

箱根大涌谷噴火域から流出する河川水・懸濁物質のPIXE分析

-2015/7/28~2017/4/10-

酒井正治¹、世良耕一郎²、後藤祥子³

¹森林総合研究所立地環境研究領域
305-8687 茨城県つくば市松の里1

²岩手医科大学サイクロトロンセンター
020-0603 岩手県滝沢市留が森348-58

³日本アイソトープ協会滝沢研究所
020-0603 岩手県滝沢市留が森348-1

1 はじめに

箱根山は日本にある111の活火山(2017年6月現在)の一つで、24時間体制でその火山活動を常時観測・監視している¹。箱根山の主要な火山活動とその付随的出来事を表-1に示した。箱根山は2015年4月末から大涌谷付近を震源とする火山性地震が増加し始め、同年6月29日に小規模な噴火が発生したため、その翌日噴火警戒レベルをレベル3(入山規制)へと引き上げ、火口付近の入山を規制した。その後、箱根山の火山活動は徐々に低下し、同年9月にレベル2(火口周辺規制)へ、同年11月には噴火の可能性が低くなったとしてレベル1(活火山であることに注意)に引き下げられることになった。その後大涌谷周辺のハイキングコースなどは立入禁止を継続しているが、火山性地震の発生が少なく、地震活動は低調に経過していると、2016年7月26日に、大涌谷園地の開放と箱根ロープウェイ全線運行が再開された。しかしながら、現在も大涌谷の火口や噴気孔および温泉供給施設から引き続き噴気が勢いよく噴出している。箱根のみならず日本各地で起こっている火山活動は人的被害のみならず農林業・観光業などの

日付	出来事
2015.4.26	大涌谷付近を震源とする火山性地震が増加
2015.5.6	噴火警戒レベル2(火口周辺規制)へ引き上げ
2015.6.30	レベル3(入山規制)へ引き上げ
	・6/29-7/1、小規模な噴火が断続的に発生(火山灰などの噴出物による盛り上がりや降灰を確認)
2015.9.11	レベル2(火口周辺規制)に引き下げ
	・8月下旬頃、山体膨張の停止など火山活動は低下している
	・但し、小規模な噴火が発生する可能性あり
2015.11.20	*レベル1(活火山であることに留意)に引き下げ
	・大涌谷周辺の想定火口域では、噴火の可能性は低くなった
	・但し、規模の小さな噴出現象が突発的に発生する可能性あり
2016.4.23	箱根ロープウェイの一部(姥子駅-大涌谷駅)運行再開
	・但し、立入は大涌谷駅舎内まで
2016.7.26	大涌谷園地の開放と箱根ロープウェイ全線運行
	・但し、大涌谷周辺のハイキングコース及び自然研究路は引き続き立入禁止
*レベル1のキーワードは「平常」から「活火山であることに留意」に変更される(気象庁、2015/5/18から)	
(「火山活動解説資料」(気象庁)を参照)	

大きな経済的損失を伴うことが多く、その地域の社会・経済に大きな影響を与えるため、火山噴火の予知、火山活動の予測の研究が進められているが、火山活動のメカニズムがそれぞれの火山で異なることなどから、どの火山にも対応した予知・予測は現状では困難であると言われている。立ち入り禁止である大涌谷噴火域の活動程度を、噴火域を源流とする河川水の成分変化から把握できるかもしれないと考え、多元素同時分析が可能なPIXE分析法を使って、噴火直後から定期的に河川水の成分分析を行っている。前報では、噴火後約1年間の河川水の溶存物質のPIXE分析の結果について報告した。ここでは、火山活動を数値化できていないため、火山活動と河川水の濃度との相関係数を求めることができないが、全体的な傾向として、主要9元素、S、Cl、Ca、Fe、Mg、Al、Na、Mn、Kの濃度変化と火山活動は同調しているように見え、噴火域を源流とする河川水の9元素を測定することにより、噴火活動の程度を知る可能性を報告した。ここでは、火山活動に伴う河川水の水質の把握には、溶存態成分のほか、不溶性成分(懸濁態物質)の把握が重要であることから、懸濁態物質を溶存態物質と同じ場所で採取し、PIXE分析法で行ったので、それらの成分濃度および季節変化について報告する。

2 方法

2.1 採水

図-1に河川水の採水位置図を示した。河川水は大涌谷噴火域を源流とする大涌沢の下湯橋で採取した。この地点は噴火地帯から約1.5 km下流に位置し、箱根町火山防災マップによれば、噴火時には熱泥流が流下する危険箇所指定されているが、噴火直後から立入規制外であった。なお、2015年6月29日に噴火域で発生した熱泥流は大涌沢上流で確認されており、河川水の採水時の懸濁状況を示したように(写真1a、1b)、噴火直後から火山活動に起因した白濁現象が認められることから、この河川水の成分は噴火域の火山活動を十分反映していると考えられた。



