

# 桜島火山灰を構成する斜長石の構造状態に関する研究 (2021年1月～6月)

教育学部 松井 智彰・立山 剛吉

## 1. はじめに

火山灰は噴火活動の様々な段階の火山砕屑物の混合物であり、起源とするマグマや結晶成長した時期を特定することは火山研究の重要なテーマとして広く認識されている。しかしこれまで「結晶の平均構造を反映する粉末 X 線回折実験で得られる回折線データ」と「桜島火山のリアルタイムの火山活動」を直接関連付ける継続的な取り組みはなされてこなかった。そこで本研究室では、桜島の火山活動を物質科学的に常時監視することを目的として、2012年度から火山灰中で最も構成比が高い斜長石の構造状態に着目して調査を行ってきた。これまでの調査によって、火山灰に含まれる斜長石の構造状態が火山活動（噴火の規模・回数や降灰量等）に対して敏感に変動し、斜長石の構造状態が火山活動の推移をモニタリングするための有力な指標となることが示されている（例えば、松井・足立 2018）。今年度は新たに重液による斜長石の単離を追加し、より精密に構造状態を推定してリアルタイムの火山活動と照らし合わせた結果を報告する。

## 2. 実験方法

今回の調査も、桜島南岳山頂火口の東北東約 5 km に位置する鹿児島市立黒神小学校に協力を依頼して調査に必要な火山灰試料採取した（図 1）。2017年度から 2019年度まで試料採取地点としていた黒神中学校の北約 900m に位置している。実験方法のフローチャートを図 2 に示す。

採取期間は 2020年12月17日から 2021年6月30日までの約 6ヶ月間で合計 6試料を回収した。火山灰は水洗しトレイに移して数日間乾燥、乾燥試料の質量測定後 1 m<sup>2</sup>あたりに換算した。電子プローブマイクロアナライザ (EPMA) を用いた化学組成分析用、蛍光 X 線分析（全岩組成分析）用、粉末 X 線回折実験用に各月計 2 g 程度の試料を縮分によって確保し、残りをフルイ分け用とした。

フルイ分けは、ロータップ型フルイ振とう機を使用して各試料につき 150 秒間行い、62μm 未満、62～120μm、120～250μm、250～500μm、500μm 以上の 5 つに分け、粒度分析を行った。その後、250μm 以上 500μm 未満の試料について双眼実体顕微鏡を用いて砂粒組成分析を行った。また、全岩試料および 250μm 以上 500μm 未満の試料においては実体顕微鏡を用いて肉眼観察し写真撮影を行った。

粉末 X 線回折実験は、リガク社製 X 線回折装置 Ultima IV Protectus（管電圧 40kV；管電流 40mA；モノクロメータ（グラファイト）使用；発散スリット・散乱スリット 1°；受光スリット 0.15mm）を用いて CuKα 線によって測定し、回折線データ（XRD 図形）を得た。全岩試料



