

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 30 日現在

機関番号：13901

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2015

課題番号：26610181

研究課題名(和文)無人航空機で拓く新しい火山観測：噴煙の水素同位体比を利用した遠隔噴気温度測定

研究課題名(英文)Remote determinations on fumarole outlet temperatures in an eruptive volcano

研究代表者

角皆 潤(Tsunogai, Urumu)

名古屋大学・環境学研究科・教授

研究者番号：50313367

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)：活火山である桜島において、航空機を用いて噴煙を採取し、そこに含まれる噴気孔由来の水素分子の安定同位体組成を分析することで、同火山の最高噴気温度を推定することに成功した。2014年9月および12月における水素分子の安定同位体組成は、それぞれ $-135 \pm 13\%$ および $-113 \pm 11\%$ となり、ここから求めた最高噴気温度は、それぞれ $1,050 \pm 120^\circ\text{C}$ および $1,199 \pm 139^\circ\text{C}$ となった。これは同火山の最高噴気温度として、リーズナブルである。本研究で開発した最高噴気温度を求める新手法は、航空機を用いた試料採取と組み合わせることで、幅広い火山に対して応用出来る。

研究成果の概要(英文)：We used aircraft to sample the volcanic plume ejected from Sakurajima volcano, where direct measurement of fumarole outlet temperature is impractical, in order to deduce the hydrogen isotopic composition ( $\delta$ ) of fumarolic H<sub>2</sub> from excess H<sub>2</sub> in the volcanic plume and thus remotely determine the outlet temperature. We successfully estimated that the  $\delta$  of the fumarolic H<sub>2</sub> in September and December 2014 was  $-135 \pm 13\%$  and  $-113 \pm 11\%$ , respectively, and that the outlet temperature was  $1,050 \pm 120^\circ\text{C}$  and  $1,199 \pm 139^\circ\text{C}$ , respectively. Although the temperatures were higher than those determined using infrared (IR) remote sensing, we concluded that they are reliable estimates of the highest fumarole outlet temperatures. Combined with sampling using aircraft, remote temperature-sensing based on the  $\delta$  of H<sub>2</sub> in volcanic plumes can be widely applied to active volcanoes to determine the highest fumarole outlet temperatures.

研究分野：地球化学

キーワード：火山 噴気温度 噴煙 水素 同位体組成 火山ガス 航空機 質量分析

1. 研究開始当初の背景

活動的な火山から放出されている火山ガスの噴出時の温度(大気中に噴出・急冷される直前の温度のことで、以下「噴気温度」と呼ぶ)は、火山活動度の現況や今後の推移などを推定する上で、極めて有用である。たとえば、噴気温度の絶対値が火山岩の融点近くに達している場合、マグマが火口直下に到達していると判断出来る。また噴気温度の時間変化から、さらなる噴火の可能性が高まりつつあるか、それとも収束に向かいつつあるか、判断することも出来る。

しかし、噴気孔に観測者が近づいて直接温度測定を実現するのは、困難な火山が多い。そこで本申請者は、噴気孔から火山ガスとして放出される水素分子(H<sub>2</sub>)の水素安定同位体比(D<sup>1</sup>H 比)が噴気温度に応じて変化する性質に着目し、大気中に拡散した噴煙(プルーム)中のH<sub>2</sub>のD<sup>1</sup>H比から温度を求める、新しい遠隔温度測定法(以下 HIReTS 法と呼ぶ)を提案している(Tsunogai et al., 2011)(Fig. 1)。これまで、樽前山や九重硫黄山、薩摩硫黄島などの温度既知の噴気孔で、HIReTS 法を用いることで、その温度が正確に遠隔測定出来ることを証明した。また、火口縁から高濃度の噴煙を容易に採取出来る阿蘇中岳では、HIReTS 法を用いることで、噴気温度を 870 °C 程度と見積もった(Tsunogai et al., 2011)。さらに、薩摩硫黄島程度の活動度の火山(SO<sub>2</sub>フラックス=500 t/day 程度)であれば、噴気孔から 200-300m 程度の距離で採取した噴煙試料から、±20°C 程度の精度で遠隔温度測定が可能であり、さらに、その数倍の活動度の火山であれば、火口から 4-5 km 程度離れた場所で採取しても、同程度の精度で温度測定が可能になることも明らかになった(Tsunogai et al., 2013)。