図-1 河川水の採水位置図(国土地理院、電子国土web)

河川水採取はできる限り河川水量の安定した平水状態の日を選んで行った。表層水を2リットル容ペットボトルに採水

し、その後、減圧ろ過器(アドバンテック、KP-47W、500 ml容量、ろ過面積は13.5 cm²)にセットしたメンブレンフィルター(アドバンテック、C80A047A、0.8 μm、47 mmφ)でろ過し、懸濁物質がのこったフィルターをPIXE分析用サンプルとした。採水は原則として月1回とし、採水期間は2015年7月末～2017年4月末までの2年弱である。なお、河川水採水回数21回のうち、懸濁物質の捕集は18回であった。なお、懸濁物質の採取回は写真-1a、-1b中に赤字で示した。但し、採取回No.21は増水時の水質のため、解析から除外した。なお、月一回の採水は現在も継続中である。

2.2 懸濁物質質量濃度

懸濁物質捕集前後のフィルターの重量は、デシケーター内に72時間以上静置後、マイクロ天秤(メトラーAX26、最小表示0.0001 mg)を使って重量を測定し、捕集前後の重量差を採水量で除することによって河川水中の懸濁物質質量濃度(mg/l)を求めた。さらに、検出元素数とフィルター上の懸濁物質の厚さとの関係を調べるため、捕集前後の重量差をろ過面積(13.5 cm²)で除し、フィルター試料厚に相当する懸濁物質質量濃度(mg/cm²)を求めた。

2.3 PIXE 分析

河川水中の懸濁物質成分は仁科記念サイクロトロンセンター (NMCC) の PIXE 分析システムを使って行った。河川水をろ過したフィルターの一部を貼りつけたホルダーを PIXE ターゲットとした。小型サイクロトロン (島津製作所 MCY-1750) により加速された 2.9 MeV の陽子線をターゲットに照射し、発生した X 線を二検出器同時測定システム⁴により検出した。図-2に河川水中

の懸濁物質の代表的スペクトルを示した。検出器1には低エネルギー線を吸収する吸収体として 500 μm Mylar を装着し Ca 以上の元素を測定、検出器2では吸収体を装着せず Na~K までの元素を測定した。2台の検出器の橋渡しは Ca で行った。なお、Fe だけが突出していたため、計数率の大部分を占める Fe 元素からの X 線を吸収する特殊吸収体を検出器1に装着し、Ni 以上の重元素を測定した(図-2の上図、赤実線)。得られたスペクトルは PIXE 専用スペクトル解析プログラム SAPIX および定量計算プログラム KEI により各元素濃度を求めた。なお、定量値に対する SE (Standard Error) が50%以下の元素についてのみ元素濃度として採用した。

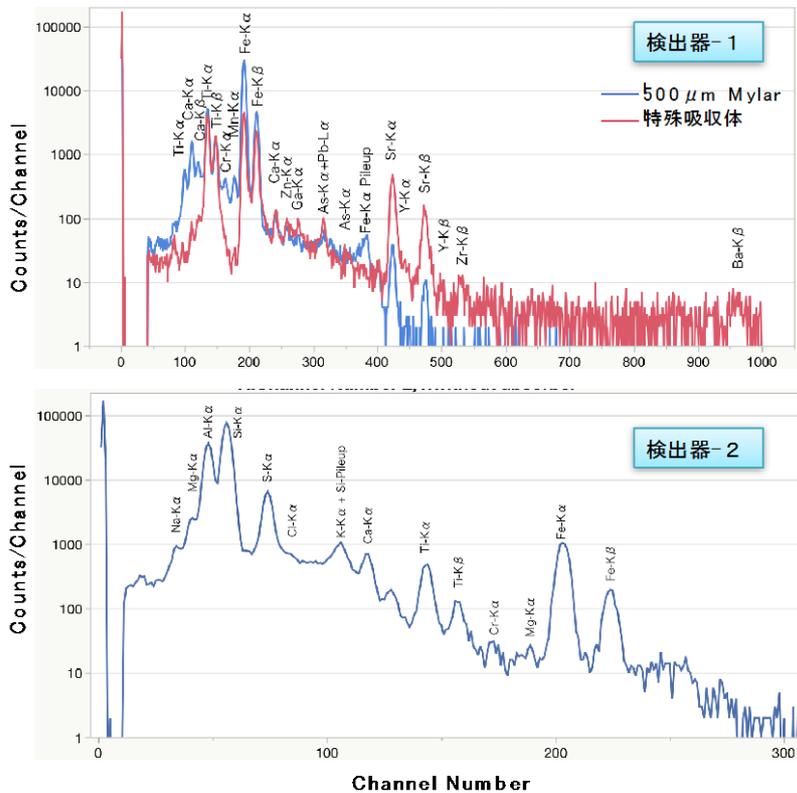


図-2 河川水・懸濁部室のPIXEスペクトル(採水日: 2015/8/31)

