

不完全分別結晶作用によるマグマの組成散乱

西村 光史*

Compositional scatter of magmas due to imperfect
fractional crystallization

Koshi NISHIMURA *

Abstract

Recent advances in microanalyses have enabled the direct determination of trace element in small melt inclusions in igneous phenocrysts. The chemical trends and scatter fields of melt inclusion data can be different from those of whole-rock data; however, the mechanisms that underlie these differences remain poorly understood. For describing these differences, several mass balance models have been developed; (1) equilibrium crystallization and imperfect separation (ESIS), (2) zoned crystallization and imperfect separation (ZCIS), and (3) simultaneous assimilation and imperfect separation (AIFC). These models may help to explain the shapes and sizes of compositional scatter fields of melt inclusion and whole rock data in many situations in which imperfect crystal-liquid separation played a role.

Keywords : imperfect fractional crystallization, trace element, geochemical model, magma chamber, crystal settling, assimilation

1. はじめに

マグマ中で結晶化した斑晶が重力分別を起こすと、マグマの化学組成は進化する。火成岩の化学分析値は通常、いくつかの異なる元素を軸にとった変化図上にプロットされ、結晶分別を伴う場合は直線または曲線状の組成変化傾向（トレンドと呼ぶ）を示すと考えられている。岩石学では火山岩の組成トレンドの傾きを用いて、分別された結晶の種類・組

*) 東洋大学自然科学研究室 112-8606 東京都文京区白山 5-28-20

*) Natural Science Laboratory, Toyo University, 5-28-20 Hakusan, Bunkyo-ku, Tokyo 112-8606, Japan

率・量比を推定することが古くから行われてきた（例えばCox et al., 1979）。しかし、トレンドに直交する方向のデータのばらつきについては、ほとんどの場合で分析誤差を大きく超えているにも関わらず、これまでまともに考察されてこなかった。

近年、イオンマイクロプローブやレーザーアブレーションICP-MS等の局所分析技術の発展により、火山岩の斑晶鉱物に含まれるメルト包有物（マグマ中で液だった部分）の微量元素データが蓄積されつつある。その結果、メルト包有物の微量元素組成のトレンドは火山岩の全岩組成（液＋浮遊結晶）のトレンドと位置が異なり、ばらつきが極めて小さい場合があることが明らかとなってきた（Nishimura, 2009）。これまで岩石学では、火山岩の全岩化学組成は液の組成を表すと考えられてきたため、両者が大きく異なることは驚くべき結果である。両者の違いがなぜ生じるかを理解するためには、全岩化学組成のトレンドに直交する方向のばらつきに着目する必要がある。

全岩化学組成のデータのばらつきを生じさせる有力なモデルとして、斑晶と液との不完全分別を考えることができる。ここではいくつかの不完全分別結晶作用に関する質量保存モデルを紹介し、液組成と全岩組成の散乱領域がどのようにコントロールされているかを示す。さらにモデルの岩石学的応用について議論する。

2. 分別結晶作用と不完全分別結晶作用の質量保存モデル

これまでの岩石学では、斑晶を含む火山岩の全岩化学組成は液の化学組成を示すと考えられてきた。この仮定は、斑晶は液から晶出しているため、斑晶と石基（液の急冷生成物）を足し合わせた組成は結晶化以前の液の組成を表すという考えに基づいている。しかし以下に示すように、液から結晶が完全に分離され浮遊結晶がない場合と、結晶の分離が部分的で浮遊結晶がある場合とではマグマの組成変化経路が大きく異なる。

ここでは結晶分別時におけるマグマの微量元素の濃度変化を記述する3つの質量保存モデルを示す。結晶化した斑晶が瞬時にマグマ溜まりから取り去られ、浮遊結晶がない場合（図1a）、液の微量元素の濃度変化は以下のRayleigh分別式（Rayleigh, 1896）に従う。

$$C_l = C_l^0 f^{(D-1)} \quad (1)$$

ここで C_l^0 は液の初期組成、 f は初期マグマ質量 M_m^0 に対する残存マグマ質量 M_m の比（ $f = M_m/M_m^0$ ）、 D は対象元素の全岩分配係数（液中の濃度に対する結晶中の濃度比）である。この場合、液の組成とマグマの組成は等しい。低粘性で結晶沈降が速く、無斑晶質のマグマ組成にはこのモデルが厳密に当てはまると考えられる。この分別結晶作用モデル（fractional crystallization; FCモデル）はマグマの全岩組成の進化を説明するために、今日でも広く用いられている。しかし一般には結晶と液の分離は不完全である（Anderson and Greenland, 1969; Paster et al., 1974; Albarede, 1976; Langmuir et al., 1977; Allègre and Minster, 1978; Cann, 1982; Robson and Cann, 1982; O'Hara, 1993; Claeson and Meurer, 2004）。

