

2.2 阿蘇カルデラ噴出物の岩石学的検討

【実施内容】

平成 27 年度は、大規模火砕流噴火やその直前の噴出物、火砕流噴火の間の噴出物、ポストカルデラの噴出物を対象に、地質調査を行い層序・分布を明らかにした(章 2.2-a)。得られた噴出物に対して全岩化学組成分析ならびに鉱物とガラスに対して微小領域の化学分析を行なった(章 2.2-b)。得られた化学組成に対して熱力学的解析を行なった(章 2.2-c)。熱力学解析結果の妥当性を確認するとともに火山岩に観察される微細組織が生じるための条件(温度・圧力・時間等)を見積る目的で、高温高压実験装置を用いた岩石の融解結晶化実験を行なった(章 2.2-d)。今年度はこれらに加えて、阿蘇カルデラの長期的なマグマ供給系の構築過程を把握する目的で、大規模火砕流噴火以前の 100 万年程度の期間に阿蘇カルデラの周辺に噴出した先阿蘇火山岩及びカルデラ深部のマグマだまりの母岩の候補となる岩石を採取し、同位体地球化学的研究を行なった(章 2.2-e)。

【研究成果概要】

阿蘇火山は、約 27 万年前の活動開始以来、現在も活発な火山活動を継続している。平成 26 年度の委託研究「平成 26 年度火山影響評価に係る知見の整備」において産総研(2015)は、大規模噴火準備過程の詳細化を行うためには、以下の観点を明らかにする必要があることを提唱した。

(1)大規模火砕流噴火の前兆噴火の詳細な層序と噴火様式・マグマ組成の変遷。(2)大規模噴火に移行した小規模噴火と、移行しなかった小規模噴火の比較検討。(3)大規模噴火自体の噴火推移。(4)マグマ供給系の物理化学条件(組成・形状・物性・位置、等)の時間変化を考慮したモデルの作成。

数万年の間隔をおいてこれまで 4 度発生した大規模火砕流噴火(阿蘇 1, 2, 3, 4)のうち、阿蘇 1 火砕流堆積物は、阿蘇カルデラの最初の活動であることから、大規模火砕流噴火に至ったマグマ供給系の初期条件の知見を得るうえで重要な位置付けにある。そこで平成 26 年度には特に、阿蘇の最初の火砕流噴火である阿蘇 1 噴火に注目し、新たに発見された露頭で阿蘇 1 火砕流噴火直前に噴出した降下火砕物の記載と採取を行い、阿蘇カルデラ最初期の噴出物の全岩・鉱物・ガラス化学組成分析と微細組織観察を行い、マグマの熱力学計算ソフト MELTS を用いた岩石学的解析の結果、阿蘇 1 火砕流噴火をひきおこした大規模珪長質マグマだまりの温度圧力条件とその時間変化に関する知見が得られた。すなわち、比較的水に富み高温な(1100°C程度)玄武岩質マグマが、脱水作用を受け含水量が 0.5~1 wt.%にまで低下したのちに、地下 20~30km(圧力 5~7kbar)に位置するマグマだまりで 890°C程度まで冷却分化して生じた可能性が示された。

平成 26 年度の委託研究で得られた阿蘇-1 のマグマだまりの深度推定値は、一般的に考えられる珪長質マグマだまりの密度中立点(7km程度)よりもはるかに深く、それより比重の大きい玄武岩質マグマの密度中立点(10~15km程度)と比べても明らかに深いものであった。もしもマグマだまりが地殻下部のような深所に存在するならば、マグマだまりを地球物理学的に検出することは一層困難になるから、マグマだまりの深度見積りの妥当性は、慎重に検証する価値がある。

昨年度の委託研究において熱力学解析の出発物質に用いた始原的玄武岩組成 4KC-03(Hunter, 1998)は阿蘇 4 ステージの噴出物であり、玄武岩が得られない阿蘇 1 の代用品であった。玄武岩質マグマと珪長質マグマの両方が得られる時期の噴出物に同手法を適用することにより、得られ

た結果の妥当性を確認する必要がある。珪長質マグマに対して昨年度とは異なる岩石学的手法を適用することも、妥当性を検証方法として有効であろう。たとえば高温高压実験装置を用いてマグマだまりの条件で試料を合成し、昨年度熱力学的に推定した温度圧力含水量条件において斑晶やメルトの化学組成が所定の値になるか否かを検証することがあげられる。高温高压実験の結果は、マグマの熱力学解析ソフト MELTS の計算結果の妥当性検証にも活用できるだろう。

阿蘇 1 ステージから阿蘇 4 ステージにかけてマグマだまりの深度が時間とともに浅くなっている可能性も、考慮する必要がある。地球物理学的観測によって得られるデータは現在のマグマだまりの情報であるから、阿蘇 1 火砕流噴火が生じた 27 万年前のものとは直接比較することは非現実的である。最大規模かつ最後の火砕流噴火ステージである阿蘇 4 を対象に解析を行うことにより、地球物理学的観測との比較がより容易になる。現在の阿蘇中岳から放出される火山灰を対象に解析を行うことができれば、現在の阿蘇のマグマ供給系の温度圧力データを、地球物理学的・地球化学的な探査結果と直接比較することが出来る（ただし火山灰試料では噴火時の破砕作用により斑晶が脱落するため、全岩化学組成分析は難しい）。

阿蘇火山のマグマ供給系の時間変遷に関する知見も求められよう。阿蘇 4 の噴火からすでに 9 万年が経過していることから、マグマ供給系が阿蘇 1 以前の状態にリセットされた可能性も考慮すると、より長期間の視野で、阿蘇火山を見直すことが有効だと思われる。

地質調査の結果、阿蘇 4 火砕流堆積物の直下および直上にこれまで認識されていない厚い降下火砕物を発見し、記載と試料採取を行った。昨年度分析を行った阿蘇 4 以後の一連の噴出物の中から全岩化学組成がより苦鉄質・より珪長質な代表試料を選び出し、鉱物とガラスの化学分析を行い、鉱物温度計を適用した結果、珪長質マグマの温度は $903\pm 5^{\circ}\text{C}$ 程度、酸素分圧は FMQ+1 ログユニット程度と推定された。得られた化学組成に対して熱力学的解析を行った結果、観測された珪長質マグマのメルト化学組成 ($\text{SiO}_2=70\text{wt.}\%$, $\text{K}_2\text{O}=4.1\text{wt.}\%$) を、観測された温度酸素分圧条件で再現可能な全岩含水量は $3.0\text{-}3.5\text{wt.}\%$ と推定され、圧力はおよそ 4kbar ($3.5\text{-}4.5\text{kbar}$) と見積もられた。一方、苦鉄質マグマに含まれる斜長石の化学組成 ($\text{An}=57\text{mol.}\%$) を $900\sim 1000^{\circ}\text{C}$ の温度範囲で再現する圧力条件は、約 $5.5\text{kbar}\sim 7.2\text{kbar}$ と見積もられ、同マグマのメルト K_2O 量 ($0.6\sim 4.0\text{wt.}\%$) を 900°C より高い温度で再現可能なマグマは、含水量は $0.1\text{wt.}\%$ あるいはそれ以下、圧力は約 5kbar 以上と見積もられる。これらのことから、ポストカルデラ活動をもたらした苦鉄質・珪長質なマグマは噴火直前に 20km 程度の深さに蓄積されていたと考えられる。ただし、苦鉄質マグマに観察されるかんらん石斑晶 ($\text{Mg}\#74$) は、より低圧 ($<2\text{kbar}$) で還元的 ($\text{FMQ}+0$) な条件で晶出した可能性がある。 7kbar と 2kbar の圧力で阿蘇 1 噴出物に水を加えて融解したと、生じたメルトの化学組成は、圧力が 2kbar よりも 7kbar のときに観測された値に近いことが判明した。昨年度の報告 (阿蘇 1 のマグマだまりは地下 $20\sim 30\text{km}$ (圧力 $5\sim 7\text{kbar}$) に位置する) を裏付ける結果が、高温高压実験により得られた。同位体地球化学的研究を 1400 万年前～阿蘇カルデラの噴出物に対して行った結果、最近数百万年間の阿蘇の噴出物は基本的にマントルで生じたマグマの結晶分化作用あるいは固化したマグマの再溶融で生じることを示すデータが得られ、マントルで生じたマグマに対する大陸地殻成分の混入比率が時間とともに減少したことが示された。

2.2-a 阿蘇カルデラ噴出物の層序

【実施内容】

大規模火砕流噴火の前兆噴火や先駆的な噴火の噴火様式やマグマ組成を明らかにするために、阿蘇4火砕流基底部の野外調査を実施し、噴出物の岩相記載と、化学分析を実施した。

【研究成果】

地質調査の結果、阿蘇4火砕流堆積物の直下にこれまで認識されていない降下火砕物を発見し、記載と試料採取を行った。阿蘇4火砕流堆積物の直下にも降下軽石層が確認されたことにより、阿蘇カルデラの4回の大規模火砕流噴火では、いずれの噴火においても前駆的な噴火として降下テフラの活動が確認されたことになる（表2.2-a-1）。

阿蘇4火砕流堆積物とその下位の阿蘇3火砕流堆積物の間（以下、阿蘇4/3と呼ぶ）には、降下軽石を主体とするテフラの累層が多数あることが知られている（小野ほか、1977）。阿蘇4/3のテフラのうち、阿蘇4に近いABCDテフラは、阿蘇カルデラにおける最大級の降下テフラである。小野ほか(1977)は、このABCDを阿蘇4噴火の1つ前の噴火活動であるとした。星住(1990)は、ABCDと阿蘇4の間に、2枚の薄い降下軽石を認定したものの、阿蘇4火砕流との直接の関係は不明であるとした（図2.2-a-2）。今回の調査で確認された降下軽石層は、カルデラの南東側の阿蘇4火砕流台地の基底部に位置する。降下軽石層は約1.3mの厚さがあり、大きく2枚の降下ユニットに分かれ、阿蘇4火砕流本体に整合的に覆われる（図2.2-a-1）。軽石は白色で発泡度が高い。また、これとは別に阿蘇カルデラ東側内壁においても阿蘇4火砕流基底部に降下軽石層を確認した。この地点では最下部から約70cmの降下軽石、成層した比較的細粒物に乏しい火砕流堆積物、淘汰の悪い異質礫に富む軽石流堆積物、強溶結火砕流堆積物（阿蘇4B）の順に累重する。これらの降下軽石について斑晶組合せ、全岩化学組成について比較検討を行った結果、化学組成は阿蘇4火砕流本体とよく一致する（図2.2-a-2）ものの、一部で含まれる有色鉱物が異なっていた。これが、阿蘇4マグマだまりの累帯構造によるものかどうか、今後検討する。

表 2.2-a-1 阿蘇カルデラ及び大峰・赤井火山噴出物の特徴とユニット区分

噴火サイクル	年代	サブユニット	本質物	化学組成(SiO ₂)
阿蘇中央火口丘	<90 ka	溶岩, 降下火砕物	溶岩, スコリア>軽石	49-72 %
阿蘇4	90 ka	阿蘇4B火砕流堆積物	軽石	64-70 %
		阿蘇4九ノ峰スコリア流堆積物	スコリア	50-53 %
		阿蘇4T火砕流堆積物 (阿蘇-4鳥栖)	軽石	
		阿蘇4 弁利スコリア流堆積物	スコリア>軽石	51-57 %
阿蘇4	90 ka	阿蘇4A火砕流堆積物 (阿蘇4用木, 八女, 鳩平, 肥猪, 小谷)	軽石	67-70 %
		阿蘇4降下軽石層 (本研究)	軽石	67%
大峰火山	90 ka	大峰火砕丘, 高遊原溶岩	溶岩, 軽石, スコリア	61-66 %
阿蘇4/3		降下火砕物	軽石>>スコリア	
阿蘇3	120 ka	阿蘇3C火砕流堆積物	スコリア	53-57 %
		阿蘇3B火砕流堆積物	スコリア>軽石	59-65 %
		阿蘇3A火砕流堆積物	軽石>>スコリア	63-69 %
		阿蘇3W降下軽石層	軽石	69-70%
阿蘇3/2		降下火砕物	軽石	
阿蘇2	140ka	阿蘇2T降下スコリア層	スコリア	57 %
		阿蘇2B火砕流堆積物	スコリア	56-60 %
		阿蘇2A火砕流堆積物	スコリア>軽石	66 %
		阿蘇2TL降下軽石層	軽石	66 %
		阿蘇2R火砕流堆積物		61 %
		阿蘇2V降下スコリア層	スコリア	61 %
赤井火山	150 ka	赤井火砕丘, 砥川溶岩	溶岩, スコリア	58-59 %
阿蘇2/1		溶岩, 降下火砕物	溶岩, スコリア	54-62 %
阿蘇1	270 ka	阿蘇1火砕流堆積物	軽石>>スコリア	66-68, 55 %
		阿蘇1降下軽石層	軽石	
古閑溶岩	270 ka	溶岩	溶岩	57%

化学分析値は、鎌田 (1997), 黒川ほか(2012), 松本(1974), 宮縁ほか(2004b), 水田ほか(1990), 小野・渡辺 (1985), 小野ほか (1977), 田島・小屋口 (1994), Kaneko et al. (2007, 2015)などによる。



図 2.2-a-1 阿蘇 4 火砕流基底の降下軽石層

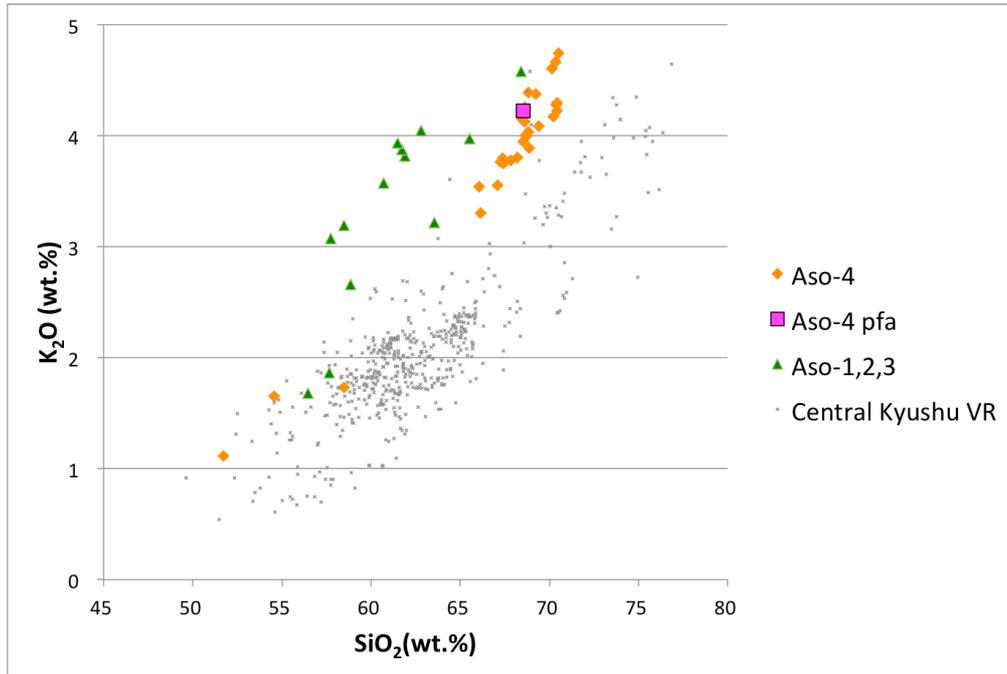


図.2.2-a-2 阿蘇 4 基底の降下軽石と阿蘇火砕流堆積物の全岩化学組成

引用文献

- 鎌田浩毅(1997) 宮原地域の地質. 地域地質研究報告(5万分の1地質図幅), 地質調査所, 127p.
- Hunter, A. G. (1998) Intracrustal controls on the coexistence of tholeiitic and calc-alkaline magma series at Aso volcano, SW Japan. *Jour. Petrol.*, 39, 1255-1284.
- 星住英夫(1990) 阿蘇-4/3 降下火砕物-阿蘇-4 噴出以前の阿蘇火山活動史. 日本火山学会 1990 年度春季大会講演予稿集, 92.
- 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. *Jour. Volcanol. Geotherm. Res.*, vol.167, p.160-180.
- Kaneko, K., Inoue, K., Koyaguchi, T., Yoshikawa, M., Shibata, T., Takahashi, T. and Furukawa, K. (2015) Magma plumbing system of the Aso-3 large pyroclastic eruption cycle at Aso volcano, Southwest Japan: Petrological constraint on the formation of a compositionally stratified magma chamber. *Jour. Volcanol. Geotherm. Res.*, vol.303, p.41-58.
- 黒川 聖・長谷中利昭・森 康(2012)阿蘇-4 火砕流噴火直前に流出した高遊原溶岩の岩石学的特徴. 日本火山学会講演予稿集, 2012, p. 160.
- 松本幡郎(1974) 砥川溶岩について. 火山, 第2集, vol. 19, p. 19-24.
- 宮縁育夫・増田直朗・渡辺一徳(2004) 溶岩流とテフラとの層序関係からみた阿蘇火山中央火口丘群西部地域の発達史. 火山, vol.49, p. 267-282.
- 水田敏夫・小畑正明・江上桂子(1990) 砥川安山岩溶岩中の気泡の形態と分布. 火山, 第2集, vol. 35, p. 249-262.
- 小野晃司・渡辺一徳(1985) 阿蘇火山地質図. 火山地質図, no.4, 地質調査所.
- 小野晃司・松本徭夫・宮久三千年・寺岡易司・神戸信和(1977) 竹田地域の地質. 地域地質研究報告(5万分の1図幅), 地質調査所, 145p.
- 田島靖久・小屋口剛博(1994) Aso-1 火砕流のマグマ溜り構造と噴火過程. 地球惑星科学関連学会合同大会予稿集, 1994, p. 389.

2. 2-b 阿蘇カルデラ後カルデラ噴出物の鉱物・ガラス化学組成

【実施内容】

平成 26 年度は阿蘇の最初の火砕流噴火である阿蘇 1 噴火に注目し、新たに発見された露頭で採取された阿蘇 1 火砕流噴火直前の降下火砕物を用いて、阿蘇 1 火砕流噴火をひきおこした大規模珪長質マグマだまりの温度圧力条件を熱力学的に推定するために必要な、噴出物の全岩・鉱物・ガラス化学組成分析と微細組織観察を行なった。今年度は阿蘇カルデラの活動全体を通した、マグマだまりの深さの時間変化の概要を知る目的で、後カルデラ期噴出物に注目し、昨年度予察的な分析を行った後カルデラ期噴出物の中から全岩化学組成が最も苦鉄質／珪長質な 2 試料を代表として選び出し、鉱物とガラスの化学組成分析を行った。

【研究成果】

産総研が保管していた阿蘇 4 よりも後の降下火砕物(試料番号 Aso A-C, Aso N4 Lower, Aso N4 Upper, Aso N6 Lower, Aso N6 Upper, Aso P2-A, Aso P2-dark, Aso P2-white, Aso P4, Aso P6, Aso S4, Aso S4 Lower, Aso S7, Aso S9, Aso S11, Aso S14, Aso S17B, Aso S18, Aso S29, Aso S41, Aso S43)の全岩化学組成を、昨年度分析した(産総研, 2015)。阿蘇の後カルデラ期噴出物の全岩化学組成分析値は、 SiO_2 濃度が 48~65 wt.%の範囲に広く分布している(図 2.2-b-1)。これらの中から最も苦鉄質なマグマ試料(Aso S11)と最も珪長質な試料(Aso P2F)を、それぞれ後カルデラ期の端成分マグマとみなして、斑晶累帯構造の観察と、鉱物・ガラス化学組成を分析した。

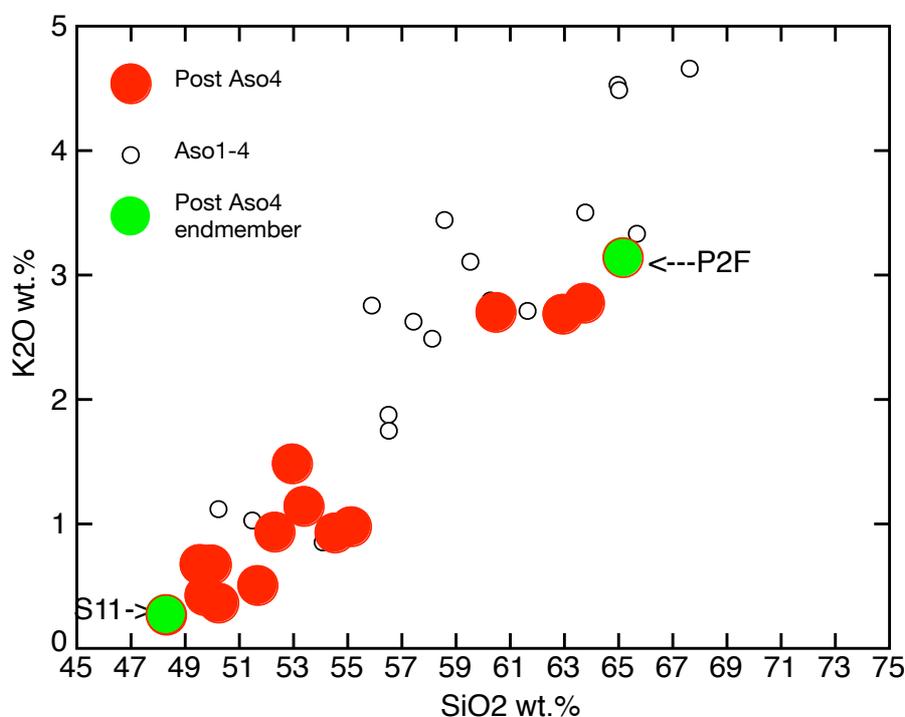


図 2.2-b-1: 阿蘇のカルデラ期(阿蘇 1~阿蘇 4)および後カルデラ期噴出物の全岩 K_2O と SiO_2 組成。後カルデラ期噴出物の中から全岩化学組成が最も苦鉄質／珪長質な 2 試料を端成分とみなし、それぞれ S11, P2F と呼ぶ。

試料調整

噴出物の化学分析の前処理は以下のとおりで、基本的に産総研（2015）と同じである。試料約 500 グラムを 90℃の恒温乾燥機で一晩かけて乾燥後に重量を測定した。次に水が濁らなくなるまで純水を交換しながら 30～120 分間超音波洗浄したのち 90℃の恒温乾燥機で一晩かけて乾燥させて重量を測定し、250 μ m, 500 μ m, 1mm, 2mm, 4mm, 8mm, 16mm のふるいで粒径を分けた。500～1000 μ m 区間の粒子については、実体顕微鏡で観察を行なうとともに、デジタル顕微鏡による光学像の撮影を行ない、表面に新鮮なガラスが付着している粒子をピンセットで選り分けて、直径 1 インチ厚み 6mm のガラス円盤上にエポキシ樹脂(ペトロポキシ 154)で固定し、ガラス原面から研磨仕上げ面までの距離が約 370 μ m(平均粒径のおよそ半分)となるように、マイクロメータで厚みを確認しながら、400 番～15000 番の固定砥粒研磨フィルムを用いて削剥研磨した。

分析

地質調査総合センターの EPMA(JEOL JXA-8900)を用いて、研磨片全体の走査電子顕微鏡像を撮影した。EPMA の撮影条件は、電子プローブの加速電圧が 15kV, 試料電流は 12nA, 試料面上におけるプローブ径は 0 μ m(focused beam), コントラストはざらつきが生じない範囲で最大とした。1 ピクセルの大きさが 1x1 μ m で 1000x1000 ピクセルからなるデジタル反射電子像を、1000 μ m 間隔で基盤の目状に撮影した。さらに同一の撮影位置について、輝度を輝石用と斜長石の観察用に最適化した二枚の画像を取得し、それらをハイパーテキストで連結させることにより、分析位置の把握と、ガラス、斜長石、そして輝石の組成累帯構造の観察と、輝石と鉄チタン酸化物鉱物の識別を迅速に行なえるようにした(Appendix 2.2-b-1)。EPMA の元素(Si, Ti, Al, Fe, Mn, Mg, Ca, Na, K, S, Cl, F)分析の条件は、加速電圧が 15kV, 試料電流が 12nA, 試料面上におけるプローブ径が 4 μ m, 補正計算が ZAF 法である。電子ビームの直径を広げることと、ビーム照射直後の 4 秒間に Na に信号を検出することにより、Na 計量の時間変化の影響を軽減した。分析および観察方法は基本的に Miyagi et al. (2012)と同じである。EPMA 分析位置は斜長石とガラスに最適化された反射電子像の上に記録した (Appendix 2.2-b-2)。

反射電子像の観察

後カルデラ期に噴出した苦鉄質マグマ端成分試料 (S11) から無作為に取り出した斑晶の種類は、少なくなる順に、輝石、斜長石、かんらん石であった。一方珪長質端成分試料 (P2F) の斑晶は斜長石、輝石である。珪長質端成分マグマ中の輝石は苦鉄質マグマのものに比べて小型で、斜長石に包有された集斑晶として産することが多い (図 2.2-b-2, 図 2.2-b-4-(1))。斜長石の累帯構造は、両端成分ともに正累帯構造が大半であった (図 2.2-b-3)。輝石・かんらん石斑晶の累帯構造は、珪長質マグマでは比較的均質でガラス包有物も少ないのに対し、苦鉄質マグマのものはガラス包有物の数が比較的多く、組成累帯構造が正累帯と逆累帯構造が混在しており (図 2.2-b-4-(2))、特に斑晶の最外周にみられる 10～100 ミクロン程度の薄い組成累帯構造は、斑晶内部との間で元素拡散しているように見えるものもある。これらの観察結果から、苦鉄質マグマの噴火前には、比較的短い時間の間に、温度の異なる複数のマグマの混合が起きたことが示唆される。

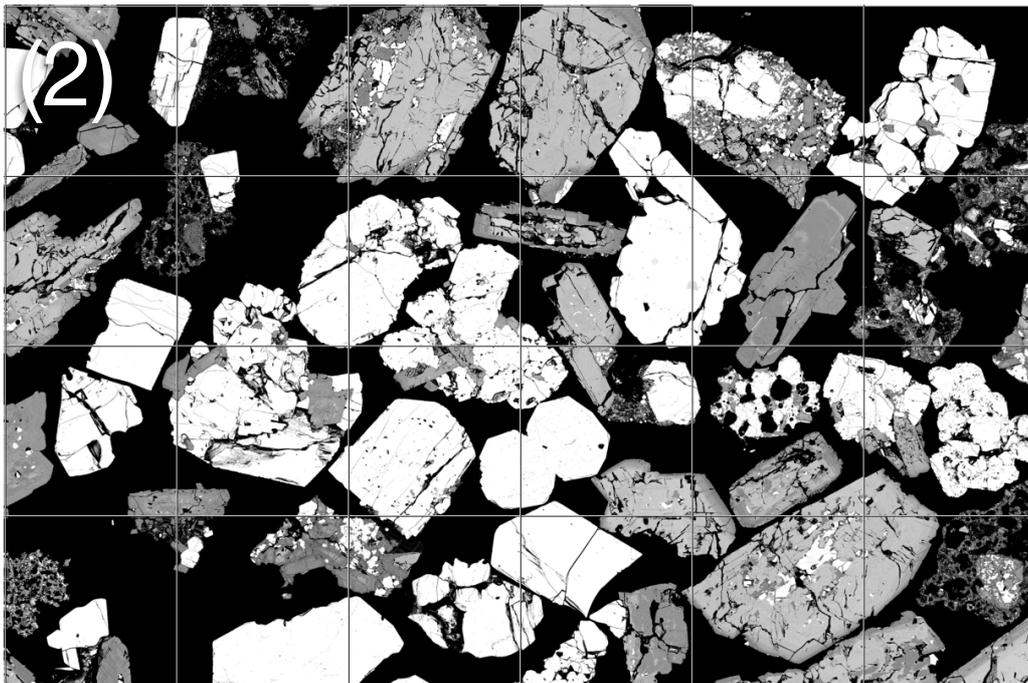
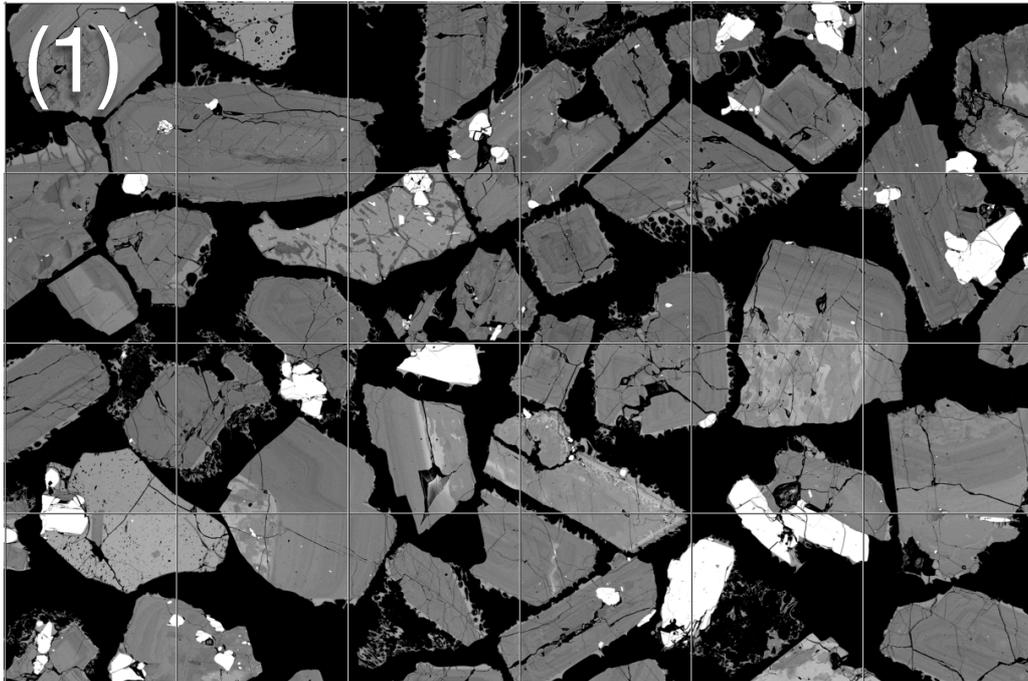


図 2.2-b-2: 阿蘇の後カルデラ期噴出物に含まれる斑晶の反射電子像. (1)珪長質端成分P2Fの斑晶. (2) 苦鉄質端成分S11の斑晶. 画像中のメッシュは 1mm.

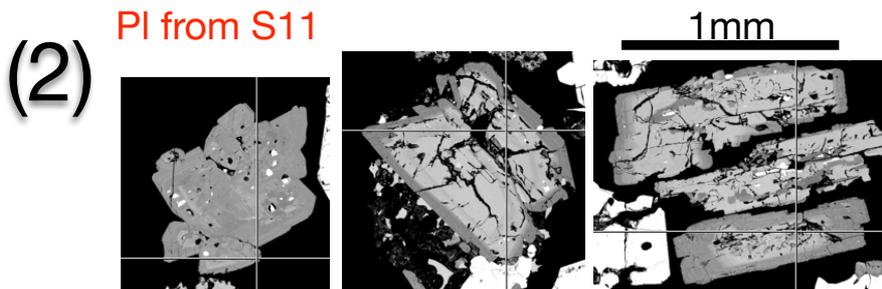
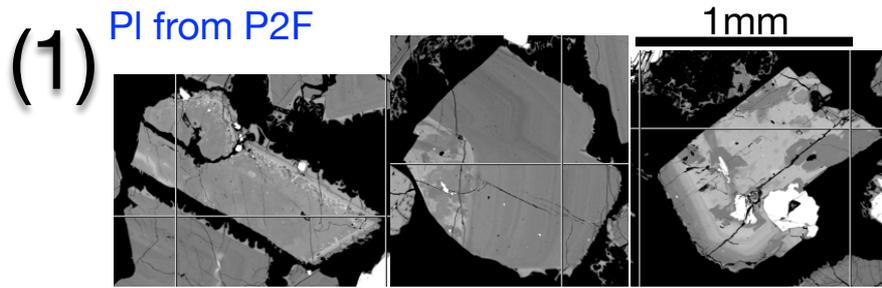


図 2.2-b-3: 阿蘇の後カルデラ期噴出物に含まれる斜長石斑晶の反射電子像の拡大図. (1) 珪長質端成分P2Fの斑晶. (2) 苦鉄質端成分S11の斑晶.

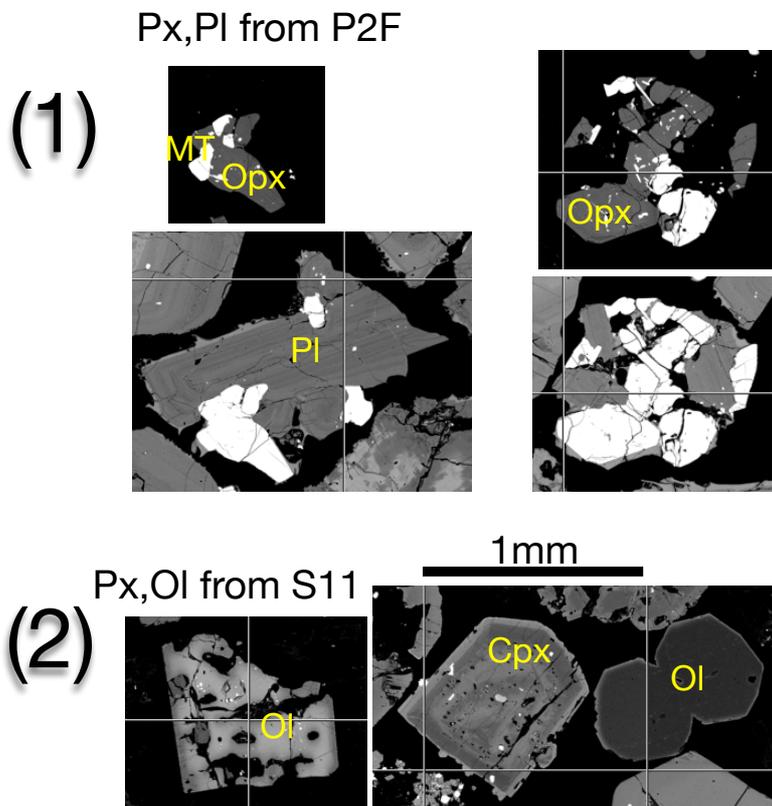


図 2.2-b-4: 阿蘇の後カルデラ期噴出物に含まれる斑晶の反射電子像の拡大図. (1) 珪長質端成分P2Fの斑晶. 上下段で輝度を変えて撮影. (2) 苦鉄質端成分S11の斑晶.

鉱物・ガラスの化学組成

上述の反射電子像の観察結果に基づいて EPMA を用いて鉱物とガラスの化学組成を分析した。標準試料も含めた 446 点の分析結果のなかから相ごとに分析値を 3 つ以内選び出し（代表的なものを 1 つ、両極端なものを 2 つ）、表 2.2-b-1（珪長質端成分マグマ P2F）と表 2.2-b-2（苦鉄質端成分マグマ S11）に分け、100wt.% にノーマライズした分析値を示す。相の略記は、Ap がアパタイト、Cpx が単斜輝石、Hb が角閃石、Il がイルメナイト、MC および MG は石基のガラス（MC はそのなかで特に、斑晶の凹部に存在するガラス）、MI_Cpx は単斜輝石中のガラス包有物、MI_Ol はかんらん石中のガラス包有物、MI_Opx は斜方輝石中のガラス包有物、MI_Pl は斜長石中のガラス包有物、MT は磁鉄鉱、Ol はかんらん石、Opx は斜方輝石、Pl は斜長石、である。これらのうち苦鉄質／珪長質端成分マグマの両方に含まれる相は、斜長石、単斜輝石、斜方輝石、磁鉄鉱、そしてガラスである。珪長質端成分マグマには含まれるが苦鉄質端成分マグマでは見つけられなかった相は、アパタイトとイルメナイトである。逆に苦鉄質端成分マグマには含まれるが珪長質マグマでは見つけられなかった相は角閃石とかんらん石である。珪長質端成分マグマには単斜輝石と斜方輝石が含まれているにもかかわらず、これらに包有される斑晶ガラス包有物を見つけてことができなかつた。斜長石斑晶は、両端成分マグマに共通な、ガラス包有物の母斑晶である。斜長石斑晶の化学組成分析値の最頻値は、苦鉄質端成分マグマ S11 では約 An57 (図 2.2-b-5-(1) の 390 番分析点)、珪長質端成分マグマ P2F では約 An47 である (図 2.2-b-5-(2) の 200 番分析点)。全岩化学組成における端成分マグマであるにもかかわらず、斜長石の An 組成最頻値の差は僅か 10 程度であった。これに対し、同一試料に含まれる斜長石の An 値の幅は広く、苦鉄質端成分マグマでは最高値が An92.9 (分析 I D : MG72_390,) と最頻値より約 36 高い。珪長質端成分マグマにおいても、最高値は An91.0 (分析 I D : MG72_200) と最頻値よりも 44 高い。

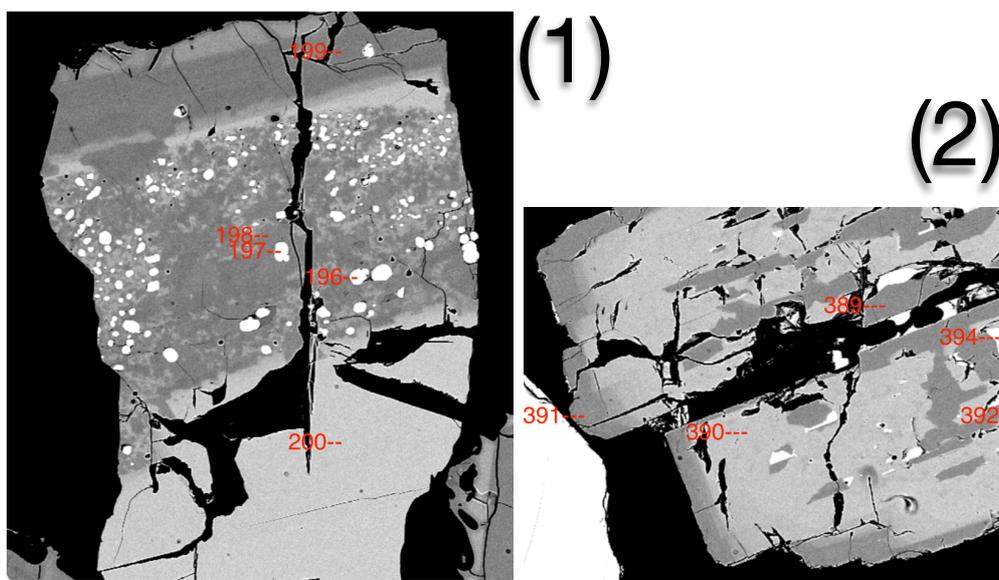


図 2.2-b-5: 阿蘇の後カルデラ期噴出物に含まれる斜長石斑晶の分析位置の反射電子像。(1)珪長質端成分P2Fの斜長石斑晶。(2)苦鉄質端成分S11の斜長石斑晶。

表 2.2-b-1: 珪長質端成分P2Fの EPMA 分析結果.

