

大屯火山群火山氣體成份與來源之探討

楊燦堯^{1,2}、何孝恆¹、謝佩珊¹、劉念宗¹、陳于高¹、陳正宏¹

(收稿日期：2003年6月1日；接受日期：2003年7月9日)

摘要

利用新的採樣與分析方法於大屯火山群主要火山噴氣地點，包括地熱谷、硫礦谷、中山樓、冷水坑、小油坑、馬槽、大油坑、八煙、四磺坪、大埔等處之火山噴氣與溫泉氣體成份進行分析。分析結果顯示，本地區各處之火山噴氣成份大都以水氣含量佔絕大部分(>90%)，而溫泉氣泡則含有較低之水氣含量；除水後氣體成份則以二氧化碳為主(>70%)、其次為硫化物與氮氣成份，為典型之低溫火山氣體組成。

由氣體樣品中之氮同位素比值分析結果估算，大屯火山群之火山噴氣平均有>60%氮氣成份源自於地函來源端成份；由碳、氮同位素分析結果估算，亦有高達25%氣體源自於地函源氣體端成份，與鄰近國家活火山之氣體成份相近。其中大油坑噴氣有最大之地函來源氣體比例，而地熱谷則最小，暗示大油坑附近地底下可能仍存在有岩漿庫持續逸氣中。

將近四年(1999年1月至2002年11月)之持續研究期間，氣體樣品之氮同位素比值除了少數地點以外，各地區均未發現明顯異常之變化，顯示本地區之逸氣來源與通道相對穩定。而少數地點(地熱谷、硫礦谷、馬槽)於少數時段有異常的氮同位素比值成份變化，此異常時間似乎與發生在台灣北部的大地震活動有關，暗示具有較多地殼來源之火山噴氣成份，有可能受到地震影響而有較明顯之變化；其間之關係則需要進一步之監測資料予以釐清。

關鍵詞：大屯火山群，火山噴氣，地函源端成份，岩漿庫

一、前言

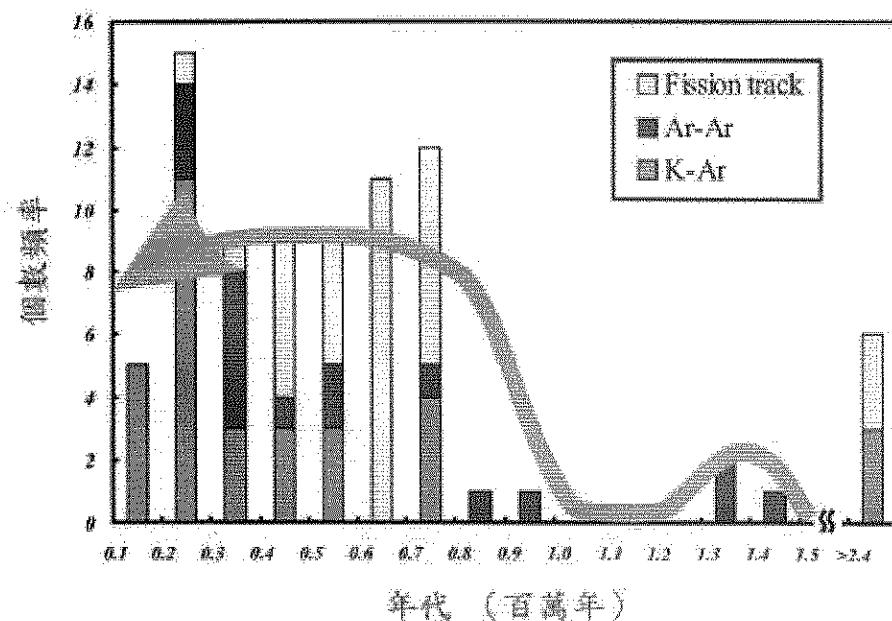
地處環太平洋西邊火山地震頻繁帶的大屯火山群，其與岩漿活動有關的地熱活動仍然十分頻繁，由火山噴發記錄看來，大屯山最近的一次噴發是在十萬年前(莊文星、陳汝勤，1989)，

-
1. 國立台灣大學地質科學研究所。
 2. 通信作者。

依傳統火山之定義可以將之歸類為休眠火山。傳統上地質學家認為台灣北部大屯山與東北外海之諸火山島，是屬於琉球島弧西延的一部份（如：莊文星、陳汝勤，1989；陳正宏，1990）；而 Teng *et al.* (1992) 與 Teng (1996) 則更進一步推測，台灣北部的岩漿活動因為沖繩海槽逐漸向西張裂而將停止活動。

最近 Chen *et al.* (1996) 與 Wang *et al.* (1999; 2002) 的研究，則開始挑戰傳統認為台灣北部火山活動是導因菲律賓海板塊隱沒所造成島弧岩漿活動的看法。他們認為這些具有「島弧」地球化學特徵的熔岩，不一定與現在正在進行中琉球海溝隱沒作用所生成的島弧系統直接有關；Wang *et al.* (1999) 指出這些岩漿活動，可能與台灣北部因為碰撞作用所生成的造山崩解張裂作用(extensional collapse)有關。若是此說法是正確的，則傳統認為大屯火山群及北部諸火山島已經逐漸停止活動的看法將必須要作很大的修正，因為台灣北部的張裂活動現正逐步加強發育當中，若是地殼下方有岩漿庫存在，則隨時有可能提供管道給岩漿噴發至地表。

Song *et al.* (2000) 整理現有大屯火山地區的定年結果顯示（圖一），大屯火山群於兩百四十萬年以前開始火山活動，之後沈寂了約一百萬年，於約一百四十萬年前左右有小規模噴發，之間又停止活動約四十萬年，約於一百萬年前大屯火山群開始甦醒，於 70~20 萬年前火山活動達到最劇烈，而於最近停止噴發沈寂至今，只殘餘了現在仍是十分活躍的熱水噴氣活動。由圖一的火山活動分佈圖可以明顯看出，大屯山早期曾經「休眠」了兩次，一次長達約一百萬年，而另一次則休眠了約 40 萬年。最近 Chen and Lin (2002) 在台北盆地鑽井岩芯的松山層沉積物中發現有原生的火山灰，由其礦物成份推測其源自鄰近大屯火山群的噴發產物，他們進一步由松山層的層序地層控制，推論此一噴發事件當年輕於兩萬年前。依照目前大屯山火山噴發的頻率顯示，目前所記錄的最後一次火山噴發至今只有 2 萬年，未來大屯山還要休眠多久無人可以預測，但吾人絕對不能忽略它再次噴發的可能性。



圖一 大屯火山群已知火山岩定年結果 (Song *et al.*, 2000)

近數十年來，許多科學家已經知道藉由火山噴出氣體成份可以推斷出此一火山的岩漿性質及活動性。Payne and Ballard 早在 1940 年便已在夏威夷的 Mouna Loa 噴發前的一個月，發現了火山噴氣中所含 H₂S 有大量異常增加的現象；根據對 Ohshima 火山噴氣之 SO₂ 含量連續監測，Noguchi and Kamiya (1963) 報導其在火山噴發前三個月，SO₂ 含量明顯增加；Ohnishi and Kamada (1981) 則發現溫泉噴氣中的鹵素、氟氣、氯氣含量與火山活動有明顯的關連；Casadevall *et al.* (1983) 發現在 Mt. St. Helens 於 1983 年噴發前，其噴氣中 CO₂ 含量減少；Oskarsson (1984) 則發現火山噴氣中 CO₂/(CO₂+H₂) 之比值在火山噴發前突然減少；以現有之資料顯示，岩漿活動之強弱與其噴氣中所含之氯氣含量與同位素比值有明顯關係，距離火山口越近之噴氣，其氯氣含量與 ³He/⁴He 比值越高，反之則越低；同一地點之氯氣含量與 ³He/⁴He 比值則有隨岩漿活動增強而增加之趨勢 (Sano *et al.*, 1984; Sano and Wakita, 1985; Symonds *et al.*, 1994; Notsu *et al.*, 2001)。由以上各個研究都顯示火山噴氣與溫泉水氣之成分變化與火山活動有明顯的關連。故而火山噴氣與溫泉水氣中之成份與氯氣同位素組成，常被用來作為探討岩漿成因與監測火山活動有效的方法之一。

最近初步的氯同位素研究結果顯示，大屯火山地區的噴氣與溫泉氣仍有源於深部地函源的氣體組成 (Yang *et al.*, 1999；楊燦堯, 2000)，暗示台灣北部地底下仍非常可能有岩漿庫的存在。依據世界火山學會對於活火山新的定義，Song *et al.* (2000) 根據大屯火山群活躍之地熱活動、與可能存在之岩漿庫，推論大屯火山群應仍屬於活火山。故而對大屯火山活動有系統之分析，為一重要而急迫的工作項目；而利用火山噴氣與溫泉氣之成份與同位素組成變化，則為一有效探討火山噴氣成因與監測大屯火山群岩漿活動的方法之一。本研究將分析本地區主要的火山噴氣與溫泉氣體之組成，探討其成因與機制，作為往後長期監測火山活動的一個重要資料庫。

二、氯—碳—氯同位素的地球化學性質

本研究係利用廣為火山氣體研究學者所使用的氯、碳、氯同位素成份來探討大屯火山群之火山氣體來源，故而於本節將簡介這些同位素之地球化學特性，以利後續分析結果之討論。

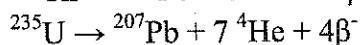
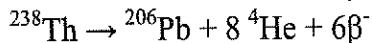
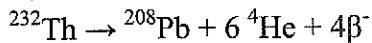
(一) 氯氣的物理化學特性

氯氣屬於稀有氣體，為化學週期表的零族元素。由本身原子的電子排列結構，決定了它的化學性質極為不活潑，難以和其它元素形成化合物。

氯氣是強烈揮發性的氣體，除氬氣以外，是宇宙中最豐富的元素；然而地球上其豐度卻極低，在大氣的濃度只有 5.24×10^{-6} 。由於氯氣的稀少性、與「惰性」，使其成為很好的「追蹤劑」，可以用來作為討論有關的物理過程(physical process)，而不涉及極為複雜的天然化學過程，這樣可使得所提出的各種模式能更為接近真實情況 (Ozima and Podosek, 2002)。

