

令和 4 年 5 月 30 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2018～2021

課題番号：18K11614

研究課題名（和文）パッシブサンプラーを用いた温泉水中溶存ガスの時空間分布の観測

研究課題名（英文）Observation of dissolved gases in a hot spring using the passive diffusion sampler

研究代表者

高畑 直人（Takahata, Naoto）

東京大学・大気海洋研究所・助教

研究者番号：90345059

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：地下深くからもたらされる温泉水には地球深部由来の成分を多く含んでおり、溶存ガスの組成比や同位体比はその起源や挙動について有益な情報をもたらす。本研究では気体透過膜を使った受動拡散サンプラーを用いて、深さ約300mの温泉井戸において任意の深さから溶存ガスを採取し、その組成比や同位体比の鉛直分布および経年変化を明らかにすることに成功した。特にヘリウムや二酸化炭素の同位体を分析することで、マグマ由来の物質が供給されていることを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で採用した受動拡散サンプラーを用いた方法は、従来の試料採取とは異なり、採水の必要がないため他の場所からの汚染がなく、特殊な知識や器具が必要ないこと、分析においても溶存ガスを分離する手間がなく簡便であるため、地下水の溶存ガスを観測する上で多くの人の役に立つことが期待される。また温泉水の溶存ガスを時空間的に観測することで、地震や火山の活動を解明する手がかりとなる可能性があることを示すことができた。

研究成果の概要（英文）：In this study, we succeeded in observing spatial and temporal distribution of dissolved gases in a deep hot-spring well using the passive diffusion sampler. Isotopic ratios of helium and carbon indicates dissolved gases have the magmatic component.

研究分野：地球化学

キーワード：溶存ガス 地下水 地震 火山

## 1. 研究開始当初の背景

日本は地震や火山の活動が活発な地域の一つであり、基礎科学だけでなく防災の面からも地震や火山を研究することが重要である。地震や火山の活動を調べるには地震計や歪み計といった地球物理学的な観測がほとんどであり、地下水の観測など地球化学的な観測は少ない。しかしながら 50 年以上も前から地震に伴って地下水位などが変化することは知られており、さらに地下水に溶存するイオンやガスの成分が変化することが報告されている。近年、地球物理学的な観測だけでは地震や火山噴火の予知には十分でないことが認識されつつあり、地球化学的な観測の必要性が増している。

地下水に溶存する気体、その中でも希ガスや窒素、二酸化炭素などの揮発性元素はその起源や挙動を調べる上でトレーサーとしてよく使われる。地震や火山の活動に関連して、地下水や温泉水のヘリウムや二酸化炭素の同位体に異常が見られることが報告されている。これらを継続的に観測することで、地震や火山の活動をモニターできる可能性がある。

しかし地下水をポンプでくみ上げる場合は、1カ所の深さから、あるいは複数の深さが混合されて採取することしかできない。そのため地下水溶存ガスの深さ方向の濃度勾配あるいは同位体比の変化を見ることは、ガスや水の動きを知る上で重要であるのにもかかわらず、それを調べられないジレンマがある。また採水器で複数の深さから採水する場合は、海洋や湖沼で使用する大がかりな採水器は使えず、1つの採水器を何度も上げ下げさせなければならない。その労力は大変で、さらにその作業で水が混合してしまう可能性がある。本研究で提案するパッシブサンプラーを用いれば、水を採取するわけではないので1つのサンプラーはとて軽く、任意の深さから好きな数だけ試料を同時に採取できる。

これまでは試料水を他の深さの水や空気に触れずに採取してガラスボトルや銅管に密閉保管し、実験室に持ち帰ってから試料水から溶存ガスを抽出する必要があった。そのためにはくみ上げポンプや採水器などの器具が必要でその扱いは簡単ではなく、器具や試料の運搬も大変であった。さらに試料採取や溶存ガス抽出には特別な知識や技術が要求される。本研究の第一の目的はこの試料採取から分析までの手順を容易にし、誰もが利用できる分析法を開発することである。

