(1.3), ilm(0.6),		(a)
SHG76	CG115	700	850	165		NiO+Ni+H <sub>2</sub> O	2.9	4.3		melt(64.6), pl(28.1), bt(3.8), K-feldspar(3.3), ilm(0.1)		(a)
CG116	700	850	165		NiO+Ni+H <sub>2</sub> O	4.4	5.3			melt(81.1), pl(15.0), bt(3.2), ilm(0.7)		(b)
SHG77	CG119	400	930	165		NiO+Ni+H <sub>2</sub> O	2.9	3.4		melt(86.4), opx(2.1), pl(11.5), ilm(tr)	1.7	(b)
CG121	400	930	165		NiO+Ni+H <sub>2</sub> O	4.4	4.4			melt(99.3), ilm(0.7)	1.7	(b)
SHG78	CG124	400	810	162	1(940°C)	NiO+Ni+H <sub>2</sub> O	6.7	6.8		melt(96.9), bt(2.4), ilm(0.7)	0.8	(b)
CG133	400	810	162	1(940°C)	NiO+Ni+H <sub>2</sub> O	4.4	5.1			melt(82.4), pl(12.2), bt(5.3), ilm(tr)	0.8	(b)

表 2.2.3-2b KJ5665 を用いた高温高压実験のランテータブル 2 (産総研 2017 を含む)

Run #	Capsule #	P (MPa)	T (°C)	Run duration (h)	pre-heat (h)	buffer check <sup>1</sup> (residual phase)	H <sub>2</sub> O (wt.%) (bulk)	H <sub>2</sub> O in melt (wt.%)	H <sub>2</sub> O solubility (wt.%)	phase <sup>2</sup>	fO <sub>2</sub> <sup>3</sup> (ΔNNO)	Capsule assemblage <sup>4</sup>
G190	CG110	195	900	167		NiO	4.4	4.4		melt(100)		(a)
	CG114	195	900	167		NiO	2.9	3.2		melt(91.4), opx(1.5), pl(7.1)		
G192	CG120	195	850	168		NiO+N+H <sub>2</sub> O	2.9	3.7		melt(77.8), opx(2.8), pl(19.4), ilm(tr)	0.3	(b)
	CG122	195	850	168		NiO+N+H <sub>2</sub> O	4.4	4.5		melt(96.6), pl(2.3), bt(0.3), ilm(0.7)	0.3	
	CG123	195	850	168		NiO+N+H <sub>2</sub> O	6.7	6.8	6.2	melt(99.2), bt(0.1), ilm(0.7)	0.3	
G193	CG134	195	810	166		1(940°C) NiO+N+H <sub>2</sub> O	6.7	7.3	6.2	melt(91.3), pl(6.9), bt(1.5), ilm(0.2)	-0.1	(b)
	CG135	195	810	166		1(940°C) NiO+N+H <sub>2</sub> O	4.4	4.5		melt(95.6), pl?, bt(3.7), ilm(0.7)	-0.1	
G201	CG157	100	950	164		NiO	6.7	6.7	4.1	melt(100)		(b)
	CG159	100	950	164		NiO	3.6	3.6		melt(100)		
	CG161	100	950	164		NiO	2.9	2.9		melt(98.9), pl(1.1)		
G202	CG158	100	900	168		NiO+N+H <sub>2</sub> O	6.7	6.7	4.1	melt(100)		(b)
	CG160	100	900	168		NiO+N+H <sub>2</sub> O	3.6	3.6		melt(100)		
	CG162	100	900	168		NiO+N+H <sub>2</sub> O	2.9	3.1		melt(93.0), pl(5.8), opx(1.2)		
G203	CG164	100	850	164		1(950°C) NiO+N+H <sub>2</sub> O	6.7	6.8	4.0	melt(98.1), pl(1.5), bt(0.3), ilm(0.1)		(b)
	CG165	100	850	164		1(950°C) NiO+N+H <sub>2</sub> O	3.6	3.6		melt(97.8), pl(9.1), bt(2.0), ilm?		
	CG166	100	850	164		1(950°C) NiO+N+H <sub>2</sub> O	2.9	3.5		melt(81.5), pl(15.5), opx(1.7), bt(1.3), ilm?		
G212	CG177	50	850	161.5		1(950°C) NiO+Ni	~1.5			melt, pl, K-feldspar, opx, bt(tr), mt		(b)
	CG178	50	850	161.5		1(950°C) NiO+Ni	3.6			melt, pl, bt, mt		
	CG179	50	850	161.5		1(950°C) NiO+Ni	2.9			melt, pl, opx(tr), bt, mt, ilm(tr)		
G213	CG180	50	900	118		1(950°C) NiO+Ni	~1.5			melt, pl, opx, mt		(b)
	CG181	50	900	118		1(950°C) NiO+Ni	2.9?			melt, pl, opx, mt		
	CG182	50	900	118		1(950°C) NiO+Ni	3.6			melt, pl, opx, mt		
G215	CG185	50	950	75		NiO	3.6			melt, pl, mt		(b)
	CG186	50	950	75		NiO	2.9			melt, pl, mt?		
	CG187	50	950	75		NiO	~1.5			melt, pl, mt		

1 実験後のカプセル内に存在していた相を記述。酸素雰囲気か NNO で保持されるためには Ni, NiO, H<sub>2</sub>O の共存が必要。

2 melt: melt, pl: plagioclase, K-feldspar, bt: biotite, opx: orthopyroxene, ilm: ilmenite

3 Chou(1978) より示された酸素雰囲気と水素センサー内の塩化物イオン濃度・温度・圧力の関係から内挿して決定

4 図 2.2.3-1 の (a), (b) どちらのカプセル構成が示す

表 2.2.3-3a 実験生成物における各相の化学組成 1

Run#	Capsule#	phase	n	SiO <sub>2</sub>	TiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	FeO	MnO	MgO	CaO	Na <sub>2</sub> O	K <sub>2</sub> O	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	SO <sub>3</sub>	Cl	Total
G201	CG157	melt	22	66.03	0.44	14.56	1.65	0.09	0.49	1.46	3.84	5.06	0.10			93.73
	CG159	melt	16	0.46	0.03	0.14	0.05	0.01	0.03	0.02	0.08	0.09	0.02			94.71
	CG161	melt	22	66.78	0.45	14.66	1.66	0.09	0.48	1.50	3.94	5.06	0.10			95.63
				0.14	0.03	0.09	0.06	0.01	0.03	0.02	0.07	0.03	0.02			101.01
		plagioclase	9	67.52	0.46	14.84	1.55	0.10	0.49	1.47	3.98	5.12	0.10			95.63
				0.22	0.05	0.13	0.10	0.01	0.03	0.04	0.06	0.04	0.03			101.01
				57.43	0.07	27.16	0.31	0.03	0.04	9.85	5.36	0.72	0.03			101.01
				0.42	0.05	0.32	0.09	0.04	0.03	0.17	0.20	0.11	0.04			101.01
G202	CG158	melt	19	65.77	0.42	14.37	1.33	0.09	0.46	1.44	3.79	4.97	0.09			92.72
	CG160	melt	16	0.58	0.03	0.15	0.15	0.01	0.02	0.03	0.08	0.13	0.02			92.72
	CG162	melt	24	65.25	0.43	14.27	1.41	0.09	0.47	1.45	3.77	4.91	0.09			92.14
				0.74	0.03	0.23	0.10	0.01	0.02	0.02	0.10	0.13	0.02			92.14
				67.68	0.46	14.21	1.41	0.10	0.45	1.10	3.80	5.37	0.10			94.67
				0.53	0.05	0.23	0.09	0.01	0.03	0.06	0.12	0.04	0.05			94.67
		plagioclase	23	60.29	0.05	25.35	0.29	0.03	0.03	7.51	6.58	0.99	0.03			101.15
				0.65	0.04	0.48	0.08	0.03	0.02	0.40	0.24	0.13	0.07			101.15
		opx	9	54.40	0.29	1.78	17.58	1.59	25.10	0.95	0.06	0.10	0.03			101.86
	CG164	melt	35	0.69	0.10	0.60	1.50	0.12	1.28	0.14	0.09	0.13	0.05			101.86
G203				66.45	0.40	14.55	1.31	0.09	0.37	1.46	3.78	5.05	0.09			93.54
				0.54	0.09	0.12	0.27	0.01	0.23	0.04	0.09	0.13	0.02			93.54
		plagioclase	2	59.69	0.01	25.77	0.31	0.00	0.00	8.13	6.52	0.73	0.03			101.17
				0.09	0.00	0.32	0.06	0.00	0.00	0.17	0.06	0.02	0.04			101.17
		biotite	12	38.31	4.74	14.60	13.99	0.21	15.67	0.03	0.81	9.59	0.02			97.97
				0.65	1.07	0.44	0.44	0.07	0.70	0.04	0.06	0.24	0.03			97.97
		ilmenite	1	0.02	53.48	0.20	42.80	2.52	5.01	0.05	0.00	0.04	0.08			104.19

表 2.2.3-3b 実験生成物における各相の化学組成 2

Run#	Capsule#	phase	n	SiO <sub>2</sub>	TiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	FeO	MnO	MgO	CaO	Na <sub>2</sub> O	K <sub>2</sub> O	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	SO <sub>3</sub>	Cl	Total	
G212	CG165	melt	32	67.61	0.38	14.64	1.31	0.10	0.31	1.46	3.92	5.06	0.09			94.86	
				0.41	0.04	0.26	0.13	0.01	0.02	0.06	0.08	0.05	0.02				
		plagioclase	13	60.90	0.05	24.96	0.23	0.02	0.01	0.01	7.03	6.95	0.88	0.03			101.06
				0.44	0.06	0.33	0.09	0.02	0.01	0.28	0.14	0.14	0.07	0.02			
G212	CG166	biotite	4	39.13	3.63	14.31	13.46	0.18	16.60	0.06	0.79	9.26	0.01			97.41	
				0.45	0.59	0.14	0.70	0.07	0.85	0.06	0.03	0.03	0.33	0.01			
		melt	15	69.84	0.38	13.41	1.23	0.10	0.23	0.10	0.79	3.54	5.69	0.09			95.30
				0.33	0.05	0.15	0.13	0.01	0.02	0.11	0.09	0.09	0.04	0.03			
G212	CG177	plagioclase	13	62.16	0.03	23.99	0.32	0.04	0.02	5.79	7.40	1.41	0.04			101.19	
				0.41	0.04	0.42	0.10	0.03	0.02	0.36	0.17	0.13	0.13	0.03			
		opx	2	51.43	0.57	2.78	23.56	2.43	19.24	1.69	0.09	0.05	0.05	0.02			101.89
				0.24	0.05	1.28	1.54	0.21	1.15	0.52	0.02	0.02	0.00	0.02			
G212	CG177	biotite	4	38.08	4.18	14.43	14.31	0.28	15.21	0.00	0.72	9.53	0.03			96.78	
				0.90	0.56	0.38	1.00	0.12	0.87	0.00	0.05	0.05	0.19	0.04			
		melt	9	70.29	0.33	14.75	1.60	0.13	0.37	0.56	3.57	6.49	0.11	0.11			98.22
				0.43	0.05	0.32	0.16	0.02	0.06	0.04	0.08	0.08	0.08	0.09			
G212	CG177	plagioclase	6	62.51	0.05	20.58	0.38	0.02	0.02	3.73	6.81	3.69	0.06			97.86	
				1.19	0.05	0.79	0.05	0.03	0.02	0.49	0.43	0.94	0.04	0.04			
		K-feldspar	6	64.07	0.09	17.92	0.36	0.00	0.01	0.91	4.73	9.40	0.04	0.04			97.54
				1.39	0.02	0.77	0.19	0.00	0.01	0.10	0.36	0.51	0.01	0.01			
G212	CG177	opx	15	47.37	0.63	6.39	24.39	2.03	18.86	0.82	0.04	0.07	0.05			100.64	
				1.60	0.17	1.36	3.30	0.38	2.22	0.32	0.04	0.05	0.04	0.04			
		pigeonite	6	48.68	0.74	6.10	20.70	1.98	17.15	5.64	0.17	0.09	0.16	0.16			101.40
				0.68	0.17	0.55	2.29	0.05	1.70	0.81	0.08	0.05	0.11	0.11			
G212	CG177	biotite	1	39.29	5.16	14.64	12.94	0.45	15.39	0.02	0.72	9.28	0.01			97.90	
		magnetite	13	0.43	4.78	4.02	85.59	1.78	2.66	0.04	0.04	0.13	0.06			99.53	
				0.18	1.26	1.73	1.76	0.17	0.16	0.03	0.05	0.04	0.07				

表 2.2.3-3c 実験生成物における各相の化学組成 3

Run#	Capsule#	phase	n	SiO <sub>2</sub>	TiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	FeO	MnO	MgO	CaO	Na <sub>2</sub> O	K <sub>2</sub> O	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	SO <sub>3</sub>	Cl	Total
	CG178	melt	23	70.58	0.37	13.32	0.87	0.09	0.25	0.56	3.49	5.99	0.11		0.01	95.64
		plagioclase	10	1.04	0.04	0.34	0.04	0.01	0.02	0.09	0.15	0.21	0.03		0.00	98.66
		biotite	6	60.87	0.03	22.92	0.35	0.03	0.03	5.71	7.23	1.46	0.03			97.29
				0.90	0.03	0.57	0.09	0.03	0.02	0.32	0.09	0.14	0.02			
		biotite	6	39.71	3.46	13.87	11.32	0.29	18.38	0.04	0.75	9.44	0.02			97.29
				0.40	0.62	0.62	0.78	0.10	0.73	0.03	0.07	0.26	0.03			
		magnetite	26	0.20	4.51	2.59	86.35	2.10	3.23	0.04	0.02	0.07	0.02			99.13
				0.13	0.28	0.11	0.80	0.10	0.08	0.02	0.03	0.03	0.03			
	CG179	melt	16	71.17	0.40	13.53	0.88	0.10	0.25	0.54	3.57	6.05	0.10		0.01	96.60
				0.85	0.05	0.52	0.03	0.01	0.02	0.07	0.14	0.14	0.04		0.00	98.27
		plagioclase	16	60.55	0.05	22.69	0.43	0.02	0.02	5.48	7.37	1.62	0.04			98.27
				0.88	0.02	0.45	0.07	0.02	0.02	0.48	0.22	0.23	0.03			
		opx	2	48.50	0.53	4.10	22.26	1.88	21.19	1.34	0.01	0.08	0.11			100.01
				0.02	0.15	0.84	1.87	0.32	1.11	0.32	0.01	0.05	0.05			
		biotite	8	39.05	3.36	14.07	13.00	0.37	17.49	0.05	0.72	9.16	0.06			97.33
				0.95	0.92	0.65	1.58	0.11	0.87	0.05	0.07	0.24	0.07			
		magnetite	15	0.17	4.12	2.68	86.60	2.03	3.16	0.03	0.04	0.07	0.02			98.92
				0.07	0.72	0.26	1.19	0.10	0.13	0.01	0.04	0.02	0.03			
		ilmenite	1	0.13	22.59	0.60	69.55	0.74	2.16	0.08	0.04	0.06	0.00			95.95
	G213	melt	19	69.59	0.46	14.25	1.37	0.10	0.51	0.88	3.98	5.51	0.10		0.00	96.77
				0.67	0.05	0.21	0.05	0.01	0.03	0.03	0.08	0.12	0.05		0.00	
		plagioclase	11	57.97	0.04	24.11	0.39	0.03	0.03	7.55	6.45	1.01	0.02			97.60
				0.92	0.04	0.67	0.09	0.02	0.03	0.46	0.27	0.26	0.02			
		opx	4	52.50	0.24	1.62	15.75	1.80	27.15	0.91	0.02	0.08	0.02			100.09
				0.19	0.03	0.58	1.22	0.09	1.12	0.17	0.02	0.05	0.02			
		magnetite	8	0.13	4.11	3.31	86.20	1.38	4.08	0.07	0.03	0.08	0.02			99.41
				0.05	0.31	0.11	0.58	0.09	0.17	0.05	0.03	0.02	0.04			

表 2.2.3-3d 実験生成物における各相の化学組成 4

Run#	Capsule#	phase	n	SiO <sub>2</sub>	TiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	FeO	MnO	MgO	CaO	Na <sub>2</sub> O	K <sub>2</sub> O	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	SO <sub>3</sub>	Cl	Total			
CG181	melt		9	70.92	0.50	14.71	2.19	0.13	0.69	0.68	3.88	6.12	0.10		0.01	99.94			
				0.48	0.05	0.41	0.34	0.02	0.06	0.06	0.14	0.16	0.02		0.00				
		plagioclase	7	58.81	0.02	23.98	0.49	0.04	0.06	7.20	6.77	1.07	0.03				98.47		
				1.25	0.02	0.80	0.11	0.04	0.01	0.78	0.42	0.23	0.03						
		opx	1	49.50	0.42	5.17	20.00	1.49	23.29	0.53	0.02	0.04	0.05				100.51		
				0.22	5.14	3.58	87.22	1.05	3.37	0.05	0.00	0.07	0.04				100.72		
		CG182	melt	18	70.01	0.48	14.57	1.65	0.11	0.58	0.89	4.25	5.74	0.10		0.01	98.40		
					1.19	0.04	0.32	0.09	0.02	0.06	0.17	0.32	0.15	0.03		0.00			
		CG185	plagioclase	14	58.23	0.03	24.44	0.42	0.03	0.04	7.68	6.57	0.91	0.03				98.37	
					0.99	0.04	0.52	0.09	0.03	0.02	0.39	0.17	0.13	0.02					
				opx	2	51.57	0.35	2.37	15.28	1.68	27.63	0.83	0.02	0.06	0.07				99.85
						0.00	0.09	0.21	1.36	0.12	0.85	0.01	0.01	0.00	0.05				
				magnetite	6	0.16	4.28	4.35	85.57	1.21	4.05	0.02	0.05	0.09	0.03				99.80
						0.04	0.52	2.40	1.60	0.34	0.55	0.02	0.04	0.03	0.04				
G215	melt	12	69.38	0.46	14.88	1.94	0.11	0.54	1.17	4.19	5.31	0.08			0.01	98.07			
			0.44	0.03	0.25	0.09	0.01	0.02	0.05	0.05	0.06	0.04			0.00				
		plagioclase	4	57.83	0.02	25.33	0.53	0.03	0.06	8.68	5.99	0.90	0.03				99.41		
				0.67	0.04	0.30	0.07	0.03	0.03	0.32	0.10	0.13	0.02						
CG186	magnetite	2	0.12	2.97	4.14	88.48	0.99	3.68	0.02	0.02	0.03	0.03				100.48			
			0.00	0.52	0.32	0.15	0.10	0.12	0.02	0.02	0.05	0.01							
		melt	20	68.64	0.47	15.05	1.90	0.10	0.52	1.35	4.16	5.11	0.08			0.01	97.40		
				0.28	0.03	0.13	0.03	0.01	0.02	0.05	0.08	0.04	0.03			0.00			
		plagioclase	10	55.60	0.03	25.99	0.54	0.04	0.04	9.85	5.54	0.65	0.02				98.29		
				0.42	0.03	0.35	0.08	0.04	0.03	0.18	0.14	0.05	0.02						
CG187	melt	15	69.99	0.47	14.71	2.02	0.11	0.59	0.98	4.12	5.58	0.15			0.00	98.72			
			0.53	0.05	0.23	0.11	0.01	0.05	0.15	0.09	0.07	0.26			0.00				
		plagioclase	8	57.87	0.02	23.81	0.49	0.02	0.04	7.38	6.60	1.10	0.08				97.43		
				0.84	0.03	0.29	0.07	0.03	0.03	0.18	0.15	0.06	0.11						
magnetite	3	0.23	4.24	4.05	86.34	1.02	3.56	0.05	0.02	0.08	0.03				99.62				
		0.04	0.59	0.24	1.90	0.13	0.06	0.02	0.03	0.02	0.03								

## 結果・考察

行った全ての実験(産総研(2017)も含む)の Run table を表 2.2.3-2 に、各相の化学組成を表 2.2.3-3 に示す。各実験生成物の反射電子像写真を図 2.2.3-2 に示す。産総研(2017)で報告した 12 回のランに加え、さらに低圧の 6 回を行った。実験生成物中のガラスの含水量直接測定は行っていないが、50MPa の実験を除き、出発物質組成と各相の組成によりマスバランス計算で算出した結晶量比から、水がメルトに濃集すると仮定して求めた(黒雲母の含水量は 3wt%とする)。全ての実験生成物は部分熔融し、ガラスが存在している。主に低圧の実験(特に 100MPa, 50MPa)において、メルト中の水が飽和し、気泡が発生している実験生成物(CG89, 123, 134, 157, 158, 164, 178, 179, 181, 182, 185, 186)が見られた。CG89 のみ出発物質で加えられた含水量よりも明らかに多くガラス中に水が溶存しており、気泡が多数存在していることからアウターカプセル内に多量に存在する水と触れ、水に飽和していたと考えることが出来る。晶出した結晶種は、斜長石・カリ長石・斜方輝石・黒雲母・イルメナイト・マグネタイトである。50MPa の実験生成物のみマグネタイトが確認された。斜長石は全てのランにおいて自形であり、長辺で 20~30 $\mu\text{m}$  のものが多い。プレヒートを行ったランにおいては、長辺で最大 50 $\mu\text{m}$  まで成長した結晶が見られる。カリ長石はポイキリティック的に成長し、黒雲母やイルメナイトを包有しているものが多く最大長辺で 50 $\mu\text{m}$  ほどになる。斜長石とカリ長石はしばしば双晶を形成している。斜方輝石は 10 $\mu\text{m}$  以下の自形の結晶が主に見られるが細長く針状に成長したものも見られる。黒雲母は 5 $\mu\text{m}$  以下の結晶が主で、電子線マイクロプローブによる分析が難しいほど小さい結晶がしばしば見られる。プレヒートした試料は、長辺で数 10~100 $\mu\text{m}$  以上の長さを持つ黒雲母結晶が見られる。イルメナイトは 5 $\mu\text{m}$  以下の自形の結晶として晶出するが、これも黒雲母と同様に分析が難しいものが多い。プレヒートした試料は最大 30 $\mu\text{m}$  ほどに成長するが、カプセルの縁に接触しているものがほとんどである。マグネタイトもイルメナイトとほぼ同じ産状である。表 2.2.3-3 で示された各相の化学組成分析値は、測定対象となる結晶(黒雲母とイルメナイト)が小さい(<5 $\mu\text{m}$ )ために周囲のガラスを分析時に引っかけて測定してしまったものも含まれている。

## 酸素雰囲気

カプセル同士の融着によりカプセルの分離が困難なものがあったため水素センサーの回収に成功したのが 6 ランのみであった。本研究において水素センサーを用いて酸素雰囲気を見積もることができたのは、実験後に Ni, NiO と H<sub>2</sub>O が共存していた SHG77, SHG78, G192, G193 のみであった。酸素雰囲気が測定可能であった実験生成物に対し、酸素雰囲気を求めると、表 2.2.3-2 のようになる。これらの酸素雰囲気は NNO-0.2 ~ +1.7 であった。バッファ剤を用いずに内熱式ガス圧装置で実験をこなすと NNO+3 (=MNO)程度になると Tatsumi and Suzuki(2009)で報告されており、この酸素雰囲気の違いはメルト中の鉄の価数に影響を与えることから、バッファに失敗したランは Fe<sup>2+</sup>が主に含まれる斜方輝石や黒雲母の組成・晶出領域に影響を与える可能性がある。

## 相平衡図

50MPa, 100MPa, 195MPa, 400MPa, 700MPa それぞれの圧力における実験生成物の相関

係を図 2.2.3-3 における実線で示す。195MPa, 400MPa, 700MPa の相平衡図においては、産総研(2017)で報告されたものに、全岩 H<sub>2</sub>O の値を FTIR で測定し直したものである。斜長石、カリ長石は含水量の増加に伴い、急激に晶出する温度が低下する。斜方輝石は低含水量条件下で主に晶出し、含水量が増えると斜方輝石に取って代わり黒雲母が晶出する。黒雲母の晶出する温度は、含水量が増えてもほぼ変化はない。50, 100, 195MPa における各結晶の晶出温度は、400MPa, 700MPa のものと比べて全体的に数十°C低い。黒雲母が晶出せずに斜方輝石・斜長石が晶出するのは、どの圧力においてもおよそ全岩でおよそ 3wt%かそれ以下の時であることがわかる。

