

2 岩石学的手法によるマグマプロセスに関する調査・研究

2.1 鬼界カルデラ噴出物の岩石学的検討

【実施内容】

本研究ではマグマ供給系発達過程の詳細化を岩石学的手法によって行うモデル事例として、鬼界カルデラを研究対象とする。鬼界カルデラでは、鬼界アカホヤ噴火（7.3 千年前）以前に、鬼界葛原噴火（9.5 万年前）、小アビ山火砕流（14 万年前）、および、カルデラ形成期初期（58 万年前）に小瀬田火砕流が発生している。これらの噴出物について岩石学的解析とメルト包有物化学分析を EPMA および SIMS 等で行い、マグマの化学的特徴、温度・圧力条件を明らかにする。その結果を元に、薩摩硫黄島火山のカルデラ形成期（58 万年前～7.3 千年前）のマグマ供給系の時空間変化をモデル化する。

今年度は、小アビ山火砕流堆積物を対象に分析を行い、マグマの温度が $919\pm 8^{\circ}\text{C}$ であること、メルト包有物の $\text{H}_2\text{O}\cdot\text{CO}_2$ 濃度が $0.3\sim 3.5\text{wt}\%$ 、 $0.001\sim 0.019\text{wt}\%$ であることを明らかにした。そのガス飽和圧力は $58\pm 26\text{MPa}$ と推定され、この圧力は深さ $2\pm 1\text{km}$ に相当する。また、小瀬田、長瀬、鬼界葛原噴火堆積物の結果も合わせると、鬼界のマグマ溜まりの深さは、カルデラ形成期初期（58 万年前）に $9\pm 3\text{km}$ 、14 万年前は $2\pm 1\text{km}$ 以深、9.5 万年前は $6\pm 2\text{km}$ 、7.3 千年前は $5\pm 2\text{km}$ と時間変化した。さらに、鬼界カルデラのマグマ溜まりでのマグマ滞留時間を検討するため、予察的に、噴出物の斑晶内の組織を観察し、鬼界アカホヤや鬼界葛原噴火の輝石斑晶と石英斑晶がわずかに罿帯構造を持っていることを確認した。

【調査・研究成果】

(1) 概要

鬼界カルデラは薩摩硫黄島火山の活動により形成された東西 20km、南北 17km の大型カルデラで、鹿児島県薩摩半島の南約 50km に位置する（図 2.1-1）。カルデラ地形の大部分は海没しており、陸上部は薩摩硫黄島・竹島・昭和硫黄島と数個の岩礁のみである。薩摩硫黄島火山は約 70 万年前から活動を開始し、現在まで断続的に噴火活動を継続している（小野・他，1982）。小野・他（1982）によれば、その噴火史は大きく先カルデラ火山期、カルデラ形成期（58 万年前～7.3 千年前）、後カルデラ火山期（7.3 千年前～現在）に分けられる。先カルデラ火山期には、玄武岩・安山岩マグマによる小成層火山形成と流紋岩・デイサイトマグマによる厚い溶岩流の噴火があった。カルデラ形成期には大規模火砕流の流出を伴う噴火が 2 回以上と、より小規模な活動があり、このうちの 2 回の噴火でカルデラが陥没・拡大したと考えられている（小野・他，1982）。最新のカルデラ噴火が 7.3 千年前に起きた「鬼界アカホヤ噴火」で、その噴出物量は 170km^3 以上と考えられている（町田・新井，2003）。また、鬼界アカホヤ噴火の直前の 9.5 千年前に「籠港降下スコリア」を放出する噴火が起きている。後カルデラ火山期も断続的に噴火活動を継続し、流紋岩マグマの活動によって硫黄岳が、玄武岩マグマの活動によって稲村岳が形成された。最新のマグマ噴火は 1934-35 年の流紋岩マグマによる海底噴火で、硫黄島の東海岸沖に昭和硫黄島を形成した（例えば、Kawanabe and Saito, 2002）。さらに、後カルデラ火山期には、噴火活動とともに活発な火山ガス放出活動が継続している。

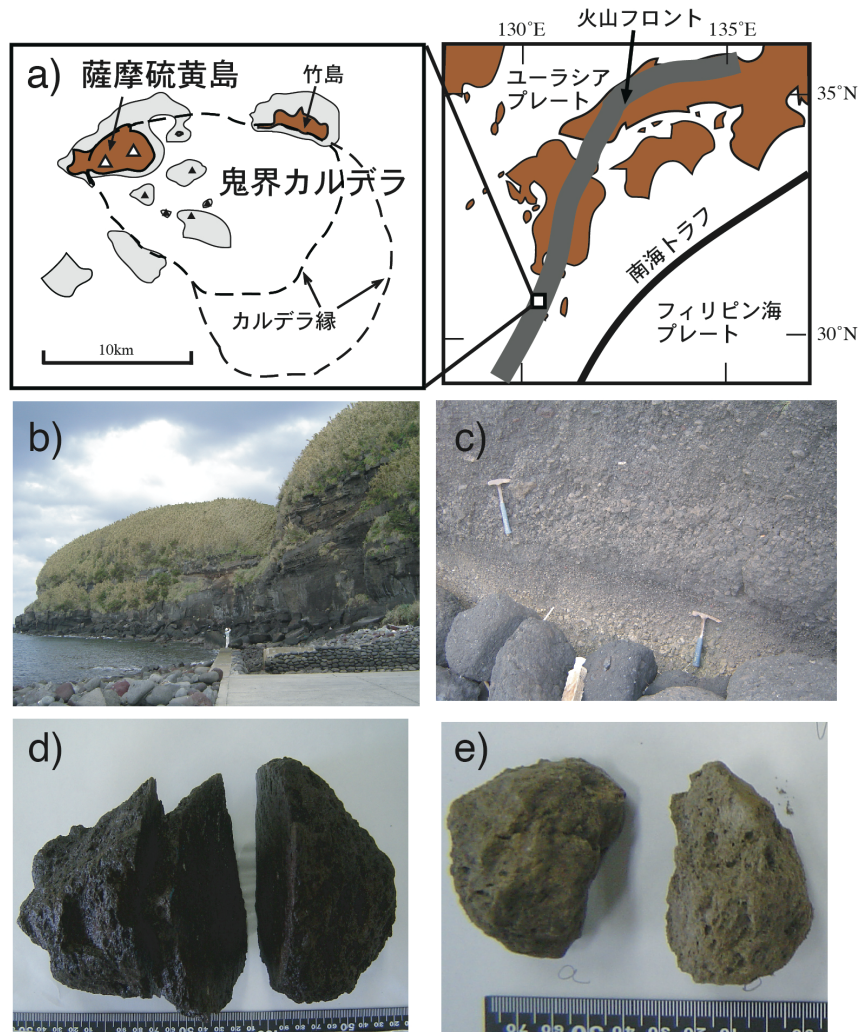


図 2.1-1 a) 鬼界カルデラおよび薩摩硫黄島の位置. b) 薩摩硫黄島の坂本にある小アビ山火砕流堆積物の露頭. c) 小アビ山火砕流堆積物の直下にある降下火砕物層. d) 小アビ山火砕流堆積物に含まれていた軽石 (試料番号 06IW20). e) 小アビ山降下火砕物層に含まれていた軽石 (試料番号 06IW01).

鬼界カルデラのマグマ供給系発達過程を解明するには、マグマ溜まりの岩石学的な特徴と噴火直前の温度・圧力環境、その発達史を知る必要がある。噴出物の鉱物化学分析から地質温度計を用いることでマグマ溜まりの温度を、メルト包有物分析の揮発性成分 (H_2O , CO_2) の濃度測定からマグマの圧力を推定することができる。鬼界アカホヤ噴火 (7.3 千年前) 後のマグマ溜まりについては、岩石学的解析 (Saito et al., 2002) やメルト包有物分析 (Saito et al., 2001; Saito et al., 2003) などの研究により、その化学的特徴や温度・圧力環境が明らかにされている。一方、鬼界アカホヤ噴火以前のマグマ溜まりについては、Saito et al.(2001)で一部の火砕流堆積物についてのみ行われているだけで、系統的な解析は行われていなかった。そこで、平成 25-30 年度に原子力施設等防災対策等委託費研究 (火山影響評価に係る技術的知見の整備) において、鬼界アカホヤ噴火堆積物の幸屋 (船倉) 降下軽石とその直上にある竹島火砕流堆積物に含まれる軽石と

スコリアについて岩石学的解析とメルト包有物化学分析を行い、鬼界アカホヤ噴火で噴出したマグマの化学的特徴を明らかにし、マグマ溜まりの温度・圧力条件について明らかにした（産業技術総合研究所，2014，2015，2016，2017，2018）。その結果、噴火マグマは、主体である流紋岩マグマに加えて安山岩マグマがマグマ溜まりに存在していたことが明らかになった。流紋岩マグマについては輝石温度計で $902 \pm 15^\circ\text{C}$ ($n=35$)、鉄チタン鉱物温度計で $874 \pm 6^\circ\text{C}$ ($n=7$)、安山岩マグマについては輝石温度計で $975 \pm 5^\circ\text{C}$ ($n=5$) が得られた。これらの温度推定結果とメルト包有物の H_2O および CO_2 濃度を用いてマグマのガス飽和圧力を見積もったところ、流紋岩マグマは $153 \pm 50\text{MPa}$ ($61 \sim 276\text{MPa}$, $n=40$)、安山岩マグマは $105 \pm 25\text{MPa}$ ($69 \sim 177\text{MPa}$, $n=42$) と算出された。両マグマの圧力の平均値は $128 \pm 46\text{MPa}$ ($n=82$) であることから、地殻密度を 2500kg/m^3 と仮定すると、鬼界アカホヤ噴火マグマ溜まりの主体は深さ $5 \pm 2\text{km}$ にあったと推定できた。さらに、鬼界アカホヤ噴火に至るマグマ供給系の発達過程を検討するために、9.5 千年前の噴火噴出物（籠港降下スコリア，安山岩組成）について EPMA および SIMS によるメルト包有物化学分析を実施した。その結果、籠港降下スコリアに含まれるメルト包有物は、主成分元素組成は竹島火砕流スコリアに含まれるメルト包有物と同様であるが、揮発性成分濃度に関しては同メルト包有物とはやや異なることが判明した。これらの結果は、9.5 千年前の噴火では、鬼界アカホヤ噴火（7.3 千年前）とは異なるマグマが活動したことを示唆している。

そこで、本年度は、本火山のカルデラ形成期における他の大規模噴火である、鬼界葛原噴火（9.5 万年前）、小アビ山火砕流（14 万年前）、カルデラ形成期初期の小瀬田火砕流（58 万年前；これらの噴出物の年代は町田・新井（2003）の記載に基づく）の堆積物について岩石学的解析とメルト包有物化学分析を EPMA および SIMS 等で行い、マグマの化学的特徴、温度・圧力条件を明らかにする。その結果を元に、薩摩硫黄島火山のカルデラ形成期（58 万年前～7.3 千年前）のマグマ供給系の時空間変化をモデル化する。本研究で用いるメルト包有物分析の揮発性成分（ H_2O ， CO_2 ）の濃度測定によるマグマ圧力推定方法は、平成 25-30 年度原子力施設等防災対策等委託費研究（火山影響評価に係る技術的知見の整備）での鬼界アカホヤ噴火マグマ溜まりの深さの推定にも用いられており（産業技術総合研究所，2014，2015，2016，2017，2018）、上記の噴火に応用することで更なる成果が期待できる。令和元年度-2年度は、鬼界葛原噴火による長瀬火砕流堆積物の岩石学的解析とメルト包有物化学分析，小瀬田火砕流堆積物の岩石学的解析とメルト包有物化学分析，鬼界アカホヤ噴火の先駆的噴火の可能性が指摘されている長浜溶岩について K-Ar 年代測定を実施した（産業技術総合研究所，2019，2020）。そこで、今年度は、小アビ山火砕流堆積物およびその直下にある降下火砕物に含まれる軽石について岩石学的解析とメルト包有物化学分析を EPMA および SIMS 等で行い、マグマの化学的特徴、温度・圧力条件を明らかにした。また、鬼界葛原噴火およびカルデラ形成期初期の小瀬田火砕流のマグマの圧力推定の確度を高めるため、各噴火のメルト包有物の追加分析を実施した。また、長浜溶岩の K-Ar 年代測定の追加分析を実施するとともに、小アビ山火砕流堆積物の K-Ar 年代測定を実施した。加えて、鬼界カルデラのマグマだまりのマグマ滞留時間の推定が可能であるか検討するため、予察的に、鬼界アカホヤ噴火による降下軽石及び火砕流堆積物、および、鬼界葛原噴火によって噴出した火砕流堆積物に含まれる輝石斑晶内の組織について、反射電子像を用いて観察した。また、鬼界葛原噴火によって噴出した石英斑晶内の組織について、カソードルミネッセンス像を用いて

観察した。

(2) 岩石学的解析手法およびメルト包有物の化学分析方法

小アビ山火砕流堆積物 (図 2.1-1; 小野・他, 1982; 町田・新井, 2003) から採取した軽石 (以後, 「小アビ山火砕流軽石」と呼ぶ) 4 個と本質レンズ 1 個, 同堆積物の直下に存在する降下火砕物層に含まれる軽石 (以後, 「小アビ山降下軽石」と呼ぶ) 5 個を分析に供した。各軽石についてそれぞれ一部を粉末試料とし, 白金ルツボ内で加熱溶融・ガラス化し, 産総研・地質調査総合センター共同利用実験室の蛍光 X 線分析装置 (XRF, PANalytical Axios) で主成分元素組成を測定した。XRF のための前処理と測定条件は, Togashi (1989) を参考にし, 測定誤差は Saito et al. (2002) にまとめられている。

メルト包有物の主成分元素, S および Cl の濃度測定, メルト包有物の母斑晶の化学組成分析, 反射電子像の観察には, 平成 28 年度に原子力施設等防災対策等委託費研究 (火山影響評価に係る技術的知見の整備) で産総研に導入した EPMA (日本電子 (株) 製 JXA-8530F; 活断層・火山研究部門に設置) を用いた。EPMA 測定条件および誤差は, 産業技術総合研究所 (2016) に記載されている。さらに, 金蒸着したメルト包有物について, H₂O および CO₂ 濃度を SIMS

(Cameca 製 nanoSIMS50L, 平成 28 年度に原子力施設等防災対策等委託費研究 (火山影響評価に係る技術的知見の整備) で産総研活断層・火山研究部門に設置済み) で測定した。SIMS では, Cs⁺ の 1 次イオンビームを金蒸着したメルト包有物に照射し, 放出された ¹H⁻, ¹²C⁻, ³⁰Si⁻ の二次イオン数を測定し, 標準ガラス試料で作成した SIMS 検量線で濃度を算出した。SIMS の分析手順は Saito et al. (2010) にまとめられている。また, 石英のカソードルミネッセンス像観察と化学組成分析も上記 EPMA を用いた。観察条件は, 加速電圧 15kV, 照射電流 100nA, 化学組成の測定条件は, Wark and Watson (2006) を参考に加速電圧 15kV, 照射電流 100nA, 電子ビーム径 2 μm, 測定時間 50-100 秒を用いた。

さらに, メルト包有物の化学分析によるマグマの深度 (圧力) 推定の妥当性を検討するため, 小アビ山火砕流軽石 (試料番号 96IW07) の全岩化学組成データ (産業技術総合研究所, 2017) を用いて同流紋岩マグマの熱力学解析を行ない, 観測されたマグマの温度・圧力・含水量・メルト量・斑晶量と比較した。マグマの熱力学解析には, マグマの熱力学計算ソフトウェア MELTS (Asimow and Ghiorso, 1998; Ghiorso and Sack, 1995; Ghiorso and Gualda, 2015; Gualda et al., 2012) を用いた。計算の詳細については, 産業技術総合研究所 (2017) 内の「阿蘇カルデラ噴出物の熱力学解析」を参照されたい。

(3) 小アビ山火砕流軽石および小アビ山降下軽石の岩石学的解析とメルト包有物分析

硫黄島・坂本に分布する小アビ山火砕流堆積物 (図 2.1-1) はかなりの部分が強く溶結している (小野・他, 1982)。本研究では, この堆積物から, 非溶結部分にあった軽石 2 個 (96IW07, 06IW20) と軽石が溶結して形成されたと考えられる本質レンズ (06IW22) を採取し, 全岩化学分析に供した (表 2.1-1)。また, 硫黄島・城ヶ原東端に, 小アビ山火砕流堆積物の上部ユニットと考えられる非溶結の火砕流堆積物が露出しており, その堆積物中の軽石 2 個 (06IW01-1,

06IW01-2) も分析に供した。また、硫黄島・坂本に分布する同堆積物の直下には降下火砕物層が存在し (図 2.1-1), それに含まれる軽石 5 個を分析に供した。

本研究で分析した小アビ山降下軽石と小アビ山火砕流軽石の SiO_2 濃度は 71~72wt% (SiO_2 ~ P_2O_5 の主要 10 元素で規格化した値, 以後, 主成分元素濃度は全て規格化した値) の範囲にあり, 流紋岩組成である (表 2.1-1, 図 2.1-2)。硫黄島・坂本に分布する小アビ山火砕流軽石とその直下の小アビ山降下軽石で, 化学組成に差は見られない。この結果は, 小アビ山降下軽石と小アビ山火砕流軽石を形成したマグマは同じマグマだまりから噴出したことを示す。一方, 硫黄島・城ヶ原東端に分布する小アビ山火砕流軽石 2 個の Al_2O_3 と K_2O の濃度 (14.5wt%, 2.9~3.1wt%) は, 硫黄島・坂本に分布する小アビ山火砕流軽石 ($\text{Al}_2\text{O}_3=13.4\sim 13.9\text{wt}\%$, $\text{K}_2\text{O}=2.6\sim 2.8\text{wt}\%$) の濃度に比べて, わずかに高い。この結果はマグマだまり内で化学組成の不均質があった可能性を示唆している。ただし, 分析試料数が少ないので, 今後, 軽石の全岩化学分析をさらに進め, この不均質性の有無を確定する必要がある。

表 2.1-1 小アビ山降下軽石および小アビ山火砕流軽石の全岩主成分化学組成 (wt%)。06IW04-1 と 06IW04-2 は硫黄島・城ヶ原東端, その他は硫黄島・坂本で採取した (図 2.1-1 参照)。

試料番号	小アビ山降下軽石					小アビ山火砕流軽石				
	06IW01-1	06IW01-2	06IW02	06IW18-1	06IW18-2	96IW07	06IW20	06IW22 ^a	06IW04-1	06IW04-2
SiO_2	69.52	70.01	70.62	70.82	69.95	70.75	71.45	72.42	69.93	69.48
TiO_2	0.67	0.66	0.66	0.67	0.66	0.72	0.64	0.68	0.70	0.69
Al_2O_3	13.36	13.28	13.39	13.41	13.07	13.83	13.27	13.60	14.20	14.16
FeO^*	3.19	3.16	3.22	3.20	3.16	3.40	3.02	3.26	3.28	3.35
MnO	0.10	0.09	0.09	0.09	0.09	0.09	0.09	0.09	0.09	0.10
MgO	0.80	0.80	0.74	0.80	0.79	0.78	0.68	0.72	0.72	0.76
CaO	2.57	2.54	2.66	2.60	2.73	2.75	2.41	2.64	2.29	2.52
Na_2O	4.26	4.48	4.13	4.39	4.41	4.34	4.31	4.20	3.49	3.63
K_2O	2.68	2.65	2.68	2.64	2.68	2.56	2.78	2.64	3.00	2.81
P_2O_5	0.13	0.13	0.14	0.13	0.13	0.13	0.12	0.14	0.13	0.13
Total	97.28	97.80	98.33	98.75	97.67	99.34	98.77	100.39	97.83	97.63
$\text{FeO}^* = \text{total FeO}$										
^a 溶結した軽石										

小アビ山降下軽石および火砕流軽石のメルト包有物は, 大きさ 0.03~0.10 mm で, 単斜輝石, 斜方輝石に含まれている (表 2.1-2, 図 2.1-3)。7 個のメルト包有物のうち, mt21092110-p1i1 は他のメルト包有物に比べて FeO , MgO , CaO の濃度が低く, Na_2O 濃度が高い。上記以外の 6 個のメルト包有物はほぼ同一の化学組成 ($\text{SiO}_2=74\text{-}76\text{ wt}\%$, $\text{Al}_2\text{O}_3=12\text{-}13\text{ wt}\%$, $\text{K}_2\text{O}=3.2\text{-}3.8\text{ wt}\%$) を持つ。これらの化学組成は鬼界アカホヤ噴火軽石に含まれる流紋岩メルト包有物が示す化学組成と同様である (図 2.1-4)。また, 小アビ山降下軽石メルト包有物 (mt21092107-p1i2) と, mt21092110-p1i1 以外の小アビ山火砕流軽石メルト包有物で, 主成分化学組成に大きな差は見られない。また, 小アビ山降下軽石と小アビ山火砕流軽石のメルト包有物 7 個の H_2O および CO_2 濃度は 0.3-3.5 wt% および 0.019 wt% 以下である。小アビ山降下軽石と小アビ山火砕流

軽石でメルト包有物の H₂O および CO₂ 濃度に差は見られない。上記のように小アビ山降下軽石と小アビ山火砕流軽石のメルト包有物の主成分元素組成は鬼界アカホヤ噴火軽石の流紋岩メルト包有物と同様である一方、H₂O および CO₂ 濃度は鬼界アカホヤ噴火に比べ、低い。(図 2.1-5)。ただし、今回測定したメルト包有物は、内部の一部が脱ガラス化していたり、泡が多数存在するものや割れ目に沿って存在するものがあり、メルト包有物捕獲後に揮発性成分が散逸している可能性がある。

さらに、小アビ山降下軽石および火砕流軽石を噴出したマグマ溜まりの温度を推定するため、単斜輝石と斜方輝石のペアの境界部分 2 点の化学組成を EPMA で測定し、その結果に Putirka (2008) の輝石地質温度計を適用した。その結果、小アビ山降下軽石の分析から得られたマグマ温度は 911°C、小アビ山火砕流軽石から得られたマグマ温度は 927°C になった。下記のガス飽和圧力の算出では、この平均値である 919°C (±8°C, n=2) を用いた (表 2.1-2)。