ただし、ここで求めた「火口からの距離」は、その場所に流下してくる噴煙の最も濃い部分(コア)を採取することを前提にしている。火山の山頂付近に存在する火口から大気中に放出された噴煙は、火口の標高からさらにある程度上昇した後に、風下側に向かって水平に流れていく(Fig. 1)。その結果、噴煙のコアは、山麓では地表面(あるいは海面)の遥か上方に存在していることになる。鹿児島県の桜島

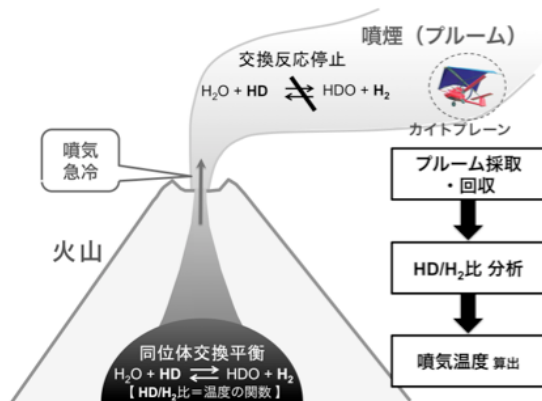


Fig. 1 本研究で提案する遠隔噴気温度測定法。

の場合、火口から水平方向に 2 km 以内の範囲は、観測目的であっても立入ることは許されないが、2 km 圏外の観測可能な場所で噴煙のコアが存在するのは、上空 1 -2 km の自由対流圏内である。

2. 研究の目的

桜島を具体的な研究対象として設定し、航空機を用いて噴煙(プルーム)試料の採取を実現する。また噴気温度の遠隔測定を実現する。

3. 研究の方法

無人航空機搭載用の自動噴煙(プルーム)試料採取装置の初号機(Fig. 1)を開発する。また初号機を実際に試験運用し、その反省点を元に二号機を開発する。これを桜島から放出された噴煙試料採取に応用し、採取したすべての試料について水素分子(H<sub>2</sub>)の濃度と水素安定同位体比(D<sup>1</sup>H 比)の測定を行うことで、HIReTS 法を用いた噴気温度の遠隔測定を実現する。

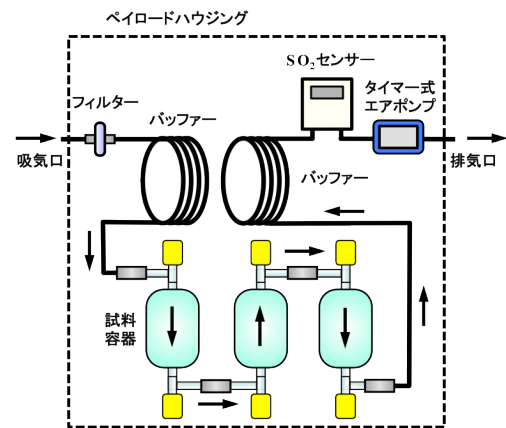


Fig. 2 本申請研究で製作した噴煙試料採取装置(初号機)の流路図。

4. 研究成果

① 自動噴煙試料採取装置(初号機)の開発

開発した初号機の流路図を Fig. 2 に示す。カイトプレーン先端部の観測装置取り付け用スペース(ペイロード)には、総重量 6 kg 以下という制限があり、また寸法も 350mm×280mm×200mm 以内に抑える必要がある。一方、噴煙中の H<sub>2</sub> 濃度は 0.5 ppm(一般大気)から 5 ppm 程度なので、その高精度 D<sup>1</sup>H 比定量には、200 mL 程度の体積の噴煙(大気)試料が必要である。そこで、内容積 200 mL のガラス製試料容器(約 200 g)を 3 個用意して連結し、その上流側にフィルター、下流側に SO<sub>2</sub> センサーおよびエアポンプ(タイマー作動型、最大流量 5000 mL/min の可変型)を、樹脂チューブで直列接続した試料採取装置(初号機)を製作した。フィルターを吸気口に設置するのは、火山灰がチューブ内を塞ぐことを避けるためであり、また SO<sub>2</sub> センサーを取り付けるのは、各フライト中に採取装置内に取り込まれた試

料の SO<sub>2</sub> 濃度とその時間変化を測定するためである。また、SO<sub>2</sub> センサーやエアポンプからの H<sub>2</sub> 汚染を避けるため、これらは試料容器の下流側に配置した。また、カイトプレーンが地表に戻って来た際に、試料が気圧差で収縮して地表の空気が試料容器内に混入することを防止するため、試料容器前後の樹脂チューブを長めに用意し、バッファーとして機能させた。