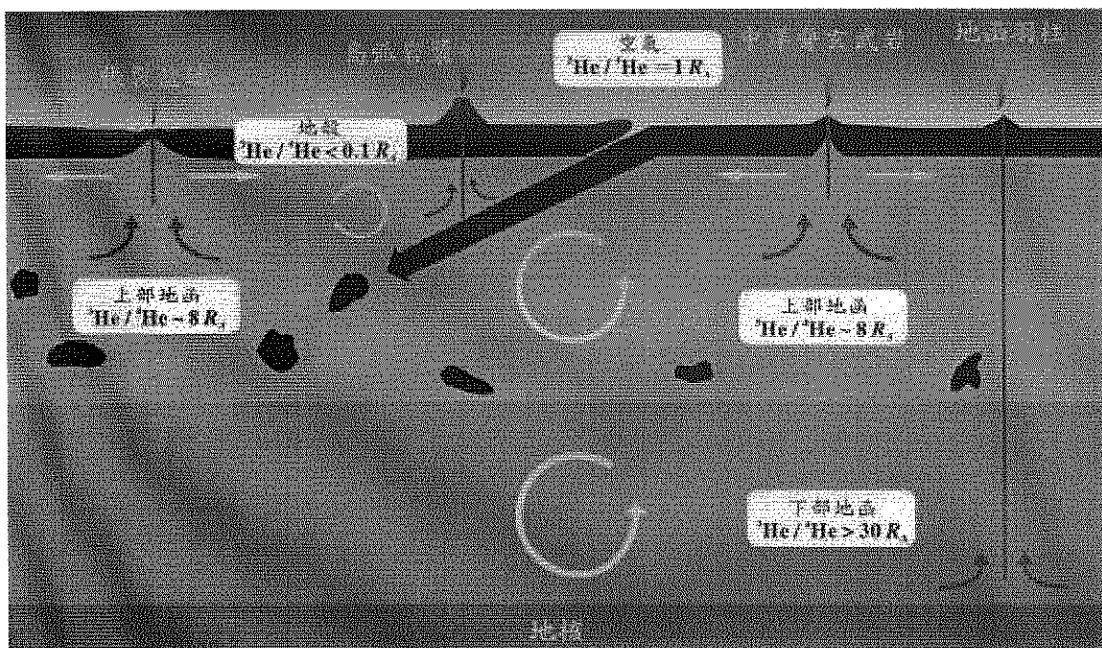
氯在自然界中有兩種穩定同位素：³He 與 ⁴He；另外還有半衰期很短的人造放射性同位素：⁵He、⁶He、⁸He。

岩石和礦物中的⁴He是由鈾和鈈蛻變產生的：



而自然界中除了極少數的放射性反應外 (${}^6\text{Li}(\text{n},\alpha){}^3\text{H} \rightarrow {}^3\text{He}$ 反應除外)，一般自然界裡沒有其它反應可以生成³He。

³He/⁴He 比值在天然樣品中的變化很大，在含鋰礦物中的³He/⁴He 比值可高達 1.2×10^{-5} ，而在鈾與鈈礦物中則極低 ($< 10^{-8}$)。由於空氣中的³He/⁴He 比值很均一 ($1.399 \pm 0.013 \times 10^{-6}$)，故廣被各實驗室用來當為標準樣品，以利不同實驗室間的比對。一般說來，地球經過脫氣作用後，加上地殼中有很豐富的鈾及鈈元素，故而地殼所含³He/⁴He 比值通常會很小 ($0.1 \sim 0.01$ 倍大氣比值； $0.1 \sim 0.01 R_A$ ， R_A 為大氣比值)。而地球剛生成時的原始氦成份 (${}^3\text{He}/{}^4\text{He} > 30R_A$)，則被保存於下部地函中，故而源自於下部地函的物質通常有很高的³He/⁴He 比值，如夏威夷與黃石公園的岩漿與溫泉 ($10 \sim 32R_A$)。分析大量源自於上部地函的海底中洋脊玄武岩 (Mid Ocean Ridge Basalt)，發現他們有非常均一的³He/⁴He 比值 ($8 \pm 1 R_A$)，顯示地函是分層的，可以分為下部地函與上部地函。故而由氦同位素比值，我們可以判斷物質是源自於地球的下部地函 (${}^3\text{He}/{}^4\text{He} > 30R_A$)、上部地函 ($8 \pm 1 R_A$)、或是有地殼 ($0.1 \sim 0.01 R_A$) 與空氣 ($1 R_A$) 的混染 (圖二) (Lupton, 1983)。



圖二 分層的地球有不同的氦同位素比值儲藏庫，而可以用做探討氣體來源依據。

(二) 碳的來源與碳同位素值分佈範圍

為了實驗室之間的對比與溝通的方便，於是將測得的碳同位素比值與一國際標準樣做比

較，並且以 δ 值表示：

$$\delta = \left(\frac{R_e - R_{std}}{R_{std}} \right) \times 10^3 \left(\text{‰} \right)$$

其中 R_e 為檢測樣品中 $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ 的比值； R_{std} 為標準樣的 $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比值； δ 值的單位為 permil (‰)。碳同位素的國際標準樣為 PDB (*Belemnite Americana*, PeeDee Formation, Cretaceous, South Carolina)，本實驗結果皆以 $\delta^{13}\text{C}_{\text{PDB}}$ 的形式表示。

自然界中的碳有生物圈、地殼、地函、大氣圈與水圈的來源(Hoefs, 1997)。沉積物中的有機碳以植物及低階生物為主要來源，並且依沉積環境有不同的組合，例如：陸相沉積物主要來源以陸生植物碎屑為主；湖相沉積物以陸生植物碎屑水生植物與浮游生物為主。而不同沉積物有著不同的碳同位素比值：有機沉積物、石油、煤之 $\delta^{13}\text{C} = -18\text{--}38\text{ ‰}$ ；海洋與非海洋有機體之 $\delta^{13}\text{C} = -7\text{--}30\text{ ‰}$ ；清水沉積石灰岩之 $\delta^{13}\text{C} = +5\text{--}15\text{ ‰}$ ；海洋石灰岩之 $\delta^{13}\text{C} = +2\text{--}2\text{ ‰}$ 。

而火成岩中的碳則以下列三種型態存在：(1) 碳酸鹽類礦物或液包體中的 CO_2 ；(2) 以石墨或鑽石型態出現的元素碳；(3) 有機分子與碳化物之混合物。其中可代表上部地函的碳酸岩 (carbonatite) 與鑽石之 $\delta^{13}\text{C} = -5\text{--}10\text{ ‰}$ ；從噴氣孔或冷卻的熔岩流散逸之火山氣體 ($\delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2} = -2\text{--}6\text{ ‰}$, $\delta^{13}\text{C}_{\text{CH}_4} = -20\text{--}30\text{ ‰}$)。

(三) 氮氣的地球化學特性

地表的氮氣有 99% 以上存在於大氣，或是以溶解的形式存在於海洋中；而地表的氮氣儲藏量主要取決於大氣與地函之間的氣體循環交換程度，雖然氮氣由地函脫氣至大氣的速率已可大致估算出來 (Marty, 1995)，但有關氮氣在隱沒地區的地化性質及其氣體循環模式，仍尚待更詳盡的研究與討論。

近年來氮同位素進一步的研究及其同位素值 ($\delta^{15}\text{N}$) 的準確分析，為我們提供了有力的工具，幫助我們釐清「地函—地殼—大氣」系統中，各端成份所扮演角色之重要性 (Sano *et al.*, 1998; 2001)。

板塊聚合邊界的島弧或是弧後張裂環境，火山活動所噴發的氮氣，其主要來源有以下三個端成份：(1) 大氣 (2) 地函 (3) 沉積物；我們在地表所採集研究的氣體樣本，則是在其噴發過程中由這三個端成份氣體來源的組成。以日本及紐西蘭島弧地區的火山氣體為例，其噴氣成份含有較空氣高的 N_2/Ar 比值，則被認為是由於隱沒的海洋沉積物提供額外的 N_2 供應來源所致 (Matsuo *et al.*, 1978)。

氮同位素 $\delta^{15}\text{N}$ 的定義為： $\delta^{15}\text{N} = [(^{15}\text{N}/^{14}\text{N})_{\text{sample}} / (^{15}\text{N}/^{14}\text{N})_{\text{air}} - 1] \times 1000$ ，單位為 permil (‰)。大氣之氮同位素值 $\delta^{15}\text{N} = 0\text{ ‰}$ ；地函的 $\delta^{15}\text{N}$ 值則有較大的變化範圍，一般皆落在 $-3\text{--}-8\text{ ‰}$ 之間 (Javoy *et al.*, 1986; Marty and Humbert, 1997; Cartigny *et al.*, 1997)，目前大致認為上部地函的 $\delta^{15}\text{N}$ 值大致約為 $-5\pm 2\text{ ‰}$ ；另外一個氮氣來源的端成份為沉積物，分析洋底沉積物及沉積岩的氮同位素，呈現 $\delta^{15}\text{N}$ 富集的情形；其 $\delta^{15}\text{N}$ 值多落於 $+2\text{--}+10\text{ ‰}$ 之間 (Peters *et al.*, 1978)。

由中洋脊玄武岩(MORB)岩樣液包體 (fluid inclusion) 的分析結果發現，氮氣含量與氬氣同位素 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比值呈現良好的正相關 (Marty, 1995)，可見地函來源的氮氣端成份確實存在；而且不同孔隙率(vesicularity)岩樣分析的 $\text{N}_2/^{40}\text{Ar}$ 比值幾乎維持定值，推測認為在部份熔融形成岩漿階段，氮氣與氬氣之地化特性應為相近的，可以一併討論用以探討其成因。

三、採樣與分析方法

(一) 採樣方法

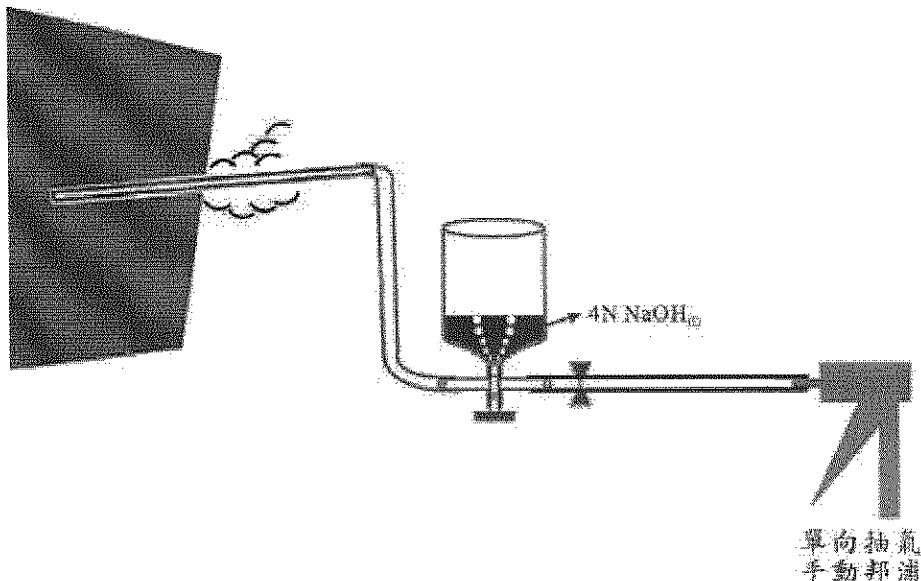
火山噴氣分析最重要的一個步驟，便是採集樣品的方法；能夠避免或減少空氣影響的採樣方法才是好的法子。參考國外成功的方法，我們設計了一套採集火山噴氣與溫泉氣泡的方法。首先在室內將真空採樣瓶事先抽真空，以不鏽鋼管插入噴氣口，先將導管內的空氣抽淨，俟火山噴氣充滿導管後，便可以打開預抽好真空的採氣瓶閥門，收集噴氣帶回實驗室中分析成份。而溫泉水氣泡，則選擇氣泡茂盛的地方，先將漏斗置於沒有冒氣泡水中方，然後用手動抽氣邦浦將整個導管空氣抽淨，亦將溫泉水抽滿整個導管，然後便可將漏斗移至主要的冒氣泡處，罩住氣泡後開始利用排水集氣法收集氣體，待整個導管皆已充滿氣泡後，便可打開採氣瓶閥門收氣。通常我們每個地點都最少收集兩個採氣瓶，以確保採樣成功並可相互比對分析結果。