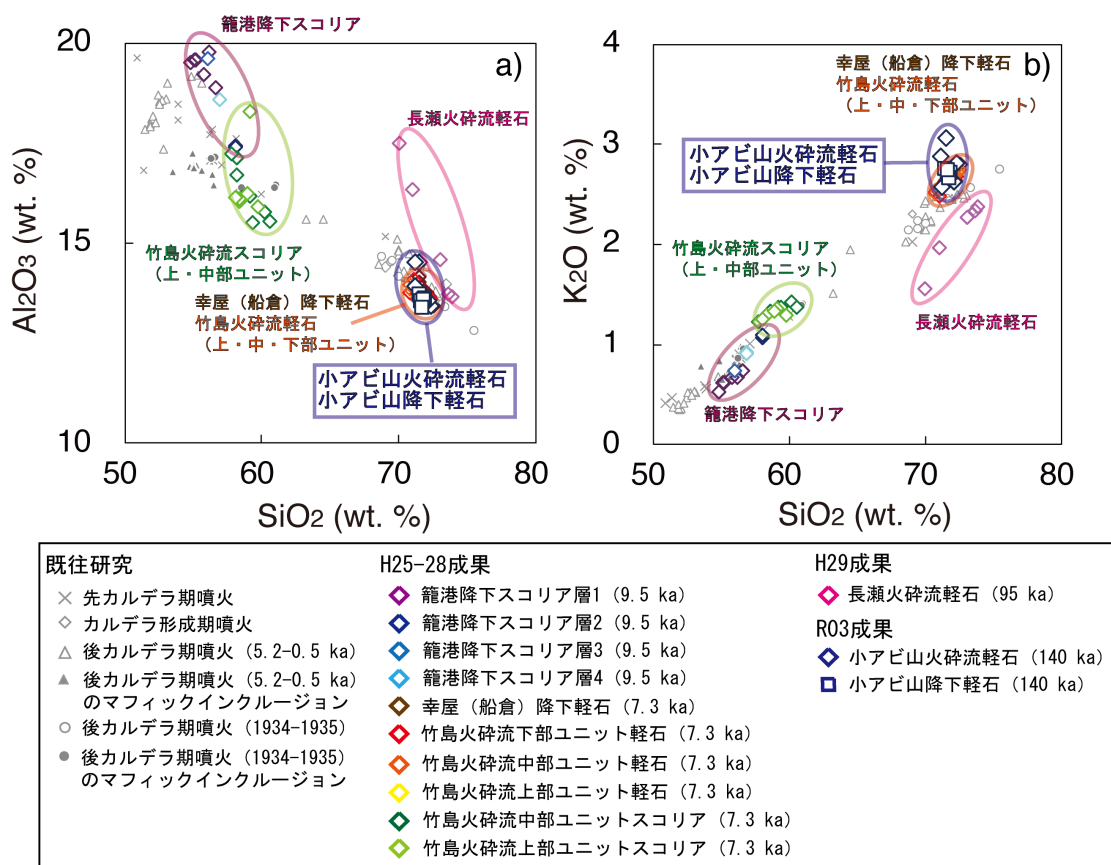


図 2.1-2 小アビ山火砕流軽石および降下軽石の全岩主成分化学組成。平成 25-29 年度原子力施設等防災対策等委託費研究 (火山影響評価に係る技術的知見の整備) の成果である幸屋 (船倉) 降下軽石、竹島火砕流軽石・スコリア、籠港降下スコリアおよび長瀬火砕流軽石の分析結果、既往研究 (小野・他, 1982; Saito et al., 2002) による先カルデラ期、カルデラ形成期および後カルデラ期噴火噴出物の化学組成も記す。濃度は、SiO₂~P₂O₅ の主要 10 元素で規格化した値を用いた。

表 2.1-2 小アビ山降下軽石および小アビ山火砕流軽石に含まれるメルト包有物の化学組成 (wt%) とその H₂O および CO₂ 濃度から見積もられたガス飽和圧力.

試料	小アビ山降下軽石		小アビ山火砕流軽石					
試料番号	06IW18-2	96IW07	96IW07	06IW20-1	06IW04	06IW04	06IW04	06IW04
メルト包有物番号	mt21092107-pli2	mt21092110-pli1	mt21092110-p2i1	mt21092114-pli1	mt21092116-pli1	mt21092116-p3i1	mt21092116-p3i2	mt21092116-p3i2
メルト包有物の大きさ (mm, 最大)	0.08	0.05	0.08	0.03	0.04	0.10		0.03
メルト包有物の特徴 ^a	m	m	f	m	b, f	b		b
ホスト鉱物組成	単斜輝石	単斜輝石	単斜輝石	単斜輝石	斜方輝石	単斜輝石		単斜輝石
ホスト鉱物の化学組成 ^b	Wo41En41Fs18	Wo42En41Fs17	Wo41En42Fs17	Wo41En41Fs18	Wo3En64Fs33	Wo42En41Fs17		Wo41En42Fs17
SiO ₂	77.06	74.96	75.90	75.59	76.52	76.99		76.56
TiO ₂	0.54	0.54	0.56	0.51	0.51	0.53		0.50
Al ₂ O ₃	12.75	12.78	12.81	12.72	12.93	13.11		13.05
FeO*	2.79	0.92	2.25	2.52	2.68	2.60		2.62
MnO	0.07	0.02	0.05	0.11	0.05	0.11		0.12
MgO	0.35	0.00	0.25	0.36	0.42	0.48		0.54
CaO	0.76	0.46	1.04	1.62	1.73	1.69		1.84
Na ₂ O	4.69	5.54	4.51	4.41	3.44	2.26		3.03
K ₂ O	3.95	3.77	3.63	3.70	3.37	3.26		3.57
P ₂ O ₅	0.04	0.08	0.05	0.12	0.06	0.07		0.06
S	0.007	0.011	0.009	0.009	0.012	0.009		0.010
Cl	0.141	0.139	0.136	0.132	0.132	0.138		0.132
H ₂ O	2.9	2.7	1.5	3.5	3.5	1.4		0.3
CO ₂	na	0.010	0.012	na	nd	0.011		0.019
Total	106.04	101.94	102.69	105.25	105.39	102.65		102.32
ガス飽和圧力 (MPa) ^c	>66	73	40	>90	94	36		30

FeO* = total FeO, na = not analyzed, nd = not detected

^a b = メルト包有物内に泡が存在, d = 脱ガラス作用による微細な結晶が存在, f = 母斑晶の割れ目に沿って存在, m = メルト包有物内に鉱物が存在.

^b Wollastonite, Enstatite, Ferrosilite成分のモル比を示す.

^c Newman and Lowenstern (2002) で提案されているケイ酸塩メルトへのH₂OおよびCO₂溶解度モデルに適用してガス飽和圧力を計算した. マグマ温度は小アビ山降下軽石 (06IW18-2) および小アビ山火砕流軽石 (06IW04) の単斜輝石・斜方輝石ペアに輝石地質温度計を適用して得られた温度の平均値 (919±8°C, n=2) を用いた. CO₂濃度を測定していないメルト包有物についてのガス飽和圧力は最小見積もりになる. CO₂濃度が検出限界以下のmt21092116-pli1についてはCO₂濃度を0wt%と仮定して算出した. また, CO₂濃度測定をしていないメルト包有物 (mt21092107-pli2, mt21092114-pli1) についてもCO₂濃度を0wt%と仮定して算出した. 従って, 得られたガス飽和圧力は最小見積もりになる.

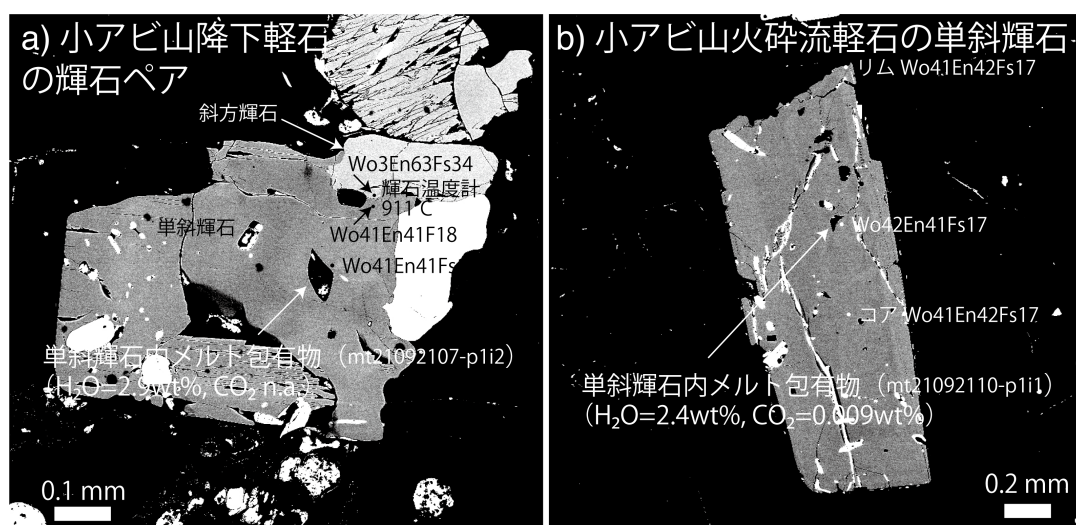


図 2.1-3 (a) 小アビ山降下軽石, および (b) 小アビ山火砕流軽石に含まれる単斜輝石内メルト包有物の反射電子線像. 各メルト包有物の H₂O および CO₂ 濃度と, ホスト鉱物の化学組成, 輝石温度計によって推定されたマグマ温度も示す.

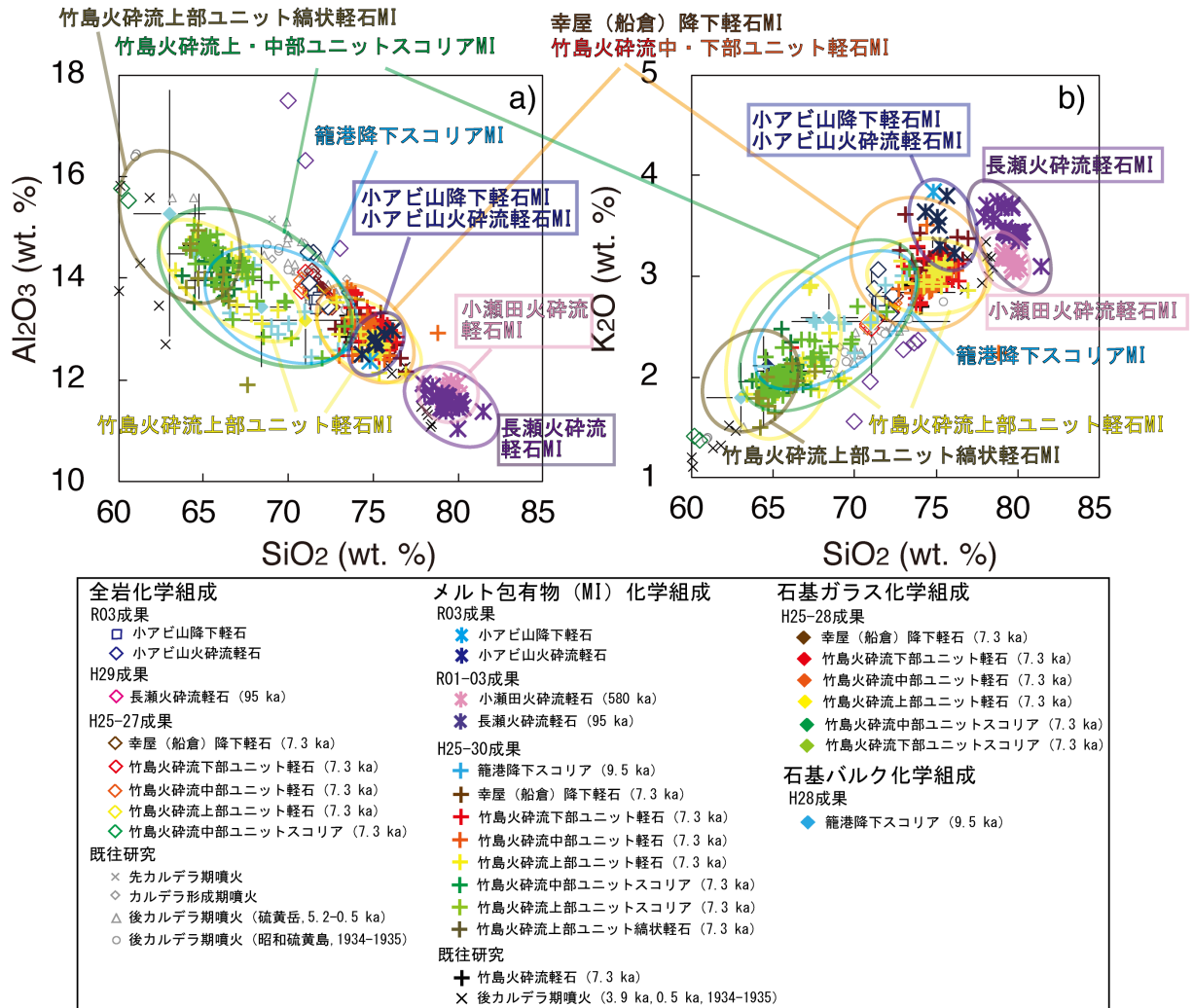


図 2.1-4 小アビ山火砕流軽石および降下軽石，小瀬田火砕流軽石（58 万年前）および長瀬火砕流軽石（9.5 万年前）のメルト包有物の主成分化学組成。各濃度は、 $\text{SiO}_2 \sim \text{P}_2\text{O}_5$ の主要 10 元素で規格化した値を用いた。平成 25-29 年度原子力施設等防災対策等委託費研究（火山影響評価に係る技術的知見の整備）の成果である籠港降下スコリア（9.5 千年前の噴火），幸屋（船倉）降下軽石および竹島火砕流軽石・スコリア・縞状軽石（7.3 千年前の噴火）の結果，および，既往研究による結果も示す。

小アビ山降下軽石および火砕流軽石を噴出した流紋岩マグマの圧力条件を明らかにするため，メルト包有物分析で得られたメルトの H_2O および CO_2 濃度と各揮発性成分のメルトへの溶解度の圧力依存性からマグマのガス飽和圧力を見積もった（表 2.1-2）。溶解度は圧力とともに温度にも依存するため，流紋岩マグマの温度として，上記の 919°C を計算に用いた。 H_2O および CO_2 濃度が得られているメルト包有物 6 個の H_2O および CO_2 濃度に Newman and Lowenstern (2002) で提案されているケイ酸塩メルトへの H_2O および CO_2 溶解度モデルに適用して，ガス飽和圧力を計算した（表 2.1-2）。その結果，この流紋岩マグマの圧力は， $58 \pm 26 \text{MPa}$ ($30\text{--}94 \text{MPa}$) となった。地殻密度 2500kg/m^3 と仮定すると，この圧力は深さ $2 \pm 1 \text{km}$ に相当する（図 2.1-6）。また， H_2O 濃度のみが得られているメルト包有物 2 個については， CO_2 濃度が 0 wt% と仮定すると，

66MPa と 90MPa になった。実際の圧力値はこの算出値以上のはずである。ただし、上記のように、今回測定したメルト包有物は、内部の一部が脱ガス化していたり、泡が多数存在するものや割れ目に沿って存在するものがあり、メルト包有物捕獲後に揮発性成分が散逸している可能性がある。この場合、上記の圧力（深さ）は過小に見積もっていることになる。小アピ山火砕流を起こしたマグマだまりの圧力条件を確定するには、メルト包有物の追加分析、特に、メルト包有物捕獲後の揮発性成分の散逸が無いと推定できるものの H₂O および CO₂ 濃度データの蓄積が必要である。

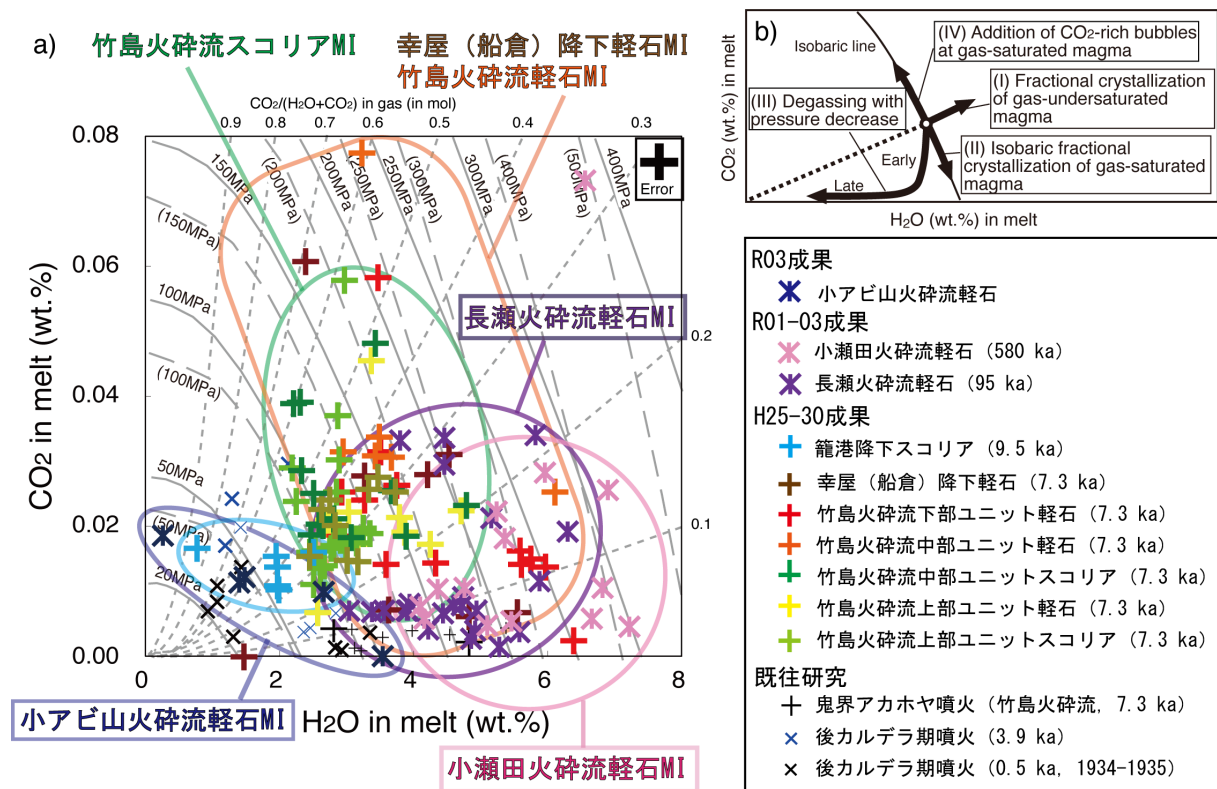


図 2.1-5 a) 小アピ山火砕流軽石および降下軽石，小瀬田火砕流軽石（58 万年前）および長瀬火砕流軽石（9.5 万年前）のメルト包有物の H₂O および CO₂ 濃度。H25-30 年度原子力施設等防災対策等委託費研究（火山影響評価に係る技術的知見の整備）の成果である幸屋（船倉）降下軽石および竹島火砕流軽石メルト包有物の H₂O および CO₂ 濃度，籠港降下スコリア（9.5 千年前の噴火）に含まれるメルト包有物の H₂O および CO₂ 濃度，既往研究による結果も記す。 b) マグマプロセスに伴うメルトの H₂O および CO₂ 濃度の変化。

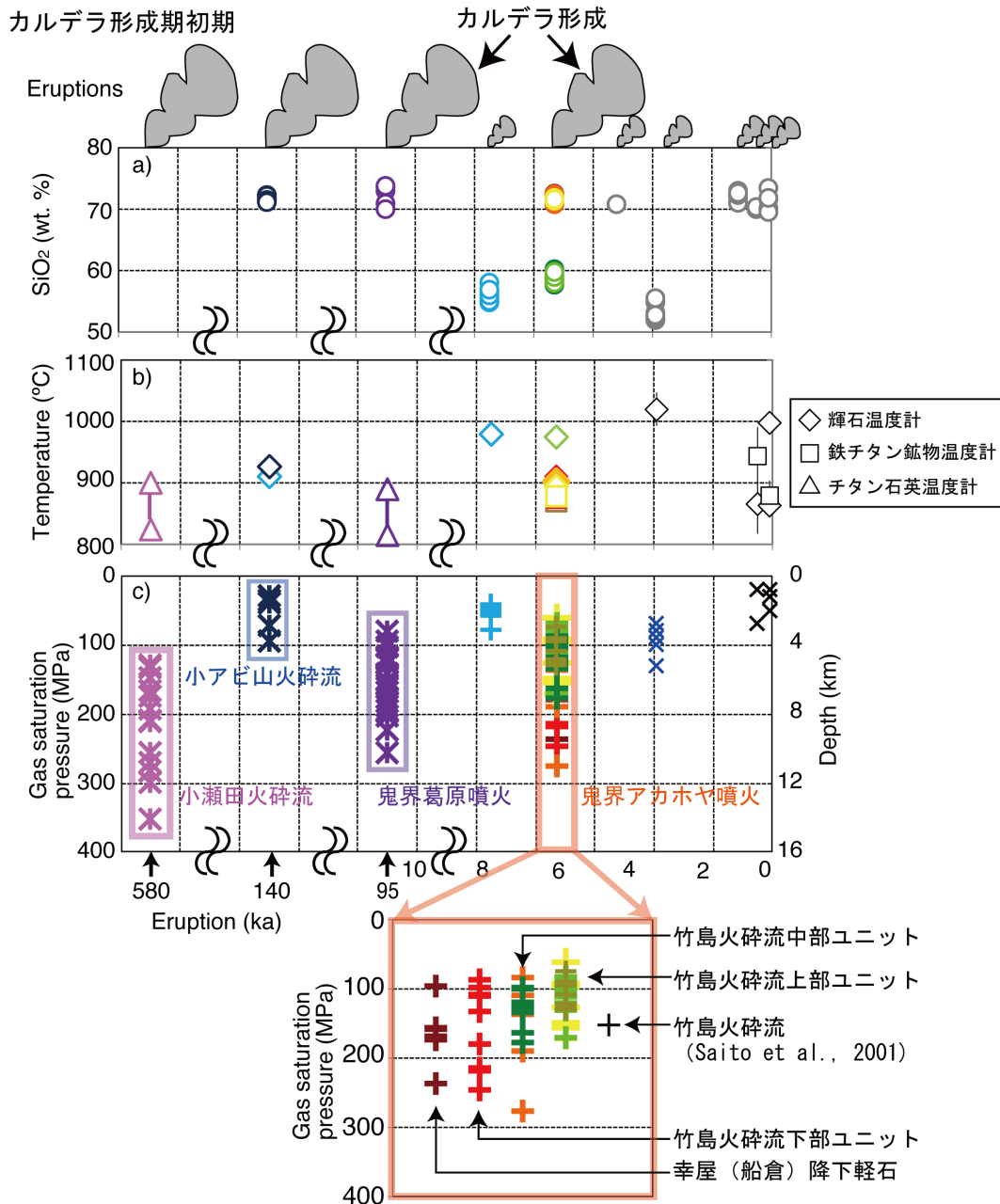


図 2.1-6 本研究によって得られた鬼界カルデラのマグマ供給系の発達史. 小アビ山火砕流軽石の噴火年代は町田・新井 (2003) に基づき, 14 万年前としている. a) 噴出物の XRF 分析によるマグマの化学組成 (SiO_2 濃度). b) 小瀬田火砕流噴火 (58 万年前) 以降の噴火のマグマ温度. 小アビ山降下軽石 (水色) および小アビ山火砕流軽石 (紺色) のマグマ温度は輝石温度計から見積もった. 小瀬田火砕流噴火と鬼界葛原噴火のマグマ温度は令和 2 年度の成果 (産業技術総合研究所, 2021). それ以降のカルデラ形成期のマグマ温度は輝石温度計および鉄チタン鉱物温度計によって得られた (産業技術総合研究所, 2018). 後カルデラ期噴火のマグマ温度は既往研究 (Saito et al., 2002) による結果. c) マグマ温度とメルト包有物の化学組成から算出された各マグマのガス飽和圧力. 小アビ山降下軽石 (水色) および小アビ山火砕流軽石 (紺色), 小瀬田火砕流噴火, 鬼界葛原噴火が本研究成果. マグマ温度は小アビ山降下軽石および小アビ山火砕流軽石 919°C , 小瀬田火砕流 900°C , 鬼界葛原噴火 890°C を仮定している. 既往研究による結果も記す. シンボルの意味は図 2.1-5 と同じ.

