

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 5 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2016

課題番号：26610179

研究課題名(和文)火山活動モニタリングのためのヘリウム同位体比測定装置の開発

研究課題名(英文) Development of a helium isotope ratio analysis system for volcanic activity monitoring

研究代表者

角野 浩史 (SUMINO, Hirochika)

東京大学・大学院総合文化研究科・准教授

研究者番号：90332593

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、火山噴火予知に寄与することを視野に入れた、火山ガスや温泉水、地下水のヘリウム同位体比測定システムの開発を目的として、火山周辺の温泉や鉱泉などで採取した水試料から簡便にヘリウムを抽出・生成するための装置の開発と、既存の質量分析計の改良を行った。また伊豆大島、富士山、草津白根山について、将来の定期観測点の選定ならびに火山平穏時の基礎データの蓄積を目的として、噴気地帯で放出される火山ガスや、周辺の温泉・鉱泉のヘリウム同位体比分布を調べた。

研究成果の概要(英文)：In order to contribute early warning of volcanic eruptions, helium isotope ratio analysis system, which involves a simple gas extraction and helium purification system for hot- and cold-spring waters and a noble gas mass spectrometer, was developed. Helium isotope ratio distributions of volcanic gases and hot/cold spring waters around Izu-Oshima, Fuji, and Kusatsu-Shirane volcanoes were investigated to accumulate data on magmatic helium emission in a quiescent period and to clarify sampling sites for continuous monitoring in the future.

研究分野：同位体地球化学

キーワード：ヘリウム 同位体 火山活動 温泉ガス 連続測定 伊豆大島 富士山 草津白根山

1. 研究開始当初の背景

希ガス元素は化学的に不活性であるために、化学反応に伴って同位体比が変動せず、他の元素の放射壊変で生じる同位体を含むことから、地球惑星科学における物質の起源や履歴を明らかにする上で極めて有用なトレーサーである。とくにヘリウムは、(i) 大気中に 5ppm 程度しか含まれないのに対し、マントルや地殻起源の流体中には相対的に多く含まれる、(ii) 拡散による移動度が高い、(iii) 二つの安定同位体のうち、始源的な同位体である ^3He が大気・海水や地殻に比べマントルに多く含まれる、といった特徴をもつことから、その同位体比 ($^3\text{He}/^4\text{He}$ 比) は火山ガスや温泉水、地下水などへのマントル起源の流体の寄与に敏感に反応して上昇する。例えば Ohno and Sumino *et al.* [] は、伊豆半島の温泉の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比の分布が、1970 年代以降の群発地震活動や 1989 年の伊東市沖・手石海丘の噴火を引き起こしたマグマの貫入位置と、よく一致していることを示した。 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比の時間変化を火山活動の盛衰の指標として用いる試みはいくつか報告されており、例えば伊豆大島火山では山腹の蒸気井の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比が、1986 年の噴火活動の開始直後に上昇し、その活動の終焉とともに減少に転じた[]。また逆に、地震後の地下水の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比の減少も数例報告されており、帯水層の岩盤の破壊により、岩石中に蓄積していたウラン・トリウムからの放射壊変起源 ^4He が、地下水中に放出されたためと解釈されている[]。

これらの例はいずれも、噴火ないし地震の後の変動を検出したものであったが、申請者らは最近、カナリア諸島 El Hierro 島で 2011 年 10 月に始まった噴火活動の活発化に先がけて、地下水の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比と、山体からのヘリウム放出量が上昇したことを見出した[]。これは $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比が、地震などの物理的観測よりも先に噴火活動の活発化の警鐘を鳴らす可能性を示唆している。しかしこのような有用性にもかかわらず、 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比が火山の活動度のモニタリングに日常的に用いられていない理由としては、ヘリウムのうち 10 万分の 1 以下しか含まれない極微量の ^3He を検出するために高度な質量分析技術が要求されることと、質量分析計にヘリウムを導入する前に、温泉水や地下水などの試料からガスを抽出し、さらにヘリウム以外のガス成分を除くための前処理の複雑さが挙げられる。

2. 研究の目的

上記を踏まえ本研究では、従来の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比分析の様々な問題点を以下に述べるような方法で克服し、将来の全自動化による連続測定を想定した $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比測定装置を開発することを主な目的とした。