### 結晶の組成

実験生成物の斜長石・斜方輝石の組成を図 2.2.3-4, 図 2.2.3-5, 図 2.2.3-6 で示す。グレーの領域は鉄チタン鉱物の平衡温度と斑晶鉱物の組成範囲を示す。実験で晶出した斜長石組成は全岩の含水量が増えるに従って Anorthite(An)成分が上昇する傾向がある(図 2.2.3-4)。同含水量条件下で圧力変化を見ると、低圧ほど高 An に、高圧ほど低 An になる。相平衡図から黒雲母が晶出しない領域がおおよそ 3wt%かそれ以下であると求められたので、全岩含水量が 2.9wt%のときの実験のみ注目して温度・圧力・An 値の値を比較した(図 2.2.3-5)。再現すべき KJ5665 の斜長石斑晶コア組成が An<sub>30</sub> から An<sub>40</sub> なので、鉄チタン鉱物温度計による温度がおおよそ 880°Cであることを考慮すると、およそ 200MPa かそれ以下である必要があることがわかる。また、50MPa における水に乏しい(~1.5wt%)実験の斜長石組成も併せてプロットすると(図 2.2.3-4)、これらは 880°C において斑晶組成と大きく外れることから含水量は少なくとも 1.5wt%よりは高いことが示せる。つまり、相関係と斜長石組成から圧力がおおよそ 200MPa かそれ以下、含水量が 1.5wt%以上 3.0wt%以下であることがわかる。斜方輝石の組成を見ると、低含水量条件下でのみ斜方輝石が晶出している中、系統的な圧力変化は見られない(図 2.2.3-6)。しかし、195MPa における実験に着目すると、Mg#73 となる実験は G190 であり、酸素雰囲気制御のためのバッファ剤を使い切ってしまったランであり酸素雰囲気は NNO よりも高いことが予想される一方、G192 はおよそ NNO でバッファされている。斜方輝石の Mg#は、メルトと斜方輝石の分配においてメルト中の Fe<sup>2+</sup>量に強く依存するため、酸素雰囲気が酸化的であるほど Mg#が高くなることが期待されることから、Mg#72-73 の斜方輝石を再現するためには G190 と同程度の酸化的な条件が必要であることがわかる。実際、鉄チタン鉱物酸素雰囲気計により酸素雰囲気は FMQ+2(NNO+1.4)程度であると予測されていることから、NNO よりも酸化的な実験生成物ほど斑晶組成に近くなることは矛盾しない。

### 実験生成物中のメルト組成

実験生成物のメルト組成を図 2.2.3-7 で示す。大きい黒丸の点が出発物質に用いた KJ5665 の含水ガラスであり、温度が低下するに伴ってある組成を持つ結晶が晶出し、それによってメルト組成が分化をしていく様子が見て取れる。FeO, MnO, MgO, Na<sub>2</sub>O, K<sub>2</sub>O は、含水量・圧力にほとんど依らずある傾きをもって SiO<sub>2</sub>が増えると共に増減する。TiO<sub>2</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, CaO は全岩含水量の違いでメルト組成の変化に相違が見られる。含水量が多い(6.7wt%)実験においては、斜長石の晶出が抑えられるため Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, CaO に富む分化曲線(液相降下曲線)をたどる。逆に、TiO<sub>2</sub>は斜

長石と鉄チタン鉱物がどちらが早く晶出し始めるかに大きく依存することから、含水量が低い (~3wt%) ものほど  $\text{TiO}_2$  に富む傾向になる。本研究の相平衡実験で出発物質として用いた KJ5665 は、斑晶はすべて石基メルトと平衡であったと見なせることから、実験生成物のメルト組成は、マグマ溜まりに相当する条件下において KJ5665 の石基ガラス組成を再現するはずである。FeO,  $\text{Na}_2\text{O}$  を除いて実験生成物のメルト組成は MnO, MgO,  $\text{K}_2\text{O}$  と、 $\text{TiO}_2$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , CaO の含水量に乏しい (~3wt%) 液相降下曲線で再現できる。FeO が石基ガラス組成よりも低くなったことは、実験に伴い Ag50Pd50 カプセルにより鉄が吸収された可能性がある。Na<sub>2</sub>O が石基ガラスよりも低いことは、以上の影響を考慮しても説明することは出来ない。しかし、KJ5665 の軽石断面をよく観察すると、軽石内に火砕流の基質組織が気泡を埋める形で存在している箇所が観察される(図 2.2.3-8)。この基質部分を電子線マイクロプローブで測定すると、図 2.2.3-9 に示されるように  $\text{SiO}_2$  に極端に富みアルカリ元素に乏しい、組成の変化が大きい風化(変質)に伴うバリエーションでみられる。KJ5665 を実験に用いる際、超音波洗浄機にて入念に洗浄を行ったが、それでも残ってしまった変質物が全岩組成をわずかに変えてしまった可能性が考えられる。図 2.2.3-9 の矢印の根元の組成の変質物が 15wt% 混ざることによって全岩組成が変化すると仮定すると、実験生成物のメルト組成(特に  $\text{Na}_2\text{O}$ ) と石基組成との相違が説明できる。もし、 $\text{SiO}_2$  が極端に富んだ変質物が多い場合、 $\text{TiO}_2$ , FeO, MgO の液相降下曲線が石基組成と大きく外れることから、このような極端な変質物は少量であると予想できる。

#### Aso-4 珪長質端成分の噴火前マグマ溜まり条件

実験における相関係、晶出鉱物の組成から、Aso-4 軽石(KJ5665)中に含まれる斑晶組み合わせ、斑晶コア組成を再現する条件を満たす温度、圧力、全岩の含水量を見積もることが出来る(図 2.2.3-10)。KJ5665 は斑晶として斜長石・斜方輝石・鉄チタン鉱物・少量の普通角閃石が含まれ、黒雲母は見られないことから、実験の相関係により黒雲母が晶出しないおよそ 3wt% かそれ以下の含水量が必要である。高含水量条件下では斜長石が晶出しないことから不適であると言える。次に、斜長石の組成に着目すると、高圧条件では低 An の斜長石が晶出し、KJ5665 の斜長石組成を再現することが出来ず、195MPa かそれ以下の実験で再現することが出来ることから、およそ 200MPa かそれ以下であると示せる。また、低含水量(~1.5wt%) における実験においても斜長石斑晶組成を再現できないことから、~1.5wt% 以上の含水量が必要であることがわかる。

#### 斑晶として少量含まれる普通角閃石

KJ5665 中には斑晶として少量の普通角閃石が含まれる。軽石を直径 1 インチの型に樹脂で埋め込み片面研磨したものを 3 個用意し、電子線マイクロプローブにより組織観察したところ普通角閃石は見つからず、またマスバランス計算から斑晶量としてはわずかである。本実験における結論は、斜長石が KJ5665 において支配的な結晶であることから角閃石の有無によって変わることはないが、Aso-4 のような大規模カルデラ噴火を引き起こすようなマグマの混合過程を理解するためにも斑晶としてみられる普通角閃石の起源を検討する必要がある。Putirka(2016)によると、メルトと角閃石の

$$K_D = (\text{FeO}/\text{MgO})_{\text{amphibole}}/(\text{FeO}/\text{MgO})_{\text{melt}}$$

が  $0.28 \pm 0.11$  に入るものが平衡の目安であると提唱している。KJ5665 の普通角閃石と石基ガラスで同様に比較すると  $(\text{FeO}/\text{MgO})_{\text{amphibole}}/(\text{FeO}/\text{MgO})_{\text{melt}}$  が 1.9 程度となり、この目安の中には入る。メルト中の含水量を 2wt% と仮定すると、圧力が 160MPa、温度が 940°C、予測されるメルトの  $\text{SiO}_2$  量が 65wt% となる。Ridolfi and Renzulli(2012)の経験的な手法による角閃石の組成を用いた温度圧力計によると、温度が 940°C、圧力が 198MPa、メルト中の含水量が 3.3wt% となる。

以上により、熱力学的解析からは KJ5665 の角閃石斑晶が Aso-4 珩長質端成分マグマと平衡に晶出したかどうかは断言することが出来ないが、平衡実験において晶出を確認できないことから Tomiya and Takahashi (1995)のようにマフィックなマグマの注入時に晶出した可能性がある。これらのさらなる検証として、普通角閃石をメルトと共存する環境で高温高压下において分解するかどうかをチェックする、メルト包有物分析からメルトとの親子関係をチェックする、流体の有無で出現相が変化する可能性がある(Bolte et al., 2015)ことから流体に飽和した系で実験を行うこと、などが必要である。