さらに、メルト包有物の化学分析による流紋岩マグマの深度（圧力）推定の妥当性を検討するため、小アピ山火砕流軽石（試料番号 96IW07）の全岩化学組成データを用いて同流紋岩マグマの熱力学解析を行ない、観測されたマグマの温度・圧力・含水量・メルト量・斑晶量と比較した。この流紋岩マグマの酸素分圧は鬼界アカホヤ噴火流紋岩の分析（産業技術総合研究所（2017）に記載済み）から得られている FMQ+1 ログユニットという値を用いた。流紋岩マグマの揮発性成分濃度については、メルト包有物の分析結果（表 2.1-2）に基づき、H₂O 濃度 3 wt%と CO₂ 濃度 0.01 wt%（高揮発性成分濃度）、H₂O 濃度 1.5 wt%と CO₂ 濃度 0.01 wt%（低揮発性成分濃度）の 2 つのケースを想定している。上記の熱力学計算の結果の一例を図 2.1-7 と図 2.1-8 に示す。鉱物およびメルト包有物の化学分析によって得られた温度 919±8°C、圧力 30～94MPa（58±26MP）の条件の元で、計算結果と観測値（メルト量、斜長石斑晶量、メルト SiO₂ 濃度、メルト Al₂O₃ 濃度等）を比較した（図 2.1-7、図 2.1-8）。メルト量と斜長石斑晶量の観測値は、モード組成（小野・他、1982）とメルトと鉱物の密度（メルト 2400 kg/m³、斜長石 2700 kg/m³、単斜輝石 3340 kg/m³、斜方輝石 3370 kg/m³、鉄チタン鉱物 5174 kg/m³と仮定）から、メルト（石基）90.5 wt%、斜長石 7.3 wt%、と算出された。また、メルト SiO₂ および Al₂O₃ 濃度はメルト包有物測定結果から、74.36～76.15 wt%、12.38～12.97 wt%、である。一方、熱力学計算結果は、H₂O 濃度 3 wt%の場合、メルト量 84.75～99.45 wt%、斜長石斑晶量 0.41～13.83 wt%、メルト SiO₂ 濃度 71.42～73.74 wt%、メルト Al₂O₃ 濃度 12.20～13.86 wt%となった。実際の観測値は、メルト SiO₂ 濃度がやや高い以外は、計算結果の範囲内にあり、大きな矛盾は見られない。一方、H₂O 濃度 1.5 wt%の場合、メルト量 81.55～82.98 wt%、斜長石斑晶量 15.62～16.76 wt%となり、観測値と大きく異なる。また、メルト SiO₂ 濃度（74.03～74.21 wt%）、メルト Al₂O₃ 濃度（11.90～12.01 wt%）も観測値と僅かに異なっている。即ち、H₂O 濃度 1.5wt%では実際の火山岩のモード組成やメルトの化学組成を再現できないことが明らかとなった。従って、1.5 wt%以下の H₂O 濃度を持つメルト包有物は、マグマだまりのメルトの H₂O 濃度を保持していない可能性が高い。その原因として、メルト包有物捕獲後の H₂O の散逸が考えられる。

（4）小瀬田火砕流軽石および長瀬火砕流軽石のメルト包有物の追加分析

小瀬田火砕流堆積物（58 万年前、テフラの見かけ体積は不明、町田・新井、2003）は、白色の軽石（以後、「小瀬田火砕流軽石」と呼ぶ）とそれと同質の基質からなる、変質の進んだ堆積物で、屋久島や種子島に存在する。令和 2 年度に、屋久島にある小瀬田火砕流堆積物の軽石内のメルト包有物 8 個について、主成分元素、S、Cl、H₂O および CO₂ 濃度を測定した（表 2.1-3；産業技術総合研究所、2020）。今年度は、メルト包有物 6 個の追加分析を実施した。これらのメルト包有物は、大きさ 0.04～0.12mm で、石英に含まれている（表 2.1-3）。令和 2-3 年度に分析した小瀬田火砕流軽石のメルト包有物 14 個は、SiO₂ 濃度（79～80 wt%）、K₂O 濃度（3.0～3.3 wt%）、Al₂O₃ 濃度（11～12 wt%）を持ち、鬼界アカホヤ噴火噴出物に含まれる流紋岩メルト包有物よりも分化した組成であり、長瀬火砕流堆積物のメルト包有物の示す化学組成と同様である（表 2.1-3、図 2.1-3）。また、小瀬田火砕流堆積物のメルト包有物 14 個の H₂O および CO₂ 濃度（4.1～7.2 wt% および 0.005～0.073 wt%）は、鬼界アカホヤ噴火流紋岩メルト包有物が示す濃度に比べ、H₂O 濃度が高く、CO₂ 濃度が低い傾向を示し、長瀬火砕流堆積物のメルト包有物

の示す組成範囲に近い(図 2.1-5). 従って, 小瀬田火砕流堆積物を形成したマグマのメルトは, 鬼界葛原噴火マグマのメルトと同様な化学的特徴を持つと言える.

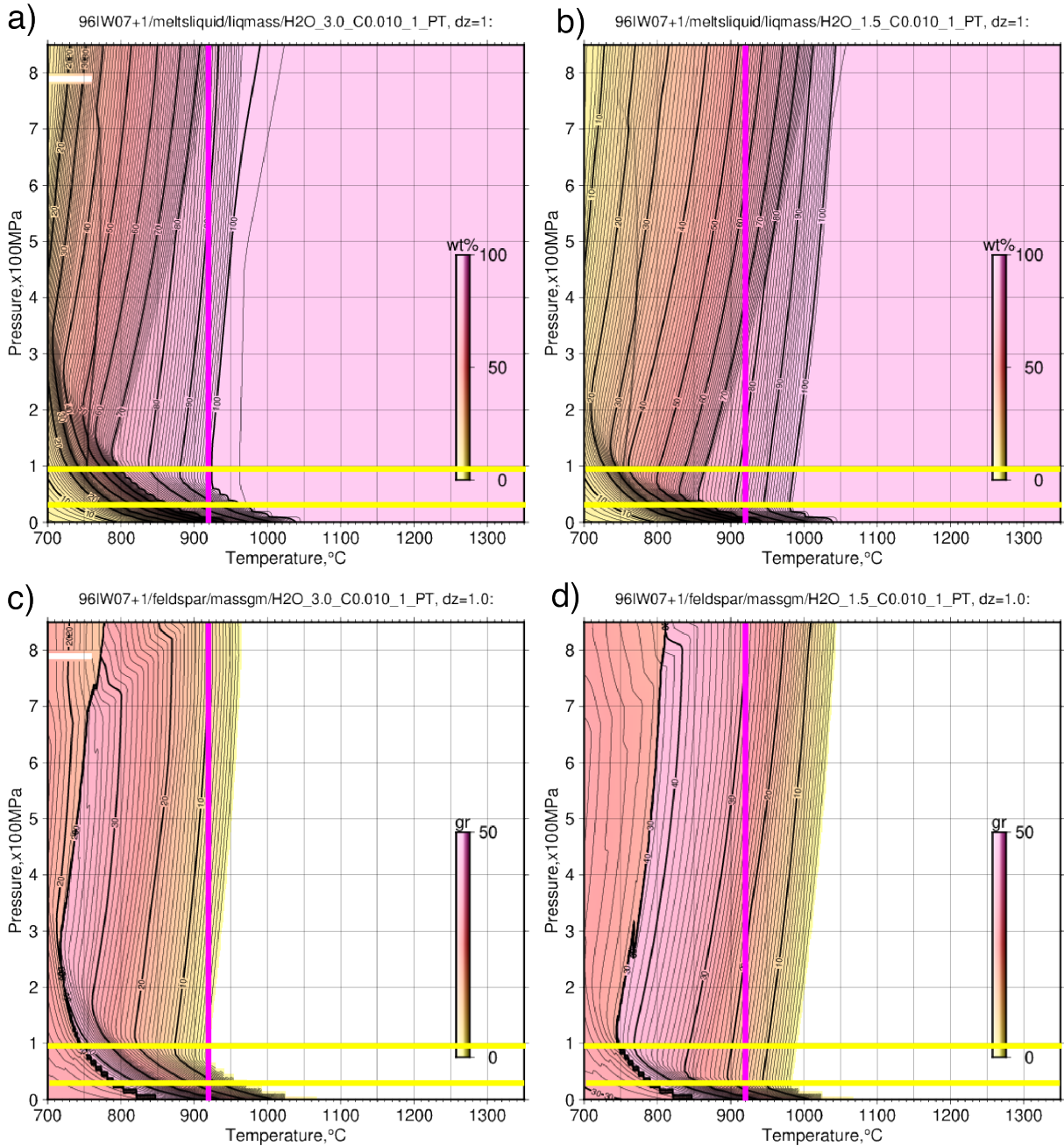


図 2.1-7 a) 小アビ山火砕流軽石を形成した流紋岩マグマに 3 wt%の H_2O と 0.01wt%の CO_2 を加えた際のメルト量の温度圧力依存性. b) 同マグマに 1.5 wt%の H_2O と 0.01wt.%の CO_2 を加えた際のメルト量の温度圧力依存性. c) 同マグマに 3 wt.%の H_2O と 0.01wt.%の CO_2 を加えた際の斜長石斑晶量の温度圧力依存性. d) 同マグマに 1.5 wt.%の H_2O と 0.01wt.%の CO_2 を加えた際の斜長石斑晶量の温度圧力依存性. ピンク色の縦線は輝石温度計から推定されたマグマ温度 (919°C) を示す. 黄色の横線は小アビ山降下軽石および火砕流軽石に含まれる流紋岩メルト包有物の H_2O および CO_2 濃度から推定されたマグマ圧力の最小値 (30MPa) と最大値 (94MPa) を示す.

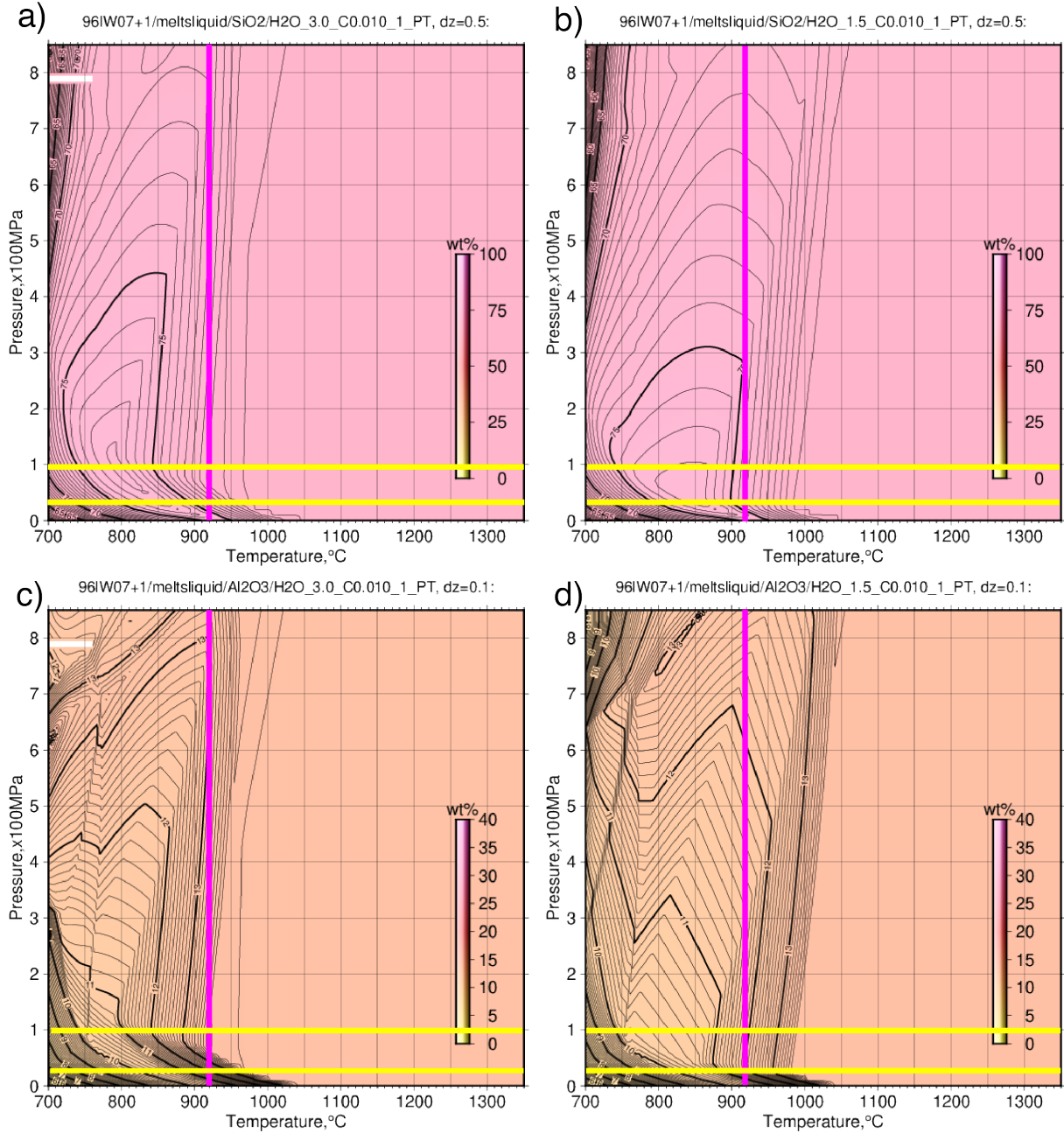


図 2.1-8 a) 小アビ山火砕流軽石を形成した流紋岩マグマに 3 wt%の H_2O と 0.01wt%の CO_2 を加えた際のメルトの SiO_2 濃度の温度圧力依存性. b) 同マグマに 1.5 wt%の H_2O と 0.01wt%の CO_2 を加えた際のメルトの SiO_2 濃度の温度圧力依存性. c) 同マグマに 3 wt%の H_2O と 0.01wt%の CO_2 を加えた際のメルトの Al_2O_3 濃度の温度圧力依存性. d) 同マグマに 1.5 wt%の H_2O と 0.01wt%の CO_2 を加えた際のメルトの Al_2O_3 濃度の温度圧力依存性. ピンク色の縦線は輝石温度計から推定されたマグマ温度 (919°C) を示す. 黄色の横線は小アビ山降下軽石および火砕流軽石に含まれる流紋岩メルト包有物の H_2O および CO_2 濃度から推定されたマグマ圧力の最小値 (30MPa) と最大値 (94MPa) を示す.

表 2.1-3 小瀬田火砕流軽石に含まれるメルト包有物の化学組成 (wt%) とその H₂O および CO₂ 濃度から見積もられたガス飽和圧力. 上段は令和 2 年度, 下段は今年度の成果. ホストの石英の化学分析より得られた温度も示す.

試料番号	gn_041101M1	gn_041101M1	gn_041101M1	gn_041101M1	gn_041101M1	gn_041101M1	gn_041101M1	gn_041101M1
メルト包有物番号	mt07030602-a4-ph1-mil	mt07030602-a4-ph2-mil	mt07030602-a4-ph4-mil	mt07030602-a4-ph6-mil	mt07030602-a4-ph9-mil	mt07030602-a4-ph10-mil	mt20100717-p1i1 ^d	mt20100717-p2i1 ^d
メルト包有物の大きさ (mm, 最大)	0.18	0.09	0.11	0.1	0.16	0.12	0.04	0.09
ホスト鉱物	石英	石英	石英	石英	石英	石英	石英	石英
ホスト鉱物の化学組成 ^a	0.031±0.004	0.017±0.006	0.035±0.004	0.038±0.003	0.030±0.003	0.035±0.002	na	na
SiO ₂	76.21	75.88	75.29	75.91	75.88	75.46	77.50	75.37
TiO ₂	0.23	0.19	0.21	0.22	0.25	0.23	0.21	0.27
Al ₂ O ₃	11.17	11.30	11.23	11.18	11.22	11.37	11.58	11.41
FeO*	0.96	0.84	0.93	0.99	0.98	1.02	0.81	0.86
MnO	0.03	0.01	0.07	0.07	0.03	0.06	0.00	0.00
MgO	0.20	0.17	0.19	0.21	0.18	0.20	0.18	0.24
CaO	1.09	0.91	1.04	1.03	1.10	1.05	0.95	0.94
Na ₂ O	2.32	2.53	2.63	2.53	2.69	2.45	3.92	3.49
K ₂ O	2.94	2.97	2.91	2.92	2.90	2.95	3.26	3.11
P ₂ O ₅	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.03
S	0.009	0.006	0.008	0.008	0.007	0.005	0.000	0.000
Cl	0.092	0.101	0.103	0.102	0.094	0.092	0.131	0.119
H ₂ O	4.2	4.1	4.4	4.8	5.1	5.5	5.2	5.4
CO ₂	0.006	0.008	0.010	0.011	0.005	0.005	0.022	0.018
Total	99.40	99.03	98.96	99.91	100.42	100.34	103.80	101.21
マagma温度 (°C) ^b	829/905	746/811	843/922	855/936	846/925	817/892	-	-
ガス飽和圧力 (MPa) ^c	118/129	118/133	134/147	153/166	162/174	180/193	195/211	195/210
試料番号	gn_041101M1	gn_041101M1	gn_041101M1	gn_041101M1	gn_041101M1	gn_041101M1		
メルト包有物番号	mts20100804-II-p1i1 ^d	mts20100804-II-p2i1 ^d	mts20100804-II-p3i1 ^d	mts20100804-II-p4i1 ^d	mts20100804-II-p5i1 ^d	mts20100804-II-p6i1 ^d		
メルト包有物の大きさ (mm, 最大)	0.08	0.05	0.12	0.07	0.04	0.04		
ホスト鉱物	石英	石英	石英	石英	石英	石英		
ホスト鉱物の化学組成 ^a	na	na	na	na	na	na		
SiO ₂	70.97	71.80	71.29	70.87	70.30	70.92		
TiO ₂	0.22	0.11	0.12	0.19	0.13	0.22		
Al ₂ O ₃	10.36	10.82	10.29	10.27	10.43	10.42		
FeO*	0.95	0.93	0.91	0.93	0.98	0.99		
MnO	0.00	0.01	0.00	0.00	0.06	0.03		
MgO	0.18	0.14	0.15	0.17	0.10	0.12		
CaO	1.04	0.92	0.82	1.02	0.94	0.96		
Na ₂ O	2.75	3.16	3.12	3.18	3.00	3.12		
K ₂ O	2.85	2.89	2.92	2.84	2.89	2.88		
P ₂ O ₅	0.00	0.00	0.00	0.00	0.02	0.00		
S	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000		
Cl	0.083	0.113	0.108	0.105	0.091	0.091		
H ₂ O	6.0	6.6	6.7	6.9	6.8	7.2		
CO ₂	0.028	0.073	0.006	0.026	0.010	0.005		
Total	95.39	97.50	96.40	96.48	95.75	96.95		
マagma温度 (°C) ^b	-	-	-	-	-	-		
ガス飽和圧力 (MPa) ^c	239/256	330/353	242/256	282/298	257/271	268/282		
FeO* = total FeO, na = not analyzed								
^a 石英のTiO ₂ 濃度測定値 (wt%) の平均値 (3点) と標準偏差を示す.								
^b ホストの石英にチタン石英地質温度計 (Wark and Watson, 2006) を適用して得られたマagma温度を示す. a/b; aはチタン活動度を1, bはチタン活動度を0.6に仮定して得られた値.								
^c Newman and Lowenstern (2002) で提案されているケイ酸塩メルトへのH ₂ OおよびCO ₂ 溶解度モデルに適用してガス飽和圧力を計算した. マagma温度は上記のチタン石英地質温度計で得られた温度の平均値 (a/b; aはチタン活動度1の場合の824°C, bはチタン活動度0.6の場合の900°C) を用いた.								
^d 主成分元素, S, Cl濃度は, 予備分析による暫定値.								

