

令和 5 年 5 月 31 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20K04100

研究課題名（和文）火口近傍における火山性流体の高頻度採取に向けた自動採取装置の開発と展開

研究課題名（英文）Development and Application of high frequency auto sampling tool for volcanic fluids near the craters

研究代表者

森 俊哉（MORI, TOSHIYA）

東京大学・大学院理学系研究科（理学部）・准教授

研究者番号：40272463

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：火山性流体中の微量成分や溶存成分の量比は、火山地下の状況の変化を捉えうる感度の高い指標であるが、これまでの多くの研究では試料を現地で採取し、持ち帰り分析することでデータを得ていたため、データ頻度が低く、火山活動を詳細に議論するのは難しかった。本研究課題では、この点に着目し、火山性流体の高頻度自動採取装置を小型のCNC（computer numerical control）機器を応用して開発した。開発した装置を用い、温泉水やなどの水試料と土壌ガス、蒸気井噴気ガスなどの気体試料の高頻度採取を行い、その有効性を示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

これまでの多くの火山性流体の地球化学的研究では、データ頻度が低く、火山活動の時間変化を詳細に議論することは難しかった。本研究課題では、火山性流体の液体試料および気体試料に対応した高頻度自動採取装置を開発し、様々な形態の火山性流体試料の高頻度自動採取を行うことで、高頻度採取の有効性を示した。本研究課題で開発した装置のような方法で、火山性流体の高頻度採取が行われるようになれば、地球化学的データをより有効に利用して、火山現象の理解や火山活動評価が進展するものと期待される。

研究成果の概要（英文）：Geochemical monitoring of volcanic fluids has a potential to detect the changes beneath the volcanoes. In previous studies, most of the geochemical data were obtained by sampling and laboratory analyses by researchers. Thus, the data frequencies were usually low and detailed discussion for temporal variation was difficult. To overcome this problem, high frequency autosampling tools for volcanic fluids for both water and gas samples were developed using small CNC（computer numerical control）instruments and were tested and validated for various kind of volcanic fluids including hot spring waters, soil gas, fumarolic gas from steam-well and etc.

研究分野：火山化学

キーワード：火山性流体 自動採取 温泉水 噴気ガス 蒸気井

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

火口周辺や噴気地帯から噴出・湧出する火山ガス、噴気ガス、温泉水などの火山性流体は、火山地下の状況の変化を捉えうる感度の高い指標である。これまで、火山活動の変化に伴う火山ガスの化学組成変化や温泉の溶存成分濃度変化が数多く報告されている。特に、火山現象の変化に敏感に反応すると考えられている火山ガス微量成分や温泉水溶存成分のモニタリングに関しては、研究者が現地に赴き火山性流体試料を採取し、実験室に持ちかえり分析する従来からの手法で行われている。研究グループのマンパワーを考えると、その採取頻度は、1週間から数か月に1回程度が一般的である。そのため、火山活動変化に伴う変動自体は捉えられているものの、その解釈は定性的な議論にとどまり、火山性流体の変化がいつ、どのような過程で起こったのかについては明確になっていない場合が多い。また、連続観測が確立している地震活動や地殻変動のデータと、上述の火山性流体の情報を組み合わせて定量的に比較検討して議論をするのは難しい。火山性流体の情報は、火山活動を理解する上で非常に高いポテンシャルを有していることは明らかであるが、その有効性を十分に示せていないのが現状であった。

### 2. 研究の目的

火山性流体の高頻度の情報が得られるようになれば、火山現象理解の進展に貢献できると期待されるが、これまで以上に高頻度にサンプリングを行うことが必要となる。一方で経費をかけて人海戦術で行うことは現状では非現実的である。そこで、本研究の目的は、火山性流体の特に微量成分や溶存成分、同位体比の情報頻度を上げて、これまで難しかった火山性流体時系列情報の定量的な評価を行える礎を築くことである。そのために、1日1試料以上の高頻度でのサンプリングを可能にする火山性流体の高頻度自動採取装置の開発を行うことである。

本研究課題では、上述のような装置の開発だけでなく、さらに開発した装置の展開と運用を推し進めていくことで、その有効性を実証することを考えている。こうした取り組みを通して、火山現象の理解の進展に貢献したい。