Phase	SiO2	TiO2	Al2O3	FeO	MnO	MgO	CaO	Na2O	K2O	P2O5	SO3	F	Cl	sum	Anal.ID	Comment
Ap	0.264	0.046	0.000	0.935	0.104	0.269	53.495	0.165	0.037	41.203	0.120	2.898	0.465	100.000	MG72_424	P2F Ap onthe MT on PI 20gif
Ap	0.276	0.002	0.009	0.328	0.121	0.287	54.676	0.092	0.012	41.372	0.158	2.210	0.456	100.000	MG72_045	P2F MT inthe pl 3gif
Ap	0.206	0.015	0.013	0.723	0.086	0.257	53.428	0.123	0.011	40.883	0.147	3.656	0.452	100.000	MG72_161	P2F MT onthe Px rim 28gif
Cpx	52.434	0.567	1.753	8.457	0.519	15.108	20.773	0.377	0.008	0.000	0.003	0.000	0.000	100.000	MG72_222	P2F Px inthe PI 45gif
Cpx	52.917	0.464	1.345	8.512	0.605	15.306	20.484	0.364	0.000	0.000	0.004	0.000	0.001	100.000	MG72_206	P2F Px onthe hof MI in pl 38gif
Cpx	53.169	0.350	1.535	8.265	0.570	15.132	20.663	0.306	0.002	0.000	0.000	0.000	0.008	100.000	MG72_197	P2F Px wthe MT in PI 34gif
IL	0.048	44.256	0.311	50.176	0.882	4.284	0.033	0.005	0.000	0.000	0.000	0.000	0.006	100.000	MG72_262	P2F MT inthe MG 58gif
IL	0.007	44.555	0.364	49.777	0.905	4.295	0.091	0.000	0.002	0.000	0.003	0.000	0.000	100.000	MG72_061	P2F MT onthe pl 5gif
IL	0.005	44.493	0.333	50.028	0.837	4.250	0.041	0.008	0.000	0.000	0.001	0.000	0.004	100.000	MG72_153	P2F MT w Px on pl 22gif
MC	70.025	0.686	15.680	2.728	0.093	0.648	1.922	3.747	4.188	0.000	0.060	0.108	0.117	100.000	MG72_071	P2F MC in pl 6gif
MG	71.428	0.665	14.854	2.526	0.113	0.419	1.300	3.716	4.765	0.000	0.000	0.133	0.082	100.000	MG72_131	P2F hof PI in gl 16gif
MG	69.697	0.752	15.508	2.756	0.057	0.667	1.962	4.125	4.125	0.000	0.038	0.199	0.115	100.000	MG72_215	P2F MG on pl 43gif
MI.PI	68.182	0.799	15.764	3.622	0.092	0.963	2.338	3.501	4.210	0.000	0.105	0.268	0.156	100.000	MG72_028	P2F mi inthe pl 1gif
MI.PI	70.363	0.704	15.639	2.741	0.119	0.732	1.902	3.309	4.142	0.000	0.049	0.185	0.115	100.000	MG72_121	P2F MI? in pl 15gif
MI.PI	69.618	0.672	15.502	2.788	0.071	0.710	1.774	4.142	4.427	0.000	0.038	0.142	0.115	100.000	MG72_234	P2F MI? It inthe PI 52gif
MT	0.127	9.925	3.004	82.925	0.676	2.985	0.249	0.109	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	100.000	MG72_196	P2F MT in PI 34gif
MT	0.088	12.787	2.556	80.391	0.790	3.154	0.144	0.085	0.000	0.000	0.005	0.000	0.000	100.000	MG72_026	P2F mt inc inthe pl 1gif
MT	0.066	13.346	2.582	80.049	0.807	3.083	0.010	0.039	0.000	0.000	0.019	0.000	0.000	100.000	MG72_147	P2F MT inthe gl 21gif
Opx	53.732	0.307	0.660	17.904	1.040	24.788	1.503	0.065	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	100.000	MG72_164	P2F hof MT on Px rim 28gif
Opx	53.704	0.355	1.197	16.844	0.761	25.601	1.484	0.047	0.005	0.000	0.002	0.000	0.000	100.000	MG72_090	P2F Px in pl 8gif
Opx	52.812	0.464	1.621	18.491	0.928	23.954	1.690	0.032	0.000	0.000	0.008	0.000	0.000	100.000	MG72_066	P2F Px inthe MG of obs 5gif
PI	60.649	0.061	24.164	0.340	0.000	0.017	6.475	7.267	0.954	0.000	0.000	0.073	0.000	100.000	MG72_114	P2F dk rim pl 11gif
PI	56.501	0.026	26.979	0.578	0.003	0.007	9.764	5.677	0.388	0.000	0.007	0.068	0.001	100.000	MG72_213	P2F hof MG on pl 43gif
PI	45.763	0.015	34.351	0.400	0.027	0.019	18.272	0.999	0.029	0.000	0.000	0.124	0.000	100.000	MG72_200	P2F hof Px wthe MT in PI 34gif

表 2.2-b-2: 苦鉄質端成分P2Fの EPMA 分析結果.

Phase	SiO2	TiO2	Al2O3	FeO	MnO	MgO	CaO	Na2O	K2O	P2O5	SO3	F	Cl	sum	Anal.ID	Comment
Cpx	52.181	0.399	2.264	9.290	0.256	15.911	19.417	0.222	0.000	0.000	0.000	0.055	0.004	100.000	MG72_335	S11 Cpx dk core in scoria 95gif
Cpx	51.568	0.656	2.252	11.782	0.352	14.442	18.582	0.355	0.006	0.000	0.002	0.000	0.002	100.000	MG72_365	S11 Cpx lt rim on Pl 116gif
Cpx	51.235	0.679	2.867	10.784	0.279	15.110	18.713	0.334	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	100.000	MG72_352	S11 hof MI in Cpx 115gif
Hb	52.729	2.234	11.743	16.154	0.284	4.442	7.694	2.448	1.496	0.592	0.025	0.087	0.072	100.000	MG72_392	S11 Hb inthe Pl 124gif
Hb	52.629	2.244	11.347	15.706	0.267	4.920	8.255	2.394	1.408	0.635	0.029	0.082	0.085	100.000	MG72_394	S11 Hb inthe Pl 124gif
MG	66.055	0.958	14.750	5.703	0.119	1.164	3.359	3.398	4.135	0.126	0.030	0.096	0.106	100.000	MG72_362	S11 MG on Pl 116gif
MG	57.994	1.161	15.368	9.399	0.145	2.979	6.419	3.519	2.583	0.215	0.018	0.137	0.065	100.000	MG72_348	S11 MG scoria 114gif
MG	57.933	1.244	15.561	9.416	0.202	2.957	6.417	3.255	2.579	0.204	0.023	0.145	0.064	100.000	MG72_349	S11 MG scoria 114gif
MI_Cpx	54.380	1.508	14.645	13.304	0.226	3.141	6.559	3.814	1.743	0.315	0.211	0.078	0.076	100.000	MG72_351	S11 MI in Cpx 115gif
MI_Cpx	64.131	0.782	14.890	6.390	0.166	1.634	4.244	3.520	3.723	0.236	0.095	0.081	0.107	100.000	MG72_329	S11 same MI in Cpx 89gif
MI_Cpx	58.823	1.442	15.521	8.941	0.129	2.665	6.721	3.625	1.559	0.363	0.072	0.063	0.077	100.000	MG72_344	S11 sm MI in Cpx 97gif
MI_OI	56.035	1.201	16.566	10.557	0.214	3.110	7.361	3.496	1.188	0.179	0.002	0.045	0.045	100.000	MG72_374	S11 MI in OI 120gif
MI_OI	50.484	1.069	17.797	11.438	0.148	3.939	11.273	2.529	0.635	0.000	0.593	0.031	0.065	100.000	MG72_405	S11 MI in OI 128gif
MI_OI	50.852	1.000	17.604	11.064	0.163	4.889	10.138	3.008	0.695	0.006	0.471	0.050	0.061	100.000	MG72_398	S11 same MI in OI 125gif
MI_Opx	60.250	1.140	15.447	8.196	0.175	2.335	5.285	3.678	3.027	0.144	0.160	0.076	0.087	100.000	MG72_314	S11 MI in Opx 80gif
MI_Opx	60.341	1.092	15.598	8.278	0.149	2.408	5.117	3.656	2.857	0.202	0.158	0.053	0.090	100.000	MG72_331	S11 MI in Opx 89gif
MI_Opx	60.118	1.142	15.609	8.259	0.126	2.392	5.240	3.615	2.971	0.189	0.160	0.092	0.087	100.000	MG72_315	S11 same MI in Opx 80gif
MI_Pl	60.476	1.320	15.028	8.246	0.186	2.083	5.307	3.228	3.426	0.335	0.104	0.143	0.118	100.000	MG72_299	S11 MI? inthe Pl 69gif
MI_Pl	60.679	1.246	15.077	8.309	0.177	2.168	5.142	3.073	3.444	0.359	0.102	0.105	0.119	100.000	MG72_295	S11 MI? inthe Pl 69gif
MI_Pl	62.008	1.223	14.970	7.342	0.175	2.017	4.998	3.331	3.599	0.362	0.087	0.083	0.107	100.000	MG72_297	S11 MI? inthe Pl 69gif
MT	0.173	13.545	3.666	78.756	0.332	3.078	0.437	0.004	0.000	0.000	0.008	0.000	0.000	100.000	MG72_346	S11 MT inthe Cpx 97gif
MT	0.123	13.399	3.344	79.795	0.425	2.881	0.016	0.000	0.000	0.000	0.014	0.000	0.004	100.000	MG72_363	S11 MT on Pl 116gif
MT	0.146	8.991	5.339	81.120	0.306	3.975	0.099	0.023	0.000	0.000	0.000	0.000	0.002	100.000	MG72_376	S11 MT on Pl 120gif
OI	38.399	0.000	0.021	21.931	0.364	39.136	0.149	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	100.000	MG72_399	S11 hof MI in OI 125gif
OI	39.172	0.011	0.000	19.742	0.240	40.634	0.190	0.003	0.008	0.000	0.000	0.000	0.000	100.000	MG72_312	S11 hof MI in OI 76gif
OI	37.100	0.013	0.110	30.677	0.440	31.251	0.363	0.028	0.005	0.000	0.013	0.000	0.000	100.000	MG72_393	S11 OI inthe Pl 124gif
Opx	53.681	0.270	1.229	17.809	0.461	24.704	1.775	0.069	0.000	0.000	0.002	0.000	0.000	100.000	MG72_317	S11 hof dk core MI in Opx 80gif
Opx	52.519	0.364	0.897	21.586	0.596	19.284	4.681	0.072	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	100.000	MG72_308	S11 lt. core Pl in clot 75
Opx	53.468	0.132	0.441	20.022	0.623	23.547	1.704	0.063	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	100.000	MG72_282	S11 Opx in clot 67gif
Pl	53.666	0.061	28.365	1.296	0.038	0.083	11.897	4.260	0.260	0.000	0.011	0.060	0.002	100.000	MG72_391	S11 Pl dk rim 124gif
Pl	56.227	0.074	26.843	1.020	0.007	0.063	9.893	5.212	0.614	0.000	0.003	0.041	0.002	100.000	MG72_280	S11 Pl dk rim in clot 67gif
Pl	45.704	0.012	34.214	0.742	0.000	0.000	18.449	0.767	0.024	0.000	0.001	0.079	0.008	100.000	MG72_390	S11 Pl lt core patch 124gif

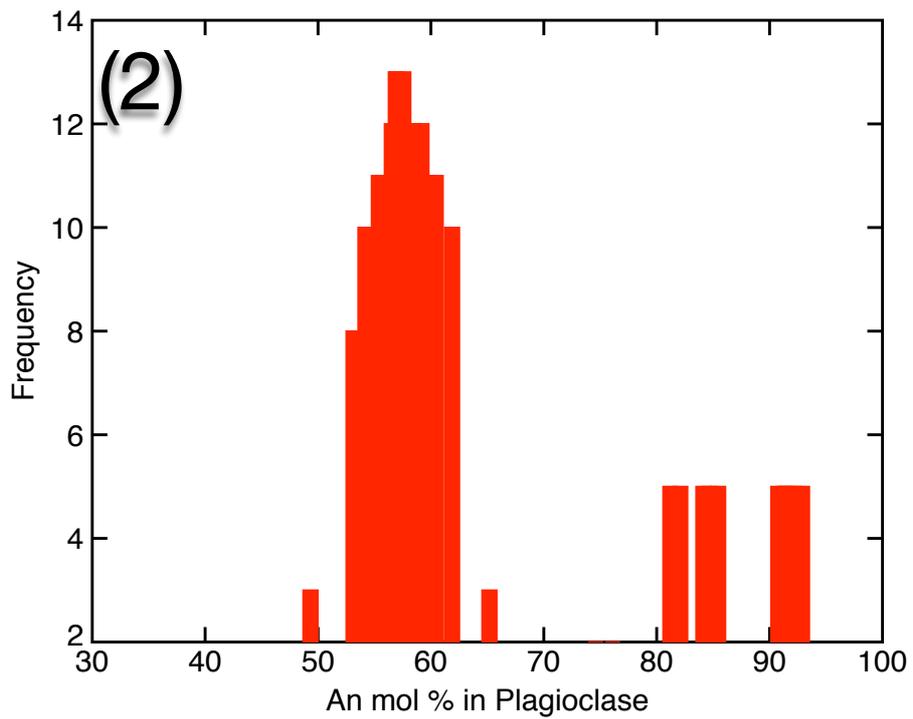
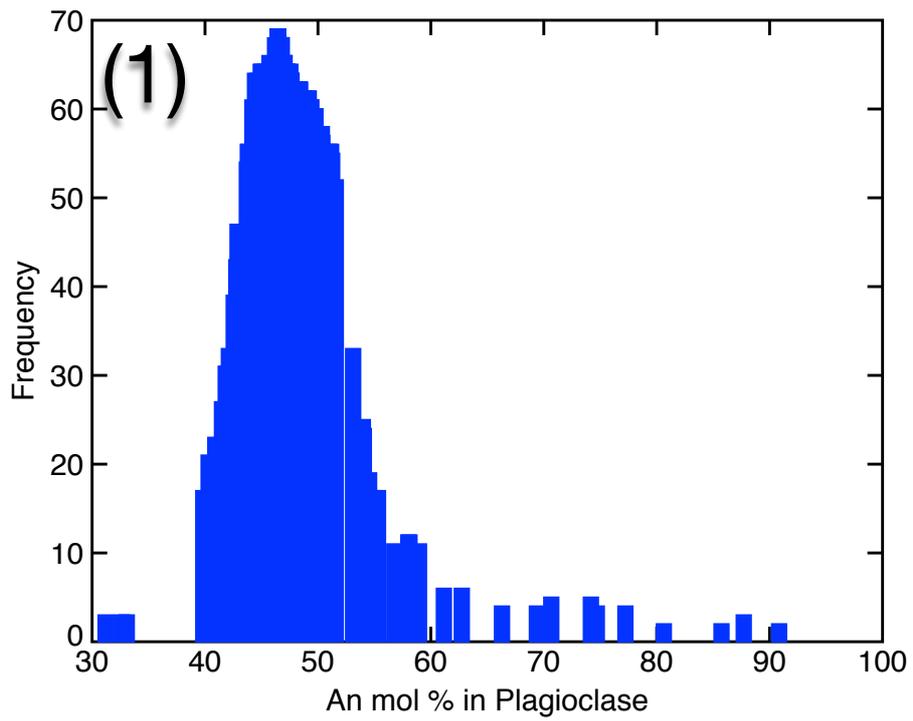


図 2.2-b-6: 阿蘇の後カルデラ期噴出物に含まれる斜長石斑晶の化学分析値の頻度分布. (1) 珩長質端成分P2Fの斑晶. (2) 苦鉄質端成分S11の斑晶.

珪長質マグマの石基ガラスの組成は均質で、 SiO_2 濃度は 70 wt.%, 標準偏差 0.56 である。斑晶ガラス包有物の組成も同じ SiO_2 濃度であるがばらつきは石基ガラスに比較して大きく、標準偏差は 0.63 である。石基ガラスと斑晶ガラス包有物の両方を用いて頻度分布をとると、鋭いピークを示す (図 2.2-b-7)。珪長質マグマの石基ガラスの組成は、阿蘇 1 火砕流堆積物の直前に噴出した降下火砕物のもの (産総研, 2015 報告書) と比べて SiO_2 濃度が約 1wt.% 高く、 K_2O 濃度は約 1.5wt.% 低い。

苦鉄質マグマのメルトは、珪長質マグマのメルトが均質であることとは対照的に、広範囲の化学組成を持つ。斑晶メルト包有物の化学組成は母斑晶毎に異なり、かんらん石中は 50~53 wt.%, 単斜輝石中は 56~64 wt.% と広範囲、斜長石と単斜輝石中は 60~62 wt.%, そして石基ガラスが 58 wt.% であった (図 2.2-b-8)。カリウム (図 2.2-b-9) のハーカー図において、単斜輝石中のガラス包有物の一部 (2 分析値) は、かんらん石から伸ばした化学組成の線上に分布している。この線に沿った組成変化傾向は、 SiO_2 に対する K_2O 濃度の増加率が低いという点で、阿蘇の全岩化学組成の変化方向と大きく異なる。それら 2 分析値の ID は、319 番 (59.9 wt.% SiO_2 , 1.08 wt.% K_2O , 図 2.2-b-10-(1)) と 345 番 (55.7 wt.% SiO_2 , 0.89 wt.% K_2O , 図 2.2-b-10-(2)) である。かんらん石中のガラス包有物も、次に述べる 2 分析値を除くすべて、 SiO_2 に対する K_2O 濃度の増加率が低い (例えば分析 ID が 397 番は 51.0 wt.% SiO_2 , 0.7 wt.% K_2O ; 図 2.2-b-10-(4))。かんらん石から伸ばした化学組成の線からずれる 2 分析値の ID は、374 番 (56.0wt.% SiO_2 , 1.19wt.% K_2O , Appendix 2.2-b-2 の 120 ページ) と 395 番 (51.9 wt.% SiO_2 , 1.35 wt.% K_2O , 図 2.2-b-10-(4)) である。単斜輝石中のガラス包有物の大半は、かんらん石中のガラス包有物と阿蘇 1 のガラス組成を結ぶ線にそって分布するが、1 つだけ SiO_2 に対する K_2O 濃度の増加率が際だって大きいものも存在する (分析 ID289 番, 55.5wt.% SiO_2 , 3.47 wt.% K_2O , 図 2.2-b-10-(3))。このように、同じ母斑晶に、 K_2O 量が極端に異なるガラス包有物が含まれることがある (図 2.2-b-10-(4) の 395 番は 1.35wt.% K_2O で、397 番は 0.7 wt.% K_2O)。マグネシウム (図 2.2-b-11) のハーカー図において、苦鉄質端成分マグマの斑晶ガラス包有物の組成は 5.3 wt.% MgO (Appendix 2.2-b-2 の 65 ページ, 分析 ID276 番) の苦鉄質メルトを端成分にして、珪長質メルトの組成に向かって直線的に分布している。ただしかんらん石中のガラス包有物の分析値はそれより傾斜が急な、かんらん石の化学組成から伸ばした線上に分布している。 MgO の急激な変化は、メルトからかんらん石の化学成分が除去あるいは付加したことを示す。具体的には、マグマからかんらん石 (約 39 wt.% MgO) が晶出したか、あるいはガラス包有物の生成後に、包有物と直接接しているかんらん石斑晶の内壁で結晶化が起きたためだと解釈できる。チタン (図 2.2-b-12) のハーカー図において斑晶ガラス包有物は、 SiO_2 組成の上昇とともに一旦急上昇し、単斜輝石中のガラス包有物 (55.5wt.% SiO_2 , 1.87wt.% TiO_2 ; 分析 ID289 番, 図 2.2-b-10-(3)) で極大となり、珪長質メルトの組成に向かって直線的に減少する。硫黄 (図 2.2-b-13) のハーカー図において斑晶ガラス包有物の硫黄濃度は、かんらん石を母斑晶とする 0.7wt.% SO_3 のものを最大値として、急激に減少したのち、 SiO_2 の上昇とともに珪長質メルトの組成に向かってゆるやかに減少する。

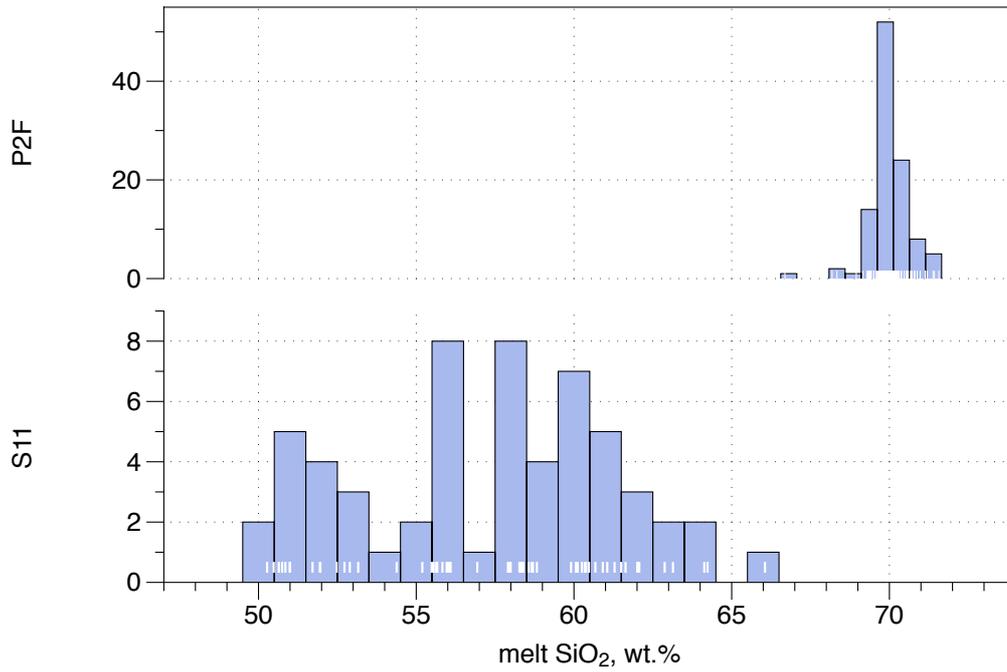


図 2.2-b-7: 阿蘇の後カルデラ期噴出物の斑晶ガラス包有物の SiO₂ 濃度分析値のヒストグラム. 赤線は(1)珪長質端成分P2Fの斑晶. (2) 苦鉄質端成分S11の斑晶.

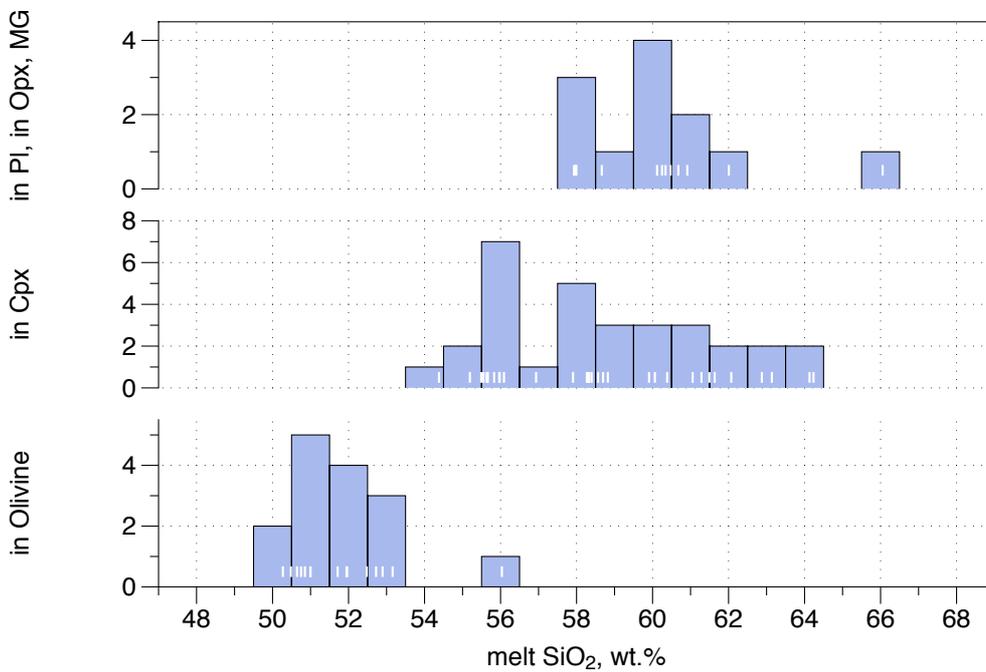


図 2.2-b-8: 阿蘇の後カルデラ期の苦鉄質端成分S11の噴出物の斑晶ガラス包有物の SiO₂ 濃度分析値のヒストグラム. 母斑晶はかんらん石 (in Olivine), 単斜輝石 (inCpx), 斜方輝石 (inOPX), 斜長石 (inPl).

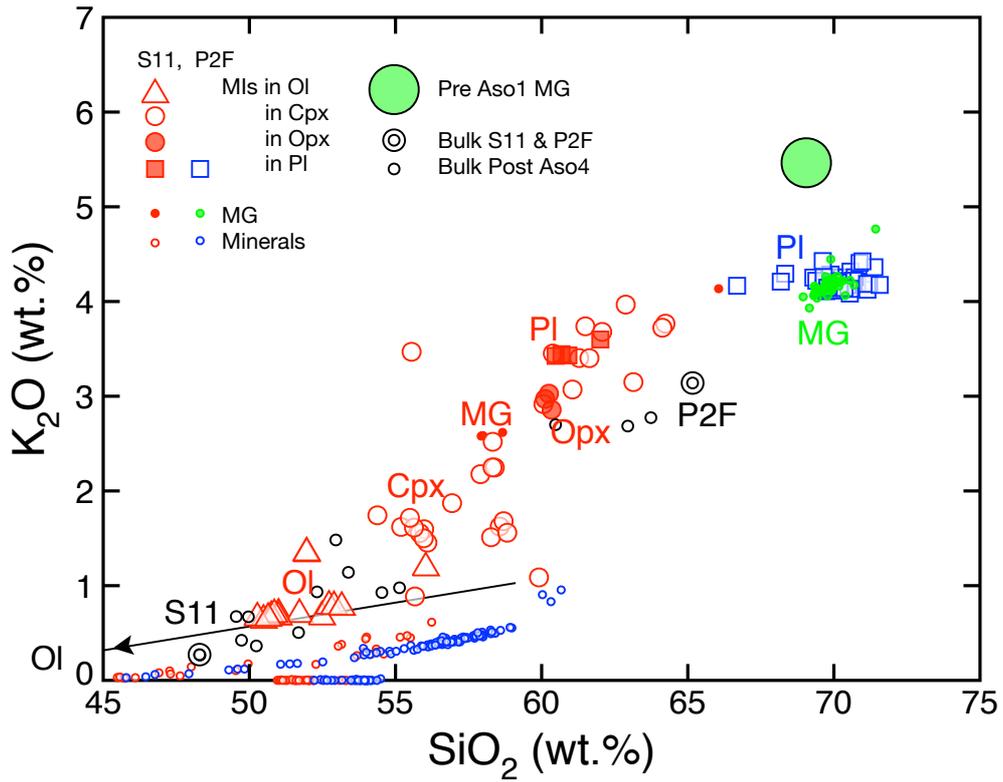


図 2.2-b-9: 阿蘇の後カルデラ期の噴出物の鉱物・ガラスの K_2O と SiO_2 濃度

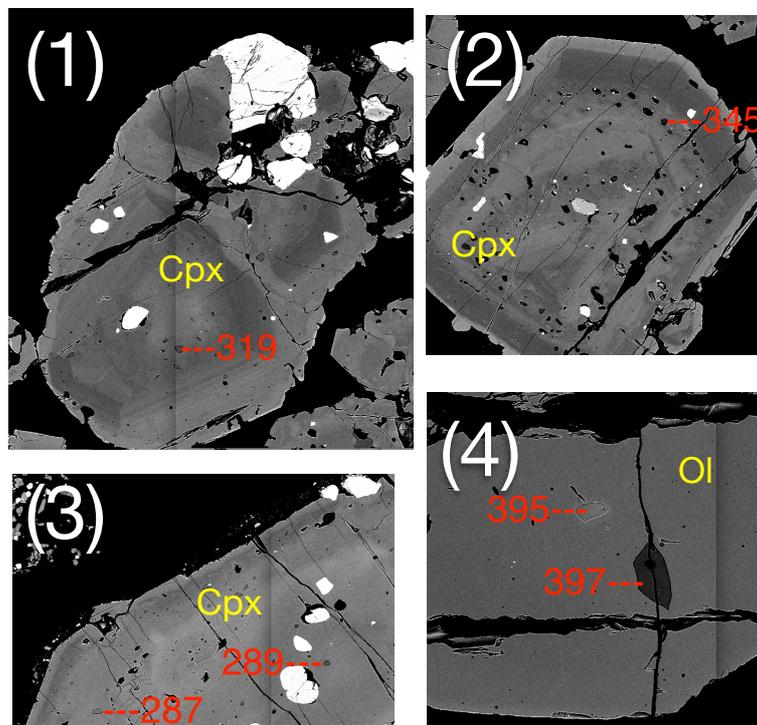


図 2.2-b-10: 阿蘇の後カルデラ期の苦鉄質端成分マグマS11の単斜輝石((1)~(3))とかんらん石(4)の反射電子像. 赤字の番号は EPMA による分析IDである(本文参照).

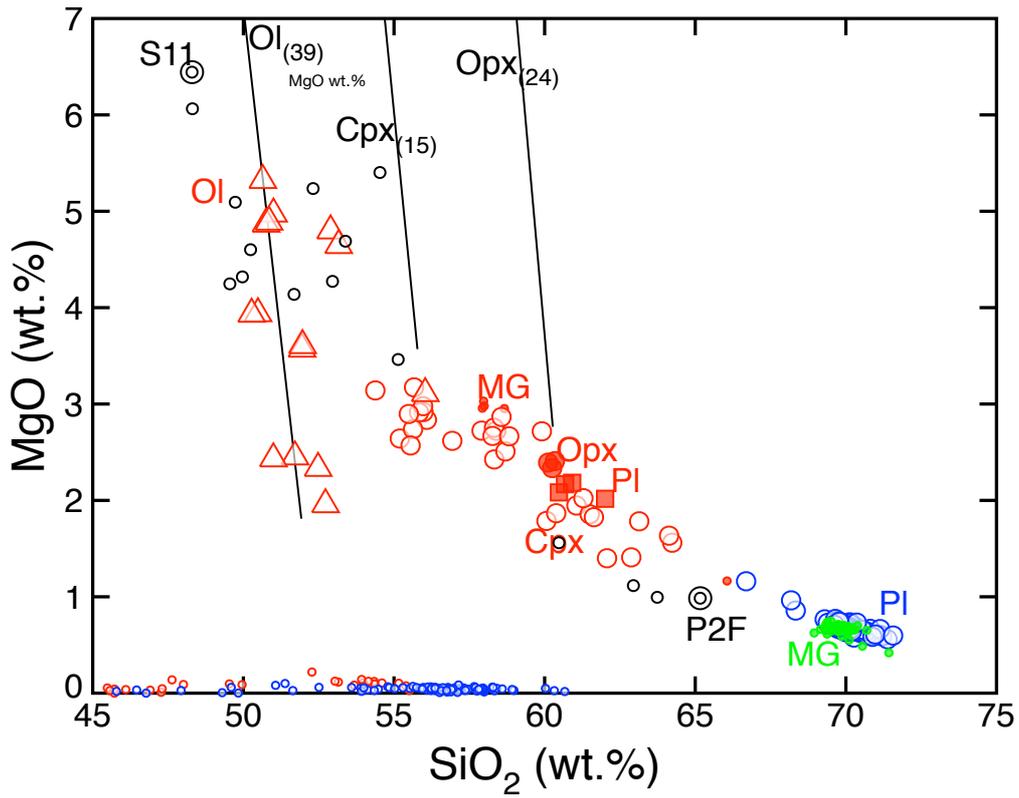


図 2.2-b-11: 阿蘇の後カルデラ期の噴出物の鉱物・ガラスの MgO と SiO₂ 濃度.

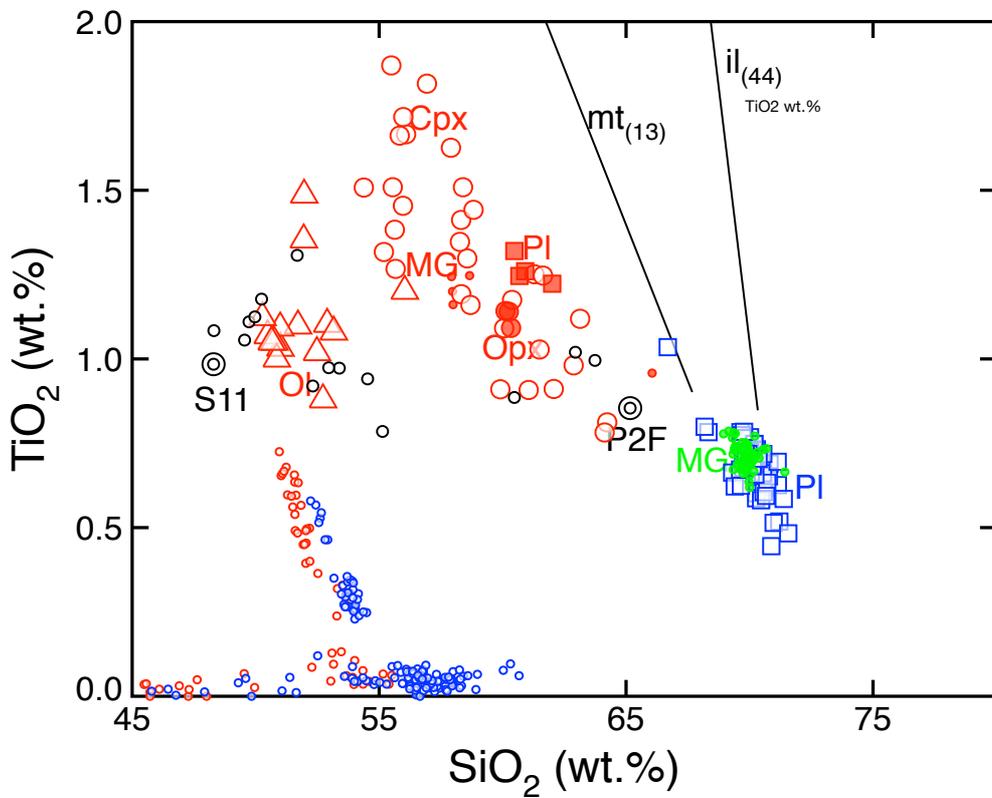


図 2.2-b-12: 阿蘇の後カルデラ期の噴出物の鉱物・ガラスの TiO₂ と SiO₂ 濃度.

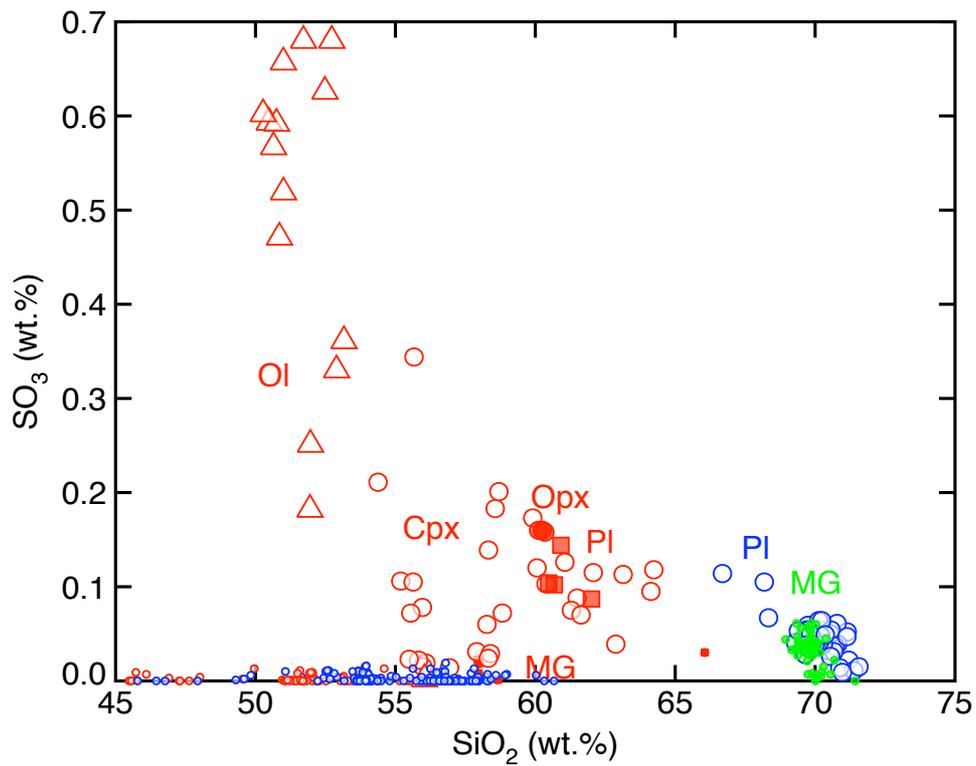


図 2.2-b-13: 阿蘇の後カルデラ期の噴出物の鉱物・ガラスの SO₃ と SiO₂ 濃度.