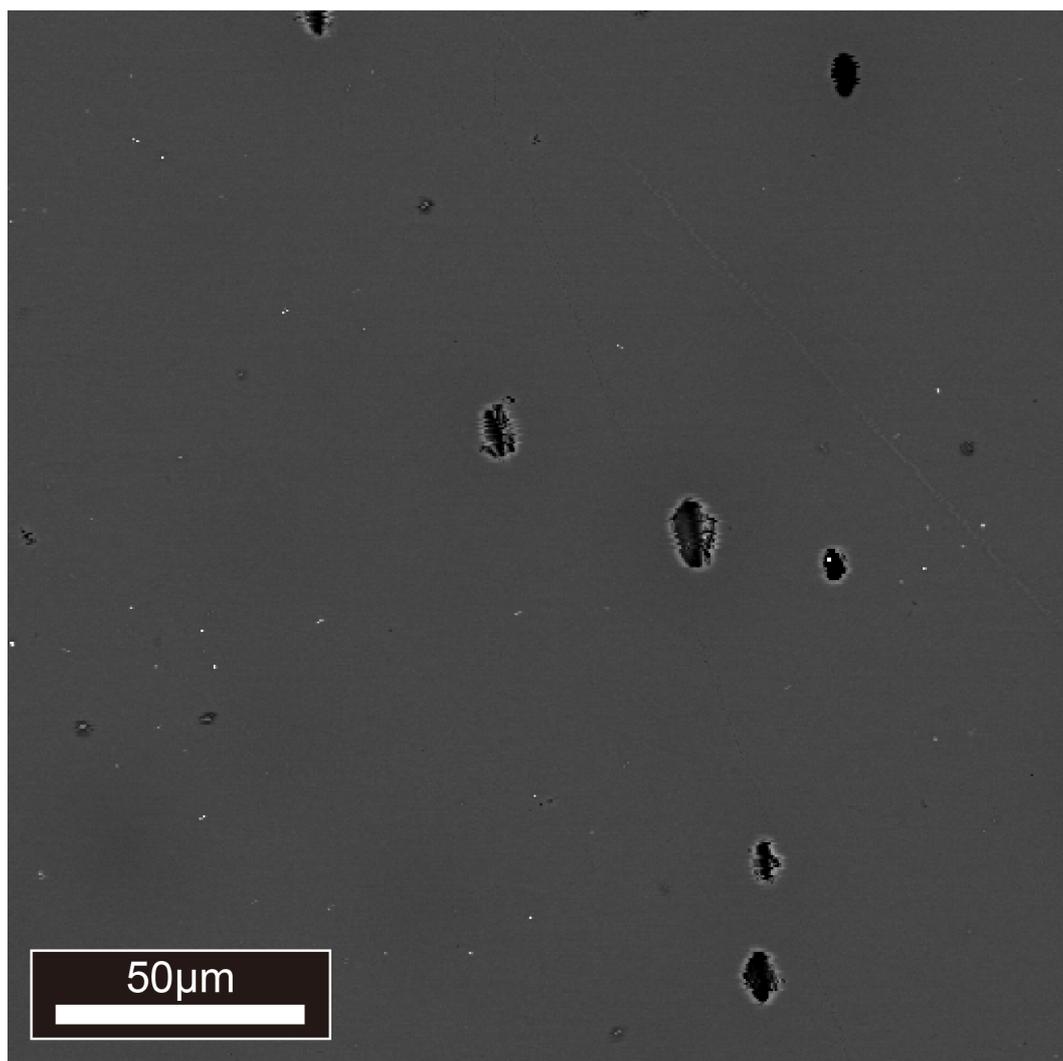


図 2.2.3-2a 100MPa, 950°C, 全岩含水量で 6.7wt% (CG157, G201)の反射電子像写真

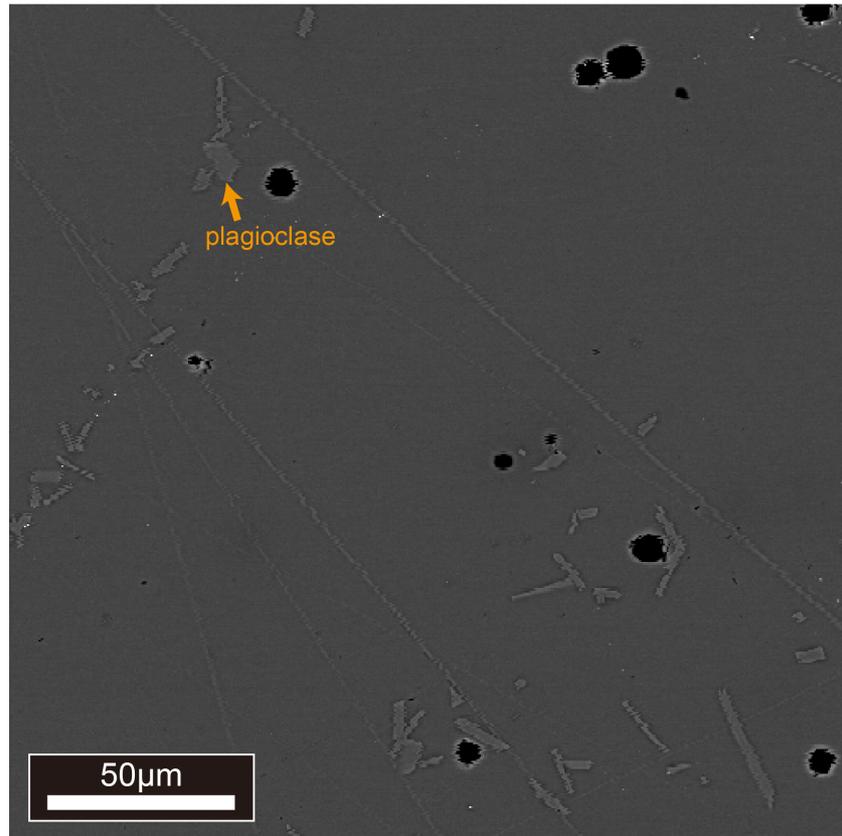


図 2.2.3-2b 100MPa, 950°C, 全岩含水量で 2.9wt% (CG161, G201)の反射電子像写真

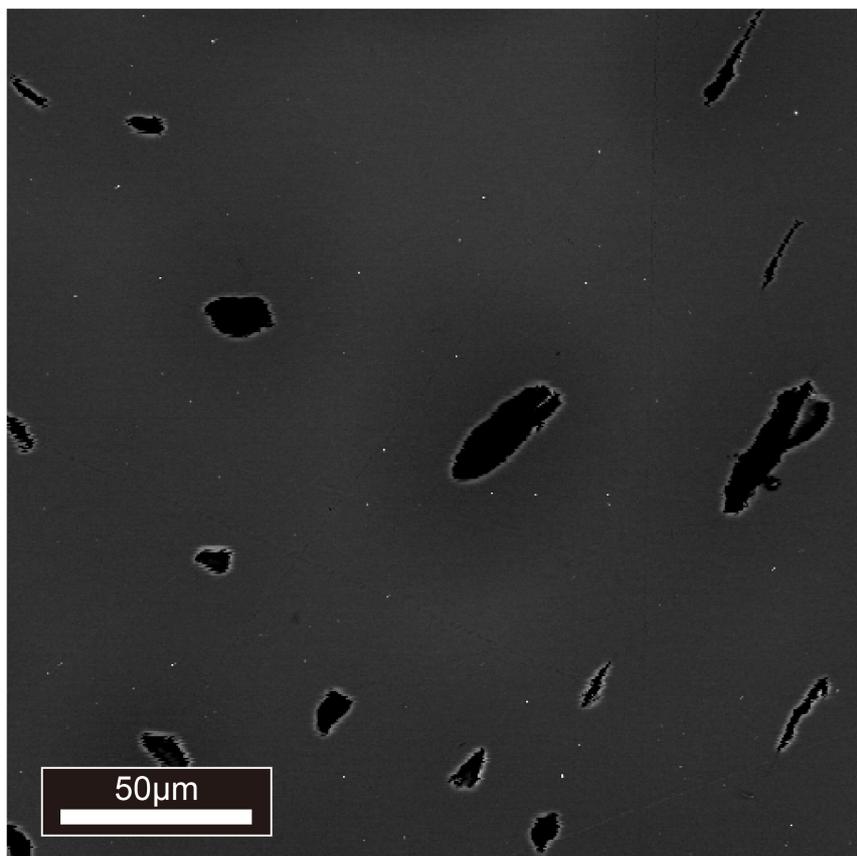


図 2.2.3-2c 100MPa, 900°C, 全岩含水量で 6.7wt% (CG158, G202)の反射電子像写真

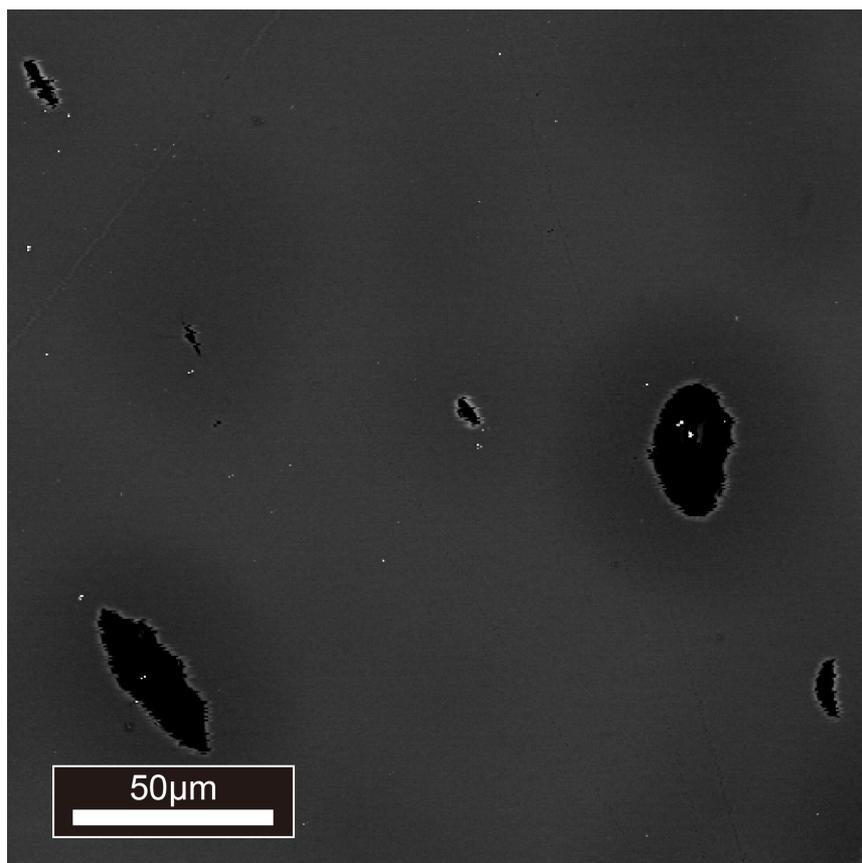


図 2.2.3-2d 100MPa, 900°C, 全岩含水量で 3.6wt% (CG160, G202)の反射電子像写真

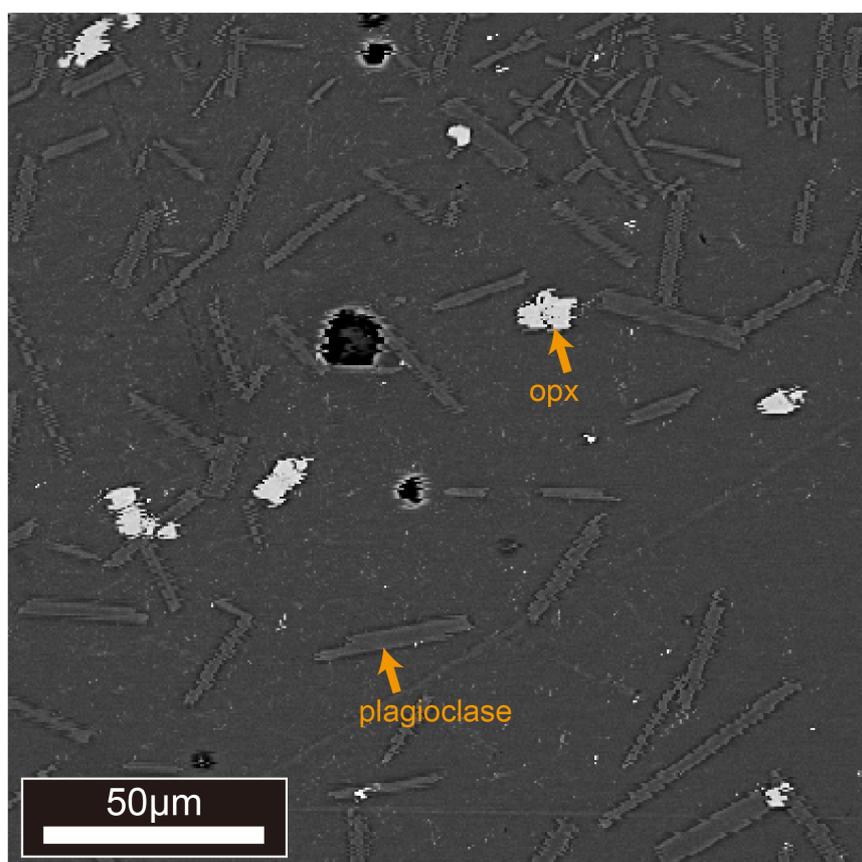


図 2.2.3-2e 100MPa, 900°C, 全岩含水量で 2.9wt% (CG162, G202)の反射電子像写真

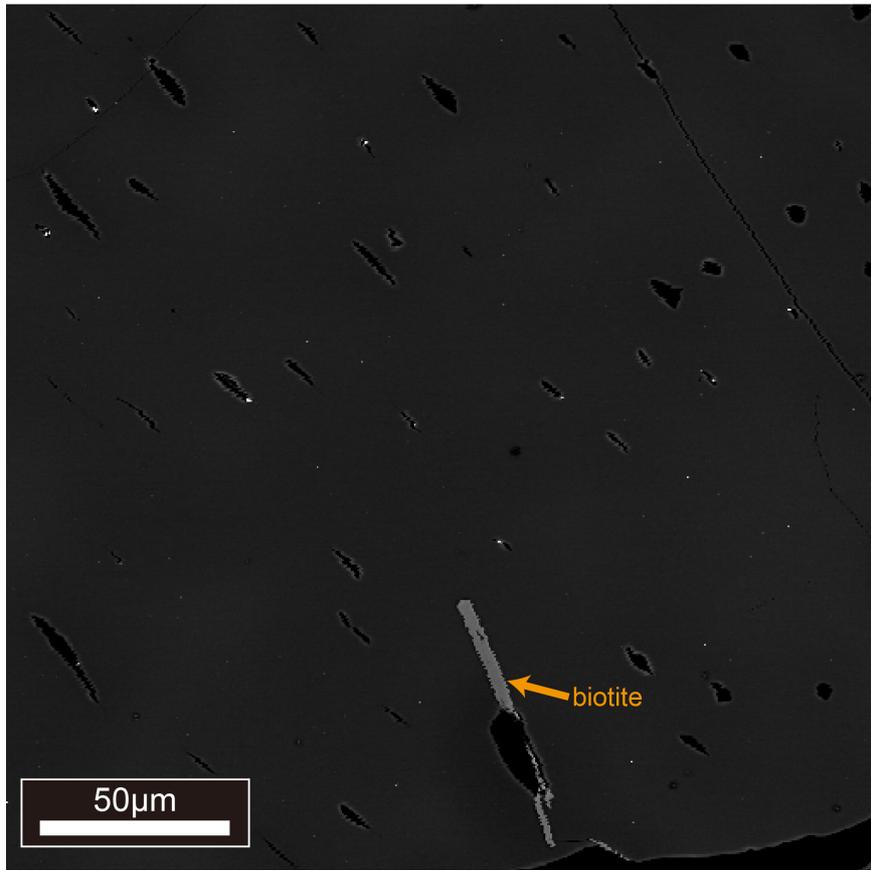


図 2.2.3-2f 100MPa, 850°C, 全岩含水量で 6.7wt% (CG164, G203)の反射電子像写真

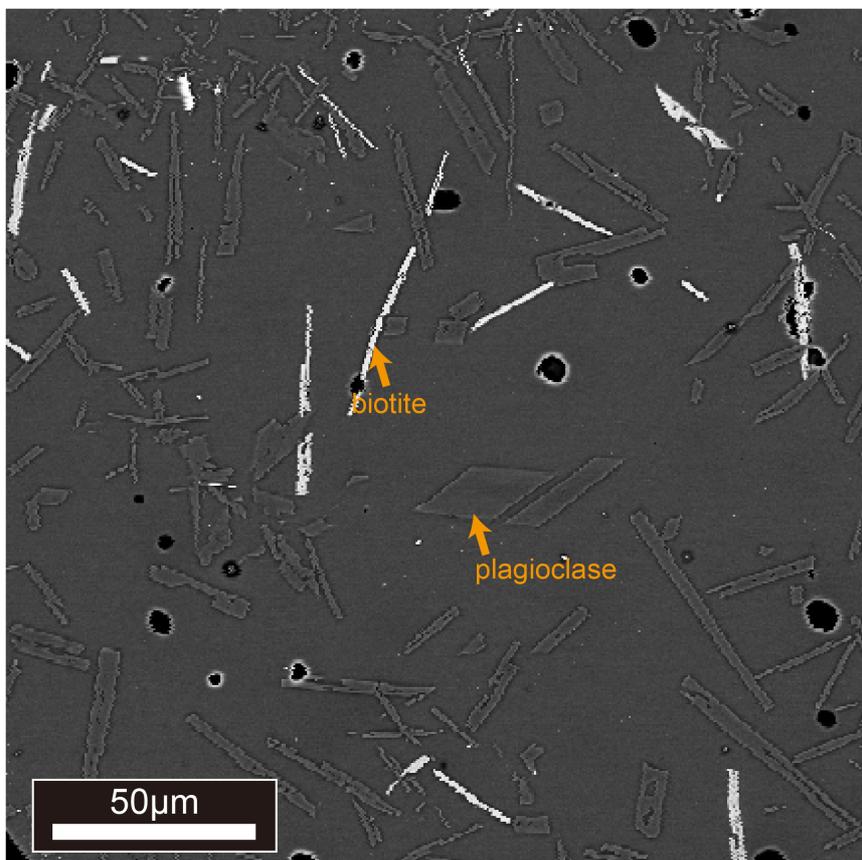


図 2.2.3-2g 100MPa, 850°C, 全岩含水量で 3.6wt% (CG165, G203)の反射電子像写真

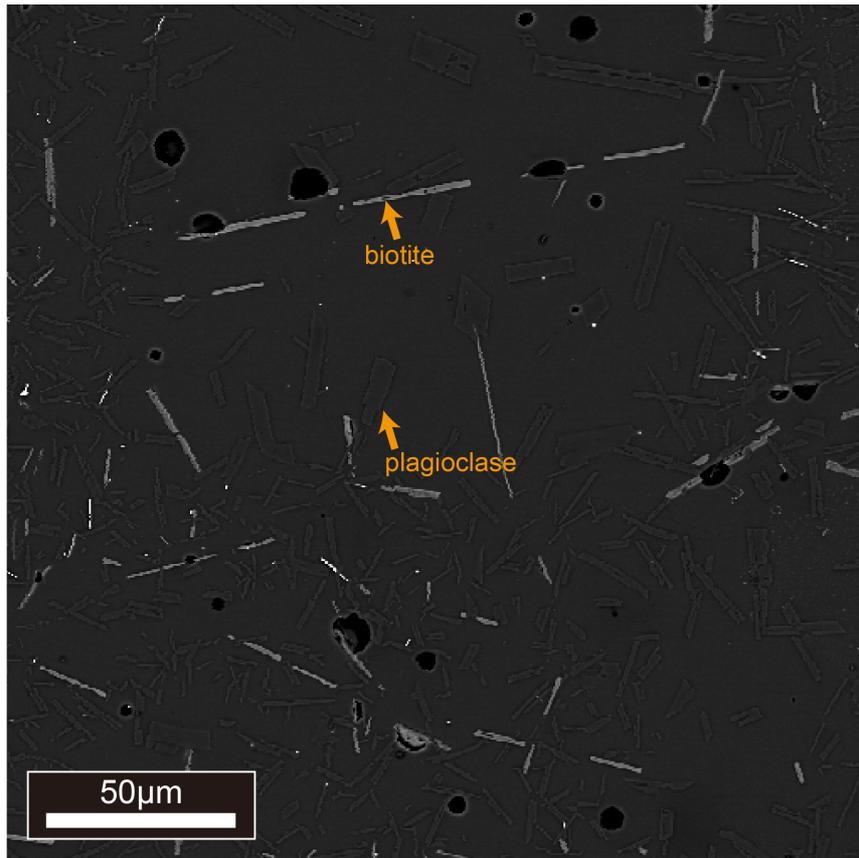


図 2.2.3-2h 100MPa, 850°C, 全岩含水量で 2.9wt% (CG166, G203)の反射電子像写真

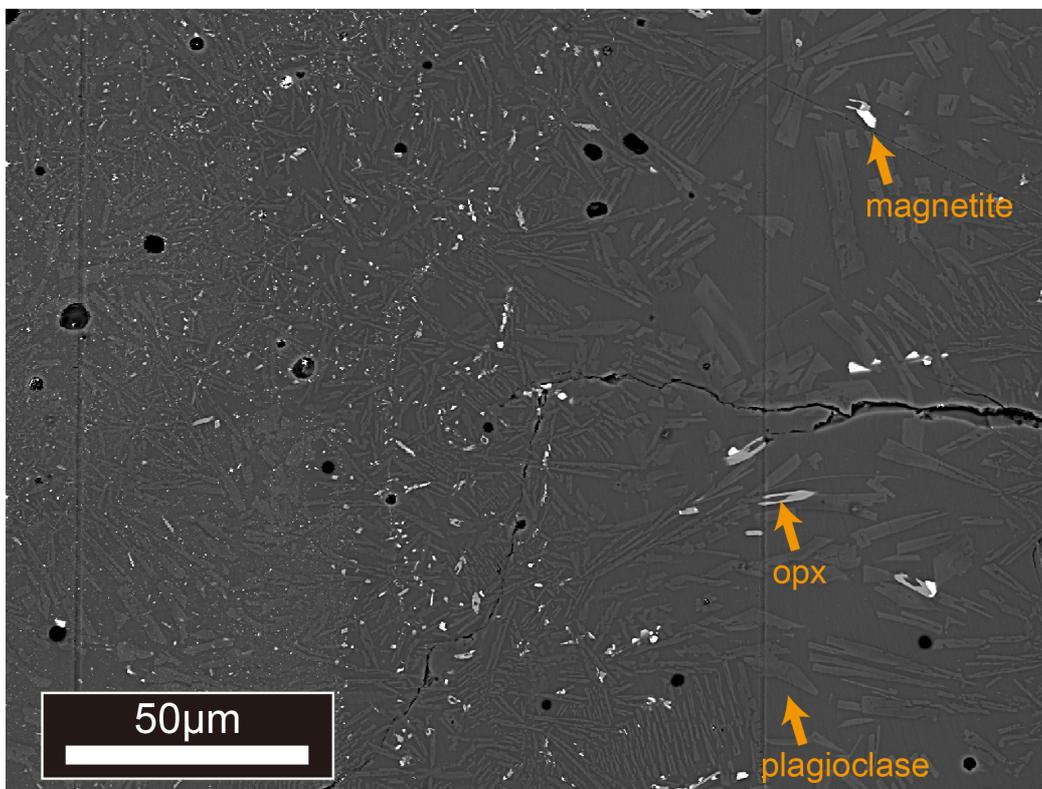


図 2.2.3-2i 50MPa, 850°C, 全岩含水量で 1.5wt% (CG177, G212)の反射電子像写真

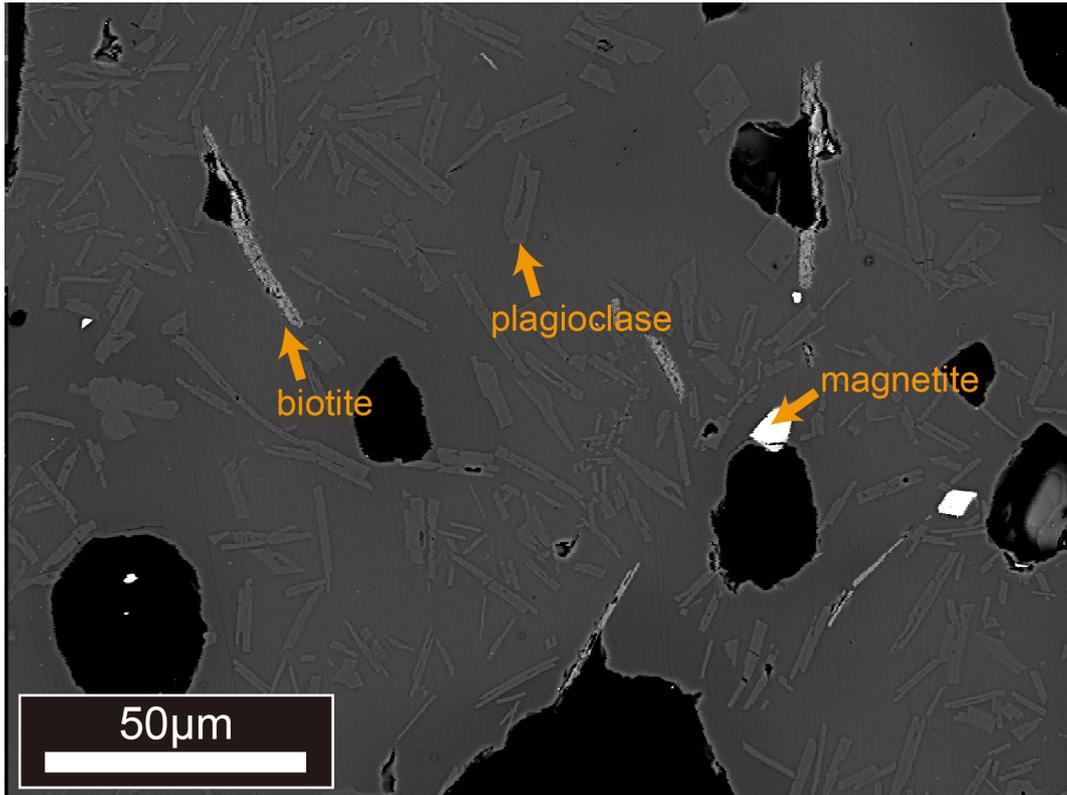


図 2.2.3-2j 50MPa, 850°C, 全岩含水量で 3.6wt% (CG178, G212)の反射電子像写真

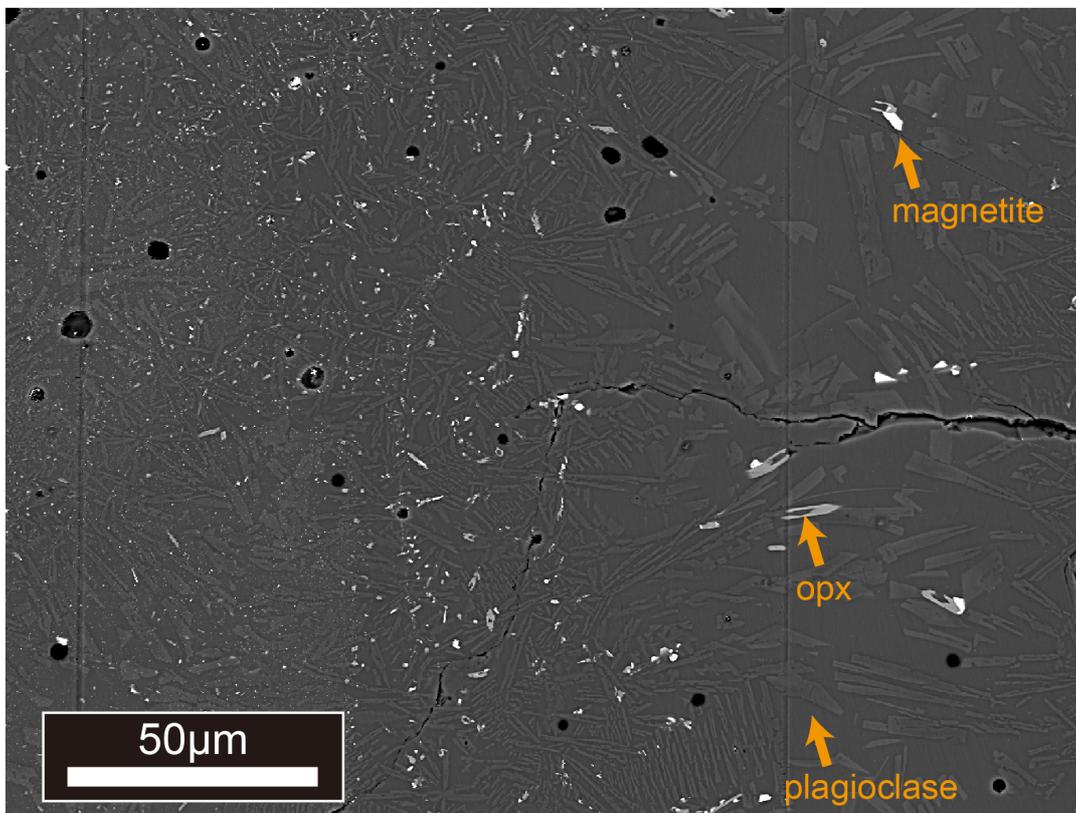


図 2.2.3-2k 50MPa, 850°C, 全岩含水量で 6.7wt% (CG179, G212)の反射電子像写真

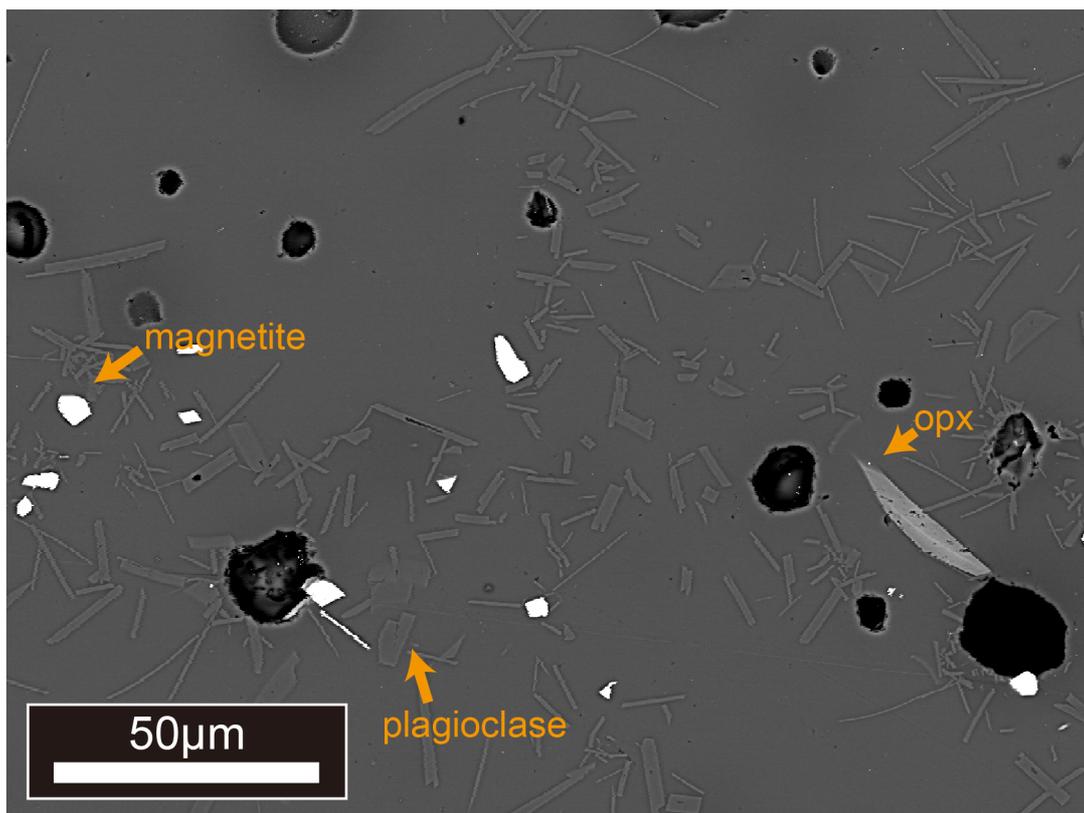


図 2.2.3-2l 50MPa, 900°C, 全岩含水量で 1.5wt%(CG180, G213)の反射電子像写真

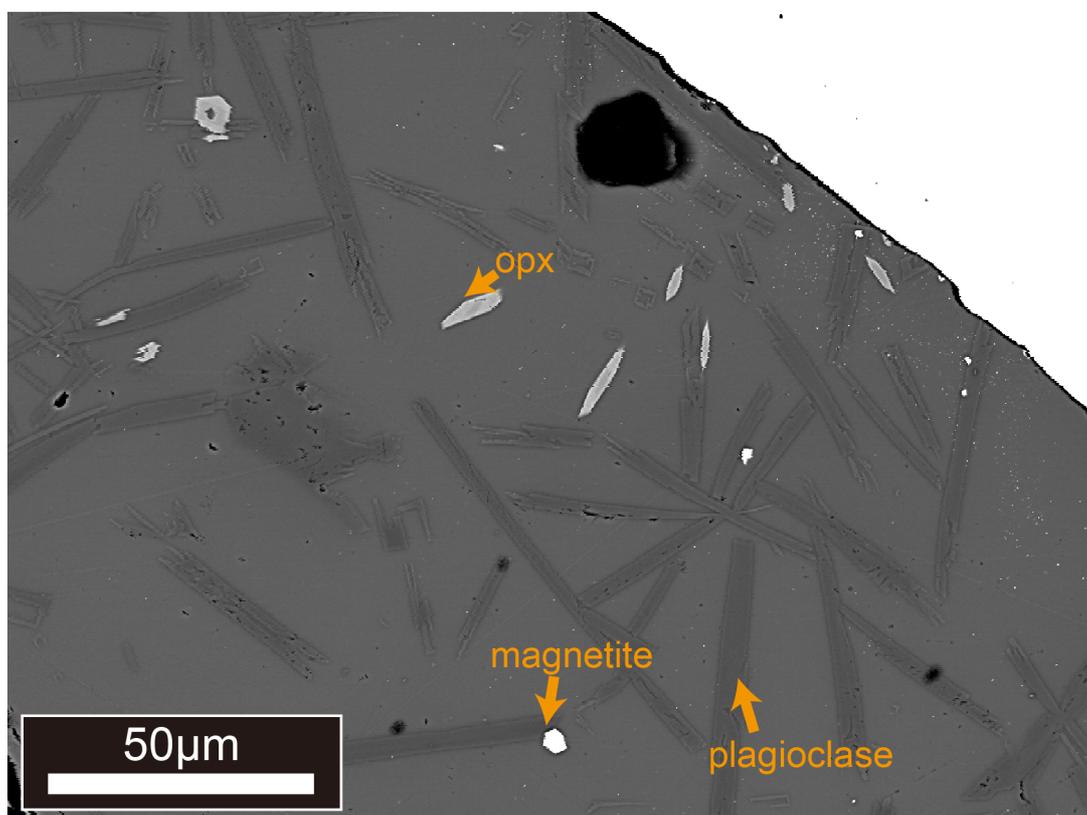


図 2.2.3-2m 50MPa, 900°C, 全岩含水量で 2.9wt%(CG181, G213)の反射電子像写真

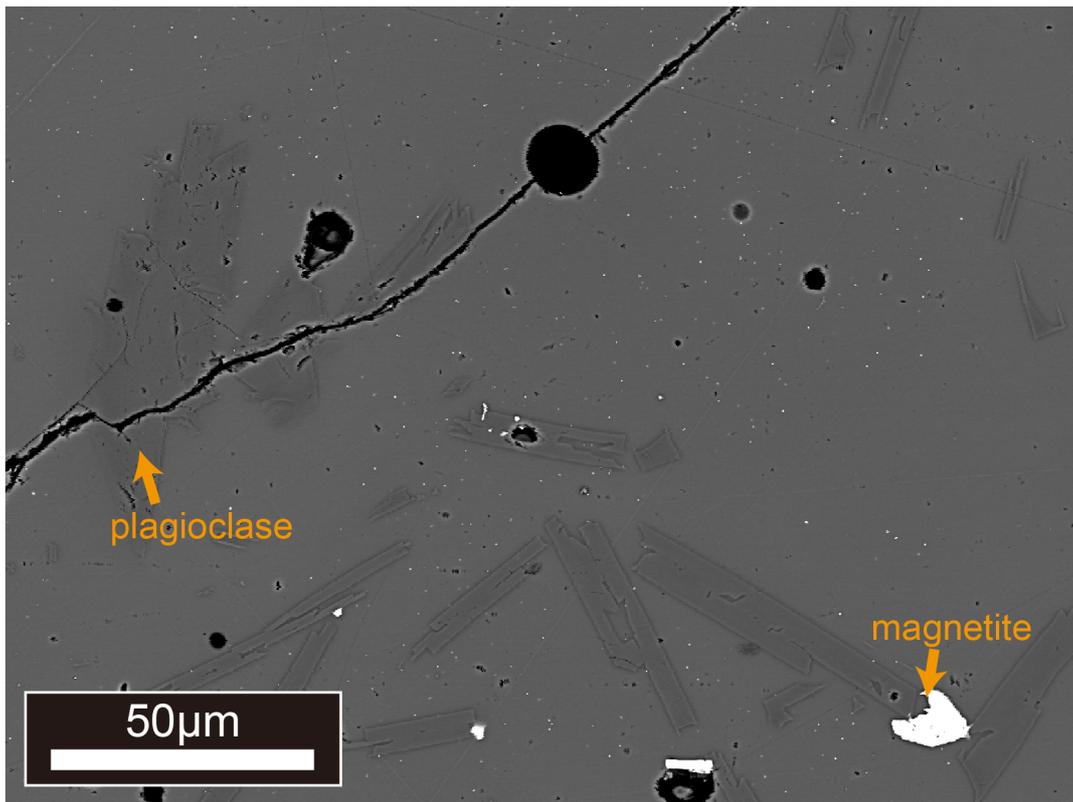


図 2.2.3-2n 50MPa, 900°C, 全岩含水量で 3.6wt%(CG182, G213)の反射電子像写真