小瀬田火砕流を引き起こしたマグマの圧力条件を明らかにするため、メルト包有物分析で得られたメルトの H_2O および CO_2 濃度と各揮発性成分のメルトへの溶解度の圧力依存性からマグマのガス飽和圧力を見積もった。マグマの温度として、令和 2 年度に得られたチタン石英温度計による見積もり（チタン活動度 1 を仮定して得られた $824 \pm 29^\circ\text{C}$ 、チタン活動度 0.6 を仮定して得られた $900 \pm 33^\circ\text{C}$ ）を計算に用いた。令和 2-3 年度に得られたメルト包有物 14 個の H_2O および CO_2 濃度を Newman and Lowenstern (2002) で提案されているケイ酸塩メルトへの H_2O および CO_2 溶解度モデルに適用して、ガス飽和圧力を計算した（表 2.1-3）。その結果、小瀬田火砕流を生じたマグマは、マグマ温度 900°C を仮定した場合 $220 \pm 68\text{MPa}$ ($129 \sim 353\text{MPa}$)、マグマ温度 824°C を仮定した場合 $205 \pm 66\text{MPa}$ ($118 \sim 330\text{MPa}$) の圧力下にあったと推定できる。地殻密度を 2500kg/m^3 と仮定すると、小瀬田火砕流を引き起こしたマグマ溜まりの深さは $9 \pm 3\text{km}$ と算出できる（マグマ温度 900°C の場合；図 2.1-6）。

鬼界葛原噴火（9.5 万年前）は、鬼界カルデラにおいて、鬼界アカホヤ噴火の前のカルデラ噴火で、テフラの見かけ体積は 150km^3 以上である（町田・新井，2003）。鬼界葛原噴火で形成された長瀬火砕流堆積物から採取した軽石（以後、「長瀬火砕流軽石」と呼ぶ）の全岩化学組成は流紋岩である（産業技術総合研究所，2017）。この組成を鬼界アカホヤ噴火の流紋岩マグマの全岩化学組成と比較した結果、両者はわずかに異なる組成であることが明らかになった（産業技術総合研究所，2017）。そこで、鬼界葛原噴火マグマ溜まりの化学的特徴と圧力条件を把握するため、令和元年度～2 年度に、長瀬火砕流堆積物の軽石内のメルト包有物 19 個の化学分析を行った（産業技術総合研究所，2019，2020）。今年度は、さらに、長瀬火砕流軽石内のメルト包有物 4 個について、主成分元素、S、Cl、 H_2O および CO_2 濃度を測定した（表 2.1-4）。今年度に分析した長瀬火砕流軽石のメルト包有物 4 個は、大きさ $0.08 \sim 0.18\text{mm}$ で、石英に含まれている

（表 2.1-4）。今年度までに分析した長瀬火砕流軽石のメルト包有物 23 個の化学組成は、鬼界アカホヤ噴火噴出物に含まれる流紋岩メルト包有物よりも高い SiO_2 濃度（78-81 wt%）および K_2O 濃度（3.1-3.7 wt%）、低い Al_2O_3 濃度（11-12 wt%）を持つ（表 2.1-4，図 2.1-4）。また、長瀬火砕流軽石のメルト包有物の H_2O および CO_2 濃度（3.1-6.3 wt% および $0.002 \sim 0.034\text{wt}\%$ ）は、鬼界アカホヤ噴火流紋岩メルト包有物が示す濃度に比べ、1 個を除き、やや CO_2 濃度が低い傾向を示している（図 2.1-5）。鬼界アカホヤ噴火（7.3 千年前）と鬼界葛原噴火（9.5 万年前）のメルト包有物の化学的特徴が異なることは、鬼界葛原噴火流紋岩の全岩化学組成が鬼界アカホヤ噴火流紋岩とわずかに異なることと整合的である。従って、鬼界アカホヤ噴火の流紋岩マグマは鬼界葛原噴火の流紋岩マグマと同一では無く、9.5 万年前以降にマグマ供給系に何らかの変化があったと考えられる。

鬼界葛原噴火を引き起こした流紋岩マグマの圧力条件を明らかにするため、メルト包有物分析で得られたメルトの H_2O および CO_2 濃度と各揮発性成分のメルトへの溶解度の圧力依存性からマグマのガス飽和圧力を見積もった。鬼界葛原噴火の流紋岩マグマの温度として、令和 2 年度の本研究で得られたチタン石英温度計による見積もり（チタン活動度 1 を仮定して得られた $815 \pm 13^\circ\text{C}$ 、チタン活動度 0.6 を仮定して得られた $890 \pm 15^\circ\text{C}$ ）を計算に用いた。令和元年度～3 年度に本研究で得られたメルト包有物 23 個の H_2O および CO_2 濃度を Newman and Lowenstern (2002) で提案されているケイ酸塩メルトへの H_2O および CO_2 溶解度モデルに適用して、ガス飽

和圧力を計算した（表 2.1-4）。その結果、鬼界葛原噴火の流紋岩マグマは、マグマ温度 890°Cを仮定した場合 161±46MPa (81-257MPa)、マグマ温度 815°Cを仮定した場合 148±45MPa (73-241MPa)の圧力下にあったと推定される。地殻密度 2500kg/m³と仮定すると、鬼界葛原噴火マグマ溜まりの深さは 6±2km と算出できる（マグマ温度 890°Cの場合；図 2.1-6）。

以上の結果と先行研究（平成 25-30 年度原子力施設等防災対策等委託費（火山影響評価に係る技術的知見の整備））による結果から、薩摩硫黄島火山のカルデラ形成期のマグマ溜まりの深さの時間変化をまとめると、カルデラ形成期初期（58 万年前の小瀬田火砕流噴火）のマグマ溜まりの深さは 9±3km, 14 万年前（小アビ山火砕流噴火）は 2±1km 以上, 9.5 万年前（鬼界葛原噴火）は 6±2km, 7.3 千年前（鬼界アカホヤ噴火）は 5±2km, とする（図 2.1-6）。メルト包有物捕獲後の揮発性成分の散逸が考えられる小アビ山火砕流噴火の結果を除くと、近年の 2 回のカルデラ噴火（9.5 万年前, 7.3 千年前）のマグマ溜まりの深さはカルデラ形成期初期に比べてやや浅くなっている傾向が見られる。

5) 硫黄島長浜溶岩および小アビ山火砕流堆積物の年代測定

薩摩硫黄島火山には、噴火年代が確定していない溶岩や火砕流堆積物があり、同火山の長期的なマグマ供給系の発達史や大規模噴火の前駆現象を明らかにするためにはこれらの年代を確定する必要がある。特に、薩摩硫黄島にある長浜溶岩の噴火年代については、小野・他（1982）では先カルデラ火山期と考えられている一方、小林（2008）では鬼界アカホヤ噴火直前と推定している。また、小アビ山火砕流堆積物については、小野・他（1982）はカルデラ形成期内、町田・新井（2003）は 14 万年前としているが、Maeno et al.(2007)は鬼界アカホヤ噴火時の堆積物と考えている。そこで、長浜溶岩 3 試料、小アビ山火砕流軽石 3 試料について、産総研で開発した K-Ar 年代測定（感度法）を用いて、年代測定を試みた（表 2.1-5）。試料を粉碎した後、0.25-0.5mm サイズの粒子について、磁性分離・重液分離・ハンドピックを行い、年代測定に必要な石基を取り出した。令和 2 年度には、予察的に、長浜溶岩の K-Ar 年代測定を実施し、80±50ka の年代を得ている。この年代値については、今年度、測定結果の再検討を行い、70±40ka に修正した。さらに、長浜溶岩 3 試料について合計 7 回の追加測定を行ったが、全てマイナス年代となった。また、小アビ山火砕流軽石 3 試料についても 4 回の K-Ar 年代測定を実施したが、全てマイナス年代となった。従って、長浜溶岩については、比較的若い噴火年代（70±40ka）である可能性はあるが、測定結果の再現性が無く、確定するには到っていない。また、小アビ山火砕流の噴火年代も確定することはできなかった。上記以外に、先カルデラ火山期の噴出物と考えられている赤崎溶岩 1 試料や矢筈山溶岩 2 試料についても同様の K-Ar 年代測定を実施したが、これらもマイナス年代しか得られなかった。上記のマイナス年代は試料の変質によって生じていると考え、変質部分の除去のため、測定前に試料の酸洗浄や予備加熱温度の上昇を行なってみたが、効果は無かった。マイナス年代になる原因については、現時点で不明である。

表 2.1-4 長瀬火砕流堆積物の軽石に含まれるメルト含有物の化学組成 (wt%) とその H₂O および CO₂ 濃度から見積もられたガス飽和圧力. 上段と中段は令和 2 年度, 下段は今年度の成果. ホストの石英・斜長石・斜方輝石の化学分析より得られた温度も示す.

試料番号	94IW40	94IW40	94IW40	94IW40	94IW40	94IW40	94IW40	06IW35-1	06IW35-1	06IW35-1
メルト含有物番号	mt07030602-a2-ph1-m1	mt07030602-a2-ph2-m1	mt07030602-a2-ph3-m1	mt07030602-a2-ph4-m1	mt07030602-a2-ph5-m1	mt07030602-a2-ph6-m1	mt07030602-a2-ph6-m12	mts120705061Ip1-il ^d	mts120705061Ip5-il ^d	mts120705061Ip6-il ^d
メルト含有物の大きさ (mm, 最大)	0.06	0.04	0.08	0.21	0.05	0.11	0.15	0.15	0.08	0.06
ホスト鉱物種	石英	石英	石英	石英	石英	石英	石英	石英	石英	石英
ホスト鉱物の化学組成 ^a	0.025±0.13	0.030±0.004	0.034±0.002	0.031±0.001	0.030±0.003	0.025±0.007	0.025±0.005	0.029±0.001	0.030±0.003	0.028±0.002
SiO ₂	75.83	77.54	76.87	77.04	76.40	77.71	75.86	78.31	77.82	78.25
TiO ₂	0.18	0.20	0.21	0.25	0.16	0.19	0.23	0.20	0.18	0.22
Al ₂ O ₃	11.06	11.21	11.14	11.01	10.99	11.10	11.14	10.82	11.37	11.24
FeO ^e	0.95	0.90	0.88	0.90	0.90	0.89	0.95	0.82	0.90	0.90
MnO	0.08	0.09	0.07	0.01	0.06	0.06	0.04	0.04	0.03	0.04
MgO	0.15	0.16	0.17	0.20	0.16	0.14	0.18	0.17	0.15	0.14
CaO	0.84	0.87	0.95	0.97	0.96	0.75	0.97	0.97	0.89	0.87
Na ₂ O	3.13	2.44	2.42	2.59	2.44	2.63	2.87	3.24	3.56	3.64
K ₂ O	3.29	3.32	3.30	3.23	3.24	3.34	3.25	3.37	3.40	3.38
P ₂ O ₅	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00
S	0.010	0.006	0.007	0.007	0.004	0.008	0.010	0.010	0.005	0.009
Cl	0.123	0.128	0.118	0.117	0.118	0.138	0.126	0.137	0.120	0.127
H ₂ O	5.9	4.9	5.3	4.6	4.9	4.7	4.7	5.6	4.9	3.1
CO ₂	0.012	0.004	0.002	0.008	0.003	0.009	0.008	0.004	0.007	0.007
Total	101.53	101.79	101.40	100.93	100.29	101.69	100.35	103.65	103.39	101.88
マグマ温度 (°C) ^b	789/861	821/896	839/917	829/906	818/893	798/870	797/869	818/893	824/900	812/886
ガス飽和圧力 (MPa) ^c	210/223	150/163	163/176	140/153	146/158	149/161	146/158	183/196	155/168	73/81
試料番号	06IW35-1	06IW35-1	06IW35-2	06IW35-2	06IW35-1	06IW37-1	06IW37-1	06IW35-1	06IW37-1	
メルト含有物番号	mts120705061Ip6i2 ^d	mts120705061Ip6i3 ^d	mt20100728-p1i1 ^e	mt20100728-p1i2 ^e	mts120705061Ip3i1 ^d	mts12070506-III-p2i1	mts12070506-III-p2i1	mts12070506-III-p4i1	mts12070506-III-p1i1	
メルト含有物の大きさ (mm, 最大)	0.06	0.04	0.22	0.07	0.1	0.07	0.05	0.04	0.05	
ホスト鉱物	石英	石英	石英	石英	斜長石	斜長石	斜長石	斜方輝石	斜方輝石	
ホスト鉱物の化学組成 ^a	0.027±0.001	0.025±0.004	na	na	An42	An46	An47	Wo2En64Fs34	Wo2En65Fs33	
SiO ₂	77.71	77.23	71.86	71.74	76.61	76.21	76.75	79.94	77.30	
TiO ₂	0.17	0.19	0.12	0.16	0.26	0.25	0.22	0.20	0.16	
Al ₂ O ₃	11.23	11.32	10.35	10.66	11.61	11.67	11.41	11.18	11.21	
FeO ^e	0.89	0.85	0.92	0.79	0.91	1.09	1.07	1.53	1.43	
MnO	0.06	0.03	0.00	0.00	0.03	0.06	0.05	0.09	0.07	
MgO	0.16	0.15	0.01	0.09	0.13	0.19	0.17	0.16	0.19	
CaO	0.92	0.85	0.76	0.61	1.06	1.15	1.06	0.87	0.86	
Na ₂ O	3.66	3.45	2.86	3.38	3.44	3.63	3.53	1.13	3.01	
K ₂ O	3.38	3.40	3.35	3.36	3.53	3.51	3.47	3.04	3.60	
P ₂ O ₅	0.02	0.03	0.01	0.00	0.03	0.01	0.04	0.01	0.03	
S	0.006	0.003	0.000	0.000	0.002	0.003	0.007	0.009	0.008	
Cl	0.132	0.128	0.140	0.147	0.126	0.159	0.144	0.149	0.133	
H ₂ O	3.6	3.9	4.5	4.5	3.4	4.4	3.9	3.9	3.8	
CO ₂	0.007	0.007	0.034	0.030	0.007	0.007	0.008	0.007	0.033	
Total	101.90	101.53	94.88	95.43	101.13	102.40	101.88	102.22	101.84	
マグマ温度 (°C) ^b	810/884	799/872	na	na	803	818	821	896	891	
ガス飽和圧力 (MPa) ^c	92/103	107/118	173/189	167/183	85/95	131/143	111/122	107/118	142/157	
試料番号	06IW35-2	06IW35-2	06IW35-2	06IW35-2						
メルト含有物番号	mt20100728-p2i1 ^e	mt20100728-p3i1 ^e	mt20100728-p4i1 ^e	mt20100728-p5i1 ^e						
メルト含有物の大きさ (mm, 最大)	0.14	0.18	0.12	0.08						
ホスト鉱物	石英	石英	石英	石英						
ホスト鉱物の化学組成 ^a	na	na	na	na						
SiO ₂	72.97	72.08	71.51	71.39						
TiO ₂	0.15	0.26	0.15	0.16						
Al ₂ O ₃	10.57	10.83	10.60	10.54						
FeO ^e	0.87	1.05	0.82	0.89						
MnO	0.05	0.00	0.09	0.00						
MgO	0.22	0.18	0.24	0.10						
CaO	0.66	0.89	0.80	0.70						
Na ₂ O	2.77	3.60	3.18	2.90						
K ₂ O	3.37	3.43	3.40	3.35						
P ₂ O ₅	0.00	0.02	0.00	0.03						
S	0.000	0.000	0.000	0.000						
Cl	0.143	0.133	0.139	0.130						
H ₂ O	5.2	4.2	5.8	6.3						
CO ₂	0.021	0.004	0.034	0.019						
Total	96.94	96.69	96.79	96.49						
マグマ温度 (°C) ^b	na	na	na	na						
ガス飽和圧力 (MPa) ^c	188/203	117/128	240/257	241/257						
FeO ^e = total FeO, na = not analyzed										
^a 石英についてはTiO ₂ 濃度測定値 (wt%) の平均値 (3点) と標準偏差, 斜長石はAnモル濃度 (=Ca/(Ca+Na)), 斜方輝石はWollastonite, Enstatite, Ferrosilite成分のモル比を示す.										
^b 石英内メルト含有物については, ホストの石英にチタン石英地質温度計 (Wark and Watson, 2006) を適用して得られたマグマ温度を示す. a/b: aはチタン活動度を1, bはチタン活動度を0.6に仮定して得られた値. 斜長石および斜方輝石内メルト含有物については, 各ホストとメルト含有物の化学組成に斜長石-メルト地質温度計, 斜方輝石-メルト地質温度計 (共にPutirka, 2008) を適用して得られた温度を示す. 圧力は150MPaを仮定した.										
^c Newman and Lowenstern (2002) で提案されているケイ酸塩メルトへのH ₂ OおよびCO ₂ 溶解度モデルに適用してガス飽和圧力を計算した. マグマ温度は上記のチタン石英地質温度計で得られた温度の平均値 (a/b: aはチタン活動度1の場合の815°C, bはチタン活動度0.6の場合の890°C) を用いた.										
^d H ₂ O濃度は顕微赤外分光計の反射測定による測定値.										
^e 主成分元素、S、Cl濃度は、予備分析による暫定値.										

表 2.1-5 長浜溶岩と小アピ山火砕流軽石の K-Ar 年代測定結果.

試料	試料番号	K-Ar年代測定結果										噴火年代 (本研究)		噴火年代 (既往研究)	
		測定番号	試料量 (g)	K ₂ O (wt%)	⁴⁰ Ar (V)	³⁶ Ar (x10 ⁻⁹ cc/g)	³⁸ Ar/ ³⁶ Ar	± 1σ	⁴⁰ Ar/ ³⁶ Ar	± 1σ	⁴⁰ Ar/ ³⁶ Ar (initial)	± 1σ	(ka)	± 1σ	
長浜溶岩	93IW01b	IW01b-1	0.1687	2.81	5.49	5.37	0.1848	0.0002	290.2	0.3	289.0	0.6	70	40	先カルデラ火山期 (580-700ka; 小野・他, 1982; 町田・新井, 2003), 鬼界アカホヤ噴火直前 (7.3ka; 小林, 2008)
	93IW01b	IW01b-2	0.0786	2.81	2.53	5.43	0.1863	0.0003	289.8	0.3	293.6	0.8	-230	50	
	93IW01b	IW01b-3	0.0617	2.81	2.09	5.72	0.1855	0.0003	290.8	0.3	290.9	0.9	-10	60	
長浜溶岩	94IW01a	IW01a-1	0.1517	2.79	3.44	3.68	0.1861	0.0002	292.4	0.3	293.0	0.7	-20	30	
	94IW01a	IW01a-2	0.0972	2.79	2.08	3.60	0.1874	0.0003	292.2	0.3	297.0	1.0	-190	40	
	94IW01a	IW01a-3	0.0947	2.79	2.06	3.65	0.1871	0.0003	291.8	0.3	296.2	0.9	-180	40	
長浜溶岩	94IW02	IW02-1	0.1537	2.82	6.61	6.88	0.1858	0.0002	291.6	0.2	292.1	0.8	-40	60	
	94IW02	IW02-2	0.0697	2.82	3.25	7.83	0.1861	0.0003	291.9	0.3	293.1	0.9	-100	80	
小アピ山火砕流軽石	96IW07	IW07-2	0.0098	2.70	2.93	49.83	0.1875	0.0003	296.6	0.3	297.4	0.8	-470	510	カルデラ形成期 (140ka; 町田・新井, 2003), 鬼界アカホヤ噴火時 (7.3ka; Maeno et al., 2007)
	96IW07	IW07-3	0.0141	2.70	4.20	49.34	0.1873	0.0003	296.5	0.3	296.8	0.9	-200	520	
小アピ山火砕流軽石	96IW07-2	IW07-2-1	0.0100	2.55	1.41	23.21	0.1884	0.0003	298.5	0.6	300.1	0.9	-440	300	
小アピ山火砕流軽石	06IW20-1	IW20-1-1	0.0098	2.30	0.76	12.89	0.1887	0.0004	297.5	1.8	301.3	1.2	-610	350	

(6) 鬼界カルデラマグマ溜まりのマグマ滞留時間推定のための予察分析

鬼界カルデラのマグマだまりのマグマ滞留時間の推定が可能であるか検討するため、予察的に、鬼界アカホヤ噴火による降下軽石及び火砕流堆積物、および、鬼界葛原噴火によって噴出した火砕流堆積物に含まれる輝石斑晶内の組織について、反射電子像を用いて観察した。また、鬼界葛原噴火によって噴出した石英斑晶内の組織について、カソードルミネッセンス像を用いて観察した。鬼界アカホヤ噴火による降下軽石及び火砕流堆積物の単斜輝石と斜方輝石には、リムに正壘帯構造があるとともに、その内部にもわずかにしま状またはパッチ状の壘帯構造を示すものがある (図 2.1-9)。ただし、その壘帯構造の Mg# の変動幅は 2-4 程度であり、非常に小さい。また、鬼界葛原噴火の輝石斑晶にも内部にわずかに組成変動 (Mg# の変動幅は 4 程度) がみられるものがある (図 2.1-10)。また、鬼界葛原噴火の石英斑晶は明瞭な壘帯構造を持っていることを確認した (図 2.1-10)。マグマ滞留時間を推定するには、今後、このような壘帯構造を示す輝石および石英について、面分析や線分析を実施し、微小領域での化学組成分布を明らかにする必要がある。

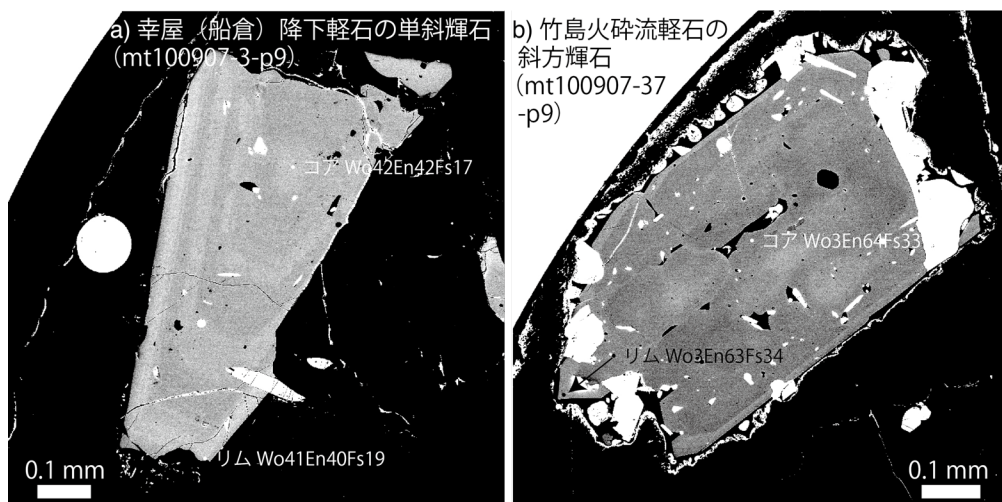


図 2.1-9 鬼界アカホヤ噴火軽石に含まれる鉱物の累帯構造。コアとリムの化学組成も示す。a) 幸屋 (船倉) 降下軽石に含まれる単斜輝石の反射電子像。b) 竹島火砕流軽石に含まれる斜方輝石の反射電子像。