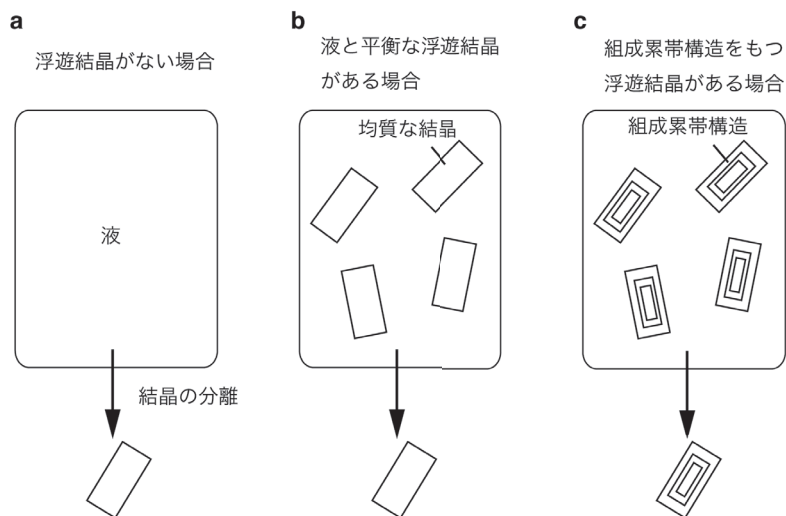


図1. モデル概念図. a: 分別結晶作用 b: 液と平衡な浮遊結晶がある場合の不完全分別結晶作用 c: 組成累帯構造を持つ浮遊結晶がある場合の不完全分別結晶作用.

液と結晶の不完全分離は、火山岩が固相濃集元素に枯渇していないことを説明するための有力なモデルとして注目される (O'Hara, 1993; O'Hara and Fry, 1996). また流体力学のアナログ実験からは、活発に熱対流するマグマ中では結晶が均質にかき混ぜられているが、マグマ溜まり底部の速度境界層では結晶が効率的に沈積することが示されている (Martin and Nokes, 1988). O'Hara (1993) は液と化学的に完全平衡にある浮遊結晶が均一に存在し、結晶の一部が沈積する場合 (図1 b) において、マグマの微量元素濃度が以下の式で計算できることを示した.

$$C_m = C_m^0 f^{\left(\frac{D}{1-\phi+\phi D}\right)} \quad (2)$$

ここで C_m^0 は初期マグマ組成、 ϕ は浮遊結晶量 (重量分率) である. この式の導出過程は O'Hara (1993) に記述されていないが、以下のように考えることができる. マグマ溜まり中の浮遊結晶と液が常に平衡にある場合の質量保存式は

$$\frac{dM_m}{dt} DC_l = C_m \frac{dM_m}{dt} + M_m \frac{dC_m}{dt} \quad (3)$$

で表される. ここで浮遊結晶量 ϕ と全岩分配係数 D を一定と仮定すると液の組成は浮遊結晶を含むマグマ組成と以下のように関連づけられる.

$$C_l = \frac{C_m}{1 - \phi + \phi D} \quad (4)$$

式(4)を(3)に代入すると

$$\left(\frac{D}{1 - \phi + \phi D} - 1 \right) \frac{1}{M_m} dM_m = \frac{1}{C_m} dC_m \quad (5)$$

初期マグマ質量を M_m^0 , 初期マグマ組成を C_m^0 として式(5)を積分すると式(2)が得られる。

火山岩斑晶には同心状の組成累帯構造を示すものが多く認められる。Nishimura (2009) は浮遊結晶が組成累帯構造を形成する場合の不完全分別結晶作用 (図 1c) についてモデル化を行った。液と結晶の微量元素濃度に関する連立微分方程式を解析的に解くことにより、マグマ中の微量元素濃度が以下のように得られている。

$\phi D \neq 1$ かつ $\phi \neq 0$ の時

$$C_m = \left[f^{\frac{1-\phi}{\phi}} + \frac{(1-\phi)^D}{1-\phi D} \left(f^{D-1} - f^{\frac{1-\phi}{\phi}} \right) \right] C_m^0 \quad (6)$$

$\phi D = 1$ の時

$$C_m = \left[1 + (1-D) \left(1 - \frac{1}{D} \right)^{D-1} \ln f \right] f^{D-1} C_m^0 \quad (7)$$

