

# 上湯場新噴気における水蒸気の酸素・水素同位体比

板寺一洋\*・代田 寧\*

Oxygen and Hydrogen Isotope Ratio of the fumarolic vapor at Kamiyuba, Hakone volcano

by

Kazuhiro ITADERA\* and Yasushi DAITA\*

## 1. はじめに

箱根火山では、2001年以降、2006年、2008年から2009年、2011年、そして2013年と、5回の顕著な群発地震活動が発生している（原田ほか、2013）。特に2001年の活動は、温泉地学研究所によるテレメーター観測開始以降では、最大規模のものであり、山体がわずかに膨張するような地殻変動が観測された（代田ほか、2009）。この活動では、大涌谷にある深度500mの蒸気井が暴噴したほか、群発地震活動の終息後には、それまで噴気活動が認められなかった大涌谷北側斜面の数カ所において新たな噴気（以後、新噴気域とよぶ）も出現した（辻内ほか、2003；棚田ほか、2008）。

2013年1月から3月まで続いた群発地震活動は、その規模こそ2001年の活動の数分の1程度であったが、主に中央火口丘直下を震源とする地震が多発し、山体のわずかな膨張を示す地殻変動を伴うものであった（板寺ほか、2013）。代田（2013）は、この群発地震活動が発生する10ヶ月ほど前から、新噴気域の中でも、近年、特に噴気活動が活発になっている領域（原田ほか（2012）におけるE領域）に位置する噴気孔において、数ヶ月に1回程度の頻度で噴気ガスの採取・測定をおこなっていたが、地震活動の活発化を受けて測定頻度を10日に1回程度に増やすことにより、大場ほか（2008）などの従来の調査に比べて、時間分解能の高いデータを得て、その結果をもとに、群発地震活動前後における噴気ガス組成の変化について検討している。

本報告では、この代田（2013）の調査の際に、併せて採取された噴気中の蒸気凝結水の酸素および水素同位体比を測定した結果について報告する。

## 2. 蒸気凝結水の採取・分析方法

代田（2013）が調査対象としたのは、原田ほか（2012）におけるB領域およびE領域に位置する噴気孔である

（図1）。噴気孔の詳細や調査実施日の概要については代田（2013）に述べられているので省略する。

代田（2013）は噴気孔にチタン製のパイプを挿入し、二口注射器で噴気ガスを吸引採取する方法を採用している。チタン製パイプと二口注射器の間には、氷水で冷却した捕集ビンが取り付けられており、噴気ガスは、水分が除去された後、二口注射器内に導入される。代田（2013）は、この水分除去後のガスについて、硫化水素、二酸化硫黄、二酸化炭素、酸素の濃度を検知管で測定している。本報告で報告するのは、その際に、氷水で冷却された捕集ビン内に凝結し、噴気ガスから除去された水試料（以下、「凝結水」とする）の酸素および水素同位体比の測定を行った結果である。

凝結水試料の酸素および水素同位体比は、軽元素質量分析装置PRISMにより測定した。同位体比測定のための試料の前処理は、酸素同位体比については炭酸ガス、水素同位体比については水素ガスと白金触媒を試料水とともに封入し、所定の温度条件下で同位体平衡（酸素については25℃下で4時間、水素については40℃下で90分）させることにより行った。標準試料としては温泉地学研究所で作成した蒸留水（ $\delta^{18}\text{O} = -8.52\text{‰}$ 、 $\delta\text{D} = -54.1\text{‰}$ ）を用いた。質量分析による同位体比の測定精度は、酸素について $\pm 0.1\text{‰}$ 、水素について $\pm 1\text{‰}$ であるが、試料水の酸素・水素同位体比（ $\delta$ 値V-SMOW）は、これらの測定結果と、平衡温度下における同位体分別係数を用いて算出するので、最終的に求められる $\delta$ 値の精度は酸素が $\pm 0.1\text{‰}$ 、水素が $\pm 3\text{‰}$ 程度となる。

## 3. 酸素・水素同位体比の測定結果

B領域、E領域における凝結水の酸素および水素同位体比の測定結果を表1に、それぞれの時間変化の状況を図2に示した。本稿で報告する期間において、凝結水の酸素同位体比は、B領域では $-14.1\text{‰}$ から $-16.3\text{‰}$ 、E領