図 1. 火山灰試料採取地点

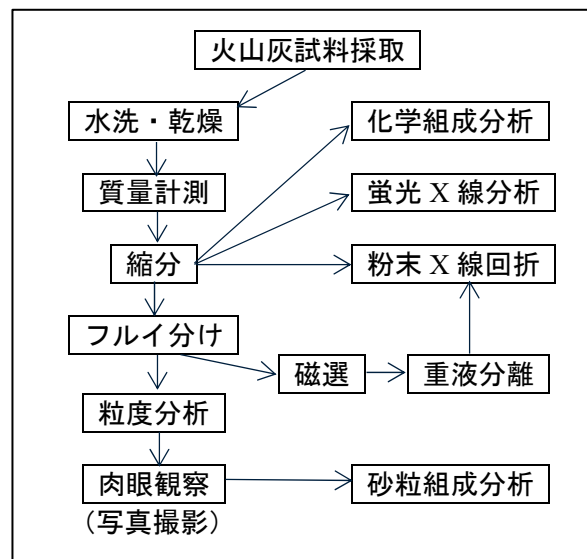


図 2. 実験方法のフローチャート。

では  $3^\circ \leq 2\theta \leq 70^\circ$  の範囲を  $10^\circ/\text{min}$  で測定し、統合粉末X線解析ソフトウェア PDXL を用いた COD (Crystallography Open Database) とのコンピューター照合により火山灰に含まれる主な鉱物を同定した。火山灰から磁石で磁性鉱物を除去した磁選後の試料については、後述の重液による斜長石の単離を行い、構造状態を判定するために、 $21^\circ \leq 2\theta \leq 33^\circ$  の範囲を  $0.1^\circ/\text{min}$  (発散スリット・散乱スリット  $1/2^\circ$ 、受光スリット  $0.3\text{mm}$ ) で精密に測定し、Scheidegger (1973) に従って面指数 (-201), (1-11), (1-31), (220), (131) に対応する回折線の角度 ( $2\theta$ ) から  $B (= 2\theta_{(1-11)} - 2\theta_{(-201)})$  と  $\Gamma (= 2\theta_{(131)} + 2\theta_{(220)} - 4\theta_{(1-31)})$  を求めた。

重液分離では、フルイ分けによって得られた粒径  $120\mu\text{m} \sim 250\mu\text{m}$  の火山灰試料 1～5 月分および 6 月分の火山灰全岩試料において斜長石 (比重  $2.62 \sim 2.76$ ) を単離するために重液としてポリタングステン酸ナトリウム ( $3\text{Na}_2\text{WO}_4 \cdot 9\text{WO}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$ ) 水溶液を用いた。比重ガラスを用いて比重が  $2.36 \sim 2.46$  (重液 A) と  $2.75 \sim 2.93$  (重液 B) の重液を調整し、それぞれ斜長石より比重が大きい鉱物 (輝石類等) と小さい鉱物 (クリストバライト等) を取り除いた。単離した斜長石を前述の構造状態を推定するための粉末 X 線回折実験の試料とした。

斜長石の化学組成分析は鹿児島大学研究支援センター機器分析施設の日本電子社製電子マイクロアナライザー (EPMA) JXK-8230 (電子銃:  $\text{LaB}_6$ , 加速電圧:  $15\text{kV}$ , 照射電流:  $1.0 \times 10^{-8}\text{A}$ , プローブ径:  $10\mu\text{m}$ ) を用いて決定した。

火山灰の全岩組成分析は、1月から6月分の全6試料をメノウ乳鉢で粉末化したのち、メルク社製融剤スペクトロメルト ( $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ ) の希釈率を  $1:10$  (重量比) のガラスビードにして、鹿児島大学研究支援センター機器分析施設のリガク社製蛍光 X 線分析装置 ZSX-100e を用いて、主要 10 元素 ( $\text{SiO}_2$ ,  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ,  $\text{MnO}$ ,  $\text{MgO}$ ,  $\text{CaO}$ ,  $\text{Na}_2\text{O}$ ,  $\text{K}_2\text{O}$ ,  $\text{P}_2\text{O}_5$ ) について行った。今回も、産業技術総合研究所地質調査総合センター調整の地球化学的標準試料 (JA-1, JA-2, JA-3, JB-1a, JB-2, JB-3, JG-1a, JG-2, JG-3, JGb-1, JP-1, JR-1, JR-2) を検量線用の標準試料として使用した。

### 3. 結果と考察

#### (1) 試料採取

火山灰試料の採取期間、採取量 ( $1\text{m}^2$  当たり) に換算) 及び桜島噴火回数、西風での噴火回数 [URL1] を図 3 に示す。採取量と噴火回数および西風での噴火回数との相関関係はみられなかった。



図 3. 噴火回数と火山灰採取量。

噴火回数は、鹿児島地方気象台 2021 年桜島噴火観測表 [URL1] による。

表 1. 降灰量と粒度分布。

番号	採取期間	日数	質量 ( $\text{g}/\text{m}^2$ )	粒度分析 (%)	
				$\leq 62 (\mu\text{m})$	
1	2020/12/17 ~2021/1/21	35	344.9	$\leq 62 (\mu\text{m})$	0.2
				62-120	19.7
				120-250	37.3
				250-500	23.7
				500 <	19.2
2	2021/1/21 ~2021/2/24	34	158.0	$\leq 62 (\mu\text{m})$	0.4
				62-120	13.5
				120-250	30.1
				250-500	31.8
				500 <	24.2
3	2021/2/24 ~2021/3/30	34	287.9	$\leq 62 (\mu\text{m})$	35.7
				62-120	3.8
				120-250	20
				250-500	25.6
				500 <	17.5
4	2021/3/30 ~2021/4/28	29	103.9	$\leq 62 (\mu\text{m})$	0.7
				62-120	1.5
				120-250	35.2
				250-500	42.2
				500 <	20.4
5	2021/4/28 ~2021/5/27	29	541.8	$\leq 62 (\mu\text{m})$	8.4
				62-120	28.3
				120-250	21.7
				250-500	17.4
				500 <	24.2
6	2021/5/27 ~2021/6/30	34	9.7	/	