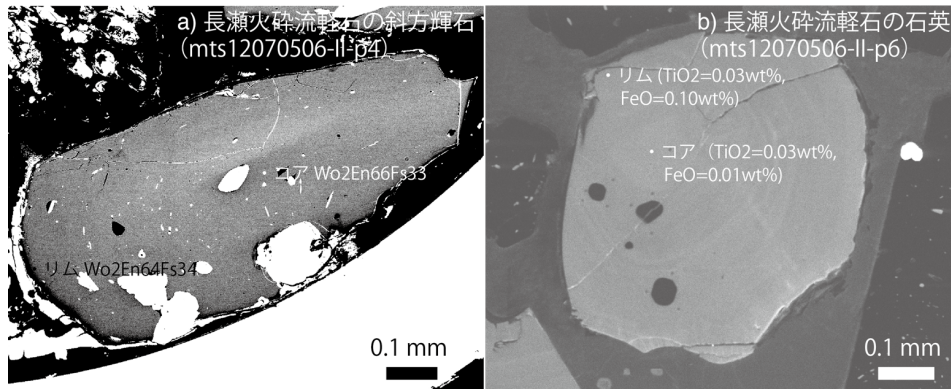


図 2.1-10 鬼界葛原噴火軽石に含まれる鉱物の累帯構造。コアとリムの化学組成も示す。a) 長瀬火砕流軽石に含まれる斜方輝石の反射電子像。b) 長瀬火砕流軽石に含まれる石英のカソードルミネッセンス像。

(7) まとめと今後の課題

鬼界カルデラのマグマ供給系の長期的な発達過程を検討するため、小アビ山火砕流（14 万年前）、カルデラ形成初期初期の大規模噴火と考えられる小瀬田火砕流（58 万年前）、および、鬼界葛原（とづらはら）噴火（9.5 万年前）について、噴出物の岩石学的解析およびメルト包有物分析を行い、以下の知見が得られた。

- ・小アビ山火砕流堆積物内の軽石とその直下にある降下火砕物層に含まれる軽石は流紋岩であり、両者の主成分化学組成に差が無いことから、同じマグマだまりから噴出したと考えられる。また、これらの噴火を引き起こしたマグマの温度が $919 \pm 8^\circ\text{C}$ であること、メルト包有物の H_2O および CO_2 濃度が 0.3-3.5wt%，0.019wt%以下であることを明らかにした。メルト包有物 6 個の H_2O および CO_2 濃度を用いてマグマのガス飽和圧力を見積もったところ、マグマ温度 919°C を仮定した場合 $58 \pm 26\text{MPa}$ (30~94MPa)の圧力となった。地殻密度を $2500\text{kg}/\text{m}^3$ と仮定すると、この圧力は深さ $2 \pm 1\text{km}$ に相当する。ただし、今回測定したメルト包有物は捕獲後に揮発性成分が散逸している可能性があり、この場合、上記の圧力（深さ）は過小に見積もっていることになる。同マグマの圧力条件を正確に見積もるには、捕獲後の変質が少ないと考えられるメルト包有物を選定し、追加分析する必要がある。
- ・小アビ山火砕流軽石の全岩化学組成データを用いて同流紋岩マグマの熱力学解析を行ない、観測されたマグマの温度・圧力・含水量・メルト量・斑晶量・メルト化学組成と比較した結果、 H_2O 濃度 3 wt%の場合の熱力学計算結果は観測値とおおよそ一致した。一方、 H_2O 濃度 1.5wt%の場合は一貫せず、1.5 wt%以下の H_2O 濃度を持つメルト包有物は、マグマだまりのメルトの H_2O 濃度を保持していない可能性が高い。その原因として、メルト包有物捕獲後の H_2O の散逸が考えられる。

- ・カルデラ形成期初期（58 万年前）の小瀬田火砕流を引き起こしたマグマの圧力条件を確定するため、小瀬田火砕流軽石内のメルト包有物 6 個の追加分析を実施した。令和 2-3 年度に分析したメルト包有物 14 個の H₂O および CO₂ 濃度は 4.1~7.2 wt% および 0.005~0.073 wt% であった。その結果、小瀬田火砕流を生じたマグマは、マグマ温度 900°C を仮定した場合 220 ± 68MPa (129~353MPa)、マグマ温度 824°C を仮定した場合 205 ± 66MPa (118~330MPa) の圧力下にあったと推定された。地殻密度を 2500kg/m³ と仮定すると、小瀬田火砕流を引き起こしたマグマ溜まりの深さは 9 ± 3km と算出できる。
- ・鬼界葛原噴火（9.5 万年前）を引き起こした流紋岩マグマの圧力条件を確定するため、長瀬火砕流軽石内のメルト包有物 4 個の追加分析を実施した。その結果、令和元年度から 3 年度までに分析した長瀬火砕流軽石のメルト包有物 23 個の H₂O および CO₂ 濃度は 3.1~6.3 wt% および 0.002~0.034 wt% となった。その結果、鬼界葛原噴火の流紋岩マグマは、マグマ温度 890°C を仮定した場合 161 ± 46MPa (81~257MPa)、マグマ温度 815°C を仮定した場合 148 ± 45MPa (73~241MPa) の圧力下にあったと推定された。地殻密度 2500kg/m³ と仮定すると、鬼界葛原噴火マグマ溜まりの深さは 6 ± 2km と算出できる。
- ・本研究成果と先行研究（平成 25-30 年度原子力施設等防災対策等委託費（火山影響評価に係る技術的知見の整備））による結果から、薩摩硫黄島火山のカルデラ形成期のマグマ溜まりの深さは、カルデラ形成期初期（58 万年前の小瀬田火砕流噴火）では 9 ± 3km、14 万年前（小アビ山火砕流噴火）は 2 ± 1km 以上、9.5 万年前（鬼界葛原噴火）は 6 ± 2km、7.3 千年前（鬼界アカホヤ噴火）は 5 ± 2km、であることが明らかとなった。
- ・噴火年代が確定していない長浜溶岩と小アビ山火砕流堆積物について、K-Ar 年代測定を試みた。その結果、長浜溶岩については、比較的若い噴火年代（70 ± 40ka）である可能性はあるが、測定結果の再現性が無く、確定するには到っていない。また、小アビ山火砕流の噴火年代も確定することはできなかった。
- ・鬼界カルデラのマグマだまりのマグマ滞留時間の推定が可能であるか検討するため、予察的に、鬼界アカホヤ噴火による降下軽石及び火砕流堆積物、および、鬼界葛原噴火によって噴出した長瀬火砕流堆積物に含まれる輝石斑晶内の組織について、反射電子像を用いて観察した。また、鬼界葛原噴火によって噴出した石英斑晶内の組織について、カソードルミネッセンス像を用いて観察した。鬼界アカホヤ噴火による降下軽石及び火砕流堆積物の単斜輝石と斜方輝石の内部にわずかにしま状またはパッチ状の壘帯構造を示すものがあつた。また、鬼界葛原噴火の輝石斑晶にも内部にわずかに組成変動が見られるものがある。また、鬼界葛原噴火の石英斑晶は明瞭な壘帯構造を持っていることを確認した。マグマ滞留時間を推定するには、今後、このような壘帯構造を示す輝石および石英について、面分析や線分析を実施し、化学組成分布を明らかにする必要がある。

引用文献

- Asimow, P.D. and Ghiorso, M.S. (1998) Algorithmic Modifications Extending MELTS to Calculate Subsolidus Phase Relations. *Amer. Mineral.*, 83, 1127-1131.
- Ghiorso, M.S. and Gualda G.A.R. (2015) An H₂O-CO₂ mixed fluid saturation model compatible with rhyolite-MELTS. *Contributions to Mineralogy and Petrology* doi:10.1007/s00410-015-1141-8.
- 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. *Journal of Petrology*, 53, 875-890.
- Kawanabe, Y. and Saito, G. (2002) Volcanic activity of the Satsuma-Iwojima area during the past 6500 years. *Earth Planets and Space*, 54, 295-301.
- 小林哲夫 (2008) カルデラの研究からイメージされる新しい火山像—マグマの発生から噴火現象までを制御するマンロー地殻応力場—. *月刊地球*, 号外 No. 60, p65-76.
- Maeno, F. and Taniguchi, H. (2007) Spatiotemporal evolution of a marine caldera-forming eruption, generating a low-aspect ratio pyroclastic flow, 7.3 ka, Kikai caldera, Japan: Implication from near-vent eruptive deposits. *J. Volcanol. Geotherm. Res.*, 167, 212-238.
- 町田洋・新井房夫 (2003) 新編火山灰アトラス—日本列島とその周辺. 東京大学出版会, 東京, 336p.
- Newman, S. and Lowenstern, J. B. (2002) VolatileCalc: a silicate melt-H₂O-CO₂ solution model written in Visual Basic for EXCEL. *Comput. Geosci.*, 28, 597-604.
- 小野晃司・曾屋龍典・細野武男 (1982) 薩摩硫黄島地域の地質. 地域地質研究報告 (5 万分の 1 図幅), 地質調査所, 80p.
- Putirka, K.D. (2008) Thermometers and barometers for volcanic systems, in *Reviews in Mineralogy & Geochemistry*, 69, Minerals, Inclusions and Volcanic processes, edited by K. D. Putirka and F. J. Tepley III, pp. 61-120, Mineralogical Society of America.
- Saito, G., Kazahaya, K., Shinohara, H., Stimac, J. A. and Kawanabe, Y. (2001) Variation of volatile concentration in a magma system of Satsuma-Iwojima volcano deduced from melt inclusion analyses. *J. Volcanol. Geotherm. Res.*, 108, 11-31.
- Saito, G., Stimac, J.A., Kawanabe, Y. and Goff, F. (2002) Mafic-felsic interaction at Satsuma-Iwojima volcano, Japan: Evidence from mafic inclusions in rhyolites. *Earth Planets Space*, 54, 303-325.
- Saito, G., Kazahaya, K. and Shinohara, H. (2003) Volatile evolution of Satsuma-Iwojima volcano: degassing process and mafic-felsic magma interaction. In “Developments In Volcanology 5. Melt Inclusions In Volcanic Systems, Methods, Applications and Problems” B. De Vivo and R. J. Bodnar (eds), pp.129-146, Elsevier.

- Saito, G., Morishita, Y. and Shinohara, H. (2010) Magma plumbing system of the 2000 eruption of Miyakejima volcano, Japan, deduced from volatile and major component contents of olivine - hosted melt inclusions. *J. Geophys. Res.*, 115, B11202, doi:10.1029/2010JB007433.
- Saito, G., Ishizuka, O., Ishizuka, Y., Hoshizumi, H. and Isoji Miyagi (2018) Petrological characteristics and volatile content of magma of the 1979, 1989, and 2014 eruptions of Nakadake, Aso volcano, Japan. *Earth, Planets and Space*, 70:197, <https://doi.org/10.1186/s40623-018-0970-x>.
- 産業技術総合研究所 (2014) 平成 26 年度原子力施設等防災対策等委託費 (火山影響評価に係る技術的知見の整備) 成果報告書.
- 産業技術総合研究所 (2015) 平成 27 年度原子力施設等防災対策等委託費 (火山影響評価に係る技術的知見の整備) 成果報告書.
- 産業技術総合研究所 (2016) 平成 28 年度原子力施設等防災対策等委託費 (火山影響評価に係る技術的知見の整備) 成果報告書.
- 産業技術総合研究所 (2017) 平成 29 年原子力施設等防災対策等委託費 (火山影響評価に係る技術的知見の整備) 成果報告書.
- 産業技術総合研究所 (2018) 平成 30 年度原子力施設等防災対策等委託費 (火山影響評価に係る技術的知見の整備) 成果報告書.
- 産業技術総合研究所 (2019) 平成 31 年度原子力規制庁委託成果報告書 (巨大噴火プロセス等の知見整備に係る研究).
- 産業技術総合研究所 (2020) 令和 2 年度原子力規制庁委託成果報告書 (巨大噴火プロセス等の知見整備に係る研究).
- Wark, D.A. and Watson, E. B. (2006) TitaniQ: a titanium-in-quartz geothermometer. *Contrib. Mineral. Petrol.*, 152:743-754, DOI 10.1007/s00410-006-0132-1.

2.2 始良カルデラ噴出物の岩石学的検討

【実施内容】

約3万年前のカルデラ形成噴火である入戸火砕流噴火に先立つ約3万年間の噴出物、特に流紋岩マグマに含まれる斑晶鉱物およびそれに含まれるガラス包有物の組成を用いて熱力学的平衡条件の検討を行い、始良カルデラの流紋岩マグマ溜まりの温度・圧力・マグマ組成等およびその活動推移に沿った時間変化を解析した。その結果、先カルデラ期およびカルデラ形成期の流紋岩は互いに類似した組成を持つが、ガラス組成はわずかに異なるグループを形成することが明らかになり、噴火ごとにマッシュの溶融とメルトの集積が生じ、先カルデラ期噴火およびカルデラ形成噴火を発生させた可能性が示唆された。石英斑晶の拡散組織から見積もられた最大滞留時間はいずれも数1000年以下であり、先カルデラ期流紋岩マグマとカルデラ形成噴火の流紋岩マグマの間で、結晶化の時間的重複が少なかった可能性、すなわち先カルデラ期からカルデラ形成期噴火にかけて、結晶度の高いクリスタルマッシュ状流紋岩マグマ溜まりの中での短時間のマグマ抽出と結晶化の繰り返しが発生したことが示唆された。

【調査・研究成果】

(1) 顕微ラマン分光分析装置によるガラス含水量の定量

1) 分析手法

顕微ラマン分光装置による火山ガラスの含水量測定条件を玄武岩質から流紋岩質ガラスで検討した。流紋岩質・デイサイト質ガラスについては検量線を決定し、それを用いて始良カルデラ噴出物に含まれる斑晶のガラス包有物の含水量を測定した。

ラマン分光分析には、平成31年度に導入した顕微ラマン分光装置(NRS-5500)を使用した。励起レーザーは波長457nmの青色を用いた。装置の光学条件は対物レンズ倍率100倍、共焦点アパーチャー20 μm 、スリット径25 μm 、グレーティング600本/mmである。測定条件はレーザーパワーを50%減光し(6.3 mW)、波数範囲100~4000 cm^{-1} で信号取得時間30秒を10回積算した。なお、励起波長が532nm(緑)では蛍光妨害によりスペクトルが取得できなかったため、火山ガラスの分析には励起波長457nm(青)のレーザーを使用した。また、レーザー焦点がガラスの表面にある場合は蛍光が発生し、試料表面から深度1~3 μm 程度にある場合は発生しなかったため、測定は試料内部約3 μm で行った。検量線用の試料には、透過FT-IR法で含水量を測定済みの流紋岩質(9試料)、デイサイト質(6試料)、安山岩質(5試料)および玄武岩質(9試料)の合成ガラス(表2.2-1)を測定し、このうち蛍光や結晶化の影響がない良好なスペクトルが得られたものを検量線用標準試料として使用した。

また、ガラス包有物の測定の際の宿主斑晶鉱物やガラス中の微小結晶からのラマン散乱光ピークによる影響を評価するため、桜島大正噴火軽石の斑晶に含まれるガラス包有物を測定するとともに、ラマンスペクトルの高波数領域・低波数領域がガラスと重複影響する

可能性がある代表的な鉱物のラマンスペクトルの収集を行った。分析条件は、励起レーザー波長 457 nm (青色), 対物レンズ倍率 100 倍, 共焦点アパーチャー 20~40 μm , スリット径は, 25 μm ピンホール, 10 \times 1000 μm 矩形もしくは 25 \times 1000 μm 矩形, グレーティングは 600 本/mm ないし 1800 本/mm である。レーザーパワーは 10%まで減光~100% (開放) の条件で行い, 波数範囲は 100~4000 cm^{-1} 回 (グレーティングは 600 本/mm) もしくは, 低波数側 100~1600 cm^{-1} と高波数側 3100~4200 cm^{-1} の 2 回 (同 1800 本/mm), 信号取得時間は 20 秒 2 回積算~50 秒 4 回積算で行った。

得られた流紋岩組成用の検量線を用いて, 後カルデラ期噴出物の新島軽石から分離した約 40 個の斑晶鉱物についてそれぞれ 1~5 個程度のガラス包有物の含水量を測定し, 水に飽和した条件を仮定してその定置圧力を推定した。

表 2.2-1 ラマンスペクトルの評価に用いた合成含水ガラスの化学組成。

サンプル名	SiO ₂ (w %)*	測定手法	H ₂ O (w %)**	ピーク 655~670 cm^{-1}
流紋岩質ガラス				
2-b	72.41	EPM A	0	
3-b	76.84	EPM A	5.3	
4-b	76.82	EPM A	3.7	
5-b	76.98	EPM A	2.8	
6-b	77.00	EPM A	1.7	
7-a	76.33	EPM A	0.1	あり
JR1-3	76.95	EDS	4.22	
JR1-4	76.87	EDS	2.69	
JR1-5	76.94	EDS	5.45	
デイサイト質ガラス				
2-a	71.01	EPM A	0.09	
3-a	71.10	EPM A	3.98	あり
4-a	70.37	EPM A	3.07	あり
5-a	70.81	EPM A	2.92	あり
6-a	70.32	EPM A	1.23	
7-b	70.52	EPM A	0.75	
安山岩質ガラス				
3-a	63.43	EPM A	4.04	あり
4-a	63.82	EPM A	3.23	あり
5-a	63.64	EPM A	2.65	
6-b	63.68	EPM A	2.13	
7-b	64.49	EPM A	1.54	
玄武岩質ガラス				
2a	50.85	EPM A	0.35	
3b	52.60	EPM A	3.81	あり
4a	53.04	EPM A	3.33	あり
5b	52.94	EPM A	2.42	あり
6a	51.20	EPM A	1.4	
7a	51.68	EPM A	0.65	
JB 2-N 2	53.44	EDS	4.85	あり
JB 2-R 1	53.41	EDS	4.19	

*H₂O を除外し 100%ノーマライズした値。

**FT-IR による測定値。

2) 含水量定量法

火山ガラスのスペクトルにはケイ酸塩の構造に由来する低波数領域 (LW : 200~1300 cm^{-1}) と, OH 基や分子水の振動に由来する高波数領域 (HW : 2700~3900 cm^{-1}) が含まれる. 含水量は Di Genova et al. (2017)による検量線法により次のように推定した. 取得したガラスのスペクトルに対し, 励起レーザー振動数と温度に依存する散乱強度補正とベースライン補正を行う (Di Genova et al. 2017). LW のスペクトル形状 (励起バンドと信号強度) は玄武岩・流紋岩といった化学組成別に異なり, また HW の信号強度面積は含水量に比例する. ラマンスペクトルは温度等の環境要因によるわずかな装置条件の変化で信号強度が変動するので絶対値による比較ができない. そのため, 面積比[HW]/[LW]の検量線を作成し, 測定試料の[HW]/[LW]比から含水量を求める. 検量線はガラスの化学組成ごとに作成した.

3) 標準試料のラマン分光分析結果

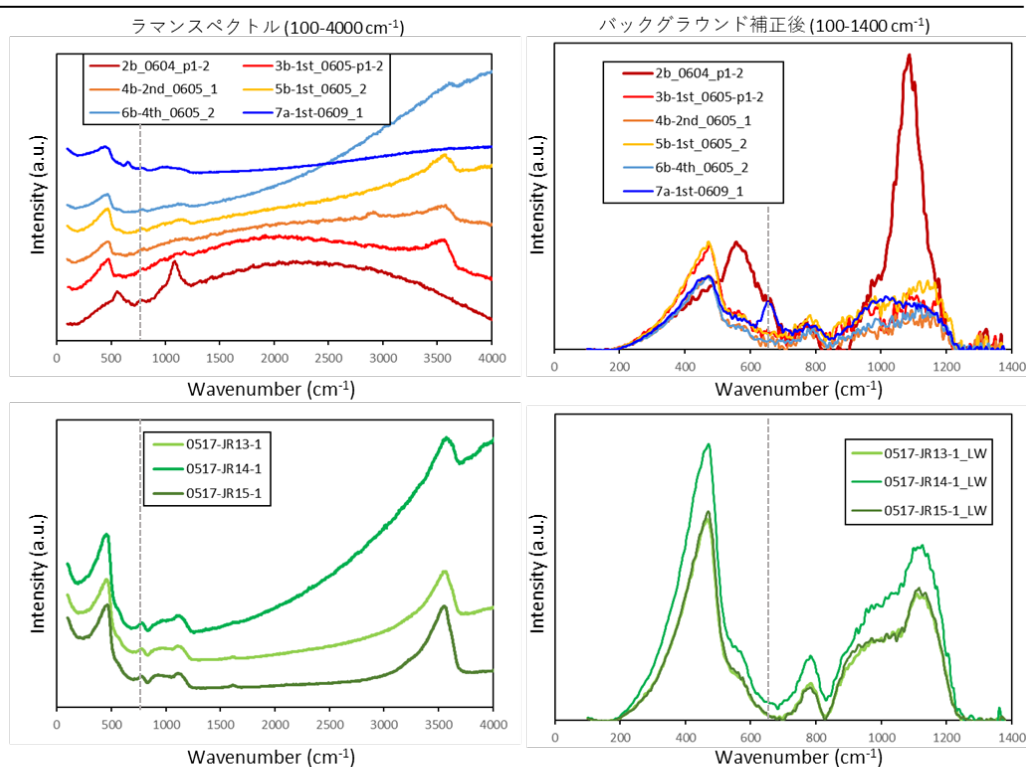
Di Genova et al.(2017)によると, 鉄の含有量が多い含水ガラスは微小結晶の晶出によるラマンスペクトルピークが 690 cm^{-1} 付近に現れ, 結晶のないガラスと異なる LW 形状になる. 検量線作成にあたっては, このようなピークが出現しない試料を使用する必要がある. 準備した含水ガラスには 665~670 cm^{-1} 付近にピークがみられるものがあり (図 1, 2, 表 1), 先行研究の 690 cm^{-1} 付近ピークと同様に微小結晶に該当すると考えられる. 合成含水ガラスのうち流紋岩質で 1 試料, デイサイト質で 3 試料, 安山岩質で 2 試料にラマン分析で 665~670 cm^{-1} のピークが確認され, 玄武岩質の試料では 5 試料に同様のピークが確認された. このピークがあるスペクトルは, ピーク無しに比べて 400~600 cm^{-1} 付近と 900~1200 cm^{-1} 付近のバンドの信号強度低下がみられた. 先行研究と同様に, 微結晶は鉄の含有量が高い苦鉄質ガラスや含水量が比較的高い試料に出現していた. 残りのデイサイト質 1 試料には結晶のスペクトルは見られなかったが, 1000 cm^{-1} 付近のスペクトル形状が他の試料と異なるため検量線試料からは除外した. 微小結晶のピークが見られない理想的なガラスのスペクトルが得られたのは, 流紋岩質 8 試料, デイサイト質 2 試料, 安山岩質 3 試料, 玄武岩質 4 試料であった (図 2.2-1, 2.2-2).

