博士（理　学）　後　藤　章　夫

学位論文題名

An experimental study on the viscosity of some silicate melts

（珪酸塩メルトの粘性に関する実験的研究）

学位論文内容の要旨

マグマの粘性係数は化学組成や温度によって10桁以上変化するため，その火山の噴火様式への影響が非常に大きい．化学組成から粘性係数を求めるモデルがこれまでにいくつか提唱されてきた．そのうちShaw (1972)の計算方法は，その簡便さと計算精度の高さから，広く用いられている．しかしこの方法には以下のような適用限界がある．

1. Shawの方法は絶対温度の逆数に対して粘性係数の対数が直線的に増加するというArrheniusの関係を仮定しているが，実際には珪酸塩メルトの粘性は低温で急激に増加しArrheniusの関係から外れるため，低温で粘性を低く見積もる．
2. SiO_2モル分率が0.8を超える試料に対しては，SiO_2量増加に伴う急激な粘性増加を表現できず，低い値を与える．
3. アルカリ元素の量に対しアルミニウムが過剰に存在する（以下高アルミナ質と表現）場合，過剰分のアルミニウムが粘性係数に及ぼす影響が評価されていないため，粘性係数を計算出来ない．

上記1～3の難点を克服するため，まず低温での急激な粘性増加を表現できるWLF equationに対して式中の各パラメータの化学組成依存性を決定することで，広範囲の温度に対応する粘性係数計算法を開発した．

WLF equation (Williams et al., 1955)は次式で与えられる．

$$\log\eta = \log\eta_{T_g} - \frac{A(T-T_g)}{B+T-T_g} \qquad (1)$$

η：粘性係数(Pa s)，T：温度(K)，T_g：ガラス転移温度，

η_{T_g}：T_gでの粘性係数，A，B：定数

パラメーターの決定は，ガラス転移温度と粘性係数の測定データをもとに行われた．測定試料は4種類の火山岩溶融物と，雲仙普賢岳第1ドーム溶岩の石基ガラス組成をもとに合成された試料の計5種類で，そのSiO_2量は53.78～79.65wt%にわたる．石基ガラスのSiO_2モル分率は0.86に達する．ガラス転移温度の測定は示差熱分析(DTA)によって行われた．粘性係数測定には，ガラス繊維引き伸ばし法と球体引き上げ法を用いた．各試料に対して，DTAから得られたT_gを代入した上で，粘性係数測定結果を(1)式でフィッティングしてA，B，η_{T_g}を決定したところ，Aとη_{T_g}は組成によらずほぼ一定でそれぞれA=17.5，$\log\eta_{T_g}$=13.0が得られた．一方BとT_gには組成依存性が見られた．BとT_gを化学組成と結び付けるために，化学組成から求められるパラメータS (Shaw, 1972)を導入し，B，T_gとSとの関係を見た．Sは本来Shawの計算式（後述の(3)式）中でArrhenius slopeを表わすパラメータである．Shawは多成分系の珪酸塩メルトを二成分系の珪酸塩メルトの混合物として扱うことで，Sを次式によって与えた．

$$S = \Sigma \frac{X_i}{1 - X_{SiO_2}} (s_i{}^\circ X_{SiO_2}) \qquad (2)$$

X_{SiO_2}：SiO_2のモル分率，X_i：成分iのモル分率（Fe_2O_3はFeOに，Al_2O_3は仮想的にAlO_2に，その量をそれぞれ換算），$s_i{}^\circ$：SiO_2-i二成分系がもつArrhenius slopeの，X_{SiO_2}=1への外挿値

但し実験に用いた試料の組成範囲はSiO_2量の低い玄武岩を含まないため，Aとη_{T_g}をそれぞれ17.5と13.0に固定した上で，Taniguchi (1993)による玄武岩質試料の粘性測定値に(1)式をフィッティングして得られたBとT_gも加えた．その結果，$B=64S^2-202S+446$，$T_g=57S^2-306S+1341$なる関係が得られた．

これらをもとに，文献(Taniguchi, 1993; Neuville et al., 1993)に測定値が記された玄武岩から流紋岩にわたる試料の粘性係数を計算したところ，計算値と測定値は良く一致した．このうち流紋岩のSiO_2モル分率は0.84で，この計算法がSiO_2モル分率が0.80を超える試料に対しても有効であることが確かめられた．