大屯火山群火山氣體中主要是以水蒸氣及二氧化碳為主 ($\text{H}_2\text{O} + \text{CO}_2 > 90\%$)，其次為硫化氫及二氧化硫等硫化物氣體及氮氣，而硫化氫及二氧化硫是相當易溶於水的噴氣組成氣體；因此，在採集火山氣體樣本時，易因水氣不易完整收集，或是大部分 H_2S 及 SO_2 溶於水中，易造成分析氣體組成時的顯著的負偏差（使分析值遠較真值為低）。

國內學者最近亦曾嘗試利用鹼液方法來採集火山氣體樣品並分析其成份 (王季蘭, 1999)，可惜因為未能分析未溶於鹼液氣體樣品成份，而無法代表完整火山氣體成份。為了能將火山氣體中各種不同化學特性的氣體組成 (H_2O 、 CO_2 、 H_2S 、 SO_2 、 CH_4 、 HCl 、 N_2 、 O_2 、 H_2 、 He 、 Ar 、 CO ...) 做準確的分析，我們參考各國著名火山研究實驗室採樣方法，發展一套較為完善的採樣方法。此方法由紐西蘭化學家 Giggenbach (1975) 首先發展出，故此種採樣瓶以其名稱之吉更巴哈採樣瓶 (Giggenbach Bottle)，簡稱「吉氏採樣瓶」；此方法之原理及採樣過程簡述如下：

先於吉氏採樣瓶中置入約 50 毫升的鹼液 (4N NaOH)，並預將採樣瓶抽成真空。採集火山氣體樣品時，將吉氏採樣瓶倒立接上採樣管線中，以手動幫浦將管線中的空氣抽離，並讓火山噴氣大量流洗採樣管線，以使降低採樣管路中空氣的污染比例至最低；接著採樣瓶與幫浦相連的一端封閉，緩緩轉開瓶栓閥，使火山噴氣大量通過鹼液進入瓶中 (如圖三)。採樣過程需觀察吸入鹼液氣泡的大小與流量，以判定吉氏採樣瓶收集樣本氣體的完成與否；採樣過程中鹼液可富集火山氣體中 H_2O 、 CO_2 、 H_2S 、 SO_2 、 HCl 等氣體，使之先溶解於鹼液中，故而體積明顯增加；其它不易溶解的氣體如(CH_4 、 N_2 、 H_2 、 He 、 Ar 、 CO 等)則可相對富集於採樣瓶鹼液上方部分的空間中。採樣時間依各地之噴氣流量與組成不同，可由數分鐘至 30 分鐘以上。返回實驗室後，再分別以氣相層析儀(Gas chromatography)、離子層析儀(Ion Chromatography)與化學分析方法來分析吉氏採樣瓶底部鹼液與鹼液上方氣體組成，如此可獲得更完整的火山氣體組成。

利用吉氏採樣瓶採集火山氣體的優點為能夠完整且大量的收集火山氣體，對於原本含量稀少的氮及氮氣有相當好的富集效果；相對於傳統方法甚至可達到數十倍的富集程度。但另一方面，由於要分別分析氣體及溶液的組成，必須使用到氣相層析儀、與離子層析儀等儀器及傳統化學分析方法，使得一個樣品的總分析時程相對較長。



圖三 利用預填鹼液之吉氏採樣瓶採集火山氣體管線作業示意圖

(二) 四極桿質譜儀

利用真空採樣瓶所採得之火山氣體樣品，可以利用四極桿質譜儀快速的分析出主要氣體組成，由樣品中所含氧氣含量多寡，我們可以判斷出樣品是否受到空氣混染，以決定是否繼續進行同位素成份分析。本節便針對本研究所使用之四極桿質譜儀分析原理做較詳細之說明。

殘餘氣體分析儀 (Residual gas analyzer; SRS RGA100) 為一利用四極桿過濾器 (quadrupole filter) 在高真空環境下，分離出不同離子的質荷比 (m/e)，以偵測出不同的氣體成份，並利用分壓分析 (PPAs: partial pressure analysis) 來達到定量的分析目的。

因為殘餘氣體分析儀需要在高真空環境下 ($<1 \times 10^{-5}$ torr) 才能操作，所以一般接近大氣壓力之氣體樣品無法直接送進分析儀中分析，而需要經過適當的減壓過程，才能分析其成份。整個減壓與維持高真空系統之管線包含：純化線、機械泵、渦輪分子泵、真空計、真空閥門與真空計等，加上分析儀便通稱為四極桿質譜儀分析系統 (quadrupole mass spectrometry)。

氣體樣品進入分析儀時，會被高速電子撞擊成不同質量的帶正電離子，每種氣體在特定之儀器操作環境下會有不同之破裂百分比，表一為常見無機氣體成份，在進入分析儀被電子撞擊後的各質量破碎模式 (fragmentation pattern)；每部儀器對在不同操作環境下，對不同氣體成份可能有不同質量破碎模式，需要用標準氣體實際量測才得以進一步確定。

表一 氣體進入四極桿質譜儀分析器後各質量破碎之百分比

氣體種類	質荷比(m/e) (百分比%)	m/e (%)	m/e (%)	m/e (%)	m/e (%)	m/e (%)	m/e (%)
CO ₂	44 (78.4)	28 (8.6)	16 (7.1)	12 (4.7)	22 (~3)	45 (0.8)	46 (0.4)
CH ₄	16 (45.9)	15 (39.5)	14 (7.3)	13 (3.7)	1 (1.8)	12 (1.1)	17 (0.6)
N ₂	28 (92.6)	14 (6.7)	29 (0.7)				
H ₂ O	18 (74.4)	17 (17.1)	16 (8.2)	20 (0.2)	19 (0.1)		
O ₂	32 (89.4)	16 (10.2)	34 (0.4)	33 (0.1)			
Ar	40 (90.5)	20 (9.0)	36 (0.3)	38 (0.1)	18 (0.1)		
H ₂	2 (95.2)	1 (4.8)					
He	4 (100)						
CO	28 (91.6)	12 (4.6)	16 (1.8)	29 (0.9)	14 (0.9)	30 (0.2)	
SO ₂	64 (57.8)	48 (28.3)	32 (5.8)	16 (2.9)	66 (2.9)	50 (1.2)	65 (0.6)
H ₂ S	34 (50.6)	32 (22.3)	33 (31.3)	1 (2.5)	36 (2.0)	35 (1.3)	

質譜儀分析中，通常我們用質量與電荷比（質荷比；m/e）代表某物質之分子量（假設大部分粒子都被電子撞擊為帶一價之離子）；由表二顯示在四極桿質譜儀中，有些粒子會被撞擊成更小的質荷比，因此分子量大的氣體成份，有很大機率會干擾分子量小的氣體成份分析。如甲烷（分子量=16），便有許多氣體會產生質荷比為16的粒子（如二氧化碳、氧氣、一氧化碳、硫化氫、二氧化硫等），而可能干擾甲烷之分析，所以我們便取 CH₃⁺（質荷比=15）代表甲烷成份（因為沒有其它主要無機氣體成份會產生質荷比=15的粒子），之後再將其換算成甲烷之總含量。此外，氮氣與一氧化碳有相同之分子量，於四極質譜儀中並無法分辨，所幸一般天然氣體樣品中所含氮氣含量(>2%)遠大於一氧化碳含量(<500ppm)，所以我們可以用質荷比28代表氮氣成份。

表二 各採樣點氣體樣品利用四極桿質譜儀分析去水後之體積百分比平均組成

採樣地點	CH ₄	N ₂	O ₂	H ₂ S	Ar	CO ₂	SO ₂
大油坑火山噴氣(DYK)	0.29	10.97	2.18	0.88	0.12	85.79	0.03
中山樓溫泉氣泡(CSL)	0.55	7.74	1.25	11.26	0.12	79.08	0.11
四磺坪溫泉氣泡(SHP)	1.06	5.07	1.03	6.77	0.05	86.02	0.07
硫磺谷溫泉氣泡(LHK-2)	0.99	5.74	1.16	6.07	0.08	85.97	0.09
硫磺谷火山噴氣(LHK-1)	0.74	7.63	1.36	12.98	0.09	77.21	0.13
冷水坑火山噴氣(LSK)	0.53	8.25	1.29	17.96	0.10	71.88	0.24
小油坑火山噴氣(SYK)	2.27	7.25	1.48	5.53	0.09	83.37	0.06
馬槽溫泉氣泡(MS)	2.88	4.74	1.01	2.03	0.06	89.28	0.04
地熱谷溫泉氣泡(TYK)	0.63	4.91	1.14	7.99	0.14	85.19	0.13
八煙噴氣(BY)	0.02	0.01	0.00	0.61	0.00	99.28	0.08
大埔溫泉氣泡(DP)	0.91	0.12	0.43	0.01	0.03	98.49	0.01

無可避免地，有些成份會被其它氣體成份所產生之其它峰值干擾，如氮氣便會受到二氧化碳所產生約8.6%質荷比28的峰值干擾；氧氣則會受到硫化氫、二氧化硫之干擾，所以分析成份必需針對可能干擾的峰值加以校正。因為本研究所分析氣體樣品皆含有高量之二氧化碳，對

氮氣含量分析值會產生極大干擾，所以其分析值皆需經過二氧化碳之校正才行；此外，本研究分析樣品中含有較高之硫化氫與二氧化硫含量，所以必需特別對氯氣分析值做特別之校正。

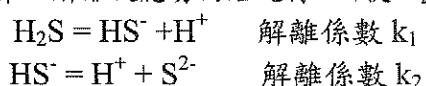
樣品分析前，我們都需先量測空白樣品各成份之背景值，以做空白值校正。氣體放入真空純化線前，需確定前次樣品已被完全抽離；俟管線真空系統達 $<5 \times 10^{-7}$ torr 壓力時，才可以將樣品放入管線分析。利用可微調真空閥門 (variable valve) 調整，使進入四極質譜儀的氣體樣品壓力可以穩定地維持在約為 5×10^{-6} torr，之後即可進行分析。通常每 6-10 秒即可快速掃瞄所有氣體成份一遍，並記錄其個別分壓；每次分析通常取 10-15 筆資料加以平均，經過空白值校正後，由所有氣體成份分壓總和求得各氣體成份所佔之氣體分壓百分比。每批樣品分析時皆固定分析已知成份之標準氣體比對校正，以確保樣品分析準確度。一般說來，整體分析誤差小於 5%；唯若個別氣體成份小於 1% 時，誤差可能達 10%。

(三) 火山氣體分析步驟

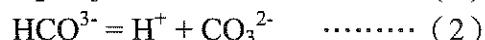
分析火山氣體中之氮同位素與所含二氧化碳之碳同位素比值成份，只需利用真空採樣瓶即可，而無需利用吉氏採樣瓶富集所需分析的氣體樣品，至於氮、碳、氮同位素比值詳細的純化與分析分析步驟，已詳述於其他之論文中（楊燦堯，2000；謝佩珊，2000；何孝恆，2001）。整體說來， $^{3}\text{He}/^{4}\text{He}$ 比值之保守分析誤差為 2.5 %；而碳、氮同位素比值分析誤差則為 0.01‰。