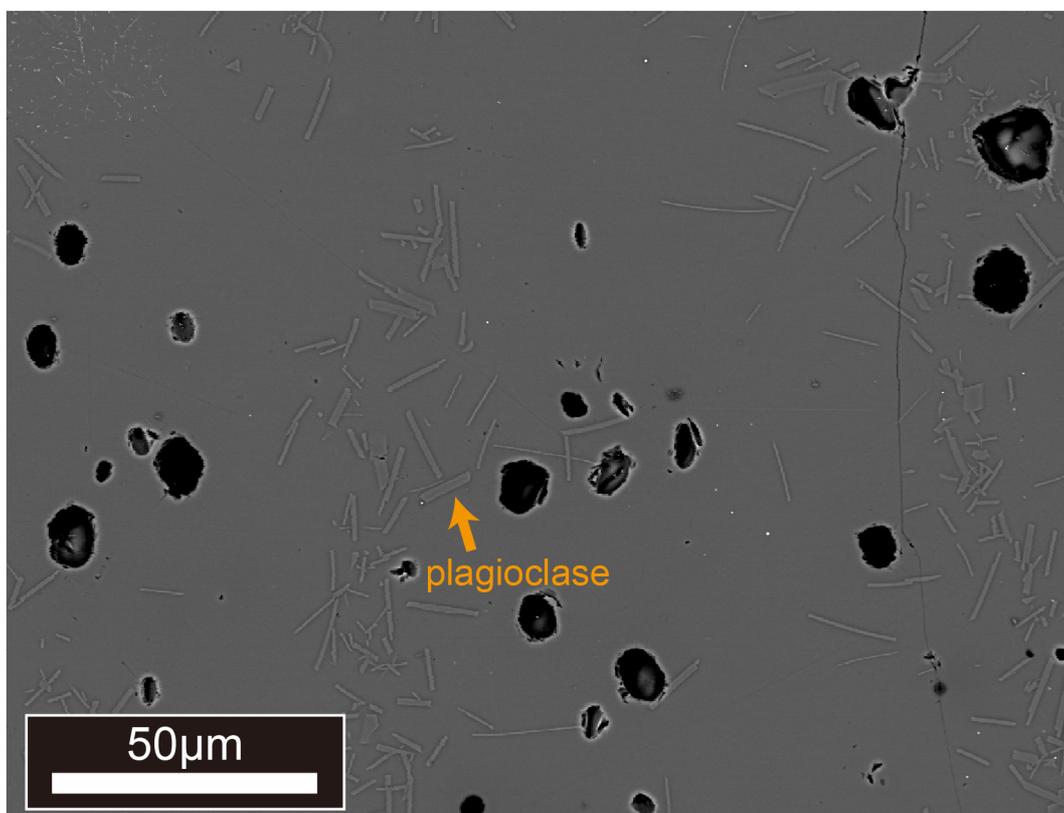


図 2.2.3-2o 50MPa, 900°C, 全岩含水量で 3.6wt%(CG185, G215)の反射電子像写真

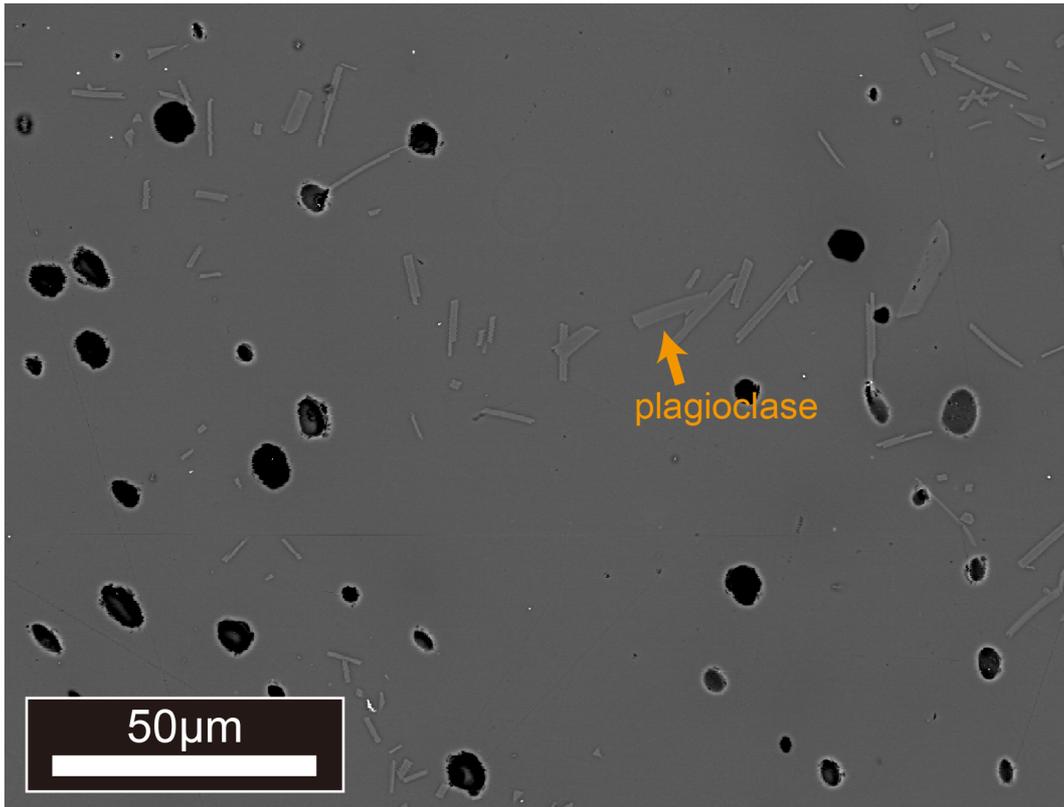


図 2.2.3-2p 50MPa, 900°C, 全岩含水量で 2.9wt%(CG186, G215)の反射電子像写真

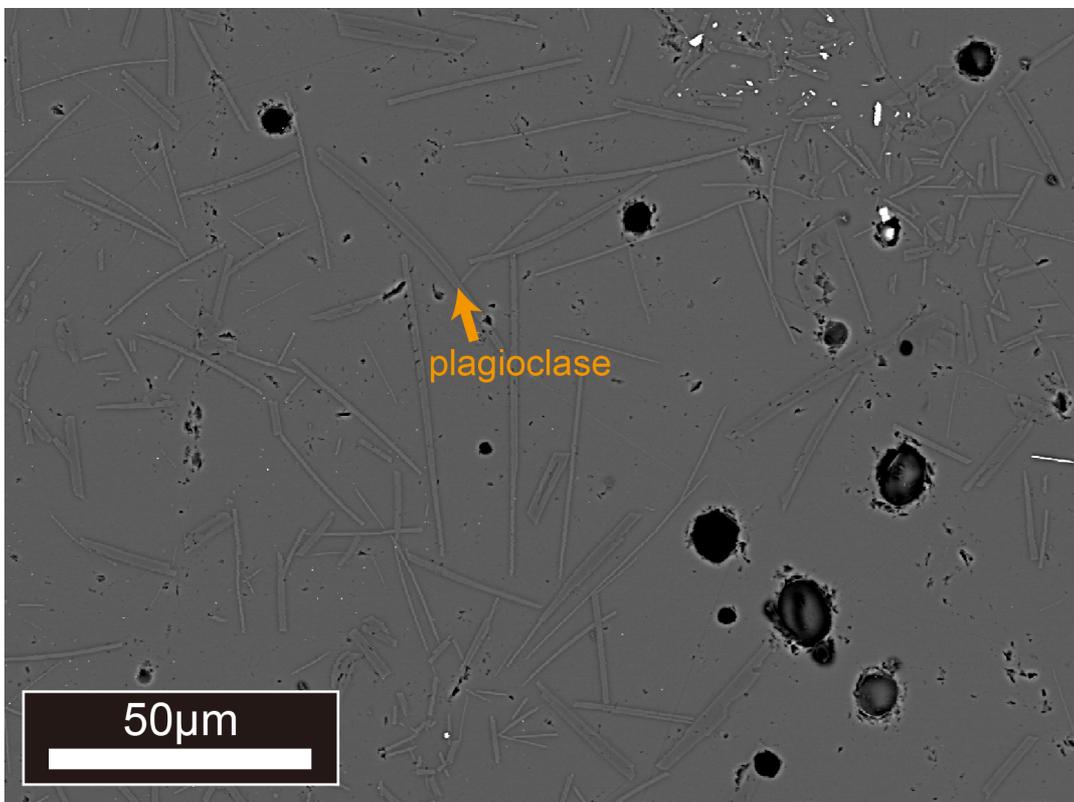


図 2.2.3-2p 50MPa, 900°C, 全岩含水量で 1.5wt%(CG187, G215)の反射電子像写真

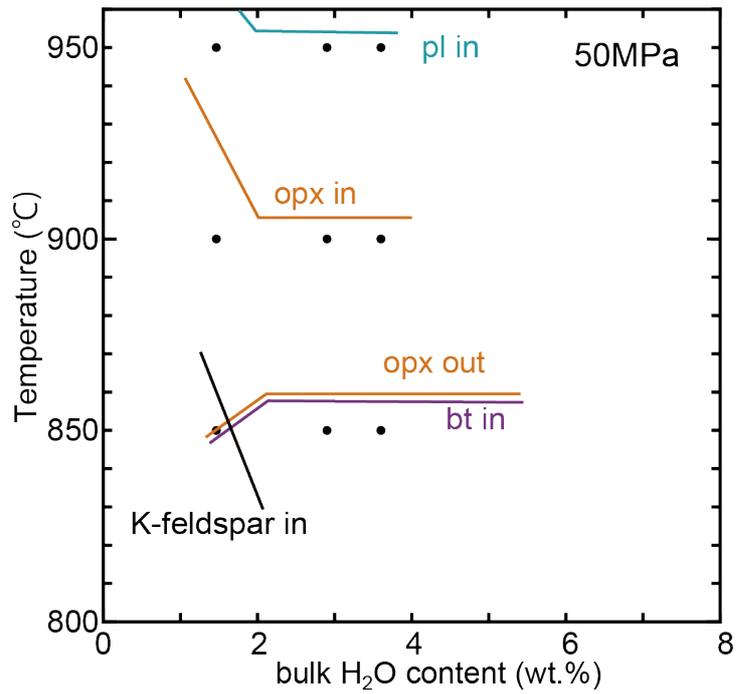


図 2.2.3-3a 実験により決定した KJ5665 の高温高圧下における相平衡図(50MPa). 黒点は実験点.

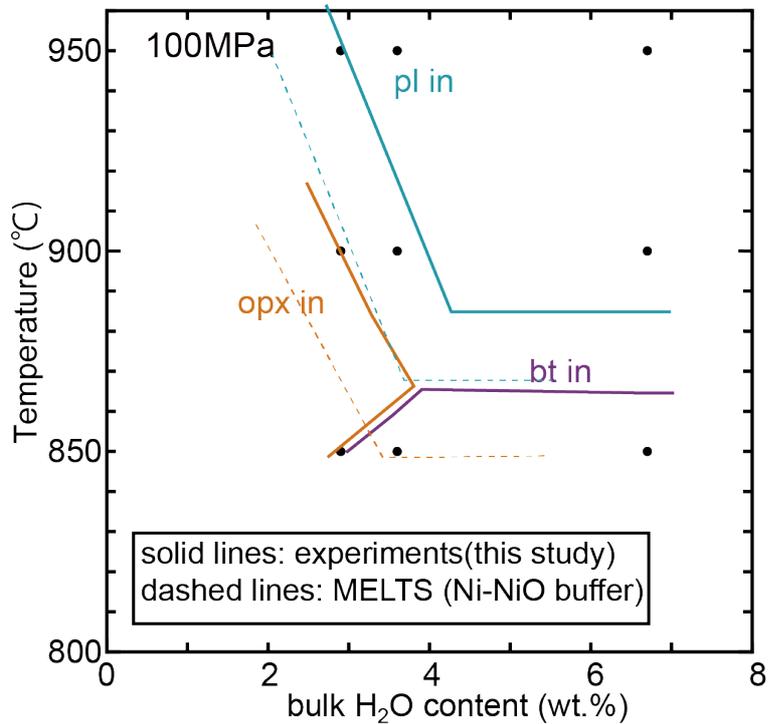


図 2.2.3-3b 実験により決定した KJ5665 の高温高圧下における相平衡図(100MPa). 黒点は実験点.  
MELTS(Ghiorso and Sack, 1995; Gualda et al., 2012)による計算結果は点線で示す.

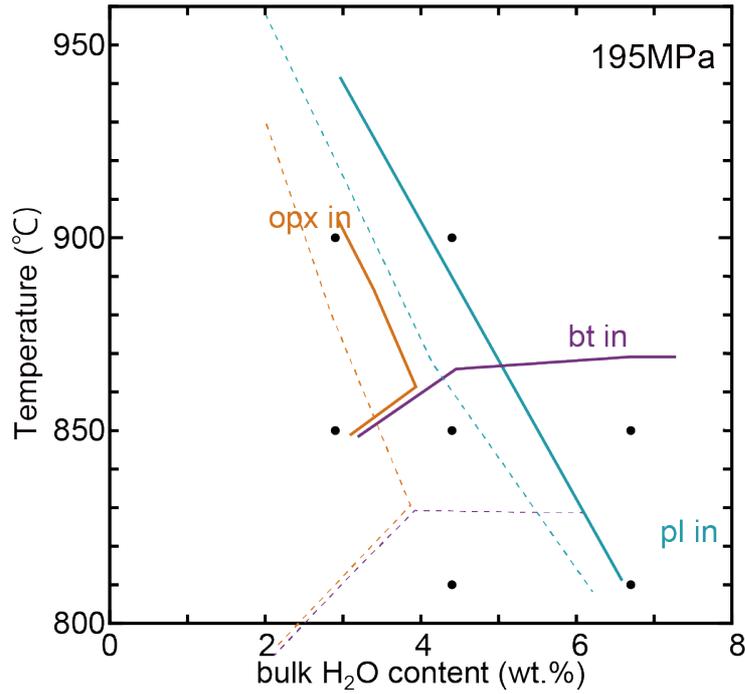


図 2.2.3-3c 実験により決定した KJ5665 の高温高圧下における相平衡図(195MPa). 黒点は実験点. 産総研(2017)の結果に横軸の H<sub>2</sub>O を測定結果を反映させた.

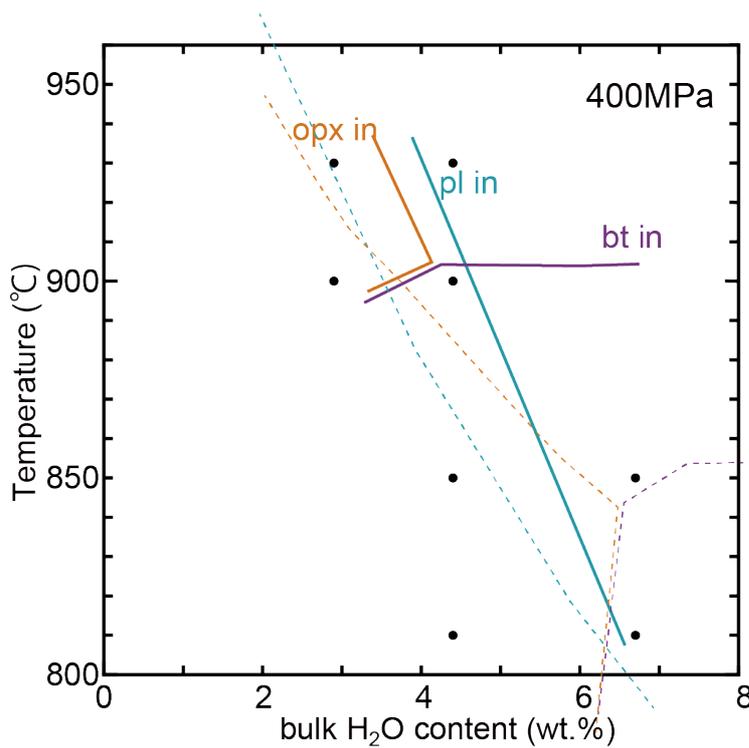


図 2.2.3-3d 実験により決定した KJ5665 の高温高圧下における相平衡図(400MPa). 黒点は実験点. 産総研(2017)の結果に横軸の H<sub>2</sub>O を測定結果を反映させた.

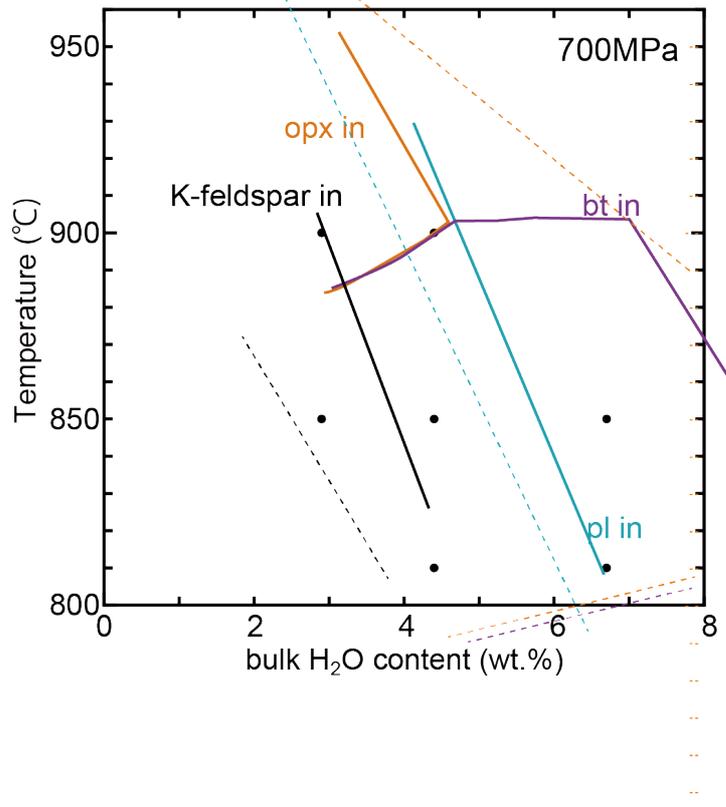


図 2.2.3-3e 実験により決定した KJ5665 の高温高圧下における相平衡図(700MPa). 黒点は実験点. 産総研(2017)の結果に横軸の H<sub>2</sub>O を測定結果を反映させた.

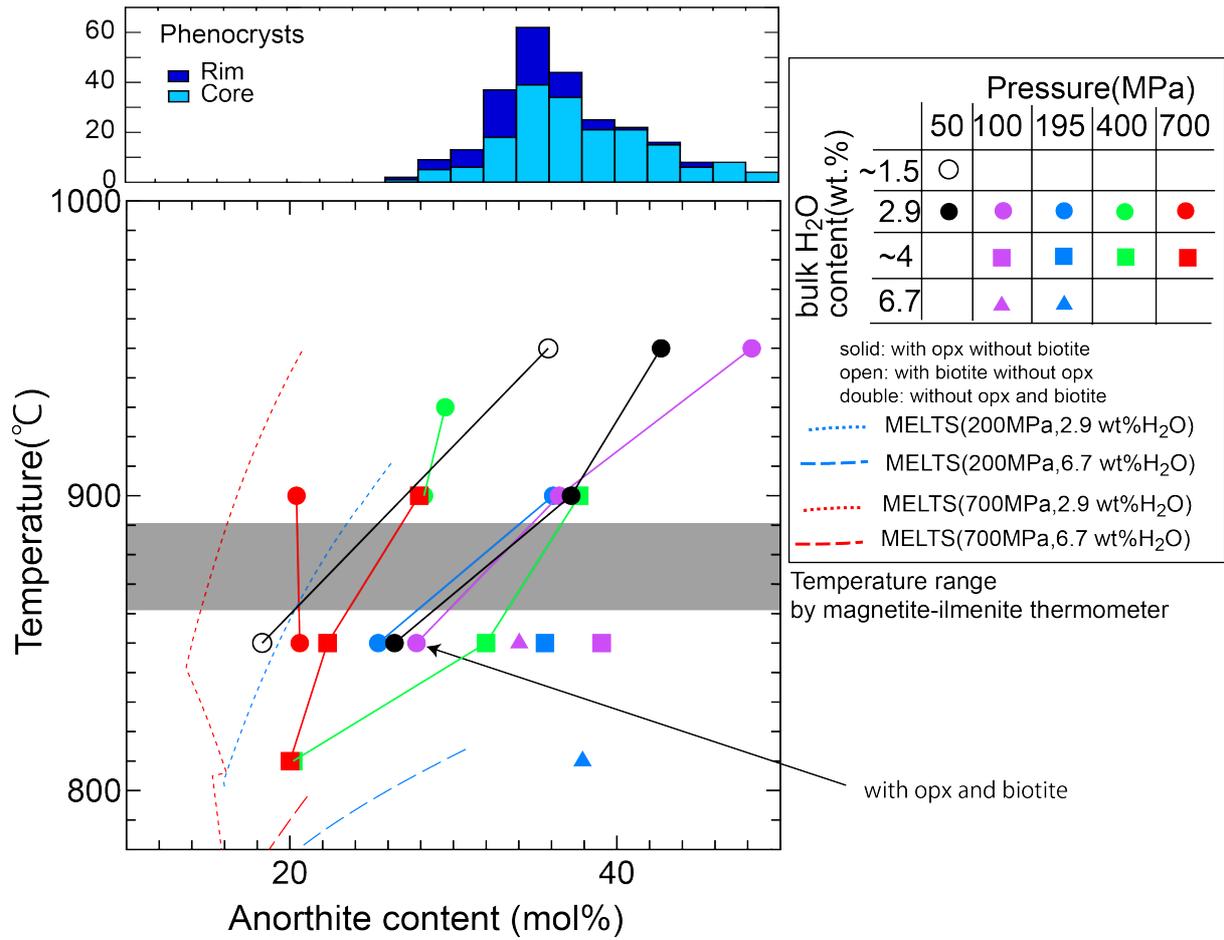


図 2.2.3-4 実験生成物中の斜長石組成の温度と圧力変化. 点線は MELTS により計算した斜長石組成を示す.

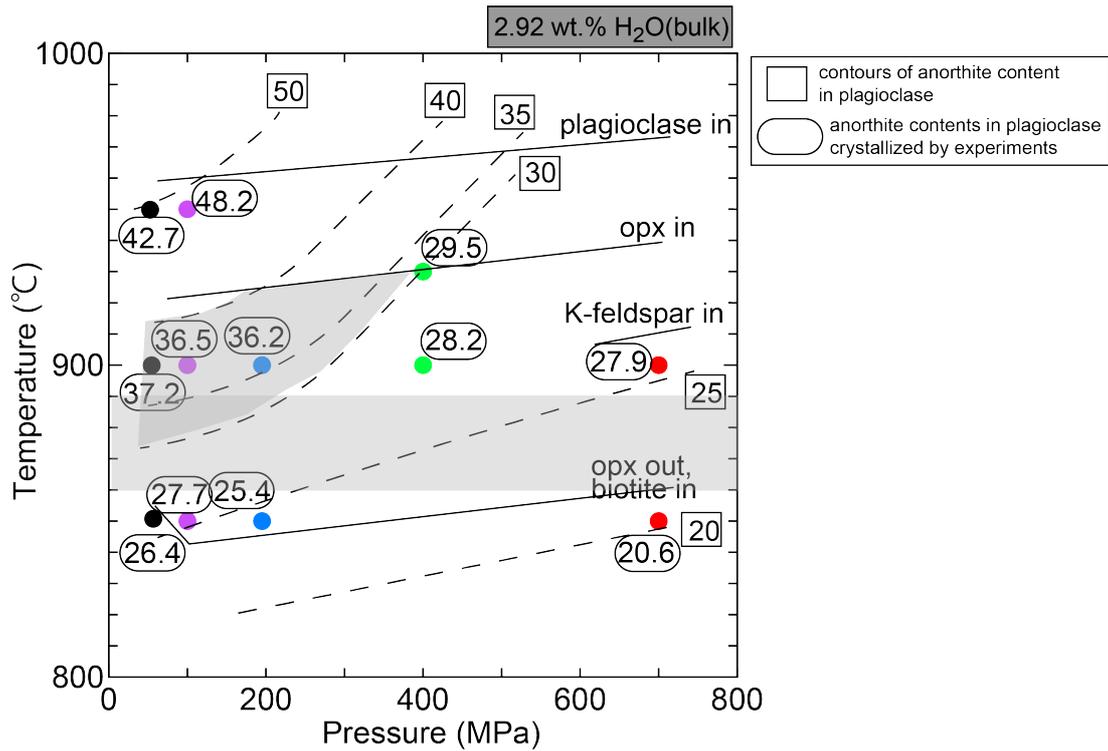


図 2.2.3-5 実験により決定した KJ5665 の高温高压下における斜長石組成. 色の違いは圧力, 数字は含水量の違いを示す. グレーの領域は斑晶コア組成の範囲と鉄チタン鉱物の平衡温度を示す.

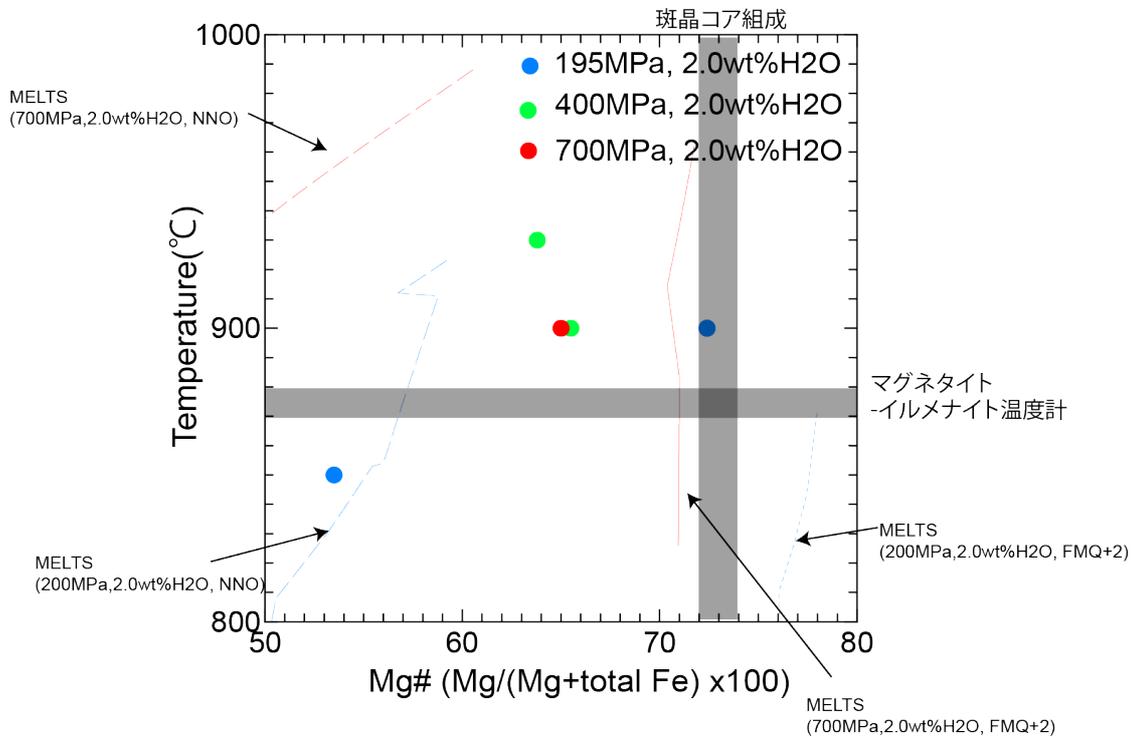


図 2.2.3-6 実験により決定した KJ5665 の高温高压下における斜方輝石組成. 色の違いは圧力と含水量の違いを示す. グレーの領域は斑晶コア組成の範囲と鉄チタン鉱物の平衡温度を示す. 点線は MELTS により計算した斜方輝石組成を示す.