液の化学組成進化は分別結晶作用と同じになり式(1)に従う。

火山岩には元素拡散が遅く累帯構造の明瞭な斑晶鉱物と拡散が進んで均質に近い斑晶鉱物が存在する。従って、天然の火山岩にモデルを適用する際は、上記の均質な浮遊結晶が存在する場合と累帯構造をもつ浮遊結晶が存在する場合の2つの端成分モデルの中間を考える必要がある (Nishimura, 2009)。2つの端成分モデルの中間をとる方法はSha (2012) によって提案されている。Nishimura (2012) は均質な浮遊結晶が存在する場合と累帯構造をもつ浮遊結晶が存在する場合に、結晶の分別だけではなく、母岩溶融メルトの同化が同時に進行する同化不完全分別結晶作用 (assimilation and imperfect fractional crystallization: AIFC) の定式化をおこなっている。

3. 組成分布の特徴

不完全分別結晶作用が生じる場合の残存マグマの質量分率 f に対するマグマの微量元素濃度変化（初期組成に対する比 C_m/C_m^0 ）を図2に示す。浮遊結晶量 ϕ が0の場合は分別結晶作用（FCモデル）の進化経路に等しい。全ての場合でマグマの進化とともに固相濃集元素（ $D=10$ ）は減少し、液相濃集元素（ $D=0.1$ ）は増加していく。固相濃集元素の減少は浮遊結晶が均質な場合（図2a）と累帯構造を形成する場合（図2b）の両方で ϕ が増加すると大きく抑制される。対照的に、液相濃集元素の経路に対する ϕ の影響は小さく、特に累帯構造を形成する場合にはほとんど影響しない（図2c, d）。液相濃集元素濃度は ϕ に関わらず f と緊密に相関しているため、近似的にマグマ進化の指標とみなせることがわかる。

様々な溶岩の岩石学的研究から、マグマ溜まりの周縁に近いマグマは中心部よりも冷却速度が大きいため結晶量が多いことが報告されている（例えばTait, 1988；Nakada et al., 1994）。このようなマグマ溜まり内の場所による結晶量の違いはマグマの組成進化経路にバリエーションをもたらす。浮遊結晶量が0から0.5まで幅を持つ場合、微量元素 x と y を初期濃度で規格化した組成変化図においてマグマと液がプロットされる領域を図3に示す。マグマと液の組成散乱領域の形と大きさは元素 x と y の全岩分配係数（ D_x と D_y ）によって決定される。

元素 x と y の分配係数が等しい時、浮遊結晶の累帯構造の有無に関わらず、マグマも液も原点を通る直線上にプロットされる（図3a-dの緑の矢印）。この場合と x 、 y どちらかの全岩分配係数が1になる場合（図3a-dの黄色の矢印）を除き、マグマの組成は散乱領域を形成する（図3a, bのピンク色の領域）。この時、液の組成は浮遊結晶が均質な場合はマグマに比べて狭い散乱領域（図3c水色の領域）を形成するが、浮遊結晶が累帯構造を形成する場合は散乱せず、曲線状の分別結晶作用の経路（図3d青線）をたどる（Nishimura, 2009）。

4. 天然の火成岩への適用例

一般にマグマは結晶作用と共に全岩分配係数 D を変化させる。この場合、 D を一定とした場合よりも複雑なモデル化が必要となる。しかし高シリカマグマの結晶作用には一定の D でよく近似できるものがある。例えばカリフォルニアのビショップタフ流紋岩マグマでは多くの微量元素の D が広範囲の微量元素濃度変化を通じてほぼ一定であったと考えられている（Anderson et al., 2000）。これはビショップタフの流紋岩マグマが共融点組成に近く、晶出する結晶の量比がほぼ固定されていたためである。Anderson et al. (2000) はビショップタフに見られる斑晶中のメルト包有物はコア付近のものからリム付近のものに向かってガス飽和圧力が増加していることを示し、マグマ溜まり内で結晶が沈降した証拠であると結論づけている。ビショップタフの結晶量には数%から40%までバリエーションが見られる（Hildreth, 1977）。