\* 神奈川県温泉地学研究所 〒250-0031 神奈川県小田原市入生田586

報告, 神奈川県温泉地学研究所報告, 第46巻, 17-20, 2014

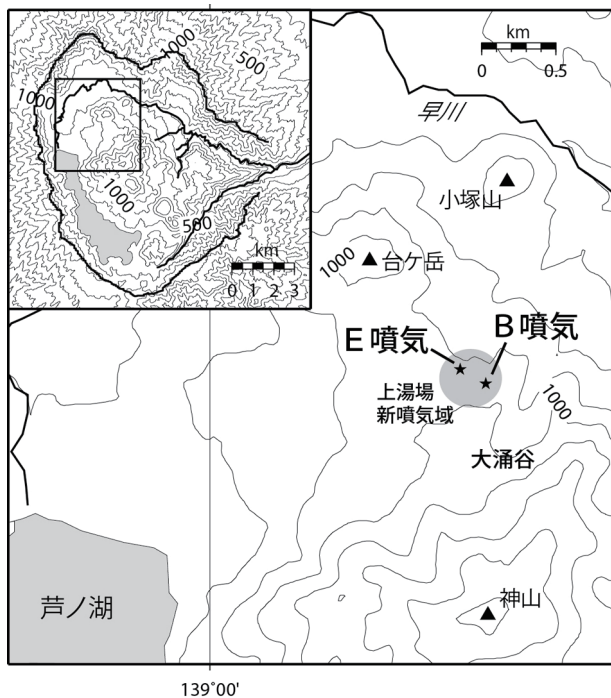


図1 調査対象とした噴気孔の位置

域では -5.9‰ から -7.9‰ の範囲で、水素同位体比は、B 領域では -78.7‰ から -91.9‰、E 領域では -46.0‰ から -56.7‰ の範囲で、それぞれ変動した。

図2によれば、凝結水の同位体比は、E 領域のほうが B 領域よりも常に高い値をとりながらも、領域ごとおよび項目ごとの時間変化のパターンが、それぞれ似通っていることが注目される。このことは、代田 (2013) における一連の試料採取が、一定の精度を保って行われたことを示しているとみられる。そこで、以下の項では、凝結水の同位体比の変動が、噴気ガス (火山ガス) に含まれる水蒸気の同位体比の変動を十分反映しているものとして、述べることにする。

深部に由来する火山ガスと天水の混合によって形成された熱水は、より浅部に移動して噴気を形成するまでの過程で、さらに局所的な天水と混合することが考えられる。したがって、凝結水の同位体比が、E 領域において、常に B 領域よりも高い値を示していたことは、E 領域の水蒸気が、より熱水の影響を受けており、B 領域では天水の影響が強いことを示唆している。代田 (2013) は、E 領域における噴気ガス中の硫化水素濃度が、B 領域におけるそれよりもかなり高いことを報告し、その原因として、上湯場地域の噴気活動が、B 領域よりも E 領域で活発化している (原田、2012) ことによる可能性を指摘している。二つの領域における凝結水の同位体比の相対関係も、この指摘を支持するものと考えられる。

表1 凝結水の酸素および水素同位体比

年 月/日	$\delta^{18}\text{O}(\text{V-SMOW } \text{‰})$		$\delta\text{D}(\text{V-SMOW } \text{‰})$		
	領域B	領域E	領域B	領域E	
2012年	03/13	-16.0	-6.3	-88.6	-49.6
	06/14	-15.8	-6.4	-87.8	-51.9
	12/13	-14.1	-6.3	-78.7	-51.1
	01/24	-16.0	-7.1	-88.5	-54.7
	01/31	-16.3	-6.9	-91.9	-54.3
	02/07	-15.2	-6.6	-85.5	-52.9
	02/20	-16.2	-7.2	-89.7	-53.9
	02/26	-	-7.9	-	-56.7
	03/07	-15.6	-6.4	-86.8	-51.6
	03/14	-15.5	-7.3	-86.6	-56.2
	03/26	-15.6	-6.4	-88.1	-52.1
	04/11	-	-6.7	-	-53.2
	04/19	-	-6.6	-	-52.9
2013年	05/02	-	-6.5	-	-53.4
	05/09	-15.5	-6.2	-85.1	-49.5
	05/16	-14.8	-6.2	-83.0	-51.5
	05/23	-	-6.6	-	-52.2
	05/31	-15.2	-6.5	-85.3	-52.4
	06/10	-14.4	-6.0	-82.6	-46.4
	07/11	-	-6.2	-	-48.6
	07/17	-	-6.6	-	-49.7
	07/30	-	-6.2	-	-50.1
	08/07	-	-5.9	-	-46.0
	08/26	-	-6.0	-	-49.3
	09/10	-	-5.9	-	-48.7
	09/17	-	-6.7	-	-51.8
09/26	-	-6.1	-	-49.3	
10/28	-	-6.9	-	-52.8	
11/05	-	-6.7	-	-52.5	
11/13	-	-6.3	-	-50.0	
11/21	-	-6.4	-	-49.7	
11/27	-	-6.9	-	-53.8	
12/11	-15.1	-6.2	-83.5	-49.7	