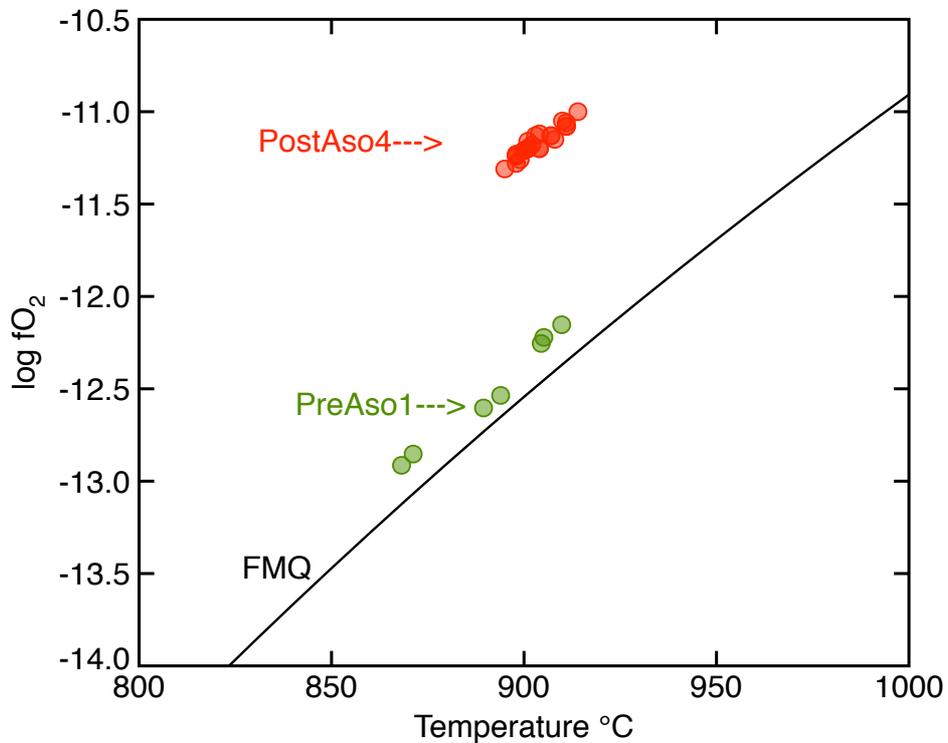


図 2.2-b-14: マグマの鉄チタン鉱物化学組成から推定される, マグマの温度と酸素分圧. 赤塗り円は阿蘇の後カルデラ期の噴出物の珪長質端成分マグマP2Fを示す. 緑塗り円は, 比較のために示した阿蘇1火砕流堆積物直前の降下火砕物のものである.

噴火前のマグマの温度

阿蘇の後カルデラ期噴出物の苦鉄質端成分マグマでは、反射電子像の観察の結果、正逆両方の組成累帯構造を持つ苦鉄質斑晶が存在し、特に斑晶周縁部に10~100ミクロン程度の薄い組成累帯構造が観察された。このことから、噴火前の比較的短い期間に温度の異なる複数のマグマの混合が起きたことが示唆される。これに加え、斑晶ガラス包有物が幅広い組成分布を持つことから、苦鉄質端成分マグマでは組成の異なるマグマが混合したことが裏付けられた。噴火前のマグマの温度の時間的空間的不均質が大きいと考えられる場合には、マグマの温度を一つに決めることが出来ない。それにくわえ、噴火前のマグマ温度見積りに適する鉄チタン鉍物温度計を適用するために必要な、イルメナイトが見つからないため、苦鉄質端成分マグマの温度を見積もることは困難である。

一方、今回観察した後カルデラ期噴出物の珪長質端成分マグマは、斑晶の組成累帯構造が基本的に正累帯構造で、あるいは組成累帯が弱く、石基ガラスの組成は均質で、かつ、斑晶ガラス包有物の組成ともほぼ一致していることから、マグマの温度は空間的に比較的均質だったと考えられる。珪長質端成分マグマP2Fには鉄チタン鉍物温度計に必要な二つの鉍物（マグネタイトとイルメナイト）が含まれている。そこで、観測された鉄チタン鉍物の化学組成を、鉍物温度計ILMAT (Lepage,2003)に適用したところ、珪長質マグマの温度は $903\pm 5^{\circ}\text{C}$ 程度、酸素分圧はFMQ+1ログユニット程度と推定された(図2.2-b-14)。後カルデラ期噴出物の珪長質端成分マグマの温度は阿蘇1(産総研,2015;温度は $885\pm 20^{\circ}\text{C}$ 、酸素分圧はFMQ+0.2ログユニット)に比べて温度のばらつきが少なく、 10°C 程度高温で、酸素分圧は約1桁高いことが判明した。阿蘇のマグマの温度は、阿蘇2から阿蘇4に向かって輝石温度が低下する傾向があるが(金子ほか,2006;古川ほか,2006)、観測された温度の大半は $900\sim 1000^{\circ}\text{C}$ の間に集中しているから、本研究が得た $903\pm 5^{\circ}\text{C}$ は先行研究と調和的である。

まとめ

阿蘇の後カルデラ期噴出物の中から全岩化学組成が最も苦鉄質/珪長質な試料をそれぞれ苦鉄質/珪長質端成分マグマの代表として選び出し、鉍物とガラスの化学組成分析を行った。反射電子像を用いた組成累帯構造の観察と、鉍物・斑晶ガラス包有物の組成分析の結果、苦鉄質端成分マグマでは温度の異なる複数のマグマの混合が起きたことが示唆され、珪長質端成分噴出物は温度が均質なマグマからもたらされたことが示唆された。珪長質端成分マグマの噴火前の温度を鉍物温度計に適用したところ、温度は $903\pm 5^{\circ}\text{C}$ 程度、酸素分圧はFMQ+1ログユニット程度と推定された。

文献

- 古川邦之・金子克哉・小屋口剛博・鎌田浩毅（2006）阿蘇火山における大規模および小規模噴火活動の岩石学的特徴. 月刊地球, 28, 386-391.
- 金子克哉・小屋口剛博・古川邦之（2006）阿蘇火山におけるマグマ供給系の長期的変化. 月刊地球, 28, 67-74.
- Lepage, L. D. (2003). ILMAT: an excel worksheet for ilmenite–magnetite geothermometry and geobarometry. *Comput. Geosci.*, 29(5):673–678.
- Miyagi, I., Itoh, J., Hoang, N., and Morishita, Y. (2012). Magma systems of the Kutcharo and Mashu volcanoes (NE Hokkaido, Japan): Petrogenesis of the medium-K trend and the excess volatile problem. *J. Volcanol. Geotherm. Res.*, 231-232:50–60.
- 産業技術総合研究所（2014）平成 26 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（2015）平成 27 年度 火山影響評価に係る技術的知見の整備.

2.2-c 阿蘇カルデラ噴出物の熱力学解析

【実施内容】

阿蘇の後カルデラ期噴出物の端成分マグマの化学分析から得られたパラメータ(全岩化学組成, メルト化学組成, 鉱物化学組成, 温度, 酸素分圧)を用いて, 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) を用いた熱力学解析を行ない, 観測されたマグマの化学組成や温度と比較することにより, 噴火前のマグマの深度(圧力)と含水量を推定する.

【研究成果】

MELTS の熱力学解析に用いた出発物質は, 後カルデラ期噴出物の珪長質端成分マグマ P 2 F および苦鉄質端成分マグマ S 1 1 である (図 2.2-b-1). 化学組成を表 2.2-c-1 に示す. 2016 年 1 月現在配布されている MELTS には幾つものバージョンが存在し, それぞれ熱力学計算の前提が異なっている. rhyolite-MELTS v. 1.0.2 (Gualda et al., 2012) はライオライトメルツの初期バージョンすなわち従来のメルツに対して石英の晶出温度補正を行なったものである. ただし, 水の溶解度モデルは古く, 複数のガス成分の混合に関する配慮はされていなかった. rhyolite-MELTS v. 1.1.0 はバージョン 1.0.2 に対して複数のガス成分の混合の効果を追加したが, 古い水の溶解度モデルを使っていた. 本研究で使用した rhyolite-MELTS v. 1.2.0 はバージョン 1.1.0 に対してより苦鉄質およびアルカリ質なマグマに関する熱力学的パラメータの最適化を行なったことに加えて, 新しい水の溶解度モデルを使っている. 本研究では Rhyolite-MELTS の起動, 計算条件の読み込み, エラー処理を別途開発したスクリプト言語で制御することにより, 様々な全岩含水量, 酸素分圧, 二酸化炭素量, 圧力での網羅的な計算を実行した. 具体的には, 1 つの全岩化学組成に対し, 温度は 700-1400°C の範囲(1°C 刻み), 圧力は 1 気圧から 1000 気圧の範囲(100 気圧刻み), 含水量は 0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5, 1.0, 1.5, 2.0, 2.5, 3.0, 3.5, 4.0, 4.5, 5.0, 6.0, 8.0, 10 重量%, 酸素分圧は FMQ~FMQ+4 ログユニット変化させて, 計算を行なった. 二酸化炭素の含有量は 0.001, 0.01, 0.1 重量%の三段階変化させたが, 今年度は 0.001 重量%についてのみ報告する. 温度・圧力・含水量・二酸化炭素量・酸素分圧の組み合わせの数は 1785 万通りである. 得られた膨大なデータの中からメルツの化学組成 (Al_2O_3 , CaO , FeO , FeO/MgO 比, K_2O , MgO , MnO , Na_2O , SiO_2 , TiO_2) および量, 粘性, 密度, そして鉱物の重量 (**AmP** (角閃石; 熱力学的な構成要素は cummingtonite = $\text{Mg}_7\text{Si}_8\text{O}_{22}(\text{OH})_2$, ferropargasite = $\text{NaCa}_2\text{Fe}^{2+}_4\text{AlAl}_2\text{Si}_6\text{O}_{22}(\text{OH})_2$, grunerite = $\text{Fe}^{2+}_7\text{Si}_8\text{O}_{22}(\text{OH})_2$, magnesiohastingsite = $\text{NaCa}_2\text{Mg}_4\text{Fe}^{3+}\text{Al}_2\text{Si}_6\text{O}_{22}(\text{OH})_2$, pargasite = $\text{NaCa}_2\text{Mg}_4\text{AlAl}_2\text{Si}_6\text{O}_{22}(\text{OH})_2$, tremolite = $\text{Ca}_2\text{Mg}_5\text{Si}_8\text{O}_{22}(\text{OH})_2$), **Bi** (黒雲母; 熱力学的な構成要素は annite = $\text{KFe}^{2+}_3\text{Si}_3\text{AlO}_{10}(\text{OH})_2$, phlogopite = $\text{KMg}_3\text{Si}_3\text{AlO}_{10}(\text{OH})_2$), **Cpx** (単斜輝石; 熱力学的な構成要素は diopside = $\text{CaMgSi}_2\text{O}_6$, clinoenstatite = Mg_2SiO_6 , hedenbergite = $\text{CaFe}^{2+}\text{Si}_2\text{O}_6$, alumino-buffonite = $\text{CaTi}_{0.5}\text{Mg}_{0.5}\text{AlSiO}_6$, buffonite = $\text{CaTi}_{0.5}\text{MgFe}^{3+}\text{SiO}_6$, essenite = $\text{CaFe}^{3+}\text{AlSiO}_6$, jadeite = $\text{NaAlSi}_2\text{O}_6$), **Cor** (コランダム; 熱力学的な構成要素は corundum = Al_2O_3), **Pl** (斜長石; 熱力学的な構成要素は albite = $\text{NaAlSi}_3\text{O}_8$, anorthite = $\text{CaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$, sanidine = KAlSi_3O_8), **AqFl** (過飽和水; aqueous fluid = H_2O), **Gt** (ざくろ石; 熱力学的な構成要素は almandine = $\text{Fe}^{2+}_3\text{Al}_2\text{Si}_3\text{O}_{12}$, grossular = $\text{Ca}_3\text{Al}_3\text{Si}_3\text{O}_{12}$, pyrope = $\text{Mg}_3\text{Al}_2\text{Si}_3\text{O}_{12}$), **Lct** (リュー

サイト;熱力学的な構成要素は leucite = KAlSi_2O_6 , analcime = $\text{NaAlSi}_2\text{O}_5(\text{OH})_2$, na-leucite = $\text{NaAlSi}_2\text{O}_6$, **Nep**(かすみ石; 熱力学的な構成要素は na-nepheline = $\text{Na}_4\text{Al}_4\text{Si}_4\text{O}_{16}$, k-nepheline = $\text{K}_4\text{Al}_4\text{Si}_4\text{O}_{16}$, vc-nepheline = $\text{Na}_3\text{Al}_3\text{Si}_5\text{O}_{16}$, ca-nepheline = $\text{CaNa}_2\text{Al}_4\text{Si}_4\text{O}_{16}$), **Mus**(白雲母; 熱力学的な構成要素は muscovite = $\text{KAl}_2\text{Si}_3\text{AlO}_{10}(\text{OH})_2$), **Ol**(橄欖石;熱力学的な構成要素は tephroite = Mn_2SiO_4 , fayalite = $\text{Fe}^{2+}_2\text{SiO}_4$, Co-olivine = Co_2SiO_4 , Ni-olivine = Ni_2SiO_4 , monticellite = CaMgSiO_4 , forsterite = Mg_2SiO_4), **Opx**(斜方輝石;熱力学的な構成要素は diopside = $\text{CaMgSi}_2\text{O}_6$, clinoenstatite = Mg_2SiO_6 , hedenbergite = $\text{CaFe}^{2+}\text{Si}_2\text{O}_6$, alumino-buffonite = $\text{CaTi}_{0.5}\text{Mg}_{0.5}\text{AlSiO}_6$, buffonite = $\text{CaTi}_{0.5}\text{MgFe}^{3+}\text{SiO}_6$, essenite = $\text{CaFe}^{3+}\text{AlSiO}_6$, jadeite = $\text{NaAlSi}_2\text{O}_6$), **Qz**(石英; quartz = SiO_2), **Oxide**(菱面体晶の酸化物;熱力学的な構成要素は gielite = MgTiO_3 , hematite = Fe_3O_3 , ilmenite = $\text{Fe}^{2+}\text{TiO}_3$, pyrophanite = MnTiO_3), **Rtl**(ルチル; rutile = TiO_2); **Sil**(珪線石; sillimanite = Al_2SiO_5), **Sp**(スピネル;熱力学的な構成要素は chromite = MgCr_2O_4 , hercynite = $\text{Fe}^{2+}\text{Al}_2\text{O}_4$, magnetite = $\text{Fe}^{2+}\text{Fe}^{3+}_2\text{O}_4$, spinel = MgAl_2O_4 , ulvospinel = $\text{Fe}^{+2}_2\text{TiO}_4$), **Wlk**(ウィットロカイト; whitlockite = $\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2$), および化学組成(斜長石の An 組成, 橄欖石の Fo 組成, スピネルの Al_2O_3 組成)を, GMT プログラム(Wessel and Smith, 1998)と, 別途開発したスクリプト言語を用いて温度・圧力平面上に等高線として表現し, ハイパーテキストのリンク機能で多数のグラフを関連づけた (Appendix2.2-c-1). さらに, いくつかの有用なパラメータを直接切り出すことにより, マグマの圧縮性(バルクモジュラス)の圧力・含水量依存性などのグラフを作成した.

表 2.2-c-1: マグマの熱力学解析計算ソフトウェアMELTSに用いた出発物質の化学組成. S11は阿蘇の後カルデラ期噴出物の苦鉄質端成分マグマを示し, P2Fは珪長質端成分マグマを示す(章 2.2-b 参照).

Compo ID	SiO2	TiO2	Al2O3	tFeO	MnO	MgO	CaO	Na2O	K2O	P2O5	sum
Aso_S11	48.29	0.98	19.80	11.98	0.19	6.44	9.87	2.05	0.27	0.10	100.00
Aso_P2-F	65.16	0.85	17.87	4.79	0.14	0.99	2.91	3.91	3.14	0.23	100.00

熱力学解析結果

MELTS の出力例を表 2.2-c-2 に示す. 出発物質 P 2 F, 圧力 4.0kbar, 含水量 3 wt.%, 二酸化炭素 0.001 wt.%, 温度 900°Cの条件における, メルトの熱力学的なパラメータがテキスト形式で出力されている. 1 番は計算結果の識別子, 2 番は温度, 3 番は圧力, 4 番は酸素分圧, 5 番は系に含まれるメルトの重量, 6 番はメルトの比重, 7~25 番はメルトの化学組成, 26 番はメルトのギブスエネルギー, 27 番はメルトのエンタルピー, 28 番はメルトのエントロピー, 29 番はメルトの体積, 30 番はメルトの比熱, 31~49 番はそれぞれメルト中の熱力学的コンポーネントの活量, 50 番はメルトの粘性, 51~57 番はそれぞれ系に含まれるメルト以外の相の重量, 比重, ギブスエネルギー, エンタルピー, エントロピー, 体積, 比熱, 58~66 番は系のギブスエネルギー, エンタルピー, エントロピー, 体積, 比熱, 体積膨張係数, 体積圧縮係数, 線膨張係数, 圧縮率, 67~70 番はメルトの体積膨張係数, 体積圧縮係数, 線膨張係数, 圧縮率, である. 他の鉱物(角閃石, 黒雲母, 他)も表 2.2-c-2 と同様の出力がある.

表 2.2-c-2: マグマの熱力学解析計算ソフトウェアMELTSの出力例.

#	内容	値	#	内容	値	#	内容	値	#	内容	値
1	Index	501	20	wt% P2O5	0.3117	39	activity NiSi0.5O2	7.65E-06	57	sol Cp (J/K)	3.18E+01
2	T (C)	900	21	wt% H2O	4.1116	40	activity CoSi0.5O2	3.44E-06	58	sys G (kJ)	-1.61E+03
3	P (kbars)	4	22	wt% CO2	0.0014	41	activity CaSiO3	1.45E-02	59	sys H (kJ)	-1.32E+03
4	log(10) f O2	-11.169	23	wt% SO3	0.0001	42	activity Na2SiO3	4.87E-06	60	sys S (J/K)	2.53E+02
5	liq mass (gm)	7.30E+01	24	wt% Cl2O-1	0.0001	43	activity KAlSiO4	6.34E-03	61	sys V (cc)	4.14E+01
6	liq rho (gm/cc)	2.2923	25	wt% F2O-1	0.0001	44	activity Ca3(PO4)2	3.89E-01	62	sys Cp (J/K)	1.32E+02
7	wt% SiO2	67.9343	26	liq G (kJ)	-1.20E+03	45	activity CO2	3.41E-05	63	sys dVdT (cc/K)	3.44E-03
8	wt% TiO2	0.5344	27	liq H (kJ)	-9.75E+02	46	activity SO3	1.32E-06	64	sys dVdP (cc/bar)	-3.04E-04
9	wt% Al2O3	15.9084	28	liq S (J/K)	1.94E+02	47	activity Cl2O-1	1.92E-06	65	sys alpha (1/K)	8.31E-05
10	wt% Fe2O3	0.4045	29	liq V (cc)	3.18E+01	48	activity F2O-1	4.80E-06	66	sys beta (1/bar)	7.35E-06
11	wt% Cr2O3	0	30	liq Cp (J/K)	1.01E+02	49	activity H2O	1.80E-01	67	liq dVdT (cc/K)	3.16E-03
12	wt% FeO	1.0271	31	activity SiO2	5.11E-01	50	liq vis (log 10 poise)	5.3726	68	liq dVdP (cc/bar)	-2.90E-04
13	wt% MnO	0.1839	32	activity TiO2	6.13E-02	51	sol mass (gm)	2.73E+01	69	liq alpha (1/K)	9.93E-05
14	wt% MgO	0.7423	33	activity Al2O3	3.80E-03	52	sol rho (gm/cc)	2.8511	70	liq beta (1/bar)	9.10E-06
15	wt% NiO	0.0001	34	activity Fe2O3	4.74E-03	53	sol G (kJ)	-4.10E+02			
16	wt% CoO	0.0001	35	activity MgCr2O4	5.95E-11	54	sol H (kJ)	-3.40E+02			
17	wt% CaO	1.8387	36	activity Fe2SiO4	2.69E-02	55	sol S (J/K)	5.96E+01			
18	wt% Na2O	2.9611	37	activity MnSi0.5O2	4.75E-03	56	sol V (cc)	9.57E+00			

阿蘇の後カルデラ期マグマだまりの深度（圧力）

Rhyolite-MELTS v. 1.2.0 (Ghiorso and Gualda, 2015) による出力結果を、既往文献のデータや本研究の分析値と比較することにより、マグマの温度・圧力・含水量に対して制約を与えることができる。阿蘇の後カルデラ期噴出物の珪長質端成分マグマは、メルト化学組成が比較的均質で (SiO₂ は 70 wt.%, 標準偏差 0.56), 鉄チタン鉱物の化学組成を鉱物温度計 ILMAT (Lepage, 2003) (Andersen and Lindsley, 1985 のモデルによる) に適用して得られたマグマの温度は 903±5°C程度, 酸素分圧は FMQ+1 ログユニット程度である (図 2.2-b-14)。そのため本報告では今年度新たに得られた酸素分圧(FMQ+1 ログユニット)における熱力学解析結果を用いる。

阿蘇の後カルデラ期噴出物の珪長質端成分マグマ P2F の石基ガラスのシリカ濃度が 70±0.6 wt.%と比較的狭い範囲に入ることと, K₂O 濃度が 4.1 wt.%になることから, 観測された珪長質マグマのメルト化学組成 (SiO₂=70wt.%, K₂O=4.1wt.%) を, 観測された温度酸素分圧条件で再現可能な全岩含水量は, 3.0-3.5wt.%と推定された。また圧力はおよそ 4kbar (3.5-4.5kbar) と見積もられた (図 2.2-c-1, 図 2.2-c-2)。観察されたメルトの MgO 量の比較からも, マグマの圧力は 5.5kbar 程度と見積もられた (図 2.2-c-3)。TiO₂量の比較からも, 5.5kbar~10kbar 程度の圧力が示された (図 2.2-c-4)。これらのことから, 後カルデラ期噴出物の珪長質端成分マグマ P2F の圧力は比較的高圧の 4~6kbar 程度だと考えるのが妥当である。しかしながら P2F に含まれる斜長石斑晶の化学組成は, 含水量 3 wt.%温度 900°Cの条件では再現できず (図 2.2-c-5), より高温 (図 2.2-c-5; 含水量 3 wt.%のマグマから 950~1000°Cで晶出), あるいは, より高含水量のマグマ (図 2.2-c-6) から斜長石が晶出したのかもしれない。斜長石中の元素拡散は遅いので, 晶出時の組成が長期間再平衡せずに保たれることは十分あり得る。

含水量 3 wt.%の場合珪長質端成分マグマのメルト量は 7 割程度あるいはそれ以上と見積もられ (図 2.2-c-7), 含水量 5 wt.%の場合はさらにメルト量が増えることから, 噴火前の珪長質端成分マグマ十分な流動性を確保していたと考えられる。

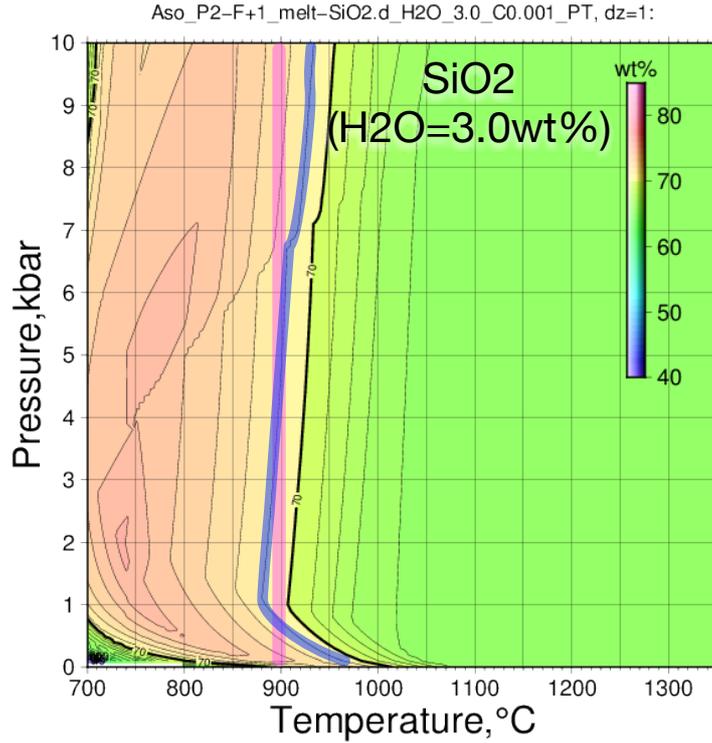


図 2.2-c-1: 阿蘇の後カルデラ期噴出物の珪長質端成分マグマP2Fに 3 wt.%の水を加えた際の、メルトのシリカ濃度の温度圧力依存性. 桃色太線は P2F の温度, 青色太線は観測された化学組成.

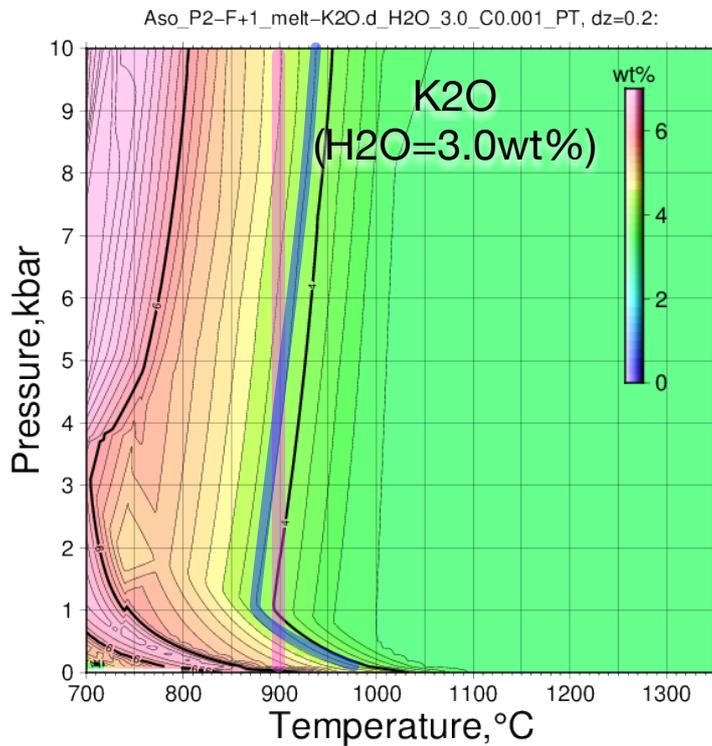


図 2.2-c-2: 阿蘇の後カルデラ期噴出物の珪長質端成分マグマP2Fに 3 wt.%の水を加えた際の、メルトのK₂O濃度の温度圧力依存性. 桃色太線は P2F の温度, 青色太線は観測された化学組成.

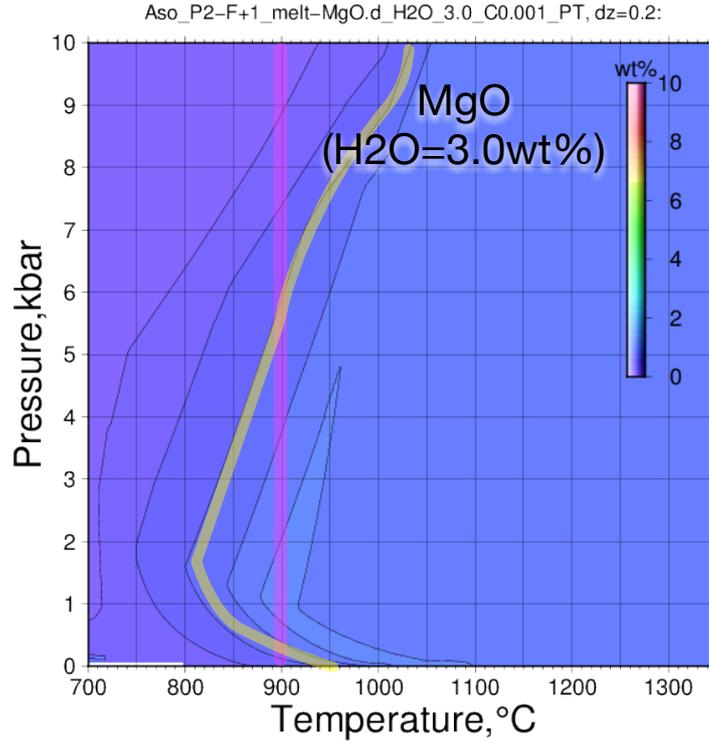


図 2.2-c-3: 阿蘇の後カルデラ期噴出物の珪長質端成分マグマP2Fに 3 wt.%の水を加えた際の、メルトの MgO 濃度の温度圧力依存性. 桃色太線は P2F の温度, 黄色太線は観測された化学組成.

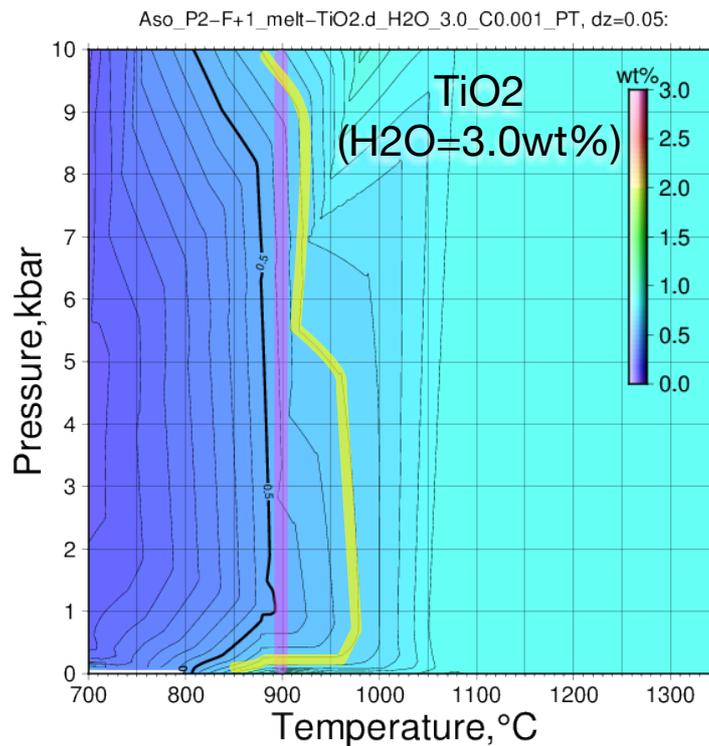


図 2.2-c-4: 阿蘇の後カルデラ期噴出物の珪長質端成分マグマP2Fに 3 wt.%の水を加えた際の、メルトの TiO₂ 濃度の温度圧力依存性. 桃色太線は P2F の温度, 黄色太線は観測された化学組成.

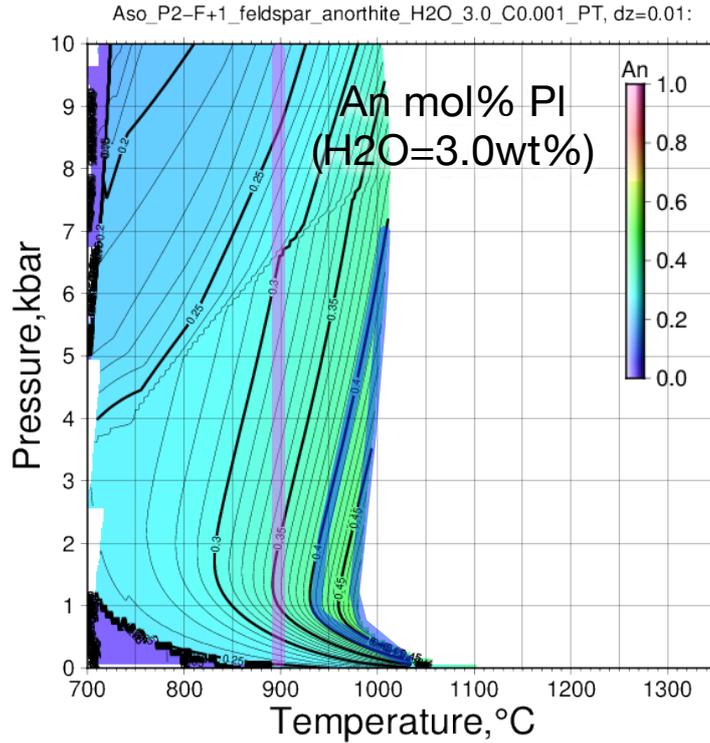


図 2.2-c-5:阿蘇の後カルデラ期噴出物の珪長質端成分マグマP2Fに 3 wt.%の水を加えた際の、斜長石の An 濃度の温度圧力依存性. 桃色太線は P2F の温度, 青色太線は観測された化学組成の範囲.

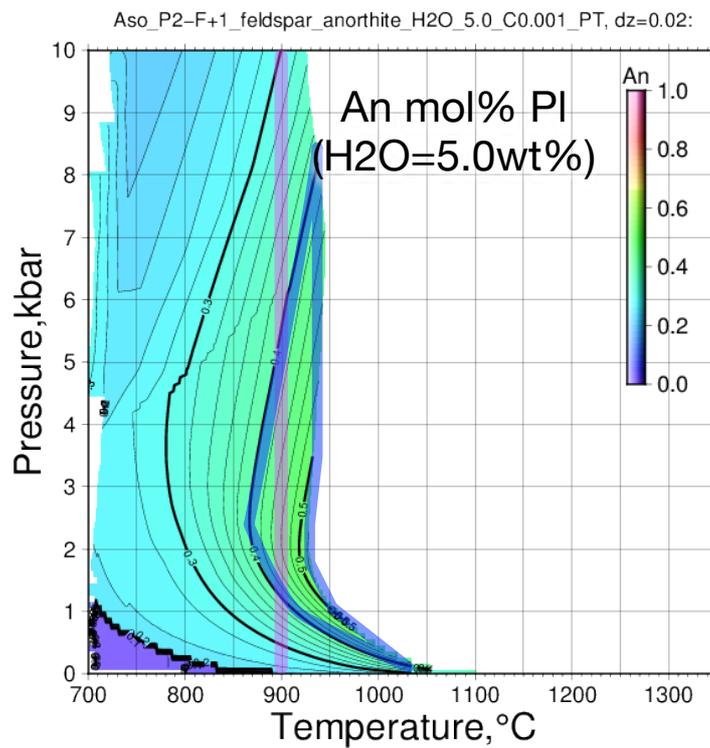


図 2.2-c-6:阿蘇の後カルデラ期噴出物の珪長質端成分マグマP2Fに 5 wt.%の水を加えた際の、斜長石の An 濃度の温度圧力依存性. 桃色太線は P2F の温度, 青色太線は観測された化学組成の範囲.

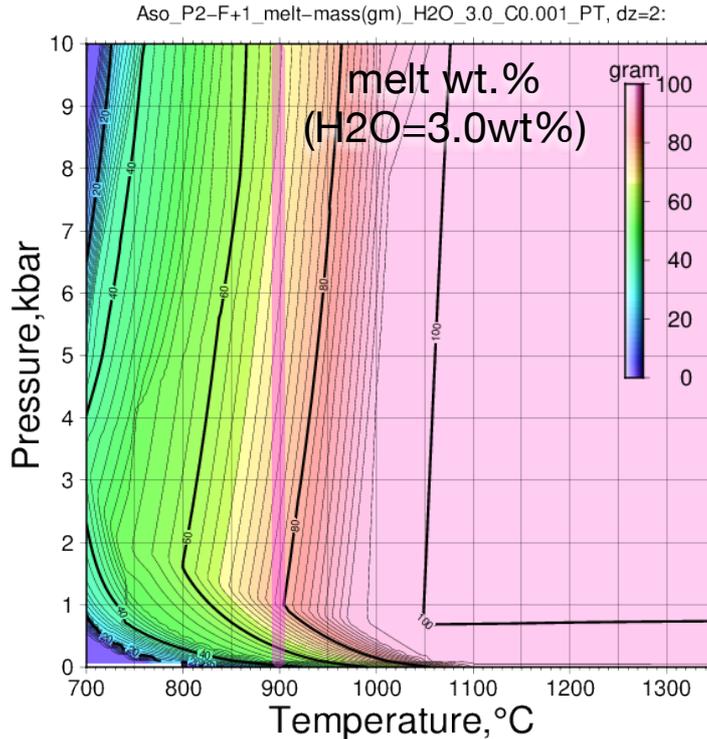


図 2.2-c-7: 阿蘇の後カルデラ期噴出物の珪長質端成分マグマP2Fに 3 wt.%の水を加えた際の、メルト量の温度圧力依存性. 桃色太線は P2F の温度.