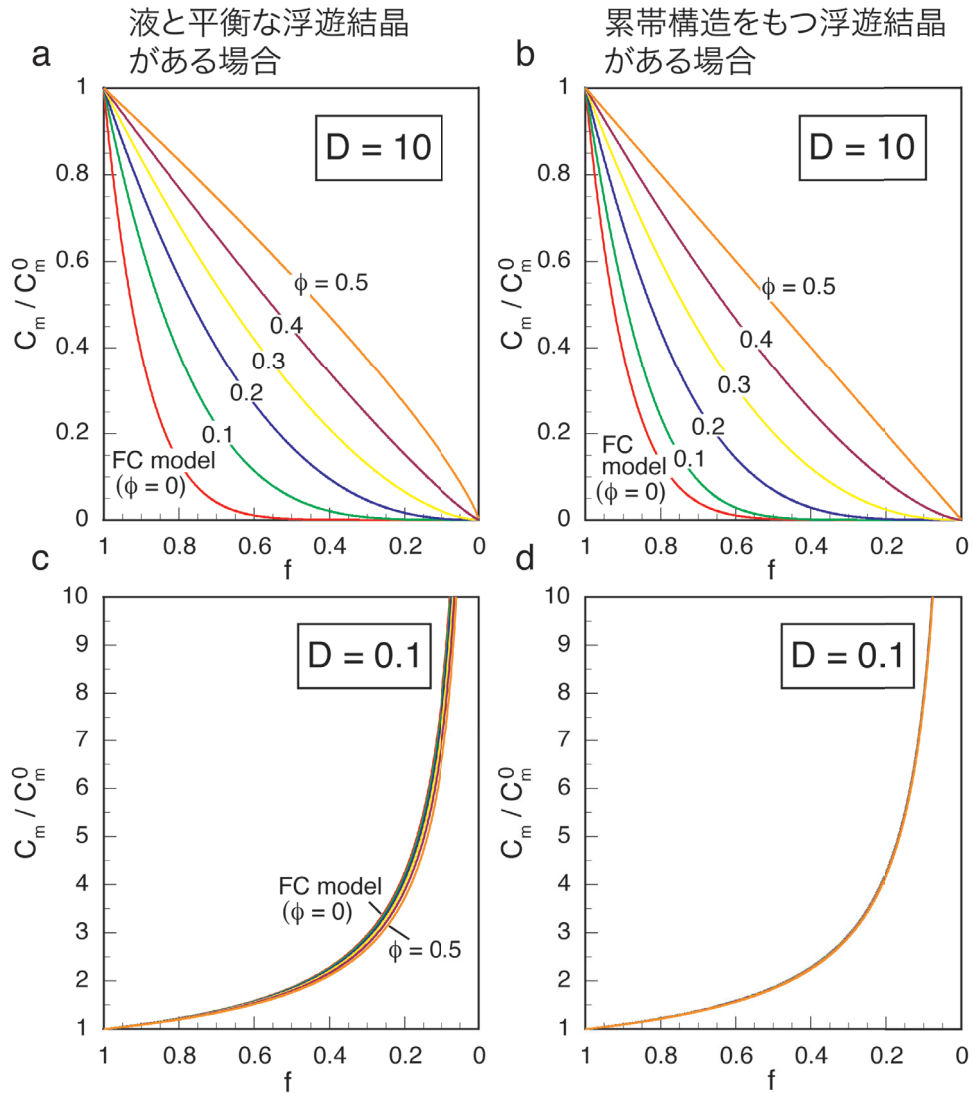


図2. マグマ組成 C_m , 残存マグマの質量分率 f , 浮遊結晶量 ϕ , 全岩分配係数 D の関係. a: 液と平衡な浮遊結晶がある場合の固相濃集元素 ($D = 10$) の進化経路 b: 組成累帯構造を持つ浮遊結晶がある場合の固相濃集元素 ($D = 10$) の進化経路 c: 液と平衡な浮遊結晶がある場合の液相濃集元素 ($D = 0.1$) の進化経路 d: 組成累帯構造を持つ浮遊結晶がある場合の液相濃集元素 ($D = 0.1$) の進化経路