## (2) フルイ分け・肉眼観察

採取量が非常に少なかった 6 月分試料以外の試料をフルイ分け・粒度分析の対象とした。500  $\mu\text{m}$ 、250  $\mu\text{m}$ 、120  $\mu\text{m}$ 、62  $\mu\text{m}$  のメッシュクロスを用いてフルイ分けした結果を表 1 に示す。粒度分布は採取期間ごとばらつきが見られた。肉眼観察による砂粒組成分析の結果、クロ岩片が約 50% を占め、シロ岩片とアカ岩片は相補的關係であった。これまでの調査（例えば、松井ほか, 2017; 松井・足立, 2018; 松井・七村, 2019）と同様、岩片の割合が高く、肉眼で判別できる鉱物結晶としては斜長石が多く確認された。これらの斜長石の構造状態を推定するために、120~250 $\mu\text{m}$  の試料を使用した。

## (3) 粉末 X 線回折実験

火山灰全岩試料の粉末 X 線回折の結果、斜長石と輝石のピークを確認した。昭和溶岩中に確認されるクリストバライトの最強線が斜長石の(-201)面のピークが現れる 22 度付近に、輝石類の主要な回折線が斜長石の(1-31)面と(131)面のピークが現れる 29.5 度から 31 度付近にかけて重なることから、磁選の後、重液による斜長石の単離を行うこととした。まず試料 1（採取期間：2020 年 12 月 17 日~2021 年 1 月 21 日）について磁選のみと重液 A・B によって分離後の試料をより精密な条件で測定して得られた回折線図形を比較した（図 4）。重液 A に浮いた試料ではクリストバライトと少量の斜長石、重液 B で沈んだ試料には輝石類と少量の斜長石、重液 A で沈み重液 B に浮いた試料では斜長石のみの回折線ピークが確認され、重液によって斜長石以外の鉱物が分離されたことが確認された。クリストバライトや輝石類に混じって見られた斜長石のピークは、空隙や比重の大きい鉱物が共存する岩片中の微小な斜長石に由来するものと考えられる。また重液 A に浮いた試料ではクリストバライトの最強線 ( $2\theta = 22$  度付近) の低角側に小さい肩のようなピークが特徴的に見られる。単離した斜長石（重液 A で沈み重液 B に浮いた試料）全 6 試料を同じ精密な条件で測定し図 5 に示す回折線図形を得た。Scheidegger (1973) に従って面指数(1-11), (-201), (131), (220), (1-31) に対応する回折線の角度 ( $2\theta$ ) から  $B (= 2\theta_{(1-11)} - 2\theta_{(-201)})$  と  $\Gamma (= 2\theta_{(131)} + 2\theta_{(220)} - 4\theta_{(1-31)})$  を求めた。Ca に富む斜長石の場合  $B/\Gamma$  プロットによって灰長石成分 (mol%) と構造状態、すなわち長石の結晶構造の T 席における Al と Si の秩序・無秩序配列をある程度推定することができる（図 6）。試料採取期間によるばらつきはなく狭い範囲に収まっているように見えるが、2 月~4 月の期間に、より秩序度が低い構造状態の斜長石を多く含む火山灰が噴出したと推定される。また 2018 年までの一連の調査結果（松井・七村, 2019）と比べて灰長石成分に富む範囲に分布していた。