なお、得られた元素濃度データはJMP(SAS社製、Mac版 ver.13)で統計解析および図化を行った。

3 結果と考察

3.1 河川中の懸濁物質質量濃度 (mg/l) の季節変化

図-3に、懸濁物質質量濃度 (mg/l) を示した。最初の採水日 (2015/7/28) に最大値 (624 mg/l) を示した後、1年間はほぼ直線的に減少し、その後は安定する季節変化を示した。これは、写真による懸濁状況と一致した (写真—1a, 1b)。

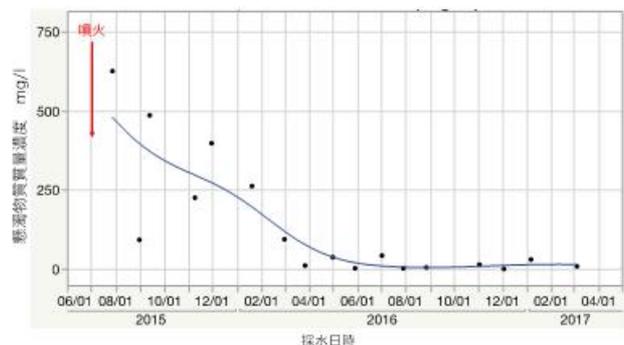


図-3 河川水の懸濁物質質量濃度の季節変化

3.2 河川水中の懸濁物質の成分

PIXE分析で検出できた元素は以下の28元素、Al、As、Ba、Br、Ca、Cl、Cr、Cu、Fe、Ga、K、Mg、Mn、Na、Nb、P、Ni、Pb、Rb、S、Se、Si、Sr、Ti、V、Y、Zn、Zrであった。そのうち、Al、Ca、Cr、Fe、K、Mg、Na、S、Si、Sr、Ti、V の12元素は全ての採水サンプルで検出された(図-4)。次いで高い検出率の順に Mn、Zn が90%台、Cu、Ga が

80%台、As が70%台、Ni、P、Y、Zr は60%台、Ba、Rb は50%台、Br は40%台、Clは30%台、Pb、Nb、Se は20%台となった(図-4)。なお、検出率40%以下の元素、Cl、Pb、Nb、Se は検出数が4~6個と少ないため今回の解析から外した。従って河川水のデータ解析では、24元素(Al、As、Ba、Br、Ca、Cr、Cu、Fe、Ga、K、Mg、Mn、Na、P、Ni、Rb、S、Si、Sr、Ti、V、Y、Zn、Zr)について行った。

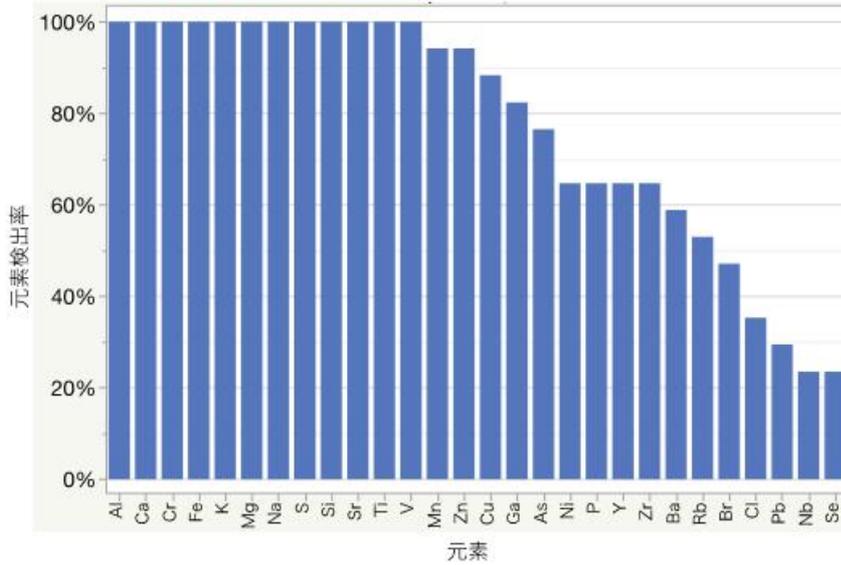


図-4 河川水の懸濁物質の元素検出率

図-5に、フィルター試料厚に相当する懸濁物質質量濃度 (mg/cm²) と検出元素数を示した。1 mg/cm²以下の懸濁物質質量濃度で、検出元素数が低い傾向にあったが、各採水時の検出元素数は18~24と大きな変動はなかった。