またその性能評価と、将来の観測点の選定ならびに火山平穏時の基礎データの蓄積を目的として、伊豆大島、富士山、草津白根山

近傍の温泉・鉱泉の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比分布を調べることも目的とした。

3. 研究の方法

試料から簡便にガスを抽出し、さらにヘリウムのみを極力選択的に質量分析計に導入するための前処理装置を開発した。本装置では試料水を気体交換モジュール(Membrana 製 Liqui-Cell X40 分離膜コンタクター)を通す形で循環させ、ダイアフラムポンプを用いて石英フィルター側に送り込む。この際石英フィルターはヒーターにより 700 程度の高温に保ち、ヘリウムの透過を促進させる。石英フィルターの内側に透過したガスにわずかに含まれる活性ガス(水蒸気、二酸化炭素、酸素、窒素など)はGetterポンプでさらに除く。さらに磁場型質量分析計に導入する前に、四重極質量分析計(MKS 製 Microvision2)で残留成分をモニターするとともに、 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比と同様に試料ガス中への大気成分とマグマ成分の寄与率を評価する上で重要な、 $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 比を測定している。

また安定かつ高精度で $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比分析を可能にすることを目的として、申請者らが独自に開発した、軌道半径 10 cm、偏向角 90° の小型の単収束磁場型質量分析計[]に改良を施した。この装置ではわずかな偏向磁場の揺らぎが ^3He のピーク位置に大きく影響し、長時間の測定における安定度を大きく損ねることが問題となっていたため、高直線性ホール素子の出力を高分解能で読み出し、フィードバック出力を与えるための最新のガウスメータ(LakeShore 製 DSP ガウスメータ 475 型)を導入し、磁場制御の安定化をはかった。さらに磁場発生用の電磁石の磁性ヒステリシスに起因するピーク位置の不安定性を解消するために、ピーク位置の細かい制御を磁場ではなくイオン加速電圧により行うこととし、そのために PC から GP-1B 制御が可能な直流高圧電源(松定プレジジョン製 HER-20N15-LG)を導入した。

伊豆大島においては、1986 年の噴火時に $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比が上昇し、その後噴火活動の終焉とともに減少したことが報告されている蒸気井ガス[]と、島内各所の温泉ガスの採取と分析を行った。草津白根山では殺生河原噴気地帯と、湯畑などの温泉で試料を採取・分析した。富士山については周辺 50km を網羅する温泉の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比マップを作成し、地球物理探査により得られた地下比抵抗構造との比較から、マグマ起源流体の分布状況を調べた。

4. 研究成果

開発したヘリウム前処理装置と質量分析計はおおむね期待していた性能が得られることは確認できているが、研究代表者の異動による研究室の移転などにより実用化に時間を要したため、以下に述べる各火山周辺の温泉等の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比分析は別の希ガス質量分

析システム[]を用いて実施した。

伊豆大島における蒸気井ガスと温泉ガス・温泉水の採取と $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比分析の結果、(1) 前回 1986 年からの噴火活動に伴うマグマ起源ヘリウムの寄与の増加のために上昇し、噴火活動の終息とともに減少に転じた蒸気井の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比[]は、現在は噴火前のレベルに落ち着いていること、(2) 島内各所の温泉ガスは依然として高い $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比を示し、 $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 比を指標に大気の混入を補正した $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比は、噴火当時の値と変わっていない、すなわちマグマ起源ヘリウムの $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比は噴火後 30 年を経ても変化していないことが明らかになった。伊豆大島ではこれまで約 30 年周期で噴火が起こっていることから、近い将来次の噴火活動が始まると懸念されており、今後も定期的に観測を継続していく必要がある。

草津白根山では、平成 26 年 6 月に火山活動が活発化し噴火警戒レベルが 2 (湯釜火口から 1km 以内立入規制) に引き上げられた後も、殺生河原噴気などの $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比は過去の報告値[]とほぼ変わらず、マグマ起源ヘリウムの寄与が増えるなどの変化はないことが明らかとなった。このことは警戒レベルの引き上げ以降も、それ以上の活発化が起こっていないことと調和的である。また火口からより遠距離にある温泉(湯畑温泉、白旗温泉、尻焼温泉)では、熱とともにマグマ起源ヘリウムが地下水に加わってから、地表への湧出に至るまでに混入した地殻起源ヘリウムの付加により、火口付近の噴気や温泉ガスに比べ $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比が低くなっていることが確かめられた。

また富士山周辺の温泉のヘリウム・炭素同位体比マップと比抵抗構造から、2011 年 3 月 11 日の東北地方太平洋沖地震による振動で富士山地下の破碎帯中のマグマ起源ガスが移動し、それにより高まった間隙圧による岩石破壊が引き金となり、同 3 月 15 日の富士山麓地震 (Mw5.9) が起こったという新たな地震誘発モデルを提案した[]。

<引用文献>

- Ohno, M., Sumino, H., Hernandez, P.A., Sato, T. and Nagao, K. (2011) Helium isotopes in the Izu Peninsula, Japan: Relation of magma and crustal activity. *J. Volcanol. Geotherm. Res.* 199, 118-126.
- Sano, Y., Notsu, K., Ishibashi, J., Igarashi, G. and Wakita, H. (1991) Secular variations in helium isotope ratios in an active volcano: Eruption and plug hypothesis. *Earth Planet. Sci. Lett.* 107, 95-100.
- Sano, Y., Takahata, N., Igarashi, G., Koizumi, N. and Sturchio, N. (1998) Helium degassing related to the Kobe earthquake. *Chem. Geol.* 150, 171-179.