液と平衡な浮遊結晶がある場合

累帯構造をもつ浮遊結晶がある場合

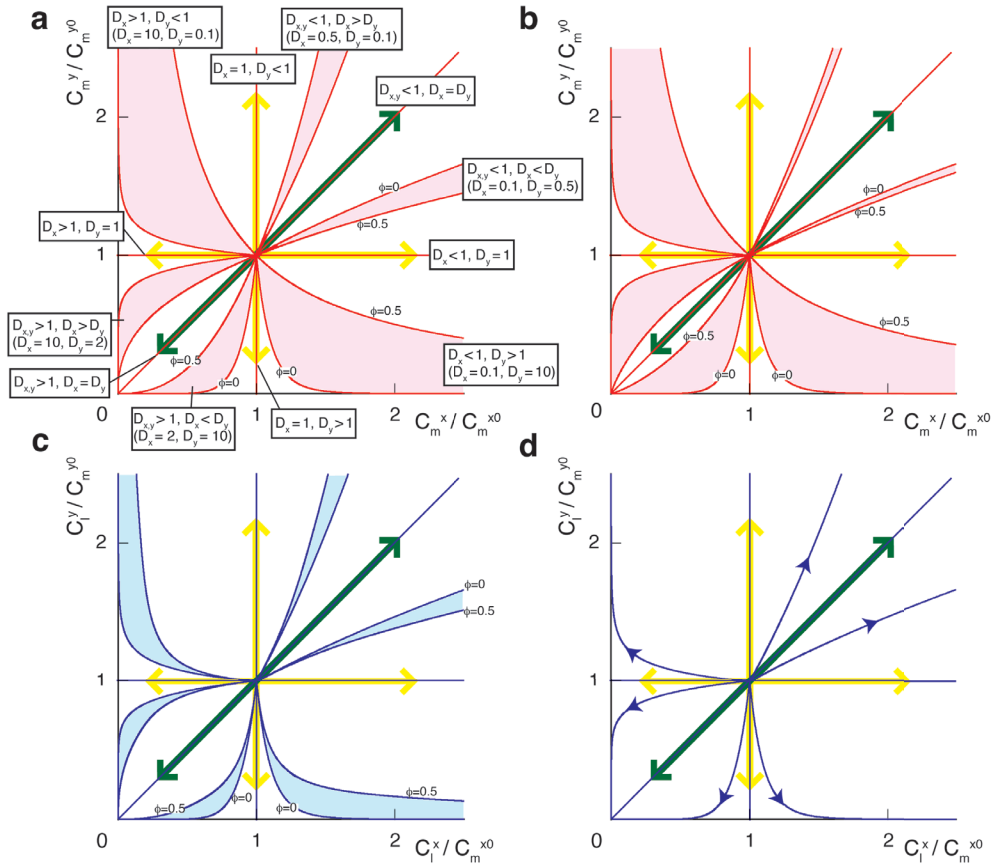


図3. 2種類の微量元素x, yの全岩分配係数 (D_x, D_y) の組み合わせによる不完全分別結晶作用の組成進化トレンド. a: 液と平衡な浮遊結晶がある場合のマグマ組成の進化経路 b: 組成累帯構造を持つ浮遊結晶がある場合のマグマ組成の進化経路 c: 液と平衡な浮遊結晶がある場合の液組成の進化経路 d: 組成累帯構造を持つ浮遊結晶がある場合の液組成の進化経路. ピンク色と水色の領域はそれぞれマグマと液の組成散乱領域を示す (Nishimura, 2009を一部改変).

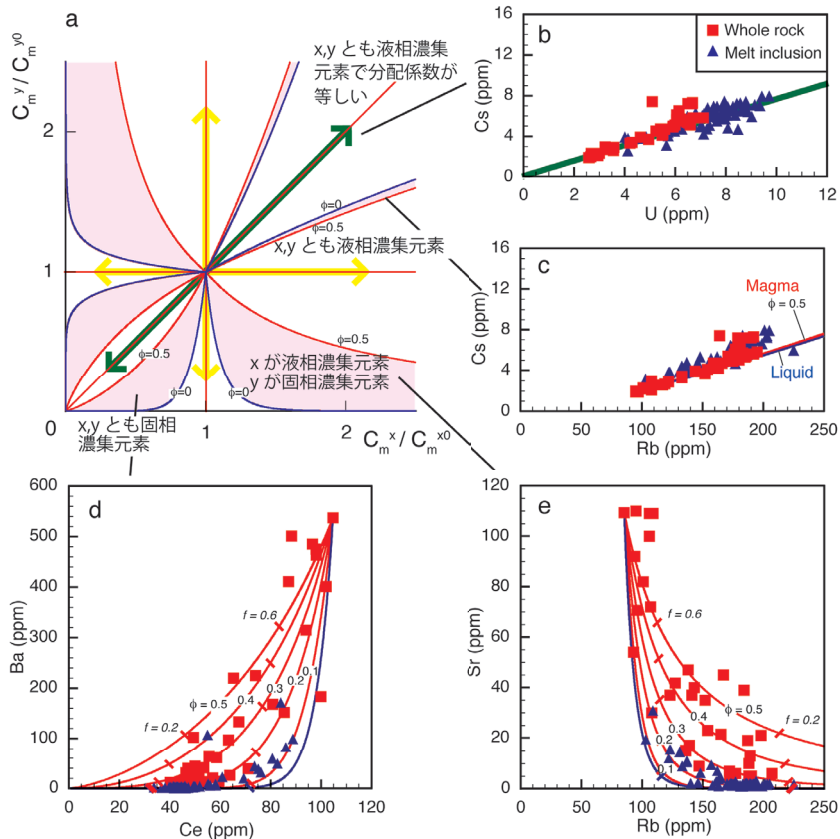


図4. 組成累帯構造を持つ浮遊結晶がある場合の不完全分別結晶作用モデルの微量元素組成変化とビショップタフの全岩・メルト包有物データ (Hildreth, 1977; Mahood and Hildreth, 1983; Halliday et al., 1984; Dunbar and Hervig, 1992; Wallace et al., 1999; Anderson et al., 2000) との比較. Nishimura (2009) を一部改変.