#### 4. 酸素・水素同位体比の時間変化

図2によれば、凝結水の酸素および水素同位体比の時間変化の特徴は、概ね次のようにまとめることができる。2012年の測定回数は少ないものの、B 領域では年末にかけて同位体比が上昇、E 領域では年間を通してほぼ横ばいであった。2013年に入り、2月ぐらまでは、B 領域・E 領域とも、同位体比の低下傾向が認められる。その後、どちらの領域とも、同位体比は徐々に上昇し、2013年の後半は、ほぼ横ばいであった。

こうした結果を、併せて示した箱根の日別地震数の推移と比較すると、二つの領域において凝結水の同位体比の低下がみられた期間は、地震活動の活発化前の2012年末から2013年初頭の群発地震活動が観測された期間に対応している。また、同位体比が徐々に上昇した期間は、群発地震活動が終息に向かう2013年の中期にかけての期間と対応している。さらに、同位体比の変化が横ばい傾向となった2013年後半には、顕著な地震活動は観測されていない。

代田 (2013) は、箱根火山における地震活動の消長と、大涌谷付近の噴気域における噴気ガス組成の変動との関連について詳細に調査し、噴気ガス中の硫化水素濃度が、地震活動の活発化に応じて低下、地震活動の低下とともに増加すること、および、噴気ガスの組成 (C/S 比) が、

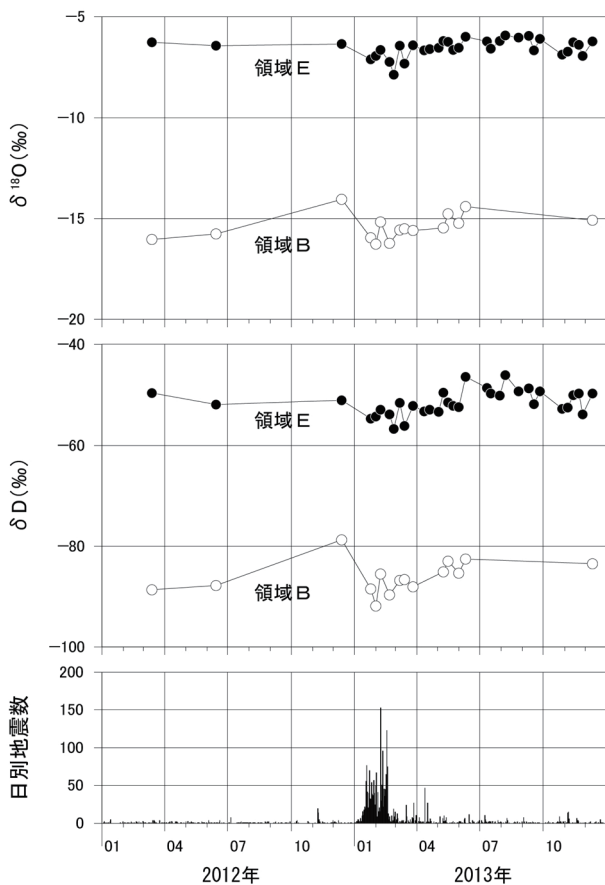


図2 凝結水の酸素および水素同位体比の時間変化と箱根火山における日別地震数

地震活動の活発化に先行して増加し、活動低下とともに減少する変化を確認している。蒸気凝結水の酸素・水素同位体比の時間変化の状況は、こうした噴気ガス組成に関する変化とも良く対応しており、噴気ガス採取時に分離された水蒸気についての測定結果であることからすれば、妥当な結果であると考えることができる。