### ② 試験試料採取の実行

2014年9月に初号機を用いて、桜島で試験試料採取を行った。当初は最終搭載目標であるカイトプレーンを使って試験を行う予定であったが、カイトプレーンに長期国外使用予定が入ってしまい、使用出来なくなった。そこで代わりに新日本航空株式会社所有の有人セスナ機をチャーターして、試験試料採取を実施した。有人機のため、火口近傍 2 km 以内に近寄って試料を採取することは不可能になってしまったが、初号機を用いた自動採取の作動状況が目視で確認出来る上に、これと並行して、手動による噴煙試料採取を行うことが出来るため、桜島周辺における噴煙の分布に関する知見が得られるようになった。

初号機は、噴煙内を飛行している時だけエアポンプが作動するようにタイマーを事前に設定し、地表やセスナ機本体からの H<sub>2</sub> 汚染を避けるようにした。まず、噴煙の位置する高度 (1,500m 付近) まで上昇した後で、噴煙の最も下流側に移動し、エアポンプの作動開始時間になったら、噴煙の中に入り、そのまま火口を目指して、風向き (= 噴煙が流れていく向き) とは逆方向に水平飛行する。ちょうど火口に最接近するタイミングでエアポンプが停止するように、タイマーと飛行計画を調整した。採取が終了したら、試料容器の両端の手動バルブを閉じて試料を密封してから容器を装置から取り外し、新しい試料容器と交換した。

### ③ 採取装置の改良

初号機を用いて採取した試料を分析したところ、ほとんど大気と同等レベルの H<sub>2</sub> 濃度や SO<sub>2</sub> 濃度を示す試料しか採取出来ていないことが解った。これは手動採取試料の結果から、「噴煙の位置する高度」を飛行している間であっても、SO<sub>2</sub> 濃度が 1 ppm を超えるような高濃度噴煙中を飛行する時間は 10 秒から 30 秒程度と極めて短く、大部分は大気と同等レベルであったことが主な原因であった。つまり、噴煙のコアは極めて小さくかつ不均一で、この中にいるのに試料採取しなかったり、逆に噴煙から外れているのに試料を採取してしまった。初号機で採用したようなタイマーを事前に設定した採取では、HIReTS 法による温度推定に供することの出来る高濃度噴煙試料の採取は難しい。また初号機のようにポンプで噴煙を試料容器内に導入する場合、容器内を試料で置換するのに 20-30 秒程度所要する上に、さらにバッファー部を置換するのに 20 秒程度所要した。高濃度域が極めて局所的

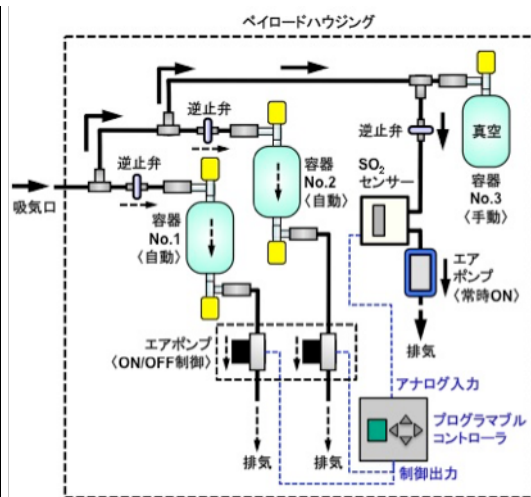


Fig. 3 本申請研究で製作した噴煙試料採取装置 (二号機) の流路図。

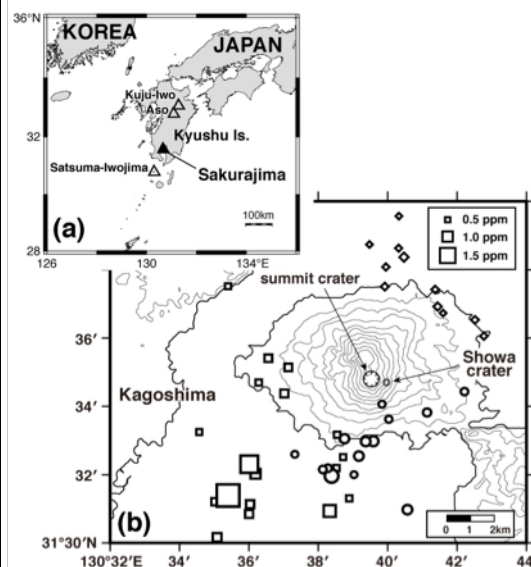


Fig. 4 (a) 桜島の位置、(b) 桜島における試料採取地点 (◇印:2014年9月10日、○印:2014年9月11日、□印:2014年12月9日)。各シンボルの大きさは採取時の SO<sub>2</sub> 濃度を表す。