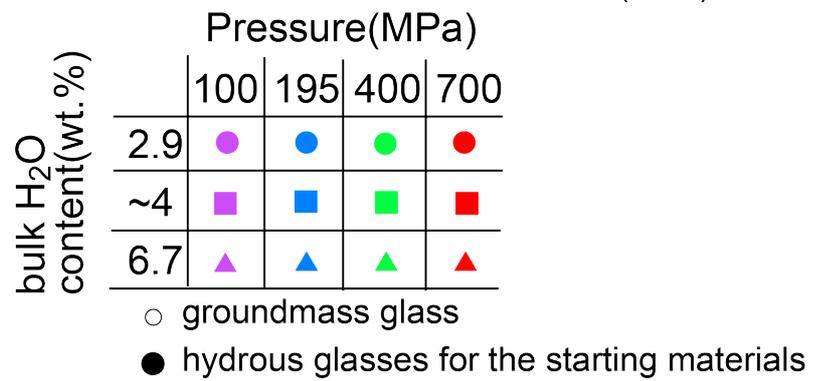
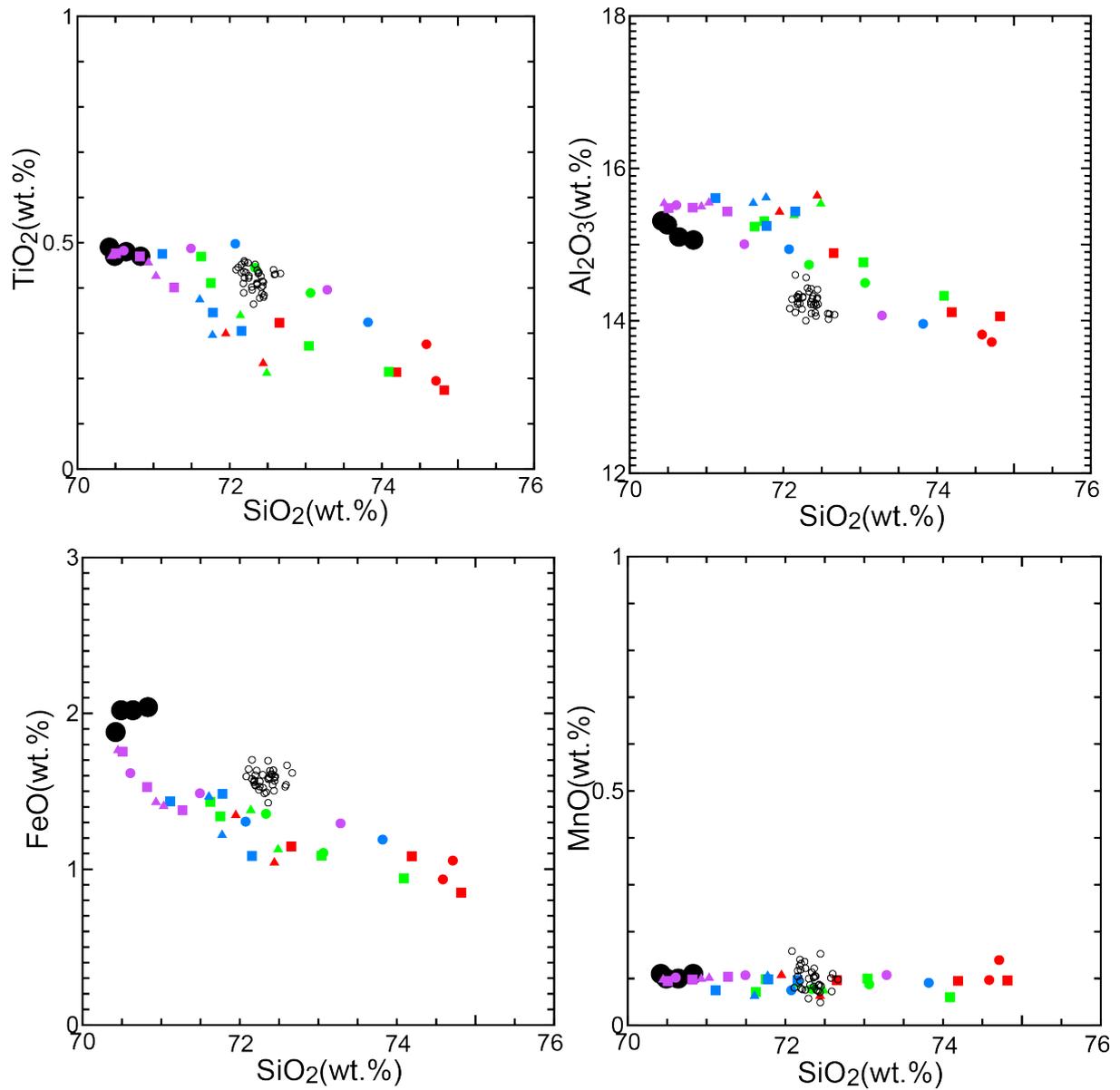
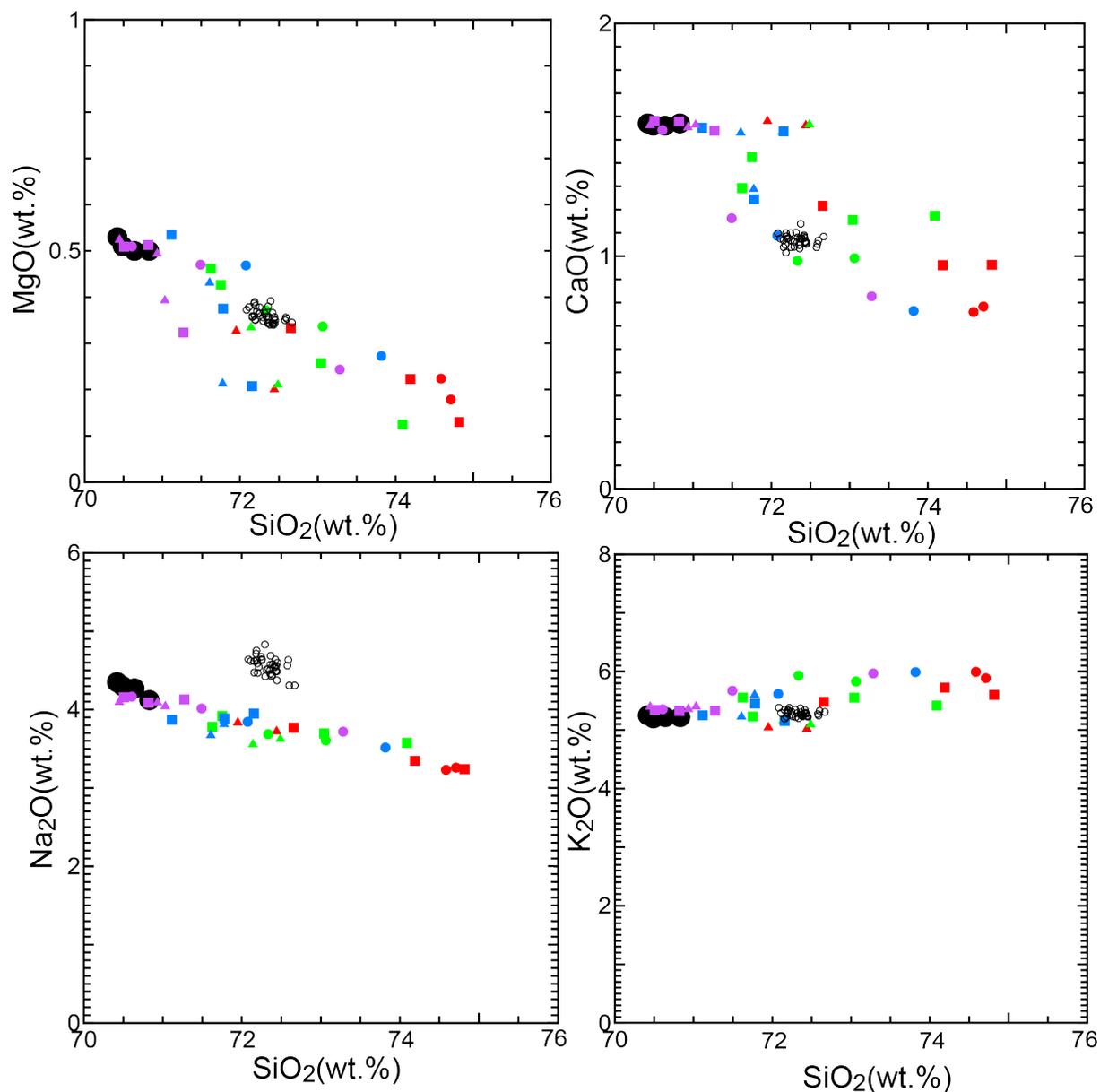


図 2.2.3-7a 実験生成物中のメルト組成と石基ガラス組成の比較.



bulk H <sub>2</sub> O content (wt.%)	Pressure (MPa)			
	100	195	400	700
2.9	●	●	●	●
~4	■	■	■	■
6.7	▲	▲	▲	▲

○ groundmass glass

● hydrous glasses for the starting materials

図 2.2.3-7b 実験生成物中のメルト組成と石基ガラス組成の比較.

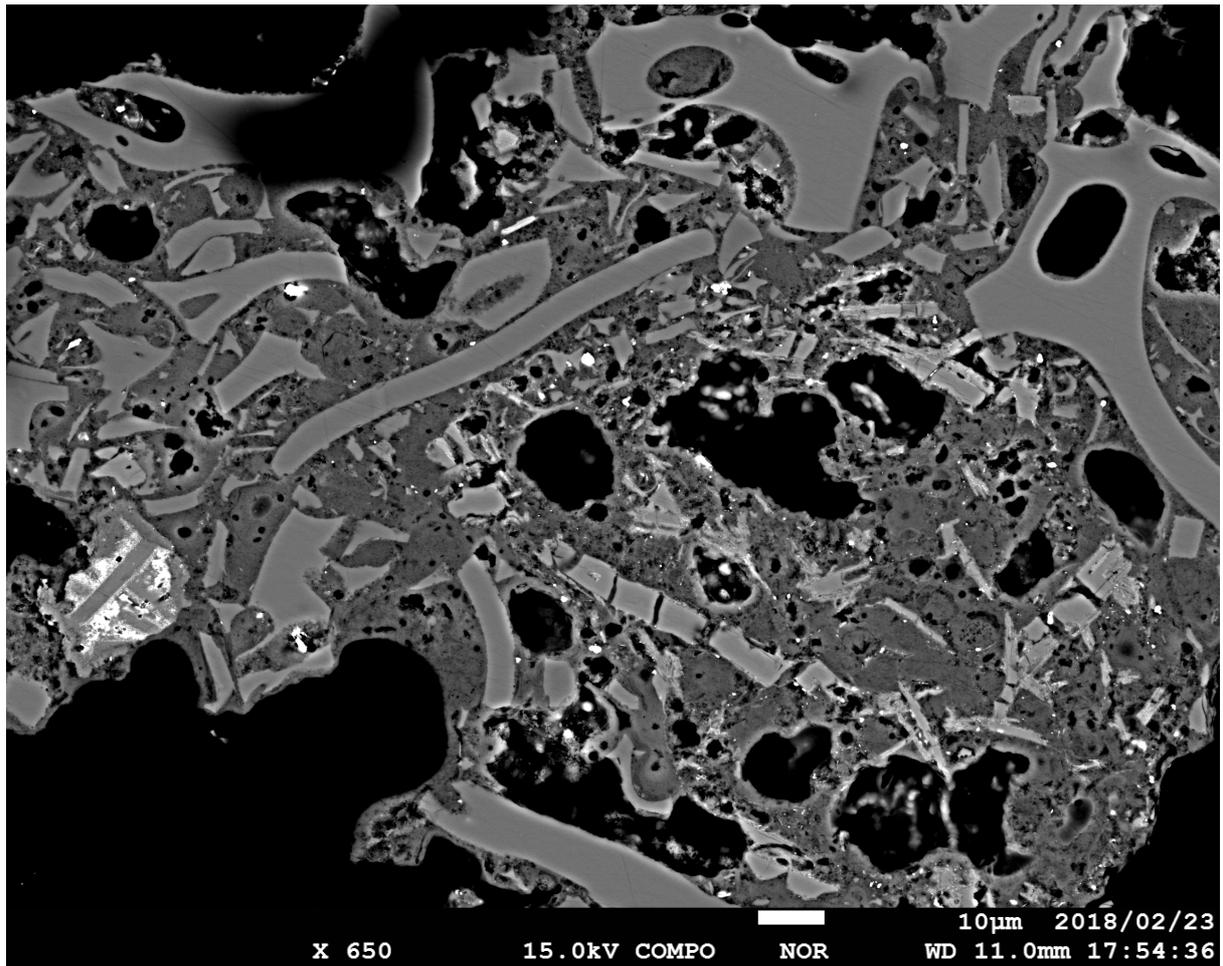
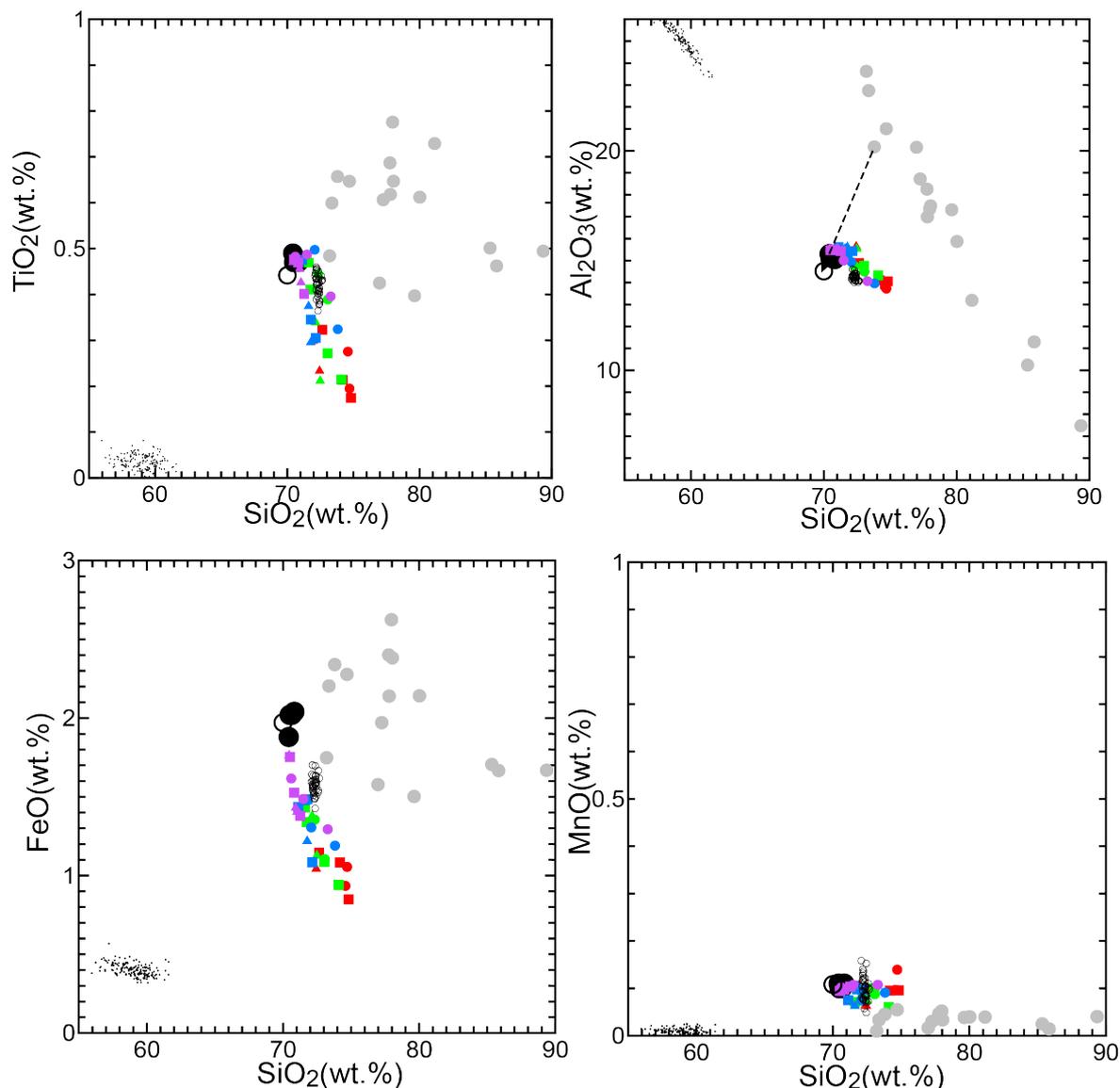


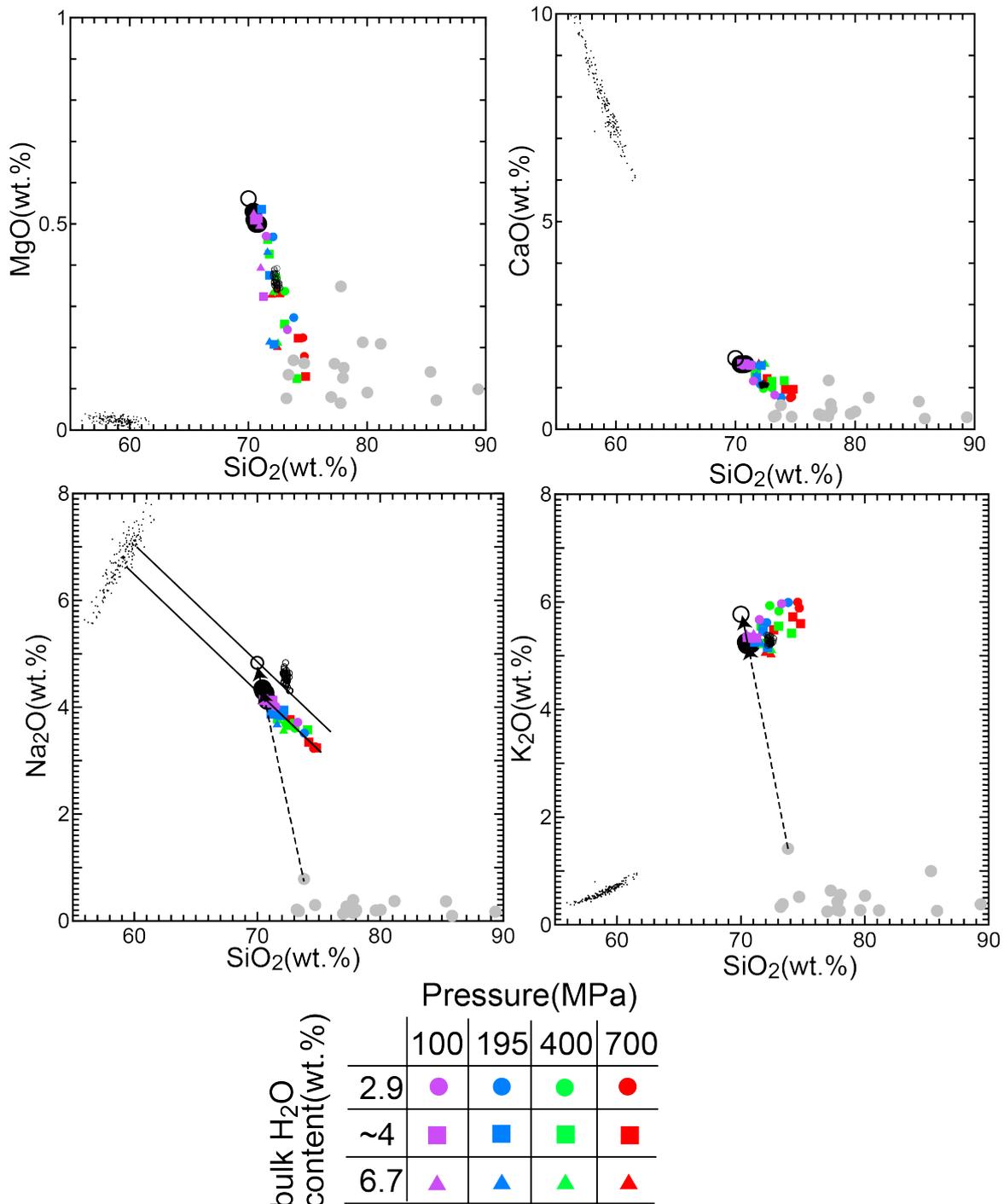
図 2.2.3-8 KJ5665 の火砕流基質部が観察できる断面の反射電子像写真. 破碎された石基ガラスの間を変質した基質が埋めている.



bulk H <sub>2</sub> O content(wt.%)	Pressure(MPa)			
	100	195	400	700
2.9	●	●	●	●
~4	■	■	■	■
6.7	▲	▲	▲	▲

- groundmass glass
- hydrous glasses for the starting materials
- calculated KJ5665 composition before alteration
- altered materials of matrix
- plagioclase phenocrysts

図 2.2.3-9a KJ5665 軽石内に見られる変質部の組成と実験生成物中のメルト組成・石基ガラス組成の比較. 変質部の組成を矢印の根元組成で代表できると仮定したとき, 実験の出発物質組成は矢印のように推移する.



- groundmass glass
- hydrous glasses for the starting materials
- calculated KJ5665 composition before alteration
- altered materials of matrix
- plagioclase phenocrysts

図 2.2.3-9b KJ5665 軽石内に見られる変質部の組成と実験生成物中のメルト組成・石基ガラス組成の比較。実験生成物により示された液相降下曲線と、予想される出発物質組成が変わったときの液相降下曲線を実線により示す(Na<sub>2</sub>O における図)。

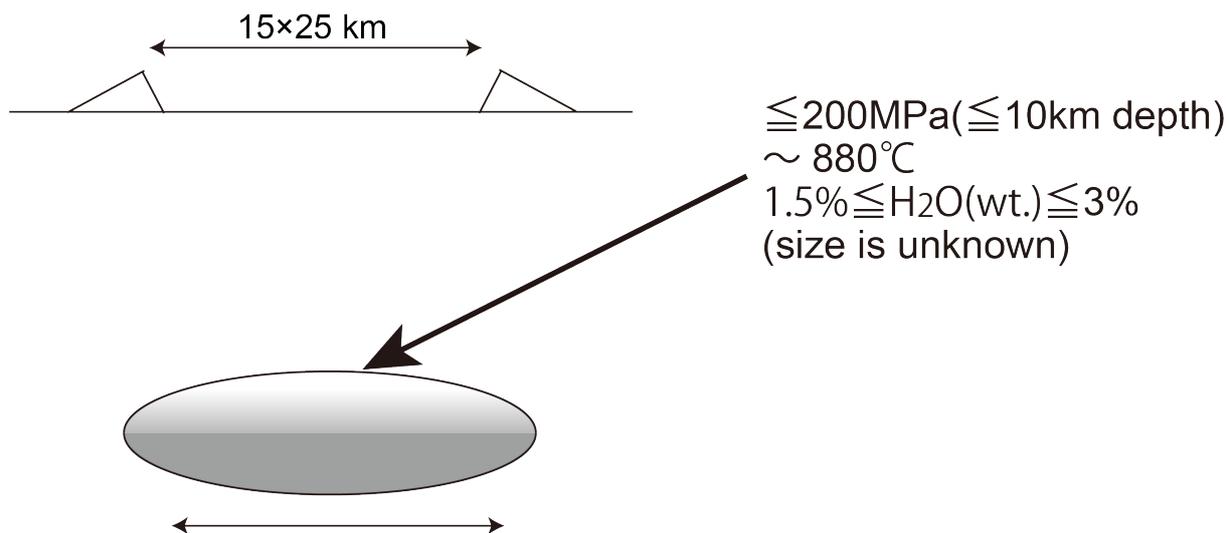


図 2.2.3-10 Aso-4 噴火前マグマ溜まりの模式図. 本実験では Aso-4 噴出物の珪長質端成分を用いたので, マグマ溜まりにおける最上部の温度圧力含水量を決めたことに相当する.

#### まとめ

Aso-4 珪長質端成分マグマを対象に, マグマ溜まりの温度・圧力・含水量・酸素雰囲気を決定的するために高温高压実験を行った. 斑晶の組み合わせ・組成を再現するのは, 圧力がおよそ 200MPa かそれ以下, 全岩含水量がおよそ 1.5~3wt%, 温度が 880°C前後であることがわかった. 角閃石斑晶の起源を考えるためには, さらなる岩石学記載, 新しい観点での実験が必要となる.