### 3. 研究の方法

本研究課題では、火山性流体の高頻度自動採取装置の開発を中心に進める。開発する装置としては、100試料以上を任意の時間間隔で採取でき、低消費電力、ポータブルで廉価な装置を目指している。仮に100試料を順次採取できれば、従来に比べ飛躍的に高頻度な1試料/日のサンプリングであっても、3か月に一度の試料回収で観測運用できる。さらに高頻度の数時間に1回のサンプリングでも、1~2週間の回収間隔で観測運用可能である。

本研究課題では、小型のCNC(computer numerical control)機器を応用して、多数並べた試料容器に順次サンプルを自動注入することで採取を行う自動採取装置の開発する。火山性流体は、温泉水、土壌ガス、温泉遊離ガス、噴気地帯・蒸気井噴気ガスなど様々な形態で湧出・噴出しているので、それぞれの形態に応じた採取方法と導入方法を開発する必要がある。

開発した自動採取装置は、テスト運用を行い、様々な形態の試料に対する自動採取のノウハウを蓄積し、さらに高度化する。そして、フィールドでの運用を通して開発した装置の有効性を実証していくことで研究を進めていく。

### 4. 研究成果

#### 4.1. 開発した装置

火山性流体試料には、温泉水などの水試料や土壌ガス、噴気ガス、蒸気井噴気ガスなどの気体試料があるが、本研究課題では水試料と気体試料にそれぞれ対応した自動採取装置の開発や改良を行った。

初年度には、温泉水などの水試料をターゲットにした採取装置のプロトタイプの改良を行った。自動採取装置は、市販の小型CNC機器であるXYプロッターまたはレーザー彫刻機をベースにし、プロッターのペン(彫刻機のレーザー)をポンプに取り付けた滴下パイプに置き換えた。ペンの位置を縦横方向に動かす要領で滴下パイプの位置を制御し、ポンプを同期させて駆動することで、多数並べた試料容器に順次サンプルを自動注入する装置を製作し、改良を重ねた。水試料採取後から回収までの間に、容器内の水試料の蒸発による濃度変化を防ぐため、それぞれのサンプリング用の容器には、液体試料より比重の小さい流動パラフィンを入れておいた。装置全体は、タイマーで指定した時刻に駆動して、高頻度サンプリングを可能にした。

初期の装置では、一度に採取できる本数を多くすることを目標に、蓋を外した内容積が9 mLのねじ口試験管を100本以上並べ、自動採取を実施した。一方、最終年度のバージョンの装置では、一度に採取できる数を重視するよりは、より多量の水試料をサンプリングするため、100 mLのプラスチック容器を試料回収サイクルに合わせて28本~56本並べて自動採取を行った。試料採

取の頻度、試料回収の間隔、分析に必要な試料容量に合わせて、装置の構成やサイズを変えることは容易である。

気体試料の自動採取装置は、水試料の様に蓋のない容器に滴下するだけではだめで、蓋のついた容器へ気体試料を注入しつつ、もともと入っていた容器内の気体を排出し、容器内を目的の気体試料で満たす必要がある。採取容器には、ブチルゴムのセプタムのついたバイアル容器(約 12 mL)を使用した。気体の注入・排出は、注射針を二本溶接したものをリニア・アクチュエータに取付けて差込み、一方の針からポンプでガス試料を注入し、もう一方の針から排気を行う方式を採用した。装置本体は、レーザー彫刻機をベースにした CNC 機器を採用した。

自動採取装置のベースとなる小型 CNC 機器は G-code という命令コードで制御した。また、試料吸い上げのためのポンプやリニア・アクチュエータの制御はリレーを組み合わせて行った。命令コードの発信やポンプ・リレーの制御にはワンボードマイコン (Raspberry Pi Zero WH) を使用し、python 言語でスクリプトを書き、コントロールした。また、最終年度には、タイマーのスケジュール管理や自動採取装置本体の制御パラメータを、ユーザーレベルで簡単に設定できるようにするための web アプリを開発した。これにより、スマホを使用して GUI 環境で設定が可能となり、後述のスペインのグループによる装置運用の維持管理にも役立っている。また、装置は容量が 7Ah の 12V バッテリーで 100 本以上の試料採取が余裕をもって行えるので、商用電源やソーラーパネルなどの電源を使用せずに運用が可能である。