上湯場を含む大涌谷一帯における噴気ガスの成分を調査した Ohba et al (2011) は、箱根火山における 2001 (平成 13) 年、2006 (平成 18) 年、2008 (平成 20) 年の群発地震活動時に、地下深部から二酸化炭素と二酸化硫黄に富んだマグマ性ガスが供給されたと推定している。

マグマから放出される火山ガス等に含まれる水蒸気の酸素・水素同位体比と天水のそれらを比較した場合、一般に、前者が大きい値をとる。したがって、噴気に含まれる水蒸気(凝結水)の同位体比が、単に深部から供給される火山ガス等の増減に対応して変動するのだとすれば、群発地震活動が活発な時期には同位体比が上昇し、活動終息期には同位体比が低下することが予想される。しかしながら、図2に示した凝結水の同位体比の変動パターンは、それとは逆であり、群発地震活動が活発な時

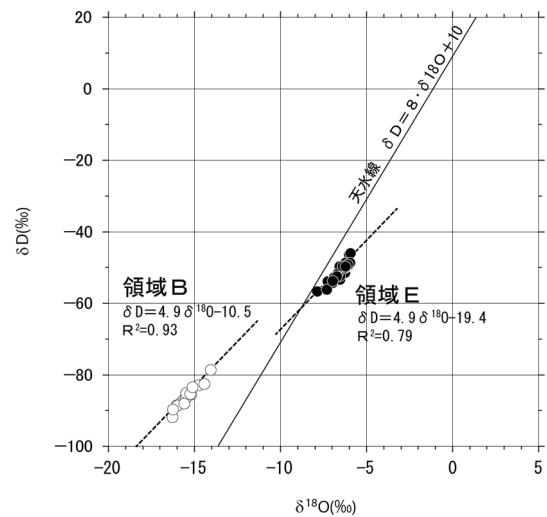


図3 凝結水の酸素および水素同位体比の関係

期に向かい、同位体比が低下する傾向が認められる。

同一の噴気における凝結水の同位体比の低下は、水蒸気の形成に関する天水の寄与の度合いが増したことを示していると見ることができる。そうした現象が、群発地震活動が活発化した期間に生じていたとすれば、過去の群発地震時にマグマ性ガスの供給があったとする Ohba et al (2011) の推定とあわせて、どのようなメカニズムによるものかは、本地域における噴気の形成機構を解明する上でも重要な検討課題である。

## 5. 酸素・水素同位体比から推定される噴気形成場の状況

図3は、酸素同位体比と水素同位体比の関係を示すダイアグラムである。図3によれば、B領域およびE領域における噴気の酸素・水素同位体比を示す点は、時系列変化に見られた特徴を反映し、領域ごとに一定の範囲にまとまっており、なおかつ、B領域に対してE領域の方が同位体比の高い側にプロットされている。さらに、酸素・水素同位体比には良い相関が認められる。

松葉谷ほか(2007)は、秋田県の泥湯温泉の地すべり地区における噴気や温泉水の酸素・水素同位体比が示す直線関係が、噴気が地表に噴出する直前に、熱水と水蒸気に分離する際の同位体分別によるものと考え、Horita and Wesolowski (1994) が示した、温度と同位体分別の関係式から、水蒸気の分離が起こっている深さや、その環境の温度を推定している。さらに、解析対象とした泥湯地区の噴気には、二酸化炭素と硫化水素を含む一方で、塩化水素や二酸化硫黄を含まない特徴があることなどから、噴気の源となっている熱水を天水起源と推定している。こうした泥湯温泉の噴気組成(松葉谷ほか、2007)は、



上湯場地区の噴気組成（代田、2013）と類似していると言える。そこで、上湯場地区の噴気についても、表1に示した凝結水の酸素水素同位体比に基づき、松葉谷ほか（2007）と同様の検討を行うこととする。

図3に見られる相関関係について、最小二乗法による近似式は、B領域については $\delta D = 4.9 \times \delta^{18}O - 10.5$  ( $R^2 = 0.93$ )、E領域については $\delta D = 4.9 \times \delta^{18}O - 19.4$  ( $R^2 = 0.79$ )と、どちらの領域についても、直線の傾きは4.9であった。これを熱水と水蒸気間の同位体分別によるものとする、Horita and Wesolowski (1994)によれば、約110°Cにおける水素と酸素それぞれの同位体分別の比に相当する。日本機械学会（1999）によれば、110°Cにおける飽和水蒸気圧はおよそ1.4気圧であるので、水蒸気の分離が起きているのは、深さ十数m程度までの、ごく浅いところと見ることができる。