Nishimura (2009) はビショップタフの全岩とメルト包有物の微量元素データ (Hildreth, 1977; Mahood and Hildreth, 1983; Halliday et al., 1984; Dunbar and Hervig, 1992; Wallace et al., 1999; Anderson et al., 2000) をコンパイルし、不完全分別結晶作用を適用した。浮遊結晶が累帯構造を作る場合の計算結果と分析データの比較を図4に示す。UとCsの変化図はどちらの元素も液相濃集元素で全岩分配係数が等しい (≈ 0.20 ; Michael, 1983)。このため、液 (メルト包有物) もマグマ (全岩) も原点を通る同一直線上にプロットされる (図4b)。RbとCsの変化図はどちらの元素も液相濃集元素で $D_{Rb} < D_{Cs}$ であるため、液もマグマも原点を通らない直線的トレンドを示す (図4c)。CeとBaの変化図はどちらも固相濃集元素で $D_{Ce} < D_{Ba}$ であるため、マグマは上弦の月型の組成散乱領域を形成し、液はばらつきの小さい曲線状のトレンドを形成する (図4d)。RbとSrの変化図はRbが液相濃集元素、Srが固相濃集元素なのでマグマは下弦の月型の組成散乱領域を形成し、液はばらつき

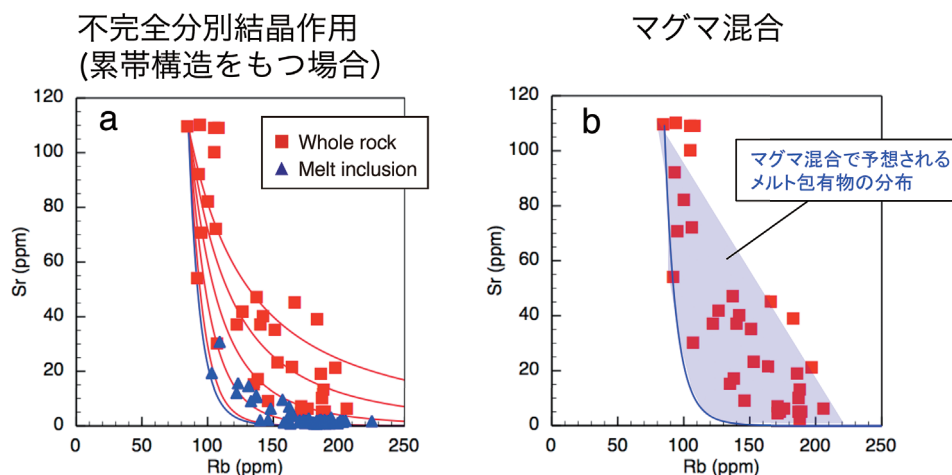


図5. 不完全分別結晶作用（組成累帯構造を持つ浮遊結晶が存在する場合）に予想される液の曲線状トレンド（aの青線）と、マグマ混合に予想される液の組成散乱領域（bの水色の塗色領域）。

の小さい曲線状トレンドを形成する（図4e）。このように組成散乱領域の形や大きさは元素の全岩分配係数によってコントロールされていることがわかる。

5. 岩石学的应用

マグマが不完全分別結晶作用を経験した場合、横軸に液相濃集元素（例えばRb）、縦軸に固相濃集元素（例えば高シリカマグマのSr）をとると、上述のように、全岩データは下弦の月型の組成散乱領域にプロットされ、メルト包有物データは弧状の曲線上にプロットされることになる（図5a）。全岩組成の下弦もしくは上弦の月型の散乱領域はこれまでマグマ混合で説明されることが多かった。マグマ混合モデルでは液相変化曲線（図5bの青線）上を液体マグマが進化し、進化前の親マグマとある程度進化した子マグマが様々な割合で混合すると全岩組成の散乱領域が形成される（Sakuyama, 1981）。この場合、メルト包有物の組成も全岩組成と同じ組成散乱領域にプロットされることが予想される（図5bの水色の塗色領域）。従って不完全分別結晶作用とマグマ混合の区別はメルト包有物の微量元素組成がばらつきの小さい曲線状のトレンドを形成するか、全岩と同様の組成散乱領域を形成するかを判断すれば良いことになる。近年、イオンマイクロプローブやレーザーアブレーションICP-MS等の局所分析装置の普及によって、メルト包有物の微量元素分析が比較的容易に行えるようになってきており、マグマ進化プロセスの理解の進展が期待される。