#### 4.2. 自動採取装置の試運転と運用、実証

##### 4.2.1. 水試料自動採取装置による温泉水自動採取：十勝岳のベンガラ温泉での運用

水試料自動採取の運用及び実証は、北海道の十勝岳の山麓にあるベンガラ温泉の温泉施設に装置を設置して実施した。基本的には 12 時間ごとの高頻度で温泉水を榊からポンプで吸い上げサンプリングを行った。本体のトラブルや冬期の凍結、温泉水位の低下による吸い上げ失敗など様々なトラブルがあったが、約 2 年 6 か月の期間の運用を行い、延べ 1177 の温泉水試料を採取し、分析を行った。分析はイオンクロマトグラフィー装置を用い  $\text{Li}^+$ 、 $\text{Na}^+$ 、 $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{K}^+$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{Ca}^{2+}$  のカチオン濃度と  $\text{F}^-$ 、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{Br}^-$  のアニオン濃度の分析を行った。この地区温泉では雪解け時にアニオンやカチオン濃度が急激に減少し、その後上昇する (e.g., Takahashi et al., 2015) ことが知られていたが、今回の高頻度自動採取によりその減少・上昇過程を詳細に捉えることができた。これらの濃度減少・上昇は雪解け水の希釈によるものと考えられていたが、 $\text{Cl}^-/\text{SO}_4^{2-}$  比の変化 (単純な希釈だけでは比の値は変化しない) も伴っていることが明らかとなった。火山活動の関連では、火山性地震に伴った変化などにも着目したが、運用期間中は概して火山性地震活動が低く、明瞭な変化は認められなかった。また、山頂火口の噴煙活動の活発化を示す火映の後にアニオン濃度の上昇が認められる事例も見られたが、融雪期の後の濃度減少・上昇期と重なっていたため、明確な因果関係は示すことができていない。ただし、これまで長年続けられてきた 1 か月間隔の長期間のサンプリングのデータに見られる変動を理解していくうえで、今回自動採取による高頻度データは役立つことが期待される。

##### 4.2.2. 気体試料自動採取装置による土壌ガスの自動採取：箱根上湯場地区での試運転

2022 年 3 月には、箱根火山の上湯場地区において開発した気体試料自動採取装置による土壌ガスの自動採取の試運転を実施した。日中の時間帯に 2 日に分けて採取間隔 6 分の高頻度で、常温レベルと水蒸気を多く含む土壌ガスのサンプリングを行い、連続して 50~80 本程度の土壌ガス試料の採取ができることを確認した。バイアル瓶に採取した試料は同位体比赤外分光計 (Delta Ray: Thermo Scientific 社) で二酸化炭素濃度と二酸化炭素の炭素同位体比を分析した。得られ  $^{13}\text{C}\text{-CO}_2$  は  $-2.8 \pm 0.4 \text{ ‰}$  vs VPDB で、近傍の大涌谷の噴気で観測された値 ( $-1.6 \sim -1.0 \text{ ‰}$  vs VPDB: Ohba et al., 2011) より若干軽いがマグマ性の値を示した。開発した装置により高頻度自動採取した気体試料で、二酸化炭素の炭素同位体比のモニタリングも可能であることを示せた。

##### 4.2.3. 気体試料自動採取装置による蒸気井噴気ガスの自動採取：伊豆大島での試運転と運用

噴気地帯や蒸気井の噴気ガスの場合、主要成分である(高温の)水蒸気を凝縮させ、残ったガス相をセプタムのついたバイアル容器に導入し採取を行う。その際に水蒸気の凝縮とガス相の分離を行う凝縮・分離部を開発した。水をためた大型容器の中に配置した底を上にして沈めたガラス容器の中に噴気ガスをポンプで導入し、周りの水で水蒸気を凝縮させながら、ガラス容器内にたまった気相を別のポンプでバイアル容器に導入する方法を用いた。ガス相の採取にあたっては、大型容器内の水とガラス容器内の気相の接触を少なくなるよう工夫した。この凝縮・分離部と気体試料自動採取装置を組み合わせ、2022 年 6 月から 7 月にかけて伊豆大島の蒸気井の噴気ガスの自動採取の長期試験運用を行った。装置には、120 本のバイアル容器を配置し、4 時間の採取間隔で 1 日 6 本ずつの採取を行い、約 20 日間連続稼働させた。結果的には、蒸気井のガスの自動採取を長期安定して運用できることを実証することができた。伊豆大島の蒸気井サンプルは二酸化炭素濃度と二酸化炭素の炭素同位体比の分析をおこなった。過去にこの蒸気井で測定されていたのと同様の二酸化炭素濃度と気圧の間に逆相関の関係 (Shimoike and Notsu, 2000) を確認できた。また、炭素同位体比に関しては、Shimoike and Notsu(2000) の報告値レンジの