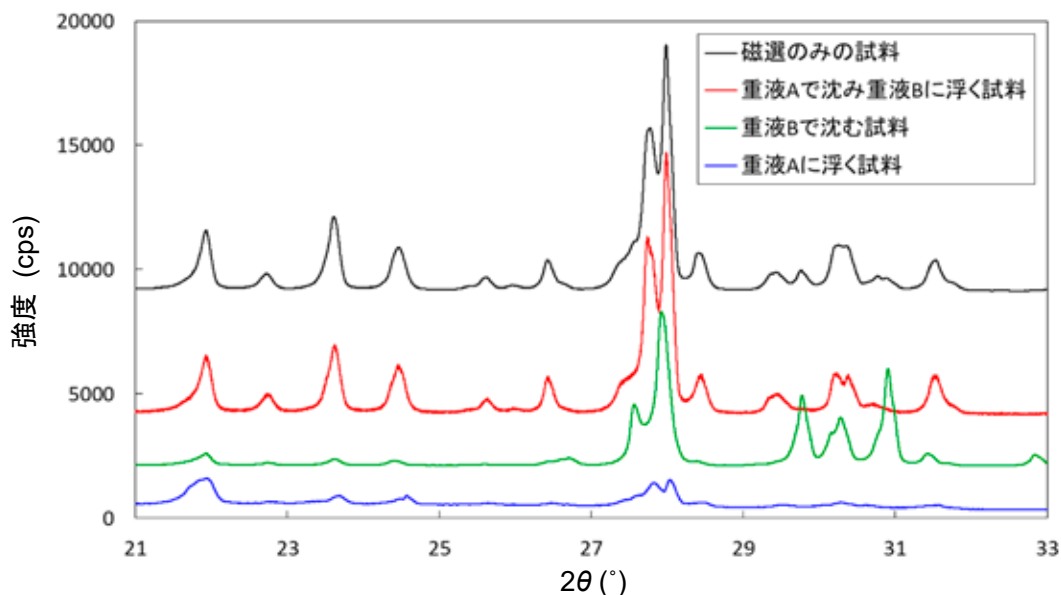


図 4. 重液処理前と分離後の試料の粉末 XRD 図形.

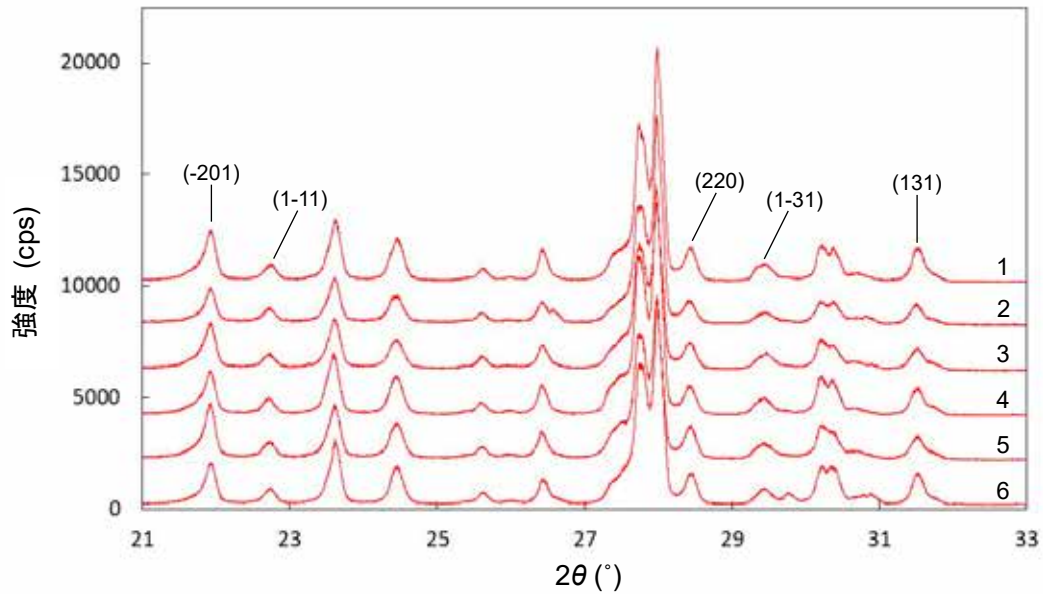


図5. 重液により単離した斜長石の粉末 XRD 図形（上から試料番号 1～6 の順）.