## (2) Nano-SIMS による H<sub>2</sub>O, CO<sub>2</sub> 測定のための標準ガラス作成

SIMS により H<sub>2</sub>O, CO<sub>2</sub> を分析する際に最も重要となるのは、マトリックス効果を軽減するために測定したい試料にできる限り近い組成・構造の標準試料を準備することである。火山岩を対象に揮発性成分の議論をするためには、玄武岩質から流紋岩質まで幅広い組成範囲をカバーして標準試料を作成することが急務となる。本研究では、Aso-4 の岩石学的理解のためだけでなく、他の大規模カルデラ噴火を引き起こす火山にも対応できるように、Aso-4 KJ5665 の流紋岩や、阿蘇火山 2014 年 12 月噴火噴出物(Aso201412sc)の玄武岩安山岩質スコリアを用い、さまざまな H<sub>2</sub>O, CO<sub>2</sub> 組成を持ったガラスを作成することを目標とした。

Aso-4 KJ5665 と Aso201412sc は粉末にしたものを用いた。カプセルは、0.1MPa の実験はシリケートメルトと反応しないグラファイトを、それ以上の圧力においては水素透過性に乏しく鉄をあまり吸うことのない金パラジウム合金パイプを用いた。H<sub>2</sub>O はカプセルにそのままマイクロシリンジで注入し、CO<sub>2</sub> は CaCO<sub>3</sub> のような炭酸塩もしくはシュウ酸二水和物を供給源として試料と同時に封入した。実験は、0.1MPa においては落下急冷可能な縦型管状電気炉、それ以上の圧力は内熱式ガス圧装置(HARM200: 最大圧力 196MPa(産総研設置), SMC-5000: 最大圧力 485MPa(東工大設置), SMC-8600: 最大圧力 850MPa(東工大設置))を用いた。ガラス作成条件は表 2.2.3-4 の通りである。これらのガラスの H<sub>2</sub>O, CO<sub>2</sub> 量をフーリエ変換型赤外分光光度計(FTIR), ガスクロマトグラフタイプの含水量計を用いて定量し、電子線マイクロプローブで均質性のチェックを行う予定である。

表 2.2.3-4 Nano-SIMS の H<sub>2</sub>O, CO<sub>2</sub> 測定用標準ガラス作成条件

Run #	Capsule #	Composition	P (MPa)	T (°C)	Run duration (h)	added H <sub>2</sub> O (wt.%) (bulk)	added CO <sub>2</sub> (wt.%) (bulk)	Capsule	備考
A-10		Aso201412sc	0.1	1400	0.5			graphite	
A-11		Aso-4A KJ5665	0.1	1400	0.25			graphite	
G205	CG169	Aso201412sc	168	1300	3	2.1(+0.5)		Au80Pd20 6.0-5.6φ	
G206	CG168	Aso201412sc	123	1300	3	1.0(+0.5)		Au80Pd20 6.0-5.6φ	
G207	CG171	Aso-4A KJ5665	193	1250	17	0(+2)		Au80Pd20 6.0-5.6φ	
G208	CG170	Aso-4A KJ5665	195	1150	3	1(+2)		Au80Pd20 6.0-5.6φ	
G209	CG173	Aso-4A KJ5665	118	1300	3	0.5		Au80Pd20 6.0-5.6φ	
HG561	CG163	Aso-4A KJ5665	400	1250	2	4		Au80Pd20 6.0-5.6φ	Quench失敗
HG562	CG163	Aso-4A KJ5665	400	1250	7.5	4		Au80Pd20 6.0-5.6φ	
HG563	CG167	Aso201412sc	250	1250	19	3.5		Au80Pd20 6.0-5.6φ	
HG564	S-1	Aso201412sc	260	1300	3	0 (nominally dry)		Au75Pd25 8.0-7.8φ	
SHG79	CG174	Aso-4A KJ5665	830	1300	3	1.5	0.45	Au80Pd20 8.0-7.4φ	
SHG80	CG175	Aso201412sc	800	1300	3	1.1	0.45	Au80Pd20 8.0-7.4φ	
SHG81	CG183	Aso-4A KJ5665	820	1100	3	4.4		Au80Pd20 8.0-7.4φ	
SHG82	CG184	Aso201412sc	800	1300	3	3	0.14	Au80Pd20 8.0-7.4φ	
SHG83	CG188	Aso-4A KJ5665	700	1200	117	8(+2)		Au80Pd20 8.0-7.4φ	

## 引用文献

- Andersen, D. and Lindsley, D. (1985) New (and final!) models for the Ti- magnetite/ilmenite geothermometer and oxygen barometer. *Eos*, 66:416
- Bolte, T., Holtz, F., Almeev, R., Nash, B. (2015) The Blacktail Creek Tuff: an analytical and experimental study of rhyolites from the Heise volcanic field, Yellowstone hotspot system. *Contrib. Mineral. Petrol.*, 169:15.
- Chou, I., (1978) Calibration of oxygen buffers at elevated P and T using the hydrogen fugacity sensor. *Am. Mineral.*, 63:690-703.
- Chou, I., (1986) Permeability of precious metals to hydrogen at 2kb total pressure and elevated temperatures. *Am. J. Sci.*, 286:638-658.
- Frantz, J. D., and Eugster, H. P., (1973) Acid-base buffers: use of Ag + AgCl in the experimental control of solution equilibrium at elevated pressures and temperatures. *Am. J. Sci.*, 273:268-286.
- Ghiorso, M. S. and Sack, R. O. (1995) Chemical mass transfer in magmatic processes IV. A revised and internally consistent thermodynamic model for the interpolation and extrapolation of liquid-solid equilibria in magmatic systems at elevated temperatures and pressures. *Contrib. Mineral. Petrol.*, 119:197-212.
- Gualda G.A.R., Ghiorso M.S., Lemons R.V., and Carley T.L. (2012) Rhyolite-MELTS: A modified calibration of MELTS optimized for silica-rich, fluid-bearing magmatic systems. *J. Petrol.*, 53:875-890.
- Hunter, A. G., (1998) Intracrustal controls on the coexistence of tholeiitic and calc-alkaline magma series at Aso Volcano, SW Japan. *J. Petrol.*, 39:1255-1284
- Kaneko, K., Kamata, H., Koyaguchi, T., Yoshikawa, M., and Furukawa, K., (2007) Repeated large-scale eruptions from a single compositionally stratified magma chamber: An example from Aso volcano, Southwest Japan. *J. Volcanol. Geotherm. Res.*, 167:160-180.
- Lepage, L. D. (2003) ILMAT: an excel worksheet for ilmenite–magnetite geothermometry and geobarometry. *Comput. Geosci.*, 29(5):673–678.
- Miyagi, I., Kita, N., Morishita, Y. (2017) The geochemical and petrological characteristics of prenatal caldera volcano: a case of the newly formed small dacitic caldera, Hijiori, Northeast Japan. *Contrib. Mineral. Petrol.*, 172:79.
- Newman, S. and Lowenstern, J. B. (2002) VolatileCalc: a silicate melt- H<sub>2</sub>O-CO<sub>2</sub> solution model written in Visual Basic for excel. *Comput. Geosci.*, 28:597–604.
- Putirka, K. (2016) Amphibole thermometers and barometers for igneous systems and some implications for eruption mechanisms of felsic magmas at arc volcanoes. *Am Mineral*, 101:841-851.
- Ridolfi, F., and Renzulli, A., (2012) Calcic amphiboles in calc-alkaline and alkaline magmas: thermobarometric and chemometric empirical equations valid up to 1,130C and 2.2 GPa. *Contrib. Mineral. Petrol.*, 163:877-895.

産業技術総合研究所 (2016) 平成 27 年度火山影響評価に係る技術的知見の整備.

産業技術総合研究所 (2017) 平成 28 年度火山影響評価に係る技術的知見の整備.

鈴木敏弘・高橋栄一・仲井伯享・鈴木一也・竹田一夫・西本武雄 (2004) 850MPa 内熱式ガス圧装置の開発. 高圧力の科学と技術, 14(3):225-229.

Tatsumi, Y., and Suzuki, T. (2009) Tholeiitic vs calc-alkalic differentiation and evolution of arc crust: constraints from melting experiments on a basalt from the Izu-Bonin-Mariana arc. *J. Petrol.* 50(6):1575–1603.

Tomiya, A., and Takahashi, E. (1995) Reconstruction of an Evolving Magma Chamber beneath Usu Volcano since the 1663 Eruption. *J Petrol.*, 36(3):617-636.

## 2.2.4 阿蘇カルデラ噴出物の地球化学的検討

### 【実施内容】

平成 29 年度は前年度にひきつづき阿蘇カルデラのマグマの起源物質を把握する目的で、阿蘇カルデラ噴出物と周辺火山の噴出物を対象に、同位体地球化学的研究を実施した。その結果、(1) 阿蘇火山における各噴火ステージ内でのマグマの組成変化は、地殻同化の有無にかかわらず、マグマ混合を伴う結晶分別作用によって、コントロールされていること、(2) 阿蘇火山噴出物に観察されるストロンチウム・ネオジウム・鉛の同位体の変動範囲は、同位体的に枯渇したマントル（熊本金峰で観察される玄武岩のようなマントルソース）と、4~12%程度の地殻物質（白亜紀菊池花崗岩と同様の組成）の部分熔融液によって、ほぼ説明できること、(3) 阿蘇の火山岩の地球化学的・同位体組成の範囲は、噴火期間を通じてほとんど変わらないことが明らかになった。

### 【研究成果】

#### 分析手法

オープンで乾燥させた約 50g のサンプルをチップに粉碎し、続いて蒸留水の中で複数回超音波洗浄した。主成分分析は、粉末試料 0.5g と四ホウ酸リチウムフラックス 5g を混合したガラスビーズを作成し、Panalytical X-ray Fluorescence (XRF) 分光計を用いて、地質調査所で (GSJ) 行なった。灼熱減量(LOI)は、約 1.5g の粉末試料を 1050°C のオープン中で約 3 時間焼き、前後の重量から算出した。分析精度は JB-1a (GSJ の標準試料) の反復測定によって推定し、1.5% よりも良好である。微量元素の分析は、Neptune 誘導結合プラズマ質量分析計 (ICP-MS) を用いて、琉球大学で行なった (分析者: Nguyen Hoang)。ICP 分析の前処理として、約 100mg の粉末試料を 15ml のテフロン製ビーカー中で秤量後、高純度濃硝酸および高純度フッ酸の混合物 (1:2) を用いて、約 135°C で 48 時間ホットプレート上で溶解した。蒸発後、約 1ml の濃硝酸を添加し、次いで蒸発させ、この工程を繰り返してサンプルが完全に溶解することを確認した。約 6 グラムの 2M 硝酸をサンプルに加え、約 1 日間低温でホットプレート上に放置した。約 0.2g の溶液を約 15ml の 0.3M 硝酸で希釈し、さらに測定のために 4750~4800 倍に希釈した。

Sr, Nd および Pb 同位体組成の分析には、1~2mm の大きさに粉碎された新鮮な岩石チップを用いた。チップを、温めた 3M 塩酸 15ml を用いてテフロンビーカー中で約 1 時間超音波洗浄し、続いて超音波洗浄を用いて純水でくりかえし洗浄した。次いで、サンプルをオープン中で乾燥させた後、瑪瑙ミルで粉碎した。その中から約 50mg の粉末をとりだし、濃 HNO<sub>3</sub> と HF の混合物 (1:2 比) に溶解した。使用された酸にはすべて Tama-pure の超純水試薬を用いた。イオン交換樹脂を用いた抽出方法は Hoang and Uto (2003) に記載されている。Sr, Nd および Pb 同位体比は、琉球大学のマルチコレクター-Neptune Plus ICP-MS で測定した。<sup>87</sup>Sr / <sup>86</sup>Sr 同位体比は、<sup>87</sup>Sr / <sup>86</sup>Sr = 0.1194 および <sup>143</sup>Nd / <sup>144</sup>Nd, <sup>146</sup>Nd / <sup>144</sup>Nd = 0.7219 に正規化された。<sup>87</sup>Sr / <sup>86</sup>Sr 同位体比の精度 (2 シグマ) は ±0.000007 であり、<sup>143</sup>Nd / <sup>144</sup>Nd では ±0.000006 であった。NBS987 Sr 標準試料を用いた <sup>87</sup>Sr / <sup>86</sup>Sr 比の繰返し測定では 0.710252 ± 0.000011 (2 シグマ, n = 82) の結果が得られた。また、La Jolla 標準試料を用いた <sup>143</sup>Nd / <sup>144</sup>Nd 比の繰返し測定では 0.511855 ± 0.000015 (1 シグマ, n = 78) の結果が得られた。鉛同位体比は NBS981 鉛同位体標準試料の繰返し測定結果にもとづいて補正した(<sup>208</sup>Pb / <sup>204</sup>Pb, <sup>207</sup>Pb / <sup>204</sup>Pb および <sup>206</sup>Pb

$^{204}\text{Pb}$  の平均(2 シグマ,  $n = 58$ ) は  $36.6732 \pm 0.005$ ,  $15.502 \pm 0.001$ ,  $16,944 \pm 0.001$ ). 分析のバックグラウンド, 抽出された  $> 200\text{ng}$  の鉛に対して  $50 \sim 100 \text{ pg Pb}$  程度であるから, 無視できると考えられた.

### 分析結果

阿蘇の火山岩のカリウム量は, シリカの上昇とともに直線的に増加する傾向がある (図 2.2.4-1). 阿蘇火山岩の大部分は高 K タイプである. 阿蘇 1 および阿蘇 2 の大半と, いくつかの阿蘇 3 試料は, ( $\text{SiO}_2$  に対して)  $\text{K}_2\text{O}$  が特に高い. 阿蘇 4, 中央火口丘, およびポストカルデラのサンプルは, ほぼ同じ組成変化傾向を示している. 先阿蘇の試料のいくつかは根子岳と同じ範囲に分布している. 根子岳は阿蘇の一連の噴出物の中で最も  $\text{K}_2\text{O}$  が少なく,  $\text{SiO}_2$  濃度も比較的低い. データは, Hunter (1998) の公表値のほか, 小野や宇都らによって採取された岩石試料の産総研未公表値を使用している.

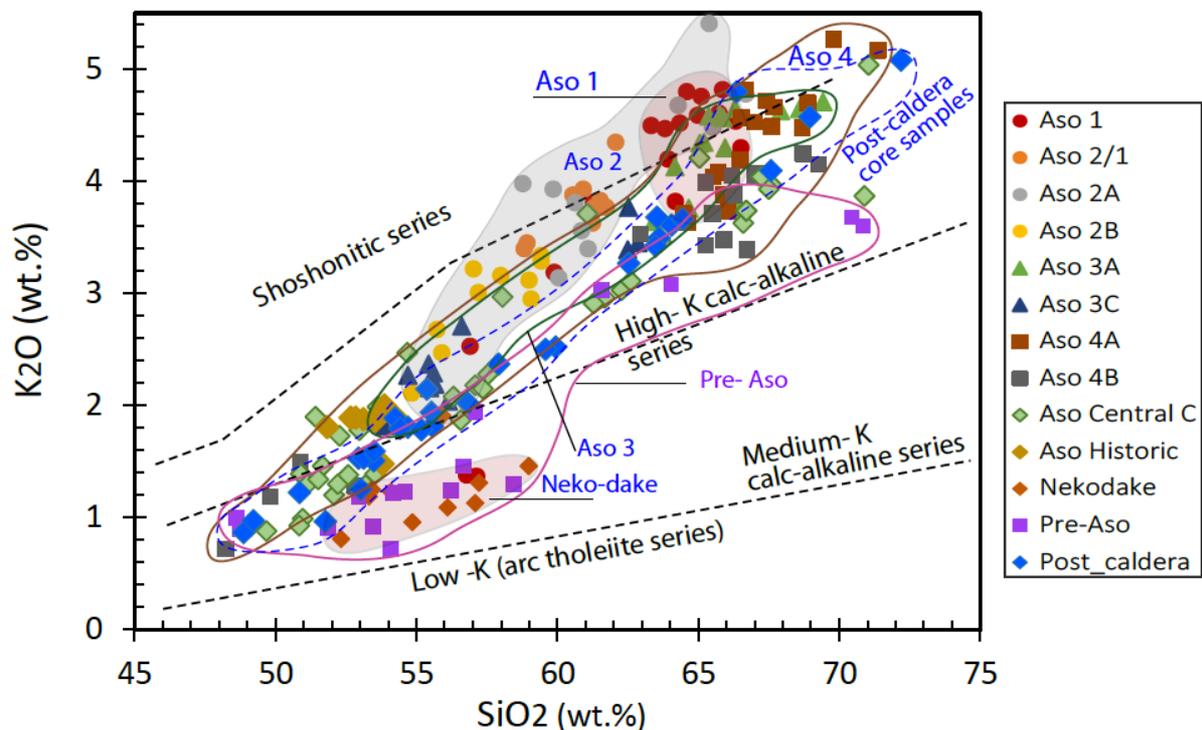


図 2.2.4-1 カリウムのハーカー図.

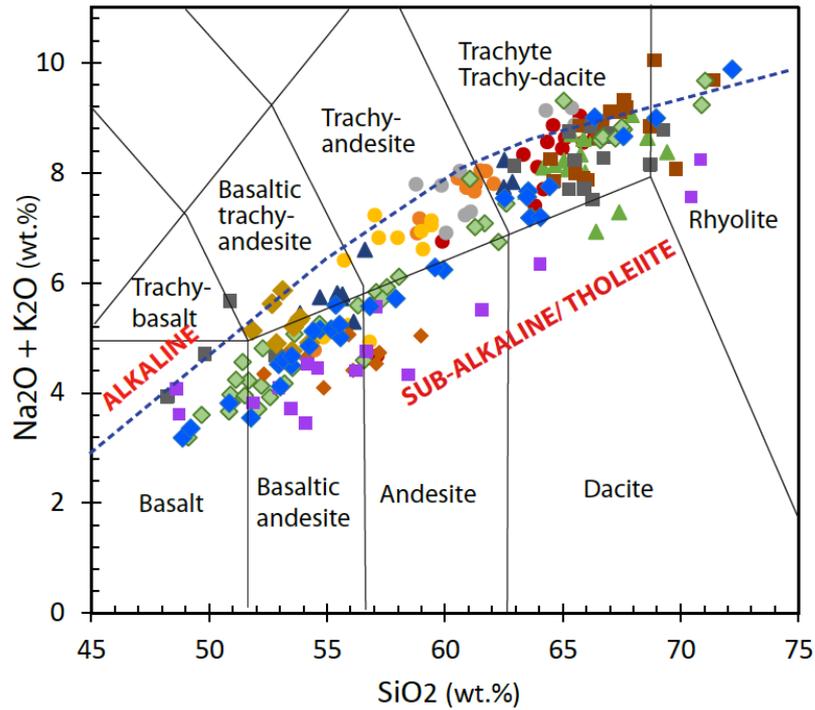


図 2.2.4-2 全アルカリのシリカバリエーションダイアグラム。凡例は図 2.2.4-1 と同じ。

全アルカリのシリカバリエーションダイアグラム (after Le Bas et al., 1986)は、阿蘇の火山岩の化学組成がサブアルカリタイプであることを示している (図 2.2.4-2)。阿蘇の火山岩の化学組成は、玄武岩はまれで、安山岩、安山岩およびデイサイトが一般的である。後カルデラおよび中央火口丘の火山岩の化学組成は苦鉄質～珪長質にわたるが、頻度はバイモーダルで、玄武岩の安山岩およびデイサイトが卓越する。阿蘇 2 は主に安山岩またはデイサイトである。一方、阿蘇 1,3 および 4 はほとんどがデイサイトである。阿蘇では一般的に玄武岩質安山岩からデイサイトにむけて化学組成が変化する傾向がある。

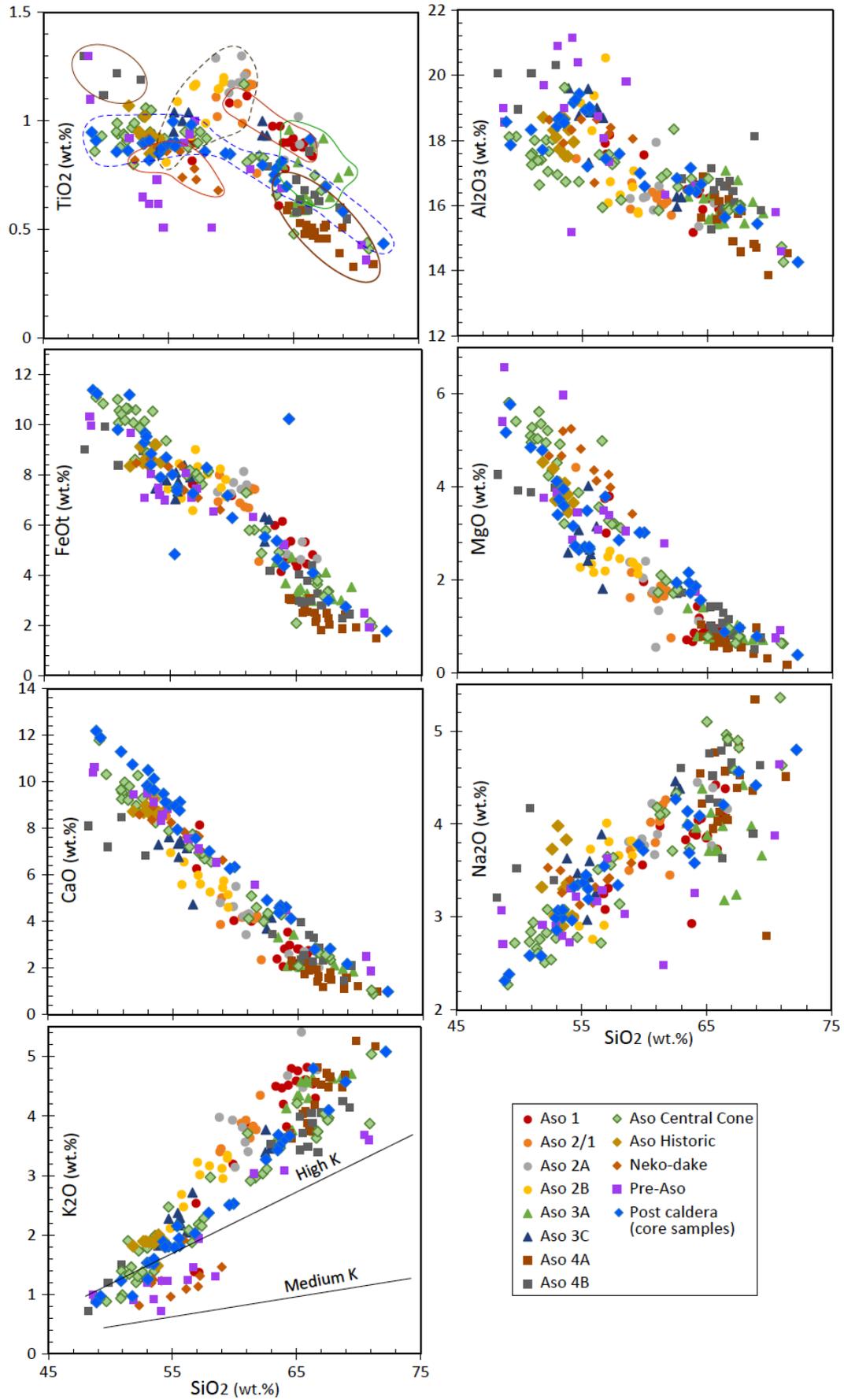


図 2.2.4-3 主要成分のシリカバリエーションダイアグラム図.

阿蘇の火山岩の主成分元素組成では、チタンを除いて、各酸化物濃度がシリカの増加に対して直線的に変化する傾向を認めることが出来る (図 2.2.4-3). 中央火口丘とポストカルデラの噴出物の化学組成は、チタンのハーカー図での組成変化傾向が類似している. 他の阿蘇の噴出物は、活動ステージ毎にそれぞれ異なる範囲に分布する. 例えば、阿蘇 2 の安山岩・玄武岩質安山岩のセットは、チタンの量が高・低で、アルミニウムは低・高で、ナトリウムは高・低で、マグネシウムは低い. それとは対照的に、阿蘇 4 デイサイトは、チタン、マグネシウム鉄、カルシウム、アルミニウムは最も低い、シリカ、ナトリウム、カリウムは非常に高い.