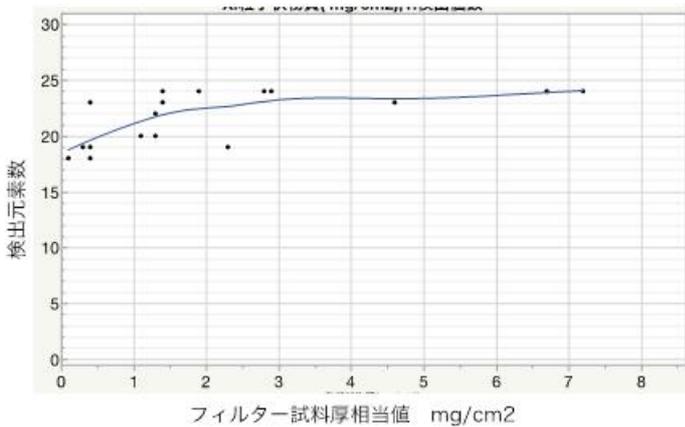


図-5 河川水の懸濁物質質量濃度(フィルター試料厚相当値)と検出元素数との関係

図-6に河川水の懸濁物質に含まれる24元素の各濃度を、視覚的にわかりやすく表現できる箱ひげ図で示した。箱内のバーはデータの中央値、箱の上下のバーはデータの第一四分位点(下側)および第三四分位点(上側)、箱から上下に伸びたひげのバーはデータの最小値および最大値を示し、箱の上下の点は外れ値である可能性を示唆している。また、表-2に元素濃度(μg/ml)の平均値および標準偏差を降順に示した。

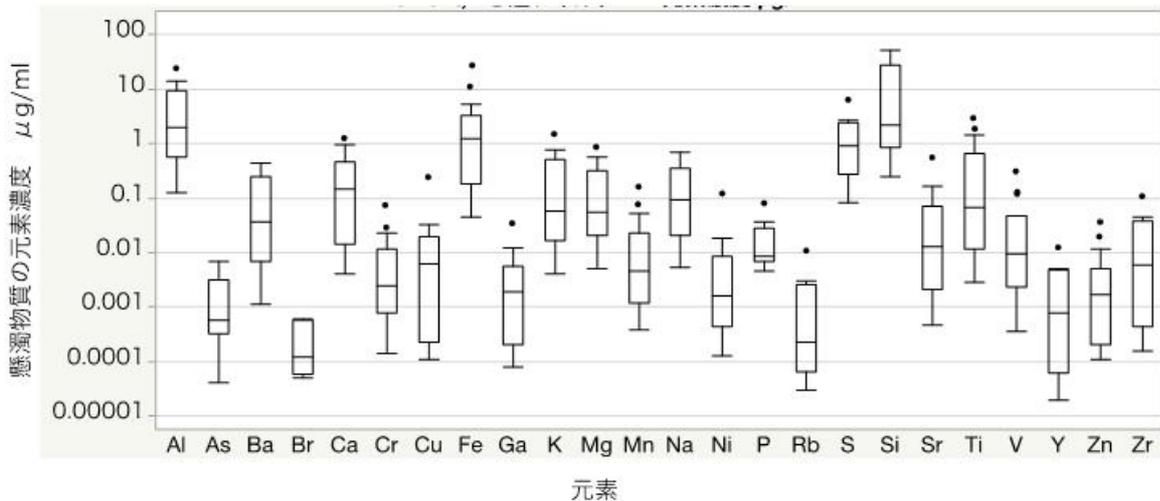


図-6 河川水の懸濁物質の元素濃度(24元素)

元素の平均濃度を降順で以下に示す。Si、Al、Fe、S 元素の平均濃度は、それぞれ 13.6、5.8、3.4、1.4 µg/mlと、他の元素に比べ極めて高い値を示した。それ以外の元素濃度範囲は、Ti、K、Ca、Mg、Na、Ba は 0.1~0.5 µg/ml、Sr、V、Cu、Mn、Zr、P、Ni、Cr は 0.01~0.07 µg/ml、Zn、Ga、Y、Rb、As、Br は 0.006 µg/ml 以下であった。

平均濃度 1µg/ml以上の懸濁物質の主要な元素である、Si、Al、Fe、S 元素のうち、S元素以外は、岩石の構成元素⁶ (表-3) の上位 3元素 (酸素元素を除く) であった。つまり、Si、Al、Fe 元素は岩石由来の元素で、火山活動に起因する熱水、噴出ガスにより、噴火域の岩石が激しく風化され、それらの元素が岩石から容脱されたものと考えられた。一方、S元素は、岩石中の濃度順位 (第13位) に比べて、懸濁物質中の濃度順位 (第4位) が高い。これは、岩石起源のほか火山ガスなどからS化合物が生成され、河川水中に