不完全分別結晶作用とマグマ混合過程は2者択一である必然性はなく、同時に起こりうる。この場合、マグマ混合の指標である同位体組成の変化を組み込んだモデル化が必要となる。Nishimura (2012) はマグマ溜まりに周囲の母岩溶融メルトが混合し、不完全分別

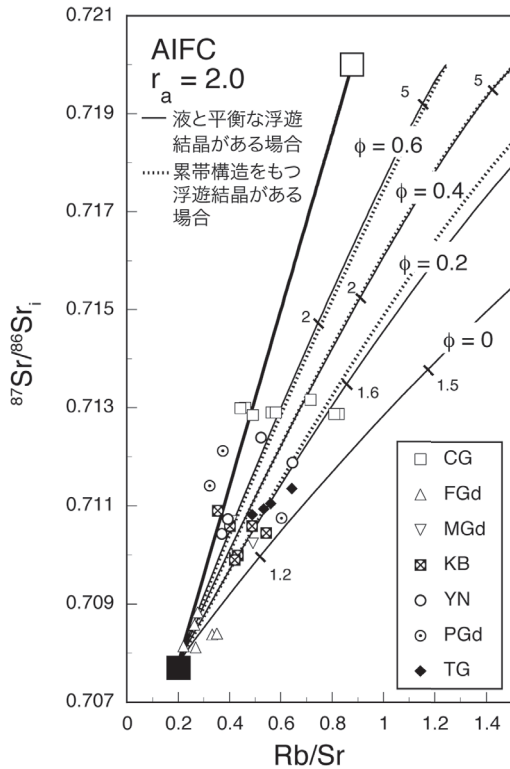


図6. 同化不完全分別結晶作用 (AIFC) の組成進化トレンドと筑波花崗岩類の組成 (Arakawa and Takahashi 1989) との比較. 太い実線は同化物質と初期マグマの単純混合線を示す. Nishimura (2012) を一部改変.

結晶作用が同時進行する同化不完全分別結晶作用 (assimilation and imperfect fractional crystallization; AIFC) のモデル化を行った. この場合でも浮遊結晶量のバリエーションは同位体比と微量元素の組成変化図上で散乱領域を形成することがわかっている (図6). 不完全分別結晶作用は開放系マグマ溜まりプロセスにおいてもマグマの組成散乱領域の形成に重要な役割を果たしていると考えられ, 今後の解析が必要である.

あとがきと謝辞

私が京都大学地球熱学研究施設の研究員だった際, 毎週, セミナー発表が行われていました. ある日のセミナーで火山岩の組成トレンドについて説明がなされている時, 温泉流動システムの研究者である由佐悠紀教授 (現名誉教授) が「なぜ岩石学の方はトレンドに直交する方向のばらつきは説明しないのですか」という印象的な質問をされました. 発表者は「トレンドの方向が最も変化が大きく重要と考えられるので, まずはそちらを優先する」と答えていましたが, トレンドに直交する方向のばらつきがなぜ生じるのかは分からないままでした. この質問は不完全分別結晶作用による組成散乱領域を計算するきっかけとなりました. 京都大学地球熱学研究施設のスタッフにはここで紹介した研究を進める上