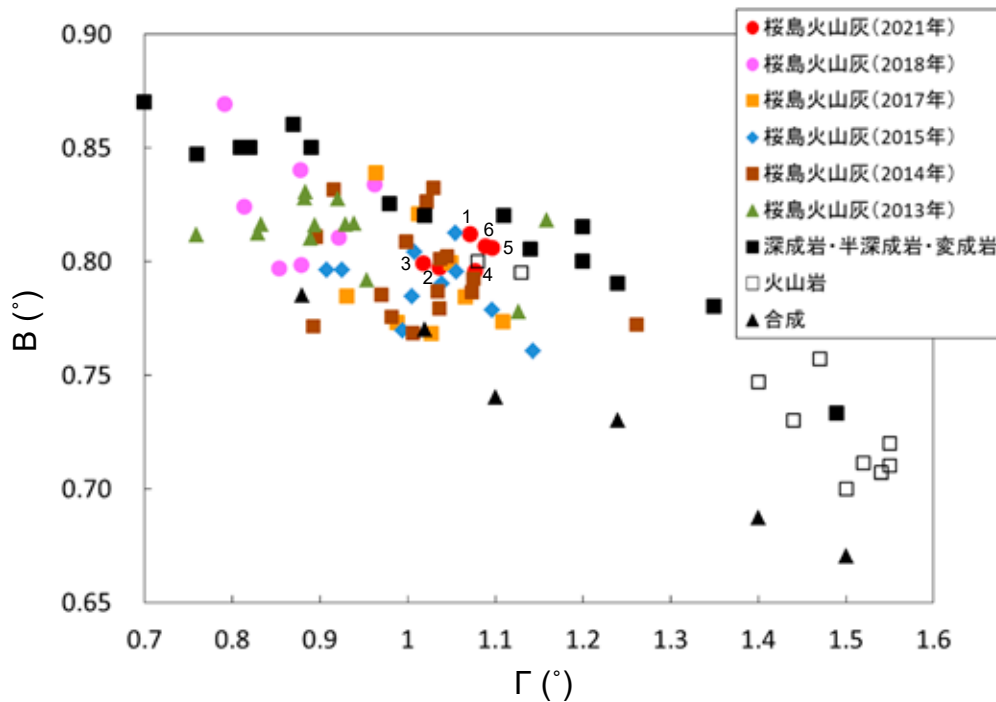


図6. 桜島火山灰を構成する斜長石の B/Γ プロット. 深成岩・半深成岩・変成岩, 火山岩中の斜長石および合成斜長石のデータは Smith & Gay (1957)による. 赤丸の近くの数字は試料番号.

#### (4) 化学組成分析

全6試料の EPMA による化学組成分析の結果, 各月の試料のうち最も An-rich なものと Ab-rich なものの代表値を表2に示す. 火山灰には火成活動における様々な段階における生成物が混合している. 火山岩中の斜長石斑晶では化学組成の累帯構造がよく観察され, 桜島の火山灰においても一般的に見られることを注意しておかなければいけない. 今回採取した火山灰においても, 組

成幅が中性長石から亜灰長石まで ( $Ab_{50}An_{50} \sim Ab_{10}An_{90}$ ) 広く確認された。前述の粉末 X 線回折実験における回折線は、単離した斜長石であっても様々な化学組成や構造状態をもつ固溶体の回折線のピークが重ね合わさったものを見ていると認識しておく必要がある。

表 2. 2021 年 1 月～6 月に桜島から噴出した火山灰中の斜長石の代表的化学組成.

	1月		2月		3月	
	Ca-rich	Na-rich	Ca-rich	Na-rich	Ca-rich	Na-rich
SiO <sub>2</sub>	48.66	52.79	47.23	53.95	46.53	55.63
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	33.61	29.93	34.99	29.80	35.26	29.05
FeO	0.69	0.66	0.63	0.70	0.64	0.64
CaO	14.81	11.40	15.94	11.18	16.02	9.87
Na <sub>2</sub> O	2.62	4.44	1.95	4.65	1.67	5.19
MgO	0.07	0.08	0.06	0.06	0.06	0.07
Total	100.46	99.30	100.80	100.34	100.18	100.45
酸素原子8個に対する原子比						
Si	2.213	2.402	2.148	2.426	2.129	2.486
Al	1.802	1.605	1.875	1.580	1.902	1.530
Fe	0.026	0.025	0.024	0.026	0.024	0.024
Ca	0.722	0.556	0.776	0.539	0.785	0.473
Na	0.231	0.392	0.172	0.405	0.148	0.449
Mg	0.005	0.005	0.004	0.004	0.004	0.005
Total	4.999	4.986	5.000	4.981	4.993	4.967
	4月		5月		6月	
	Ca-rich	Na-rich	Ca-rich	Na-rich	Ca-rich	Na-rich
SiO <sub>2</sub>	45.08	52.66	51.01	54.77	47.45	53.43
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	35.31	31.41	31.53	29.29	34.78	29.93
FeO	0.55	0.57	0.57	0.67	0.61	0.67
CaO	16.83	12.09	12.97	10.36	15.61	11.18
Na <sub>2</sub> O	1.22	3.86	3.70	4.99	2.10	4.71
MgO	0.05	0.08	0.06	0.06	0.04	0.08
Total	99.04	100.67	99.84	100.14	100.59	100.00
酸素原子8個に対する原子比						
Si	2.092	2.364	2.320	2.461	2.160	2.414
Al	1.932	1.662	1.690	1.552	1.866	1.593
Fe	0.021	0.021	0.022	0.025	0.023	0.025
Ca	0.837	0.582	0.632	0.499	0.761	0.541
Na	0.110	0.336	0.327	0.435	0.185	0.412
Mg	0.004	0.005	0.004	0.004	0.003	0.005
Total	4.996	4.969	4.995	4.975	4.998	4.991