表-2 元素濃度 µg/ml (24元素)

No.	元素	平均	標準偏差
1	Si	13.5703871	16.915456
2	Al	5.78124412	6.7115122
3	Fe	3.44897294	6.62588512
4	S	1.42348176	1.56914332
5	Ti	0.49337824	0.82442321
6	K	0.28696235	0.39886912
7	Ca	0.27245118	0.37023408
8	Mg	0.21305941	0.24764064
9	Na	0.18734765	0.19968302
10	Ba	0.113898	0.15743617
11	Sr	0.06696882	0.13360695
12	V	0.04343765	0.07753894
13	Cu	0.023402	0.06026101
14	Mn	0.02320375	0.04184508
15	Zr	0.02064818	0.03232815
16	P	0.02039455	0.0222166
17	Ni	0.01467727	0.03512107
18	Cr	0.01034	0.01807205
19	Zn	0.00539563	0.0095643
20	Ga	0.004985	0.00902037
21	Y	0.00243818	0.00369311
22	Rb	0.00192222	0.00342368
23	As	0.00174385	0.00204756
24	Br	0.0002625	0.00024961

表-3 岩石の元素含量 (上位30)

No.	元素	上部大陸地殻 (岩石) 素含量ppm
1	O	47500
2	Si	29700
3	Al	8150
4	Fe	3920
5	Ca	2565
6	Na	2425
7	K	2324
8	Mg	1500
9	Ti	383
10	Mn	774
11	P	654
12	Ba	62
13	S	62
14	F	55
15	Sr	32
16	Cl	29
17	Zr	19
18	V	9
19	Cr	9
20	N	8
21	Rb	8
22	Zn	6
23	Ce	6
24	Ni	4
25	La	3
26	Cu	2
27	Nd	2
28	Li	2
29	Y	2
30	Ga	1

赤字はPIXE分析で検出された元素

懸濁物質として流出したものと考えられた。懸濁物質濃度の上位5位から10位の元素（Ti、K、Ca、Mg、Na、Ba）は、岩石中の元素濃度順位（第12位以内）も高いことから、これらの元素も岩石を主に起源とすると考えられた。

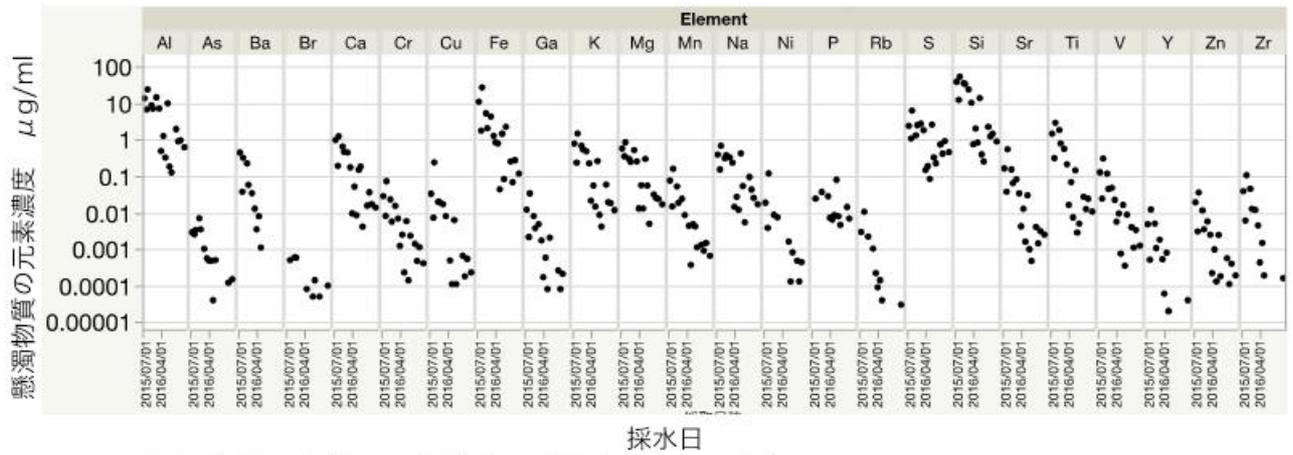


図-7 河川水懸濁物質の元素濃度の季節変化(24元素)