に分布することから、SO<sub>2</sub> 濃度が上昇したタイミングでエアポンプを駆動させ始めても、一回だけの採取では十分量の試料が容器に導入出来ない可能性が高い。

そこで初号機に対して、以下の改良を加えた二号機を開発した (Fig. 3)。初号機からの改良点は以下の通りである。①フライト中の SO<sub>2</sub> 濃度モニタリングの実現: エアポンプを常時作動させて外気を機内に引き込むと同時に、その流路上に市販の小型 SO<sub>2</sub> センサーを設置し、リアルタイムの SO<sub>2</sub> モニタリングを実現した。データは小型データロガーに収集し、解析に使用した。②SO<sub>2</sub> 濃度と連動した自動試料採取の実現: SO<sub>2</sub> センサーからのアナログ出力をプログラマブルコントローラに入力することで、SO<sub>2</sub> 濃度が一定以上になったタイミングに限定して各自動採取用容器 (Fig. 3 中の No.1 および No.2) に付設したポンプを駆動し、試料採取を容器内に導入するように改良した。またポンプは何度でも駆動するようにし

て、十分量の試料が導入出来るようにした。③逆止弁(チェックバルブ)採用による逆流防止とバッファの廃止、④手動試料採取システムの併設と高速吸引法の採用:初年度の観測の結果、噴煙の濃度は火口からの距離が遠くなるほど減少するとは限らず、むしろ高度が重要であることが明らかになった。高度が合致していれば、火口から 2 km 以上離れた場所であっても SO<sub>2</sub>濃度が 1 ppm を超えるような高濃度噴煙が存在する。つまり必ずしも無人機であるカイトプレーンを使用する必要は無く、有人セスナ機で、SO<sub>2</sub>濃度が高くなったタイミングで瞬間的に噴煙試料採取を行った方が、HIRETS 法による温度推定に都合が良い。そこで予め真空に引いた試料容器(Fig. 3 中の No. 3)のバルブを手動で開くことで、瞬間的な試料吸引を実現するグラブサンプリング法による手動採取システムも、二号機に併設することにした(Fig. 3)。

#### ④ 桜島における噴気温度の実測

2014-15 年度中に計 3 回のフライトを桜島で実施し、自動・手動合わせて計 42 個の噴煙試料と 3 個の大気試料の採取した(Fig. 4)。すべての試料について水素分子(H<sub>2</sub>)の濃度と

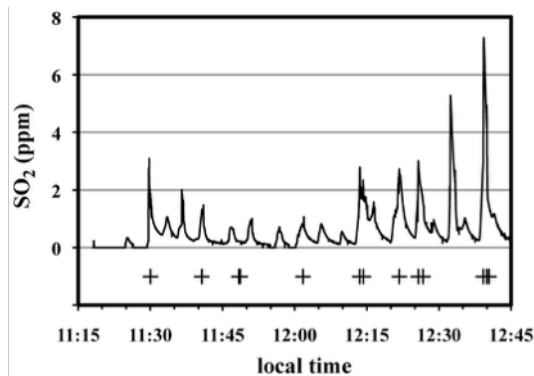


Fig. 5 2014 年 12 月 9 日実施フライト前半部における SO<sub>2</sub>濃度の時間変化。+印は手動による試料採取のタイミングを表す。

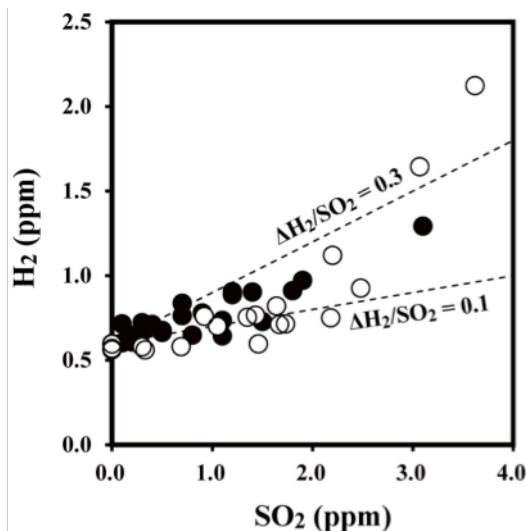


Fig. 6 各試料採取時の SO<sub>2</sub>濃度と採取試料中の H<sub>2</sub>濃度との関係(●印:2014 年 9 月、○印:2014 年 12 月)