## 2. 研究の目的

最近になって、シリコンチューブを気体透過膜として使用し、水中に沈めて受動的に拡散させて溶存ガスを採取する方法が提案された。この方法では採水の必要がなく、任意の場所で採取でき、しかも分析のためのガス抽出が容易である。そこで、本研究ではシリコンチューブを利用した溶存ガス採取器具を材料の段階から評価し直し、信頼しうる分析データが得られる手法を開発することを目標とした。その後高温高压の条件の温泉井戸で、複数の深さから同時に地下水の溶存ガスを採取・分析し、本手法の有効性を評価した。

地下水の溶存ガスを複数の元素・同位体で分析した報告は少なく、さらに時間的・空間的な分布を報告した例はほとんどない。本研究では温泉水を観測するのによく使われるヘリウム同位体に加えて、アルゴンや窒素、メタン、二酸化炭素の成分比および同位体比も分析することを目指した。これまではほとんど観測不可能であった、地下水深井戸における複数溶存ガスの濃度勾配および同位体比変化を明らかにすることを目的とした。

観測対象とした地下水の井戸は、大分県別府市にある京都大学地球熱学研究施設の試験温泉井戸である。この井戸は深さが 300m、水深が 200m 以上あり、その水温も高いことから、高温高压下でのサンプラーの有効性を見るのに適している。本地域は断層に沿って深部流体が上昇し形成した温泉地域で、温泉水にはヘリウムや二酸化炭素、メタンを多く含むこと、それらの同位体比に空気とは異なる特徴があることなど、評価に適している地下水といえる。

## 3. 研究の方法

パッシブサンプラーを用いて地下水の溶存ガスを簡易に採取する方法を確立し、深さ 300m の試験温泉井戸で観測を行なった。水中で気体のみを透過するシリコンチューブを用いることで、水そのものを採取せずに溶存ガスのみを採取器具に採取する方法(受動拡散法)を用いた。つまり最初はサンプラーの中に空気が入っているが、水中に浸けることでサンプラー内部の空気と水中の溶存ガスが入れ替わる原理を利用した。まずは実験室にて組成や同位体比が既知の溶存ガスを含む水の中にパッシブサンプラーを沈め、気体が透過する条件を評価した。その後、試験温泉井戸にパッシブサンプラーを沈め、回収して溶存ガスの濃度や同位体を分析し、高温高压の悪条件下でのサンプラーの有効性を評価した。何度か繰り返し観測を行ない、その分析結果から、地下帯水層でのヘリウムや炭素の起源や挙動を推定しマルチトレーサーの有用性を評価した。

パッシブサンプラーに採取した溶存ガスの測定には東京大学大気海洋研究所に設置されているヘリウム同位体分析用の高感度質量分析計、ガス組成分析装置、安定同位体用質量分析計を用いた。分析方法は従来のガス試料を分析する場合と同じであり、分析については何も問題はな

った。

#### 4. 研究成果

##### (1) 試料採取法の改良

溶存ガスを採取するためのパッシブサンプラーは、銅管とシリコンチューブをつなぎ合わせて作成した。銅管内の気体の入れ替わりは、内容積と気体透過膜の面積に左右されるので、内容積はできるだけ小さい方がいい。分析に必要なガス量から考えて、外径 1/4 インチ、長さ 100mm の銅管を 2 本、シリコンチューブでつなぐ形にした。こうすれば 1 つは希ガスの分析に、もう 1 つはガス組成や二酸化炭素の同位体の分析に利用できる。まず実験室で恒温槽を使って、組成比のわかったガスを溶け込ませた水にパッシブサンプラーを沈め、溶存ガスの透過度を検討し、サンプラー内の気体が外と入れかわる時間を検討した。その結果、ヘリウムなどの溶存ガスは簡単にシリコンチューブを透過し、水の中に 1 日以上置けば平衡になることが確かめられた。