図-7に、懸濁物質中の24元素の濃度の季節変化を示した。24元素とも噴火直後から減少傾向を示した。図-7のグラフの形から3つのパターンに分けることができた。Al、Ca、Cr、K、Mg、Na、Si、Sr、Ti、V の10元素は低濃度範囲で2つの直線で示される似たパターン (I) を示した。As、Ba、Cu、Fe、Ga、Mn、Ni、Rb、Y、Zn、Zr、の11元素は、ほぼ直線的に減少するパターン (II) を示し、残りのBr、P、S 元素は減少範囲が小さい減少パターン (III) を示した。図-8 ~ 図-10に、パターン別元素間の相関関係を示した。パターン (I) では全ての元素間で 0.9 以上の高い相関関係を示した。パターン (II) では As、Ba 元素を除く9元素間では 0.9 以上の高い相関関係を示した。パターン (III) では、パターン (I) およびパターン (II) 同様、0.9 以上の高い相関関係を示した。このように、As、Ba 元素を除けば、パターン内の元素は同調して変化していた。

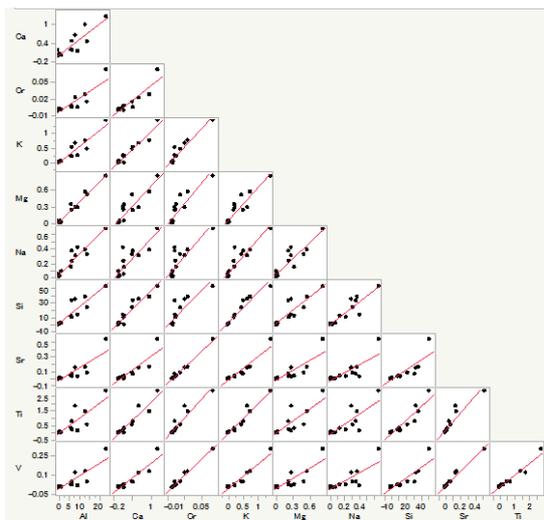


図-8 季節変化パターン (I) の元素の季節変化 (10 元素)

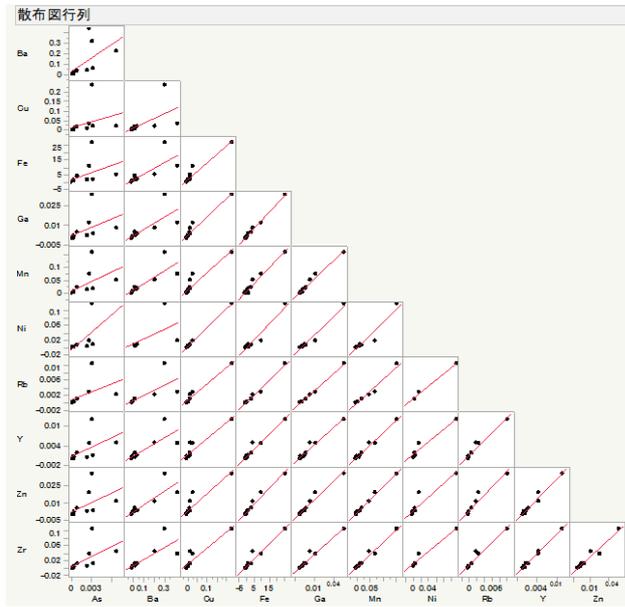


図-9 季節変化パターン(Ⅱ)の元素の季節変化(11元素)

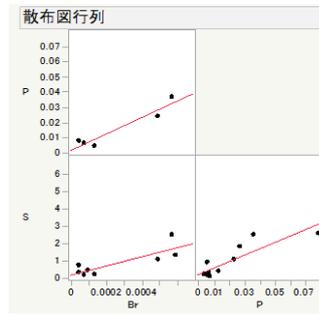


図-10 季節変化パターン(Ⅲ)の元素の季節変化(3元素)

懸濁物質採取場所と同じ場所で採取した河川水の溶存態物質については現在解析途中であるが、河川水溶存態物質の主要10元素の季節変化(暫定値)を示した(図-11)。マグマ起源ガスに由来するS、Cl元素、およびSiを除く岩石由来元素(Ca、Fe、Mg、Al、Na、K)は噴火直後から下降傾向を示した。その後、Cl元素は依然減少傾向を維持していたが、S、Ca、Fe、Mg、Al、Na、K元素は減少傾向に歯止めがかかり、安定する傾向があった。このように、溶存態成分の時系列変化と懸濁態成分の時系列変化と大きく異なり、溶存態物質の主要元素は減少に歯止めがかかる一方、懸濁態物質の多くの元素は引き続き減少傾向にあった。