珪長質端成分マグマの含水量推定値が 3 wt.%と比較的高含水量であったのに対し、苦鉄質マグマの含水量は 0.1 wt.%の程度である可能性が、以下のように示された. 苦鉄質端成分マグマ S11 のメルトの TiO_2 濃度は、 SiO_2 組成の増加とともに一旦急増し 1.87 wt.%程度に到達するが、さらに SiO_2 が増加すると減少し、珪長質メルトの TiO_2 組成に近い 0.6 wt.%に収斂する (章 2.2-b, 図 2.2-b-12). メルトの TiO_2 組成がマグマの結晶化とともに一旦増えその後減る現象は、マグマの含水量が少ないときに生じる. そのメカニズムは、含水量が少ないマグマにおいては輝石よりも先に斜長石が晶出するので TiO_2 がメルトに濃集される一方で、より低温になると TiO_2 を主成分とする鉍物 (磁鉄鉍やイルメナイト) が晶出し始めることによりメルト中から TiO_2 が急速に除去されるためである. 苦鉄質端成分 S 1 1 に 3 wt.%の水を加えた際のメルトの化学組成は、ごく浅い領域を除いて、温度低下とともに TiO_2 濃度が単調減少しており (図 2.2-c-8), 観測結果と合わない. これに対して S 1 1 に 0.1 wt.%の水を加えた場合には、幅広い圧力範囲で、温度低下とともに一旦 TiO_2 が増加後、 TiO_2 量が減少に転じており (図 2.2-c-9), 観測結果が再現される. つぎにメルトの K_2O 濃度も、苦鉄質マグマの含水量が少なかったことを示している. 具体的には、苦鉄質端成分 S 1 1 に 3 wt.%の水を加えた場合のメルト K_2O 量は、極浅い領域を除いて、あまり増加せず、4 wt.%に届くことはない (図 2.2-c-10). これに対して S 1 1 に 0.1 wt.%の水を加えた場合には、3~6kbar の圧力範囲で温度低下とともに増加し、900°Cにおけるメルトの K_2O 濃度は 4 wt.%以上となる (図 2.2-c-11). さらにメルトの MgO 濃度も、苦鉄質マグマの含水量が少なかったことを示す. 上と同様に S 1 1 に 3 wt.%の水を加えた際のメルトの MgO 量は、約 0.5~6kbar の広い圧力範囲において、観測された最低値を 900°C以上の温度で再現できない (図

2.2-c-12). これに対し S 1 1 に 0.1 wt.%の水を加えた場合には、図 2.2-c-13 に示したすべての圧力範囲で、観測された MgO 濃度の最低値が 900°C以上の温度で再現できる。苦鉄質端成分 S 1 1 の SiO₂組成の温度圧力依存性は、含水量が 3 wt.%の場合と 0.1 wt.%の場合の両方のケースで (図 2.2-c-14, 図 2.2-c-15), 温度 900°C以上の広い圧力範囲において、観測された SiO₂濃度を再現する。メルトの SiO₂組成に対する圧力の効果が小さいことを利用して温度を見積もると、4~6kbar の圧力範囲における苦鉄質マグマの最低温度は 950~1000°Cと考えられる。斜長石斑晶の An 組成も、以下のように、苦鉄質マグマが低含水量であることを示した。含水量が 3 wt.%の場合には、観測された斜長石 An 組成範囲が 900°C以上で再現できる圧力は 5~9kbar であるが (図 2.2-c-16), その際の温度はおよそ 950°C以下となり、SiO₂濃度から見積もられるマグマの最低温度よりも低温であるから、整合的でない。これに対し含水量が 0.1 wt.%の場合には、950~1000°Cの範囲でも観測された An 組成が再現される (図 2.2-c-17)。その際の圧力は 5.5~7.5kbar である。圧力 5~8kbar 温度 950~1000°Cにおける苦鉄質端成分マグマ S 1 1 の流動性は、含水量によって大きく左右される。含水量が 0.1 wt.%の際にはメルト量が僅か 5%程度となることから (図 2.2-c-19), 流動性を失った状態といえるのに対し、含水量が 3 wt.%のときにはメルト量が 40~50%程度であることから、流動的、あるいは流動性を失いつつある状況だと考えられる (図 2.2-c-18)。

以上をまとめると、阿蘇の後カルデラ期の珪長質端成分マグマ P 2 F は地下 16~24km に存在し (圧力 4~6kbar), 流動的で (メルト量は 7 割程度), 含水量は 3~3.5 wt.%だと推定される。また、斑晶ガラス包有物の組成と石基ガラスの組成はほぼ同じで、狭い組成範囲を持つことから、珪長質端成分マグマの温度は時間的空間的に比較的均一だったと考えられる。一方、後カルデラ期の苦鉄質端成分マグマ S 1 1 は地下 12~36km に存在し (圧力 3~9kbar), 流動性に乏しく (メルト量は 5%程度), 含水量は 0.1 wt.%程度と乏しいと推定される。S 1 1 に含まれる斑晶ガラス包有物の組成と斑晶累帯構造の観察結果から、苦鉄質端成分マグマの噴火においては、噴火の直前に温度の異なる複数のマグマが混合したことが示された。流動性に乏しいマグマが単独で移動噴出することの困難さも考慮すると、S 1 1 の噴火においては、地下で温度が低下し固まりかけた岩体に、深部から供給された高温で流動性に富むマグマが注入し、両者が混じり合うことによって流動的となったマグマが噴出したことが想像できる。深部から供給されたマグマ温度は、もしも組成が S 1 1 と同じであるならば、S 1 1 のリキダス温度と同程度あるいはそれ以下だと考えられる。S 1 1 のリキダス温度は、1150°C (含水量が 3 wt.%の場合; 図 2.2-c-18) ~1230°C (含水量 0.1 wt.%の場合; 図 2.2-c-19) と見積もられる。

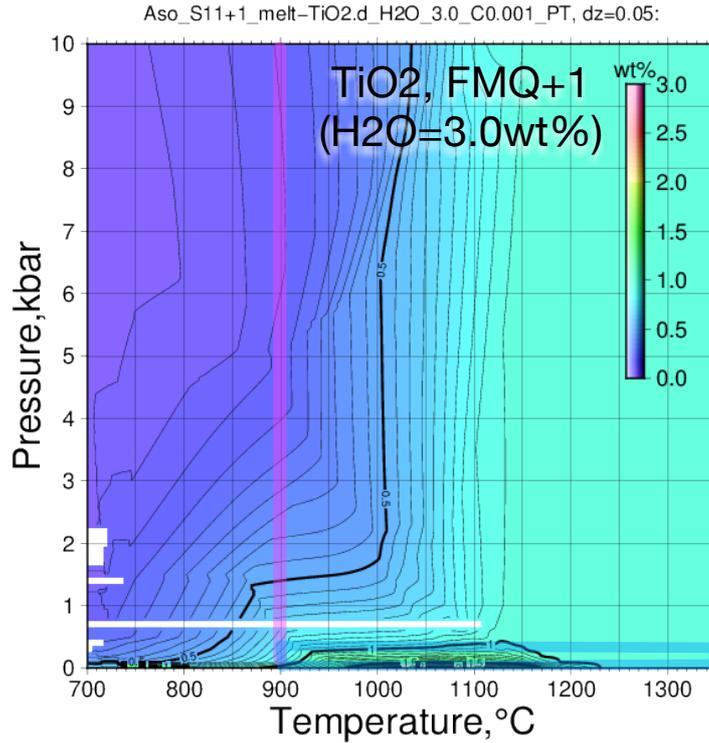


図 2.2-c-8: 阿蘇の後カルデラ期噴出物の苦鉄質端成分マグマS11に 3 wt.%の水を加えた際の、メルトの TiO₂ 濃度の温度圧力依存性. 桃色太線は P2F の温度, 水色太線は観測された化学組成の範囲.

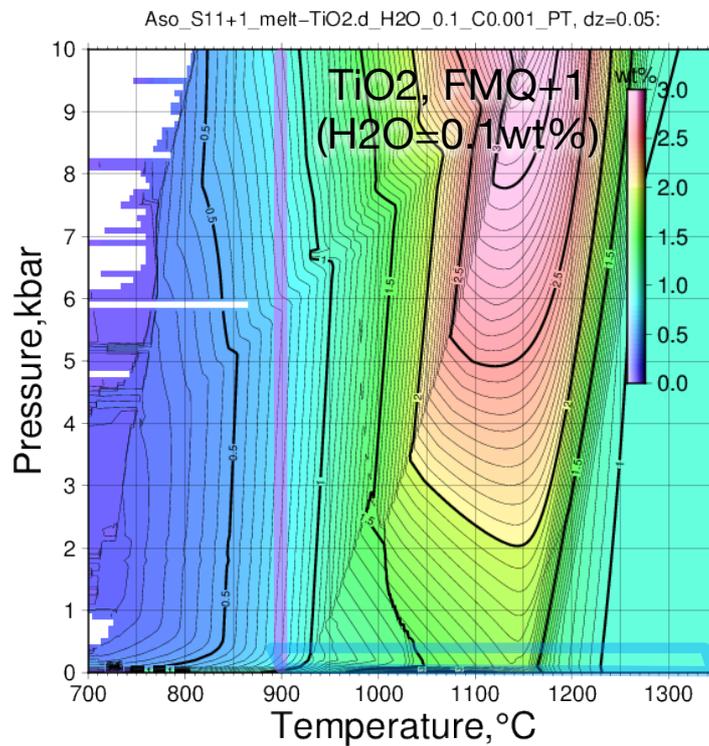


図 2.2-c-9: 阿蘇の後カルデラ期噴出物の苦鉄質端成分マグマS11に 0.1 wt.%の水を加えた際の、メルトの TiO₂ 濃度の温度圧力依存性. 桃色太線は P2F の温度, 水色太線は観測された化学組成の範囲.

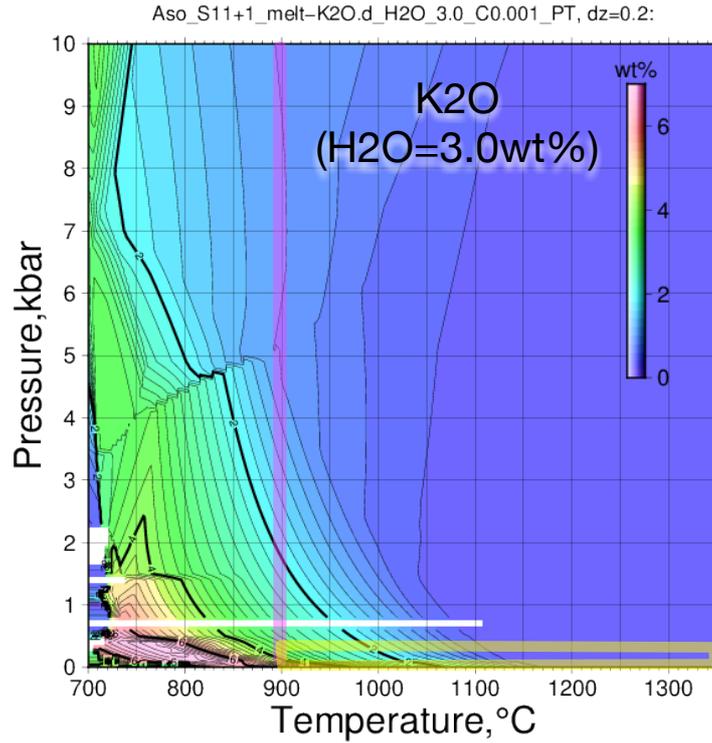


図 2.2-c-10: 阿蘇の後カルデラ期噴出物の苦鉄質端成分マグマS11に 3 wt.%の水を加えた際の、メルトの K₂O 濃度の温度圧力依存性. 桃色太線は P2F の温度, 黄色太線は観測された化学組成の範囲.

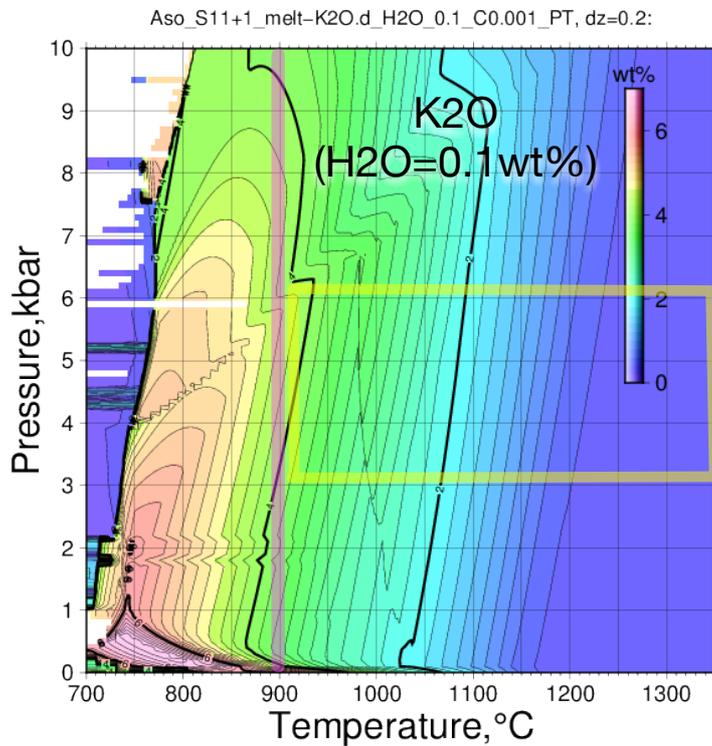


図 2.2-c-11: 阿蘇の後カルデラ期噴出物の苦鉄質端成分マグマS11に 0.1 wt.%の水を加えた際の、メルトの K₂O 濃度の温度圧力依存性. 桃色太線は P2F の温度, 黄色太線は観測された化学組成の範囲.

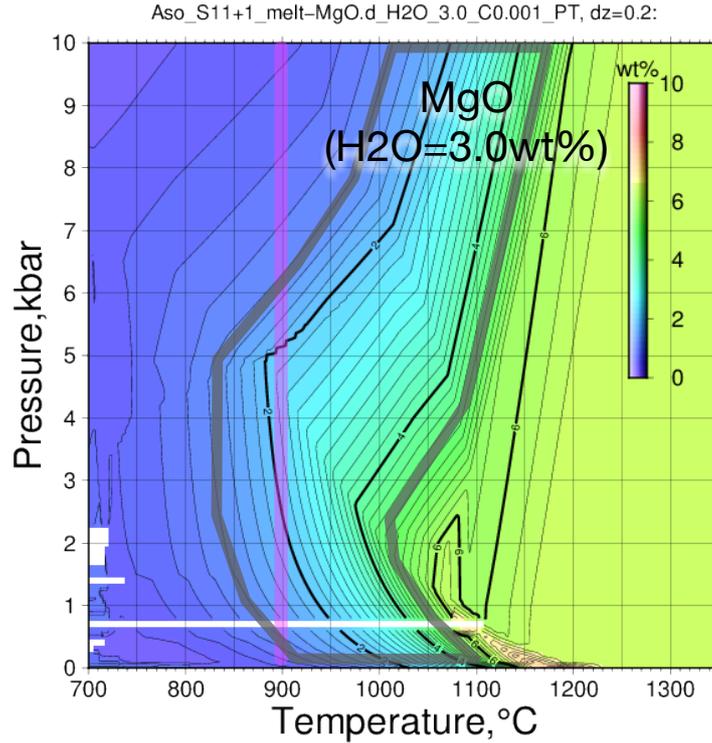


図 2.2-c-12: 阿蘇の後カルデラ期噴出物の苦鉄質端成分マグマS11に 3 wt.%の水を加えた際の、メルトの MgO 濃度の温度圧力依存性. 桃色太線は P2F の温度, 褐色太線は観測された化学組成の範囲.

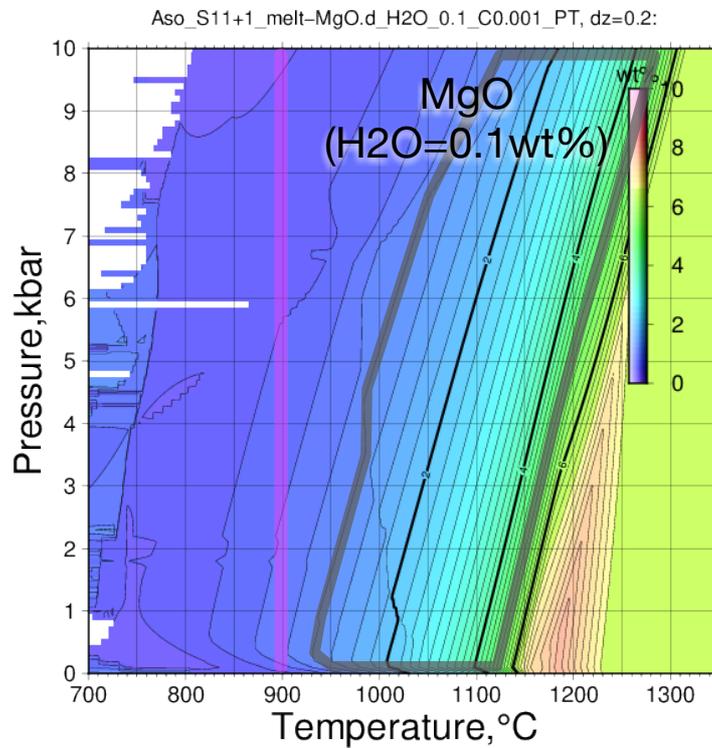


図 2.2-c-13: 阿蘇の後カルデラ期噴出物の苦鉄質端成分マグマS11に 0.1 wt.%の水を加えた際の、メルトの MgO 濃度の温度圧力依存性. 桃色太線は P2F の温度, 褐色太線は観測された化学組成の範囲.

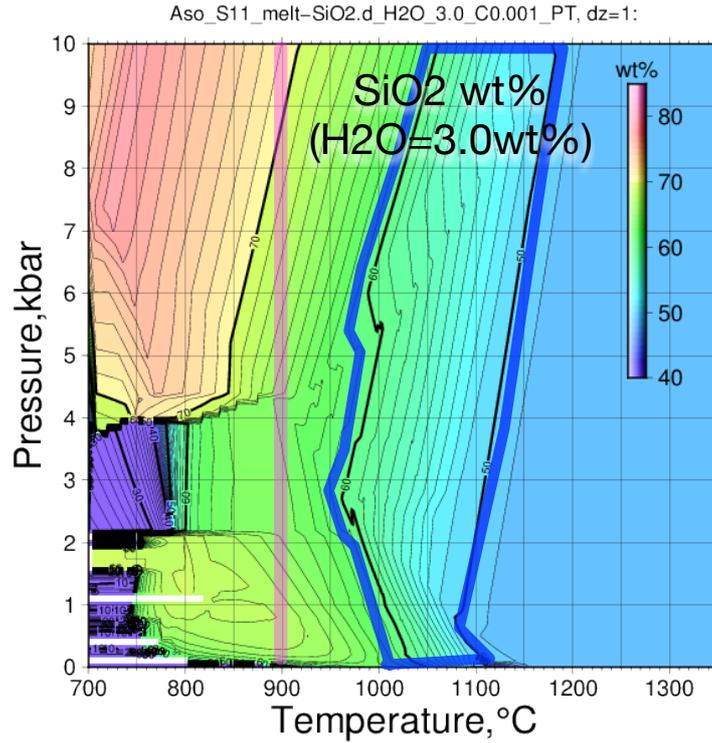


図 2.2-c-14: 阿蘇の後カルデラ期噴出物の苦鉄質端成分マグマS11に 3 wt.%の水を加えた際の、メルトの SiO₂ 濃度の温度圧力依存性. 桃色太線は P2F の温度, 青色太線は観測された化学組成の範囲.

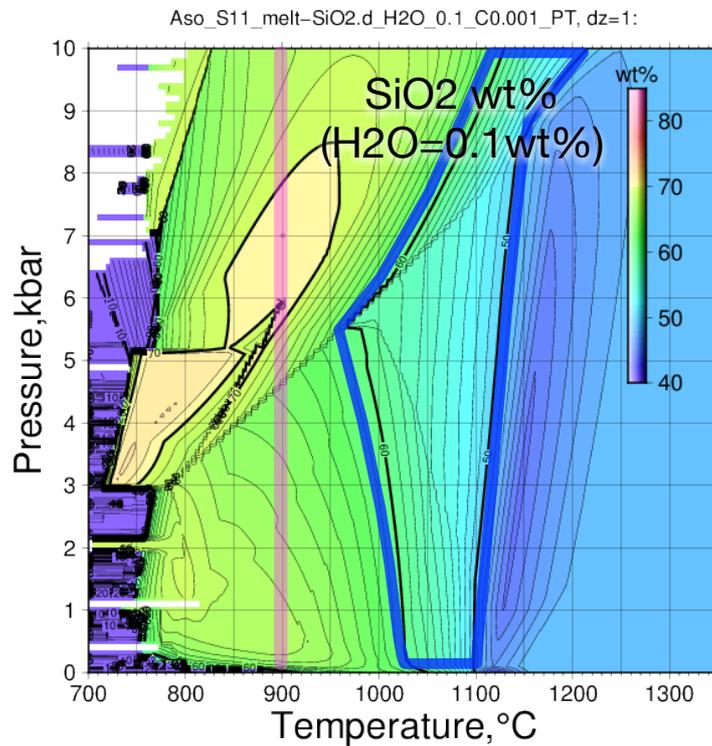


図 2.2-c-15: 阿蘇の後カルデラ期噴出物の苦鉄質端成分マグマS11に 0.1 wt.%の水を加えた際の、メルトの SiO₂ 濃度の温度圧力依存性. 桃色太線は P2F の温度, 青色太線は観測された化学組成の範囲.

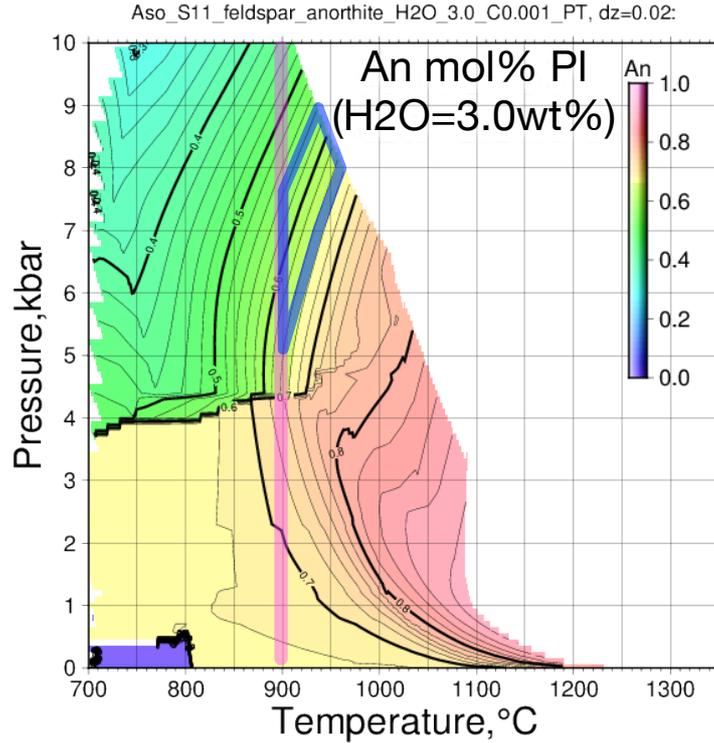


図 2.2-c-16: 阿蘇の後カルデラ期噴出物の苦鉄質端成分マグマS11に 3 wt.%の水を加えた際の、斜長石の An 組成の温度圧力依存性. 桃色太線は P2F の温度, 青色太線は観測された化学組成の範囲.

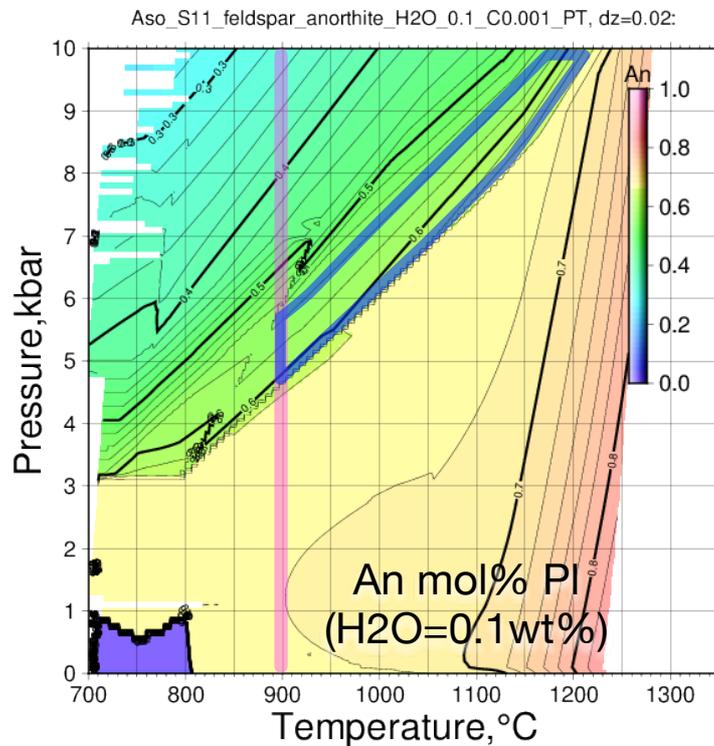


図 2.2-c-17: 阿蘇の後カルデラ期噴出物の苦鉄質端成分マグマS11に 0.1 wt.%の水を加えた際の、斜長石の An 組成の温度圧力依存性. 桃色太線は P2F の温度, 青色太線は観測された化学組成の範囲.

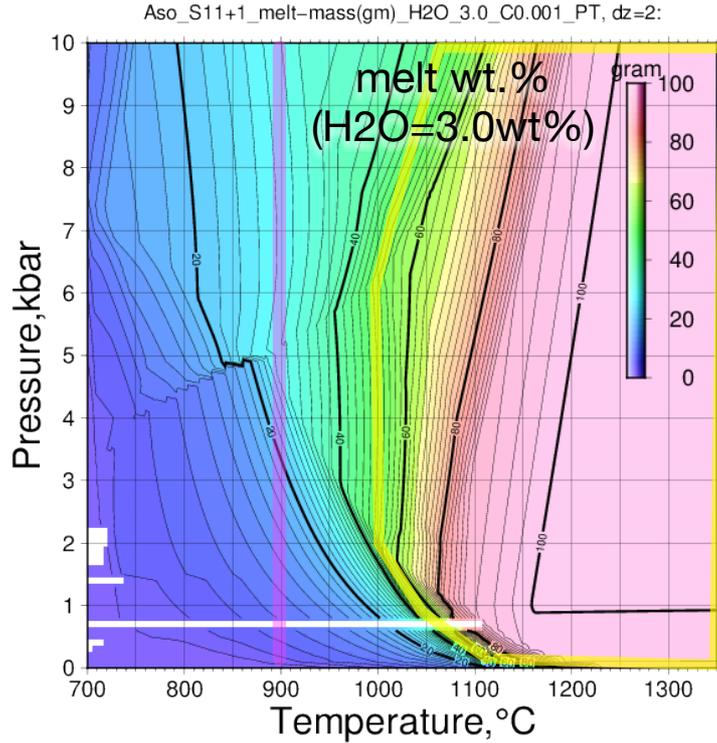


図 2.2-c-18: 阿蘇の後カルデラ期噴出物の苦鉄質端成分マグマS11に 3 wt.%の水を加えた際の、メルト量の温度圧力依存性。桃色太線は P2F の温度, 黄色太線はマグマが流動的な性質を持つメルト量の範囲の目安(結晶量50%以下).

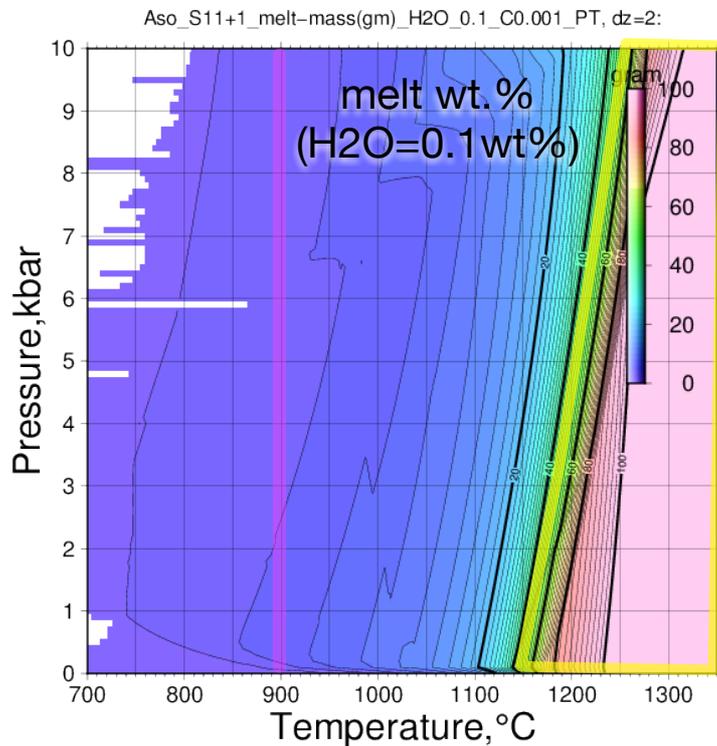


図 2.2-c-19: 阿蘇の後カルデラ期噴出物の苦鉄質端成分マグマS11に 0.1 wt.%の水を加えた際の、メルト量の温度圧力依存性。桃色太線は P2F の温度, 黄色太線はマグマが流動的な性質を持つメルト量の範囲の目安(結晶量50%以下).

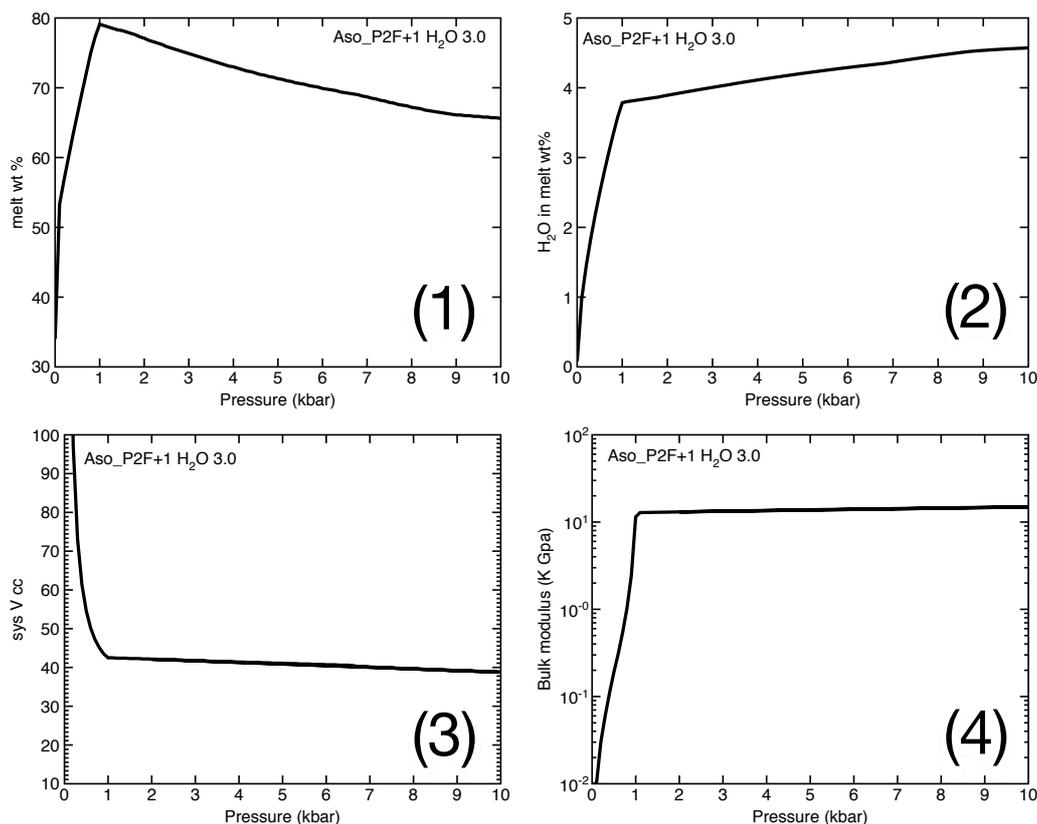


図 2.2-c-20: 阿蘇の後カルデラ期噴出物の珪長質端成分P2Fに 3.0 wt.%の水を加えた際の、マグマの物理学的特性の圧力依存性. (1)メルト量(wt.%), (2)メルトの含水量(wt.%), (3)マグマの比体積(cc/100 グラム), (4)マグマのバルクモジュラス(GPa).

珪長質端成分マグマの地球物理学的特性

含水量 3 wt.% 温度 900°C の珪長質端成分マグマについて、MELTS を用いて求めたいくつかの地球物理学的パラメータを図 2.2-c-20 に示す。珪長質端成分マグマのメルト量は 7 割程度あるいはそれ以上と見積もられると先に述べた (図 2.2.c-7)。ただしこれはマグマだまりにおけるメルト量であり、メルト量は圧力によって変動する。メルト量は、圧力がおよそ 1kbar の時に最大となり、約 8 割である (図 2.2-c-20-(1))。1kbar よりも低圧ではメルト量が急激に減少する。その理由は、マグマが水に飽和し結晶の融点が上昇するためである。1kbar よりも高圧でメルト量がゆるやかに減少する理由は、物質の融点は圧力とともにゆるやかに上昇するためである。マグマに溶解する水の量 (図 2.2-c-20-(2)) をみると、1kbar より低い圧力では飽和溶解度に従って急激に減少している。より高圧で含水量がゆるやかに増加する理由は、融点が圧力とともに上昇することによる結晶化によって、メルトに水が濃集されるためである。マグマの体積は 1kbar より低い圧力では急激に増加する (図 2.2-c-20-(3))。その理由は、1kbar より低い圧力でマグマが水に飽和したことにより析出したガス (超臨界水) のモル体積が、メルトに溶存していた水のモル体積に比べて大きいためである。マグマのバルクモジュラス (圧縮率の逆数) は、1kbar より低い圧力で急激に低下し、圧縮率の大きな状態となる (図 2.2-c-20-(4))。その理由は、メルトに溶解していた水が飽和・析出することにより、圧縮率の高い気体の分量が増加するためである。

まとめと今後の課題

阿蘇 4 以後の一連の噴出物中から全岩化学組成がより苦鉄質・より珪長質な代表試料を選び出し、鉍物とガラスの化学分析を行い、鉍物温度計を適用した結果、珪長質マグマの温度は $903\pm 5^{\circ}\text{C}$ 程度、酸素分圧は FMQ+1 ログユニット程度と推定された。得られた化学組成に対して熱力学的解析を行った結果、珪長質端成分マグマは地下 16~24km に存在し (圧力 4~6kbar)、流動的 (メルト量は 7 割程度)、含水量は 3~3.5 wt.% だと推定された。一方苦鉄質マグマは地下 12~36km に存在し (圧力 3~9kbar)、温度は $950\sim 1000^{\circ}\text{C}$ あるいはそれ以上で、含水量は 0.1 wt.% 程度と乏しく、メルト量は 5% 程度と殆ど固化して流動性に乏しいが、このマグマが地下深部から供給された時点では 1200°C 程度の高温で流動性に富んでいたと推察された。このように、後カルデラ期に噴出したマグマの深度は、珪長質端成分マグマが地下 16~24km (圧力 4~6kbar)、苦鉄質端成分マグマが地下 12~36km (圧力 3~9kbar) と見積もられ、昨年度見積もられた阿蘇 1 噴火のマグマの深度 (地下 20~30km (5~7kbar), 産総研, 2015) と大きく変わらなかった。将来の大規模火砕流噴火の可能性評価や、物理探査・地球化学探査による大規模噴火前兆検出の可能性評価には、現在の阿蘇カルデラ地下に存在するマグマ供給系の状態把握が不可欠である。そのためには、現在阿蘇中岳から放出されている火山灰と、阿蘇火山で最大・最新の大規模火砕流噴火である阿蘇 4 噴出物を対象とした研究が必用である。平成 27 年度の地質調査により、阿蘇 4 火砕流堆積物の直下に降下火砕物が存在することを発見した。この降下火砕物に対して追加の分析と解析を行なうことにより、阿蘇 4 噴火に至るマグマプロセスがより明確になると期待される。

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.
- Asimow, P.D. and Ghiorso, M.S. (1998) Algorithmic Modifications Extending MELTS to Calculate Subsolidus Phase Relations. *Amer. Mineral.*, 83, 1127-1131.
- Ghiorso MS, Gualda GAR (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., 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.
- Lepage, L. D. (2003). ILMAT: an excel worksheet for ilmenite-magnetite geothermometry and geobarometry. *Comput. Geosci.*, 29(5):673-678.
- 産業技術総合研究所 (2015) 平成 27 年度 火山影響評価に係る技術的知見の整備。

Wessel, P. and Smith, W. (1998). New, improved version of generic mapping tools released.
EOS Trans. Amer. Geophys. U., 79(47):579.