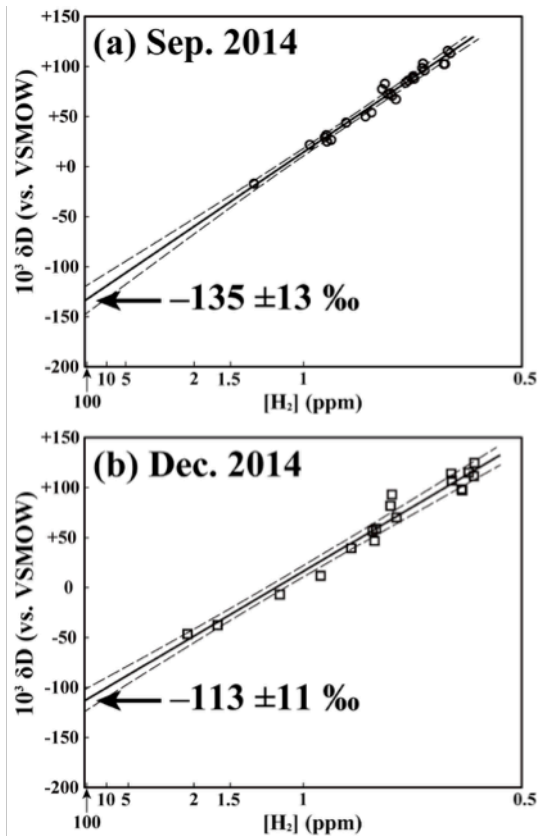


Fig. 7 2014 年 9 月(a)および 12 月(b)に採取された噴煙試料中の H<sub>2</sub>濃度(逆数)と同位体比(δD)の関係。各図中の直線は York 法で求めた最小二乗近似直線を表し、直線の上下の点線は 2σ の誤差範囲を示す。

水素安定同位体比(D<sup>1</sup>H 比)の測定を行ったので、これらの結果をまとめて解析した。分析には、気体試料中の H<sub>2</sub>の高精度 D<sup>1</sup>H 比定量では世界一の感度を誇る、名古屋大学大学院環境学研究科の連続フロー型安定同位体質量分析システムを用いた。Fig. 5 には一例として、2014 年 12 月 9 日実施フライト(前半部)中に常時モニタリングされた SO<sub>2</sub>濃度の時間変化を示す。図中の+印は手動による試料採取のタイミングを表す。また Fig. 6 には、各試料採取時の SO<sub>2</sub>濃度と、採取試料中の H<sub>2</sub>濃度との関係を示した。得られた H<sub>2</sub>/SO<sub>2</sub>比は高温噴気中の火山ガスの H<sub>2</sub>/SO<sub>2</sub>比として、整合性があった。

Fig. 4 に示した各試料採取時の SO<sub>2</sub>濃度の平面分布からも明かなように、火口に近いからと言って噴煙の濃度は必ずしも高い訳では無いことが明らかになった。噴気孔から大気上方に向けて放出された火山ガスは、噴出直後は上昇しながら周辺大気によって急激に希釈されるものの、一定程度希釈されて上昇を停止した後は、希釈率はほぼ一定のまま水平方向に拡散しているものと考えられる。つまり、危険な火口に近づいたからと言って、より高濃度の噴煙試料を採取出来るとは限らない。むしろ、高濃度の噴煙の存在する高度を見つけて、その中で採取する方が有効であると思われる。このため、結局 3 回のフライトはすべて有人機を使用して行った。