利用吉氏採樣瓶所採集之火山氣體樣品，攜回實驗室後首先需要量測採樣後所增加之重量（代表所採集火山氣體樣品總量），然後先利用氣相層析儀分析非溶解性氣體如 CH₄、N₂、H₂、He、Ar、CO 等；因若先分析鹼液會較為困難，且易致樣品損耗及空氣污染樣品。氣體樣品若須進行其他同位素分析時，仍應先以氣相層析儀分析氣體樣品後，再經真空系統分裝至另外採樣瓶後進行分析。

在非溶解性氣體成份分析完畢後，即展開溶解於鹼液中的樣品分析。鹼液中主要溶解的氣體成份有 H₂O、CO₂、H₂S、SO₂、SO₃、HCl 等，其中硫化氫雖解離係數 k₂ 很小，可是因為 H₂S 溶解於強鹼液中，大量的 OH⁻ 使第二解離反應易向右進行，而使 H₂S 可以 S²⁻ 物種存在於鹼液中：



二氧化碳溶於鹼液中形成 CO₃²⁻，因為



而上述反應與 pH 值關係密切，當 pH 值介於 3.8-8.3 時，反應以式 (1) 為主，溶液中以碳酸氫根離子 (HCO₃³⁻) 存在；若 pH 值 > 8.3 時，式 (2) 則可以持續進行，故而溶液中以碳酸根離子 (CO₃²⁻) 存在。所以，吾人可藉由滴定 pH=3.8 到 pH=8.3 的 HCO₃³⁻ 含量，得知溶入鹼液中 CO₂ 的量。

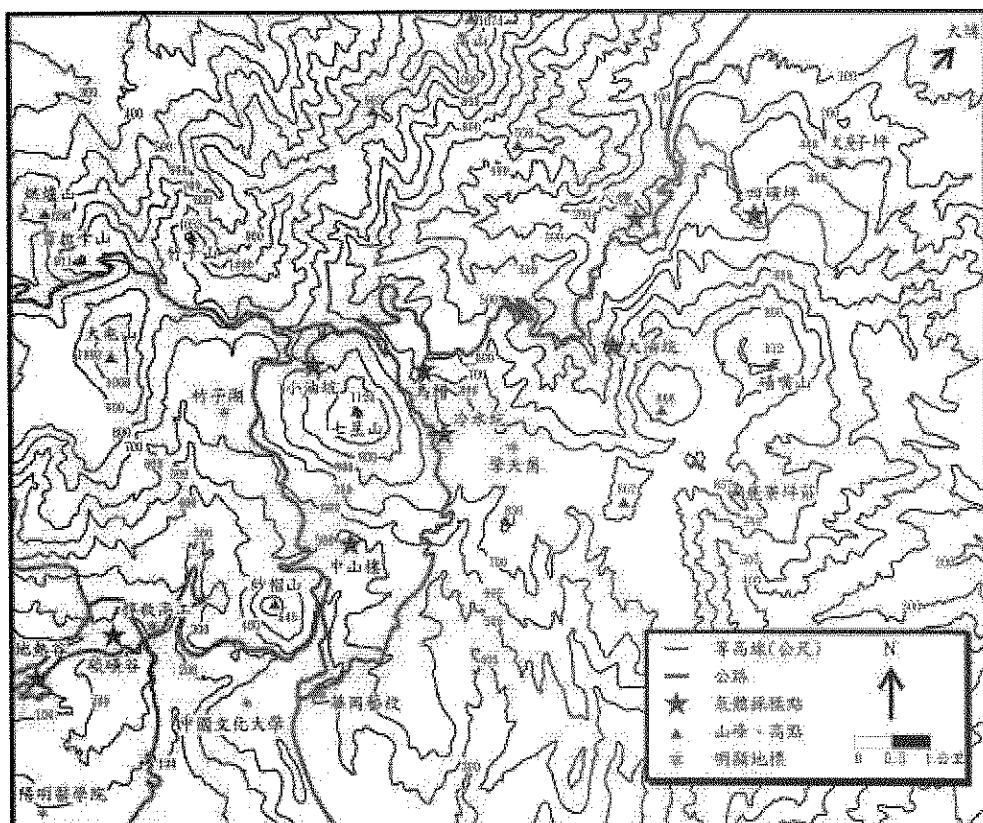
另外鹼液中之 SO₄²⁻ 濃度可使用離子層析儀 (IC, ion chromatography) 來偵測其含量；而 Cl⁻ 濃度的含量之分析則以硝酸汞滴定的方式進行。

對於許多火山噴氣分析實驗室中的工作而言，經常耗費許多資源在單離出個別的硫化物。因為硫化物 H_2S 、 SO_3 、 S_8 、 SO_2 之間快速的轉換、含量易受採樣技巧、採樣管路及採樣環境影響很明顯，所以常見省略元素硫僅只有 H_2S 、 SO_2 出現在報告上。我們採用「平均氧化態」(Average Oxidation State) 的概念(Giggenbach, 1975)，來描述火山噴氣中 H_2S 、 SO_2 、 SO_3 及 S_8 硫化物組成，並以其各個氧化態的計算結果來估計 H_2S 、 SO_2 的含量。

四、分析結果

(一) 火山噴氣主要氣體組成

本研究長期分析大屯火山地區之火山噴氣及溫泉氣泡，主要採集地點有地熱谷 (TRK)、硫磺谷 (LHK)、中山樓 (CSL)、冷水坑 (LSK)、小油坑 (SYK)、馬槽 (MS)、大油坑 (DYK)、四磺坪 (SHP) 等八處(圖四)，我們亦分析了金山大埔溫泉 (TP) 與八煙噴氣 (BY) 之代表性溫泉氣泡組成；其中硫磺谷同時有火山噴氣 (LHK-1) 與溫泉氣泡 (LHK-2) 兩類氣體樣品，可幫助我們了解同一地點之火山噴氣與溫泉氣泡是否會有不同之分析結果。



圖四 本研究火山氣體採樣地點

表二整理了利用四極桿質譜儀分析各採樣點氣體樣品去水後之體積百分比平均組成，由分析結果可以看出，各採樣點去水後之氣體組成皆以二氧化碳為主（72%~99%），氮氣與硫化氫(H_2S)含量次之，而二氧化硫(SO_2)含量則僅佔少量。此一組成與世界其他地區之低溫火山噴氣組成相近。

一般說來，火山氣體中含有極低之氧氣含量（<1%），而樣品分析結果中所含過量之氧氣成份，一般相信是源自於採樣過程與分析過程中空氣的混染，空氣混染會造成原本氣體樣品中氮氣、氧氣與氬氣相對體積百分比大幅的增加，同時造成其它主要成份（如：二氧化碳與硫化氫）相對含量大幅的減少，所以由樣品中氧氣含量之多寡，我們可以判斷出空氣混染程度。一般說來，當氧氣含量大於3%去水後體積百分比時，便代表此樣品已受到空氣嚴重混染，不能代表真正樣品氣體組成。由分析結果看出，氧氣含量影響了同一地區氣體樣品中組成含量，故當需要利用氣體成份討論氣體成因時，要特別注意空氣混染對於樣品可能的影響。

在火山噴氣量較少的地點所採得的樣品，於採樣過程中通常有較大機會受到空氣的混染，而利用排水集氣法所採集的溫泉氣泡樣品，往往比同一地點所採得之火山噴氣樣品有較低的氧氣含量，代表樣品受到較少程度的空氣混染。

值得注意的是同一地點之火山噴氣樣品，明顯比溫泉氣泡樣品有較高的硫化氫與二氧化硫含量（如硫磺谷），推測是因為硫化物有非常高的溶解度所致。當火山噴氣逸出地表前，若先通過溫泉水，則硫化物會大量的溶於溫泉水中，只剩下過飽和的硫化物與其他不易溶於水的氣體成份得以逸出地面。所以溫泉氣泡中所含之硫化物含量，要遠低於直接由火山噴氣所收集得樣品的含量；暗示溫泉氣泡可能無法代表火山氣體原本之組成，唯當氣體組成用於長期火山活動之監測時，溫泉氣泡成份之變化則仍可以反應出原始火山氣體組成之變化。

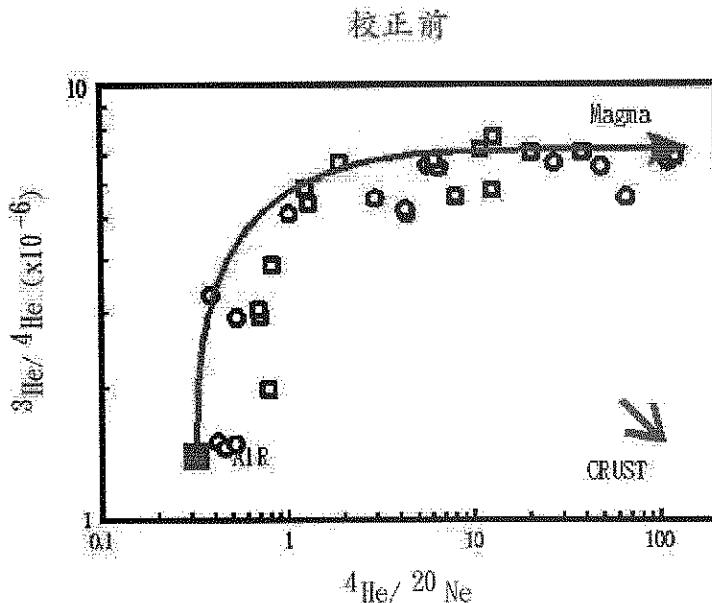
由表二之分析結果可以看出，金山大埔溫泉氣泡有最低的硫化氫與二氧化硫含量，可能代表著本地區已遠離了大屯火山區地底下岩漿庫的逸氣影響範圍，因而有最低的硫化物組成；但有最大火山噴氣量的大油坑噴氣樣品，亦有極低之硫化物含量，由後面氦同位素比值分析結果顯示，有高的氦同位素比值之樣品卻往往沒有最高之硫化物含量，顯然單由硫化物含量可能無法直接反應出不同地區岩漿源氣體組成。

（二）氦同位素分析結果

自1999年一月起，我們便定期赴大屯火山地區主要噴氣地點採集樣品，帶回實驗室直接分析其氦同位素比值。

因為氦同位素 $^3He/^4He$ 比值在大氣、地殼、地函物質中的差異極大，且氦氣在空氣中的濃度低、溶解度極低且不易與其他物質產生化學反應，最能直接反應出源自於地函的岩漿源組成訊號，因此我們希望能藉由連續監測氣體中氦同位素比值成份，達到監測台灣北部大屯火山群底下之岩漿庫活動情形，並提供日後研究本區域內的火山與岩漿活動者重要之參考資料。

若將分析之氦同位素比值結果與 $^4He/^20Ne$ 作圖（圖五），可發現我們所採集的樣品分佈於岩漿端成份與空氣的混合線上；由圖中可以看出，地殼混染作用在本地區的火山噴氣與溫泉氣泡來源中並未扮演主要的角色。



圖五 大屯火山火山氣體 ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ 與 ${}^4\text{He}/{}^{20}\text{Ne}$ 作圖，可以看出地殼(Crust)端成份在本地區之火山氣體來源中並未扮演主要角色。