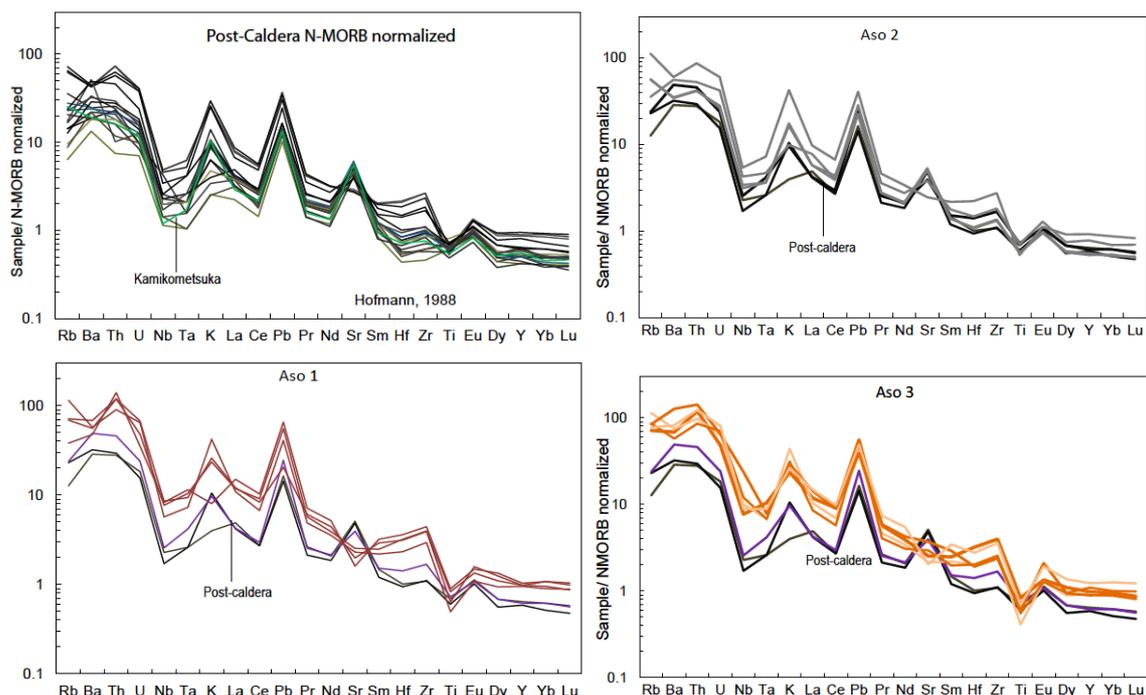


図 2.2.4-4 N-MORB で規格化した微量元素濃度パターン.

阿蘇の火山岩の微量元素組成は、噴火ステージが異なっても互いに似通っている. 阿蘇の火山岩の微量元素組成には、ニオブ、タンタルおよびチタンに大きな負の異常がみられ、トリウム、カリウム、鉛およびおよびストロンチウムには正の異常がみられる (図 2.2.4-4). 観察された微量元素の異常の原因は、一般には含水流体の影響下での地殻溶解またはマントル融解だとされている (Gill, 1981; Tatsumi, 1982; Tatsumi and Elgin, 1995; Kushiro, 1990). データの正規化は、Hofmann (1988) による.

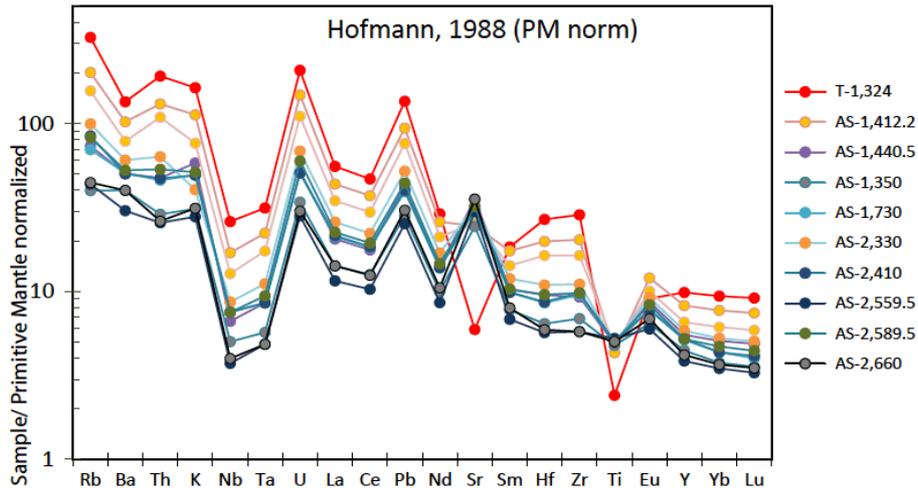


図 2.2.4-5 阿蘇のポストカルデラ噴出物のボーリングコアサンプルの微量元素存在量

阿蘇のポストカルデラ噴出物のボーリングコアサンプルの微量元素存在量は、玄武岩 (AS-2,660; AS-2,559.5 ...) から安山岩 (AS-2,330; AS-1,703 ...) そして流紋岩 (AS-1,412.2; T-1,324 ...) にかけて徐々に増加している (図 2.2.4-5)。これらは基本的に始原的マントルの微量元素正規化分布とよく似たパターンである。阿蘇の一連の噴出物が似た微量元素パターンを示すことは、それらが同じ成因であることを示している。阿蘇の噴出物の化学組成バリエーションは、基本的に分別結晶化 (FC) 作用が主体で、これに (AFC) 地殻同化プロセス (Hunter, 1998) など生じたメルトが付加 (Kaneko et al., 2015) したものだと考えられる。阿蘇の玄武岩溶岩には地殻汚染の形跡がほとんど見られないため、阿蘇火山岩の微量元素異常はマントルのそれを反映している可能性が高い。

バリウム、ランタン、およびニオブは、インコンパチブル元素元素である。特にバリウムは結晶への分配係数が最も低く、ランタンとニオブがそれに次ぐ。理想的な場合には、火山岩の  $Ba/La$  と  $Ba/Nb$  とは同一線上に分布する (図 2.2.4-6)。このプロット上において、阿蘇 3 を除く阿蘇火山岩は、北東日本と琉球弧の間にあり、プレート内火山岩とは区別されている。また、このプロットにおいて阿蘇火山岩は、14~2.3 Ma の火山岩やプレ阿蘇試料の大部分と重なった領域に分布する。図中の琉球弧と九州弧は Shinjo(2000)、北日本弧は Kimura and Yoshida(2006 年)、Pacific-MORB は Regelous et al., (1999)、北九州のイントラプレート火成活動は Hoang and Uto (2006)、北九州の単成火山岩類(例えば、桜島、雲仙、金浦)は Hoang (未公表)による。

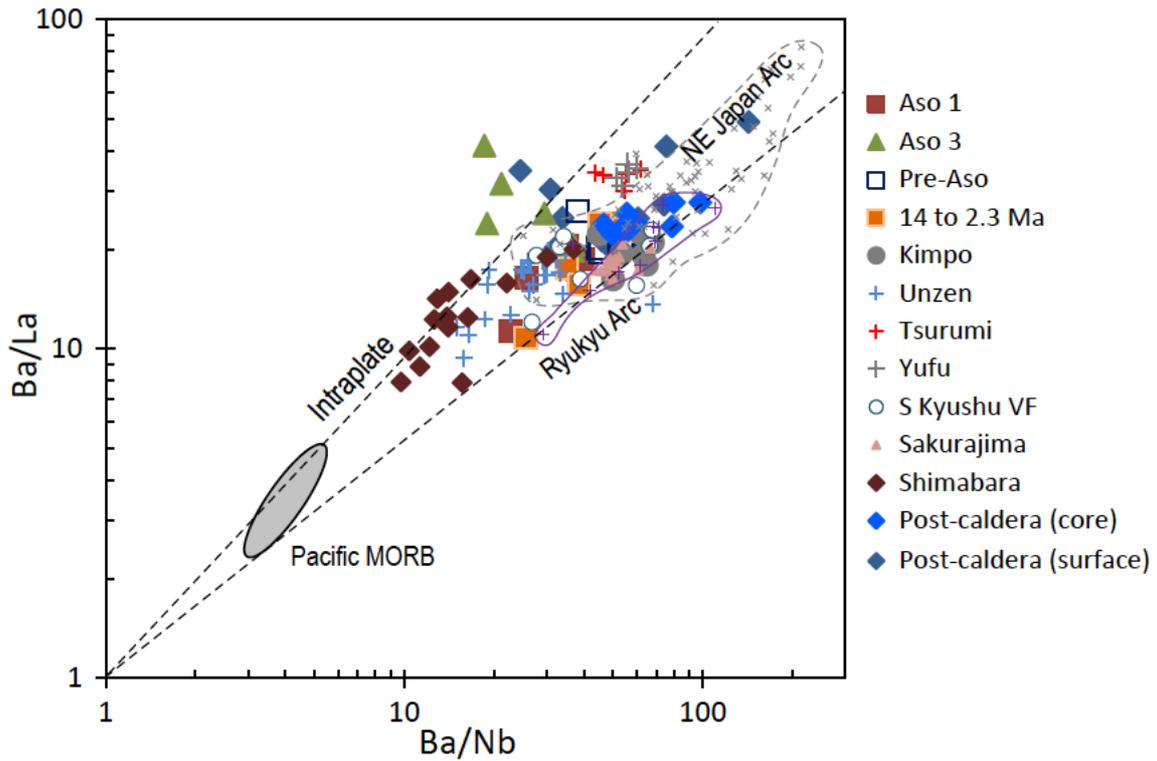


図 2.2.4-6 阿蘇と他地域の火山岩の比較(Ba / La に対する Ba / Nb のプロット).

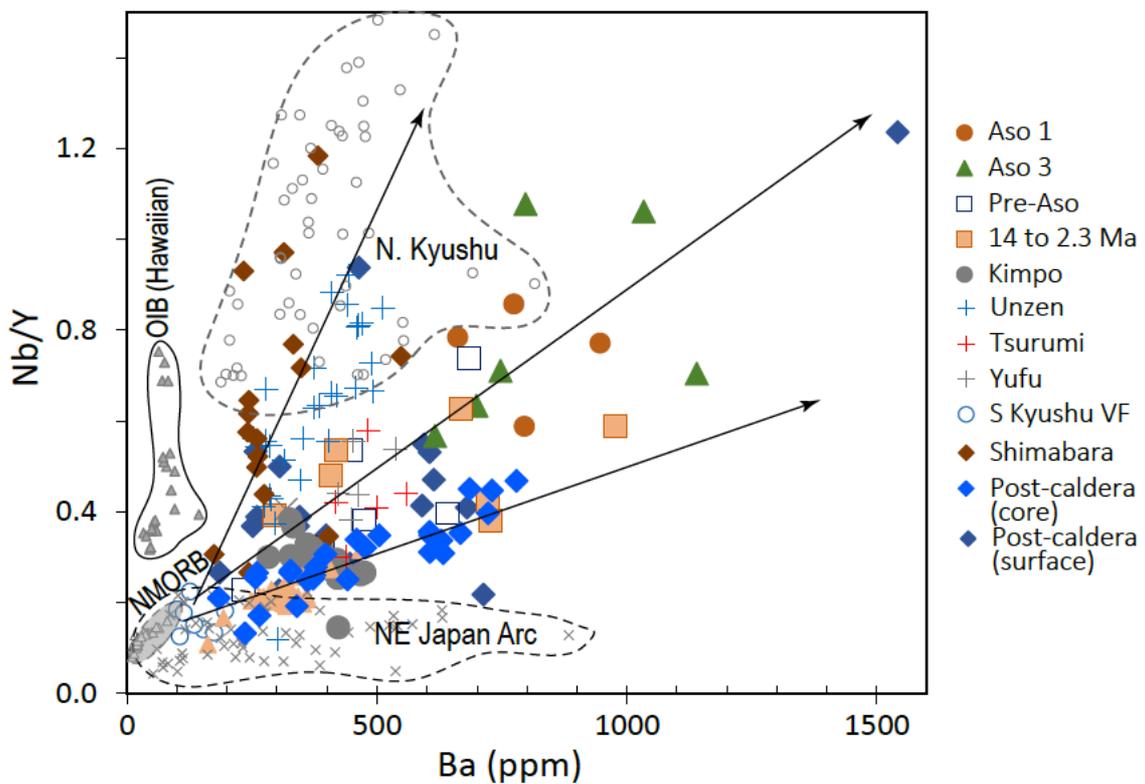


図 2.2.4-7 Nb / Y 比に対するバリウムのプロット.

Nb/Y-Ba 図では、九州の火山フロントの噴出物は、北日本弧と類似した領域にプロットされ、ハワイのようにイントラプレートのテクトニックセッティングで噴出したマグマ (Norman and Garcia, 1999) とは大きく異なることがわかる (図 2.2.4-7). イントラプレートのテクトニックセッティングでマントルから生じたマグマに比較して、含水マントルや地殻の部分溶融によって生成されるマグマは一般的に、バリウムの含量が高く、Nb/Y 比が低いことが特徴である. 九州南部の火山フロントから中部九州 (阿蘇, 金浦, 雲仙, 島原) ~ 北部九州 (福岡, 松浦, 長崎...) にかけて認められる Nb/Y 比の変化傾向は、沈み込むスラブ由来の流体や地殻の溶融物が、九州の下の広範囲なマントルに影響を及ぼしていることと、この影響が北向きに減少することを示している. 阿蘇 1 と阿蘇 3 の Nb/Y 比は揺らぎが大きい. このことは、マグマの生成プロセスが他の阿蘇マグマシリーズに比べて複雑である可能性があることを示唆している.

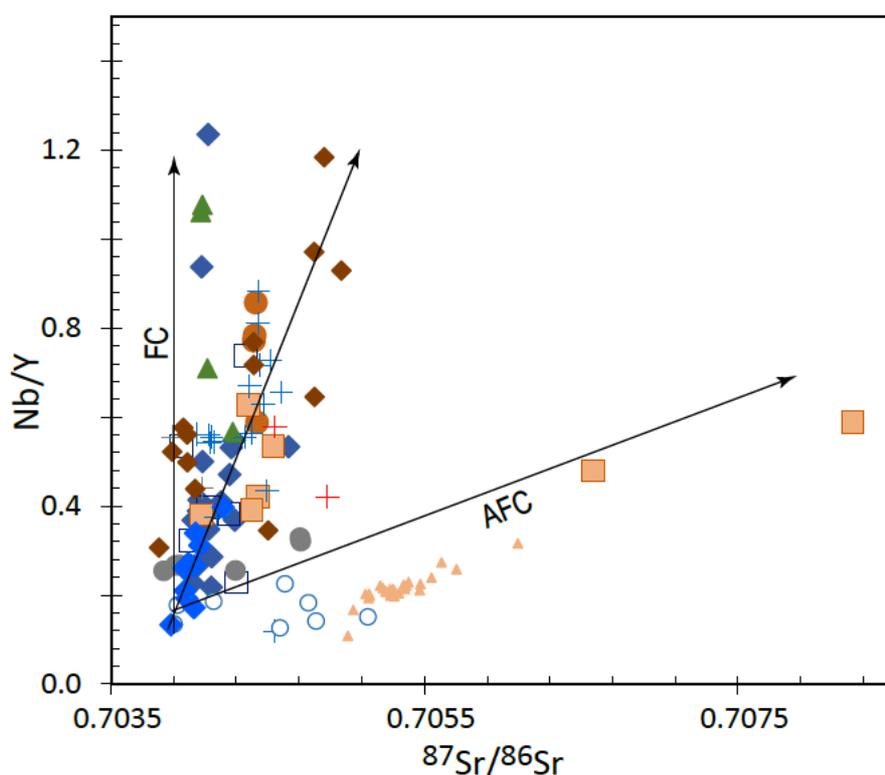


図 2.2.4-8 阿蘇およびその他の九州地域に比較的最近噴出した火山岩の  $^{87}\text{Sr} / ^{86}\text{Sr}$  に対する Nb / Y 比のプロット. 凡例は図 2.2.4-7 と同じ.

図 2.2.4-8 には分別結晶 (FC), 同化-分別結晶 (AFC) および地殻汚染 (CC) による組成変化が示されている. Nb / Y 比が非常に低く Sr 同位体比も低い南九州弧の火山岩は、マントルウエッジの特徴を反映していると考えられる (スラブ由来の含水流体の影響下での MORB 的なマントルが融解). 九州弧南部にみられるストロンチウムと鉛の同位体比が高く Nb / Y 比が低い特徴は、マントルが部分溶融したことによって生じたメルトが、スラブから供給された流体の付加や、地殻と物質をやりとりしたことを示している可能性が高い. その他の噴火ユニットは、主に結晶分別にともなう化学組成変化傾向を示す. 図 2.2.4-7 と図 2.2.4-8 に示した地球化学的特徴をまと

めると、阿蘇のマグマ生成に関しては、沈み込みに関連した含水流体の影響とは別に、地殻の部分溶融の影響も認められた。

図 2.2.4-9 における阿蘇の火山岩の分布領域は、北日本弧の火山岩の領域と (Kimura and Yoshida 2006, およびそれ以後), 大陸地殻に産する火山岩の領域に (Taylor and McLennan, 1989) の両方に部分的にかかっている。図 2.2.4-9 に示した九州北部の玄武岩 (Hoang and Uto, 2003; Hoang et al., 2015), 海洋島玄武岩 (OIB: ハワイ玄武岩, Norman and Galcia, 1999), そして MORB は (Regelous et al., 1999), 明らかに島弧のマグマの分布領域とは区別できる。セリウムに対する Ce / Pb 比のプロットに示された阿蘇の火山岩の地球化学的特徴は、阿蘇のマグマが沈み込みに関連したプロセスと地殻の溶融プロセスの両方に影響されていることを再び示している。

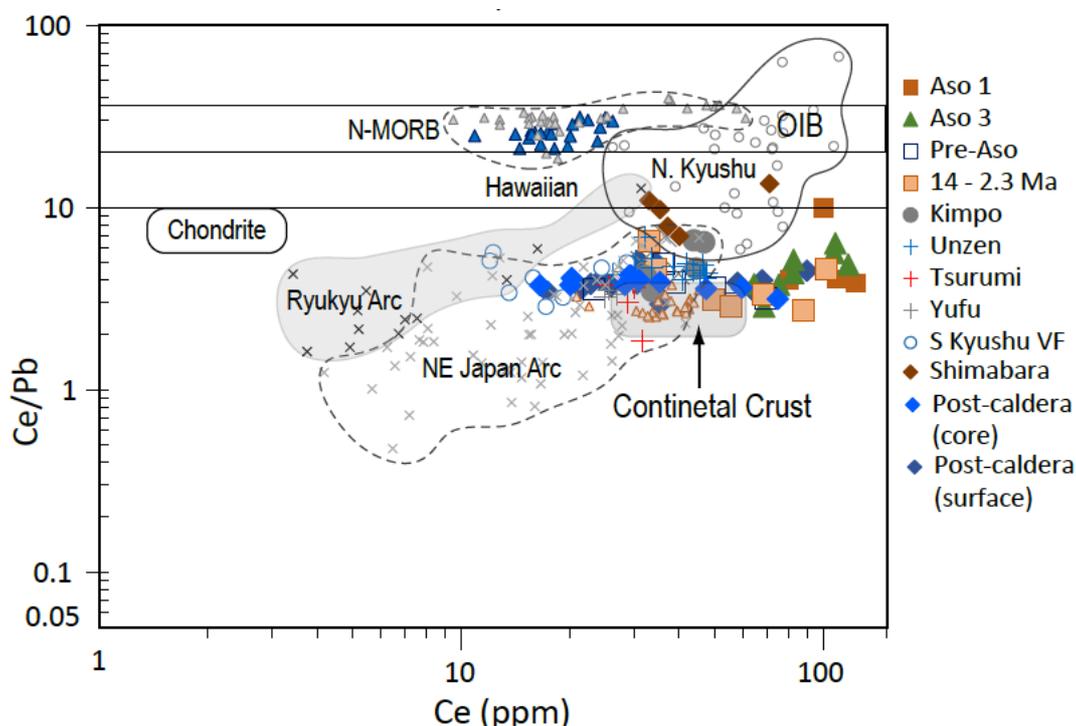


図 2.2.4-9 セリウムに対する Ce / Pb 比のプロット。

阿蘇火山岩の Ce/Pb 比のプロットは、沈み込みプロセスと部分溶融した地殻に由来する組成変化を示し、一方、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  比のプロットは、これにひき続いて起きるマグマと母岩との相互作用の組成変化を示す (図 2.2.4-10)。阿蘇の火山岩の  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  比は 0.7039~0.7044 の範囲である。この範囲は先阿蘇火山岩類の  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  比の大部分をカバーするが、同地域に産する代表的な火山岩(14~2.3Ma の安山岩~玄武岩質安山岩の 2 つ)が 0.707~0.7085 であることに比べ、かなり狭い。また、ストロンチウム同位体比は、南九州地域 (約 0.705~0.706) の溶岩に比べてはるかに低い。

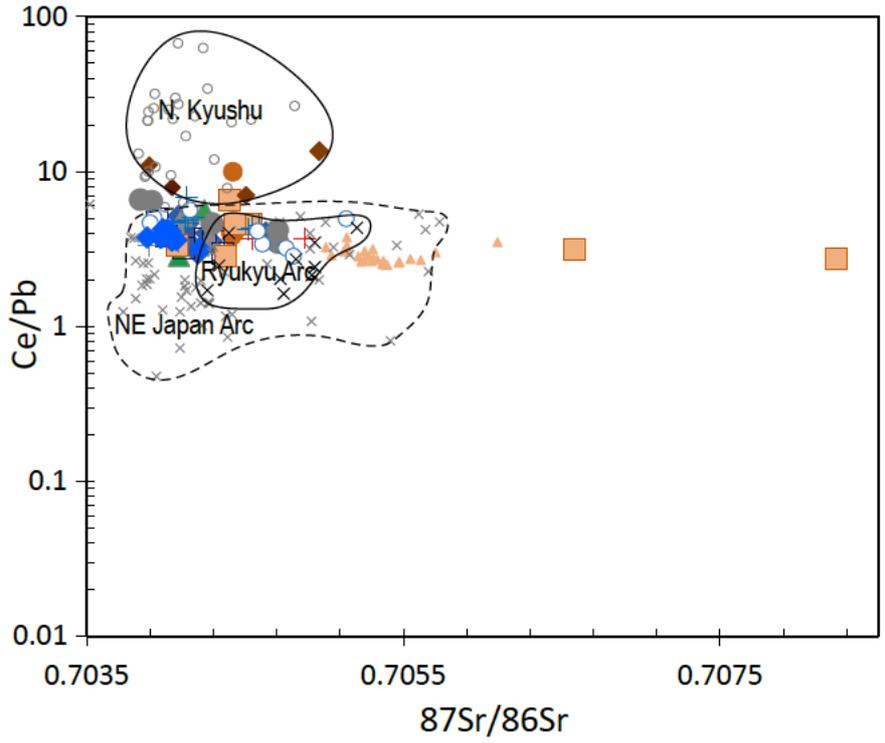


図 2.2.4-10 阿蘇火山岩の Ce / Pb 比と  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  比. 凡例は図 2.2.4-9 と同じ.