火山プルーム中の H<sub>2</sub>の δD 値の結果を見

てみる。すると **Fig. 7** に示すように、全ブルーム試料の  $H_2$  の  $\delta D$  値は、 $H_2$  濃度の逆数 ( $1/[H_2]$ )と明瞭な直線関係を示すことが解った。同様の  $1/[H_2]$ と  $\delta D$  値の直線関係は、阿蘇中岳や樽前山、九重硫黄山、恵山、薩摩硫黄島のブルーム中でも確認されている現象で (Tsunogai et al., 2011; Tsunogai et al., 2013)、 $H_2$  濃度だけでなく、ブルーム試料間の  $\delta D$  値の変化も、すべて二種の端成分間の単純混合で説明することができることを示していると考えられる (e.g. Tsunogai et al., 1998; Tsunogai et al., 2003; Tsunogai et al., 2005)。

そこでこの直線関係を利用して一般大気中の  $H_2$  の寄与を除外した火山ガス中の  $H_2$  (つまり高濃度側の端成分)の  $\delta D$  値を見積もってみる。 $1/[H_2]$ が最も小さいデータのさらに外側の領域へ直線関係を延長した先の  $y$  切片の値が火山ガス中の  $H_2$  の  $\delta D$  値となる (Tsunogai et al., 2011; Tsunogai et al., 2013)。各データの  $2\sigma$  の誤差を考慮して、York 法 (York, 1966) を用いて求めた最小二乗法近似直線を、 $y$  切片まで外挿することで火山ガス中の  $H_2$  の  $\delta D$  値を求めると、2014 年 9 月は  $-135 \pm 13\%$ 、12 月は  $-113 \pm 11\%$  となった (**Fig. 7**)。これは、過去に阿蘇中岳で求めた  $-172 \pm 16\%$  (Tsunogai et al., 2011) や、薩摩硫黄島で求めた  $-185.0 \pm 2.5\%$  (Tsunogai et al., 2013) よりも高く、桜島の HIReTS 温度 (最高噴気温度) がこれらの火山の最高噴気温度よりも高いことを示唆するものである。

最高噴気温度の絶対値を求めるには、噴気孔の中で  $H_2$  と共存していた  $H_2O$  の  $\delta D$  値を求める必要がある。桜島でこれを実測するのは不可能なので、阿蘇と同様にマグマ水の平均値である  $-24.5 \pm 7.3\%$  (Tsunogai et al., 2011) を用いることにした。薩摩硫黄 (Shinohara et al., 2002) や九重硫黄 (Mizutani et al., 1986) と言った近隣の火山の高温噴気中の  $H_2O$  もこの範囲に含まれており、適切な推定と思われる。これを以下の式にあてはめることで、2014 年 9 月の最高噴気温度 ( $AET_D$ ) は  $1,050 \pm 120^\circ C$ 、12 月は  $1,199 \pm 139^\circ C$  と求められた。

$AET_D$

$$= \left\{ 4.474 \times 10^{-12} \times \Delta^2 + 3.482 \times 10^{-9} \times \Delta + 9.007 \times 10^{-8} \right\}^{-\frac{1}{2}} - 273.15$$

ここで  $\Delta$  は、 $10^3 \times \ln(\alpha_{H_2O-H_2})$  を表し、 $\alpha_{H_2O-H_2}$  は  $H_2O$  と  $H_2$  の間の平衡同位体分別係数を表す。つまり  $\alpha_{H_2O-H_2}$  は、噴気中の  $H_2O$  と  $H_2$  の  $(\delta D(H_2O) + 1)/(\delta D(H_2) + 1)$  に相当する。

求められた最高噴気温度は、1977 年に同火山で求められた地下マグマの推定温度 (Yamamoto et al., 1979) に相当するほどの高い温度である。桜島の最高噴気温度は、少なくとも 2014 年 9 月および 12 月に、極めて高い状態にあった可能性が高いことが明らかになった。

成果を国内の学会で報告する他、欧文誌に

投稿した (現在 1 回目の revision 中)。

(参考文献)