雖然運用了所有可能的方法盡量減少採樣時空氣的混染，由國外的採樣經驗得知，要百分之百採得火山噴氣而完全沒有空氣的混染，幾乎是不可能的。幸好我們可以經由所採集氣體的組成，預先判斷是否有大量的空氣混染。一般說來，火山噴氣中所含的氧氣含量很低($<1\%$)，而 He/Ne 比值很高($\text{He/Ne} > 1000$)；反之空氣中的氧氣量極高，而 He/Ne 比值很低($\text{He/Ne} \approx 0.3$)。所以，我們可以透過氧氣含量與 He/Ne 比值，來判斷我們所採集的樣品是否受到空氣的混染。

雖然要百分之百避免空氣的混染幾乎是不可能的，然而我們卻可以想辦法將所分析的數據，將源自於空氣的部分組成予以扣除，而校正得到真正源自於火山噴氣的成份。我們可以合理的假設，所採集的樣品中分析到的 Ne 皆來自於空氣（因為空氣中的 ${}^{20}\text{Ne}$ 含量遠遠高於火山噴氣含量），所以我們若是可以得知空氣的 ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ 與 He/Ne 比值，我們就可以得到校正的 ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ 比值(Poreda and Craig, 1989)。值得注意的是，若是空氣的混染太大時($\text{He/Ne} < 1$)，這樣的校正便沒有意義；詳細校正公式推導已另撰文報導(楊燦堯, 2000)。

採集樣品時，在同一地點我們盡量都能採集到火山噴氣與溫泉氣泡的樣品，以供比對。所得結果經過空氣校正以後，顯示相同時間在同一地點所採得的火山噴氣與溫泉氣泡，其校正後的氮同位素比值皆在實驗誤差範圍內，且不因採樣位置不同而有成份的變化，表示同一採樣地區內之火山噴氣與溫泉氣泡有相同氮同位素來源。

表三整理了從1999年以來，本研究所分析的氮同位素比值平均結果。由表中可以看出，大油坑在本研究中有最高的氮同位素比值，已經非常接近（甚至超過）鄰近地區（如日本、菲律賓）現生火山地區噴氣的氮同位素比值(Poreda et al., 1988)，顯示目前大油坑地區的噴氣已接近岩漿源噴氣的氮同位素組成，非常值得我們持續監測。

表三 各採樣點氣體樣品之平均氦同位素比值分析結果

採樣地點	樣品種類	${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$	R_c/R_A^*	$\pm 1\sigma$	${}^4\text{He}/{}^{20}\text{Ne}$	[${}^4\text{He}$] ppm
大油坑 (DYK)	火山噴氣	8.92×10^{-6}	6.67	0.30	15.3	13.4
中山樓 (CSL)	溫泉氣泡	8.05×10^{-6}	6.00	0.30	11.7	24.7
四礦坪 (SHP)	溫泉氣泡	7.81×10^{-6}	5.87	0.38	19.0	10.3
硫磺谷 (LHK-2)	溫泉氣泡	7.88×10^{-6}	5.85	0.31	13.0	9.3
硫磺谷 (LHK-1)	火山噴氣	7.77×10^{-6}	5.81	0.29	14.9	7.1
冷水坑 (LSK)	火山噴氣	7.36×10^{-6}	5.61	0.30	17.2	7.49
小油坑 (SYK)	火山噴氣	6.74×10^{-6}	5.11	0.26	13.5	8.28
大 埔 (DP)	溫泉氣泡	6.78×10^{-6}	4.91	0.18	64.3	39.4
八 煙 (BY)	火山噴氣	6.61×10^{-6}	4.85	0.18	17.5	13.4
馬 槽 (MS)	溫泉氣泡	6.41×10^{-6}	4.73	0.28	17.7	12.3
地熱谷 (TYK)	溫泉氣泡	5.52×10^{-6}	4.73	0.30	2.1	2.25

* 本欄為經過空氣校正的氦同位素比值

(三) 碳與氮同位素比值分析結果

分析結果顯示，大屯火山地區氣體樣品之碳同位素比值 ($\delta^{13}\text{C} = -3.0 \sim -7.3 \text{ ‰}$) (表四)，與地函源物質 ($\delta^{13}\text{C} = -2 \sim -6 \text{ ‰}$) 相近；而本研究初步分析氮同位素比值為 $\delta^{15}\text{N} = -0.2 \sim 1.0 \text{ ‰}$ ，與環太平洋島弧岩漿之氮同位素比值相近，顯示大屯山地區氣體來源確切有相當比例源自於地殼深部之地函源區。

表四 各採樣點代表性氣體樣品之碳、氮同位素比值分析結果

採樣地點	標本編號	採樣日期	標本種類	$\delta^{13}\text{C}$ (‰)	R_c/R_A	${}^4\text{He}/{}^{20}\text{Ne}$	[${}^4\text{He}$] ppm
硫磺谷 (LHK)	LHK-2-1	07/19/99	溫泉氣泡	-4.96	6.00	11.0	-
	LHK-1-1	11/22/99	火山噴氣	-5.63	5.27	26.3	7.33
	LHK-2-1	12/04/99	溫泉氣泡	-3.15	5.62	15.7	8.20
	LHK-2-1	12/04/99	溫泉氣泡	-5.51	5.62	15.7	-
小油坑 (SYK)	SYK-1-3	06/14/99	火山噴氣	-5.93	5.43	13.0	-
	SYK-1-2	07/19/99	火山噴氣	-5.15	6.21	0.57	-
	SYK-1-1	12/04/99	火山噴氣	-3.40	4.88	16.9	8.91
大油坑 (DYK)	DYK-1-2	07/19/99	火山噴氣	-6.58	6.65	6.76	-
	DYK-1-2	07/19/99	火山噴氣	-7.28	6.65	6.76	-
	DYK-1-2	12/04/99	火山噴氣	-6.34	6.79	7.72	12.9
馬槽 (MS)	MS-2-2	06/14/99	溫泉氣泡	-5.40	4.84	12.0	-
	MS-2-3	07/19/99	溫泉氣泡	-4.98	4.75	14.2	-
	MS-2-2	12/04/99	溫泉氣泡	-5.56	4.55	8.83	9.93
中山樓 (CSL)	CSL-2-2	12/29/99	溫泉氣泡	-3.04	5.92	8.82	8.20
地熱谷 (TYK)	TYK-1-2	12/04/99	火山噴氣	-3.73	4.49	2.39	2.85
四礦坪 (SHP)	SHP-2-2	12/04/99	溫泉氣泡	-3.28	5.58	20.1	11.7

(四) 利用鹼液採集氣體成份分析結果

表五為利用本研究新發展出來的火山氣體採樣方法與分析步驟所得之結果。由表六結果可以看出，大屯火山區之噴氣成份，絕大部分為水氣(>95%)；而溫泉氣泡中所含之水氣含量就大幅降低(<65%)。

表五 利用鹼液法採樣之氣體成份分析結果

採樣地點	標本編號	樣品種類	H ₂ O	CO ₂	N ₂	O ₂	Ar	CH ₄	H ₂	He	CO	H ₂ S	SO ₂	HCl
單位: mmole														
地熱谷	020115TYK-2-G	氣泡	8.46	45.8	2.84	0.18	0.075	0.22	0.88	---	---	4.38	0.67	0.20
硫磺谷	020115LHK-1-G	噴氣	2631	83.0	2.52	0.40	0.039	0.58	0.0005	0.0011	0.0002	9.22	---	0.12
硫磺谷	020115LHK-2-G	氣泡	122	59.1	2.36	0.11	0.036	0.71	0.0004	0.0012	---	4.60	---	0.08
冷水坑	020115LSK-1-G	噴氣	2242	84.6	1.98	0.13	0.029	0.43	0.065	0.0047	---	16.1	0.09	0.40
馬槽	020116MS-2-G	氣泡	35.6	80.1	1.90	0.28	0.036	1.75	0.089	0.0015	0.00045	1.16	2.05	0.05
小油坑	020116SYK-1-G	噴氣	2837	79.0	1.52	0.17	0.027	1.59	0.12	0.0009	---	2.77	---	0.10
大油坑	020115DYK-1-G	噴氣	2809	45.8	1.48	0.17	0.029	0.045	0.0003	0.0009	---	0.70	---	0.16
四磺坪	020116SHP-1-G	噴氣	2197	67.9	1.97	0.25	0.036	0.57	0.003	0.0011	0.0001	5.19	3.23	0.05
各氣體成份之體積比			%	%	%	%	%	%	ppm	ppm	ppm	%	%	%
地熱谷	020115TYK-2-G	氣泡	13.28	71.88	4.45	0.28	0.12	0.35	13800	---	---	6.87	1.06	0.32
硫磺谷	020115LHK-1-G	噴氣	96.48	3.04	0.09	0.01	0.001	0.02	0.2	0.4	0.07	0.34	---	0.004
硫磺谷	020115LHK-2-G	氣泡	64.59	31.24	1.25	0.06	0.02	0.38	2.1	6.5	---	2.43	---	0.04
冷水坑	020115LSK-1-G	噴氣	95.58	3.61	0.08	0.01	0.001	0.02	27.7	2.0	---	0.68	0.004	0.02
馬槽	020116MS-2-G	氣泡	28.96	65.14	1.55	0.22	0.03	1.43	72.0	2.0	3.7	0.94	1.67	0.04
小油坑	020116SYK-1-G	噴氣	97.08	2.70	0.05	0.01	0.001	0.05	40.5	0.3	---	0.09	---	0.004
大油坑	020115DYK-1-G	噴氣	98.31	1.60	0.05	0.01	0.001	0.002	0.1	0.3	---	0.02	0.14	0.006
四磺坪	020116SHP-1-G	噴氣	96.52	2.98	0.08	0.01	0.002	0.02	1.0	0.5	0.04	0.23	---	0.002

利用鹼液採樣之分析結果與真空瓶採樣利用四極桿質譜儀分析之結果大致相符，去水後之氣體成份(表六)則皆以二氧化碳為主要成份，硫化物(硫化氫+二氧化硫)與氮氣成份次之。由表二與表六分析結果可以發現，利用真空瓶採樣法所採集之氣體成份，有較高的氧氣與氮氣含量，暗示在採樣過程當中比鹼液法受到更多的空氣混染，也影響了其它氣體成份之分析結果；也驗證利用鹼液法採集樣品之分析結果，不但能夠分析完整之氣體成份以外，降低空氣混染程度，更能代表火山氣體原始組成。

值得注意的是，地熱谷之溫泉氣泡中含有高達1.6%之氮氣含量與最高的氮氣含量，表示本地區之氣體來源比其它地點之噴氣有更多的地殼來源比例。此外，冷水坑之噴氣量並不大，可是卻含有最高的硫化物(H₂S+SO₂)成份比例；反之，具有最高氮同位素比值與最大噴氣量之大油坑噴氣，卻是有最少之硫化物(H₂S+SO₂)成份比例(表三與表六)。