以上の評価に基づき, 流紋岩質とデイサイト質について 665~670 cm^{-1} 付近のピークが出現しなかった 6b, JR13, JR15 (流紋岩質), 6a,7b (デイサイト質) の合成ガラスを用いて検量線を作成した (図 2.2-3). なお, 装置条件の変動による経時変化を補正するため, 検量線は測定日ごとに作成した.

ガラス包有物による測定の検証を桜島大正噴火噴出物と AT 噴出物について行った (図 2.2-4, 2.2-5). その結果, レーザー径 1 μm に対し, ガラス包有物直径が概ね 30 μm より大きい場合はホスト斑晶鉱物のスペクトルの影響がほとんどないスペクトルを得られた. また, ホストが斜長石の場合ガラスの LW ピークとラマンスペクトルが重複して分離が困難なのに対し, 輝石と磁鉄鉱のガラス包有物では比較的重複が避けられることが判明した. ガ

ラス包有物測定時に宿主斑晶鉱物由来のピークがある際は、ピーク強度面積が LW 面積に対して概ね 10%未満の場合、ピークを除去した面積を [LW] として含水量を計算した。概ね 10%より大きい場合は含水量の計算値に影響するため、含水量の計算から除外した。また、ガラス包有物のスペクトルに微小結晶由来の $665\sim 670\text{cm}^{-1}$ 付近のピークが出現した場合(図 2.2-5)、検量線が使用できないため含水量推定の対象から外した。

流紋岩質ガラス (9 試料)



デイサイト質ガラス (6 試料)

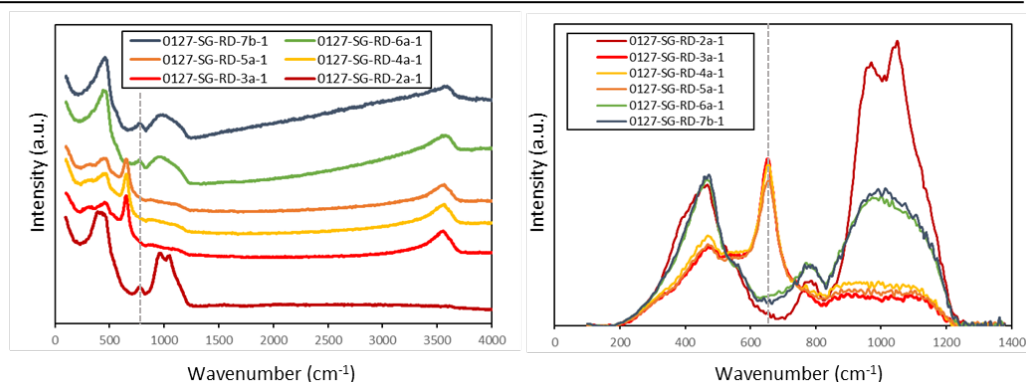
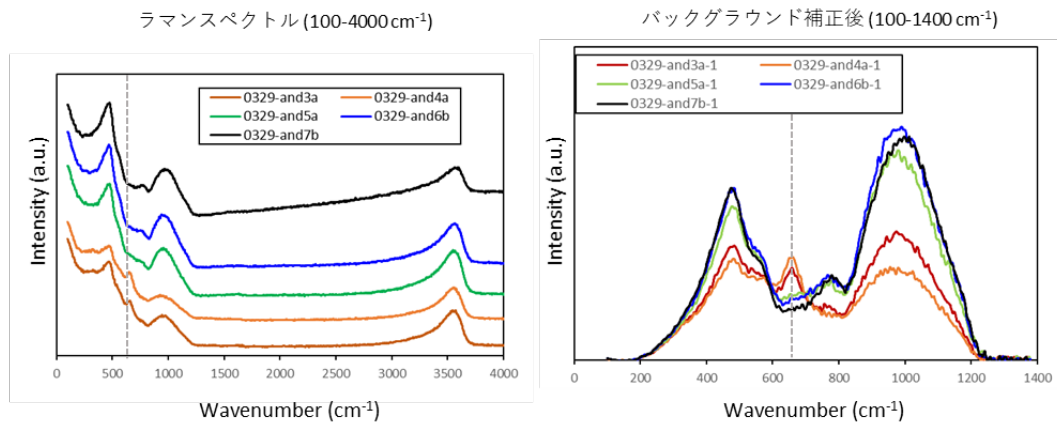


図 2.2-1 流紋岩質・デイサイト質合成ガラスの(a)バックグラウンド補正前のラマンスペクトル ($100\sim 4000\text{ cm}^{-1}$) と、(b)バックグラウンド補正後のスペクトル ($100\sim 1400\text{ cm}^{-1}$)。点線はガラスに含まれる微小結晶由来の $665\sim 670\text{cm}^{-1}$ 付近のピーク位置を示す。

安山岩質ガラス（5試料）



玄武岩質ガラス（9試料）

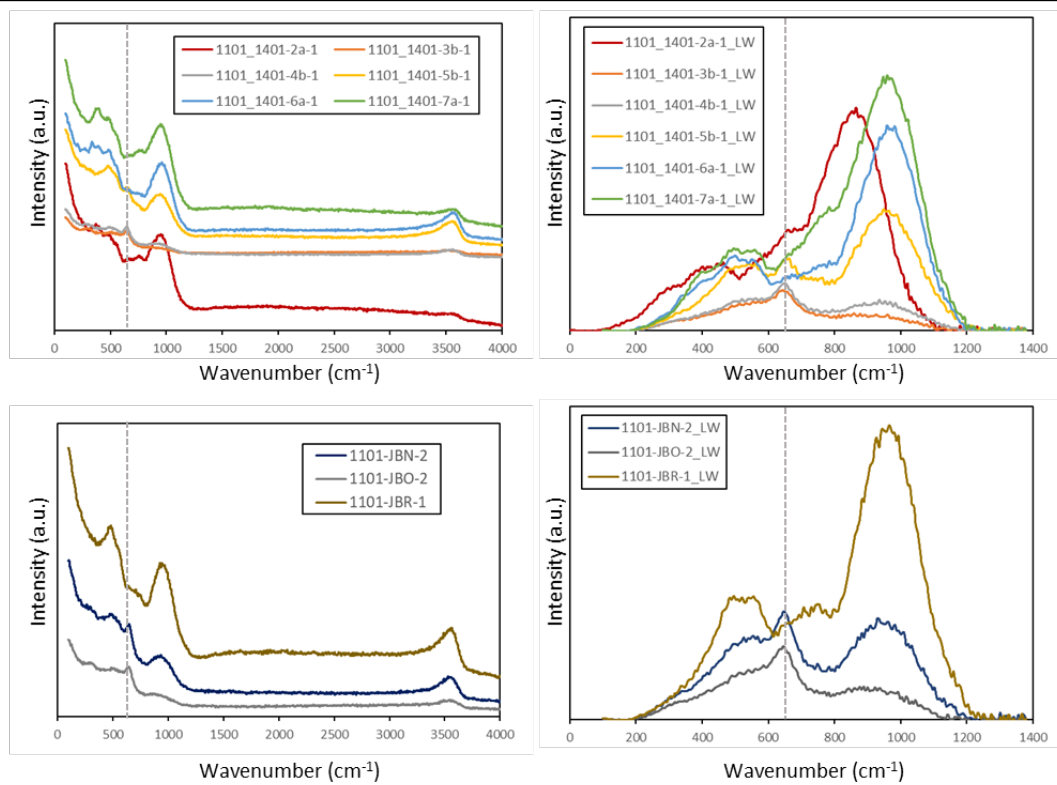


図 2.2-2 安山岩質・玄武岩質合成ガラスの (a)バックグラウンド補正前のラマンスペクトル (100~4000 cm⁻¹) と, (b)バックグラウンド補正後のスペクトル (100~1400 cm⁻¹). 点線はガラスに含まれる微小結晶由来の 665~670cm⁻¹ 付近のピーク位置を示す.

分析点	LW	HW	HW/LW	average	stdev	H2O (wt%)
1012-6a-1.csv	9909.868	22440.45	2.264455			
1012-6a-2.csv	9682.321	22381.27	2.31156			
1012-6a-3.csv	10225.91	23829.18	2.330274	2.30	0.03	1.23
1012-7b-1_20times.csv	10070.95	14691.07	1.458757			
1012-7b-1.csv	9980.949	14527.82	1.455555			
1012-7b-2.csv	10144.81	14128.2	1.392653			
1012-7b-3.csv	10791.26	14585.93	1.351643	1.40	0.05	0.75
1012-6b-1.csv	8724.169	37359.86	4.282341			
1012-6b-2.csv	8281.253	34393.17	4.153136			
1012-6b-3.csv	8326.792	34357.2	4.126103	4.19	0.08	1.7
1012-JR13-1.csv	7523.255	67426.02	8.962347			
1012-JR13-2.csv	7593.785	67753.51	8.922232	8.94	0.03	4.22
1012-JR15-1.csv	7295.727	91230.34	12.50463			
1012-JR15-2.csv	7402.044	91788.79	12.40046	12.45	0.07	5.45

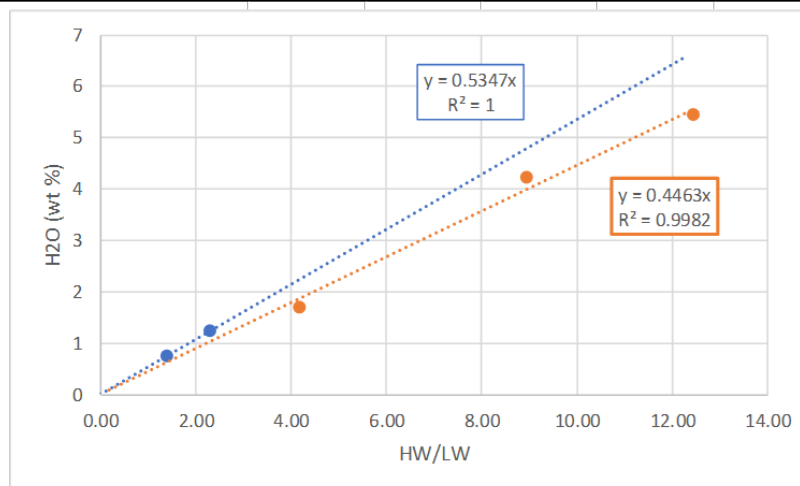


図 2.2-3 含水量定量に用いた検量線の一例. オレンジの点と点線は流紋岩質ガラス, 青い点と点線はデイサイト質ガラスの標準試料測定点と検量線を示す. 検量線は各試料 2 ~ 3 回を測定して得た HW/LW を平均したものを使用して測定日ごとに作成した.

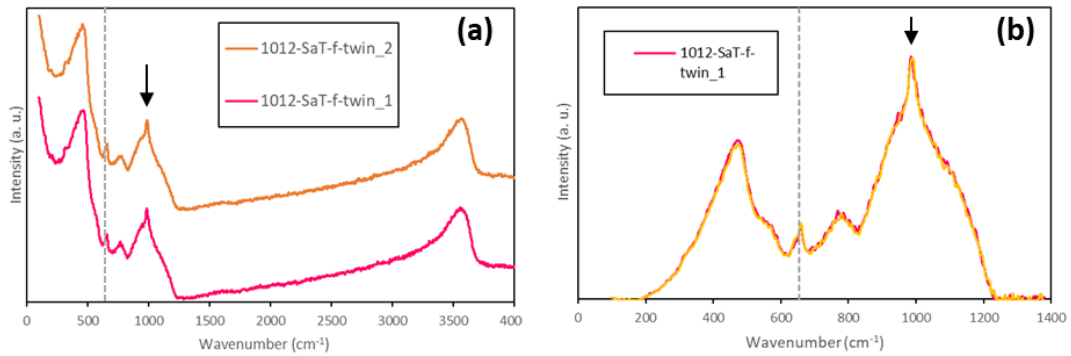


図 2.2-4 桜島大正噴火噴出物の斑晶ガラス包有物のラマンスペクトル(a)と、バックグラウンド補正後のスペクトル(b). 1000cm^{-1} 付近にホストの輝石斑晶のピーク(矢印)が、 $665\sim 670\text{cm}^{-1}$ 付近に微小結晶によるピークが確認される.

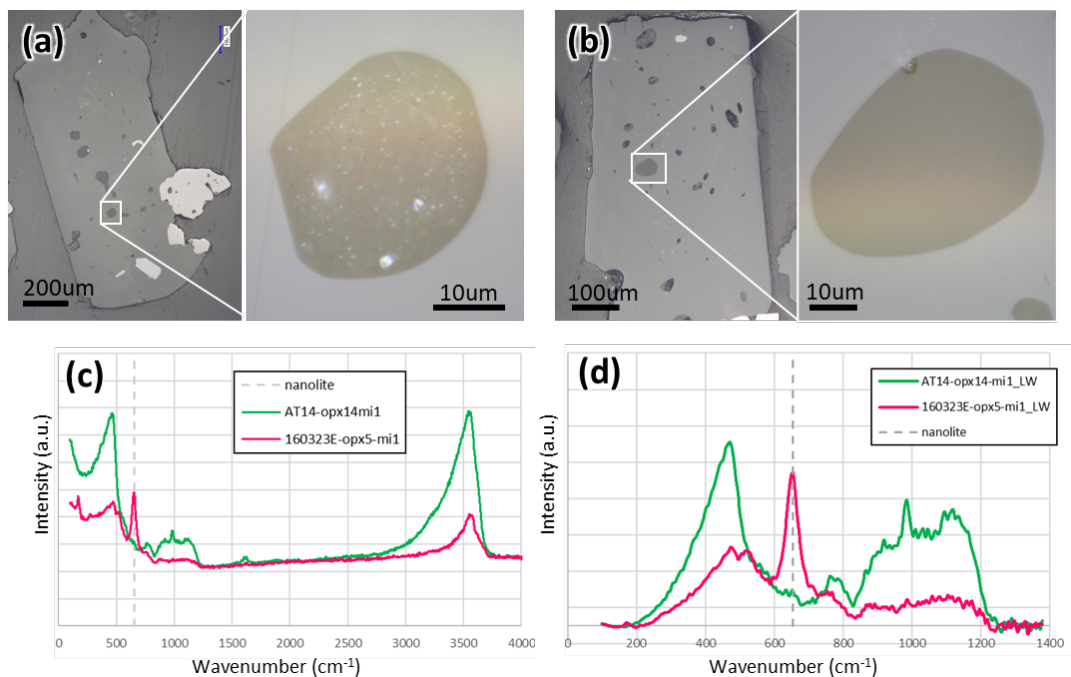


図 2.2-5 AT 噴出物に含まれる微小結晶がみられるガラス包有物(a)及び結晶がないガラス包有物(b)の反射顕微鏡像と、そのラマンスペクトル(c, d). (c)はバックグラウンド処理前の $100\sim 4000\text{ cm}^{-1}$ のスペクトル, (d)はバックグラウンド処理後の LW 領域のスペクトル. 微小結晶がみられるガラス包有物に $665\sim 670\text{cm}^{-1}$ 付近のピークが確認され(c, dの赤線), $400\sim 600\text{ cm}^{-1}$ 付近と $900\sim 1200\text{ cm}^{-1}$ 付近のバンドの信号強度低下がみられる.

ガラスのラマンスペクトルとのケイ酸塩と水に由来する波数領域の重複影響を評価するため、代表的な含水鉱物として、アンチゴライト蛇紋石, 角閃石, 緑泥石, 斜灰簾石, 灰簾

石のラマンスペクトルの収集を行った (図 2.2-6). 低波数は主に $450\sim 500\text{ cm}^{-1}$, 高波数は主に $3100\sim 3400\text{ cm}^{-1}$ 位置に特徴的なピークが現れ, その組み合わせから各鉱物が区別可能であることが分かった. また, グレーティング 1800 本/mm の条件では波数分解能が上昇し, 蛇紋石の低温相と高温多形 (アンチゴライト) とを, 主に $370\sim 380, 1040\sim 1100, 3650\sim 3700\text{ cm}^{-1}$ のピークで区別できることが判明した (図 2.2-7).

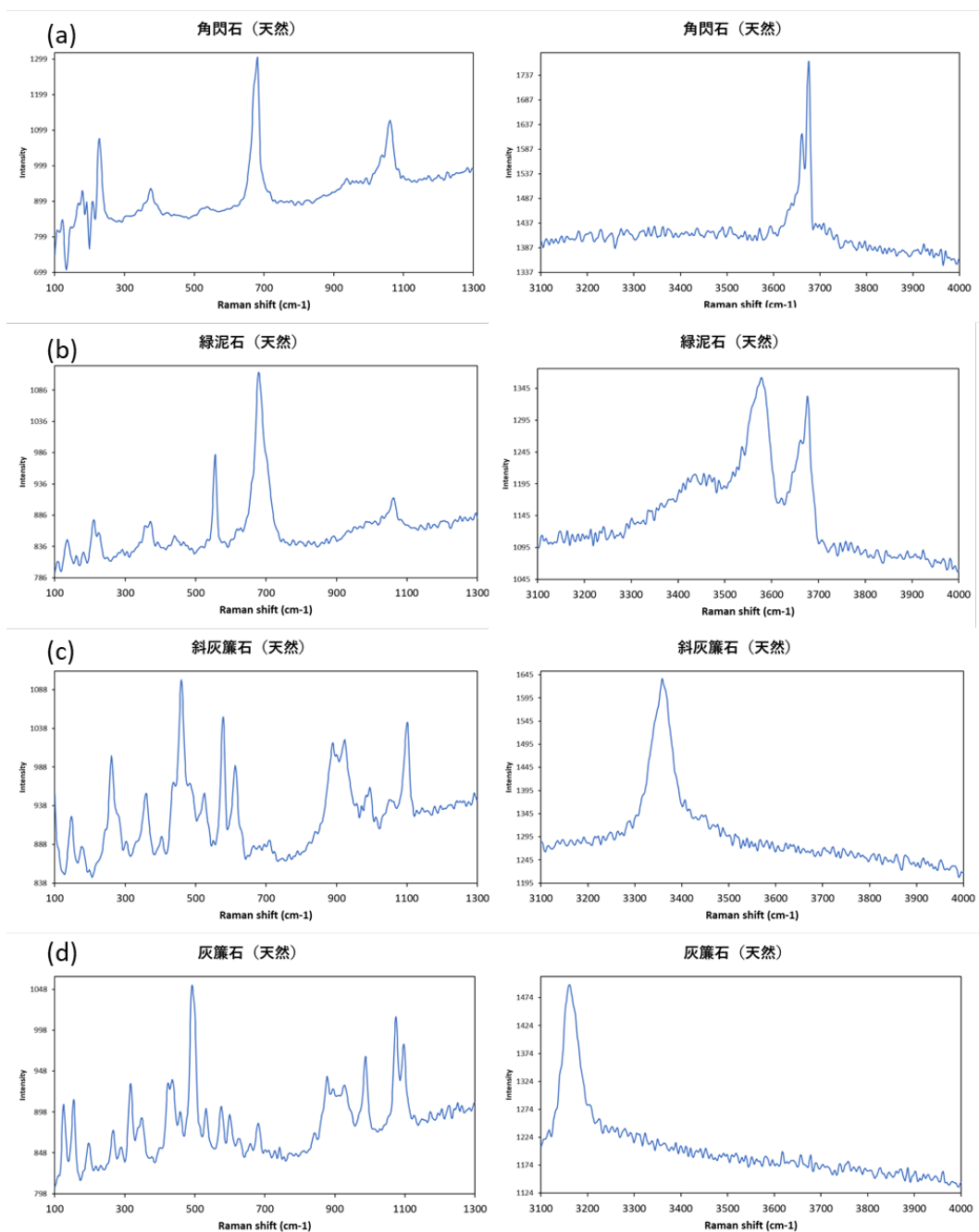


図 2.2-6 グレーティング 600 本/mm で取得した含水鉱物のラマンスペクトルの結果. 左列は低波数領域, 右列は高波数領域.