## 6. おわりに

代田（2013）は、2013年の初頭に箱根火山で発生した活発な群発地震の活動期間を挟んだ期間について、大涌谷周辺の上湯場地区の噴気域において火山ガス調査を行った。その際にあわせて採取された噴気の凝結水の酸素・水素同位体比を測定した結果は、以下のようにまとめることができる。

凝結水の酸素・水素同位体比は、2001年の群発地震活動後に出現したB領域よりも、2011年以降に噴気活動の活発化が認められたE領域において高い値をとりつつ、時間変化のパターンは、領域ごとおよび項目ごとに、それぞれ似通っていた。さらに、代田（2013）が報告している噴気ガス組成と同様に、群発地震活動の状況に対応して変化し、群発地震活動が活発化した期間に低下しており、その間、水蒸気形成に関する天水の寄与の割合が増したことを示していると思われる。

松葉谷ほか（2007）による秋田県の泥湯温泉の地すべり地区における解析事例と同様の検討を行った結果、凝結水の酸素および水素同位体比の相関関係は、約110°Cにおける水素と酸素それぞれの同位体分別の比に相当し、水蒸気の分離が起きているのは、ごく浅いところと見ることができる。

今後、本地域における噴気の形成機構や、火山ガスの組成変化が生じるメカニズムを解明するために、同様の調査を継続するとともに、蒸気凝結水の酸素・水素同位体比と噴気ガスの組成とを併せた検討を進めたい。

## 謝辞

噴気調査におけるガスおよび水蒸気の採取について

は、東海大学理学部教授の大場武氏から貴重な助言をいただきました。ここに記して感謝の意を表します。

## 参考文献

- 代田 寧（2013）箱根火山において2013年1月から発生した群発地震活動に伴う噴気ガス組成の時間変化，*温地研報告*，**45**，29-34.
- 代田 寧・棚田俊收・丹保俊哉・伊東 博・原田昌武・萬年一剛（2009）2001年箱根群発地震活動に伴った傾斜変動と圧力源の時間変化，*火山*，**54**，223-234.
- 原田昌武・行竹洋平・宮岡一樹・本多 亮・板寺一洋・道家涼介・里村幹夫・吉田明夫（2013）箱根火山における群発地震活動の分類，*温地研報告*，**45**，1-8.
- 原田昌武・小田原 啓・松沢親悟・代田 寧・板寺一洋・寺田暁彦（2012）箱根大涌谷の北側斜面における近年の地表面変化と熱赤外カメラによる観測，*温地研報告*，**44**，55-62.
- Horita J. and D. J. Wesolowski（1994）Liquid-vapor fractionation of oxygen and hydrogen isotopes of water from the freezing to the critical temperature, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **58**(16), 3425-3437.
- 板寺一洋・代田 寧・本多 亮・原田昌武・行竹洋平・道家涼介・宮岡一樹・萬年一剛（2013）2013年1～2月の箱根火山群発地震活動について（概報），*温地研報告*，**45**，17-28.
- 松葉谷治・川原谷浩・石山大三・高橋芳信・鈴木 勝・五十嵐和夫（2007）秋田県、泥湯および川原毛地区の温泉や噴気の地球化学的特徴とその成因，*温泉科学*，**57**(2)，88-98.
- 日本機械学会（1999）蒸気表，丸善，201p.
- 大場 武・代田 寧・澤 毅・平 徳泰・攪上勇介（2008）箱根カルデラ中央火口丘大涌谷地熱地帯における火山ガス組成の時間変化，*温地研報告*，**40**，1-10.
- Ohba, T., Daita, Y., Sawa, T., Taira, N. and Kakuage, Y. (2011) Coseismic changes in the chemical composition of volcanic gases from the Owakudani geothermal area on Hakone volcano, Japan, *Bull Volcanol.*, **73**, 457-469.
- 棚田俊收・代田 寧・板寺一洋（2008）箱根町大涌谷から上湯場付近における硫化水素および二酸化硫黄のガス濃度と地温測定結果，*温地研報告*，**40**，23-28.
- 辻内和七郎・鈴木征志・栗谷 徹（2003）箱根大涌谷で2001（平成13）年に発生した蒸気井の暴噴事故とその対策，*温地研観測だより*，**53**，1-12.