表六 利用真空瓶採樣與鹼液法採樣分析之除水後結果比較

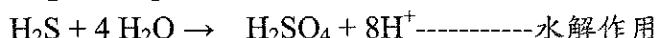
採樣地點	標本編號	樣品種類	CO ₂	N ₂	O ₂	Ar	CH ₄	H ₂	He	CO	H ₂ S	SO ₂	HCl
		鹼液法採樣	%	%	%	%	%	ppm	ppm	ppm	%	%	%
地熱谷	020115TYK-2-G	氣泡	82.89	5.14	0.33	0.14	0.40	15900	---	---	7.92	1.22	0.36
硫磺谷	020115LHK-1-G	噴氣	86.56	2.63	0.42	0.04	0.61	5.7	11.3	2.1	9.61	---	0.12
硫磺谷	020115LHK-2-G	氣泡	88.21	3.52	0.16	0.05	1.06	6.0	18.4	---	6.86	---	0.12
冷水坑	020115LSK-1-G	噴氣	81.51	1.90	0.12	0.03	0.42	626	45.0	---	15.48	0.09	0.38
馬槽	020116MS-2-G	氣泡	91.69	2.18	0.32	0.04	2.01	101	16.8	5.1	1.33	2.35	0.06
小油坑	020116SYK-1-G	噴氣	92.62	1.78	0.20	0.03	1.87	1386	10.9	---	3.24	---	0.12
大油坑	020115DYK-1-G	噴氣	94.66	3.06	0.35	0.06	0.09	6.6	18.8	---	1.45	---	0.33
四磺坪	020116SHP-1-G	噴氣	85.74	2.49	0.32	0.05	0.72	28.6	14.3	1.3	6.55	4.08	0.06
		真空瓶採樣平均氣體成份體積百分比											
地熱谷	TYK	氣泡	85.19	4.91	1.14	0.14	0.63				7.99	0.13	
硫磺谷	LHK-1	噴氣	77.20	7.63	1.36	0.09	0.74				12.98	0.13	
硫磺谷	LHK-2	氣泡	85.97	5.74	1.16	0.08	0.99				6.07	0.09	
冷水坑	LSK	噴氣	71.88	8.25	1.29	0.10	0.53				17.96	0.24	
馬槽	MS	氣泡	89.28	4.74	1.01	0.06	2.88				2.03	0.04	
小油坑	SYK	噴氣	83.37	7.25	1.48	0.09	2.27				5.53	0.06	
大油坑	DYK	噴氣	85.79	10.97	2.18	0.12	0.29				0.88	0.03	
四磺坪	SHP	噴氣	86.02	5.07	1.03	0.05	1.06				6.77	0.07	

五、討論

(一) 氣體樣品中之硫化物含量變化

大屯火山地區之火山噴氣與溫泉氣體中包含了多種不同化學特性的氣體組成，其中水氣佔了95%以上。我們對水氣以外氣體成份作連續的監測分析，觀察其變化趨勢，整體而言，大屯地區火山氣體去水後之氣體組成以二氧化碳為主(72~99%)，其次為硫化物氣體(H₂S+SO₂~0.7~18.2%)及氮氣(0~11%)（表六）；此種氣體組成為典型的低溫火山氣體組成。

基本上³He/⁴He比值代表火山噴氣中岩漿源氣體的比例高低，也似乎應與樣品所含之硫化物氣體濃度成正相關。但由表三與表六得知，氦同位素比值與各地區之硫化物總量（硫化氫+二氧化硫）並未有明顯正比關係，推測主要會影響硫化物氣體含量的原因可以下列三個化學式表示：



分析結果顯示，³He/⁴He比值最高的大油坑，其硫化物氣體含量卻是大屯火山地區各噴氣點中相對含量較低的。推測可能的原因是大油坑的固體硫產量豐富，噴氣中的H₂S與SO₂於噴發接近地表時反應生成固體硫，即硫化作用旺盛，使得H₂S與SO₂同時大量減少。

因為水解作用會消耗硫化物氣體之含量，若是H₂S的水解程度大於SO₂，則水解後的含量趨勢線斜率會增大；反之，若是SO₂的水解程度大於H₂S，則趨勢線斜率會減小。相對於水解作用，產硫作用對於硫化物氣體的消耗則較為規則，若是火山噴氣中的硫化物氣體完全受控於產硫作用，則產硫作用影響後的硫化物含量似乎應該沿著斜率為2的趨勢線變化。因此，若我

們能得知火山氣體噴發前的 H_2S 與 SO_2 含量（比例），則可進一步釐清水解作用與產硫作用對火山地區噴氣中硫化物氣體成份的影響程度。

由上述討論，加上野外觀察結果，我們推測認為大屯火山地區各火山氣體噴出點，應同時進行著不同程度的產硫作用與水解作用。若產硫作用旺盛，則有較大之固體硫結晶產出（如：大油坑、硫磺谷過去之產硫大宗）；若水解作用旺盛，則推斷當地水分之硫酸含量應較其它地點為高，此點可以由其溫泉水有較低之 pH 值得到證實（陳耀麟，2002）。

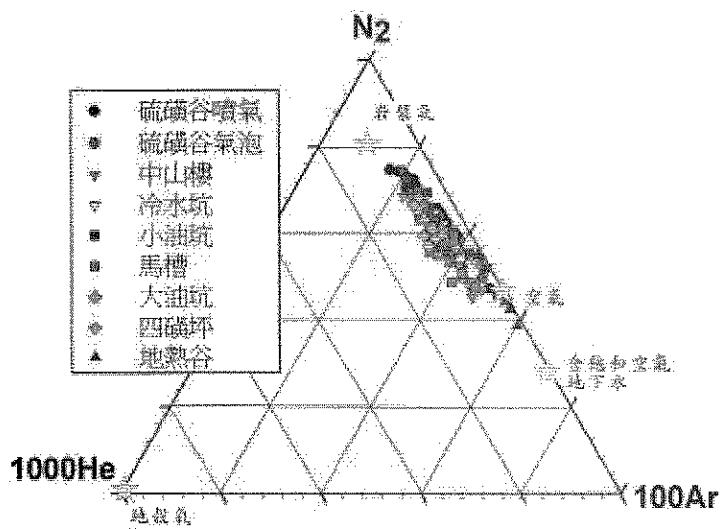
（二）本地區火山噴氣與溫泉氣泡可能的來源

1. N_2 -He-Ar 作圖

由前面討論得知，雖然一般認為樣品中之硫化物含量最能代表火山氣體原始組成，可是因受到不同程度之水解與產硫作用影響，本研究所得之氣體組成反而無法完全反應出原始火山氣體組成。

為了探討大屯火山之氣體來源，我們可以利用火山氣體中較不受溶解度影響之氣體成份進行探討，其中氮氣 (N_2)、氩氣 (Ar)、氦氣 (He) 有相對的化學惰性，且不易溶解於水氣中，故被廣為用於討論氣體來源。

由圖六可以看出，大屯山火山地區之火山噴氣與溫泉氣泡，並未受到地殼源氣體明顯影響，主要是由岩漿源氣體成份混合了空氣而成的。因為我們已將採樣過程中受到空氣混染的樣品分析結果剔除，所以此處之空氣端成份應為地殼內部淺處之吸附空氣，抑或是含飽和空氣的地下水，當岩漿源氣體成份於地殼深處上升至地表淺處時，混合了這些端成份後而逸散至地表。



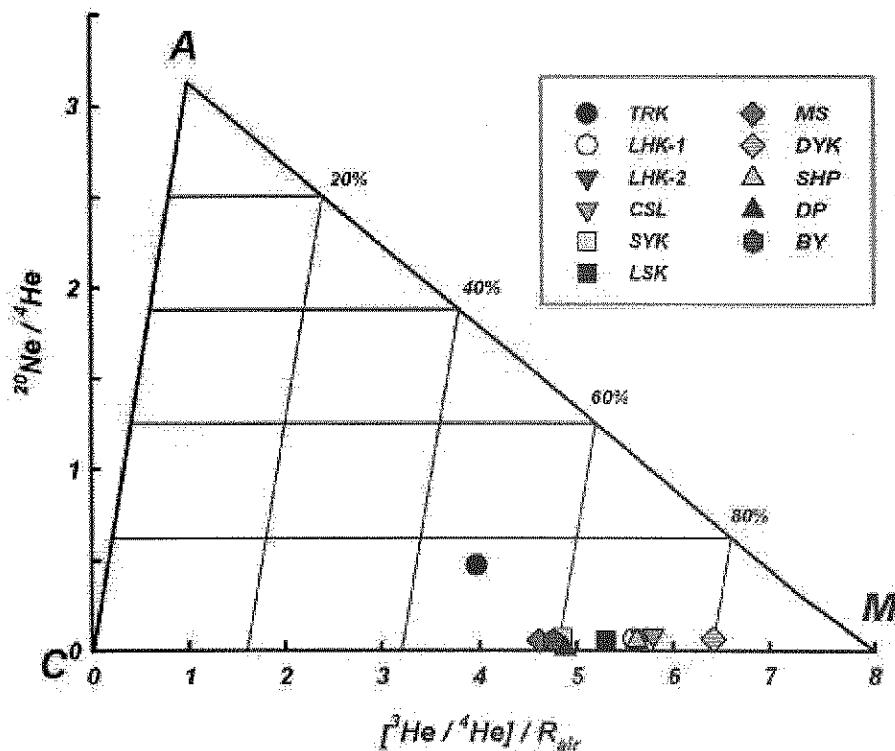
圖六 大屯火山地區氣體樣品之 N_2 -He-Ar 作圖。圖中顯示，本地區之火山氣體主要由岩漿源端成份與空氣相混而成；地殼所佔比例極少

2. 氮同位素比值

由於氮氣特有之地球化學特性，比其他氣體組成有更佳的條件用來討論火山氣體成份。以氮同位素地球化學的觀點，地球上自然界的物質可由四個主要端成份組成(Lupton, 1983)：(1) 空氣($1R_A$)；(2) 下部地函($>30R_A$)；(3) 上部地函($\sim 8R_A$)；(4) 地殼($0.01\sim 0.1R_A$) (圖二)。

由現有的資料看來，台灣與鄰近地區應該都沒有源自於下部地函物質的地體構造環境；倒是與板塊隱沒作用有關的島弧岩漿活動（如琉球島弧、呂宋島弧）、與板塊張裂所引發有關的岩漿活動（中國東部新生代、台灣西部與澎湖中新世火成活動、及中新世以來沖繩海槽弧後盆地的擴張等）非常頻繁，故而上部地函應該為台灣北部岩漿主要的源區。

利用未經空氣校正氮同位素比值與 $^{20}\text{Ne}/^{4}\text{He}$ 比值之作圖（圖七），我們可以看出除了地熱谷以外，大屯火山區噴氣中之氮氣來源平均都有 $>57\%$ 源於地函源氣體成份；其中大油坑更高達80%。



圖七 大屯火山地區氣體樣品平均之 He-Ne 三端元成份投影圖。A=空氣；C=地殼；M=地函端成份。由圖中可以看出，除了地熱谷(TRK)以外，所有地點之火山氣體均有高於60%地函源成份，其中又以大油坑(DYK)氣體有最高的地函源比例。圖中資料來源為表二未經空氣校正之氮同位素比值，標本代號與表二相同。

經過空氣校正後的原生火山氣體組成，通常可以去除掉岩漿在上升過程當中的空氣混染因素（除非有少數空氣組成隨著沈積物被隱沒至地函深處後再循環至地表），所以台灣北部的火山噴氣來源就可以簡化為地殼與上部地函兩個端成份來討論了。假設台灣北部底下的地函為經過富化的地函組成 (Chen *et al.*, 1996; Wang *et al.*, 1999)，故源自這種地函的岩漿氦同位素比值應小於八倍大氣比值而介於 $7.5\sim 6.5R_A$ ，岩漿所釋放出的氣體組成應該與岩漿平衡，所以現生火山所噴出的火山氣體應可代表岩漿所含氣體成份。可是大屯火山群之岩漿活動已經休眠了數萬年，所釋放出的火山氣體是否仍代表岩漿所含氣體成份呢？