2. 2-d 阿蘇カルデラ噴出物の実験岩石学的検討

【実施内容】

マグマだまりの条件(温度・圧力・含水量・酸素雰囲気)は、地球物理学的観測の参照情報として重要である。産総研(2015)、宮城ほか(2015)により、阿蘇火山の最初の大規模カルデラ噴火である阿蘇 1 噴出物の石基ガラスを再現しうる玄武岩質安山岩マグマの結晶化条件(深さ・温度・酸素雰囲気・含水量)を岩石学的検討、熱力学的相平衡再現計算ソフトである MELTS(Ghiorso and Sack, 1995; Gualda, et al. 2012)を用いた検討により、700MPa・880°C・QFM+0.2・低含水量(全岩, <1wt.%)という条件が提案された。MELTS は既存の高圧実験データに合うようにキャリブレーションされているが、500MPa 以上の圧力条件で行われた火山岩の含水融解実験の報告例は少なく、珪長質な系における水に不飽和な実験にいたってはほとんど報告されていない(e.g. Almeev et al. 2012) ことから、MELTS により導き出された結果を検証する必要がある。

検証に必要な圧力(500MPa 以上)を達成するための実験装置として、ピストンシリンダー型高圧発生装置や内熱式ガス圧装置が知られている。ピストンシリンダー型高圧発生装置は大型のものになると最大およそ 5GPa まで発生させることが可能であるが、圧力媒体が固体であるためにピストンシリンダー型高圧発生装置において低圧である 1GPa 以下の圧力範囲では静水圧性を保つのが難しく、試料に所定の圧力が精度良くかからないという問題がある。そのために、低圧条件下で安定した実験を行うためにセル中に NaCl など柔らかいものを用いた構成で実験が行われている(e.g. Boettcher et al. 1981; Moore et al., 2008)。他にも、試料を入れることが出来る体積が比較的小さく、酸素雰囲気を制御するためのバッファ剤を多量に封入するのに向かない。さらに、荷重から圧力に換算する際に摩擦の影響のため、別途高圧鉱物の相転移などを用いて圧力キャリブレーションが必要になるが、1GPa 付近もしくはそれ以下の圧力ではキャリブレーションが難しい。対して、内熱式ガス圧装置は圧力媒体に不活性ガス(本実験に用いたものはアルゴンガス)を用いることで静水圧性が非常に良く歪みゲージ式圧力計を用いることで $\pm 10\text{MPa}$ の精度で実験時に圧力保持が可能である。また、大容量の試料を用いて実験を行うことが出来、酸素雰囲気の制御のためにバッファ剤を多量に用いることが出来る。内熱式ガス圧装置の設置・使用は法規制により制限されているが、東京工業大学設置の最高圧力 850MPa の内熱式ガス圧装置(鈴木ほか, 2004)を用いることで火山下のマグマだまりの条件を模した実験を精度良く行うことが可能である。

以上より、本報告書では、(1)内熱式ガス圧装置を用いて阿蘇 1 石基火山ガラスを用い、斑晶鉱物がリキダス付近に複数相同時飽和する圧力・温度・含水量・酸素雰囲気の決定を試み、また、(2)玄武岩質安山岩の高結晶度条件における相平衡実験も行い実験生成物のメルトと阿蘇 1 石基ガラスの化学組成を比較する。また、(1)・(2)において実験と同条件における MELTS による計算結果と比較する。

【研究成果】

(1)阿蘇 1 石基火山ガラスのリキダス付近における斑晶鉱物の複数相同時飽和点決定実験 出発物質

阿蘇 1 火砕流堆積物の基底部とその前駆的噴出物は産総研(2015)、宮城ほか(2015)で記載され

ている。阿蘇 1 火砕流堆積物の基底部(非溶結)を Aso2014a-A, 前駆的噴出物を下位から Aso2014a-B, C, D, E とし, それらを洗浄, 鉱物・ガラスの分離を行い, 石基ガラス, 斑晶やそれらに包有されたメルト包有物が分析された。斑晶は斜長石, 単斜輝石, 斜方輝石, 磁鉄鈷, イルメナイトで構成され, Aso2014a-A~E でどれも組み合わせは変わらない。また, 斑晶コア組成の分布を見ると, どの斑晶も組成の頻度分布はユニモーダルであり, ピーク位置は層序ごとに比べても変化はない。Aso2014a-A においては, 斜長石はおよそ An53, 斜方輝石は MgO 成分で 22wt.%, 単斜輝石は同様に 15wt.% である。火山ガラスも頻繁に見られ, SiO₂ でおおよそ 69wt.%, K₂O でおおよそ 5.4wt.% と他の元素で見ても均質な組成を示す。斜長石, 斜方輝石, 単斜輝石に取り込まれたメルト包有物の組成は, 火山ガラスの組成よりもやや広がりを持つが, 火山ガラスの組成とほぼ等しい組成を持つ。これは, 多くの斑晶が火山ガラス(石基)組成のメルトとマグマだまり中で平衡であったことを示す。磁鉄鈷とイルメナイトの平衡を利用した温度・酸素雰囲気計 (Lepage, 2003; Andersen and Lindsley, 1985) で温度・酸素雰囲気を見積もると 880°C・QFM+0.2 となる。斜長石斑晶コア組成と石基組成を用いて, Lange et al.(2009) の斜長石メルト間平衡を利用した含水量計を適応させると, 6wt.% 前後の値を示す。本報告書では, 均質な Aso2014a-A の火山ガラス(図 2.2-d-1)を分離し, エタノール・純水で洗浄したのち, 大きさが 2mm を超えるものはタングステンカーバイドの乳鉢で破碎した。また, 一部をエポキシ樹脂に埋め込み, 後述される EPMA を用いて組織観察・化学組成分析を行った(図 2.2-d-1)。火山ガラスはガラス光沢を示し, 鋭利な破断面を有するものが多い。断面の組織は, 微斑晶はほとんど見られず(一つの断面で数個あるかどうか), 平坦なガラス組織を呈す。一部, マイクロライトが発達しているものも見られる。外周部においては水和している箇所が多く見られるが, 水以外の化学組成で見ると均質である(図 2.2-d-6~8)。

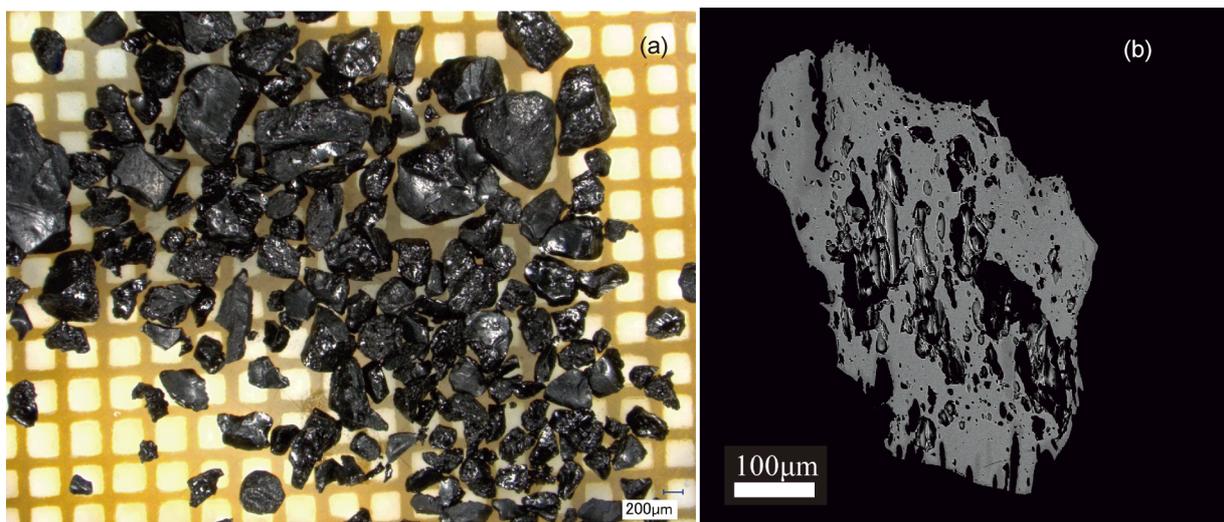
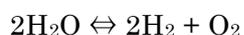


図 2.2-d-1 (a) 阿蘇 1 火砕流基底部中の石基火山ガラス(Aso2014a-A glass)の実体顕微鏡写真。(b)Aso2014a-A glass の断面の反射電子像。

高温高圧実験

高温高圧実験は産総研設置の内熱式ガス圧装置(HARM200(使用例: Tomiya et al. 2010): 最高圧力 196MPa)と東京工業大学設置の内熱式ガス圧装置(SMC5000(使用例: Tatsumi and Suzuki 2009; Ushioda et al. 2014): 最高圧力 480MPa, SMC8600: 最高圧力 850MPa)を用いた。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。HARM200 と SMC5000 はガス圧縮機を用いて圧力容器内で最高温度・圧力に到達できるが、SMC8600 は圧力容器全体がピストン構造になっており、まず 200MPa までガス圧縮機で加圧を行い、さらなる 850MPa までの加圧はピストンを押し上げることにより圧力容器の体積を減少させて高圧を発生させる(鈴木ほか 2004)。圧力測定は HARM200, SMC-5000 と SMC-8600 の 196MPa 以下の圧力範囲においては歪みゲージ式圧力計を用いて測定し、測定精度は ± 0.1 MPa である。SMC-8600 の 196MPa 以上の圧力範囲においては鈴木ほか(2004)の手法にならない、温度変化に対する抵抗の変化が小さいマンガニン線を用い、圧力と抵抗値が比例関係にあることから、高圧条件下での抵抗値を測定することにより圧力を求める(測定精度は ± 1 MPa)。実験は、産総研(2015)、宮城(2015)で提案された阿蘇 1 の深いマグマだまりに相当する圧力である 700MPa と、低圧の 195MPa で行った。またリキダス付近で実験する必要があるため 770~900°C の間で数日~一週間の保持を行った。試料を融解させるために、試料の溶融体と反応しない貴金属カプセルに封入する。産総研(2015)、宮城(2015)では鉄チタン鉱物の平衡温度・酸素雰囲気計からおおよそ QFM+0.2(log unit)で見積もられているため、それに近い Ni-NiO が共存する酸素雰囲気の制御を試みた。



の反応のもと、水素雰囲気が Ni と NiO が共存するような条件で制御し、水素を介して酸素雰囲気の制御を行う。酸素雰囲気がバッファ剤(Ni-NiO)で制御されるためには、常に Ni, NiO, H₂O が共存している必要がある。

内熱式ガス圧装置は圧媒体に不活性ガスを用い、できる限り酸素を取り除いた条件下で実験を行うよう設計されているが、バッファ剤を使用せずに実験を行うと MnO-Mn₃O₄ バッファ(本研究で行う必要のある QFM よりも 4 桁酸素雰囲気が大きい)程度であると確認されている(例: Tatsumi and Suzuki, 2009)。そのために、酸素雰囲気を制御するためにバッファ剤を用いたカプセル構成にする必要がある。700MPa の実験は Takagi et al.(2005)や Hamada and Fujii(2008) とほぼ同様のカプセル構成、195MPa の実験は Tomiya et al.(2010)とほぼ同様のカプセル構成を採用した(図 2.2-d-2)。貴金属の中で、Au の水素透過率は最も低い(Chou, 1986)ことから、カプセル構成において最も外側に Au を用い、内部にバッファ剤を配置することで内部での水素雰囲気を一定に保つ。カプセルに試料と純水を直接封入するカプセルは水素透過率が Au よりも 4 桁以上高い Ag₅₀Pd₅₀ 合金を用いた。Ag₅₀Pd₅₀ 2.3-2.0mmφ チューブを 1cm に切断し、上下を溶接した。700MPa の実験では Pt_{5.0}-4.6mmφ もしくは 3.0-2.7mmφ のチューブにバッファ剤(Ni:NiO=10:1(wt.))となる粉末を挿入し、カプセルエンドを折り曲げた(非溶接)。バッファ剤カプセルを下に、水の量の違うサンプルカプセルを上 3 個配置し、Au_{7.0}-6.6mmφ もしくは Au_{6.0}-5.6mmφ のチューブに Ni がすべて反応するのに必要な純水と共に溶接して封入する。

195MPa の実験では，サンプルカプセルを Pt3.0-2.7mmφ のカプセルに入れ，それを Au6.0-5.6mmφ もしくは Au5.0-4.8mmφ のチューブにバッファ剤(Ni:NiO=10:1(wt.))，純水と共に入れ，溶接して封をする．サンプルカプセルを Pt カプセルに入れるのは，Ni が AgPd と合金を作ることにより，Ni がカプセル内に侵入することを防ぐためである．各行程において重さを測定することにより，サンプルや水の封入量，溶接により水がどれだけ揮発したかどうかを記録した．実験後，水素がどれだけカプセル外に透過したかを評価するためにカプセル全体の重さを測定した後，注意深く最外部の Au カプセルを開封し，水と Ni，NiO が存在するかどうかを確かめた(表 2.2-d-1)．実験後のカプセルはすべて樹脂に埋めた後低速カッターで切断し，切断後のカプセルをさらにエポキシ樹脂で包埋した．SiC 研磨紙で粗研磨した後，1μm のダイヤモンドペーストで片面を鏡面に仕上げた．

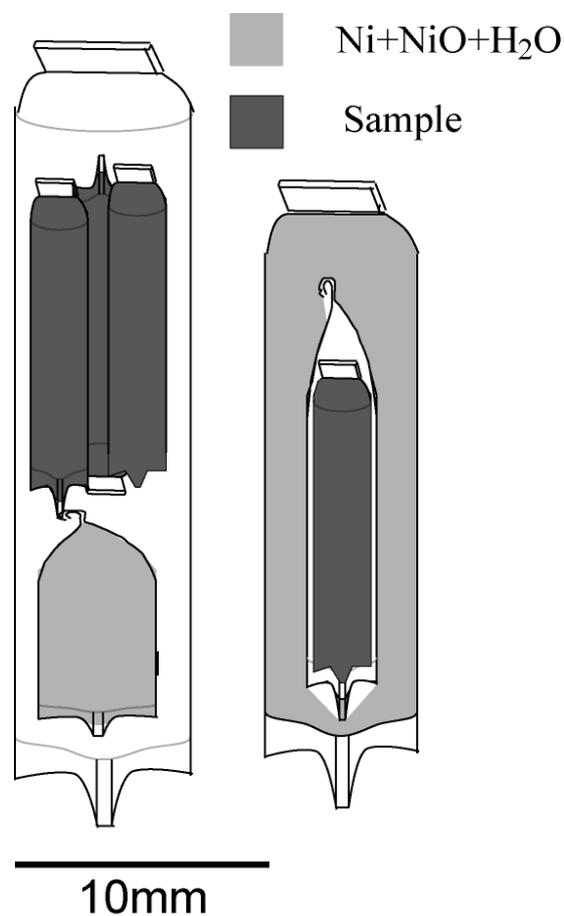


図 2.2-d-2 実験で用いたカプセル構成図. 左図は 700MPa の実験，右図は 195MPa の実験で採用した.

表 2.2-d-1 (1)Aso1 石基火山ガラスのリキダス付近における斑晶鉱物の複数同時飽和点決定実験の Run Table。

Run #	Capsule #	P (MPa)	T (°C)	Run duration (h) ¹	buffer check ² (残存相)	H ₂ O (wt.%) (bulk, weighed in)	H ₂ O (wt.%) in melt ³	H ₂ O (wt.%) (100-EPMA total)	phase	T ⁴ (mt+ilm)	log fO ₂ ⁵ comment
G176	CG36	195	800	171+72	NiO	saturated	6.08	8.24	melt, pl, bt, mt, ilm, cpx(tr)	732	-13.94
G177	CG43	195	850	163.5	NiO	saturated	5.92	7.27	melt, bt, mt, ilm	878	-9.90
G178	CG46	195	770	170	NiO	saturated	6.17	7.42	melt, pl, cpx, bt, mt, ilm	890	-9.52
SHG60	CG37	700	850	0.6+114	Ni, NiO, H ₂ O	5.2	9.96	9.96	melt, mt, ilm	882	-10.29
CG39	700	850	0.6+114	Ni, NiO, H ₂ O	11.2	10.30	10.30	melt, bt, mt, ilm	890	-10.13	
CG41	700	850	0.6+114	Ni, NiO, H ₂ O	4.1	6.92	6.92	melt, pl, hb, bt, mt			
CG40	700	900	64+162	NiO	10.3	11.29	11.29	melts, ilm			
CG44	700	900	64+162	NiO	4.8	7.02	7.02	melt, cpx, bt(tr), mt, ilm	857	-9.60	
CG45	700	900	64+162	NiO	2.2	10.10	10.10	melt, bt, ilm, ap(tr)			
SHG64	CG42	700	800	163+134	NiO	10.4					
CG47	700	800	163+134	NiO	5.8						
CG48	700	800	163+134	NiO	3.9						
SHG65	CG49	400	900	148	Ni, NiO	9.2					Au(アウター)穴
CG50	400	900	148	Ni, NiO	4.2						Au(アウター)穴
CG51	400	900	148	Ni, NiO	5.8						Au(アウター)穴

1 足し算表記のものは実験終了時の急冷に失敗したため、実験を同じカプセルを使いやり直したものの。

2 実験後のカプセル内に存在していた相を記述。酸素雰囲気は NNO で保持されるためには Ni, NiO, H₂O の共存が必要。

NiO のみが存在する場合はバツファ剤を使い果たしたものの、Ni, NiO が存在し H₂O がないものは実験中に水がカプセル外に放出したものの。

3 Newman and Lowenstem(2002)により決めたメルトの飽和溶解度をメルト中の含水量とした。

4,5 Magnetite, ilmenite の平衡温度・酸素雰囲気を ILMAT(Lepage, 2003)で計算した。

分析手法

実験生成物の組織観察，組成分析はすべて産総研設置の電子線マイクロプローブ(EPMA: JEOL JXA-8900R)で行った．11 元素(Si, Ti, Al, Fe, Mn, Mg, Ca, Na, K, P, Cr)をすべて加速電圧 15kV, 試料電流 12nA で分析し，結晶分析時は focused beam, ガラス分析時は 20 μm にビーム径を広げた．Na を除き各元素は 20 秒(バックグラウンドは 10 秒)分析した．電子線を照射することによる Na ロスの影響を考慮し，各分析時において Na は最初に 10 秒(バックグラウンドは 5 秒)で分析した．これらの方法は Ushioda et al.(2014)と基本的に同じである．

結果(1)

行った全ての実験の Run table を表 2.2-d-1 に，各相の化学組成を表 2.2-d-2 に示す．SHG64, SHG65 の試料は未分析である．各実験生成物の反射電子像写真を図 2.2-d-3 に示す．実験生成物のガラスの含水量測定は行っていない．195MPa の実験は，全て水に飽和した融解実験を行い，Newman and Lowenstern(2002)の VolatileCalc を用いて飽和溶解度を求め，それをメルト中の水の量とした．700MPa の実験は，100 から EPMA によるガラスの分析値のトータル値(wt.%)を引いた値を便宜的に用いた．実験で晶出した斜長石は長辺数 μm から数十 μm の短冊状の自形結晶であり，単斜輝石は最大およそ数十 μm の自形～球形の結晶である．黒雲母は斜長石と同じような短冊状の形態を示すが，斜長石よりも縦横比が大きい．板状に大きく成長した黒雲母は長辺で最大およそ 100 μm である．普通角閃石は自形の結晶で最大 10 μm ほどである．磁鉄鉱・イルメナイトは通常 10 μm 以下の自形～球形の結晶であるが，まれにイルメナイトが樹枝状に結晶成長した物も見られる．各生成物に，しばしば融け残りの微斑晶(斜長石，単斜輝石，磁鉄鉱，イルメナイト，アパタイト)が存在することがあるが，試料を観察している断面積に対して最大 1% あるかどうかという量であるため，相平衡への影響は小さい．195MPa, 700MPa における相平衡図を図 2.2-d-4 の太線で示す．この相図は，各鉱物が晶出を始める温度・含水量を実験点における相関係と比較して晶出線を引いた．また，実験生成物の組織から各鉱物の結晶量を見積もり，結晶量の大小で晶出した温度の大小を決めた．線の傾きは，含水鉱物でないケイ酸塩鉱物は水が増えるに従い晶出する温度が低下する傾向があるので，右下がりの線であるとした．700MPa で水に飽和している実験点を除き，700MPa, 195MPa 共に黒雲母がケイ酸塩鉱物でリキダス相付近にて晶出した．700MPa では，メルト中の水の量が 7wt.%前後のものにおいて 900 $^{\circ}\text{C}$ で単斜輝石，850 $^{\circ}\text{C}$ で斜長石・角閃石が晶出した．195MPa における実験は水に飽和した系のみであるが，鉄チタン鉱物，黒雲母，斜長石・単斜輝石の順で晶出した．磁鉄鉱・イルメナイトが共存した実験生成物に対しては，ILMAT(Lepage, 2003)を用いて熱力学モデルを Andersen and Lindsley(1985)を採用し，平衡温度と酸素雰囲気を出した．G176 のみ $\log f_{\text{O}_2} = -13.94$ と QFM+1 相当の酸素雰囲気であったが，他の実験は全て QFM+2.5-3.5 の間に収まる．SHG60 はカプセル内で Ni, NiO, H₂O が共存した実験であるが，酸素雰囲気は QFM+2.5 である．阿蘇 1 の斑晶鉱物として黒雲母は存在しないことから，本実験の条件において，マグマだまりにおける斑晶鉱物を再現しないことがわかった．産総研(2015)，宮城ほか(2015)により磁鉄鉱・イルメナイトの平衡酸素雰囲気は QFM+0.2 であるので，本実験の酸素雰囲気が 3 桁近く高いことにより斑晶鉱物を再現できなかった可能性が高い．

表 2.2-d-2-1 (1)Aso1 石基火山ガラスのリキダス付近における斑晶鉱物の複数同時飽和点決定実験の各生成物の晶出鉱物組成。

Run#	Capsule#	Phase	n	SiO ₂	TiO ₂	Al ₂ O ₃	FeO*	MnO	MgO	CaO	Na ₂ O	K ₂ O	P ₂ O ₅	Cr ₂ O ₃	Total	Mg#	Ca/ (Na+Ca+K)*100	Wo	En
G176	CG36	melt	16	66.33	0.22	13.94	0.98	0.06	0.18	1.66	3.15	5.14	0.10		91.76	25.10	0.12		
				0.45	0.04	0.23	0.10	0.02	0.01	0.12	0.10	0.05	0.05						
		cpx(tr)																	
		pl	21	57.75	0.03	25.80	0.23	0.01	0.02	8.45	5.97	0.72	0.08		99.08		0.42		
				0.69	0.02	0.45	0.05	0.02	0.01	0.37	0.27	0.07	0.11						
		bt	4	37.51	5.26	14.92	13.88	0.29	15.12	0.15	0.46	9.62	0.08	0.01	97.30	66.00			
				0.43	0.11	0.07	0.09	0.01	0.15	0.08	0.04	0.14	0.06	0.01					
		mt	1	0.34	3.02	2.00	87.25	0.90	1.41	0.07	0.10	0.05	0.02	0.00	95.16				
		ilm	3	0.37	46.02	0.18	45.90	2.28	3.40	0.08	0.03	0.13	0.02	0.04	98.44				
				0.12	0.92	0.04	0.92	0.04	0.08	0.01	0.02	0.03	0.01	0.04					
G177	CG43	melt	31	65.69	0.33	14.29	1.48	0.07	0.43	2.06	2.98	5.27	0.13		92.73	34.37	0.15		
				0.42	0.03	0.15	0.12	0.02	0.08	0.06	0.12	0.05	0.05						
		bt	5	38.28	4.61	14.88	11.52	0.17	18.35	0.06	0.58	9.95	0.03		98.43	73.95			
				0.27	0.15	0.41	0.09	0.01	0.21	0.03	0.01	0.12	0.03						
		mt	5	0.15	3.62	2.34	87.03	0.80	2.46	0.14	0.02	0.09	0.08	0.01	96.74				
				0.06	0.07	0.05	0.28	0.01	0.07	0.14	0.03	0.03	0.14	0.00					
		ilm	6	0.19	23.05	0.58	70.33	0.30	1.58	0.09	0.01	0.11	0.04	0.00	96.28				
				0.10	0.20	0.02	0.23	0.02	0.03	0.04	0.01	0.01	0.05	0.00					
G178	CG46	melt	8	68.69	0.20	13.06	0.76	0.05	0.11	1.34	2.49	5.73	0.14		92.58	21.09	0.11		
				0.35	0.03	0.10	0.06	0.03	0.01	0.03	0.09	0.08	0.03						
		cpx	1	51.46	0.35	2.26	15.94	1.02	14.32	13.10	0.26	0.52	0.03		99.26	61.56	28.81	43.82	
		pl	8	58.39	0.12	24.58	0.69	0.02	0.08	7.39	6.22	1.10	0.12		98.72		0.37		
				0.47	0.11	0.38	0.35	0.01	0.07	0.34	0.18	0.14	0.04						
		mt	8	0.34	2.98	1.34	86.60	1.31	1.46	0.13	0.02	0.10	0.04	0.00	94.33				
				0.09	0.44	0.07	0.38	0.04	0.05	0.04	0.03	0.02	0.03	0.01					
		ilm	1	0.21	20.58	0.59	71.76	0.75	1.17	0.16	0.00	0.12	0.05	0.00	95.39				

表 2.2-d-2-2 続き

Run#	Capsule#	Phase	n	SiO ₂	TiO ₂	Al ₂ O ₃	FeO*	MnO	MgO	CaO	Na ₂ O	K ₂ O	P ₂ O ₅	Cr ₂ O ₃	Total	Mg#	Ca/ (Na+Ca+K)*100	Wo	En
SHG60	CG37	melt	24	63.57	0.30	13.83	2.11	0.08	0.51	2.09	2.57	4.84	0.13		90.04	30.33	0.17		
		mt	4	0.67	0.02	0.19	0.14	0.04	0.05	0.07	0.14	0.07	0.02		95.81				
		ilm	7	0.11	5.14	2.31	86.14	0.47	1.44	0.09	0.01	0.06	0.03	0.02					
				0.04	0.39	0.15	0.76	0.03	0.06	0.09	0.02	0.01	0.03	0.02	95.70				
				0.12	27.41	0.51	65.98	0.23	1.16	0.11	0.03	0.10	0.04	0.01					
				0.03	0.49	0.02	0.59	0.02	0.04	0.11	0.04	0.02	0.08	0.01					
CG39		melt	34	63.28	0.29	13.74	2.10	0.07	0.50	1.97	2.64	4.99	0.12		89.70	29.77	0.16		
		bt	6	0.81	0.03	0.17	0.11	0.03	0.03	0.12	0.12	0.06	0.02		97.53	62.88			
		mt	4	37.48	3.37	14.74	16.12	0.16	15.32	0.07	0.40	9.85	0.01	0.01					
				0.87	0.16	0.20	0.85	0.01	0.86	0.06	0.05	0.35	0.01	0.01	96.27				
		ilm	4	0.12	5.24	2.18	86.67	0.54	1.41	0.03	0.02	0.05	0.00	0.02					
				0.03	0.45	0.05	0.13	0.02	0.02	0.02	0.03	0.02	0.00	0.01	94.92				
				0.21	26.45	0.52	66.11	0.26	1.13	0.09	0.02	0.11	0.01	0.02					
				0.10	0.44	0.02	0.26	0.00	0.02	0.01	0.02	0.01	0.01	0.01	93.08	18.99	0.11		
CG41		melt	12	67.22	0.22	13.63	1.59	0.07	0.21	1.44	2.86	5.72	0.11		99.29	41.49			
		hb	6	0.53	0.02	0.16	0.15	0.02	0.03	0.05	0.11	0.11	0.03		99.67				
		pl	7	40.98	2.52	12.18	20.66	0.42	8.22	10.59	1.88	1.79	0.05	0.00					
				0.23	0.12	0.37	0.32	0.02	0.14	0.08	0.04	0.13	0.01	0.00	98.93	44.25			
				60.14	0.04	24.32	0.41	0.01	0.03	6.78	6.35	1.53	0.05	0.01					0.34
				1.11	0.03	0.84	0.06	0.01	0.02	0.96	0.28	0.37	0.04	0.01					
		bt	4	36.96	5.55	14.95	21.32	0.22	9.49	0.11	0.52	9.77	0.03	0.00					
		mt	2	0.42	0.12	0.17	0.36	0.02	0.25	0.03	0.08	0.06	0.02	0.01	95.56				
				0.59	7.58	2.95	82.69	0.59	0.82	0.11	0.05	0.14	0.03						
				0.08	0.57	0.01	0.06	0.01	0.07	0.02	0.04	0.00	0.02						

表 2.2-d-2-3 続き

Run#	Capsule#	Phase	n	SiO ₂	TiO ₂	Al ₂ O ₃	FeO*	MnO	MgO	CaO	Na ₂ O	K ₂ O	P ₂ O ₅	Cr ₂ O ₃	Total	Mg#	Ca/ (Na+Ca+K)*100	Wo	En
SHG62	CG40	melt	29	62.96	0.26	13.70	1.49	0.07	0.58	2.00	2.43	5.07	0.14		88.71	41.02	0.16		
				0.26	0.03	0.10	0.09	0.02	0.01	0.04	0.07	0.05	0.02						
		ilm	6	0.05	15.09	0.78	76.59	0.23	1.50	0.04	0.00	0.06	0.01	0.01	94.34				
				0.01	0.37	0.03	0.35	0.02	0.10	0.02	0.00	0.01	0.01	0.01					
	CG44	melt	40	66.17	0.21	14.49	1.24	0.06	0.39	1.76	3.19	5.35	0.12		92.98	36.15	0.13		
				0.28	0.02	0.16	0.09	0.02	0.02	0.02	0.11	0.03	0.02						
		cpx	14	47.80	1.03	6.82	10.31	0.50	11.87	21.29	1.01	0.04	0.07	0.00	100.73	67.23		46.43	36.02
				0.64	0.26	0.33	0.62	0.02	0.57	0.17	0.07	0.02	0.03	0.00					
		bt	2	37.97	4.62	14.80	14.48	0.17	15.23	0.05	0.57	10.00	0.02	0.01	97.91	65.21			
				0.41	0.19	0.10	1.62	0.00	1.19	0.03	0.02	0.03	0.01	0.00					
		mt	3	0.18	1.57	3.08	86.16	0.90	3.01	0.05	0.02	0.07	0.00	0.48	95.53				
				0.06	0.05	0.05	0.76	0.04	0.07	0.01	0.02	0.02	0.00	0.68					
		ilm	13	0.09	16.99	0.98	74.81	0.26	1.44	0.04	0.01	0.07	0.01	0.01	94.70				
				0.03	0.97	0.06	0.53	0.03	0.08	0.02	0.02	0.03	0.02	0.01					
	CG45	melt	35	63.64	0.24	13.88	1.48	0.06	0.61	1.96	2.71	5.22	0.10		89.90	42.21	0.15		
				0.47	0.03	0.17	0.11	0.02	0.02	0.04	0.09	0.05	0.02						
		ilm	29	0.03	15.91	0.74	75.98	0.25	1.64	0.03	0.02	0.04	0.01	0.01	94.65				
				0.02	1.49	0.07	1.47	0.03	0.23	0.02	0.03	0.02	0.01	0.01					
		bt	2	37.60	3.80	14.24	15.79	0.13	15.28	0.03	0.50	10.07	0.02	0.01	97.48	63.31			
				0.29	0.14	0.02	0.17	0.01	0.22	0.01	0.01	0.13	0.02	0.01					
		ap	2	0.20	0.00	0.00	0.58	0.08	0.23	54.21	0.05	0.07	39.92	0.00	95.34				
				0.10	0.00	0.00	0.01	0.01	0.00	0.65	0.01	0.01	0.00	0.00					
SHG64	CG42																		
	CG47																		
	CG48																		
SHG65	CG49																		
	CG50																		
	CG51																		

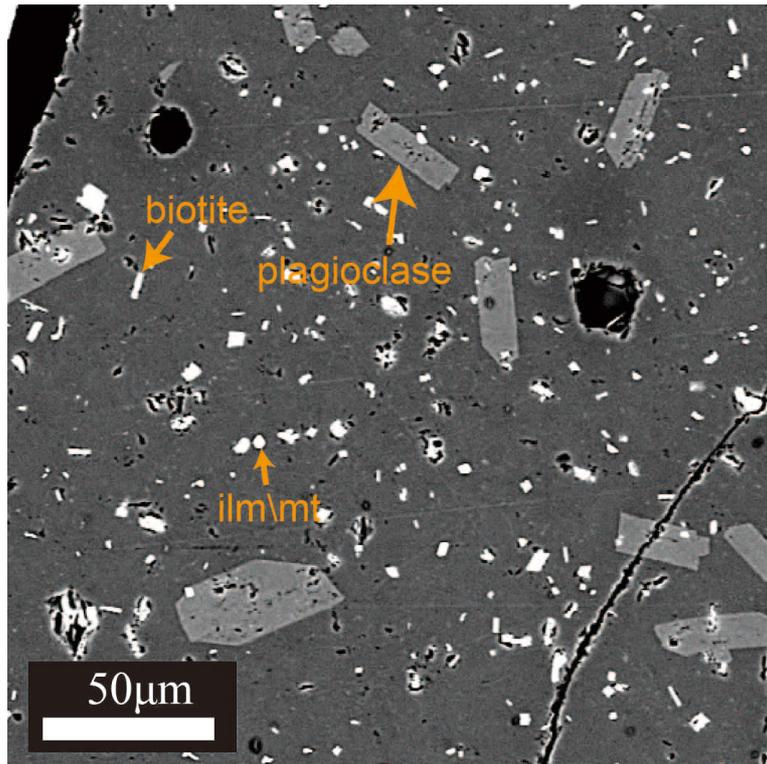


図 2.2-d-3-1 195MPa, 800°C, 水に飽和した実験(CG36, G176)の反射電子像写真

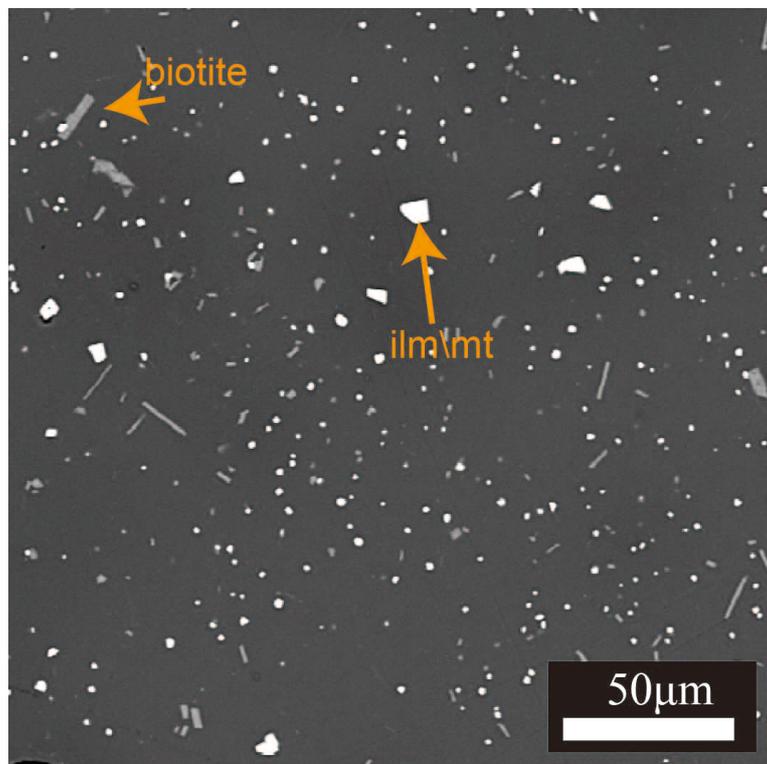


図 2.2-d-3-2 195MPa, 850°C, 水に飽和した実験(CG43, G177)の反射電子像写真

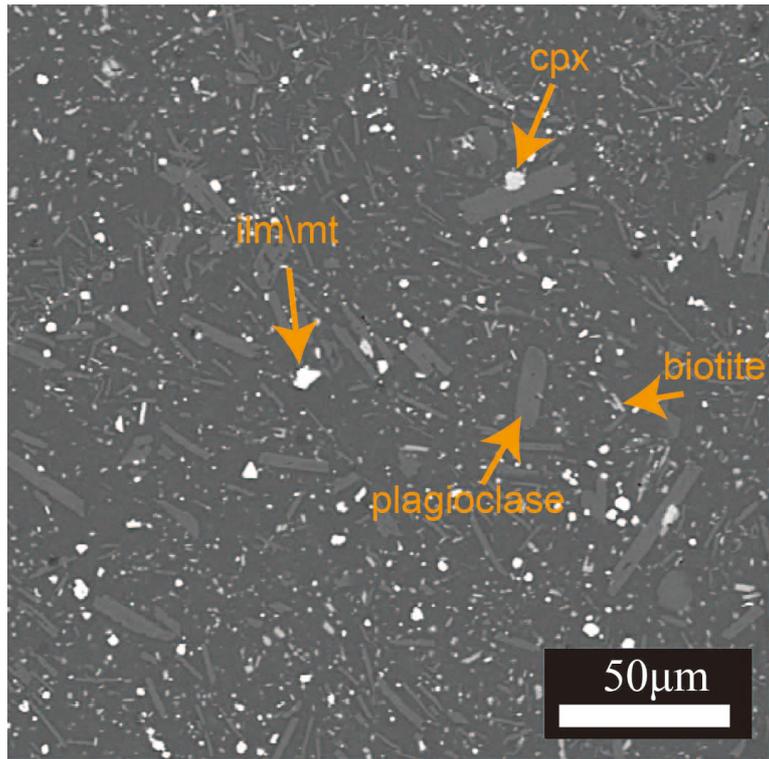


図 2.2-d-3-3 195MPa, 770°C, 水に飽和した実験(CG46, G178)の反射電子像写真

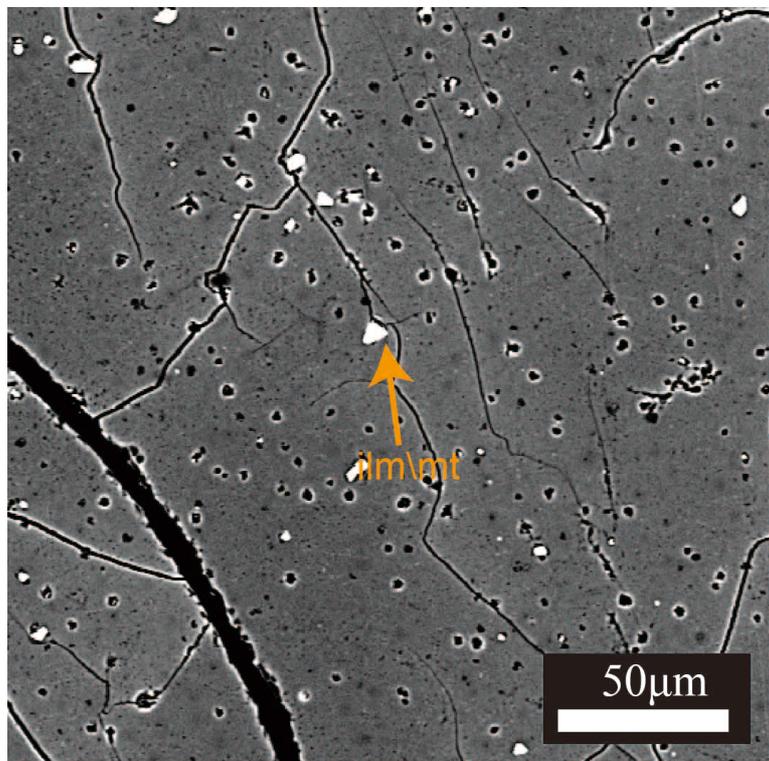


図 2.2-d-3-4 700MPa, 850°C, メルト中に水が 10wt.%含まれる実験(CG37, SHG60)の反射電子像写真.

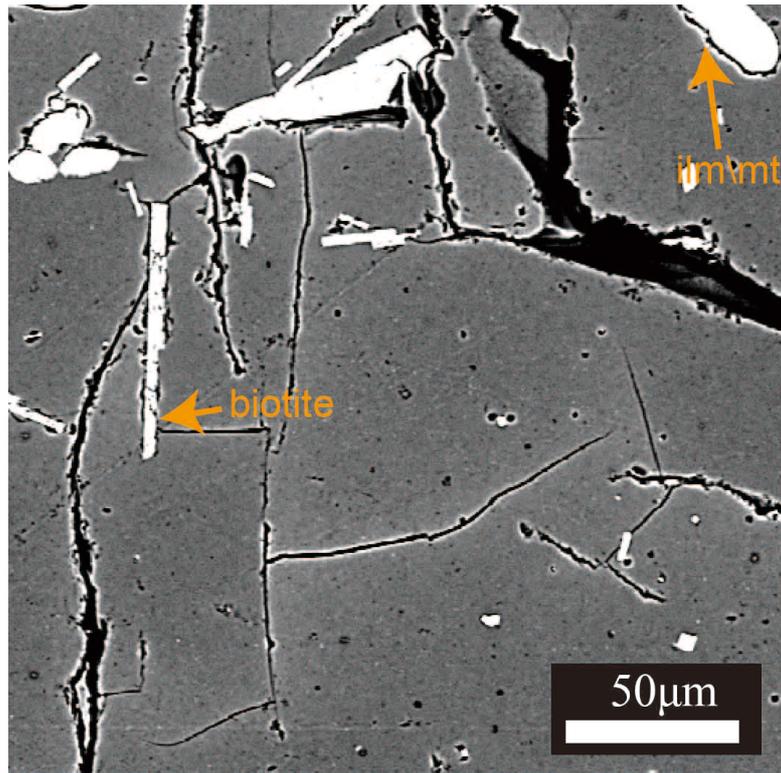


図 2.2-d-3-5 700MPa, 850°C, メルト中に水が 10.3wt.%含まれる実験(CG39, SHG60)の反射電子像写真.

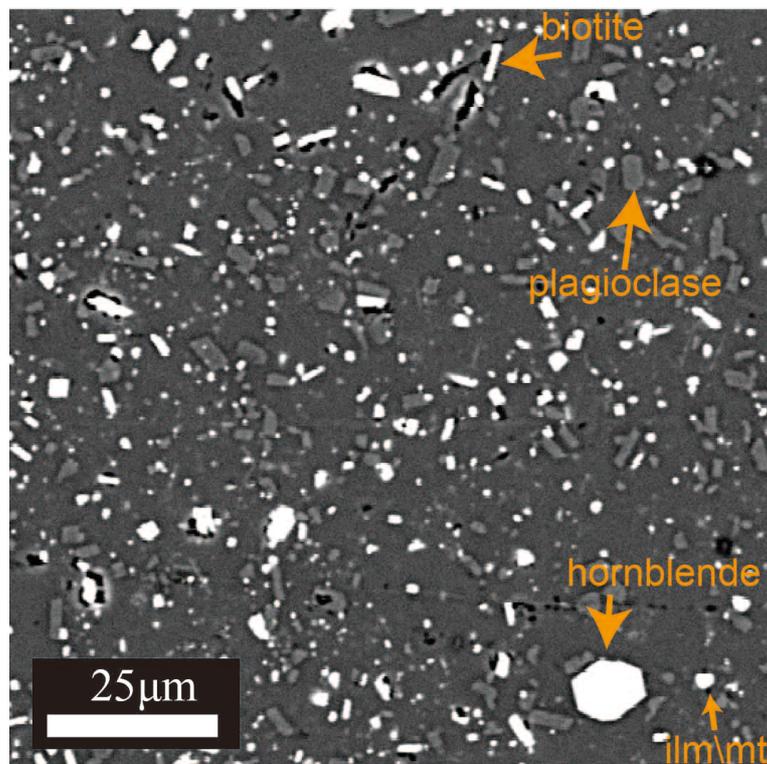


図 2.2-d-3-6 700MPa, 850°C, メルト中に水が 10wt.%含まれる実験(CG41, SHG60)の反射電子像写真.