でのアイデアや有益なご助言を頂きました。記して感謝の意を表します。

参考文献

- Albarède, F. (1976) Some trace element relationships among liquid and solid phases in the course of the fractional crystallization of magmas. *Geochim. Cosmochim. Acta* **40**, 667-673.
- Allègre, C. J. and Minster, J. F. (1978) Quantitative models of trace element behavior in magmatic processes. *Earth Planet. Sci. Lett.* **38**, 1-25.
- Anderson, A. T. and Greenland, L. P. (1869) Phosphorus fractionation diagram as a quantitative indicator of crystallization differentiation of basaltic liquids. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **33**, 493-505.
- Anderson, A. T., Davis, A. M. and Lu, F. (2000) Evolution of Bishop Tuff rhyolitic magma based on melt and magnetite inclusions and zoned phenocrysts. *J. Petrol.* **41**, 449-473.
- Arakawa, Y. and Takahashi, Y. (1989) Strontium isotopic and chemical variations of the granitic rocks in the Tsukuba district, Japan. *Contrib Mineral Petrol* **101**: 46-56
- Cann, J. R. (1982) Rayleigh fractionation with continuous removal of liquid. *Earth Planet. Sci. Lett.* **60**, 114-116.
- Claeson, D. T. and Meurer, W. P. (2004) Fractional crystallization of hydrous basaltic "arc-type" magmas and the formation of amphibole-bearing gabbroic cumulates. *Contrib. Mineral. Petrol.* **147**, 288-304.
- Cox, K.G., Bell, J.D. and Pankhurst, R.J. *The Interpretation of Igneous Rocks*, George Allen and Unwin, London, 1979, 450 pp.
- Davidson, J.P., Morgan, D.J., Charlier, B.L.A., Harlou, R. and Hora, J.M. (2007) Microsampling and isotopic analysis of igneous rocks: implications for the study of magmatic systems. *Annu. Rev. Earth Planet. Sci.*, **35**, 273-311.
- Dunbar, N. W. and Hervig, R. L. (1992) Petrogenesis and volatile stratigraphy of the Bishop Tuff: evidence from melt inclusion analysis. *J. Geophys. Res.* **97**, 15129-15150.
- Halliday, A. N., Fallick, A. E., Hutchinson, J. and Hildreth, W. (1984) A Nd, Sr and O isotopic investigation into the causes of chemical and isotopic zonation in the Bishop Tuff, California. *Earth. Planet. Sci. Lett.* **68**, 379-391.
- Hildreth, E. W. (1977) The magma chamber of the Bishop Tuff: gradients in temperature, pressure and composition. PhD Thesis, Univ. of Calif., Berkeley.
- Langmuir, C. H., Bender, J. F., Bence, A. E., Hanson, G. N. and Taylor, S. R. (1977) Petrogenesis of basalts from the FAMOUS area: Mid-Atlantic Ridge. *Earth Planet. Sci. Lett.* **36**, 133-156.
- Mahood, G. and Hildreth, W. (1983) Large partition coefficients for trace elements in

- high-silica rhyolites. *Geochim. Cosmochim. Acta* **47**, 11-30.
- Michael, P. J. (1983) Chemical differentiation of the Bishop Tuff and other high-silica magmas through crystallization processes. *Geology* **11**, 31-34.
- Martin, D. and Nokes, R. (1988) Crystal settling in a vigorously convecting magma chamber, *Nature* **332**, 534-536.
- Nakada, S., Bacon, C. R. and Gartner, A. E. (1994) Origin of phenocrysts and compositional diversity in pre-Mazama Rhyodacite lavas, Crater Lake, Oregon. *J. Petrol.* **35**, 127-162.
- Nishimura, K. (2009) A trace-element geochemical model for imperfect fractional crystallization associated with the development of crystal zoning, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **73**, 2142-2149.
- Nishimura, K. (2012) A mathematical model of trace element and isotopic behavior during simultaneous assimilation and imperfect fractional crystallization. *Contrib. Mineral. Petrol.*, **164**, 427-440.
- O'Hara, M. J. (1993) Trace element geochemical effects of imperfect crystal-liquid separation. In *Magmatic Processes and Plate Tectonics* (eds. H. M. Prichard, T. Alabaster, N. B. W. Harris and C. R. Neary). Special Publication of the Geological Society, London, pp. 39-59.
- O'Hara, M. J. and Fry, N. (1996) The highly compatible trace element paradox-fractional crystallization revisited. *J. Petrol.* **37**, 859-890.
- Paster, T. P., Schauwecker, D. S. and Haskin, L. A. (1974) The behavior of some trace elements during solidification of the Skaergaard layered series. *Geochim. Cosmochim. Acta* **38**, 1549-1577.
- Robson, D. and Cann, J. R. (1982) A geochemical model of mid-ocean ridge magma chambers. *Earth Planet. Sci. Lett.* **60**, 93-104.
- Sakuyama, M. (1981) Petrological study of the Myoko and Kurohime volcanoes, Japan: crystallization sequence and evidence for magma mixing. *J. Petrol.*, **22**, 553-585.
- Sha, L. -K. (2012) Concurrent fractional and equilibrium crystallization. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **86**, 52-75.
- Tait, S. R. (1988) Samples from the crystallizing boundary layer of a zoned magma chamber. *Contrib. Mineral. Petrol.*, **100**, 470-483.
- Wallace, P. J., Anderson, A. T. and Davis, A. M. (1999) Gradients in H₂O, CO₂, and exsolved gas in a large-volume silicic magma system: Interpreting the record preserved in melt inclusions from the Bishop Tuff. *J. Geophys. Res.* **104**, 20097-20122.