低い値の範囲で一致した。炭素同位体比に関しては、気圧との逆相関するような変動が一部見られる新たな知見が得られたが、明瞭ではなく、さらにデータを蓄積して検討する必要がある。伊豆大島の蒸気井に関しては、試験運用で見られた装置の問題点を改良し、新たに150本バイアル容器を配置できる自動採取装置を組み上げ、東京大学先端研のグループと共同で2023年3月に装置を再設置し、現在も連続採取を継続している。

#### 4.3. スペイン・カナリア諸島での実証運用

スペインのカナリア諸島の INVOLCAN (Volcanological Institute of the Canary Islands) の研究グループとの共同研究を行い、2022年10月と2023年2月に渡西し、テネリフェ島テイデ火山の山体に掘削した取水施設(2か所)の地下水と、2021年9月から12月にかけて大規模噴火活動があったラパルマ島の高濃度二酸化炭素湧出地帯の屋内大気を、それぞれ開発した装置で自動採取を長期運用し、開発した装置の有効性の実証を目指した。現在も、先方研究機関が自動採取装置のメンテナンスと試料回収と分析を担当し共同研究を継続している。

##### 4.3.1. テネリフェ島取水施設での地下水自動採取の実証運用

テネリフェ島では、テイデ火山の山体に掘削したトンネルから流出する地下水の取水施設2か所 (San Fernando, Fuente del Valle) に装置を設置して連続採取を行った。先方の INVOLCAN の研究グループでは、週1回のペースでこれらの2地点で採水を行って分析しており、地下水には火山性流体が混入していて、テイデ火山の地震活動に関連した溶存成分の変化が見つかっているほか、降雨後の変化も報告されている (Amonte et al., 2021)。今回の共同研究では、高頻度に試料採取を行うことで、溶存成分の時系列変化をより詳細に捉えることが目的である。2022年10月には、テイデ火山の西山麓の San Fernando 取水点と2023年2月には南山麓の Fuente del Valle 取水点に自動採取装置を設置した。採取した試料容器の回収や交換、そして装置のメンテナンス、水試料の分析などすべて先方の INVOLCAN の研究グループが担当し運用している。これまで、装置自体のトラブルや採水施設のポンプのトラブルなどで、自動採取が上手くできない期間もあるが運用を継続している (Fuente del Valle 取水点の装置は2023年5月の時点では、コントローラーの不具合で運用が中断しており、復旧に向けて対応中である)。

自動採取した水試料に対しては、イオンクロマトグラフィーで  $\text{Li}^+$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$  のカチオン濃度と  $\text{F}^-$ ,  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{Br}^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$  のアニオン濃度の分析をしている他、滴定で  $\text{HCO}_3^-$  濃度や pH 測定および電気伝導率 EC 測定を行っている。アニオンとカチオン濃度及び EC については、これまで同様の1週間ごとの人手により採取したサンプルの分析結果と自動採取による前後の時間帯の試料の分析結果を比較すると、一部のデータを除いてよく一致している。これは、自動採取してから分析時間までのずれや、自動採取装置で蒸発防止のために使用している流動パラフィンの影響がないことを示している。 $\text{HCO}_3^-$  濃度と pH に関しては、人手による採取と自動採取の結果は乖離している。これには流動パラフィンと水との間での二酸化炭素の溶存平衡が関与していると考えられるが、現在検討中である。また、自動採取装置で得られた結果には、人手による採取ではとらえられていない短期間の変動がいくつか見つかっており、今後運用を継続しつつデータを蓄積して、上述の短期間の変動について検討していく予定である。

##### 4.3.2. ラパルマ島高濃度二酸化炭素湧出地区での大気試料自動採取の実証運用

カナリア諸島の西端の島であるラパルマ島では2021年9月から12月にかけて溶岩流出を伴う大規模な噴火活動があり、溶岩流に多くの畑や人家が飲み込まれ甚大な火山災害を引き起こした。噴火終了の1か月ほど前からラパルマ島西岸にある Puerto Naos と La Bombilla の集落では、高濃度の二酸化炭素が地面から湧出するようになり、屋内外で大気中二酸化炭素濃度が数千 ppm から数十%にまで上昇するような事象が発生している (Hernandez et al., 2022)。これらの2集落は、地元政府に閉鎖され、住民は避難生活を強いられるという火山災害も発生している。2022年10月の渡西の際、先方の研究者と話し合い、気体試料自動採取装置を使用して Puerto Naos 集落の高濃度二酸化炭素湧出地域の車庫内の大気を自動採取することになった。