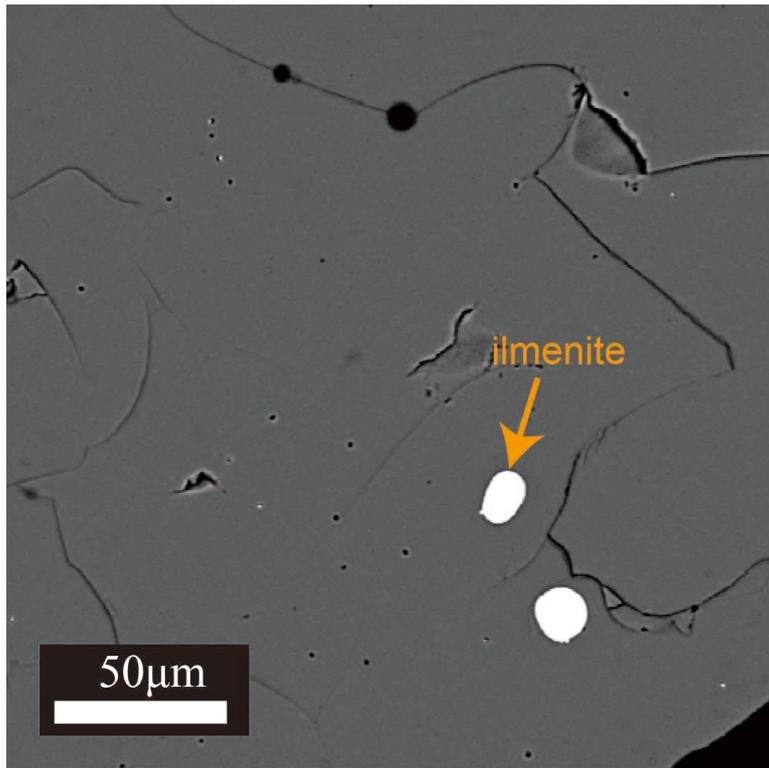


図 2.2-d-3-7 700MPa, 900°C, メルト中に水が 11.3wt.%含まれる実験(CG40, SHG62)の反射電子像写真.

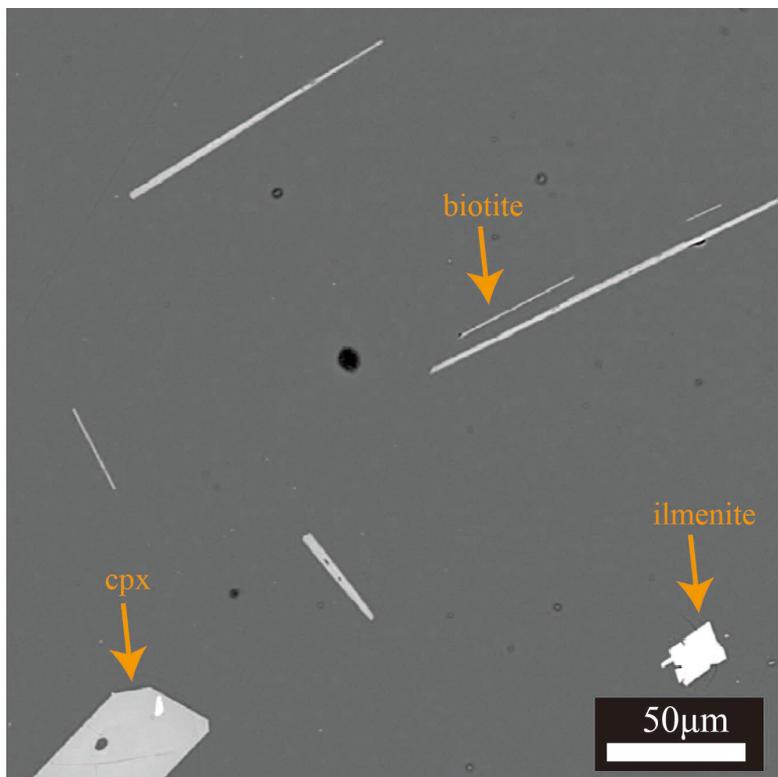


図 2.2-d-3-8 700MPa, 900°C, メルト中に水が 7.0wt.%含まれる実験(CG44, SHG62)の反射電子像写真.

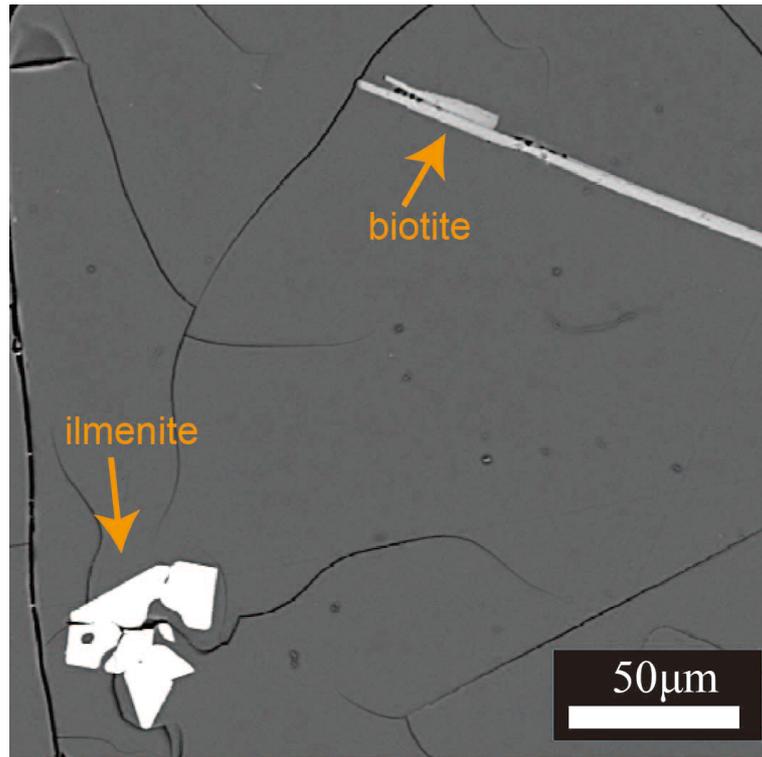


図 2.2-d-3-9 700MPa, 900°C, メルト中に水が 10.1wt.%含まれる実験(CG45, SHG62)の反射電子像写真.

MELTS による相平衡

rhyolite-MELTS(Ghiorso and Sack, 1995; Gualda, et al. 2012)により再現した相平衡図と実験結果を比較する. 200MPa, 400MPa, 700MPa, 1GPa の圧力条件下で, 温度を 700-1000°C の間で相平衡計算を行い, 酸素雰囲気を QFM, QFM+1, QFM+2, QFM+3 とふった. 実験と比較できる QFM+3 における 200MPa, 700MPa の結果のみを図 2.2-d-4 の細線に示す. およそ 11wt.%H₂O の実験では黒雲母は晶出しなかったが MELTS では黒雲母が晶出する. 黒雲母・単斜輝石・斜長石の晶出温度は, 実験の方が若干高い. また, MELTS では普通角閃石が晶出しないが, 実験では晶出した. 200MPa では実験の方が 20~30°C ほど黒雲母の晶出温度が高い. また, 実験では単斜輝石が晶出しているが MELTS ではこの温度範囲では晶出しない. MELTS による QFM における計算結果によると, 700MPa では黒雲母が水の多い領域のみに現れ, 斜方輝石が比較的低含水量側でリキダス相として晶出する. また, ガーネットが晶出するようになる. ガーネットは酸化のもしくは低圧であると晶出しないが, その分単斜輝石の晶出温度が上昇する. 200MPa では水に飽和する場合は黒雲母が, そうでないときは斜方輝石, 斜長石が順に晶出する. 200MPa, QFM+3 の条件において実験と MELTS において結晶組成を比較すると, 800°C において実験では斜長石組成は An₄₂ なのに対し, MELTS による計算では An₃₂ と大きく開きが生じる. 以上より, ケイ酸塩鉱物のリキダス相の種類は大きく違わないが, 温度や結晶組成を考えると MELTS は実験結果を再現できていない. しかし, MELTS はおおまかな相関係の情報を与えてくれることから, 高温高压実験の実験条件を決める上で有用なツールになり得る.

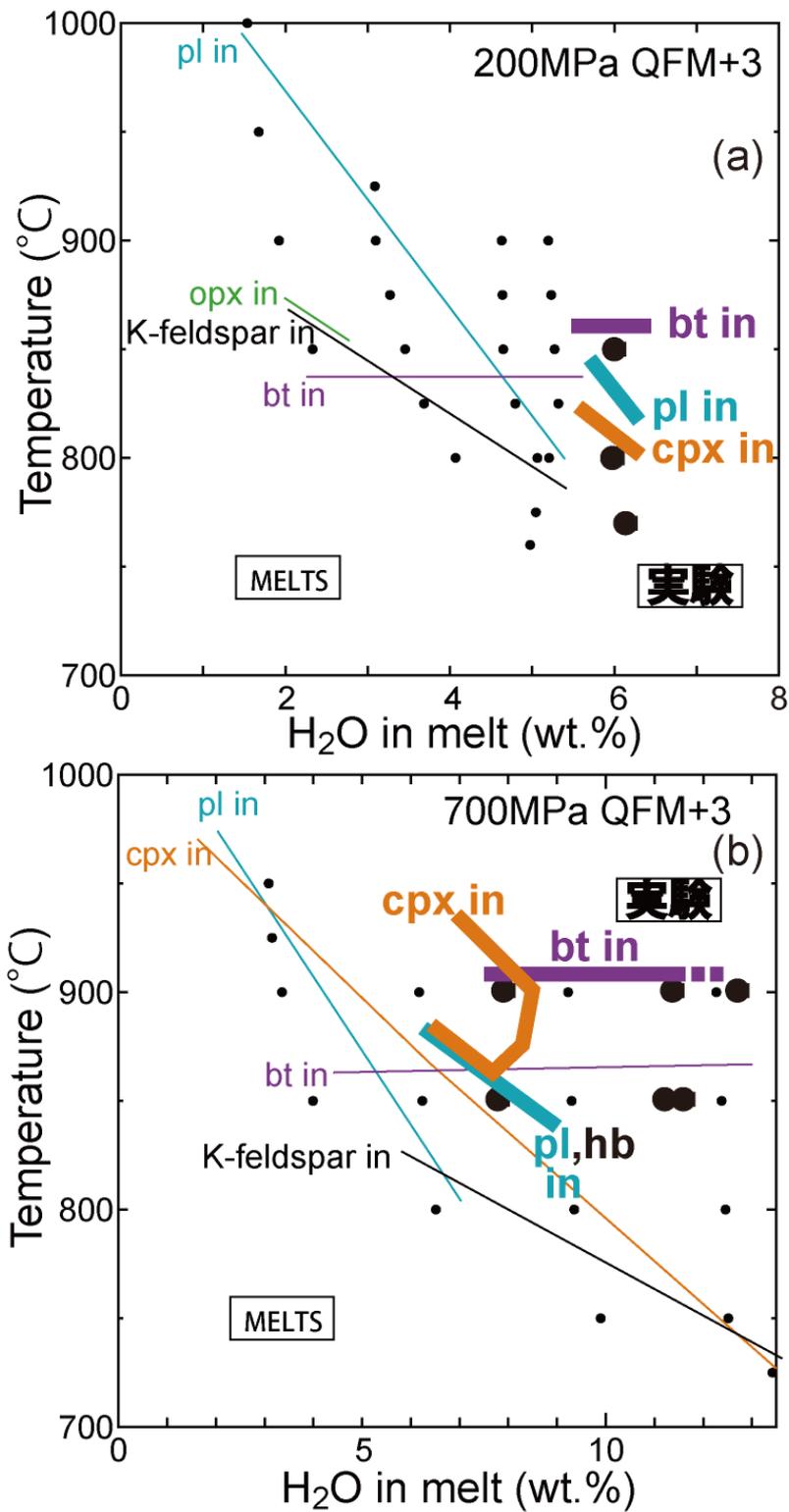


図 2.2-d-4 全ての実験点で磁鉄鉱 and/or イルメナイトが晶出している。(a)200MPa, QFM+3 における実験に基づく相関係(太線)と MELTS の相平衡計算に基づく相関係(細線)。(b) 700MPa, QFM+3 における実験に基づく相関係(太線)と MELTS の相平衡計算に基づく相関係(細線)。pl:plagioclase, bt:biotite, hb:hornblende, cpx:clinopyroxene,

酸素雰囲気

MELTS によれば、黒雲母・斜方輝石の晶出領域は酸素雰囲気大きく依存する。本実験の酸素雰囲気制御は QFM+3 程度であり、その条件よりも産総研(2015)、宮城ほか(2015)で推定された酸素雰囲気(QFM+0.2)の方が黒雲母の晶出領域が狭まり、斜方輝石の晶出領域が広がると期待される。いくつかの酸素雰囲気条件で実験を行うことで、産総研(2015)、宮城ほか(2015)とは独立にマグマだまりの条件(酸素雰囲気)を決めることが出来る。本実験において、NNO(QFM+0.5前後)で制御を試みたが NNO で酸素雰囲気保持できなかった要因として、実験時間が想定以上に長くなってしまった(表 2.2-d-1)ことに加え、外側カプセルに用いている Au の水素透過率の問題がある。ケイ酸塩メルトと反応しない貴金属のうち、Au は最も水素浸透率が低い(Chou, 1986)が、本実験に用いた Au チューブの肉厚(0.2mm もしくは 0.1mm)では薄すぎる可能性がある。酸素雰囲気を制御するための改善策として、ガス圧装置の圧媒体ガスに水素ガスを少量混ぜる手法(e.g. Berndt et al. 2002)が存在するが、日本の法規制により HARM200 や SMC-8600 に H₂ ガスを用いることはできない。バッファ剤を使用していかに水素を逃がさないか別の手段として、バッファ剤の量を増やす、外側 Au カプセルの肉厚を増やす、もしくはバッファ剤・サンプルをより水素透過率の低い物質で覆う必要がある。バッファ剤を増やすためにはより径の大きい Au チューブを使用する必要があるが、カプセルを落下急冷のために低温部に落とすための穴の大きさに最大カプセルサイズが依存してしまう関係で、外径 10mm を超えるサイズは使用できない。また、Tomiya et al. (2010)は、外側 Au チューブに肉厚 0.3mm のものを採用しており、本実験とほぼ同じ温度圧力条件下において酸素雰囲気制御を行っている。さらに、より水素透過率の低い物質の候補として、h-BN 焼結体を外側 Au カプセル内に入れる方法がある(Truckenbrodt et al. 1997; Wilke and Behrens 1999; Hamada and Fujii 2008)。Hamada and Fujii(2008)では、玄武岩の相平衡実験で酸素雰囲気の影響を考慮するために、カプセル内に h-BN ジャケットを用いて水素の透過を減らし、Quartz + Magnetite + Fayalite 粉末を用いて NNO-1 の酸素雰囲気条件下で実験を行った。

これらより、外側 Au チューブの肉厚を厚くし、もしくは h-BN ジャケットを用いることで酸素雰囲気制御が改善されることが期待できる。

(2) 玄武岩質安山岩の相平衡実験

出発物質

阿蘇火山 2014 年 12 月 10 日採取スコリア(Aso20141210sc)を出発物質として採用した。阿蘇火山の噴火史を通して比較的未分化な玄武岩安山岩質であることから相平衡実験に出発物質として用いるのに適す。このスコリアを粉末にし、3 種の含水量の異なる含水ガラスを内熱式ガス圧装置 HARM200, SMC5000 を用いて作成した(表 2.2-d-3)。Au80Pd20 6.0-5.6φ、長さ 2cm のカプセルに Aso20141210sc 粉末と純水を任意の量を注入し、溶接して密封する。これらを(表 2.2-d-4)の条件でガラス化し、カプセルを低速カッターで切断し一部を樹脂に包埋して EPMA による均質性の確認、組成分析を行い、また Ushioda et al.(2014)の手法・装置で FTIR 反射法により含水量を測定した。切断した残りの含水ガラスをタングステンカーバイドの乳鉢で粗く破碎し、実験の出発物質として用いた。

表 2.2-d-3 (2) 玄武岩質安山岩の相平衡実験の出発物質として用いる含水ガラスの EPMA 分析値。

Capsule #	CG2	CG4	CG17	I141129 S01 ² by O Ishizuka
Run #	GI69	HG544	GI71	
P(MPa)	193	400	152	
T(°C)	1300	1300	1300	
run duration(h)	2	2	1	
n	36	33	109	σ
SiO ₂	53.94	54.52	54.60	54.45
TiO ₂	0.92	0.93	0.92	0.92
Al ₂ O ₃	17.51	17.69	17.76	18.04
FeO	8.55	8.64	8.64	8.56
MnO	0.14	0.14	0.14	0.14
MgO	3.84	3.88	3.73	3.84
CaO	8.60	8.69	8.78	8.69
Na ₂ O	2.98	3.01	2.99	2.88
K ₂ O	2.17	2.20	2.17	2.19
P ₂ O ₅	0.29	0.29	0.29	0.29
H ₂ O(by 反射FTIR) ¹	98.95	100.00	99.16	100.00
	1.27	4.04	0.41	

1 Ushioda et al.(2014) の手法で分析。アパーチャサイズは 100μm。

2 XRF による分析値 (私信)

表 2.2-d-4 (2) 玄武岩質安山岩の相平衡実験 Run table (表 2.2-d-1 と注釈は同じ)

Run #	Capsule #	P (MPa)	T (°C)	Run duration (h)	buffer check (残存相)	H ₂ O (wt.%) phase (bulk)	T (mt+ilm)	log fO ₂ comment
G174	CG24	195	1000	72	Ni, NiO	0.41	melt, cpx, pl, mt	Au(アウター)六
	CG25	195	1000	72	Ni, NiO	1.27	melt, mt, ilm, pl, cpx?, opx?	865 -11.23 Au(アウター)六
	CG26	195	1000	72	Ni, NiO	4.04	melt, cpx, pl, mt, ilm?	Au(アウター)六
SHG58	CG33	700	1000	72	Ni, NiO, H ₂ O	1.27	melt, cpx, opx, pl, mt, ilm	937 -9.67
	CG34	700	1000	72	Ni, NiO, H ₂ O	0.41	melt, cpx, opx, pl, mt, ilm	937 -9.92
	CG35	700	1000	72	Ni, NiO, H ₂ O	4.04	melt, cpx, hb, pl, mt	

表 2.2-d-5-1 (2) 玄武岩質安山岩の相平衡実験の各生成物結晶組成。

Run#	Capsule#	Phase	n	SiO ₂	TiO ₂	Al ₂ O ₃	FeO*	MnO	MgO	CaO	Na ₂ O	K ₂ O	P ₂ O ₅	Cr ₂ O ₃	Total	Mg#	Ca/ (Na+Ca+K)*100	Wo	En		
G174	CG26	melt	21	53.74	0.83	17.22	5.31	0.12	3.06	7.15	3.09	2.35	0.32		93.19	50.67	0.46				
				0.82	0.04	0.38	0.16	0.03	0.16	0.14	0.03										
			10	49.77	0.79	4.63	8.12	0.16	14.64	22.18	0.23	0.05	0.03	0.03		100.59	76.26		45.37	41.66	
	cpx	pl	21	47.76	0.03	31.98	0.98	0.00	0.10	16.55	1.95	0.13	0.01	0.01		99.50		0.82			
				0.66	0.02	0.56	0.04	0.01	0.01	0.46	0.26	0.02	0.01								
			28	0.10	3.60	5.54	83.18	0.35	5.46	0.16	0.02	0.02	0.01	0.03		98.46					
	mt	melt	15	62.12	0.92	15.82	4.66	0.11	1.89	3.96	3.38	4.35	0.51		97.72	41.98	0.26				
				0.79	0.16	0.47	0.18	0.02	0.15	0.32	0.21	0.14	0.06								
			14	0.26	7.88	4.47	80.61	0.42	4.21	0.26	0.02	0.05	0.01	0.03		98.23					
	ilm	melt	1	0.07	0.31	0.09	0.63	0.02	0.10	0.06	0.03	0.01	0.01	0.02		98.36					
				0.16	40.57	0.74	49.68	0.49	6.04	0.15	0.04	0.07	0.01	0.43							
			4	64.64	0.84	14.71	4.07	0.09	1.22	2.91	3.13	5.44	0.31			97.35	34.78				
CG24	melt		0.46	0.04	0.09	0.16	0.02	0.03	0.07	0.13	0.07	0.04									
		1	0.37	9.37	4.01	80.12	0.40	3.36	0.31	0.00	0.03	0.01	0.02		98.00						

表 2.2-d-5-2 続き

Rum#	Capsule#	Phase	n	SiO ₂	TiO ₂	Al ₂ O ₃	FeO*	MnO	MgO	CaO	Na ₂ O	K ₂ O	P ₂ O ₅	Cr ₂ O ₃	Total	Mg#	Ca/ (Na+Ca+K)*100	Wo	En	
SHG58	CG35	melt	31	56.03	0.70	17.61	4.73	0.12	2.14	5.78	3.33	2.67	0.38		93.48	44.65	0.39			
				0.39	0.04	0.13	0.20	0.02	0.06	0.11	0.10	0.05	0.03							
		cpx	4	47.35	1.00	7.87	10.79	0.23	11.90	21.02	0.49	0.04	0.02	0.02		100.72	66.29		45.70	36.00
				0.70	0.09	0.64	0.31	0.02	0.28	0.26	0.03	0.02	0.02							
		hb	33	40.69	2.52	14.59	13.95	0.15	12.35	11.28	2.18	1.14	0.03	0.01		98.90	61.21			
				0.51	0.13	0.35	0.51	0.01	0.39	0.13	0.07	0.07	0.01							
		pl	12	50.45	0.05	30.81	0.85	0.01	0.12	14.43	2.92	0.31	0.03	0.03		99.97		0.72		
				0.83	0.03	0.65	0.08	0.01	0.04	0.59	0.32	0.07	0.02							
		mt	24	0.12	3.99	7.47	82.18	0.37	4.11	0.13	0.02	0.02	0.01	0.03	0.03	98.45				
				0.04	0.09	0.12	0.60	0.02	0.09	0.06	0.03	0.01	0.01	0.02						
CG33		melt	10	65.01	0.53	15.22	3.27	0.06	0.82	2.48	2.85	6.20	0.25		96.69	30.83	0.17			
				0.63	0.03	0.34	0.11	0.01	0.03	0.15	0.15	0.09	0.04							
		cpx	8	50.35	0.72	4.59	17.09	0.45	14.32	13.76	0.42	0.05	0.04	0.04		101.78	59.89		29.26	42.37
				0.54	0.08	0.37	0.47	0.03	0.88	1.42	0.08	0.02	0.03							
		opx	2	51.74	0.28	3.96	23.01	0.54	22.08	1.53	0.03	0.04	0.02	0.02		103.23	63.11		3.05	61.18
				0.51	0.04	0.68	0.52	0.01	0.05	0.11	0.00	0.01	0.01							
		pl	2	57.54	0.15	24.87	1.26	0.03	0.35	9.14	4.32	1.98	0.07	0.07		99.71		0.47		
				0.96	0.03	1.19	0.18	0.01	0.12	0.73	0.07	0.48	0.02							
		mt	2	0.35	8.43	4.93	80.35	0.33	2.55	0.28	0.01	0.06	0.02	0.01	0.01	97.32				
				0.12	0.93	0.02	1.09	0.00	0.06	0.09	0.01	0.00	0.01	0.01						
CG34		ilm	1	0.79	31.34	1.12	61.11	0.17	2.08	0.49	0.03	0.07	0.01		97.20					
		melt	9	62.60	0.57	15.33	3.85	0.10	1.14	3.36	2.96	4.87	0.35	0.35		95.13	34.63	0.23		
				0.22	0.02	0.16	0.18	0.02	0.04	0.09	0.08	0.07	0.04							
		cpx	8	49.16	0.88	5.71	14.13	0.38	13.33	16.41	0.48	0.09	0.05	0.05		100.62	62.71		35.69	40.33
				0.74	0.08	0.25	0.63	0.03	0.32	0.72	0.05	0.06	0.01							
		opx	18	50.79	0.40	4.92	21.54	0.50	22.17	1.81	0.07	0.03	0.06	0.06		102.28	64.73		3.66	62.36
				0.76	0.03	0.55	0.91	0.04	0.71	0.30	0.04	0.02	0.10							
		mt	6	0.29	7.18	5.96	80.15	0.39	3.35	0.30	0.00	0.05	0.01	0.02	0.02	97.70				
				0.04	0.46	0.28	0.16	0.01	0.23	0.03	0.00	0.01	0.01	0.01						
CG34		ilm	2	0.39	28.87	1.31	63.89	0.17	2.19	0.41	0.04	0.07	0.02		97.37					
				0.07	0.42	0.03	0.41	0.00	0.10	0.00	0.01	0.02	0.01							

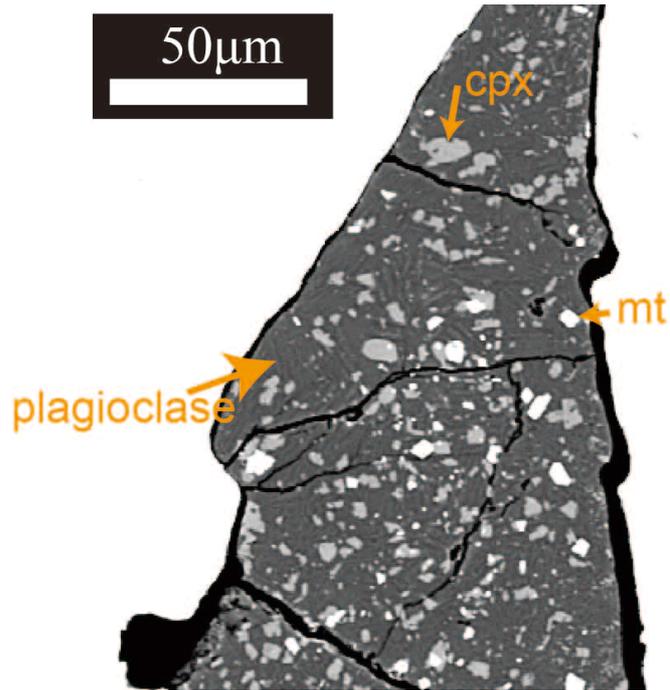


図 2.2-d-5-1 195MPa, 1000°C, 全岩含水量が 0.41wt.%(CG24, G174)の反射電子像写真

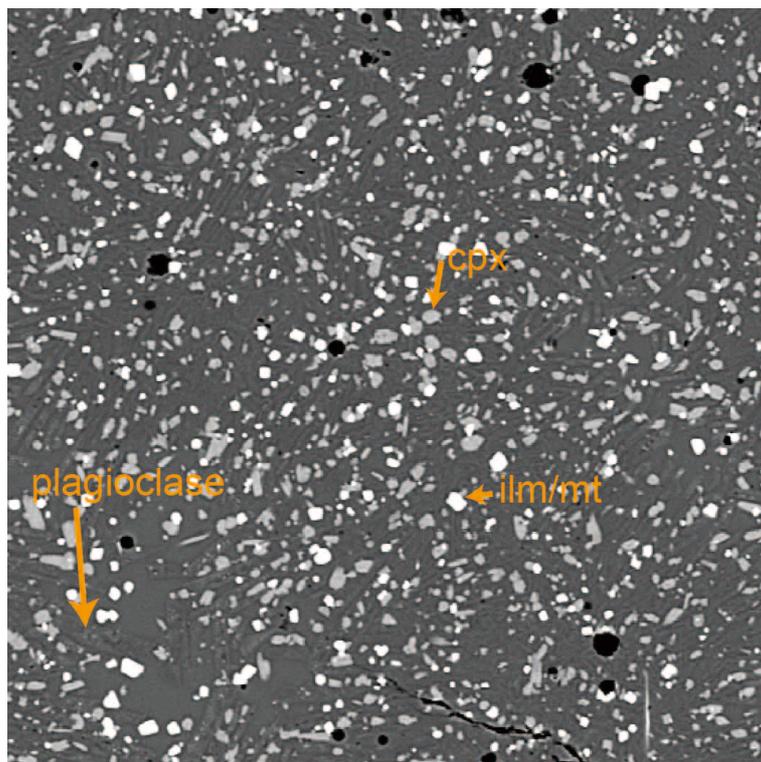


図 2.2-d-5-2 195MPa, 1000°C, 全岩含水量が 1.27wt.%(CG25, G174)の反射電子像写真

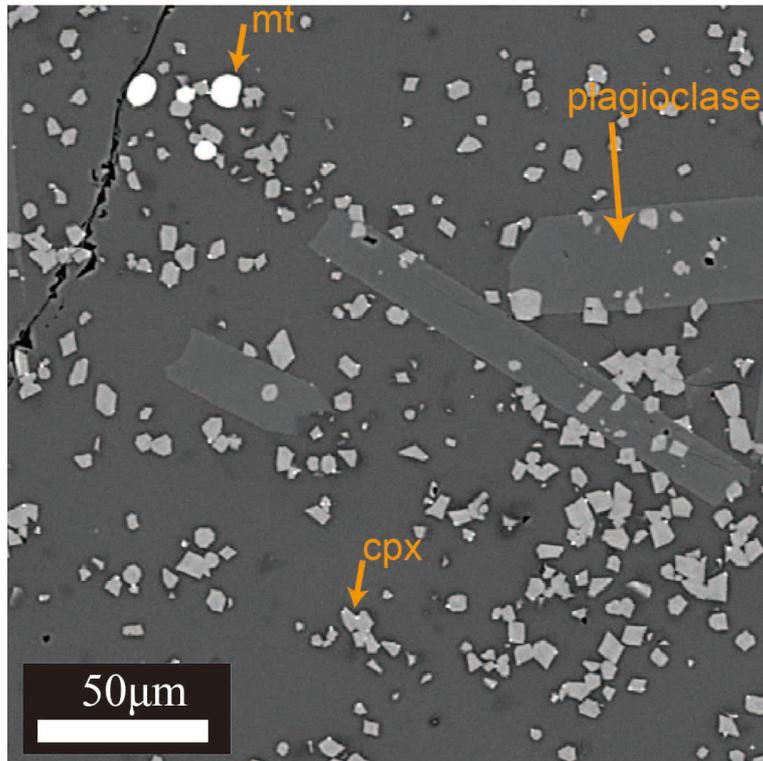


図 2.2-d-5-3 195MPa, 1000°C, 全岩含水量が 4.04wt.%(CG26, G174)の反射電子像写真

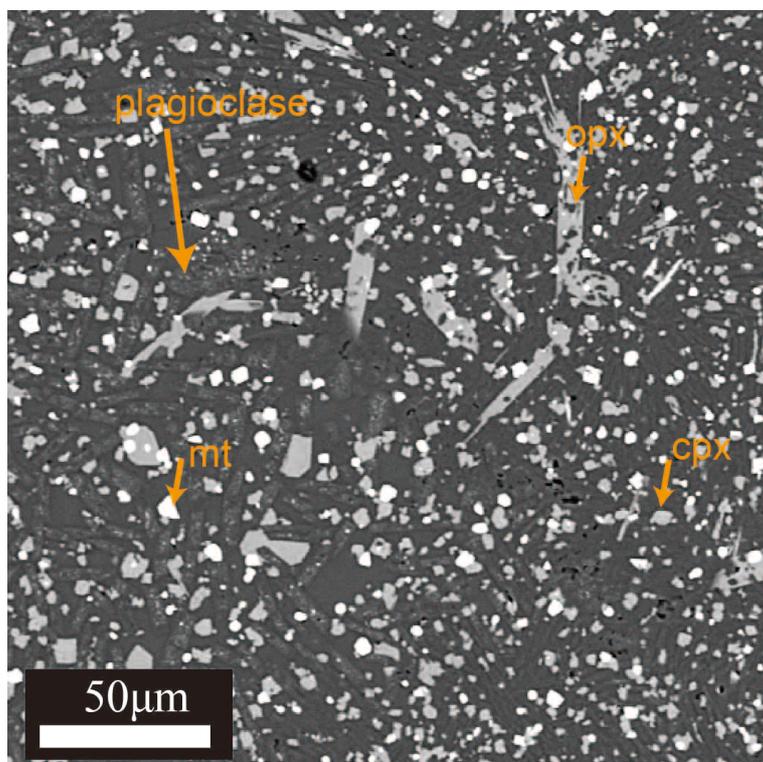


図 2.2-d-5-4 700MPa, 1000°C, 全岩含水量が 1.27wt.%(CG34, SHG58)の反射電子像写真

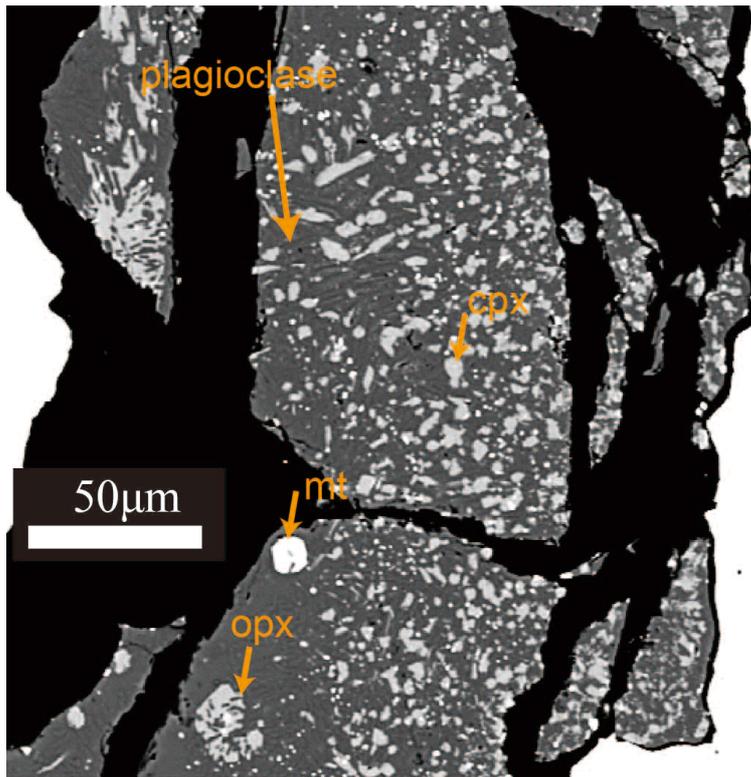


図 2.2-d-5-5 700MPa, 1000°C, 全岩含水量が $0.41\text{wt.}\%$ (CG35,SHG58)の反射電子像写真

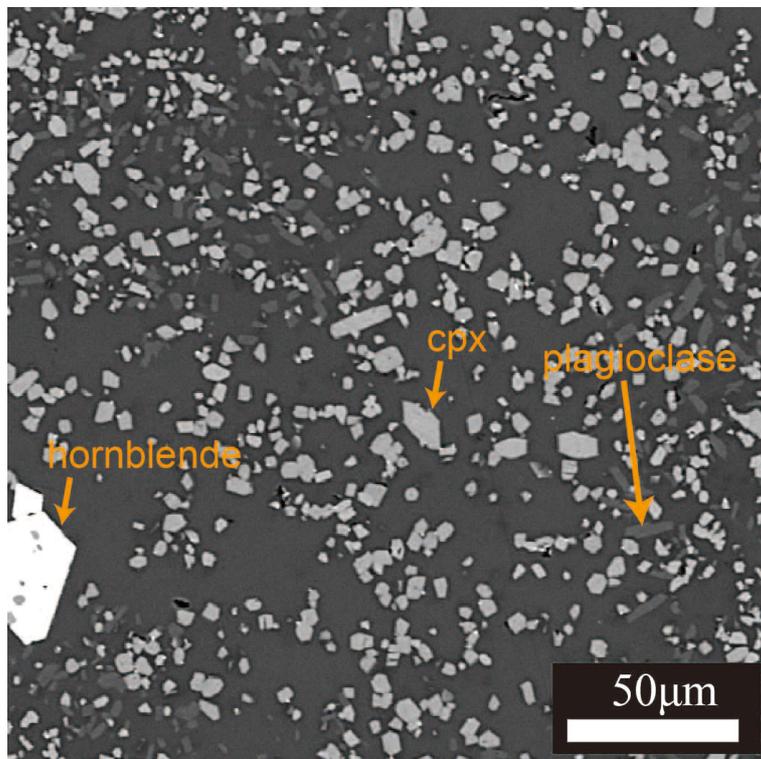


図 2.2-d-5-6 700MPa, 1000°C, 全岩含水量が $4.04\text{wt.}\%$ (CG36,SHG58)の反射電子像写真

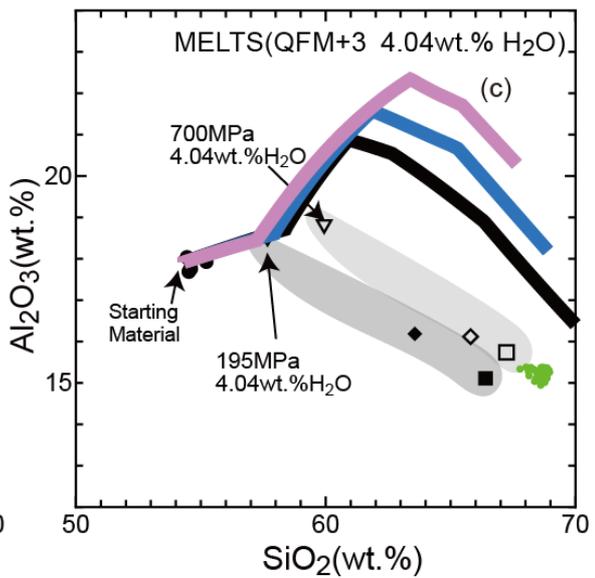
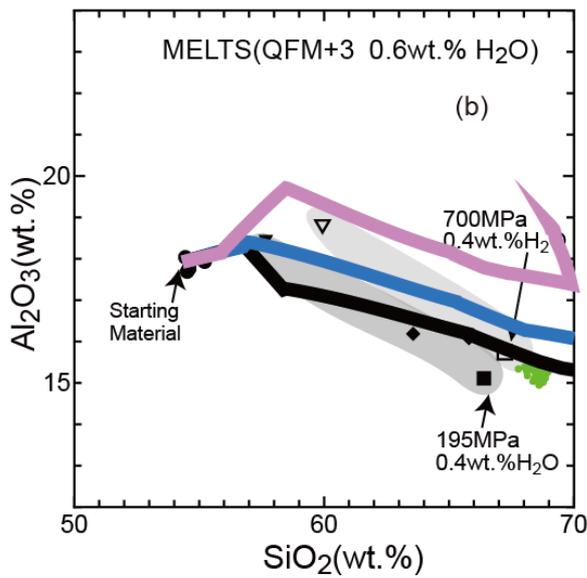
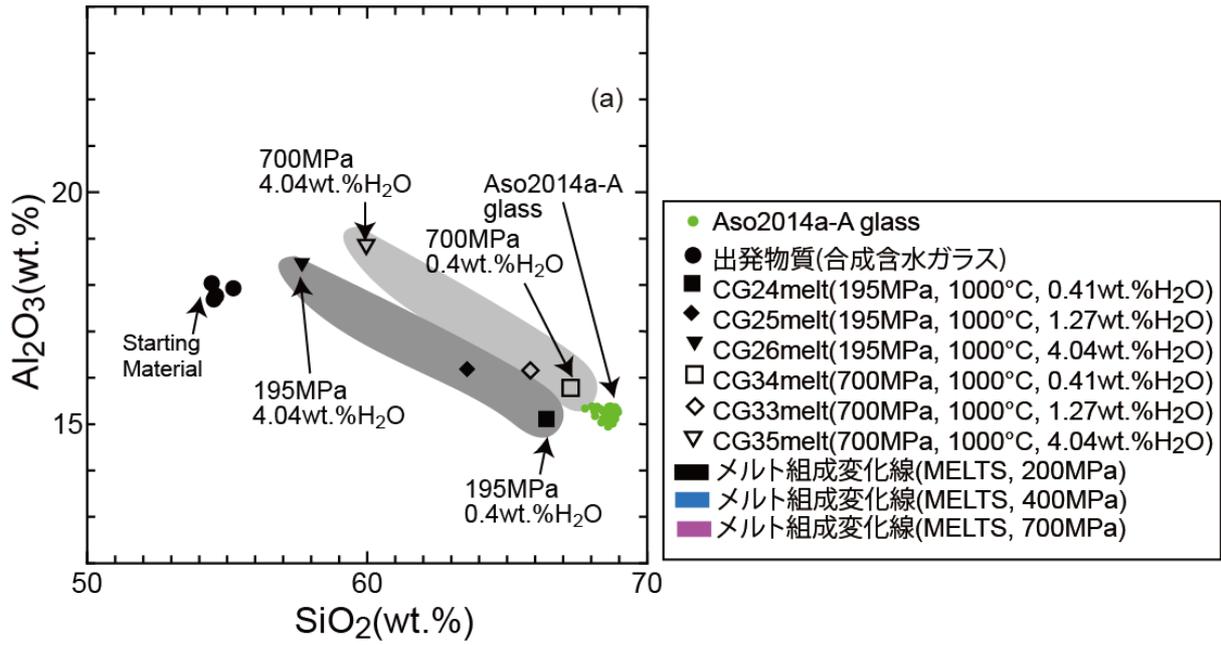


図 2.2-d-6 (a)実験で得られたメルト組成(Al_2O_3 vs. SiO_2)と Aso2014a-A glass との比較.