Padrón, E., Pérez, N.M., Hernández, P.A., Sumino, H., Melián, G.V., Barrancos, J., Nolasco, D., Padilla, G., Dionis, S., Rodríguez, F., Hernández, I., Calvo, D., Peraza, M.D. and Nagao, K. (2013) Diffusive helium emissions as a precursory sign of volcanic unrest. *Geology* 41, 539-542.

Bajo, K.-i., Sumino, H., Toyoda, M., Okazaki, R., Osawa, T., Ishihara, M., Katakuse, I., Notsu, K., Igarashi, G. and Nagao, K. (2012) Construction of a newly designed small-size mass spectrometer for helium isotope analysis: Toward the continuous monitoring of $^3\text{He}/^4\text{He}$ ratios in natural fluids. *Mass Spectrometry* 1, A0009.

Sumino, H., Nagao, K. and Notsu, K. (2001) Highly sensitive and precise measurement of helium isotopes using a mass spectrometer with double collector system. *J. Mass Spectrom. Soc. Jpn.* 49, 61-68.

Sano, Y., Hirabayashi, J., Ohba, T. and Gamo, T. (1994) Carbon and helium isotopic ratios at Kusatsu-Shirane volcano, Japan. *Applied Geochemistry* 9, 371-377.

Aizawa, K., Sumino, H., Uyeshima, M., Yamaya, Y., Hase, H., Takahashi, H.A., Takahashi, M., Kazahaya, K., Ohno, M., Rung-Arunwan, T. and Ogawa, Y. (2016) Gas pathways and remotely triggered earthquakes beneath Mount Fuji, Japan. *Geology* 44, 127-130.

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計12件)

Hernandez P.A., Melian G.V., Somoza L., Perez N.M., Sumino H., Carmencita Arpa M., Varekamp J.C., Bariso E., Padron E., Albert-Beltran J. and Solidum R. (2017) The acid crater lake of Taal Volcano, Philippines: hydrogeochemical and hydroacoustic data related to the 2010-2011 volcanic unrest. *Geochemistry and Geophysics of Active Volcanic Lakes* (Geological Society, London, Special Publications, 437), 査読有, doi: 10.1144/SP437.17.

Melían G.V., Somoza L., Padrón E., Pérez N.M., Hernández P.A., Sumino H., Forjaz V. and Franca Z. (2016) Surface CO_2 emission and rising bubble plumes from degassing of crater lakes in Sao Miguel Island, Azores. *Geochemistry and*

Geophysics of Active Volcanic Lakes (Geological Society, London, Special Publications, 437), 査読有, doi: 10.1144/SP437.14.

Morikawa N., Kazahaya K., Takahashi M., Inamura A., Takahashi H.A., Yasuhara M., Ohwada M., Sato T., Nakama A., Handa H., Sumino H. and Nagao K. (2016) Widespread distribution of ascending fluids transporting mantle helium in the fore-arc region and their upwelling processes: Noble gas and major element composition of deep groundwater in the Kii Peninsula, southwest Japan. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 182, 173-196, 査読有, doi: 10.1016/j.gca.2016.03.017.

Park J., Jeong C.H., Nagao K., Yang J.H., Sumino H., Kim K.H., Kim M.S., Lee J.I., Park C.H., Koh Y.K. and Hur S.D. (2016) Hydrochemistry and noble gas geochemistry of geothermal waters in Chungcheong Province, South Korea. *Geochemical Journal*, 50, 89-103, 査読有, doi: 10.2343/geochemj.2.0388.

Aizawa K., Sumino H., Uyeshima M., Yamaya Y., Hase H., Takahashi M., Kazahaya K., Ohno M., Rung-Arunwan T. and Ogawa Y. (2016) Gas pathways and remotely triggered earthquakes beneath Mt. Fuji, Japan. *Geology*, 44, 127-130, 査読有, doi: 10.1130/G37313.1.

Marrero-Diaz R., López D., Pérez N.M., Custodio E., Sumino H., Melián G.V., Padrón E., Hernández P.A., Calvo D., Barrancos J., Padilla G. and Sortino F. (2015) Carbon dioxide and helium dissolved gases in groundwater at central Tenerife Island, Canary Islands: chemical and isotopic characterization. *Bulletin of Volcanology*, 77: 86, 査読有, doi: 10.1007/s00445-015-0969-0.