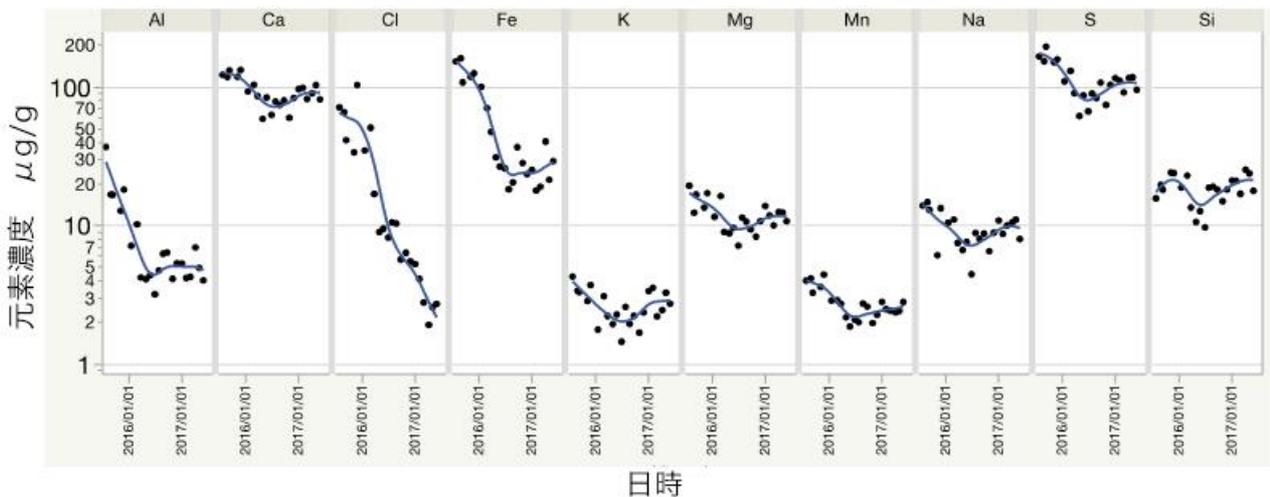


図-11 河川水溶存態物質の主要元素濃度の季節変化(10元素)

4 まとめ

河川水中の成分は、溶存態及び懸濁態物質から構成されている。ここでは、大涌谷噴火域を源流とする大涌沢で採取した河川水の懸濁物質のPIXE分析を行ったので、その成分元素濃度、それらの季節変化について報告する。この大涌沢は火山活動に起因した熱泥流の流下および白濁現象が認められることから、この河川水の成分元素および濃度は噴火域の火山活動を十分反映していると考えられる。河川水の懸濁物質質量濃度 (mg/l) は、最初の採水日 (2015/7/28) に最大値 (624 mg/l) を示した後、1年間ほぼ直線的に減少し、その後は安定する季節変化を示した。平均濃度 1 μ g/ml以上の懸濁物質の主要な元素である、Si、Al、Fe、S 元素のうち、上位3元素 (Si、Al、Fe) は岩石由来の元素で、火山活動に起因する熱水、噴出ガスにより、噴火域の岩石が激しく風化され、それらの元素が岩石から容脱されたものと考えられた。一方、S元素は、岩石起源のほか火山ガスなどからS化合物が生成され、河川水中に懸濁物質として流出したものと考えられた。また、いずれも噴火直後から減少傾向を示した。それらの減少パターンを3つに分けることができた。As、Ba 元素を除き、パターン内での元素間で、0.9以上の高い相関関係を示し、パターン内の元素は同調して変化していた。懸濁物質採取場所と同じ場所で採取した河川水の溶存態物質については現在解析途中であるが、溶存態成分の時系列変化と懸濁態成分の時系列変化と大きく異なり、溶存態物質の主要元素は減少に歯止めがかかると一方、懸濁態物質の多くの元素は引き続き減少傾向にあった。

参考文献

1. 活火山とは：気象庁ホームページ、知識・解説>火山>活火山とは
http://www.data.jma.go.jp/svd/vois/data/tokyo/STOCK/kaisetsu/katsukazan_toha/katsukazan_toha.html
2. 酒井正治、世良耕一郎、後藤洋子：箱根大涌谷噴火域から流出する河川水のPIXE分析-成分組成の変化、NMCC共同利用研究成果報文集22、130-139、2015
3. 箱根町火山防災マップ：火山棒材マップ全域図、
<https://www.town.hakone.kanagawa.jp/index.cfm/10,1218,46,167.html>
4. Sera, K., Yanagisawa, T., Tsunoda, H., Futatsugawa, S., Hatakeyama, S., Saitoh, Y., Suzuki, S. and Orihara, H, "Bio-PIXE at the Takizawa Facility. (Bio-PIXE with a Baby Cyclotron).", Int'l Journal of PIXE Vol. 2- 3, 325-330,1992
5. Sera, K. and Futatsugawa, S. : Personal Computer Aided Data Handling and Analysis for PIXE, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 109/110, 99 -104,1996
6. 地質および鉱物-元素存在比：理科年表国立天文台編、644、2012