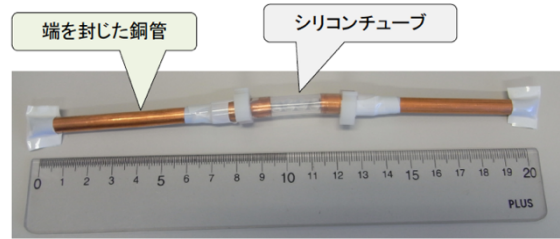


図 1. パッシブサンプラー

##### (2) 温泉井戸での観測

温泉試料は別府温泉にある京都大学地球熱学研究施設の深さ約 300m の試験井戸から採取した。この井戸は汲み上げポンプが設置されておらず、ほとんど静的な状態が保たれている。井戸内の深さ約 290m から約 50m 間隔ごとと上方に向かってサンプラーを設置し 3 日間置いた後に、引き上げて銅管をクランプで圧着し溶存ガスを密閉採取した。温度の高い層では銅管の色が変わっていたものの、内部に水が入ることはほとんどなかった。また比較のために採水器による採水も行ない、ガスが逃げないようにガラスの密閉容器に移して保管した。採取したガス試料は 3 台の質量分析計によりガス組成およびヘリウム、窒素、炭素の同位体を測定した。

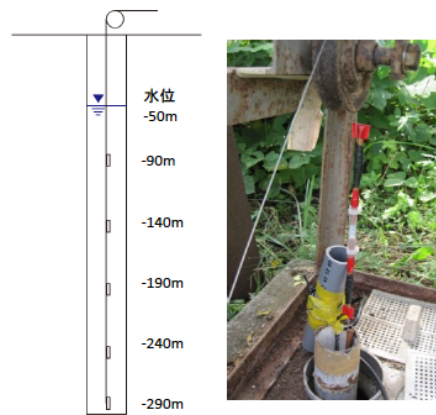


図 2. サンプラー設置風景

##### (3) 溶存ガスのガス組成の鉛直分布

図 3 は溶存ガスのガス組成の深度分布である。ガス組成は深さによって大きく異なる。浅層では  $\text{CH}_4$  と  $\text{N}_2$  が多く、深層では  $\text{H}_2$ 、 $\text{N}_2$ 、 $\text{CO}_2$  が多くなる。特に水温が最大になる 240m 深を境に組成が大きく変化する。この傾向は採取年が違ってもおおよそ同じであった。由佐&大沢 (2000) によると、溶存イオンの型により深部に 3 層の帯水層があることを明らかにしている。溶存ガスの組成の違いもこれを反映している可能性がある。

化学的に不活性な  $\text{N}_2$ 、 $\text{Ar}$ 、 $\text{He}$  の比は、起源の異なる成分の混合を調べるのに有用である。観測井戸のガスは Kita et al. (1993) が報告した別府のマグマ性ガスと大気との混合で説明できる。また Sturchio et al. (1996) は別府の蒸気ガスがこの混合ラインにのることを報告しており、本研究でも推定されるマグマ性ガスの  $\text{He}/\text{Ar}$  比と  $\text{N}_2/\text{Ar}$  比を確認することができた。また井戸の深部ほど  $\text{He}/\text{Ar}$  比は高く、マグマ性ガスの成分が多いことを示しており、 $\text{He}$  同位体の結果と調和的である。

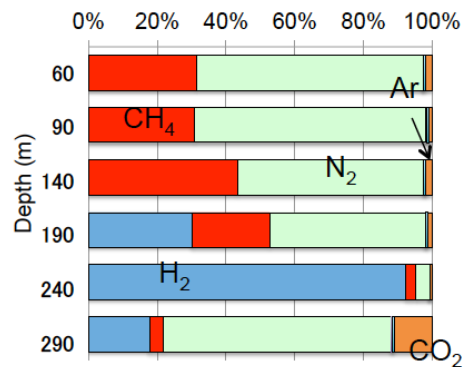


図 3. ガス組成鉛直分布

##### (4) ヘリウム同位体組成

ヘリウムはマグマ活動に敏感なトレーサーであり、希ガスであるために化学反応などをせず起源の情報をよく保持している。図 4 に  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比の深度分布を示す。 $^3\text{He}/^4\text{He}$  比も  $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$  比も深くなるほど高くなり、最深部で最大となった。 $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$  比は  $^4\text{He}$  濃度と見ることができ、最深部で最大値を取ることからヘリウムは井戸の最深部から供給されていることを示している。ガス組成と同じように 240m 付近を境に  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比も変化しているように見える。これらの情報から井戸内での地下水や溶存ガスの動きを知ることができる。さらに図 5 に示すように  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比と