(b)MELTSによる QFM+3, 全岩で 0.6wt.% H_2O の時に温度を 1300°C から 800°C に下げていった時の平衡メルト組成. 線の色の違いは圧力の違いを示す.

(c)MELTSによる QFM+3, 全岩で 4.04wt.% H_2O の時に温度を 1300°C から 800°C に下げていった時の平衡メルト組成. 線の色の違いは圧力の違いを示す.

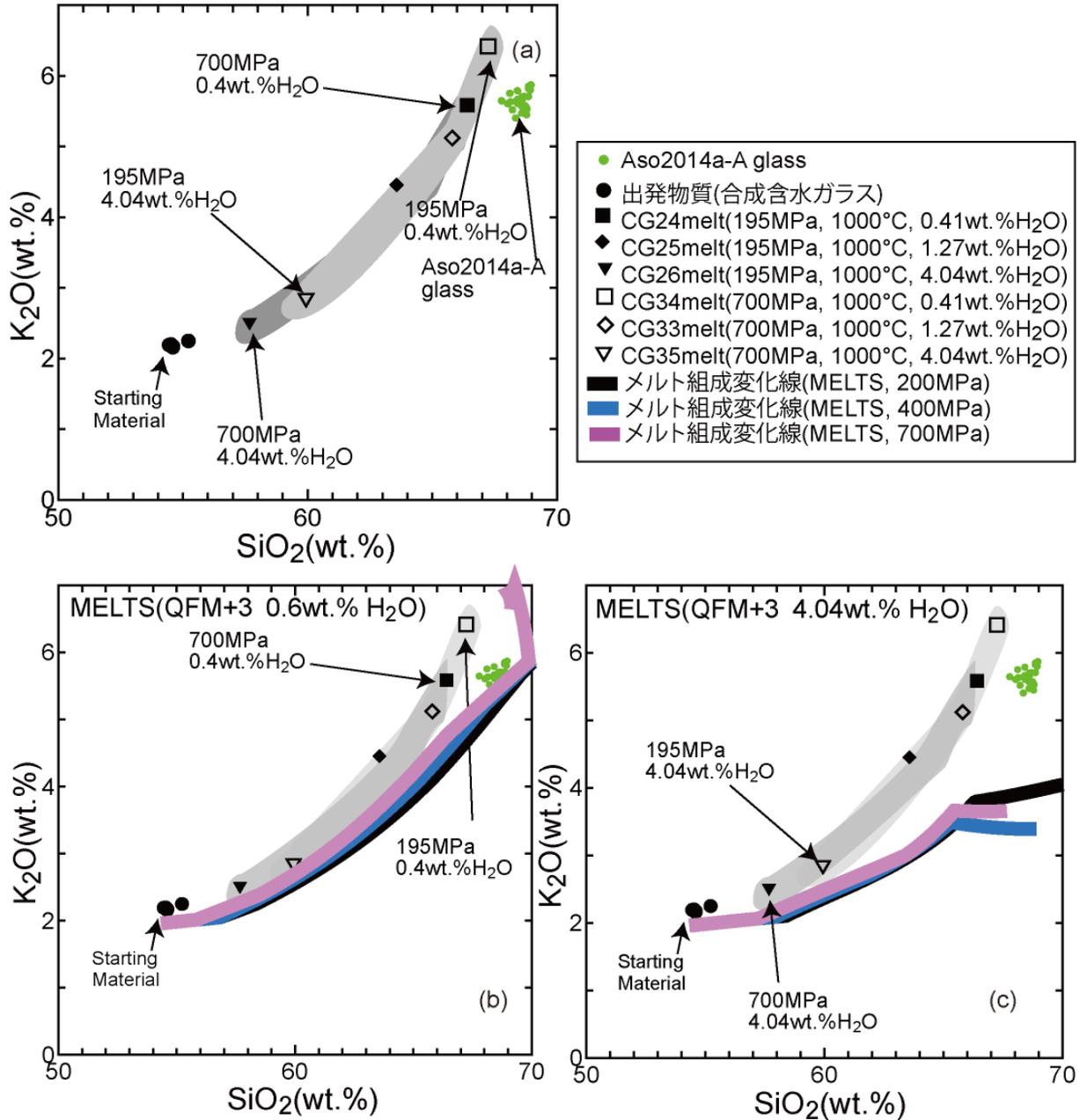


図 2.2-d-7 (a)実験で得られたメルト組成(K_2O vs. SiO_2)と Aso2014a-A glass との比較.

(b)MELTS による QFM+3, 全岩で 0.6wt.%H₂O の時に温度を 1300°C から 800°C に下げていった時の平衡メルト組成. 線の色の違いは圧力の違いを示す.

(c)MELTS による QFM+3, 全岩で 4.04wt.%H₂O の時に温度を 1300°C から 800°C に下げていった時の平衡メルト組成. 線の色の違いは圧力の違いを示す.

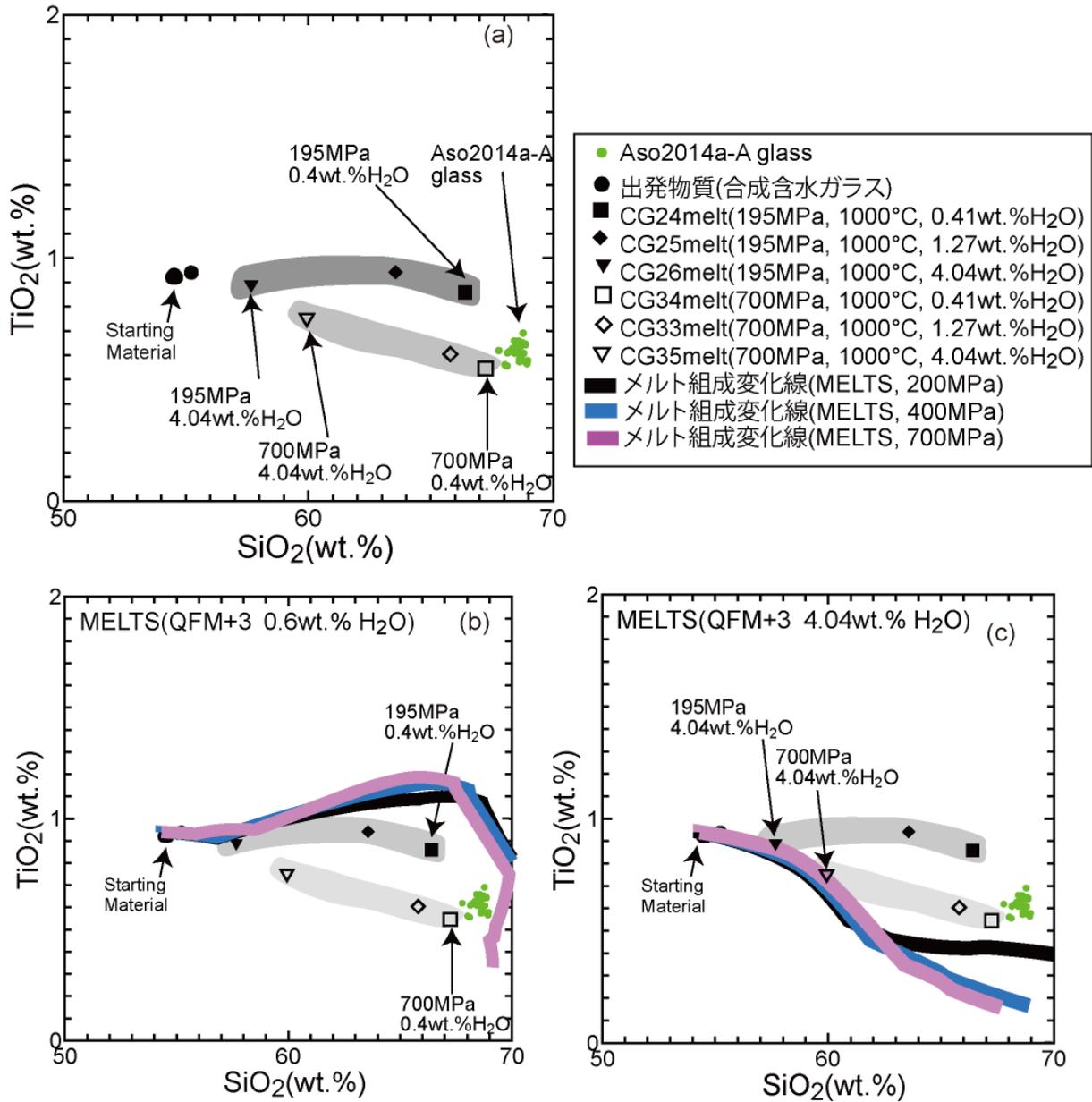


図 2.2-d-8 (a)実験で得られたメルト組成(TiO₂ vs. SiO₂)と Aso2014a-A glass との比較.

(b)MELTS による QFM+3, 全岩で 0.6wt.%H₂O の時に温度を 1300°C から 800°C に下げていった時の平衡メルト組成. 線の色の違いは圧力の違いを示す.

(c)MELTS による QFM+3, 全岩で 4.04wt.%H₂O の時に温度を 1300°C から 800°C に下げていった時の平衡メルト組成. 線の色の違いは圧力の違いを示す.

高温高圧実験・分析手法

用いた装置・実験手法・分析手法は先述(1)とほぼ同様である。195・700MPaの圧力条件で実験を行った。195MPaの実験であるG174についても、(1)の700MPaにおける実験と同様のカプセル構成で実験を行った。阿蘇1の石基メルトは、産総研(2015)、宮城ほか(2015)により玄武岩質安山岩がおよそ880°C(磁鉄鉱・イルメナイト温度計)・およそ700MPaで生成されたと見積もられていることからそれに近い温度で融解実験を行うべきであるが、880°C前後における実験生成物は結晶量が多く、EPMAによる局所分析が可能な測定領域が現れるかわからないため、まずはメルト量の多い条件(1000°C)でメルト組成分析を試みた。

結果

行った実験を表2.2-d-4に、各相の化学組成を表2.2-d-5にまとめた。各実験生成物の反射電子像写真を図2.2-d-5に示す。結晶化度の高い実験(CG24, 25, 33, 34)は、ほとんどの結晶粒子が細粒かつ自形で最大10 μ mである。斜方輝石はポイキリティック組織を呈するものが多く、その場合最大30 μ mほどの大きさになる。CG35(SHG58)のみ普通角閃石が晶出した。CG24, CG25については、斜長石や鉄チタン鉱物が特に細粒なため、組成分析を行っていない。結晶度の高い試料についてはメルトの測定が困難であるが、カプセルの縁にメルトプールが存在することがあるためそれを測定してメルト組成とした(0.41wt.% H₂Oの実験で最大20 μ mほどのメルトプール)。酸素雰囲気は磁鉄鉱・イルメナイトが共存している試料に対し、Lepage(2003)により求めた。平衡温度は実験温度よりも若干低めであるが、酸素雰囲気はQFM+2~3とNNOよりも有意に高い。

実験生成物のメルト組成を図2.2-d-6~8で示す。含水量が0.41wt.%の含水ガラスを出発物質に用いた実験はSiO₂で67wt.%前後となり、含水量が4.04wt.%の含水ガラスを出発物質に用いた実験はSiO₂で58-60wt.%の組成となった。Al₂O₃の組成において圧力変化を比べると、700MPaの実験はよりAl₂O₃に濃集している傾向がある。これは、高圧になると斜長石の晶出が抑えられることに起因すると考えられる。K₂Oには圧力変化は有意に見られなかった。TiO₂量は700MPaの実験において乏しい傾向が見られる。いずれにせよ、今回行った実験において、阿蘇1火砕流堆積物中の石基ガラス(Aso2014a-A)に近い組成となったのは、含水量が0.41wt.%の実験の時、200MPaよりも700MPaの圧力条件の方がより近い。

MELTS との比較

Aso20141210scの全岩組成を出発物質とし、MELTSにより結晶分化トレンドの計算を行った。パラメータとして酸素雰囲気(QFM, QFM+3)、圧力(200MPa, 400MPa, 700MPa)、全岩含水量(0.6wt.%, 1.27wt.%, 4.04wt.%)として設定し、1300°Cから800°Cまで1°Cずつ温度を下げていき、各温度条件における平衡メルト組成を計算した。図2.2-d-6~8では、実験における酸素雰囲気の条件がQFM+2~3であるためQFM+3の結果のみ示し、含水量の違う(0.6wt.% H₂Oと4.04wt.% H₂O)の計算結果を並べて比較した。Al₂O₃成分で見ると、MELTSによる計算結果は含水量により傾向が大きく変わり、含水量が多いものほどAl₂O₃に富む傾向がある。含水量が4.04wt.%のガラスを使った実験の分析値から5%以内にQFM+3による同じ含水量のMELTSの

計算結果の値が入るが、含水量が 0.6wt.%のガラスを使った実験は高圧ほど MELTS の結果と値が離れる。TiO₂成分で見ても含水量が 4.04wt.%のガラスを使った実験は同じ含水量の MELTS の計算結果と TiO₂成分で分析値の 5%以内に入っているのに対し、含水量が 0.41wt.%のガラスを使った実験では同含水量の MELTS の計算結果とこれよりも大きく違う。K₂O成分では、どの圧力・含水量条件下においても分析値の 5%かそれ以上 MELTS の計算結果が低くなった。

高結晶度の実験

一般的に高結晶度かつ結晶の粒径が小さい(数 μm)のものは、低結晶度の実験よりもメルト組成の急冷時における結晶成長の影響を受けやすく、また、このことによる MELTS がキャリブレーションに使った実験の確かさという問題も残されている。高結晶度の実験でメルト組成を確実に測定するためには大きいメルトプールを作ることが重要となる。Kawamoto(1996)では、サンプルカプセル(Au-Pd)の端を折り曲げ、また Au-Pd 箔をカプセル内の底に入れることにより毛細管現象によりメルトプールを得た。ダイヤモンド粉末層カプセル内に同時に入れることでメルトの分離を行う方法(Hirose and Kushro,1993; Baker and Stolper,1994)、ガラス状炭素球をカプセル内で層状に入れることで、メルトを分離する方法(e.g. Wasylenki et al., 2003; Mitchell and Grove, 2015; Colinet et al., 2015)が存在する。これらの方法は全てピストンシリンダー型高压発生装置を用いており、グラファイトヒーターにより酸素雰囲気は還元的事から内熱式ガス圧装置の比較的酸化的雰囲気ではガラス状炭素球を使えるかどうか検討が必要である。以上より、内熱式ガス圧装置で実験を行う場合 Kawamoto(1996)による毛細管現象を利用したメルト分離法により、本研究では 1000°C 以下のより低温の実験を行うことが望ましい。

まとめと今後の課題

阿蘇火山のカルデラ噴火史において初期状態と位置づけられる阿蘇 1 噴出物を対象に、岩石学的記載と MELTS により予測されたマグマだまりの条件(温度・圧力・含水量・酸素雰囲気)(産総研 2015;宮城ほか 2015)に対し、高温高压実験による検証を行った。行った実験はほぼ全て酸素雰囲気が QFM+3 前後であり、阿蘇 1 噴出物の岩石学的記載(QFM+0.2)と合致しないことからマグマだまりの条件を断定できる段階に達しておらず、酸素雰囲気が QFM 前後の実験を行う必要があることが確かめられた。また、実験結果と同じ条件における MELTS の計算結果と比べると、リキダス相の晶出鉱物は矛盾しないが、晶出温度にズレが生じ(実験の方が数十°C 高い)、また結晶組成の再現性に乏しい。以上より、MELTS は高温高压実験によるさらなる検証・引用データの更新が必要である。

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
- Almeev, R. R., Bolte, T., Nash, B. P., Holtz, F., Erdmann, M., and Cathey, H. E. (2012) High-temperature, low-H₂O Silicic Magmas of the Yellowstone Hotspot: an Experimental Study of Rhyolite from the Bruneau-Jarbridge Eruptive Center, Central Snake River Plain, USA. *J. Petrol.*, 53(9):1837-1866.
- Baker, M. B., and Stolper, E. M. (1994) Determining the composition of high-pressure mantle melts using diamond aggregates. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 58(13):2881-2827.
- Berndt, J., Liebske, C., Holtz, F., Freise, M., Nowak, M., Ziegenein, D., Hurkuck, W., and Koepke, J. (2002) A combined rapid-quench and H₂ -membrane setup for internally heated pressure vessels: Description and application for water solubility in basaltic melts. *Am Mineral*, 87:1717-1726.
- Boettcher, A. L., Windom, K. E., Bohlen, S. R., and Luth, R. W. (1981) Low-friction, anhydrous, low- to high-temperature furnace sample assembly for piston-cylinder apparatus. *Rev. Scientific Instruments*, 52:1893
- Colinet, M., Medard, E., Charlier, B., Auwera, J. V., and Grove, T. L., (2015) Melting of the primitive martian mantle at 0.5–2.2 GPa and the origin of basalts and alkaline rocks on Mars. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 427:83-94.
- Chou, I., (1986) Permeability of Precious Metals to Hydrogen at 2kb Total Pressure and Elevated Temperatures. *Am J. Sci.*, 286:638-658.
- 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.
- Hamada, M., and Fujii, T. (2008) Experimental constraints on the effects of pressure and H₂O on the fractional crystallization of high-Mg island arc basalt. *Contrib. Mineral. Petrol.*, 155:767.
- Hirose, K., and Kushro, I. (1993) Partial melting of dry peridotites at high pressures: Determination of compositions of melts segregated from peridotite using aggregates of diamond. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 114:477-489.
- Kawamoto, T. (1996) Experimental constraints on differentiation and H₂O abundance of calc-alkaline magmas. *Earth Planet Sci Lett*, 144:577–589.
- Lange, R. A., Frey, H. M., and Hector, J. (2009) A thermodynamic model for the plagioclase-liquid hygrometer/thermometer. *Am Mineral*, 94:494–506.

- Lepage, L. D. (2003) ILMAT: an excel worksheet for ilmenite–magnetite geothermometry and geobarometry. *Comput. Geosci.*, 29(5):673–678.
- Mitchell, A. L., and Grove, T. L., (2015) Melting the hydrous, subarc mantle: the origin of primitive andesites. *Contrib. Mineral. Petrol.*, 170:13.
- 宮城磯治・星住英夫・宮縁育夫 (2015) 阿蘇 1 噴火のマグマ供給系. 2015 年度日本火山学会講演予稿集, 82.
- Moore, G., Roggensack, K., and Klonowski, S. (2008) A low-pressure-high-temperature technique for the piston-cylinder. *Am. Mineral.*, 93:48-52.
- 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.
- 産業技術総合研究所 (2015) 平成 26 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) 250MPa 内熱式ガス圧装置の開発. *高圧力の科学と技術*, 14(3):225-229.
- Takagi, D., Sato, H., and Nakagawa, M. (2005) Experimental study of a low-alkali tholeiite at 1 – 5 kbar: optimal condition for the crystallization of high-An plagioclase in hydrous arc tholeiite. *Contrib Mineral Petrol*, 149:527–540.
- 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., Takahashi, E., Furukawa, N., and Suzuki, T. (2010) Depth and Evolution of a Silicic Magma Chamber: Melting Experiments on a Low-K Rhyolite from Usu Volcano, Japan. *J. Petrol.*, 51(6):1333-1354.
- Truckenbrodt, J., Ziegenbein, D., and Johannes, W. (1997) Redox conditions in piston-cylinder apparatus: The different behavior of boron nitride and unfired pyrophyllite assemblies. *Am Mineral*, 82:337-344.
- Ushioda, M., Takahashi, E., Hamada, M., and Suzuki, T. (2014) Water content in arc basaltic magma in the Northeast Japan and Izu arcs: an estimate from Ca/Na partitioning between plagioclase and melt. *Earth, Planets and Space*, 66:127.
- Wasylenki, L. E., Baker, M. B., Kent, A. J., and Stolper, E. M. (2003) Near-solidus Melting of the Shallow Upper Mantle: Partial Melting Experiments on Depleted Peridotite. *J. Petrol.*, 44(7), 1163-1191.
- Wilke, M., and Behrens, H. (1999) The dependence of the partitioning of iron and europium between plagioclase and hydrous tonalitic melt on oxygen fugacity. *Contrib. Mineral. Petrol.*, 137:102-114.

2.2-e 阿蘇カルデラ噴出物の同位体地球化学的検討

【実施内容】

阿蘇カルデラの長期的なマグマ供給系の構築過程を把握する目的で、大規模火砕流噴火以前の100万年程度の期間に阿蘇カルデラの周辺に噴出した先阿蘇火山岩及びカルデラ深部のマグマだまりの母岩の候補となる岩石を採取し、同位体地球化学的研究を行なった。特に、阿蘇火山のマグマ供給系を構成しているマグマと母岩の関係を理解するため、地化学的および同位体地球化学的データを用いて、マグマの起源物質とその時間変遷を考察する。

【研究成果】

本年度の分析対象は、阿蘇カルデラ噴出物、先阿蘇火山噴出物、基盤岩である。分析対象となった同位体元素は、ストロンチウム 87/ストロンチウム 86 比（以下ストロンチウム同位体比と呼ぶ）、ネオジム 143/ネオジム 144 の比（以下ネオジム同位体比と呼ぶ）、鉛 206/鉛 204 の比、鉛 207/鉛 204 の比、鉛 208/鉛 204 の比（以下鉛同位体比と呼ぶ）である。これに加え岩石主要化学成分（Si, Ti, Al, Fe, Mn, Mg, Ca, Na, K, P）と微量元素組成も得た（Li, Be, V, Cr, Ni, Rb, Sr, Y, Zr, Nb, Cs, Ba, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, Hf, Ta, Pb, Th, U）。分析および分析のための試料処理作業は地質調査総合センターで行なわれた。蛍光X線による主要元素分析の詳細は、Uto et al., (2004)に記述されており、地質調査総合センターの地球化学標準試料 JB-1a の繰り返し分析分析にもとづく誤差見積りは、 $\pm 1.5\%$ である。微量元素の分析は ICP-MS により、詳細は Ishizuka et al. (2003)にある。ICP-MS の分析値の繰り返し誤差は、希土類元素、ルビジウム、およびネオジムでは $\pm 4\%$ (2σ)よりも小さく、その他の元素では $\pm 6\%$ よりも小さい。地質調査総合センターの ICP-MS を用いた標準物質の分析結果は、Hoang et al. (2011)に報告されている。試料片の新鮮な破片を対象に、ストロンチウム、ネオジム、そして鉛の同位体組成分析を行なった。これらの試料片は粉碎されたのち、1~2 ミリメートルの大きさに篩分けられ、超純水を用いて超音波洗浄器で 30 分洗浄され、複数回にわたり超純水で洗浄された後に、メノウ乳鉢で微粉化された。イオン交換樹脂による元素の分離のために使用された酸および水は、TAMA-Pure AA-10 級である (Hoang and Uto, 2003)。取り分けられた約 30 ミリグラムの試料粉末は、濃硝酸およびフッ化水素酸(比率は 1 : 2)で溶解後に、再び硝酸を用いて完全に溶解された。鉛とストロンチウムの抽出方法は、Deniel and Pin (2001)の手法にもとづく、Eichrom の Sr-spec 樹脂によった。鉛とストロンチウムの抽出方法の詳細は、Hoang and Uto (2006)に報告されている。その他の希土類元素の抽出には、AG50W8X 200-400 樹脂を用い、さらに 0.25 規定の塩酸と LN-resin を用いることでネオジムを分離した。ネオジム、ストロンチウム、そして鉛の同位体比分析は、地質調査総合センターの熱イオン化方式のマルチコレクター質量分析計 VG セクター54 により、その詳細は Hoang and Uto (2006)に報告されている。鉛の同位体比分析における機器の繰り返し分析誤差は 0.01%よりも小さく、ブランクは 70 ピコグラム以下である。鉛の同位体比分析における質量分析計内部の同位体分別の補正量は 0.1/amu であり、これは NBS981 鉛同位体比標準物質に対する繰り返し測定に基づくものである(NBS981 の 208Pb/204Pb, 207Pb/204Pb, and 206Pb/204Pb の値はそれぞれ、 36.570 ± 0.022 , 15.453 ± 0.010 , 16.906 ± 0.008 ; mean, 1σ , $n = 75$ である)。分析結果を表 2.2-e-1 に示す。

表 2.2-e-1: スロニウム同位体, ネオジウム同位体比, 鉛同位体比, 微量元素, 主化学組成, 試料IDは, Aso2015 k-L 上米塚スコリアコーン, Aso2015 k-F 阿蘇1/2溶岩(転石), Aso2015 k-G 阿蘇1/2溶岩(クリンカー), Aso2015 k-H PreAso-1 溶岩, Aso2015 k-I 坂梨流紋岩(黒曜岩; 転石), Aso2015 k-J 坂梨流紋岩(流紋岩? ; 転石).

Sample ID	Aso2015 k-L	Aso2015 k-F	Aso2015 k-H	Aso2015 k-I	Aso2015 k-J
Age	0.02-0.03	0.145	0.28	0.35	0.35
SiO ₂	50.30	59.86	56.58	72.12	58.25
TiO ₂	0.88	1.10	0.84	0.35	0.95
Al ₂ O ₃	17.52	15.11	20.07	15.29	17.39
Fe ₂ O ₃	10.48	7.66	5.79	1.91	5.95
MnO	0.17	0.14	0.10	0.09	0.12
MgO	5.40	1.92	1.52	0.30	3.60
CaO	10.10	4.56	7.26	1.83	7.29
Na ₂ O	2.63	3.76	3.59	4.50	3.57
K ₂ O	1.11	3.61	2.44	3.60	1.55
P ₂ O ₅	0.20	0.37	0.26	0.08	0.22
LOI	0.24	0.17	0.53	0.13	0.66
Sum	99.01	98.27	98.96	100.20	99.53
Ba/Rb	8.33	5.19	5.61	5.60	10.83
Ba/Nb	63.04	44.55	45.44	55.30	38.21
Ti (ppm)	5264	6619	5012	2068	5701
K (ppm)	9173	29985	20272	29902	12884
⁸⁷ Sr/ ⁸⁶ Sr	0.7040643	0.7041191	0.7042527	0.7043595	0.703945
²⁰⁶ Pb/ ²⁰⁴ Pb	18.278	18.336	18.344	18.354	18.193
²⁰⁷ Pb/ ²⁰⁴ Pb	15.536	15.550	15.549	15.558	15.530
²⁰⁸ Pb/ ²⁰⁴ Pb	38.289	38.378	38.379	38.416	38.284
¹⁴³ Nd/ ¹⁴⁴ Nd	0.512785	0.512781	0.512760	0.512750	0.512768
εNd	2.87	2.78	2.38	2.18	2.53
Li	11.943	25.087	19.149	19.872	11.133
Be	0.860	2.011	1.507	1.811	1.154
V	331.110	191.703	144.178	9.770	207.114
Cr	69.577	71.205	47.818	57.103	124.429
Ni	40.37	30.87	23.16	24.86	48.92
Rb	31.71	123.61	84.69	121.92	41.36
Sr	624.39	418.32	607.07	256.75	558.73
Y	19.89	36.28	27.34	16.74	21.93
Zr	79.21	247.68	176.63	177.51	137.45
Nb	4.19	14.39	10.45	12.35	11.72
Cs	1.70	6.06	3.96	4.47	1.72
Ba	264.11	641.00	474.87	682.79	447.69
La	11.28	31.64	24.15	28.36	17.10
Ce	25.76	69.27	50.11	55.86	36.34
Pr	3.29	8.27	6.28	5.89	4.28
Nd	14.85	34.35	26.29	21.18	17.83
Sm	3.54	7.17	5.50	3.62	3.86
Eu	1.10	1.68	1.44	0.91	1.15
Gd	3.53	6.55	4.95	2.76	3.80
Tb	0.54	1.00	0.75	0.43	0.61
Dy	3.23	5.93	4.40	2.51	3.59
Ho	0.67	1.18	0.90	0.53	0.72
Er	1.89	3.35	2.59	1.58	2.06
Tm	0.28	0.50	0.37	0.26	0.31
Yb	1.78	3.35	2.39	1.83	1.97
Lu	0.27	0.52	0.37	0.29	0.30
Hf	2.13	6.24	4.52	4.50	3.60
Ta	0.33	1.19	0.85	1.14	0.80
Pb	6.55	21.66	13.71	18.81	7.37
Th	3.03	12.58	8.21	11.19	4.28
U	0.83	3.46	2.30	2.63	1.02

表 2.2-e-1(続き): 試料IDは, Aso2015 i-H 船の山安山岩(先阿蘇, 0.5Ma), Aso2015 k-K 高森カルデラ壁の先阿蘇玄武岩質安山岩, Aso2015 k-A 2.3 Ma の貫入岩体, Aso2015 i-C 権現山玄武岩質安山岩 (3.6-3.9Ma), Aso2015 j-D Basement Pliocene andesite (4.0 Ma, 転石).

Sample ID	Aso2015 i-H	Aso2015 k-K	Aso2015 k-A	Aso2015 i-C	Aso2015 j-D
Age	0.5	0.63	2.3	3.6-3.9	4
SiO ₂	56.97	53.42	71.10	54.25	59.96
TiO ₂	0.77	0.73	0.33	0.83	0.59
Al ₂ O ₃	17.51	20.26	14.91	15.42	16.17
Fe ₂ O ₃	6.82	8.39	1.89	6.90	5.70
MnO	0.13	0.16	0.10	0.11	0.14
MgO	3.67	3.08	0.43	6.54	3.78
CaO	7.39	9.29	1.83	7.14	6.55
Na ₂ O	3.23	3.05	4.59	3.26	3.38
K ₂ O	2.00	0.82	3.62	0.95	1.61
P ₂ O ₅	0.18	0.16	0.08	0.20	0.18
LOI	0.57	0.00	0.22	0.74	0.91
Sum	99.24	99.36	99.09	96.33	98.97
Ba/Rb	6.68	12.33	5.38	12.84	9.72
Ba/Nb	53.72	54.66	54.35	25.57	45.25
Ti (ppm)	4628	4400	1954	4958	3561
K (ppm)	16636	6766	30076	7895	13374
⁸⁷ Sr/ ⁸⁶ Sr	0.704004	0.7042993	0.7043754	0.7043992	0.7045366
²⁰⁶ Pb/ ²⁰⁴ Pb	18.330	18.231	18.357	18.301	18.352
²⁰⁷ Pb/ ²⁰⁴ Pb	15.558	15.529	15.558	15.526	15.579
²⁰⁸ Pb/ ²⁰⁴ Pb	38.412	38.274	38.422	38.292	38.523
¹⁴³ Nd/ ¹⁴⁴ Nd	0.512777	0.512713	0.512749	0.512716	0.512654
εNd	2.72	1.46	2.16	1.53	0.32
Li	16.920	9.384	46.291	9.822	13.259
Be	1.204	0.769	1.932	0.868	1.158
V	173.306	167.976	8.926	128.222	104.647
Cr	46.545	36.009	46.376	256.011	156.999
Ni	17.81	15.03	19.63	156.08	63.48
Rb	58.79	18.92	124.31	22.88	43.11
Sr	567.10	531.28	255.55	458.19	452.33
Y	22.74	18.63	19.60	29.37	17.31
Zr	142.73	70.93	218.95	105.26	105.80
Nb	7.32	4.27	12.30	11.49	9.26
Cs	2.85	0.60	6.36	0.64	0.64
Ba	392.98	233.23	668.56	293.78	418.90
La	17.90	10.58	27.87	27.19	17.47
Ce	38.89	23.22	55.56	33.18	34.40
Pr	4.61	3.00	5.82	5.63	3.87
Nd	19.50	13.28	20.98	23.76	15.42
Sm	4.15	3.05	3.60	4.74	3.08
Eu	1.17	1.20	0.88	1.61	0.95
Gd	3.89	3.08	2.93	4.88	2.92
Tb	0.61	0.48	0.47	0.71	0.45
Dy	3.63	2.93	2.79	4.14	2.66
Ho	0.73	0.62	0.60	0.87	0.54
Er	2.12	1.76	1.86	2.35	1.52
Tm	0.32	0.26	0.30	0.33	0.23
Yb	2.11	1.76	2.17	2.02	1.50
Lu	0.32	0.28	0.35	0.31	0.24
Hf	3.59	1.93	5.41	2.61	2.77
Ta	0.60	0.33	1.16	0.70	0.73
Pb	10.04	6.51	19.56	5.05	7.48
Th	5.84	2.13	12.36	2.63	3.85
U	1.48	0.48	3.32	0.51	0.83

表 2.2-e-1(続き): 試料IDは, Aso2015 j-E 基盤の安山岩, Aso2015 j-G および j-H 代三五山安山岩, Aso2015 j-I かんらん石流紋岩(14Ma), Aso2015 i-A Aso4 小谷火砕流堆積物中の異質岩片, Aso2015 j-A 基盤の菊池花崗岩.