- Mizutani, Y., S. Hayashi, and T. Sugiura (1986) Chemical and isotopic compositions of fumarolic gases from Kuju-Iwoyama, Kyushu, Japan, *Geochem. J.*, **20**, 273-285.
- Shinohara, H., K. Kazahaya, G. Saito, N. Matsushima, and Y. Kawanabe (2002) Degassing activity from Iwodake rhyolitic cone, Satsuma-Iwojima volcano, Japan: Formation of a new degassing vent, 1990-1999, *Earth Planets Space*, **54**, 175-185.
- Tsunogai, U., D. D. Komatsu, and F. Nakagawa (2013) Remote temperature sensing on volcanic fumaroles using HIReTS: Applications to Satsuma-Iwojima volcano, Japan, *Bull. Volcanol. Soc. Japan*, **58**(3), 443-459 (in Japanese with English abstract).
- Tsunogai, U., J. Ishibashi, H. Wakita, and T. Gamo (1998) Methane-rich plumes in Suruga Trough (Japan) and their carbon isotopic characterization, *Earth Planet. Sci. Lett.*, **160**, 97-105.
- Tsunogai, U., F. Nakagawa, T. Gamo, and J. Ishibashi (2005) Stable isotopic compositions of methane and carbon monoxide in the Suiyo hydrothermal plume, Izu-Bonin arc: tracers for microbial consumption/production, *Earth Planet. Sci. Lett.*, **237**, 326-340.
- Tsunogai, U., K. Kamimura, S. Anzai, F. Nakagawa, and D. D. Komatsu (2011) Hydrogen isotopes in volcanic plumes: Tracers for remote temperature sensing of fumaroles, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **75**, 4531-4546.
- Tsunogai, U., Y. Hachisu, D. D. Komatsu, F. Nakagawa, T. Gamo, and K. Akiyama (2003) An updated estimation of the stable carbon and oxygen isotopic compositions of automobile CO emissions, *Atmos. Environ.*, **37**, 4901-4910.
- Yamamoto, M., N. Oba, and K. Tomita (1979) Estimation of Temperature of Magma reservoir of Sakurajima Volcano by Volcanic Bomb. *Rep. Fac. Sci., Kagoshima Univ. (Earth Sci. & Biol.)*, **12**, 33-38 (in Japanese with English abstract).
- York, D. (1966) Least-squares fitting of a straight line. *Can. J. Phys.*, **44**, 1079-1086.

## 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 0 件)

[学会発表] (計 7 件)

1. 小松 大祐, 角皆 潤, 中川 書子 (2014) 噴煙中に含まれる微量気体成分の安定同位体を指標に用いた活動的火山における噴気の遠隔温度推定. SVC55-P20, 日本地球惑星科学連合 2014 年大会, パシフィコ横浜, 2014 年 4 月 28 日-5 月 2 日.

2. 角皆潤, 小畑 元, 川口 慎介 (2014) 飛行艇を利用した新しい大気・海洋観測: 大気・海洋分野からの提案, 2A03, 2014 年度日本地球化学会第 61 回年会, 富山大学, 2014 年 9 月 16-18 日.
3. 角皆潤, 程 林, 池谷 康祐, 中川 書子, 小松 大祐, 栗田 直幸, 大場 武 (2014) 火山から放出される噴煙の中の水蒸気の安定同位体比分析, 2014 年度質量分析学会同位体比部会, 筑波山温泉旅館一望, 2014 年 11 月 26-28 日.
4. 角皆潤, 程 林, 池谷 康祐, 小松 大祐, 中川 書子, 篠原 宏志 (2015) 噴煙中の水素の同位体組成を利用した桜島における遠隔噴気温度測定. SVC45-25, 日本地球惑星科学連合 2015 年大会, 幕張メッセ国際会議場, 2015 年 5 月 24-28 日.
5. 大場 武, 青木 涼, 重村 大成, 左合 正和, 代田 寧, 程 林, 池谷 康祐, 角皆潤 (2015) 箱根山大涌谷火山ガス組成の時間変化. SVC49-04, 日本地球惑星科学連合 2015 年大会, 幕張メッセ国際会議場, 2015 年 5 月 24-28 日.
6. 角皆潤, 程 林, 池谷 康祐, 小松 大祐, 中川 書子, 篠原 宏志 (2015) 噴煙の安定同位体組成を利用した桜島火山の遠隔噴気温度測定. IB10, 2015 年度日本地球化学会第 62 回年会, 横浜国立大学, 2015 年 9 月 16-18 日.
7. 角皆潤, 中川書子, 高橋 浩, 風早竜之介, 篠原宏志, 山中寿朗 (2015) 疑心暗鬼を生ず:2015 年夏季に桜島・二俣港内で観測された「たぎり」的湧出ガスの起源について. 2014 年度質量分析学会同位体比部会, 滋賀県大津市湯の宿木もれび, 2015 年 11 月 25-27 日.

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ

<http://biogeochem.has.env.nagoya-u.ac.jp/>

## 6. 研究組織

(1) 研究代表者

角皆潤 (TSUNOGAI URUMU)

名古屋大学大学院環境学研究科・教授

研究者番号:50313367