10月に設置した装置は、一日当たり4試料の高頻度で自動採取を行っていたが、数週間で、採取用の注射針に不具合が発生し、自動採取できない状態になってしまった。再度2023年2月の渡西の際に修理と再設置を行い、現在も一日当たり2試料の頻度で自動採取を継続している。バイアル容器の回収と交換は、数週間に一度ラパルマ島現地の研究スタッフが行っている他、採取した試料の分析はテネリフェ島の INVOLCAN の実験室で行っている。採取した車庫内の大気試料は、マイクロ GC と四重極質量分析計を使用して  $\text{He}$ ,  $\text{Ar}$ ,  $\text{Ne}$ ,  $\text{H}_2$ ,  $\text{N}_2$ ,  $\text{O}_2$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{CO}_2$  の濃度を分析している他、同位体比質量分析計 (IRMS) で二酸化炭素の炭素同位体比を分析している。これまでの分析結果では、車庫内の大気中の二酸化炭素濃度は1%より下がることはほとんどなく、ほぼ1-5%の高濃度で推移していることが分かった。また、二酸化炭素の炭素同位体比は  $-9.1 \sim -5.8 \text{ ‰ vs VPDB}$  で、ラパルマ島の火山ガスや炭酸泉の二酸化炭素の値 ( $-5.6 \sim -2 \text{ ‰ vs VPDB}$ : 未公表データ) に近い値を示すが、わずかに生物起源及び大気起源の二酸化炭素が混合していることが明確になった。二酸化炭素の他にもヘリウムが大気レベル (5.2 ppm) より高い濃度 ( $5.5 \sim 12.3 \text{ ppm}$ ) を示し、二酸化炭素同様に火山性のヘリウムも湧出していると考えられる。しかし、二酸化炭素濃度とヘリウム濃度の間には、直線的な正の相関関係はみられていないため、大気と火山性ガスの2つの端成分の単純な混合では説明できない。データを精査した結果、

He/CO<sub>2</sub> 濃度比が  $3 \sim 4 \times 10^{-5}$  の値を持つ端成分と、それよりも 10 倍以上大きな He/CO<sub>2</sub> 濃度比を持つ別の端成分および大気の混合を考えれば、ヘリウム濃度と二酸化炭素濃度の変化を説明できる可能性があることがわかってきたが、二つ目の非常に高い He/CO<sub>2</sub> 濃度比を持つ端成分の起源が明確でないなど、さらなる検討が必要である。

#### 4.4. まとめ

本研究課題では、火山性流体の高頻度自動採取装置を、XY プロッターなどの小型 CNC 機器を用いて開発し、水試料とガス試料の両方に対応する装置を作製した。水試料に関しては温泉施設や地下水取水施設、ガス試料としては、土壌ガス、蒸気井噴気ガスのほか、高濃度火山性二酸化炭素放出地域の大气などで高頻度自動採取の運用を行い、その有効性を実証できたと考えている。また、伊豆大島やスペインでは、開発した装置による高頻度自動採取装置を継続して運用している。また、2023 年度夏以降に、本研究課題で開発した装置を用いて、火山性流体が流れ込んでいる河川水のモニタリングに向けて、他の研究機関と共同研究を進めていく計画も進んでいる。今後、本研究課題で開発した装置による高頻度自動採取が広がっていくことで、火山性流体試料の高頻度採取の有効性を活かした研究成果が出てくるものと期待される。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 大野鷹士, 森 俊哉, 高橋 良
2. 発表標題 十勝岳のベンガラ温泉における火山性温泉水の高頻度サンプリング
3. 学会等名 日本地球惑星科学連合大会2020年 (JpGU-AGU Joint Meeting 2020)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 森 俊哉
2. 発表標題 火山性流体気体試料の自動採取装置の開発
3. 学会等名 日本火山学会2022年度秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Toshiya Mori, Cecilia Amonte, Pedro Hernandez, Nemesio Perez
2. 発表標題 Auto-sampling of volcanic fluids: testcases at Canary Islands, Spain
3. 学会等名 日本地球惑星科学連合大会2023 年 (JpGU-AGU Joint Meeting 2023)
4. 発表年 2023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
---------------------------	-----------------------	----

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		
スペイン	カナリア諸島火山研究所 ( INVOLCAN)	再生エネルギー技術研究所 ( ITER)	