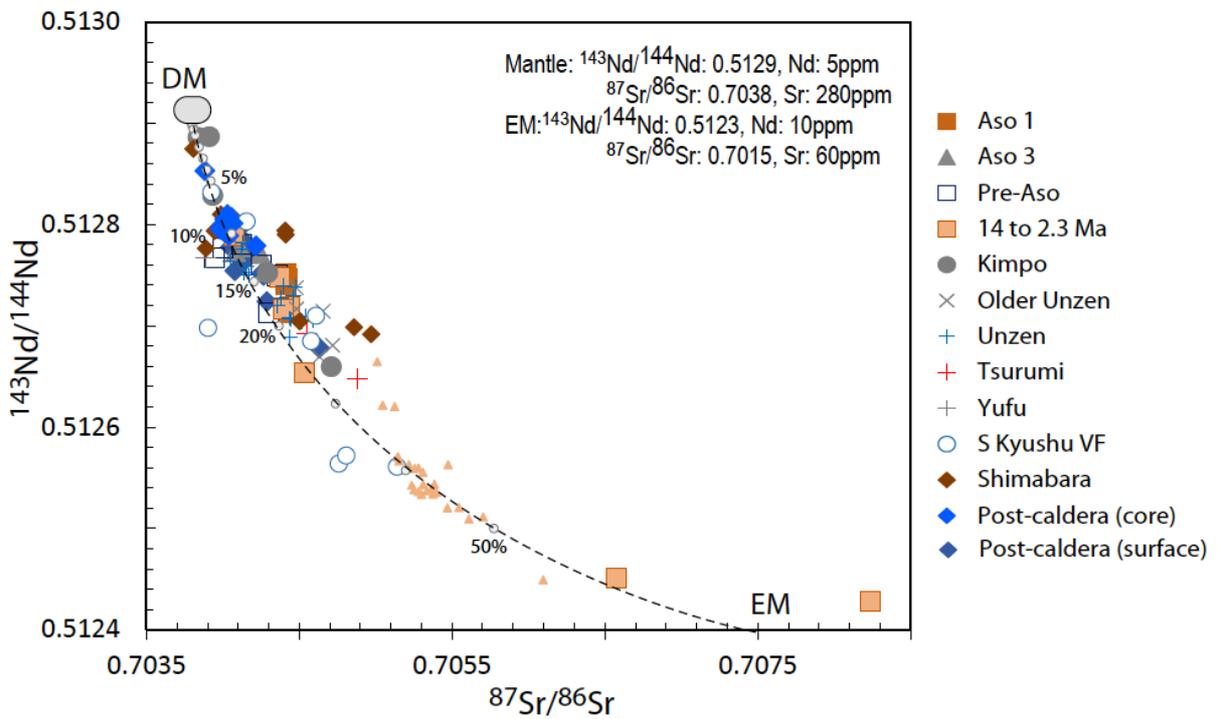


図 2.2.4-11  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  比に対する  $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$  比のプロット

阿蘇火山試料の  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  比と  $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$  比は、枯渇マンツル的な火山岩（例、Kimpo, Shimabara）とより富んだ火山岩（例、14～2.3 Ma 安山岩と玄武岩安山岩）の間にプロットされ（図 2.2.4-11）、二成分混合の可能性がある。明らかに、阿蘇カルデラの西方に位置する 0.5～1.1Ma の単火山である金峰火山の試料は、最も枯渇している。これに対し、阿蘇付近の基盤岩と、九州の第四紀火山岩のうち桜島火山の一部は、最も富んだ同位体組成を持っている。先阿蘇火山岩そして 4～2Ma に噴出した火山岩のいくつかは上で述べた同位体的端成分の間に位置している。このことは、この領域の下にあるマンツル起源の同位体組成は長期にわたって大きく変化していないことを示唆している。特に阿蘇の後カルデラ火山噴出物のドリルコアサンプルは、変化が少ない。このことは、ほとんど地殻物質の影響を受けていないことが示唆している。図 2.2.4-11 の右上に示した数字は、阿蘇火山岩のストロンチウムおよびネオジウム同位体データを説明する可能性のある二成分混合の端成分候補の同位体比および元素濃度示している。

しかしながら、一部の先阿蘇火山岩類（14～2.3 Ma）に観察される、非常に高いストロンチウム同位体比の端成分の鉛同位体比は、高くない（図 2.2.4-12）。従って、端成分として先阿蘇火山岩阿蘇火山岩だけを想定したのでは、観測された同位体比の原因を説明することはできない。南九州で最近噴出した火山岩の一部（例えば桜島）にみられる、同位体的に富んだ試料は、観測した中で最も高い鉛同位体比を示すもののひとつである。これらの火山岩は、ストロンチウム同位体比が上で述べた二成分混合の端成分よりは低いが、阿蘇のストロンチウム、ネオジウム、鉛の同位体比の変化をうまく説明することができる端成分である。阿蘇の火山岩の  $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$  同位体比は、九州北部のイントラプレート玄武岩（例えば島原）や、南九州の火山フロントに産する火山岩と比べると、若干低い（図 2.2.4-12）。以上を要約すると、同位体的に富んだ先阿蘇火山岩類、あるいは桜島でみられるようなマグマ起源物質のみを使ったのでは、阿蘇の火山岩の同位体組成を説明できる二成分混合モデルをつくることはできない。したがって、複数の起源物質を組み合わせることや、これまで考慮していなかった新しい起源物質を考慮する必要がある。

阿蘇の火山岩の Nd および Sr 同位体のデータの分布範囲は比較的狭く、 $0.5127\sim 0.5128$  および  $0.7039\sim 0.7044$  である。これは  $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$  が 18.1～約 18.4 の範囲に対応する。阿蘇の火山岩の同位体データは、以下(1)～(3)の 3 つの頂点をむすぶ領域に分布している；(1) 高  $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$  比(18.55)、低  $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$  比(0.5125)、比較的高い  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  比(0.7055)、(2) 中間的な  $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$  比(18.35)、低  $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$ (0.5124)、高  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  比(0.708)、(3) 低  $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$  比(18.1)、高  $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$  比(0.5129)、低  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  比(0.7035)（図 2.2.4-13）。(1)は桜島の軽石で定義され、(2)は阿蘇の（14Ma）のかんらん石玄武岩で定義され、(3)は金峰や島原の玄武岩で定義される。端成分の同位体組成は、データ範囲を越えた部分(頂点)に位置する必要がある（図 2.2.4-13）。基盤岩の白亜系菊地花崗岩は、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr} = 0.7209$ ;  $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd} = 0.5125$ ;  $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb} = 18.9$  と、観測されたなかでは最も大きい値を示すので、端成分だとみなせる。

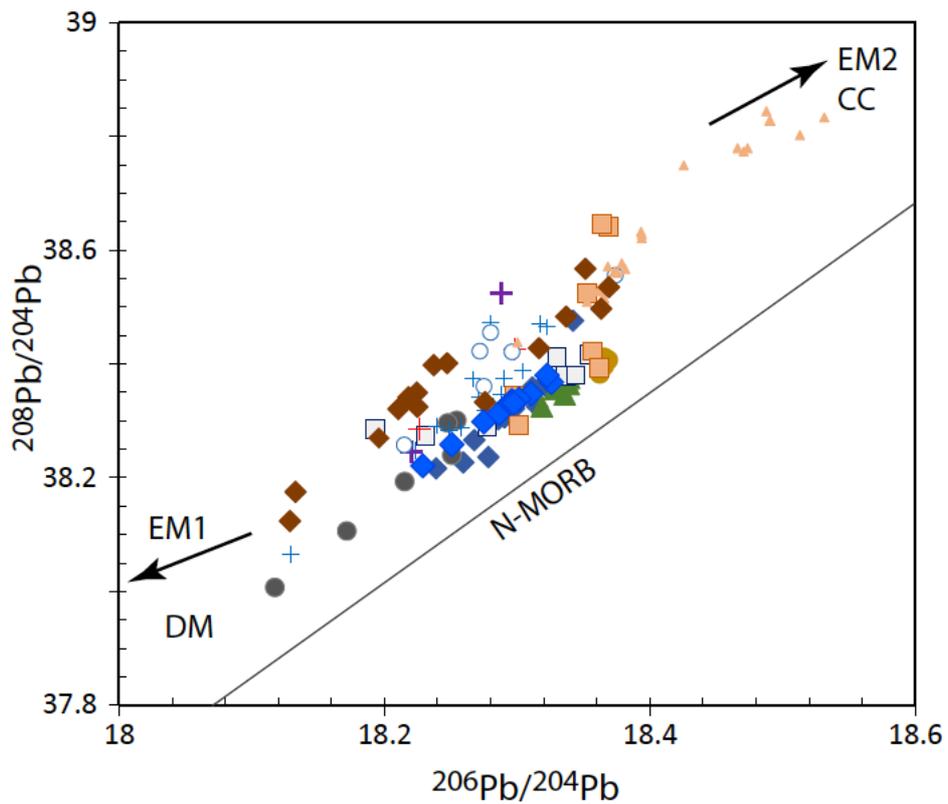
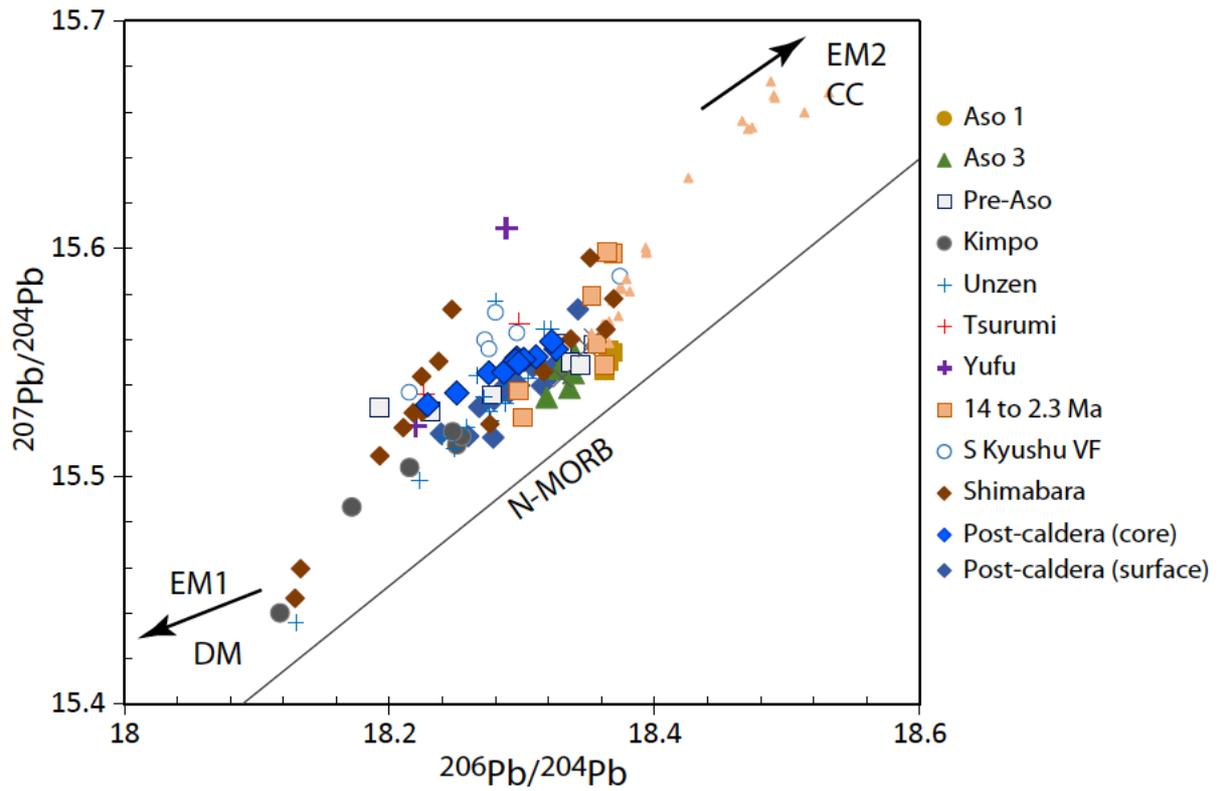


图 2.2.4-12 鉛同位体比. (a) :  $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$  对  $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ , (b) :  $^{208}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$  对  $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ .

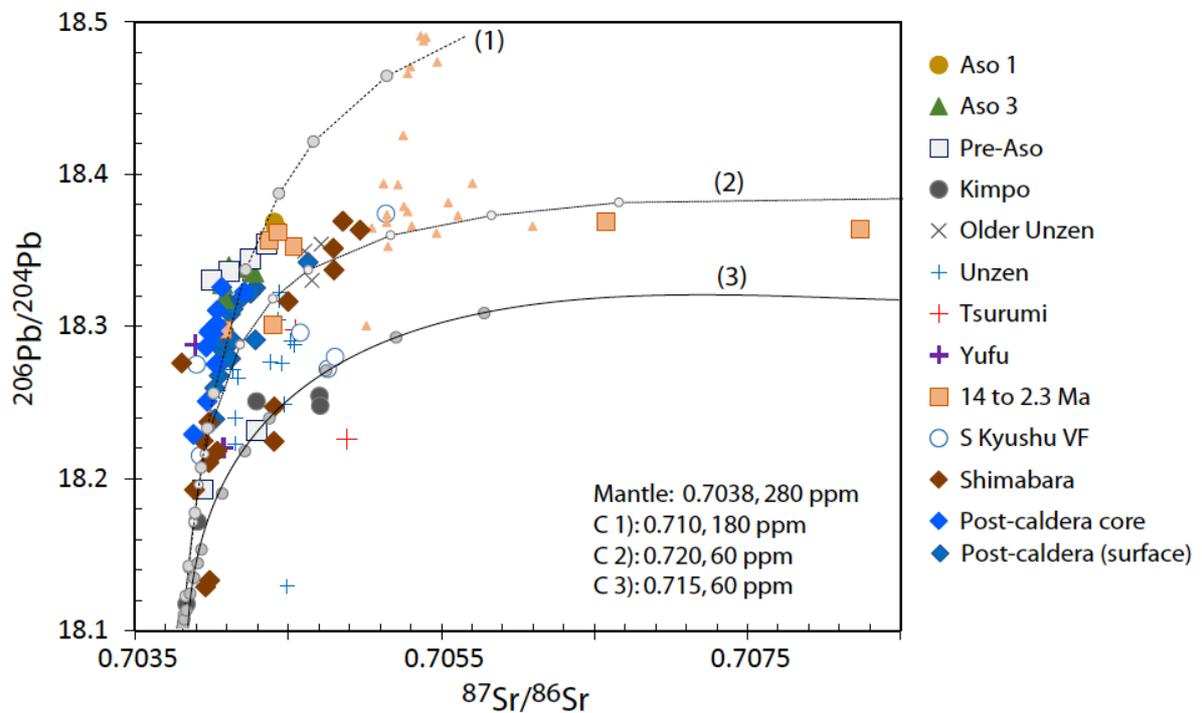
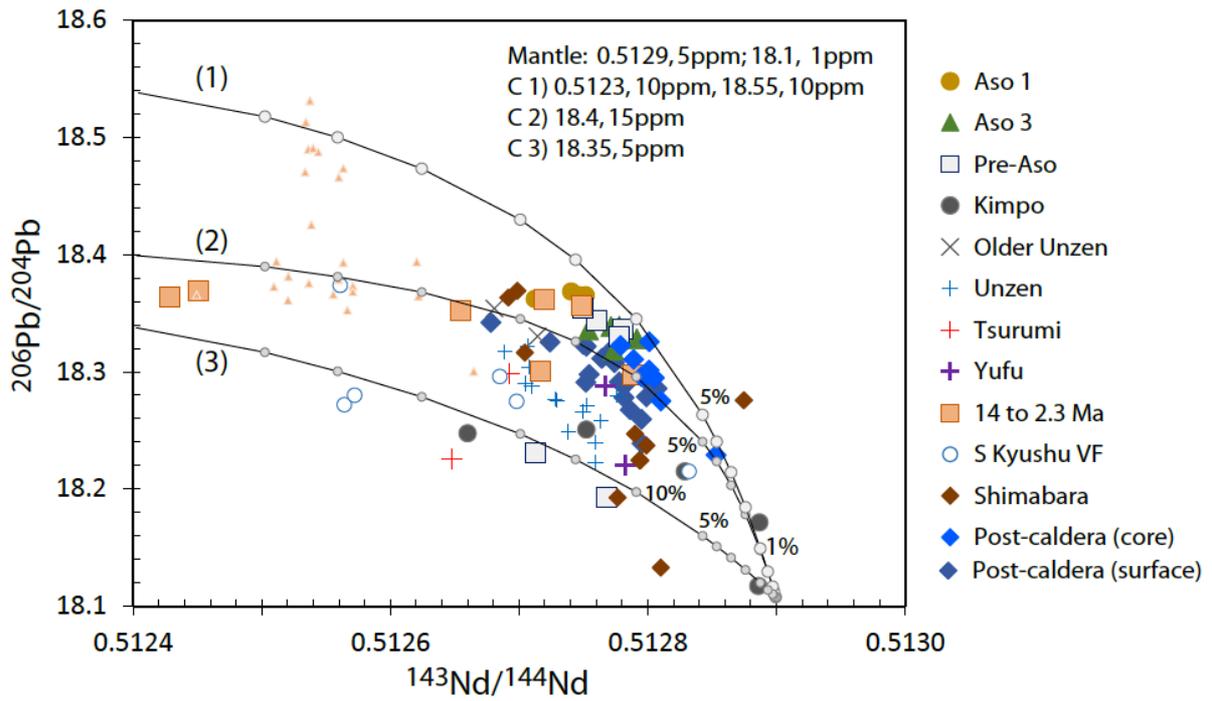


図 2.2.4-13 ストロンチウム、ネオジム、鉛の同位体比のプロット. (a):  $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$  対  $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$ , (b)  $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$  対  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ . 阿蘇の火山岩のほか、島原のイントラプレート玄武岩玄武岩、熊本金峰、雲仙、そしてその他の沈み込み帯の火山岩も一緒にプロットした。

## 議論

阿蘇の火山岩の同位体組成は、上記(1)~(3)を頂点とする三角形の領域に分布している(図 2.2.4-13)。すなわち、阿蘇の火山岩の同位体比をマグマ混合で再現可能な同位体端成分は、以下のように推定された。

(0) 同位体的に枯渇した端成分 (DM):  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ : 0.7038, Sr: 280 ppm;  $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$ : 0.5129, Nd: 5 ppm;  $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ : 18.1, Pb: 1 ppm.

(1) 地殻端成分ソース 1:  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ : 0.710, Sr: 180 ppm;  $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$ : 0.5123, Nd: 10 ppm;  $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ : 18.55, Pb: 10 ppm.

(2) 地殻端成分ソース 2:  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ : 0.720, Sr: 60 ppm;  $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$ : 0.5123, Nd: 10 ppm;  $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ : 18.4, Pb: 15 ppm.

(3) 地殻端成分ソース 3:  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ : 0.715, Sr: 60 ppm;  $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$ : 0.5123, Nd: 10 ppm;  $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ : 18.35, Pb: 5 ppm.

図 2.2.4-13 に、これらの端成分の混合計算結果を示す。阿蘇の火山岩の同位体組成の分布域は、混合曲線 1 と 2 をさらに混合することによってほとんどが説明できるが、分布域は混合曲線 3 とは離れていることがわかる。阿蘇の火山岩の同位体組成は、同位体的に枯渇したマントル源 (DM, 例えば、金峰の玄武岩のようなソース) に、地殻ソース 1 の 4~約 12% (混合曲線 1) と混合することによって説明できる。あるいは、地殻ソース 2 (混合曲線 2) を 4~約 8% 混合することによって説明できる。混合曲線 2 は、金峰玄武岩のマントルソースと、菊池 (K) 花崗岩 (Aso 2015j-A) と同程度に高い Sr 同位体源とを混合することによって形成される。阿蘇周辺の基盤岩の安山岩 (Aso 2015j-I) やオリビン流紋岩 (Aso 2015j-I) など、最も同位体的に富んでいる 14 Ma 頃の火山岩は、混合曲線 2 に沿って他の基盤岩とともに分布している。この混合線は、マントルソースと、菊池花崗岩のように同位体的に富んだ基盤混合によって生成された可能性が示唆される。阿蘇の火山岩の形成に関与した可能性がある端成分は、(1) 金峰玄武岩のような同位体的に枯渇したマントルソース、(2) 同位体的に富んだ 14Ma 頃の阿蘇の基盤岩火山岩類、そして、(3) 14Ma 頃の基盤岩よりさらに同位体的に富んだソース、である。阿蘇の 14 Ma 頃の基盤岩は、同位体的に枯渇したマントルと地殻の菊池花崗岩のような基盤岩の混合によって生成された可能性がある(図 2.2.4-12a, -12b の混合曲線 2)。したがって、もし菊池花崗岩と同様の同位体組成を有する地殻ソースを金峰玄武岩のようなマントルソースと混合すると、阿蘇火山岩の地球化学的な性質を説明できる可能性がある。噴火ステージが異なる阿蘇の火山岩は、微量元素の存在比パターンが互いに類似している(図 2.2.4-4, -5)だけでなく、同位体組成も類似していることが分かった(図 2.2.4-10,-11)。この観察事実は、阿蘇におけるマグマの混合は、基本的に類似した地球化学組成を有する端成分の間で起きている可能性を提示する。逆にいうと、地球化学的性質が似た端成分を区別することは、原理的に困難である (Kaneko et al., 2015 参照)。しかしながら、結晶分別作用によって生じる組成の変化や、様々な鉱物相の分別融解によって生じる変化に着目すれば、個々の噴火エピソードで起こった様々なマグマの混合(あるいは熔融)の端成分を間接的に同定することができる可能性がある(図 2.2.4-3 の  $\text{TiO}_2$  と  $\text{SiO}_2$  の相関を参照)

## まとめ

1.阿蘇火山における各噴火ステージ内でのマグマの組成変化は、地殻同化の有無にかかわらず、マグマ混合に伴う結晶分別作用によって、コントロールされている。結晶分別作用、鉱物の付加、地殻の同化の相対的な量を変えることによって、4つの噴火ユニットに存在するマグマ組成の変化傾向と、マグマ系列の系統的变化を再現することができる (Hunter, 1998; Miyoshi et al., 2007, 2009; Uto ら, 2007; Kaneko ら, 2015)。

2. 阿蘇火山噴出物に観察される Sr-Nd-Pb 同位体変動範囲は、同位体的に枯渇したマントル (熊本金峰で観察される玄武岩のようなマントルソース)、4~12%程度の地殻 (白亜紀) 菊池花崗岩の部分熔融液によって、ほぼ説明できると思われる。

3.阿蘇の火山岩の地球化学的・同位体組成の範囲は、噴火期間を通じてほとんど変わらない。阿蘇の火山岩は、MORB と比較すると、沈み込みおよび地殻の部分熔融に特有な地球化学的特徴を示している。阿蘇の火山岩に観察される同位体な富化は、沈み込むスラブによってマントルに導入された地殻または地殻の汚染への途中で、熔融物が地殻物質や地殻の部分熔融で生じたマグマと相互作用するタイプの、母岩の混入があったことを示唆している。

4.阿蘇の火山岩の地球化学的・同位体的特徴は、一連の噴火ステージの間で変化しなかったが、このことは混合が無いことを保障するものではなく、地球化学的に類似したマグマの混合があったことは否定できない。

## 引用文献

- Chapman, N., et al., 2009. Development of methodologies for the identification of volcanic and tectonic hazards to potential HLW repository sites in Japan: The Kyushu case study. Nuclear Waste Management Organization of Japan (NUMO), Nov 2009, 192pp.
- Gill, J.B., 1981. Orogenic Andesites and Plate Tectonics: Springer-Verlag, 390 pp.
- Hoang, N., Uto, K., 2006. Upper mantle isotopic components beneath the Ryukyu arc system: evidence for back-arc entrapment of Pacific MORB-mantle. Earth Planetary Science Letters 249, 229-240.
- Kimura, J., Yoshida, T., 2006. Contributions of slab fluid, mantle wedge and crust to the origin of Quaternary lavas in the NE Japan arc. Journal of Petrology 47, 2185-2232.
- Lipman, P.W., 1967. Mineral and chemical variations within an ash-flow sheet from Aso caldera, south-western Japan. Contribution to Mineralogy and Petrology 16, 300-327.
- Miyoshi, M., Furukawa, K., Shinmura, T., Shimono, M., Hasenaka, T., 2009. Petrography and whole-rock geochemistry of pre-Aso lavas from the caldera walls of Aso volcano, central Kyushu. Journal of Geological Society of Japan, 115, 672-687 (in Japanese with English abstract)
- Miyoshi, M., Hasenaka, T., Mori, Y., Yamashita, S., 2007. Original of compositional heterogeneity within Tochinoki andesitic lava flow from the western part of Aso caldera. Japanese Magazine of Mineralogical and Petrological Sciences 36, 15-29 (in Japanese with English abstract)

- Miyoshi, M., Shibata, S., Yoshikawa, M., Sano, T., Shinmura, T., Hasenaka, T., 2011. Genetic relationship between post-caldera and caldera-forming magmas from Aso volcano, SW Japan: Constraints from Sr isotope and trace element compositions. *Journal of Mineralogical and Petrological Sciences*, 106, 114-119.
- Norman, M., Garcia, M.O., 1999. Primitive magmas and source characteristics of the Hawaiian plume: petrology and geochemistry of shield picrites. *Earth and Planetary Science Letter* 168, 27-44.
- Relegous, M., Niu, Y., Wendt, J.J., et al., 1999. Variation in the geochemistry of magmatism on the East Pacific Rise at 10°30'N since 800 ka. *Earth and Planetary Science Letters* 168, 45-63.
- Shinjo, R., 1999. Geochemistry of high Mg andesites and the tectonic evolution of the Okinawa Trough- Ryukyu arc system. *Chemical Geology* 157, 69-88.
- Tatsumi, Y., Eggins, S., 1995. Subduction zone magmatism. Blackwell Science, Boston, 211pp.
- Uto, K., Sakaguchi, K., Hoshizumi, H., Matsumoto, A., 2007. Revealing the intracaldera structure from the existing drill cores: a case study of the Aso volcano, Southern Japan. *Cities on volcanoes 5*, Shimabara, Japan.
- Watanabe, K., 1978. Studies on the Aso Pyroclastic Flow Deposits in the region to the west of Aso caldera, southwest Japan. *Geology Memorial of the Faculty of Education, Kumamoto University, Natural Sciences* 27, 97-120.