高アルミナ質珪酸塩メルトに対して上記の計算法を適用するには，(2)式のSを求めるために，過剰なアルミナ（以下AlO_2^*と表現）に対する$s_i{}^\circ$（$s_{AlO_2^*}{}^\circ$）が必要である．一方Shawの方法が高アルミナ質珪酸塩メルトに対して適用できないのも，$s_{AlO_2^*}{}^\circ$が与えられていないためである．そこで高アルミナ質な試料の粘性係数測定結果より$s_{AlO_2^*}{}^\circ$を求め，Shawの方法を高アルミナ質珪酸塩メルトに適用できるよう拡張することを試みた．

Shaw(1972)のモデルでは珪酸塩メルトの粘性係数は次式で与えられる．

$$\ln \eta = S(\frac{10^4}{T} - 1.50) - 8.70 \qquad (3)$$

Sは(2)式によって与えられる．高アルミナ質珪酸塩メルトの粘性係数と温度の関係が(3)式に従うなら，(2)式はAlO_2^*に関する項を含んだ以下の形に変形されるはずである．

$$S = S_0 + \frac{X_{AlO_2^*}}{1 - X_{SiO_2}} (s_{AlO_2^*}{}^\circ X_{SiO_2}) \qquad (2)'$$

S_0:AlO_2^*以外の全酸化物のモル分率より(2)式によって求められたS

(2)'式のSは，高アルミナ質試料の粘性測定値に(3)式をフィッティングして得られるS（S_mとする）に等しくなければならない．よって次の関係が得られる．

$$\Delta S \frac{1 - X_{SiO_2}}{X_{SiO_2}} = s_{AlO_2^*}{}^\circ X_{AlO_2^*} \qquad (4)$$

ΔS:S_m-S_0，$X_{AlO_2^*}$:AlO_2^*のモル分率

$s_{AlO_2^*}{}^\circ$が他の$s_i{}^\circ$同様，試料の化学組成によらず一定なら，$\Delta S \frac{1 - X_{SiO_2}}{X_{SiO_2}}$は$X_{AlO_2^*}$に比例する．よって複数の試料について，$X_{AlO_2^*}$に対して$\Delta S \frac{1 - X_{SiO_2}}{X_{SiO_2}}$をプロットすると，その勾配が$s_{AlO_2^*}{}^\circ$を与える．

S_mを求めるため，8個の高アルミナ質な合成試料の粘性係数測定を球体引き上げ法によって行った．Bottinga and Weill(1972)に従うと，$X_{AlO_2^*}$は $X_{AlO_2}-2(X_{MgO}+X_{CaO}+X_{Na_2O}+X_{K_2O})$ で与えられる．本研究で用いた試料では$X_{AlO_2^*}$は0.03～0.12にわたる．

得られたS_mと化学組成をもとに各試料について$\Delta S \frac{1 - X_{SiO_2}}{X_{SiO_2}}$を計算し，$X_{AlO_2^*}$に対してプロットしたところ，両者には比例関係が見られ，その比例係数から$s_{AlO_2^*}{}^\circ$=5.6が得られた．

この値をShawが与えた$s_i{}^\circ$の表に新たに加えた上で，十勝岳1988-1989年の噴火で放出された高アルミナ質岩の溶融状態での粘性係数を計算し，測定値と比較したところ，両者は良く一致した．

上記の二つの研究成果は，粘性係数の計算可能範囲を温度・組成の両方で大きく広げた．特にWLF equationを用いた計算法により，実際の火山現象が起きている1000℃前後での精度良い計算が可能になった．

学位論文審査の要旨

主　査　教　授　西　田　泰　典
副　査　教　授　宇　井　忠　英
副　査　助教授　前　田　　亟
副　査　助教授　岡　田　　弘

学位論文題名

An experimental study on the viscosity of some silicate melts

（珪酸塩メルトの粘性に関する実験的研究）

マグマの粘性係数は化学組成や温度によって10桁以上変化するため，火山の噴火様式への影響が非常に大きい．化学組成から粘性係数を求めるモデルがこれまでにいくつか提唱されてきた．そのうちShaw(1972)の計算方法は，その簡便さと計算精度の高さから，広く用いられている．しかしこの方法には以下のような適用限界がある．