通常沒有岩漿繼續補充的冷凝中岩漿庫也會持續的釋放出氣體，但噴氣量會大量減少，氦同位素比值就很容易被地殼圍岩的放射性 ^{4}He 給稀釋掉，而逐年減少 $^{3}\text{He}/^{4}\text{He}$ 比值。所以越「新鮮」「熾熱」的岩漿庫、距離岩漿源越近的噴氣口，理論上受到地殼混染的機會相對要低，所以會有較高的 $^{3}\text{He}/^{4}\text{He}$ 比值；反之，越「年老」「冷凝」的岩漿庫、離岩漿源越遠的噴氣口，氦同位素比值就越低，所以我們可以利用這個特性來探討大屯火山噴氣的源區。

本研究所得經空氣校正後的平均氦同位素比值介於 $4.7R_A$ (地熱谷) 與 $6.7R_A$ (大油坑) 之間，若假設大屯火山底下有相同的岩漿庫，其原生岩漿之氦同位素比值為 $7.5R_A$ ，則大油坑之噴氣是由 $\sim 90\%$ 的岩漿源 ($7.5R_A$) 混染了少量地殼物質 ($0.01R_A$) 組成；而地熱谷地區的噴氣則由約 63% 的岩漿源組成混染了較多的地殼物質 (37%)。若假設原生岩漿成份為 $8R_A$ ，大油坑亦有高達 85% 的噴氣氦組成源自於岩漿源。整體說來，大屯火山地區的噴氣主要源自岩漿源 ($63\sim 90\%$)，而於上升過程中混染了不同比例的地殼物質，而後噴出地表。

3. 碳同位素比值

天然逸氣中氦與碳主要有三個來源 (Sano and Marty, 1995)，其代表的 CO_2/He 氣體比值與氦、碳同位素值如下所示：

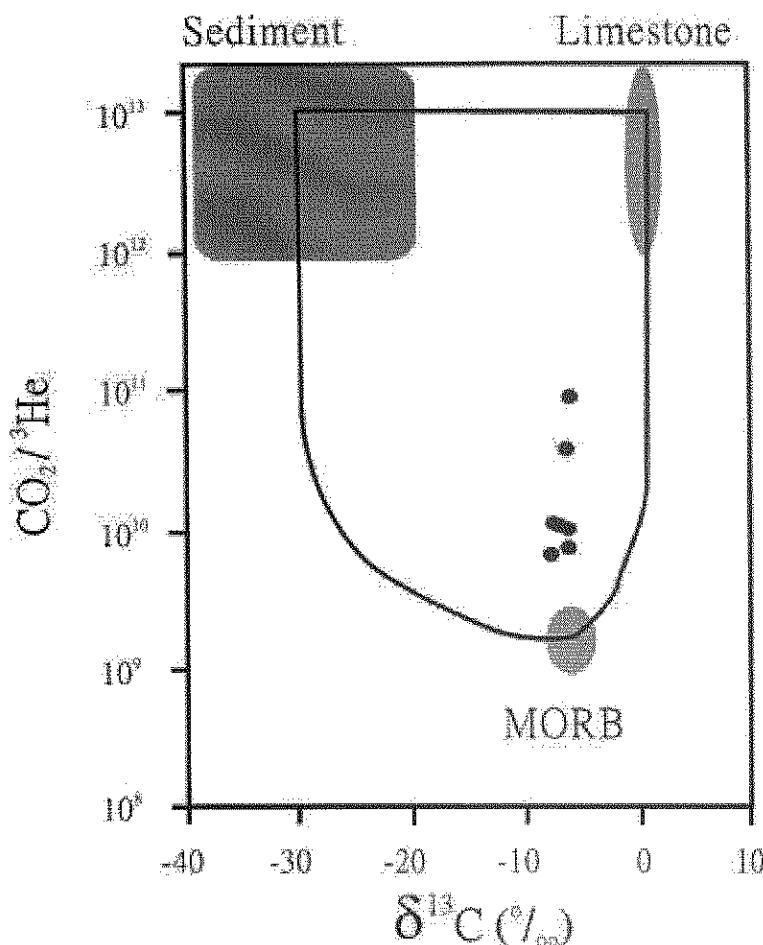
M (中洋脊玄武岩) : $^{3}\text{He}/^{4}\text{He} \sim 8R_A$, $\delta^{13}\text{C} \sim -6.5 \pm 2.5 \text{ ‰}$

L (海洋石灰岩) : $^{3}\text{He}/^{4}\text{He} \sim 0.01R_A$, $\delta^{13}\text{C} \sim 0 \pm 2 \text{ ‰}$

S (有機來源沈積物) : $^{3}\text{He}/^{4}\text{He} \sim 0.01R_A$, $\delta^{13}\text{C} \sim -30 \text{ ‰}$

從碳同位素資料來看，大屯火山群溫泉氣體的碳同位素值 ($\delta^{13}\text{C} = -3 \sim -7 \text{ ‰}$) 大致落在一般島弧的範圍內 ($\delta^{13}\text{C} = -4 \sim -9 \text{ ‰}$)，也支持了氣體來源與島弧環境可能相似，都是受到了上部地函加上地殼的影響。至於本地區不同採樣點所得到的不同氦同位素與碳同位素值，可能是噴氣在上升至地表的過程中，所經過的路徑不同而受到不同程度的地殼混染影響所致。

利用氣體中 CO_2/He 對 $\delta^{13}\text{C}$ 作圖，我們可以發現大屯火山群溫泉氣體成分皆落在三個端元所包含的範圍之中 (圖八)，且其 CO_2/He 值與 M 端元又十分接近，表示大屯火山群溫泉氣體明顯受到地函物質的影響，氣體中氦與碳的確是由這三個端成分所混合而成。又根據 Sano and Marty (1995) 所提出，利用氣體中 CO_2 含量、氦同位素與碳同位素比值計算溫泉氣體中不同來源 CO_2 比例之公式。我們可以算出氣體樣品中碳的不同來源比例，計算結果 (表七) 顯示本研究區域之火山氣體來源與其它島弧地區之火山氣體相似 (Sano and Marty, 1995)。



圖八 大屯火山區氣體樣品中氦與碳來源混合圖（圖中各端元成份與混和曲線修改自 Sano and Marty, 1995）。本研究之樣品成份落在圖中三個端元包含範圍內，且接近 MORB 端成份一端，表示其有高的地函來源成份。
MORB：中洋脊玄武岩（代表上部地函成份）；Limestone：石灰岩；
Sediment：有機沈積物

表七 大屯火山區氣體中碳來源比例之計算

採樣地點	標本編號	採樣日期	R_o/R_A	$\delta^{13}\text{C} (\text{\textperthousand})$	$\text{CO}_2/\beta\text{He}$	M	L	S
硫磺谷 (LHK)	LHK-2-1	12/04/99	5.62	-3.15	1.22×10^{10}	12.31%	57.42%	30.27%
小油坑 (SYK)	SYK-1-1	12/04/99	4.88	-3.40	1.28×10^{10}	11.69%	58.79%	29.52%
大油坑 (DYK)	DYK-1-2	12/04/99	6.79	-6.34	7.01×10^9	21.38%	61.00%	11.26%
馬槽 (MS)	MS-2-2	12/04/99	4.55	-5.56	1.33×10^{10}	11.26%	66.25%	22.49%
中山樓 (CSL)	CSL-2-2	12/29/99	5.92	-3.04	1.32×10^{11}	12.10%	57.29%	30.61%
地獄谷 (TYK)	TYK-1-2	12/04/99	4.49	-3.73	3.97×10^{10}	3.77%	66.19%	30.04%
四磺坪 (SHP)	SHP-2-2	12/04/99	3.78	-3.28	7.61×10^9	19.69%	52.23%	28.08%

註：各端元成份如文中說明；M=中洋脊玄武岩；L=海洋石灰岩；S=有機來源沈積物。

4. 氮同位素比值

利用與碳同位素相同模擬計算的原理，我們也可以由氮同位素分析結果與樣品中 N/Ar 比值，推得不同端成份所含之比例（表八）。由模擬計算結果得知，大屯火山地區氣體樣品中之氮氣來源主要是源自於空氣佔 30~65%，主要因為空氣中氮氣含量太高，只要有些空氣混入樣品，便會影響氣體樣品之氮成份；縱是如此，大屯火山地區之氮氣仍有 7~27% 源自於地函源氣體；此模擬計算結果與氣體樣品中碳同位素之估算相近，代表本地區噴氣樣品中，地函來源確是佔了相當大的比例。

表八 大屯火山區氣體中氮來源比例之計算

標本編號	$\delta^{15}\text{N}$ (\textperthousand)	N ₂ /Ar	A	M	S
01127-LHK-2-2-1	0.61	119.3	50.15%	18.78%	31.06%
01127-CSL-2-2-1	0.78	127.8	46.79%	18.77%	34.45%
01127-LHK-1-2-1	1.02	92.2	64.94%	7.29%	27.77%
01127-LHK-2-1-1-G	0.75	113.9	52.52%	16.20%	31.28%
01127-LHK-1-2-1-G	0.87	120.4	49.69%	16.46%	33.84%
01208-LHK-1-1-1-G	0.78	197.3	30.20%	27.10%	42.70%
01208-LHK-1-2-1-G	0.38	158.7	37.62%	27.43%	34.95%
01127-LHK-1-6-1-G	0.30	91.9	65.22%	14.35%	20.43%

註：各端元成份如文中說明；A=空氣；M=地函；S=沈積物。

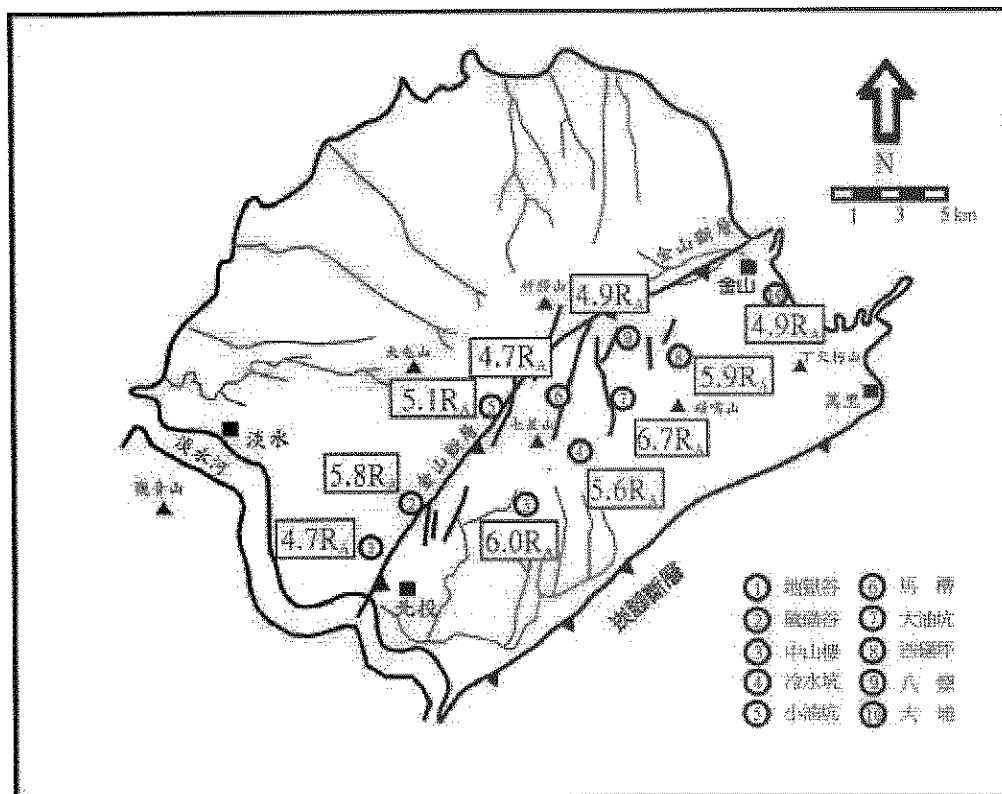
（三）氮同位素比值在地理位置上的變化

由前面的討論得知，我們可以利用火山噴氣的氮同位素比值來判斷可能岩漿源的位置。Sano *et al.* (1984) 發現在日本現生火山 Mt. Ontake 地區之火山噴氣，其氮同位素比值與距離火山口中心位置的遠近成反比。即距離火山口越近，氮同位素比值越高；反之，距離越遠，比值就越低。