謝辞

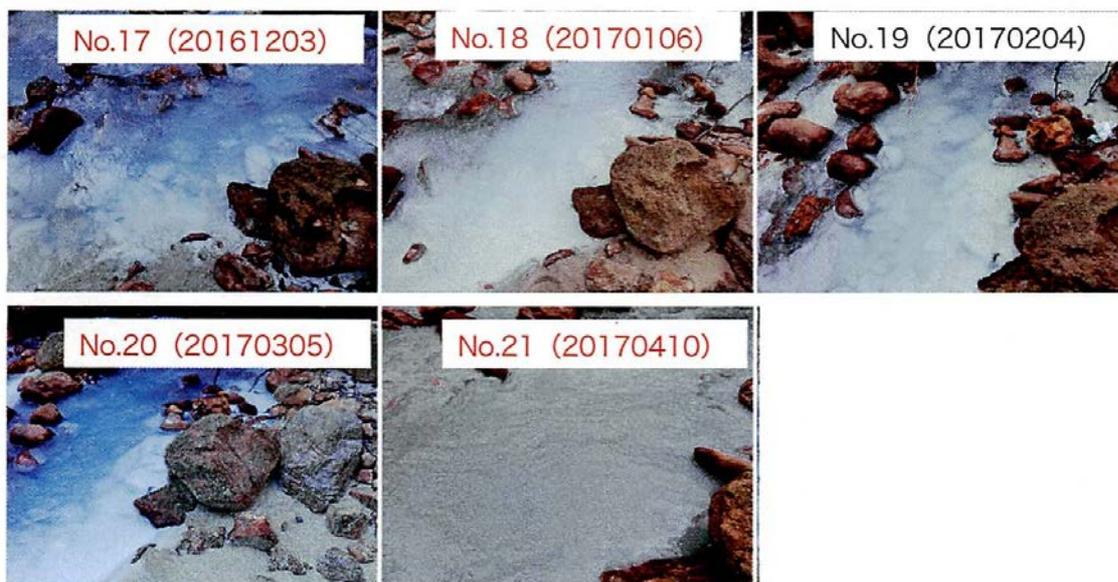
箱根火山の活動状況および採水について助言を頂きました神奈川県温泉地学研究所の板寺一洋さん、芦ノ湖漁業協同組合の鎌倉俊数さんに感謝いたします。

写真-1a 河川水の懸濁状況



写真中の数字は採取回（採取日）を示す。なお、赤字は懸濁物質を採取したことを示す。
 撮影方向は基本的に採水地から上流方向としたが、No.2、3は下流方向を、No.5は橋の上から採水地を撮影した。

写真-1b 河川水の懸濁状況



写真中の数字は採取回（採取日）を示す。なお、赤字は懸濁物質を採取したことを示す。撮影方向は基本的に採水地から上流方向としたが、No.2、3は下流方向を、No.5は橋の上から採水地を撮影した。

PIXE analysis of the stream suspended fraction in Mt.Hakone

– 2015/7/28~2017/4/10 –

M.Sakai¹, K.Sera² and S.Goto³

¹Forestry and Forest Products Research Institute

1 Matsunosato, Tsukuba, Ibaraki 305-8687, Japan

²Cyclotron Research Center, Iwate Medical University

348-58 Tomegamori, Takizawa, Iwate 020-0603, Japan

³Nishina Memorial Cyclotron Center, Japan Radioisotope Association

348-58 Tomegamori, Takizawa, Iwate 020-0603, Japan

Abstract

On 30 June 2015, Japanese Meteorological Agency raised the volcanic alert to a Level 3 for Mt.Hakone, after a small eruption. Hakone is a very popular tourist spot, located in southwest of Tokyo. But after the eruption, the tourist agency suffered big economic loss for the sharp decrease of the tourist. For the purpose of grasping the volcanic activity degree in the Owakudani fumarolic area, we are monitoring elements of stream water, by using PIXE method. It is thought that composition in stream water are reflecting the volcanic activity, because stream water is flowed directly from the Owakudani fumarolic area. Water samples were collected approximately once a month from July 2015 to April 2017. The suspended fractions in stream water were filtered on a membrane filter of $0.8\mu\text{m}$ pore. We analyzed 17 filters by PIXE method. The mass concentration of stream suspended fraction decreased in a linear manner for one year after the eruption and then kept the low level. Main three elements, Si, Al, and Fe, originated in rock. S element derived from magma and rock. Almost elements of suspended fraction in stream water decreased after the eruption. These results suggest that main elements in stream water are useful as the index of the magnitude of volcanic activities in Mt. Hakone. PIXE method is suitable for grasp of the volcanic activity degree, because PIXE is high sensitive and multi-element analysis at the same time.