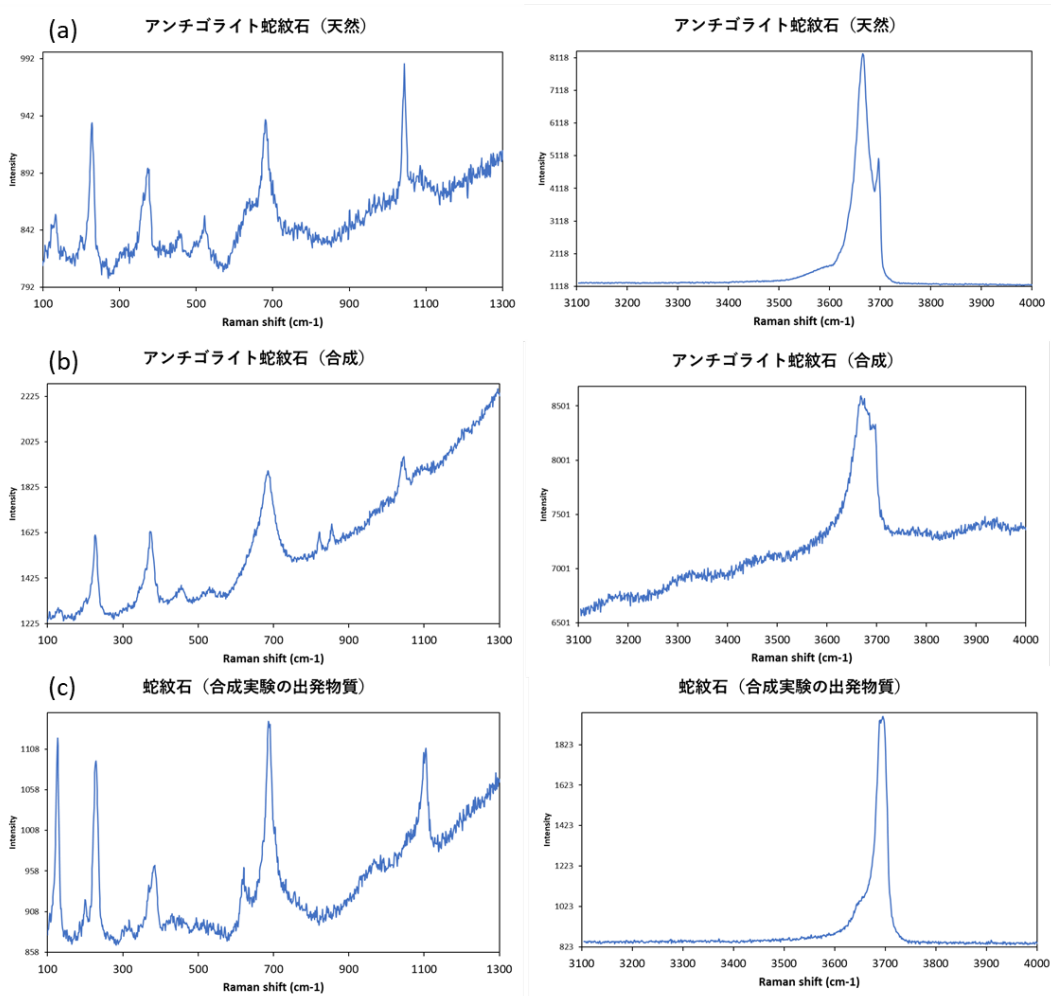


図 2.2-7 グレーティング 1800 本/mm で取得した含水鉱物のラマンスペクトルの結果. 左列は低波数領域, 右列は高波数領域.

4) 後カルデラ噴出物の含水量測定

作成した流紋岩質の検量線を用いて, 後カルデラ噴出物である新島軽石 (約 1 万 3 千年前) 斑晶のガラス包有物の含水量を測定した. 輝石のホスト斑晶では, ほぼすべての測定点で微結晶やホスト斑晶の影響がないスペクトルが取得でき, 含水量は $5.9 \pm 0.8 \text{wt}\%$ であった (図 2.2-8). 斜長石ホスト斑晶では, 蛍光とホスト斑晶によるラマンピーク妨害が発生しスペクトルが得られなかった. この含水量の値は, 昨年度までに測定したカルデラ形成期・先カルデラ形成期の含水量と比較すると, 同程度からやや高い値を示す. 得られた含水量を流紋岩質メルトの飽和含水量と仮定し, Liu et al.(2005)の含水量—圧力コンパイルの近似曲線 ($P_{\text{H}_2\text{O}} = 4.86x^2 + 2.36x + 2.83$ 令和 2 年度報告書既報) から平衡圧力を求めると, 184 MPaであった.

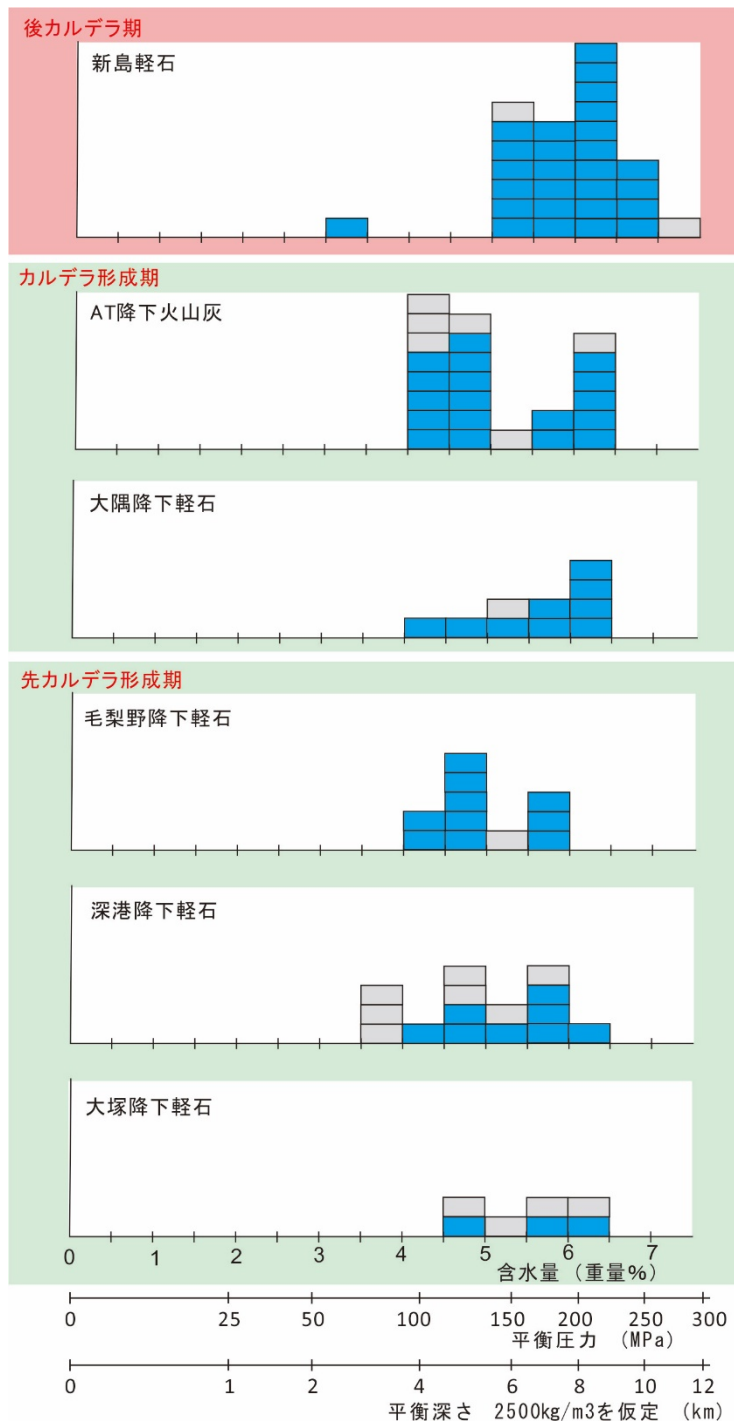


図 2.2-8 始良カルデラのカルデラ形成期前後の噴出物に含まれるガラス包有物含水量のラマン分光分析による測定結果。本年度は後カルデラ噴出物である新島軽石（約 1 万 3000 年前）を測定した。青色はピーク除去をしていないスペクトルから定量した含水量。灰色はピーク除去を行ったスペクトルからの定量値。

(2) マグマ熱力学計算に基づく始良カルデラの珪長質マグマ溜まりの温度圧力条件

1) 分析手法

後カルデラ期噴出物である新島軽石の流紋岩マグマの貯留温度圧力条件を推定するため、その全岩組成を用いた rhyolite MELTS による熱力学計算による相解析を実施した。新島流紋岩の組成は苦鉄質マグマの混入によるシリカ含有量のバリエーションが認められる。そのため、流紋岩組成の端成分として新島軽石中で最もシリカ含有量の高い試料 ($\text{SiO}_2=72.8\%$) を用いて熱力学解析を実施した。酸素フガシティは、鉄チタン酸化物により示唆される低い酸素分圧を反映して FMQ に仮定した。

先カルデラ及びカルデラ形成期の珪長質マグマの貯留温度圧力条件を推定するため、ガラス及び全岩組成を用いた熱力学的解析を実施した。サンプリングバイアスを最小にするため、荒崎火砕流中の軽石から 15 個、大塚降下軽石 から 12 個の軽石塊を選び、ガラスの主要元素組成を収集した。各軽石片の内部から直径 25~75 mm の部分を採取し、真空含浸法によりエポキシ樹脂に埋め込み、研磨した。ガラスの主要化学組成は、Vanderbilt 大学の Tescan Vega 3 LM SEM に取り付けられた Oxford X-max 50-mm² EDS システムを用いて収集した。分析条件は加速電圧 15kV, 吸収電流 2.7~3.4nA で、軽石ガラスの 15~20 スポットを分析した。定量はオックスフォード・インストゥルメンツのソフトウェア AZtec を使用し、キャリブレーションには内部標準を用いた。USGS 流紋岩 (RGM-1) の標準物質 (Pamukcu ら、2015b) の熔融ガラスを分析して分析の安定性を確認した。また分析の外れ値を除外するため、中央値から四分位範囲 (IQR) の 1.5 倍よりも離れている分析値を削除した。昨年度以前に同様の手法で測定した毛梨野テフラ、深港降下軽石、岩戸火砕流、および大隅降下軽石、入戸火砕流の測定結果とあわせて解析した。

各火山岩内の軽石の組成のばらつきの評価と火山岩間の比較のために、組成が類似している軽石クラストをグループ化するクラスタリング法 (Day and Edelsbrunner, 1984) を使用した。軽石のガラス組成に対する化学風化の影響 (Summa and Verosub, 1992) を避けるために、標準に関して最もよく決定され、流体移動の影響を受けにくい主要および微量元素 (SiO_2 , Al_2O_3 , CaO , FeO , Sc , Zr , Nb , Nd , Th) の組み合わせを使用した (Pelt et al. 2008; Frey et al. 2013)。

マグマの平衡圧力は、rhyolite-MELTS 用の Microsoft Excel インターフェース (Gualda ら、2012a ; Gualda & Ghiorso, 2015) を用い、Gualda & Ghiorso (2014) に示されている地質圧力計の計算手順に従って推定された。本解析では石基ガラス組成を使用しているため、得られた圧力はマグマ中でメルトが主要な鉱物相と平衡状態にあったときの圧力を与える。石英と斜長石はすべての軽石で観察されるため、石英と斜長石の液相線が交差する圧力を推定した、計算した温度範囲は 1100-730°C の範囲で 1°C ごとに、圧力範囲は 400~25MPa の範囲で 25MPa ごとに計算した。酸素フガシティは NNO バッファーに制約し、すべての計算は水に飽和状態を仮定した。ただし、長石と石英の飽和面に対する酸

酸素フガシティの影響は小さく、水分量は計算圧力にほとんど影響しない (Gualda and Ghiorso, 2014).

また、マグマがその起源物質から抽出された圧力 (以降、抽出圧) についても同様の方法で計算した。この場合、ガラス組成の代わりに、Geshi et al., 2020 の各噴火の全岩組成を用い、(Gualda et al., 2019; Pitcher et al., 2020) の方法論を用いて計算した。

2) 後カルデラ期のマグマ蓄積条件の推定

得られた新島軽石の相図を図 2.2-9 に示す。新島軽石に含まれる斑晶鉱物は斜長石・直方輝石および少量の鉄チタン鉱物 (磁鉄鉱およびチタン鉄鉱) である。また、鉄チタン鉱物から推測される温度は 800°C かそれよりも若干高い。マグマの酸素フガシティの変化により、直方輝石および鉄チタン酸化物の結晶化条件が大きく変化し得る (図 2.2-9)。実際の新島軽石には石英がほとんど含まれず、直方輝石が含まれることから、800°C 付近の条件下では直方輝石が安定、石英が不安定な領域にあると推測される。FMQ よりも低い酸素フガシティ条件下ではこの領域が十分広い (図 2.2-7 右) が、FMQ 付近では直方輝石と石英の晶出条件がほぼ一致する (図 2.2-9 左) ことから、酸素フガシティは FMQ よりも低いと推測される。これは、新島軽石の Mg # が低い、鉄に富む直方輝石の存在とも整合的である。

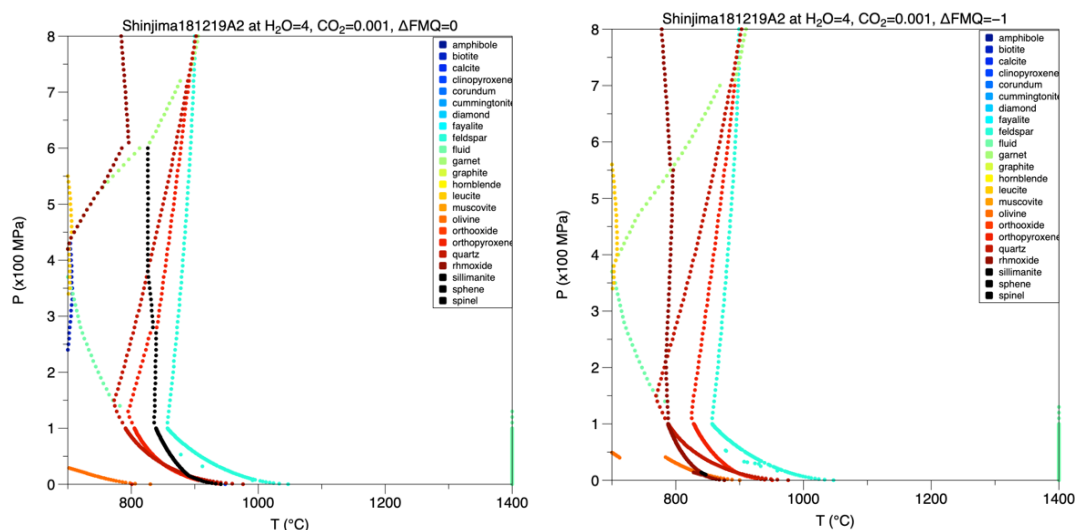


図 2.2-9 rhyolite-MELTS による新島流紋岩の相図。初期含水量はガラス包有物の含水量を参考に 4.0% とした。酸素フガシティ FMQ (左)、酸素フガシティ FMQ -1 (右) で計算したもの。直方輝石と石英の安定領域の違いから、酸素フガシティは FMQ-1 の方が実際の鉱物組み合わせに適合している。

3) 先カルデラ期およびカルデラ形成期マグマ蓄積圧力の推定

先カルデラ期流紋岩およびカルデラ形成期流紋岩の 374 の主要元素ガラス分析を SEM-EDS により、336 の微量元素ガラス分析を LA-ICP-MS により新たに収集した。軽石はすべて高シリカの流紋岩組成であり、大半は SiO_2 の狭い範囲 (77~78 重量%) にあるが、主要元素と微量元素データの多変量解析は、異なる噴火の間や同じ噴火の軽石間で組成にある程度の変動があることを示唆している。

得られた平衡圧力はいずれも、50~150MPa の間にあり、特に先カルデラ期の噴出物の中では極めて安定している。それに対し、カルデラ形成期の噴出物 (大隅降下軽石及び入戸火砕流堆積物) は、やや高い (~200MPa) の平衡圧力を示すものも存在する (図 2.2-10)。石基ガラス組成は噴火ごとにわずかに異なるグループを形成する。また、結晶化の進行を示すような適合元素や非適合元素の系統的な増減はみられない。このことは、50~150MPa の圧力範囲に定置し結晶化の進んだクリスタルマッシュ状の領域で、噴火ごとにマッシュの溶融とメルトの集積が生じ、先カルデラ期噴火およびカルデラ形成噴火を発生させた可能性が指摘できる。特に、カルデラ形成噴火である大隅降下軽石や入戸火砕流堆積物がより大きな圧力領域をしめすことは、先カルデラ期の比較的小規模な噴火に対して、より大量のマグマを噴出したカルデラ形成噴火では、マグマ貯留領域のより深い部分からもマグマが抽出・噴火したことを示唆している。

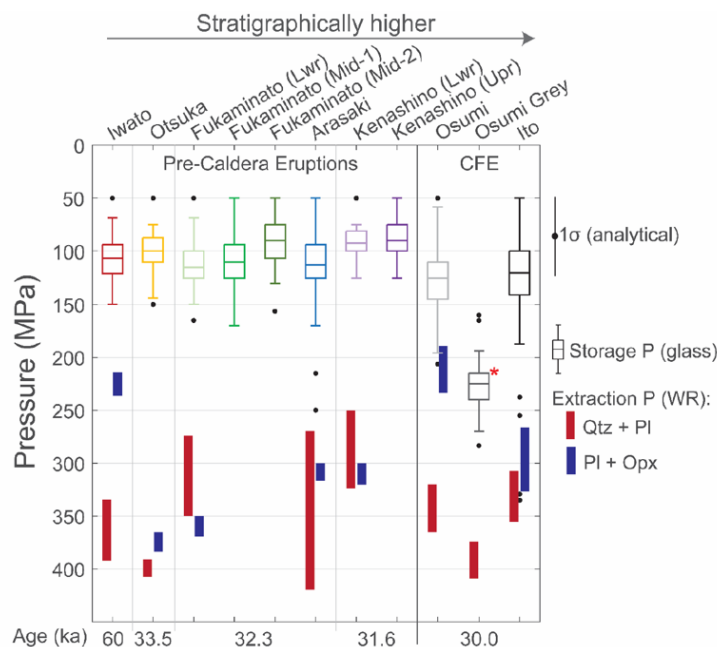


図 2.2-10 先カルデラ期およびカルデラ形成期の流紋岩噴出物の化学組成および鉱物組成から計算される貯留条件。大隅降下軽石に含まれる灰色軽石 (流紋岩とデイサイトの混合マグマ) をのぞき、得られた貯留圧力はおおよそ 50~150MPa の範囲にある。また、マグマが抽出された圧力は、250~400MPa 程度と推測される。

(3) 斑晶内拡散組織解析によるマグマ滞留時間の推定

1) 分析手法

斑晶鉍物内にみられる元素拡散組織からマグマ滞留時間の推定を行った。始良カルデラの代表的な流紋岩噴出物である先カルデラ期噴出物（岩戸，大塚，深港，毛梨野各テフラ），カルデラ形成噴火（大隅降下軽石および入戸火砕流），後カルデラ期噴出物である新島軽石を対象とした。

鉍物内元素拡散速度は，温度，圧力，酸化還元状態，鉍物組成等の影響を受ける。そのため，これらのパラメータを昨年度まで実施した岩石学的手法による温度・圧力推定によって制約した値を用いた。斑晶内の元素拡散組織の解析には，石英および直方輝石斑晶を用いた。後カルデラ期の流紋岩噴出物の新島軽石には石英斑晶はほとんど含まれていないので，直方輝石斑晶を用いて拡散組織の解析を行った。先カルデラ期・カルデラ形成期の流紋岩噴出物である岩戸，大塚，深港，毛梨野各テフラ，カルデラ形成期のテフラ（大隅降下軽石および入戸火砕流）には石英斑晶が多量に含まれているので，これらの噴出物は石英斑晶および直方輝石斑晶の拡散組織の解析を実施した。

それぞれの試料を粗粉碎・水洗・ふるい分けし，そのなかから斑晶鉍物をハンドピックした。取り出した斑晶をエポキシ樹脂に埋め込み，研磨して断面を露出させた。直方輝石斑晶については，研磨面が結晶伸長方向である c 軸にほぼ平行になるように埋め込み・研磨を行った。石英結晶については方向を定めずに埋め込み研磨した。

石英斑晶内の拡散組織の推定は，カソードルミネッセンス（CL）像により実施した。CL 画像の取得は，Vanderbilt 大学で Tescan パンクロマティック CL 検出器を備えた Tescan Vega 3 LM 走査電子顕微鏡を使用して行われた。作動距離は 15 mm、ビーム電流は 17 nA，入射ビーム径 0.37 μm であった。解析には，斑晶外縁部が保存されていることを確認するため，石英ガラスが付着している斑晶を用いた。拡散組織解析のため，高解像度 (0.4 $\mu\text{m}/\text{pixel}$) CL 画像を取得した。なお，電子線による CL の励起領域はビーム径よりも大きいと考えられるため，ここで得られる拡散組織幅は過大評価されている可能性がある。CL 強度が石英中に含まれる Ti の濃度を反映していると仮定し (Gualda and Sutton 2016)，拡散開始前には Ti の濃度プロファイルが不連続に変化していたという初期条件を仮定し，1次元拡散モデルにより得られた CL 強度プロファイルから拡散時間を計算した。拡散速度は温度条件に依存するため，軽石ガラスの Zr 含有量と主要元素組成を用い，Watson and Harrison (1983) の地熱計を利用してジルコン飽和温度を算出した。その結果、すべての試料が 750 $^{\circ}\text{C}$ 付近で重なる温度範囲を持ち，これは Geshi ら (2020) がこれらのユニットに対して計算した Fe-Ti 酸化物温度と一致する。そこで，すべての試料に対して拡散温度を 750 $^{\circ}\text{C}$ と仮定し，石英中の Ti 拡散係数を Cherniak ら (2007) の式で求めた。

直方輝石内の拡散組織解析は， c 軸に沿った等間隔線分析により取得した元素濃度プロファイルを用いた。測定は産業技術総合研究所の走査型電子顕微鏡 JSM-6480 に取り付けられた Oxford X-max 50-mm² EDS システムを用いて収集した。分析条件は加速電圧 15kV，吸

取電流 1.0nA である。直方輝石内にみられる組成累帯組織の境界に垂直・結晶伸長方向に平行方向に約 2~3 μm ステップで組成分析を実施し、組成プロファイルを取得した。定量はオックスフォード・インストゥルメンツのソフトウェア AZtec を使用し、キャリブレーションには内部標準を用いた。

直方輝石の c 軸に沿った Mg-Fe の相互拡散の拡散係数は、温度・酸素フガシティ、および直方輝石の Fe-Mg 比に依存する。ここでは、Ganguly and Tazzoli (1994)による拡散係数の見積りを採用する。Ganguly and Tazzoli (1994)は、 Fe^{2+} - Mg の相互拡散係数 $D(\text{Fe-Mg})$ (cm^2s^{-1}) を、温度 T (K)、輝石の Fe - Mg 比 X_{Fe} ($\text{Fe}^{2+}/(\text{Fe}^{2+}+\text{Mg})$) の関数として次式で近似した。

$$\log D(\text{Fe} - \text{Mg}) = -5.54 + 2.6X_{\text{Fe}} - \frac{12530}{T}$$

新島軽石中の直方輝石斑晶 4 結晶から得られた 8 本の Mg・Fe の濃度プロファイルを、上式によって得られた拡散係数 D に基づき計算した拡散プロファイルの時間変化と比較し、それぞれのプロファイルを形成するのに要した時間を推測した。新島軽石を噴出した流紋岩マグマの貯留温度を 800°C (1073K)、輝石の X_{Fe} を 0.5 とし、 $D(\text{Fe-Mg})=1.2 \times 10^{-20}(\text{m}^2/\text{s})$ を拡散係数として用いた。その結果、3300 \pm 1500 年から 10600 \pm 4600 年の拡散時間が得られた。拡散係数 D の温度依存性が大きいため、温度見積の違いによりこれらの拡散時間は大幅に変化し得るため、温度条件等についてより慎重な検討が必要である。

2) 後カルデラ期流紋岩の滞留時間

後カルデラ期流紋岩噴出物である新島軽石 (約 1 万 3 千年前) に含まれる直方輝石斑晶内の元素拡散組織を解析した。新島軽石には、コア部が高 Mg、リム部が低 Mg の累帯構造を持つ直方輝石が少量含まれる (図 2.2-11)。これらの輝石斑晶は、より苦鉄質なマグマ中でそのコア部分の高 Mg 輝石が晶出し、流紋岩マグマ中に注入・混合後、流紋岩マグマ中で外側の低い Mg リム部が成長したものと考えられる。

これらの輝石斑晶には、コア・リム境界に沿って、Mg・Fe の濃度に勾配が観察される。また、一部の輝石斑晶では輝石に包含されたガラス包有物や鉄チタン鉱物と直方輝石の境界部から直方輝石内部に向かう元素勾配が観察された。境界 (高 Mg 低 Mg 部の境界あるいは直方輝石とガラス包有物等との境界面) から 120~160 μm の範囲に Mg 及び Fe の勾配が確認される (図 2.2-12)。勾配は、直方輝石の結晶軸 (c 軸相当) に平行な方向に緩く、広い勾配の範囲を示すのに対し、結晶軸に直交する方向 (a 軸あるいは b 軸相当) には狭い勾配範囲を示す。従って、これらの元素勾配は、結晶軸方向によって異なる拡散速度を持つ元素拡散によって形成されたと考えられる。

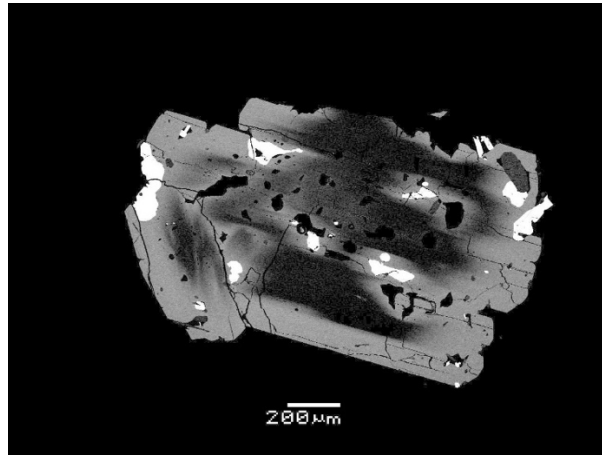


図 2.2-11 後カルデラ期流紋岩噴出物である新島軽石にふくまれる正累帯構造を持つ直方輝石斑晶の BEI 像. 試料 181219A px17-1.