Sample ID	Aso2015 j-E	Aso2015 j-G	Aso2015 j-I	Aso2015 i-A_ign	Aso2015 j-A
Age	4	14	14		K granite
SiO ₂	62.55	59.53	71.61	69.53	75.48
TiO ₂	0.93	1.11	0.20	0.54	0.04
Al ₂ O ₃	16.36	16.24	13.11	15.47	13.44
Fe ₂ O ₃	5.65	6.75	1.88	2.44	0.54
MnO	0.14	0.13	0.04	0.11	0.08
MgO	1.16	3.31	0.11	0.54	0.01
CaO	2.88	6.27	1.22	1.70	0.54
Na ₂ O	3.44	2.85	3.20	4.67	3.87
K ₂ O	4.02	2.20	5.16	4.62	4.78
P ₂ O ₅	0.23	0.20	0.03	0.10	0.07
LOI	1.33	0.94	2.53	0.20	0.29
Sum	98.68	99.52	99.08	99.90	99.12
Ba/Rb	4.93	5.08	5.42	5.62	0.66
Ba/Nb	38.63	34.99	53.51	54.53	7.45
Ti (ppm)	5581	6637	1181	3213	222
K (ppm)	33389	18280	42811	38353	39706
⁸⁷ Sr/ ⁸⁶ Sr	0.7044363	0.7065777	0.7082343	0.7040749	0.720898
²⁰⁶ Pb/ ²⁰⁴ Pb	18.362	18.369	18.364	18.298	18.925
²⁰⁷ Pb/ ²⁰⁴ Pb	15.549	15.598	15.598	15.538	15.633
²⁰⁸ Pb/ ²⁰⁴ Pb	38.393	38.642	38.645	38.343	38.660
¹⁴³ Nd/ ¹⁴⁴ Nd	0.512719	0.512451	0.512429	0.512788	0.512559
εNd	1.58	-3.65	-4.08	2.93	-1.55
Li	27.802	13.145	41.523	23.985	13.404
Be	2.598	1.784	3.112	2.147	2.575
V	79.097	140.306	5.386	29.816	1.029
Cr	74.425	149.628	44.422	6.803	32.900
Ni	30.63	51.99	21.01	3.99	15.49
Rb	146.37	80.27	180.15	129.20	199.11
Sr	303.07	311.55	101.17	365.93	55.08
Y	44.30	24.31	31.06	34.95	12.57
Zr	276.35	173.69	94.00	246.76	13.91
Nb	18.68	11.65	18.26	13.32	17.55
Cs	7.66	5.59	12.62	7.01	7.01
Ba	721.59	407.72	977.14	726.17	130.70
La	46.10	23.20	42.74	31.27	10.01
Ce	102.27	49.84	88.40	67.88	19.47
Pr	12.67	5.49	9.40	7.95	2.19
Nd	52.06	22.28	34.95	32.85	8.04
Sm	10.61	4.76	6.61	6.76	2.05
Eu	2.17	1.28	0.78	1.58	0.14
Gd	8.91	4.32	5.58	5.86	1.75
Tb	1.37	0.68	0.90	0.90	0.32
Dy	7.83	4.13	5.27	5.44	1.90
Ho	1.54	0.82	1.03	1.11	0.36
Er	4.33	2.34	2.87	3.25	1.08
Tm	0.65	0.34	0.42	0.51	0.20
Yb	4.31	2.20	2.66	3.40	1.55
Lu	0.63	0.33	0.39	0.53	0.24
Hf	7.14	4.31	3.80	6.35	0.74
Ta	1.48	0.89	1.47	1.08	3.90
Pb	22.29	15.99	32.47	20.41	31.31
Th	14.34	6.92	14.86	12.81	5.52
U	3.81	1.64	3.60	3.61	3.63

全岩酸素同位体比（酸素18／酸素16比（以下酸素同位体比と呼ぶ：‰表記））の分析はニュージーランド GNS のラボに委託した。酸素同位体比の分析は、5フッ化臭素気流中で岩石粉末を炭酸ガスレーザーで加熱して抽出した酸素ガスを二酸化炭素に変換後、ガス質量分析計 Geo20-20 で測定する方法（Sharp, 1990）によった。酸素抽出ラインの内面や試料表面の付着水は、200℃で一晩加熱後、約6時間真空脱水することによって除去された。得られた酸素同位体比は平均海水の酸素同位体比で規格化した千分偏差（ $\delta^{18}O$ 値, ‰）で記載された。この手法による標準石英試料 NBS-28 の測定値は+9.6‰であり、繰り返し測定の誤差は0.15‰より小さいとされている。酸素同位体比の測定結果を、主要化学組成とともに表 2.2-e-2 に示す。

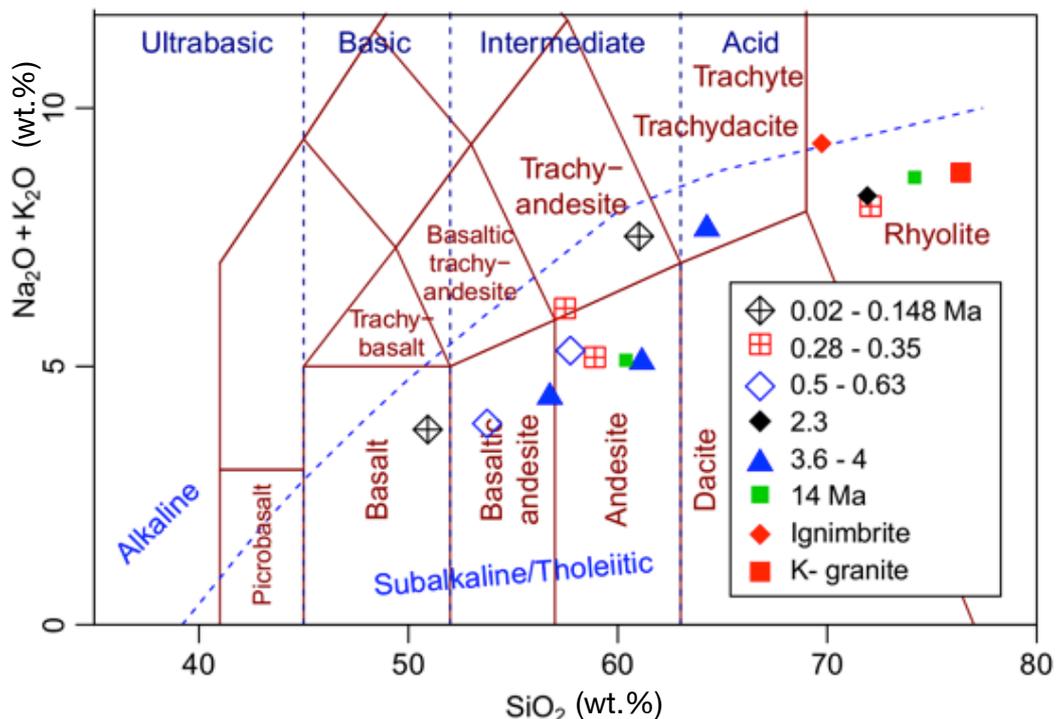


図 2.2-e-1: 火山岩化学組成分類図. 阿蘇火山およびその周辺に産する 1400 万年前以降の火山岩試料を時代ごとに示した。古い順に、緑塗り四角は 1400 万年前、青塗り三角は 400～360 万年前、黒塗り菱形は 230 万年前、白抜き青菱形は 63～50 万年前、赤十時四角は 28～35 万年前、黒十時菱形は 20～14 万 8 千年前である。また、赤塗り四角は基盤花崗岩、赤塗り菱形は阿蘇-4 火砕流堆積物によって地表に噴出した基盤岩（捕獲岩）である。

阿蘇カルデラの噴火活動は約 27 万年前(阿蘇-1)に開始したが, 阿蘇カルデラ周辺には約 1400 万年前以降からマグマの活動が知られている. 地表に噴出した火山岩の化学組成は medium-K の玄武岩(比較的希), 玄武岩質安山岩~安山岩, そして high-K の安山岩~流紋岩まで多岐に及ぶ(図 2.2-e-1, 火山岩化学組成分類図(Le Bas et al., 1986)). 阿蘇の火山岩試料はサブアルカリ~ソレアイト(Subalkaline/Thoeitic)の領域に分類される. このうち比較的最近噴出したものは玄武岩~流紋岩までの幅広い組成範囲を持つものに対して, 古い時代のものは玄武岩質組成を欠いている. これらの火山岩類は, カルクアルカリ岩系の化学組成を持ち, ソレアイト質岩系とは明瞭に区別できることから(図 2.2-e-2, 図 2.2-e-3), 沈み込み帯のマグマ生成機構によって生じたことが示唆される.

表 2.2-e-2: 全岩酸素同位体比と主要化学組成.

Sample ID	Delta 18O (‰)	SiO ₂	TiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	MnO	MgO	CaO	Na ₂ O	K ₂ O	P ₂ O ₅
Aso2015 i-A	5.84	69.53	0.54	15.47	2.44	0.11	0.54	1.70	4.67	4.62	0.10
Aso2015 i-F	6	45.68	0.14	1.69	12.36	0.24	21.21	15.14	0.01	0.00	0.00
Aso2015 i-I	13.86	64.98	0.70	14.97	6.66	0.22	2.60	1.56	1.12	3.36	0.15
Aso2015 i-J	6.64	53.54	0.19	3.40	10.62	0.27	16.55	13.35	0.40	0.07	0.02
Aso2015 i-K	8.38	45.99	0.53	13.48	16.03	0.30	9.04	9.30	2.11	0.18	0.19
Aso2015 i-L	8.25	44.57	0.51	18.14	12.83	0.21	5.07	13.93	1.88	0.07	0.20
Aso2015 j-A	12.44	75.48	0.04	13.44	0.54	0.08	0.01	0.54	3.87	4.78	0.07
Aso2015 j-F	8.94	49.78	1.17	19.95	8.69	0.16	3.72	5.75	2.37	1.23	0.24
Aso2015 j-I	12.93	71.61	0.20	13.11	1.88	0.04	0.11	1.22	3.20	5.16	0.03
Aso2015 k-C	11.32	74.31	0.04	13.69	1.08	0.03	0.06	0.25	3.42	5.09	0.03
Aso2015 k-D	9.91	52.60	0.94	19.66	8.36	0.13	3.34	3.54	5.46	1.40	0.22
Aso2015 k-E	12.44	60.68	0.66	15.67	4.53	0.08	1.69	5.60	5.66	0.94	0.14
Aso2015 k-F	7.29	59.86	1.10	15.11	7.66	0.14	1.92	4.56	3.76	3.61	0.37
Aso2015 k-G	6.17	59.88	1.12	15.17	7.90	0.15	2.07	4.67	3.82	3.51	0.36
Aso2015 k-H	7.26	56.58	0.84	20.07	5.79	0.10	1.52	7.26	3.59	2.44	0.26
Aso2015 k-K	5.91	53.42	0.73	20.26	8.39	0.16	3.08	9.29	3.05	0.82	0.16

これらの火山岩類の全岩微量元素組成濃度を N-MORB および大陸下部地殻の組成で規格化し, 元素濃度パターンを調べたところ, HFS 元素(Nb, Ta, Ti)が相対的に少ない一方で, LIL 元素(Cs, Ba, Rb, Th, Pb)は相対的に多いことが判明した(図 2.2-e-4, 図 2.2-e-5). ニオブ(Nb)とチタン(Ti)の相対的な濃度が顕著に低いことがわかる. 一方, セシウム(Cs), ルビジウム(Rb), バリウム(Ba), トリウム(Th), 鉛(Pb)の相対的な濃度は高まっている. このような濃度パターンは, 沈み込み帯に産する火山岩の特徴である. タンタル(Ta), ニオブ(Nb), チタン(Ti)といった HFS 元素(イオン化した時の電荷数が大きいために造岩鉱物に取り込まれにくい性質を持つ元素)の相対的な濃度がやや少ない一方で, セシウム(Cs), ルビジウム(Rb), トリウム(Th), ウラン(U), カリウム(K)といった LIL 元素(イオン半径が大きいために造岩鉱物に取り込まれにくい性質を持つ元素)の相対的な濃度は顕著に増加している. このような特徴は, マグマの生成過程において水に富む流体が関与したことを示唆する. また, ランタン(La), セリウム(Ce), ツリウム(Tm), イッテルビウム(Yb)の相対的な濃度が全体的に高いことは, マグマ起源物質に下部地殻の物質が含まれていることを示唆する.

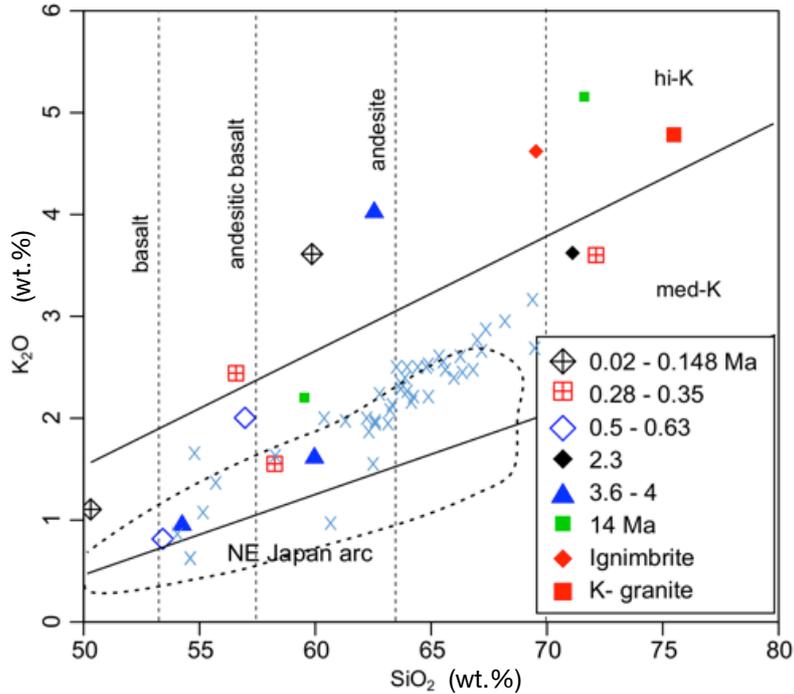


図 2.2-e-2: 火山岩全岩化学組成のカリウムとシリカ量図. 阿蘇火山岩の凡例は図 2.2-e-1 と共通. 比較のため, 東北日本弧の第四紀火山岩の全岩化学組成領域を破線で示し, また雲仙火山のものを青い×印で示した. 阿蘇の火山岩の化学組成は, これらと比較して明らかにカリウム濃度が高い.

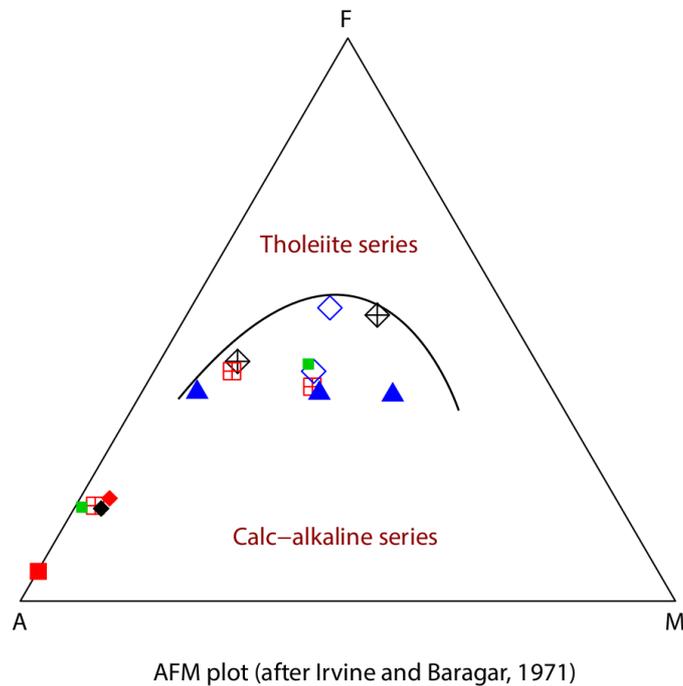


図 2.2-e-3: 阿蘇火山岩の AFM ダイアグラム. 凡例は図 2.2-e-1 と共通. AFM ダイアグラム (Irvine and Baragar, 1971) は, 火成岩の化学組成を三成分 A:Al₂O₃, F:FeO+Fe₂O₃, M:MgO の重量比 (A+F+M=100wt.%) で表現した図で, ソレイト系列やカルクアルカリ系列を区別できる. 阿蘇の火山岩試料はカルクアルカリ岩系の領域に分布している.

阿蘇の火山岩のなかでも最も同位体的に枯渇した組成を示す試料は、ストロンチウム同位体比が 0.704 程度、ネオジウム同位体比が 0.512785 (ϵ Nd = 2.8) 程度である。その同位体組成は、西南日本およびその周辺のマンツルの値と調和的である (e.g. Shinjo et al., 1999; Arai et al., 2000; Hosono et al., 2003; Hoang and Uto, 2006; Hoang et al., 2013)。阿蘇火山岩の大半は同位体的に枯渇したマンツル (DMM) に特徴的な組成を持つが、1400 万年前の 2 試料 (緑塗り四角) は大陸地殻 (CC) に特徴的な組成に向かって変化している。また、基盤岩の花崗岩 (赤塗り四角) の同位体組成は阿蘇火山岩とは明瞭に異なる (図 2.2-e-6)。ストロンチウムと鉛の同位体組成の分布は (図 2.2-e-7)、阿蘇の火山岩が N-MORB 的な物質と CC 的な物質の混合によって生じたことと、N-MORB が DMM と HIMU (鉛同位体比が高くウラン/鉛濃度比も高い起源物質) の混合によって生じたことを示唆している。

阿蘇およびその周辺の火山岩の同位体組成には時間変化がみられ、1400 万年前の火山岩では CC に特徴的な向きに組成が大きく変化されたと解釈出来るのに対し、比較的若い火山岩では DMM の周辺に分布している。このことから、マンツルで生じたマグマに対する大陸地殻成分の混入比率が時間とともに減少したと解釈することが出来る。

ストロンチウム同位体比 ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) と Ba/Rb 元素比の関係 (図 2.2-e-8) は、大きく異なる二方向の分布をみせた。ひとつは 1400 万年前の火山岩 (緑塗り四角) にみられたように、ストロンチウム同位体比が高く Ba/Rb 比が低い方向のものであり、これはマンツルで生じたマグマに地殻起源物質が混合したことが原因と考えられる (図 2.2-e-8 中の水平右向き矢印)。もうひとつは比較的新しい時代の火山岩試料にみられたように、ストロンチウム同位体比がほぼ一定 (0.704) だが Ba/Rb 比が高まるもので、これは地殻内でマグマが冷却固化した際に生じる結晶分化作用が原因だと考えられる (図 2.2-e-8 中の垂直上向き矢印)。ストロンチウム同位体比 ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) と Ba/Nb 元素比の関係 (図 2.2-e-9) においても、図 2.2-e-8 と同様の変化が見られる。すなわち 1400 万年前の火山岩の組成分布は、ストロンチウム同位体比が低く Ba/Nb 元素比も小さな (Ba/Nb=10-20) DMM 的な端成分マグマが、ストロンチウム同位体比が高く Ba/Nb 比も高い ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr} > 0.710$, Ba/Nb > 60) 端成分と混合したと解釈できる。これに対して比較的新しい火山岩は、基本的に結晶分化作用で説明可能な組成変化を見せており、地殻物質の混合は僅かだと考えられる。

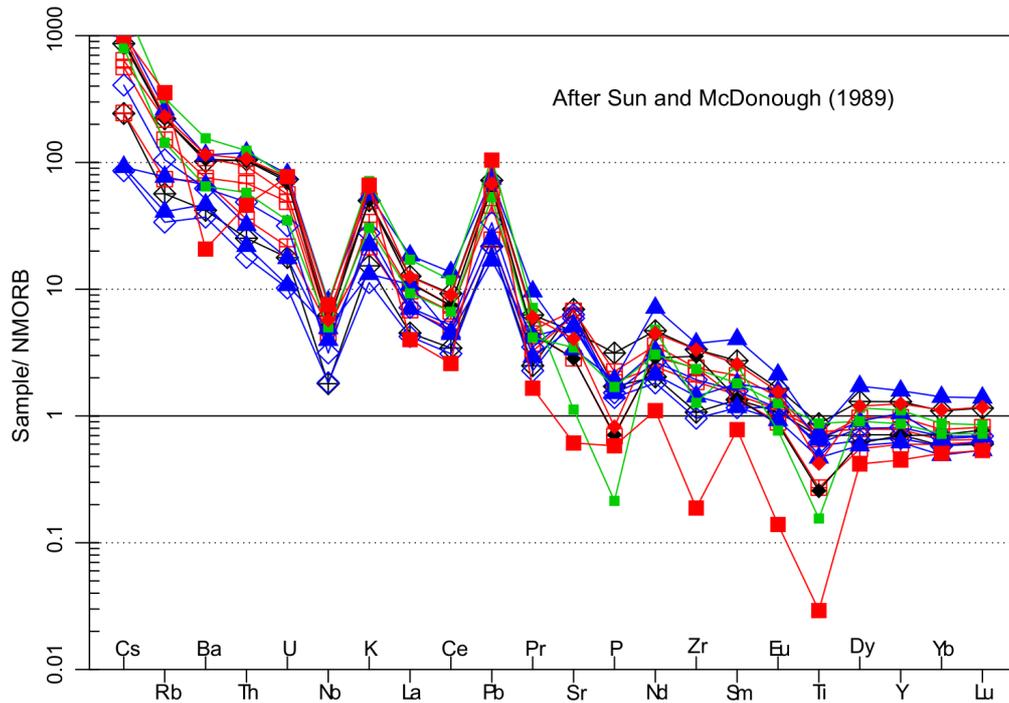


図 2.2-e-4: N-MORB で規格化した阿蘇火山の微量元素組成存在度パターン. N-MORB は地球化学的に枯渇したマグマ起源物質から生じた海嶺玄武岩マグマのこと.

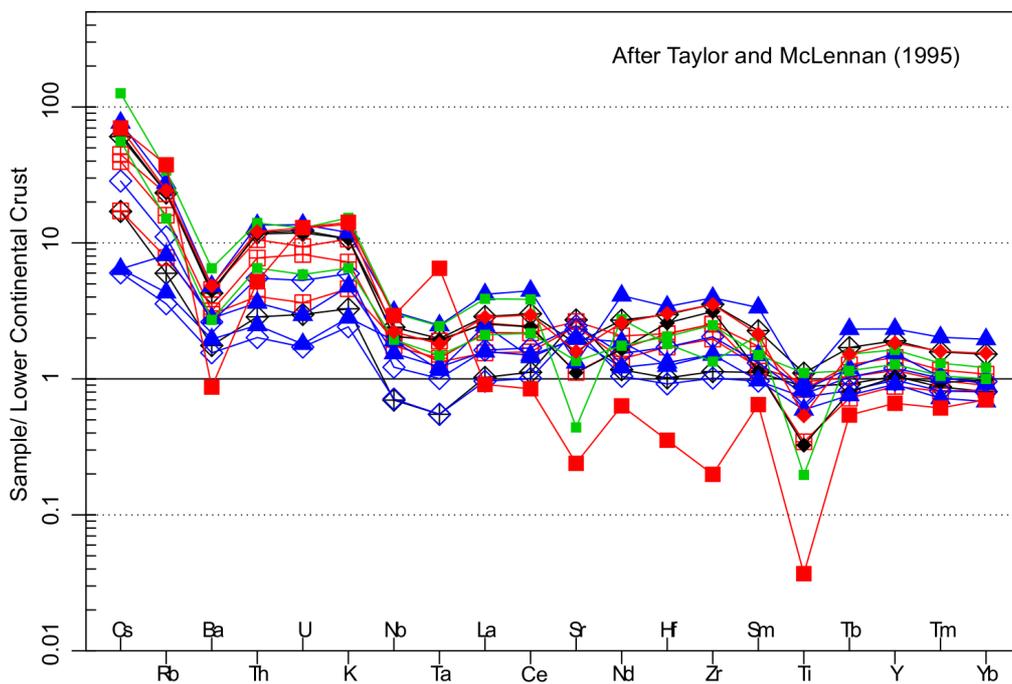


図 2.2-e-5: 下部地殻の化学組成で規格化した阿蘇火山の微量元素組成存在度パターン. 下部地殻の化学組成については Taylor and McLennan (1995)を参照した.

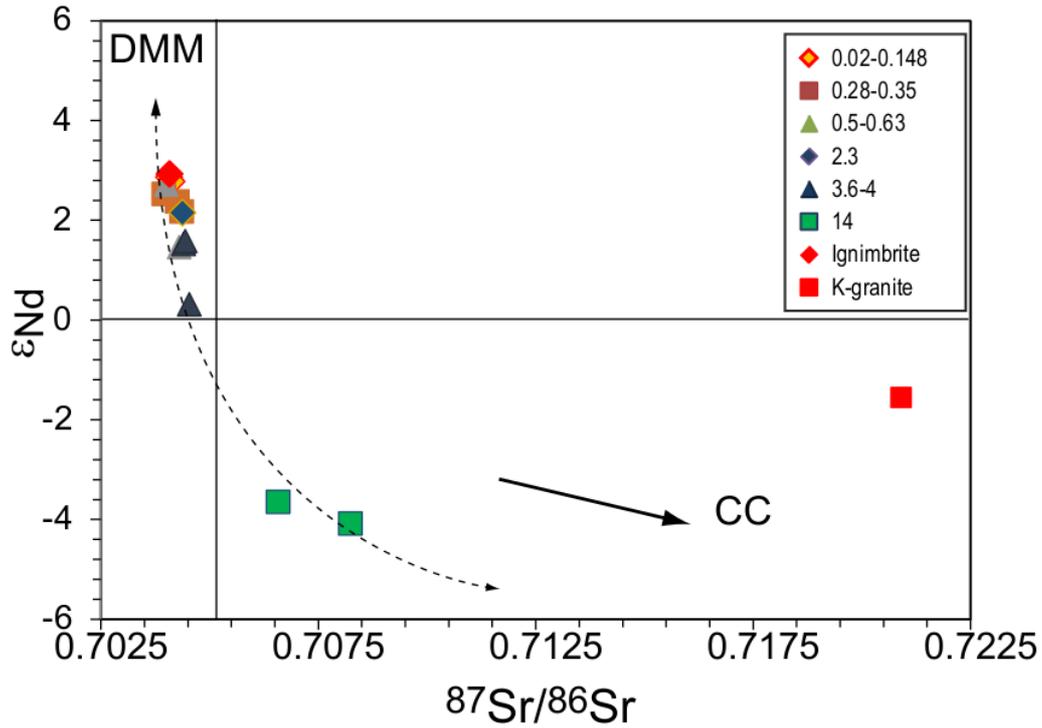


図 2.2-e-6: ストロンチウム同位体比 ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) とネオジウム同位体比 (ϵ_{Nd} ($^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$)). DMM と CC が混合した際に予想される同位体組成変化を破線の矢印で示した。

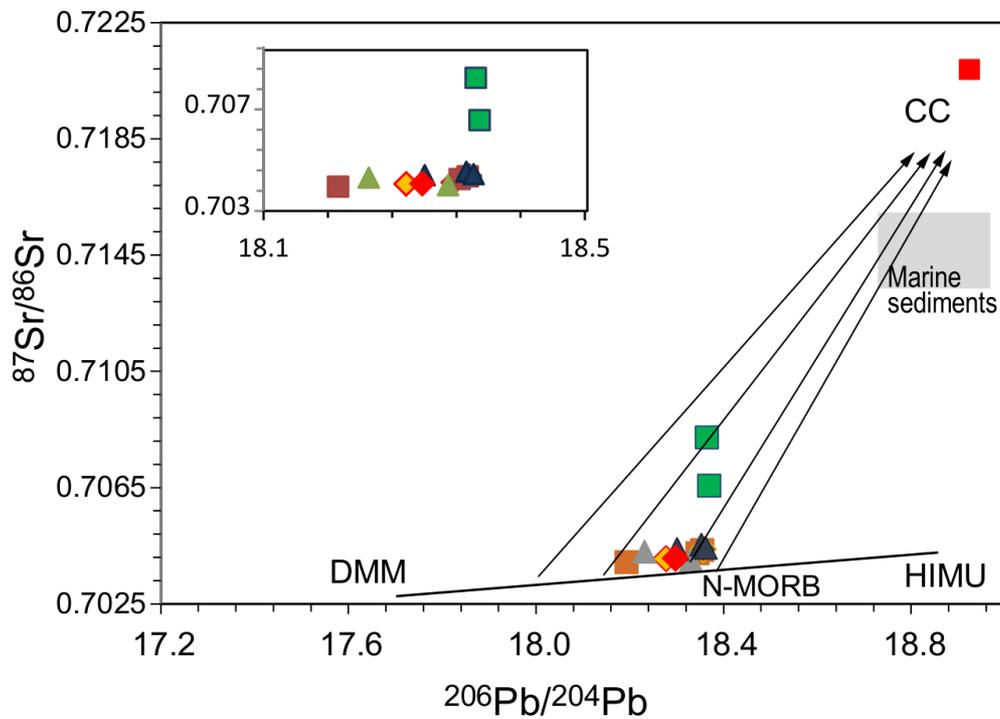


図 2.2-e-7: ストロンチウム同位体比 ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) と鉛同位体比 ($^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$) の関係。図中の DMM, HIMU, N-MORB, CC の間の線は参考のための補助線である(正確な混合線ではない)。

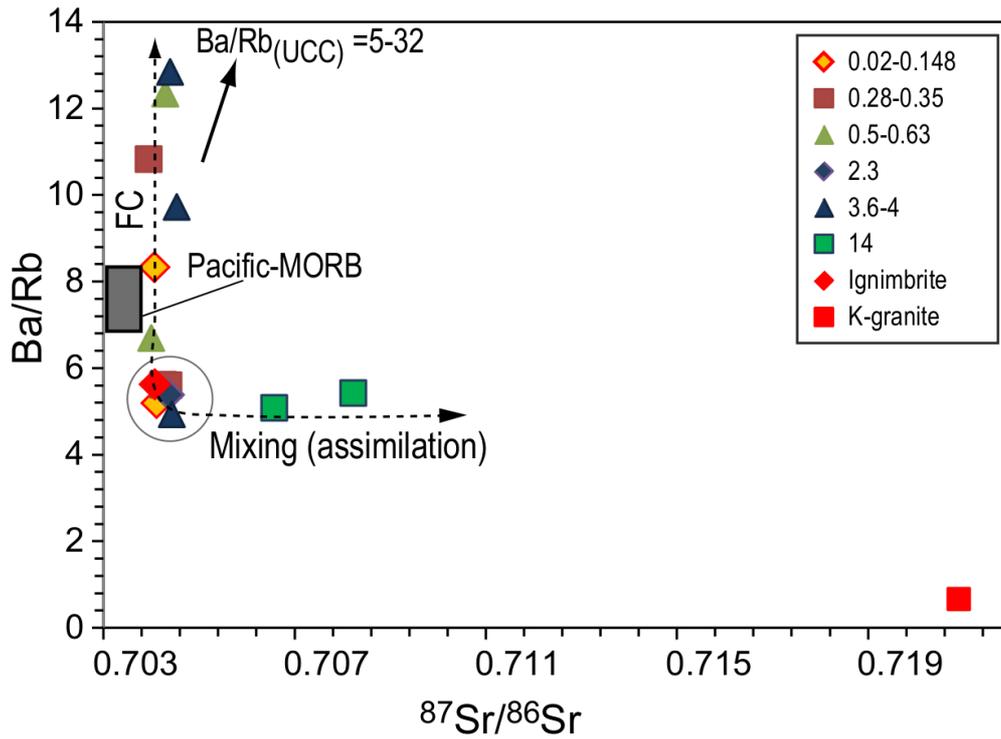


図 2.2-e-8: ストロンチウム同位体比 ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) と Ba/Rb 元素比の関係. 比較のため太平洋の海嶺玄武岩 (Pacific-MORB) と, 上部大陸地殻 (UCC) を示した.

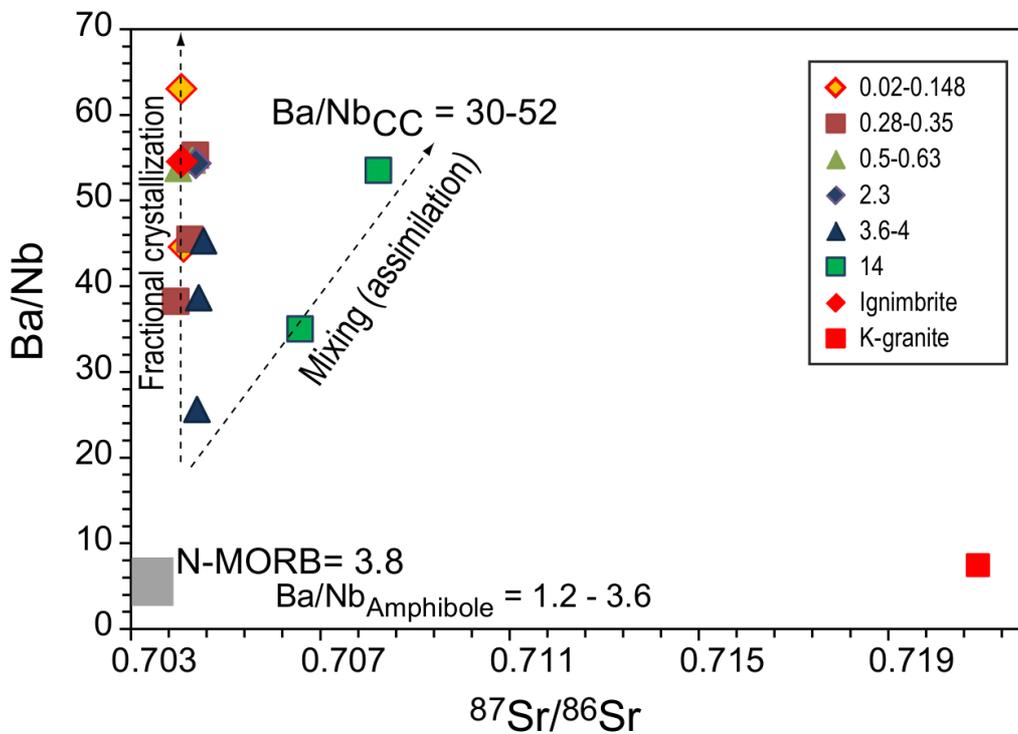


図 2.2-e-9: ストロンチウム同位体比 ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) と Ba/Nb 元素比の関係.

阿蘇カルデラの全岩酸素同位体比は6～7‰程度であり,阿蘇1と先阿蘇の噴出物が7‰程度,阿蘇1/2間噴出物と阿蘇4は6‰程度であった(表2.2-e-2,図2.2-e-10).これに対して基盤の火山岩類(菊池花崗岩,荷尾杵花崗岩,かんらん石流紋岩)は11～13‰,基盤の変成岩は8～14‰と高く,シリカ濃度の上昇とともに酸素同位体比も増加する傾向があった(図2.2-e-10).マントル物質から生じるマグマの酸素同位体比は5～8‰とされており(Matsuhisa,1979),今回観測された阿蘇カルデラの噴出物の酸素同位体比は,変成岩や花崗岩や堆積岩からなる上部地殻を混染したことを積極的に示すものではない.世界有数の巨大カルデラである米国イエローストーンにおいては,酸素同位体比がマイナスを示すようなデータが得られ,天水が循環するような熱水変質帯からなる上部地殻が再溶融したことによってマグマが生じたと解釈されている(Bindeman and Valley,2000).これに対し阿蘇の比較的新しい火山岩の酸素同位体比は,阿蘇の珩長質マグマが上部地殻の部分溶融で生じた可能性は少なく,マントル由来の玄武岩の結晶分化作用や,下部地殻の玄武岩質物質の部分溶融によって生じた可能性が高いことを示した.このことは,先に述べたSr,Nd,Pb同位体と微量元素組成比に基づく結論と同様である.これに加えて,Sr,Nd,Pb同位体比から地殻の部分溶融が生じたことが示唆された基盤岩や1400万年前の火山岩は(図2.2-e-6～9),酸素同位体比が8‰以上の高い値を示すことから地殻物質が混入したと考えられ,異なる元素から整合的な結論が導かれたことになる.

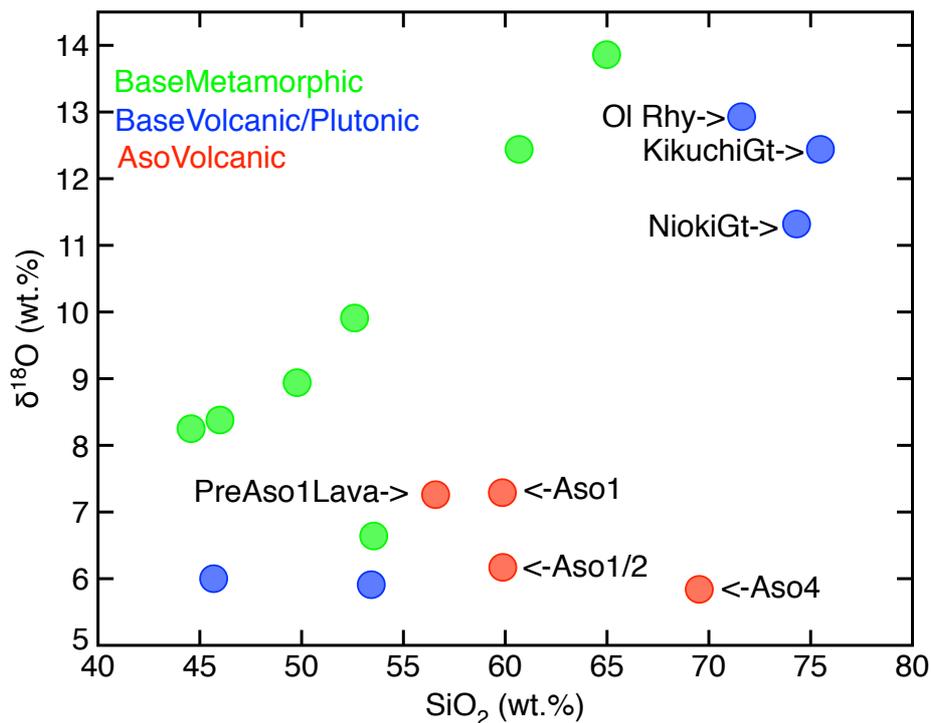


図 2.2-e-10: 全岩シリカ濃度と酸素同位体比の関係.

引用文献：

- Arai, S., Hirai, H., Uto, K., 2000. Mantle peridotite xenoliths from the Southwest Japan arc: a model for the sub-arc upper mantle structure and composition of the Western Pacific rim. *Journal of Mineralogical and Petrological Sciences* 95, 9-23.
- Bindeman, I. N. and Valley, J. W. (2000) Formation of low-delta-18o rhyolites after caldera collapse at yellow-stone, wyoming, usa. *Geology*, 28(8):719-722.
- Deniel, C., Pin, C., 2001. Single-stage method for the simultaneous isolation of lead and strontium from silicate samples for isotopic measurements. *Analytica Chimica Acta* 426, 95103.
- Hoang, N., Uto, K., 2003. Geochemistry of Cenozoic basalts in the Fukuoka district (northern Kyushu, Japan): implications for asthenosphere and lithospheric mantle interaction. *Chemical Geology* 198, 249-268.
- Hoang, N., Uto, K., 2006. Upper mantle isotopic components beneath the Ryukyu arc system: evidence for 'back-arc' entrapment of Pacific MORB mantle. *Earth and Planetary Science Letters* 249, 229-240.
- Hoang, N., Itoh, J., Miyagi, I., 2011. Subduction components in Pleistocene to Recent Kurile arc magmas in NE Hokkaido, Japan. *Journal of Volcanology and Geothermal Research* 200, 255-266.
- Hoang, N., Uto, K., Matsumoto, A., Itoh, J., 2013. Pleistocene intraplate magmatism in the Goto Islands, SW Japan: Implications for mantle source evolution and regional geodynamics. *Journal of Geodynamics* 68, 1-17.
- Hosono, T., Nakano, T., Murakami, H., 2003. Sr-Nd-Pb isotopic compositions of volcanic rocks around the Hishikari gold deposit, southwest Japan: implications for the contribution of a felsic lower crust. *Chemical Geology* 201, 19-36.
- Irvine, T., & Baragar, W. (1971). A guide to the chemical classification of the common volcanic rocks. *Canadian journal of earth sciences*, 8(5), 523-548.
- Ishizuka, O., Taylor, R.N., Milton, J.A., Nesbitt, R.W., 2003. Fluid-mantle interaction in an intra-oceanic arc: constraints from high-precision Pb isotopes. *Earth and Planetary Science Letters* 211, 221-236.
- Le Bas, M. J., Le Maitre, R. W., Streckeisen, A., & Zanettin, B. (1986). A chemical classification of volcanic rocks based on the total alkali-silica diagram. *Journal of petrology*, 27(3), 745-750.
- Matsuhisa, Y. (1979) Oxygen isotopic compositions of volcanic rocks from the east japan island arcs and thier bearing on petrogenesis. *J. Volcanol. Geotherm. Res.*, 5:271-296.
- Sharp, Z. D., 1990, Laser-based microanalytical method for the in situ determination of oxygen isotope ratios of silicates and oxides: *Geochimica et Cosmochimica Acta*, v. 54, p. 1353-1357.
- Shinjo, R., 1999. Geochemistry of high Mg andesites and the tectonic evolution of the Okinawa Trough-Ryukyu arc system. *Chem. Geol.* 157, 69-88.
- Sun, S. S., & McDonough, W. F. (1989). Chemical and isotopic systematics of oceanic basalts: implications for mantle composition and processes. *Geological Society, London, Special Publications*, 42(1), 313-345.
- Taylor, S. R., & McLennan, S. M. (1995). The geochemical evolution of the continental crust. *Reviews of Geophysics*, 33(2), 241-265.
- Uto, K., Hoang, N., Matsui, K., 2004. Cenozoic lithospheric extension-induced magmatism in Southwest Japan. *Tectonophysics* 393, 281-299.