1. Ｓｈａｗの方法は絶対温度の逆数に対して粘性係数の対数が直線的に増加するというArrheniusの関係を仮定しているが，実際には珪酸塩メルトの粘性は低温で急激に増加しArrheniusの関係から外れるため，低温で粘性を低く見積もる．
2. SiO_2モル分率が0.8を超える試料に対しては，SiO_2量増加に伴う急激な粘性増加を表現できず，低い値を与える．
3. アルカリ元素の量に対しアルミニウムが過剰に存在する（以下高アルミナ質と表現）場合，過剰分のアルミニウムが粘性係数に及ぼす影響が評価されていないため，粘性係数を計算出来ない．

上記1～3の難点を克服するため，著者はまず低温での急激な粘性増加を表現できるWLF equation(Williams et al., 1955)に対して，式中の全て（4個）のパラメータの化学組成依存性を実験的に決定し，広範囲の温度に対応する粘性係数計算法を開発した．

パラメーターの決定は粘性係数の測定データをもとに行われた．測定試料は４種類の火山岩溶融物と，雲仙普賢岳第１ドーム溶岩の石基ガラス組成をもとに合成された試料の計5種類で，そのSiO_2量は53.78～79.65wt%にわたる．石基ガラスのSiO_2モル分率は0.86に達する．各試料について決定した4個のパラメータを化学組成と比較したところ，2個のパラメータは組成によらずほぼ一定であった．他の2個のパラメータには組成依存性が見られた．

組成依存性をもつ２個のパラメータを化学組成の関数として表わすために，それらをShaw(1972)が導入したパラメータSに対してプロットした．その結果，この2個のパラメータはSの２次関数で与えられた．ＳはShawの計算式中でArrhenius slopeを表わし，

その値は化学組成から計算される．したがって試料の化学組成がわかれば4つのパラメータ全てが決定され，その試料の任意の温度での粘性係数を知ることができる．

得られたパラメータを用いて，文献に測定値が記された玄武岩から流紋岩にわたる試料の粘性係数を計算したところ，計算値と測定値は良く一致した．このうち流紋岩のSiO_2モル分率は0.84で，この計算法がSiO_2モル分率が0.80を超える試料に対しても有効であることが確かめられた．

高アルミナ質珪酸塩メルトに対して上記の計算法を適用するには，Sを求めるために，Shawの計算法に，過剰分のアルミニウムが粘性係数に及ぼす影響を評価する項を加える必要がある．そこで著者は高アルミナ質な試料の粘性係数測定結果よりその項の値を求め，Shawの方法を高アルミナ質珪酸塩メルトに適用できるよう拡張することを試みた．

Shawはある温度での珪酸塩メルトの粘性係数はArrhenius slopeによって決定されると考え，さらに多成分系の珪酸塩メルトのArrhenius slope（前述のS）はSiO_2を主体とする二成分系のArrhenius slopeをたし合わせることによって求められると仮定した．各成分の粘性係数への効果は，その成分とSiO_2とから成る二成分系のArrhenius slopeによって評価されている．高アルミナ質珪酸塩メルトについてもShawの仮定が成り立つなら，過剰分のアルミナを除いた成分から計算したArrhenius slopeと，粘性係数測定値から求めたArrhenius slopeとの差を過剰アルミナの効果と見なせる．

著者は8個の高アルミナ質な合成試料の粘性係数測定を行った．本研究で用いた試料の過剰分のアルミナのモル分率は0.03～0.12にわたる．測定結果と化学組成を基に，過剰分のアルミニウムが粘性係数に及ぼす影響を評価する項の値を求めたところ，化学組成によらない一定値が得られた．この値を用いて，十勝岳1988－1989年の噴火で放出された高アルミナ質岩の溶融状態での粘性係数を計算し，測定値と比較したところ，両者は良く一致した．

上記の二つの研究成果は，粘性係数の計算可能範囲を温度・組成の両方で大きく広げた．そのため，実際の火山現象が起きている1000°C後での精度良い計算が可能になった．このことは火山の噴火様式，マグマの流動特性を定量的に議論することを可能にするなど，火山学に貢献すること大である．

よって著者は北海道大学博士（理学）の学位を授与される資格あるものと認める．