$^{20}\text{Ne}/^4\text{He}$  比の間にはきれいな相関が見られた。これはマグマ性ガスと大気の2成分混合で説明できる。また採水器で採取した温泉水の溶存ガスはほぼ同じ直線にのり、パッシブサンプラーで得られた値が正しいことを確認した。気体透過膜を通っても同位体比や組成比は変化していないようである。そしてこの  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比と  $^{20}\text{Ne}/^4\text{He}$  比の関係からマグマ性ガスの  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比は  $7.3\text{Ra}$  と推定することができる。採取年が違っていても同じ傾向を示し、供給されるヘリウムに変化がないことを示している。このように地下水の溶存ガスを観測することで、井戸に流入する溶存ガスの起源や挙動を知ることができる。

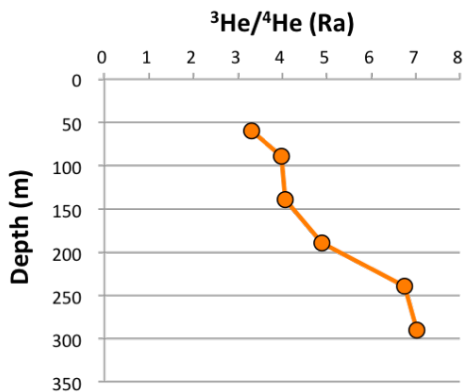


図4.  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比の鉛直分布

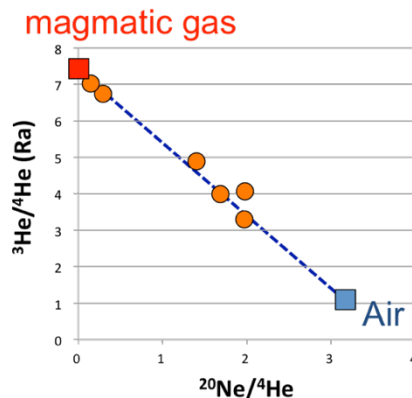


図5.  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比と  $^{20}\text{Ne}/^4\text{He}$  比の関係

#### (5) 炭素同位体組成

$\text{CO}_2$  も火山活動に伴う深部起源ガスと考えられており、ヘリウムと一緒に用いることで地下深部の情報を得ることができる。 $\text{CO}_2$  の  $\delta^{13}\text{C}$  値は深さと共に高くなり、濃度が最大となる最深部では Sturchio et al. (1996) が報告する別府の蒸気ガスの値 ( $-7\text{‰}$ ) に近い値となった。また  $\text{CO}_2$  の  $\delta^{13}\text{C}$  値は  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比と相関があり、Sturchio et al. (1996) が報告した別府の蒸気ガスと浅層地下水の2成分の混合で説明できることがわかった。図5からマグマ性ガスの  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比がわかるので、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  比と  $\text{CO}_2$  の  $\delta^{13}\text{C}$  値の関係から  $\delta^{13}\text{C}$  値も推定することができる。

本研究で用いたパッシブサンプラーは水深 200m 以上、水温  $100^\circ\text{C}$  以上の悪条件下でも使用できることを確認した。得られたガス組成や同位体比は地下の情報をよく保持しており、信頼できる分析データが得られることがわかった。そしてマルチトレーサーを使うことでマグマ性ガスの組成や同位体比が推定でき、その時間変化からマグマ活動の情報を得られることがわかった。このようにパッシブサンプラーは地下水の溶存ガスを調べる上で強力なツールとなり、扱いの簡単さからより多くの人に利用されれば火山活動の観測にも役立つであろう。

#### <引用文献>

- ① 由佐&大沢 (2000), 大分県温泉調査研究会報告, 51, 1-9.
- ② Kita et al. (1993), *Geology*, 21, 391-394.
- ③ Sturchio et al. (1996), *Geothermics*, 25, 215-230.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計28件（うち査読付論文 25件 / うち国際共著 22件 / うちオープンアクセス 20件）