#### (5) 蛍光 X 線分析 (全岩組成分析)

蛍光 X 線分析における全岩組成分析の結果 SiO<sub>2</sub>成分の質量は 60 (mass%) 前後であり、すべての試料で安山岩質である。採取期間を通して化学組成の経時変化などは認められず、この期間は桜島火山のマグマ供給系に苦鉄質マグマの注入のような大きな変化はなかったと考えられる。2018 年火山灰試料と比較すると Mg と Na の割合が増大しており、Ca と Fe の割合が減少していることが判明した。

#### 4. まとめと今後の課題

今回の調査では、重液分離により斜長石を単離することによって、これまでより精密に構造状態を推定することが可能になった。2021 年の調査期間では、噴火回数が多い期間に噴出した火山灰中の斜長石がより低い秩序度を示す傾向が確認された。また、2018 年に比べ灰長石成分に富む方向にシフトしていた。一方、2018 年に比べ Ca に乏しく Na に富むことを示す蛍光 X 線分析の結果は、これらの期間の斜長石の化学組成の変化と調和しないことから再検討を要すると思われる。今回の結果をふまえて、2018 年度以前の火山灰試料についても斜長石を単離した後に粉末 X 線回折実験を行い、構造状態と火山活動の推移について改めて考察し直す必要があると考える。更に火山灰中の斜長石斑晶における組成累帯構造を考慮すると、回折線のピーク分離を適切におこなったうえで斜長石の化学組成と構造状態をより精密に議論する必要がある。今後も火山灰を構成する鉱物の構造状態に関するデータを蓄積し地球物理学的観測データの経時変化と照らし合わせることで、火山活動を監視する新たな視点を提供することになると期待される。

#### 謝辞

本調査を遂行するにあたり、鹿児島市立黒神小学校の皆様には火山灰試料の採取にご協力いただきました。また、火山灰の化学組成分析では鹿児島大学研究推進機構研究支援センター機器分析施設の大倉寛一氏、全岩組成分析では同施設の七村和彰氏に大変お世話になりました。記して御礼申し上げます。

#### 引用文献

- 松井智彰・丸本啓介・中村美勇・戸高京介 (2017) 桜島火山から噴出する火山灰を構成する斜長石の構造状態 —火山灰構成鉱物から火山活動を監視するための予備的研究—. 鹿児島大学教育学部研究紀要 (自然科学編), 68, 23-30.
- 松井智彰・足立稜太 (2018) 桜島から噴出する火山灰の構成鉱物に関する研究 (2017 年 3 月～10 月) —地域の自然環境を深く正確に理解した力量ある理科教員の養成—. 鹿児島大学地域防災教育研究センター平成 29 年度報告書, 鹿児島大学地域防災教育研究センター, 69-76.
- 松井智彰・七村玲奈 (2019) 桜島から噴出する火山灰の構成鉱物に関する研究—火山灰中の変質鉱物から火山活動を監視するための予備的調査—. 鹿児島大学地域防災教育研究センター平成 30 年度報告書, 鹿児島大学地震火山地域防災センター, 111-116.
- Scheidegger, K.F. (1973) Determination of structural state of calcic plagioclases by X-ray powder technique. *American Mineralogist*, 58, 134-136.
- Smith, J.V. and Gay, P. (1957) The powder patterns and lattice parameters of plagioclase feldspars. II. *Mineralogical Magazine*, 31, 744-762.
- [URL1] 鹿児島地方气象台, 2021 年桜島噴火観測表 [https://www.data.jma.go.jp/kagoshima/vol/data/skr\\_exp\\_list/skr\\_exp\\_2021.html](https://www.data.jma.go.jp/kagoshima/vol/data/skr_exp_list/skr_exp_2021.html).