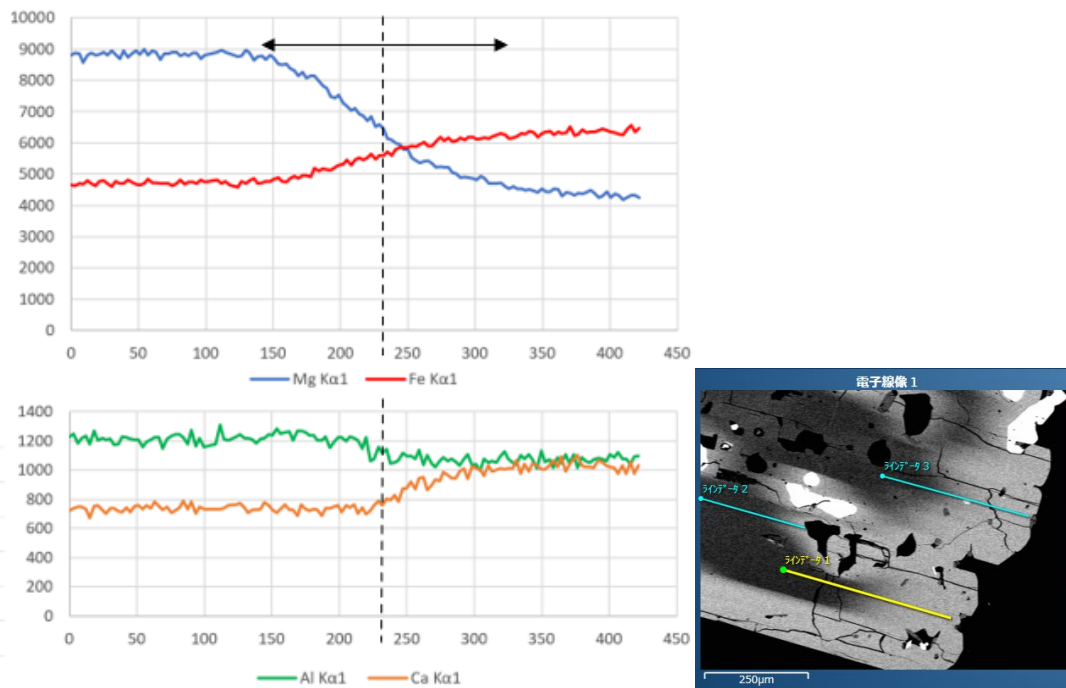


図 2.2-12 後カルデラ期流紋岩噴出物である新島軽石にみられる元素拡散プロファイルの例 (試料 181219A px17-1. 横軸は分析線に沿った距離 (μm). グラフの左側が結晶内部, 右側が結晶外側. グラフ上の青線および赤線はそれぞれ EDS 検出器による Mg および Fe のカウント数. 下グラフは Al および Ca のカウント数を示す. もとからの組成境界は起点から $230\mu\text{m}$ 付近にあり (黒破線で示す), $140\text{--}320\mu\text{m}$ の領域に Mg-Fe の相互拡散が進んでいると考えられる (黒矢印で示す). 右側の BEI 像はプロファイルを取得した位置 (黄線) を示す.

観察された元素勾配を、直方輝石結晶後にマグマ中で生じた元素拡散組織と仮定して、その組成プロファイルの範囲および形状から、元素拡散に要した時間すなわちその結晶の晶出から急冷するまでの時間、すなわちマグマ中における滞留時間を推測した。新島軽石の噴火の年代は1万3千年前とされており、カルデラ形成と入戸火砕流を噴出した3万年前の巨大噴火から1万7千年後に発生している。直方輝石が記録するマグマ中での滞留時間が1万年～1万5千年以内であるならば、新島軽石を形成した流紋岩マグマはカルデラ形成噴火後に蓄積したものである可能性が高い。しかし、全岩化学組成からは、入戸火砕流噴火の初期噴出物である大隅降下軽石に含まれる灰色軽石の単成分は新島軽石の流紋岩マグマとより苦鉄質なマグマを混合させたデイサイトマグマであると考えられることから、新島軽石の組成を持つ流紋岩マグマは、3万年前の入戸火砕流噴火時にはすでに存在していたと考えられる。新島軽石の流紋岩マグマの蓄積過程については、入戸火砕流噴火時の噴出物も含めてより詳細な検討が必要である。

3) 先カルデラ期・カルデラ形成期流紋岩の滞留時間

先カルデラ期の噴出物である岩戸・大塚・深港・毛梨野テフラおよびカルデラ形成期噴出物である大隅降下軽石・入戸火砕流堆積物に含まれる斑晶鉱物の拡散組織を解析した。それぞれの噴出物に含まれる石英斑晶には著しい組成累帯組織が発達している（図13）。

これらの累帯構造から、合計23の"真のコア"滞留時間スケールを推測した。先カルデラ期とカルデラ形成噴火の噴出物の石英が示す最大滞留時間は、すべての噴出物で850年以下であり（図14）、深港軽石と岩戸火砕流から得られたそれぞれ1つの結晶が例外的にやや長くそれぞれ1475年と1597年の滞留時間を示した。大塚軽石噴火からカルデラ形成噴火までの噴火間隔はそれぞれ数1000年程度（令和2年報告書）と推測されるため、今回得られた石英の滞留時間（<850年）は、これらの石英結晶が一つ前の噴火よりも後からマグマだまり内で結晶化を始めたことを示唆する。また、石英斑晶内に複数みられる累帯組織の不連続は、結晶化を開始した石英が頻繁に再熔融と結晶化を繰り返したことを示している。

しかし、流紋岩マグマ中では石英は最初に飽和する相ではなく、石英の結晶化開始以前から鉱物の晶出は始まっているので、これらの石英の滞留時間はマグマそのものの滞留時間を表しているわけではなく、マグマ自体はより長い滞留時間を持ちうることに留意すべきである。ここでは、流紋岩マグマが結晶化中に一定の割合で熱を失う（エンタルピー減少）と仮定し、これらのマグマの全岩組成に対して流紋岩-MELTSを実行した際に各温度ステップで返されたエンタルピーを用いて、最初の鉱物相が出現してからの経過時間に対する、石英が晶出を開始してからの経過時間の比を推定した（Gualda et al.2012b; Pitcher et al.2020）。観測された結晶パーセント分率の不確かさ範囲と、流紋岩-MELTSジオバロメーターからの圧力範囲を入力することで、石英飽和以降の相対的な結晶化時間の最大と最小が得られる。これに、組成累帯組織から得られた実際の石英の滞留時間を用い

ることにより、流紋岩マグマ全体の結晶化時間を推測することができる。これによると、流紋岩の最大結晶化時間は、カルデラ形成噴火である大隅降下軽石・入戸火砕流で 1400～3500 年、33～31Ka の先カルデラ期噴出物で 1000～3500 年、さらに 60Ka の岩戸噴火の噴出物で 3500～4900 年と推定された。これら推定された結晶化時間は、先カルデラ期流紋岩マグマとカルデラ形成噴火の流紋岩マグマの間で、結晶化の時間的重複が少なかった可能性を示唆している（図 15）。石英結晶にみられる溶融と再結晶化の繰り返しは、マグマ自体が単純な冷却と結晶化の過程を経ていないことを示しているが、この仮定されたマグマの結晶化時間は、約 6 万年前の岩戸火砕流噴火時の流紋岩マグマの出現から、約 3 万年前の入戸火砕流を噴出したカルデラ形成噴火までの時間スケールに比べて十分短いことから、流紋岩マグマ溜まり内でのクリスタルマッシュからのメルトの抽出と結晶化・噴火を繰り返しながらカルデラ形成噴火に至ったことを示唆する。この仮説の検証には、斜長石や直方輝石などの初期の鉱物相の拡散タイムスケールを推定するなどのさらなる研究が必要である。

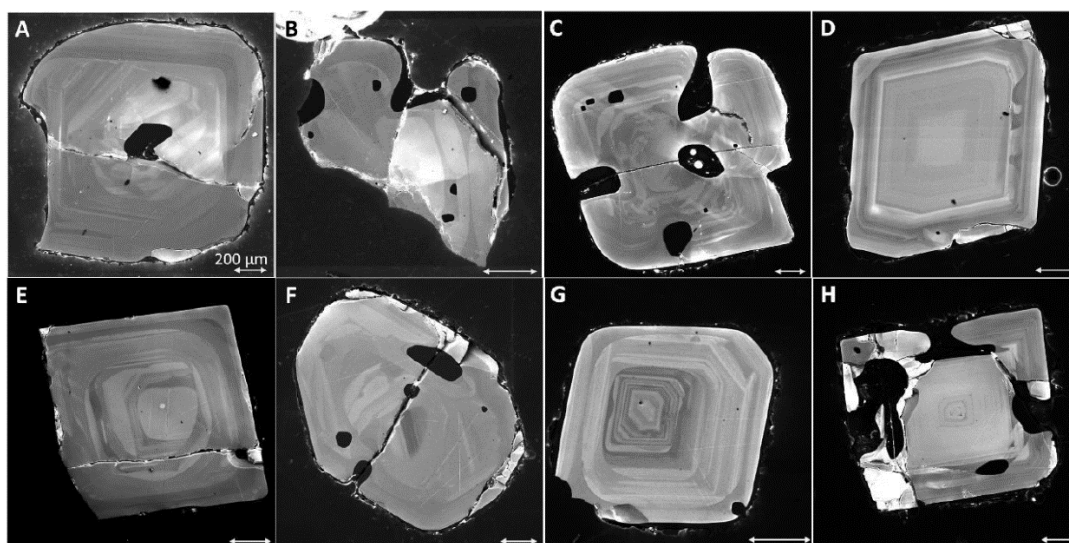


図 2.2-13 先カルデラ期およびカルデラ形成期の流紋岩噴出物に含まれる石英斑晶の CL 像。

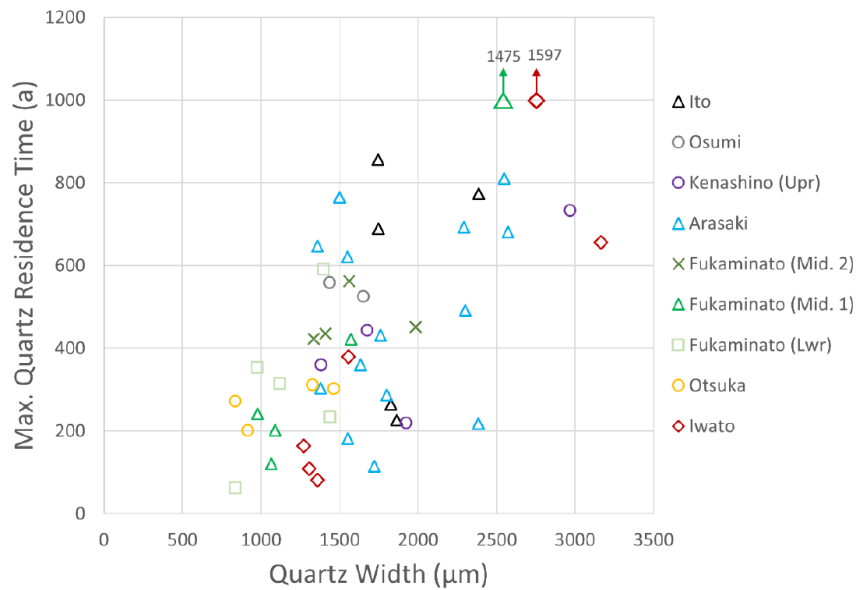


図 2.2-14 石英斑晶のサイズ（横軸）に対する，累帯構造から推測される最大拡散時間（縦軸）．大型の結晶ほど最大拡散時間（～滞留時間）が長いことが示唆される．

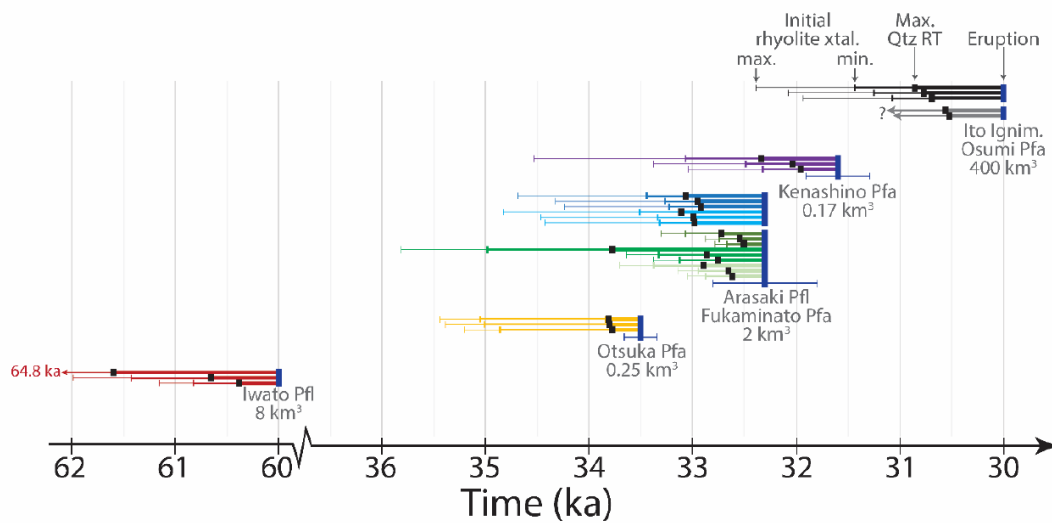


図 2.2-45 石英斑晶の拡散組織から求められたそれぞれの噴出物の滞留時間と，噴出年代との関係．横軸は年代（単位：千年）．石英斑晶から求められた最大拡散時間（図中の黒■）と，それから推測された流紋岩マグマ全体の結晶化時間（横線）を各噴火の推測年代からの時間として示す．いずれの石英結晶も，それぞれの噴火に先立つ 850 年以内に結晶化を開始したと考えられ，マグマ全体の結晶化時間も数 1000 年程度であることが示唆される．

参考文献

- Boehnke, P., Watson, E. B., Trail, D., Harrison, T. M. & Schmitt, A. K. (2013). Zircon saturation re-revisited. *Chemical Geology*. Elsevier 351, 324–334.
- Cherniak, D. J., Watson, E. B. & Wark, D. A. (2007). Ti diffusion in quartz. *Chemical Geology*. Elsevier 236, 65–74.
- Day, W. H. E. & Edelsbrunner, H. (1984). Efficient algorithms for agglomerative hierarchical clustering methods. *Journal of Classification*. Springer-Verlag 1, 7–24.
- Di Genova, D., Sicola, S., Romano, C., Vona, A., Fanara, S., and Spina, L. (2017) Effect of iron and nanolites on Raman spectra of volcanic glasses: A reassessment of existing strategies to estimate the water content. *Chemical Geology* 475, 76-86.
- Frey, H. M., Szramek, K. J., Manon, M. R. & Kissane, M. T. (2013). Slow chemical weathering in a semiarid climate: Changes in the mineralogy and geochemistry of subaerial lava flows in the Deschutes River Basin, central Oregon. *Chemical Geology*. Elsevier 347, 135–152.
- Ganguly, J., Tazzoli, V. (1994) Fe²⁺-Mg interdiffusion in orthopyroxene: Retrieval from the data on intracrystalline exchange reaction *Am. Mineral* , 79, 930- 937.
- Gervasoni, F., Klemme, S., Rocha-Júnior, E. R. V. & Berndt, J. (2016). Zircon saturation in silicate melts: a new and improved model for aluminous and alkaline melts. *Contributions to Mineralogy and Petrology* 171, 1–12.
- Geshi, N., Yamada, I., Matsumoto, K., Nishihara, A. & Miyagi, I. (2020). Accumulation of rhyolite magma and triggers for a caldera-forming eruption of the Aira Caldera, Japan. *Bulletin of Volcanology*. Springer 82, 1–18.
- Gualda, G. A. R. & Ghiorso, M. S. (2014). Phase-equilibrium geobarometers for silicic rocks based on rhyolite-MELTS. Part 1: Principles, procedures, and evaluation of the method. *Contributions to Mineralogy and Petrology*. Springer Berlin Heidelberg 168, 1033.
- Gualda, G. A. R. & Ghiorso, M. S. (2015). MELTS-Excel: A Microsoft Excel-based MELTS interface for research and teaching of magma properties and evolution. *Geochemistry, Geophysics, Geosystems* 16, 315–324.
- Gualda, G. A. R., Ghiorso, M. S., Lemons, R. V. & Carley, T. L. (2012a). Rhyolite-MELTS: a Modified Calibration of MELTS Optimized for Silica-rich, Fluid-bearing Magmatic Systems. *Journal of Petrology*. Oxford University Press 53, 875–890.
- Gualda, G. A. R., Gravley, D. M., Deering, C. D. & Ghiorso, M. S. (2019). Magma extraction pressures and the architecture of volcanic plumbing systems. *Earth and Planetary Science Letters*. Elsevier 522, 118–124.
- Gualda, G. A. R., Pamukcu, A. S., Ghiorso, M. S., Anderson, A. T., Sutton, S. R. & Rivers,

- M. L. (2012b). Timescales of Quartz crystallization and the longevity of the Bishop Giant Magma body. *PLoS ONE. Public Library of Science* 7, e37492.
- Gualda, G. A. R. & Sutton, S. R. (2016). The Year Leading to a Supereruption. *PLOS ONE. Public Library of Science* 11, e0159200.
- Ganguly, J. & Tazzoli, V. (1994) Fe²⁺ - Mg interdiffusion in orthopyroxene: Retrieval from the data on intracrystalline exchange reaction. *American Mineralogist* 79, 930-937.
- Liu, Y., Zhang, Y., Behrens, H. (2005) Solubility of H₂O in rhyolitic melts at low pressures and a new empirical model for mixed H₂O–CO₂ solubility in rhyolitic melts. *Jour. Volcanol. Geotherm. Res.* 143, 219-235.
- Pamukcu, A. S., Gualda, G. A. R., Ghiorso, M. S., Miller, C. F. & McCracken, R. G. (2015b). Phase-equilibrium geobarometers for silicic rocks based on rhyolite-MELTS—Part 3: Application to the Peach Spring Tuff (Arizona–California–Nevada, USA). *Contributions to Mineralogy and Petrology* 169 .
- Pelt, E., Chabaux, F., Innocent, C., Navarre-Sitchler, A. K., Sak, P. B. & Brantley, S. L. (2008). Uranium–thorium chronometry of weathering rinds: Rock alteration rate and paleo-isotopic record of weathering fluids. *Earth and Planetary Science Letters. Elsevier* 276, 98–105.
- Pitcher, B. W., Gualda, G. A. R. & Hasegawa, T. (2020). Repetitive duality of rhyolite compositions, timescales, and storage and extraction conditions for pleistocene caldera-forming eruptions, Hokkaido, Japan. *Journal of Petrology*.
- Summa, L. L. & Verosub, K. L. (1992). Trace element mobility during early diagenesis of volcanic ash: Applications to stratigraphic correlation. *Quaternary International. Pergamon* 13–14, 149–157.
- Watson, E. B. & Harrison, T. M. (1983). Zircon saturation revisited: temperature and composition effects in a variety of crustal magma types. *Earth and Planetary Science Letters. Elsevier* 64, 295–304.