Padrón E., Hernández P.A., Carmona E., Pérez N.M., Melián G., Sumino H., Almendros J., Kusakabe M., Wakita H. and Padilla G.D. (2015) Geochemical evidences of different sources of long-period seismic events at Deception volcano, South Shetland Islands, Antarctica. *Antarctic Science*, 27, 557-565, 査読有, doi: 10.1017/S0954102015000346.

Dionis S. D., Pérez N. M., Hernández P. A.,

Melián G., Rodríguez F., Padrón E., Sumino H., Barrancos J., Padilla G.D., Fernandes P., Bandomo Z., Silva S., Pereira J.M., Semedo H. and Cabral J. (2015) Diffuse CO₂ degassing and volcanic activity at Cape Verde islands, West Africa. *Earth, Planets and Space*, 67: 48, 査読有, doi: 10.1186/s40623-015-0219-x.

Padrón E., Pérez N.M., Rodríguez F., Melián G., Hernández P.A., Sumino H., Padilla G.D., Barrancos J., Dionis S., Notsu K. and Calvo D. (2015) Dynamics of diffuse carbon dioxide emissions from Cumbre Vieja volcano, La Palma, Canary Islands. *Bulletin of Volcanology*, 77: 28, 査読有, doi: 10.1007/s00445-015-0914-2.

Dionis S.D., Melián G., Rodríguez F., Hernández P.A., Padrón E., Pérez N.M., Barrancos J., Padilla G., Sumino H., Fernandes P., Bandomo Z., Silva S.V., Pereira J.M. and Semedo H. (2015) Diffuse volcanic gas emission and thermal energy release from the summit crater of Pico do Fogo, Cape Verde. *Bulletin of Volcanology*, 77: 10, 査読有, doi: 10.1007/s00445-014-0897-4.

Pérez N.M., Somoza L., Hernández P.A., de Vallejo L.G., León R., Sagiya T., Biais A., González F.J., Medialdea T., Barrancos J., Ibáñez J., Sumino H., Nogami K. and Romero C. (2014) Evidence from acoustic imaging for submarine volcanic activity in 2012 off the west coast of El Hierro (Canary Islands, Spain). *Bulletin of Volcanology*, 76: 882, 査読有, doi: 10.1007/s00445-014-0882-y.

Notsu K., Sohrin R., Wada H., Tsuboi T., Sumino H., Mori T., Tsunogai U., Hernandez P.A., Suzuki Y., Ikuta R., Oorui K., Koyama M., Masuda T. and Fujii N. (2014) Leakage of magmatic-hydrothermal volatiles from a crater bottom formed by a submarine eruption in 1989 at Teishi Knoll, Japan. *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, 270, 90-98. 査読有, doi:10.1016/j.jvolgeores.2013.11.017.

[学会発表](計5件)

山根康平, 角野浩史, 内藤大貴, 加藤翔太, 柴田卓巳, 周楚凡, 屋敷堯紀, 小林真大, 寺田暁彦, 草津白根火山の火山ガスと温泉ガスの希ガス・炭素同位体比,

2016 年度日本地球化学会第 63 回年会,
2016 年 9 月 14 日 ~ 2016 年 9 月 16 日,大阪
市立大学 (大阪府大阪市)

山根康平, 角野浩史, 伊豆大島の温泉ガ
スにおける希ガス・炭素同位体比, 2016
年度日本質量分析学会同位体比部会,
2016 年 11 月 16 日 ~ 2016 年 11 月 18 日, 秋
田温泉さとみ (秋田県秋田市)

相澤広記, 角野浩史, 上嶋誠, 山谷祐介,
長谷英彰, 大野正夫, 高橋正明, 風早康
平, Tawat Rung-Arunwan, 小川康雄, 比抵
抗構造と地下水同位体比測定から推測す
る 2011 年富士山 Mw5.9 地震の発生メカニ
ズム, 日本地球惑星科学連合 2015 年大会,
2015 年 5 月 22 日 ~ 26 日, 幕張メッセ国際
会議場 (千葉県千葉市)

角野浩史, カナリア諸島 El Hierro 島の火
山活動に対応した、地下水のヘリウム同位
体比変動, 2014 年度火山性流体討論会,
2014 年 10 月 3 ~ 5 日, 草津セミナーハウ
ス (群馬県吾妻郡草津町)

相澤広記, 角野浩史, 上嶋誠, 山谷祐介,
長谷英彰, 大野正夫, 高橋正明, 風早康
平, Tawat Rung-Arunwan, 小川康雄, 同位
体比測定と比抵抗構造から推測する 2011
年富士山 Mw5.9 地震の発生メカニズム,
日本火山学会 2014 年度秋季大会, 2014 年
11 月 2 日 ~ 4 日, 福岡大学 (福岡県福岡
市)

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.igcl.c.u-tokyo.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

角野 浩史 (SUMINO, Hirochika)

東京大学・大学院総合文化研究科・准教授

研究者番号: 90332593