1. 著者名 Nakajima Ma, Teresa Escobar, Takahata Naoto, Shirai Kotaro, Kagoshima Takanori, Tanaka Kentaro, Obata Hajime, Sano Yuji	4. 巻 317
2. 論文標題 Monitoring the magmatic activity and volatile fluxes of an actively degassing submarine caldera in southern Japan	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Geochimica et Cosmochimica Acta	6. 最初と最後の頁 106 ~ 117
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.gca.2021.10.023	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 梁熙俊、柴田智郎	4. 巻 63
2. 論文標題 別府扇状地南部域における不圧地下水位の長期変動	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 地下水学会誌	6. 最初と最後の頁 151 ~ 157
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.5917/jagh.63.151	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Shibata T., Takahashi R., Takahashi H., Kagoshima T., Takahata N., Sano Y. and Pinti D.L.	4. 巻 72
2. 論文標題 Coseismic changes in groundwater level during the 2018 Hokkaido Eastern Iburu earthquake. Earth, Planets and Space	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Earth, Planets and Space	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1186/s40623-020-01152-y	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Lee H., Kim H., Kagoshima T., Park J., Takahata N. and Sano Y.	4. 巻 9
2. 論文標題 Mantle degassing along strike-slip faults in the Southeastern Korean Peninsula	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 15334
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-019-51719-3	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Chen A., Shen C., Byrne T.B., Sano Y., Takahata N., Yang T.F. and Wang Y.	4. 巻 9
2. 論文標題 Mantle fluids associated with crustal-scale faulting in a continental subduction setting, Taiwan	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 10805
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-019-47070-2	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Kagoshima T., Sano Y., Takahata N., Lee H., Lan T. and Ohba T.	4. 巻 20
2. 論文標題 Secular variations of helium and nitrogen isotopes related to the 2015 volcanic unrest of Mt. Hakone, central Japan	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Geochemistry, Geophysics, Geosystems	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1029/2019GC00854	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Takahata N., Shirai K., Ohmori K., Obata H., Gamo T., Sano Y.	4. 巻 29
2. 論文標題 Distribution of helium-3 plumes and deep-sea circulation in the central Indian Ocean	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Terrestrial, Atmospheric and Oceanic Sciences	6. 最初と最後の頁 331 ~ 340
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3319/TAO.2017.10.21.02	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Onda S., Sano Y., Takahata N., Kagoshima T., Miyajima T., Shibata T., Pinti D.L., Lan T., Kim N.K., Kusakabe M., Nishio Y.	4. 巻 8
2. 論文標題 Groundwater oxygen isotope anomaly before the M6.6 Tottori earthquake in Southwest Japan	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 14800
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-018-23303-8	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計37件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 21件）

1. 発表者名 高畑直人, 柴田智郎, 佐野有司
2. 発表標題 温泉深井戸における溶存ガスの濃度および同位体の時空間分布：受動拡散サンプラーを用いた観測
3. 学会等名 日本地球化学会年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 高畑直人, 柴田智郎, 佐野有司
2. 発表標題 温泉深井戸における溶存ガスの濃度および同位体の鉛直分布
3. 学会等名 日本地球化学会年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 柴田智郎
2. 発表標題 地球科学におけるヘリウム同位体のオンサイト連続測定的重要性
3. 学会等名 第67回質量分析総合討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 柴田智郎, 高橋 良, 高橋浩晃, 鹿兒島涉悟, 佐野有司, Pinti D.L.
2. 発表標題 2018年北海道胆振東部地震における地下水位の変化
3. 学会等名 JpGU
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Shibata, T., Takahashi, R., Takahashi, T., Akita, F.
2. 発表標題 Borehole Temperature-Depth Profiles in a New Crater Zone formed during the 2000 Eruption of Uzu Volcano, Japan
3. 学会等名 IUGG (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 柴田智郎, 小川幸輝, 竹村恵二, 角野浩史
2. 発表標題 大分県別府温泉におけるCO2の脱ガスについて
3. 学会等名 日本地球化学会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 柴田智郎
2. 発表標題 別府群発地震時の温泉水位について
3. 学会等名 陸水物理研究会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 柴田智郎, 小川幸輝, 竹村恵二, 角野浩史
2. 発表標題 別府温泉堀田・朝見川断層における二酸化炭素の脱ガス
3. 学会等名 日本温泉科学会
4. 発表年 2018年



〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担 者	柴田 智郎  (Shibata Tomo)  (80446369)	京都大学・理学研究科・准教授   (14301)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------