我們若是將本研究地區各地之火山噴氣平均氮同位素比值標示出來（圖九），可發現主要的火山噴氣位置皆為東北西南走向的排列，與可能的金山斷層帶平行，且呈有系統的變化：由西南的地熱谷 ($4.7R_A$) 向東北的大油坑 ($6.7R_A$) 漸增；而東北方金山大埔溫泉 ($4.9R_A$) 經由四礦坪 ($5.9R_A$)，亦有向西南方大油坑方向增加的趨勢。有趣的是在中山樓與大油坑之間的冷水坑、馬槽、小油坑，似乎有個中陷地帶，是本研究中氮同位素比值最低的地區，也恰巧是七星山附近的位置。

假設大屯火山群底下只有一個共同的岩漿庫，則此岩漿庫最有可能的位置應當在大油坑附近的地底下，地底的岩漿庫所釋放出來的氣體，則循著可能的裂隙（主要是沿著金山斷層）而噴發至地表。若是氣體在上升至地表的過程中，管道較為暢通且接近岩漿源，則其成份就比較接近岩漿庫組成，以本研究為例大油坑地區的噴氣可能最接近岩漿源組成；反之，若是氣體在上升過程中距離岩漿庫比較遠（如地熱谷與金山大埔溫泉），或者在上升過程中，遇到比較多

的「阻礙」，而有比較多的地殼混染機會（如馬槽），則其噴氣中氮同位素組成就會比原始岩漿者低。

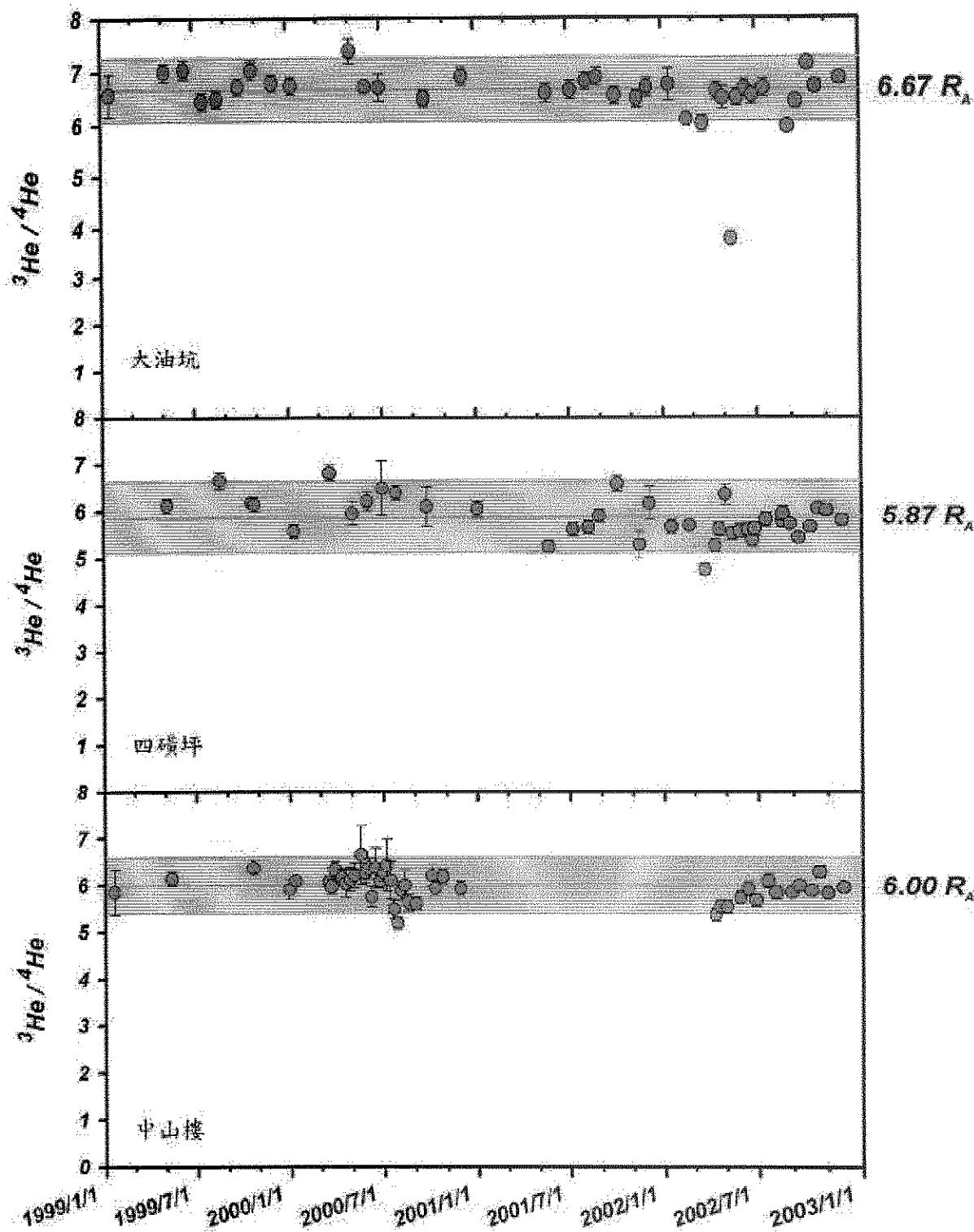


圖九 大屯火山群各地噴氣經空氣校正後之平均氮同位素比值

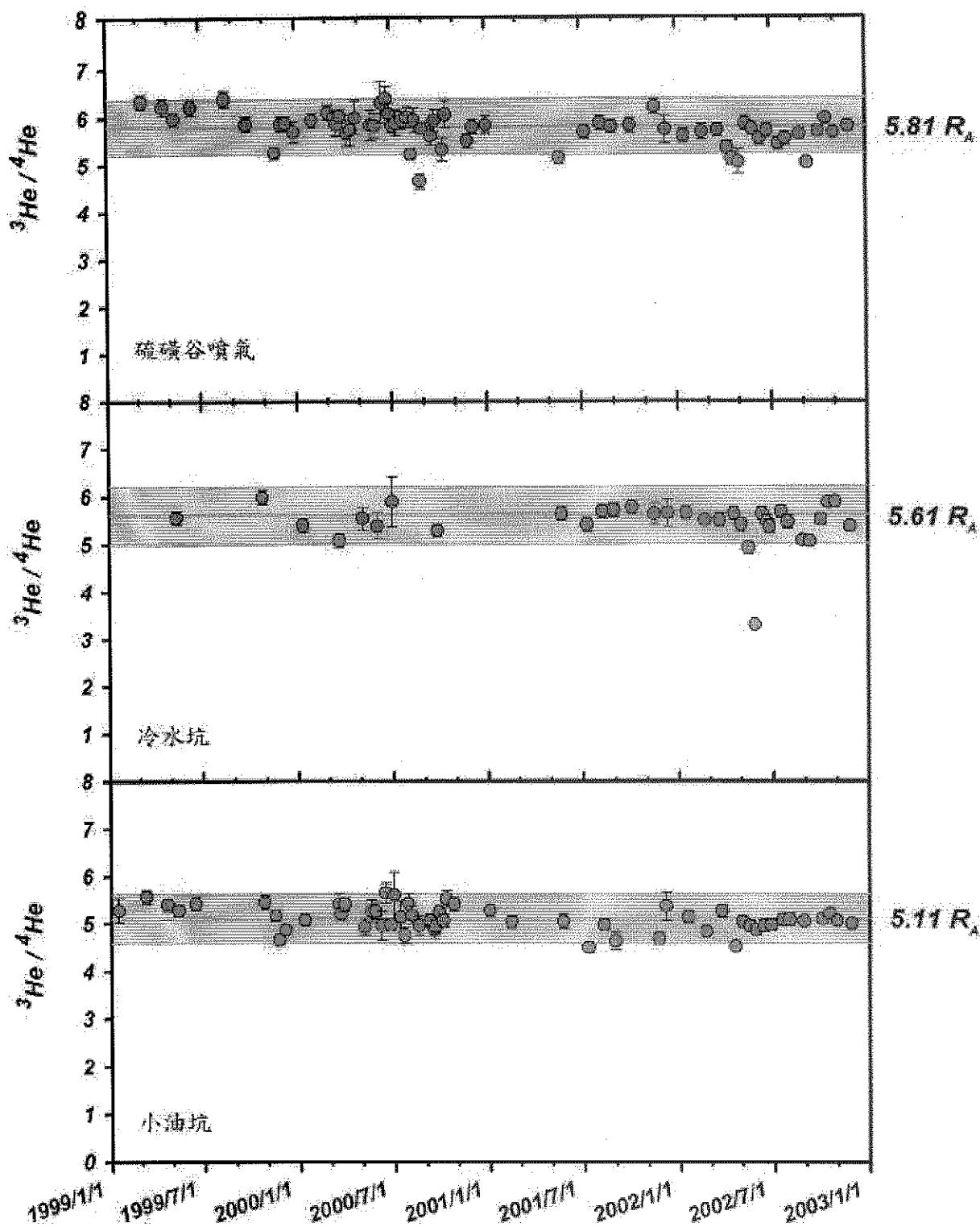
另一種可能性是大屯火山群底下不止一處岩漿庫；若是岩漿庫的性質很相似，則硫磺谷與中山樓附近 ($5.8\sim 6.0 R_A$) 可能有另一處岩漿庫。若地底下有不同化學性質的岩漿庫存在，則小油坑、馬槽附近 ($4.7\sim 5.1 R_A$) 底下可能是潛在的儲存岩漿的地方。但是以大屯火山群不算大的區域而言，本地區岩漿生成的過程與機制應當相近，所生成的岩漿性質應當是相似的，故地底下存在多個不同性質岩漿庫的機會並不大。雖然我們不能排除大屯火山群底下可能有不只一處的岩漿庫，但作者認為至少其組成應當相近，只是其噴氣在上升至地表過程中，因路徑不同而受不同程度的地殼混染，造成地區上氮同位素比值的差異。

(四) 氮同位素比值隨時間的變化

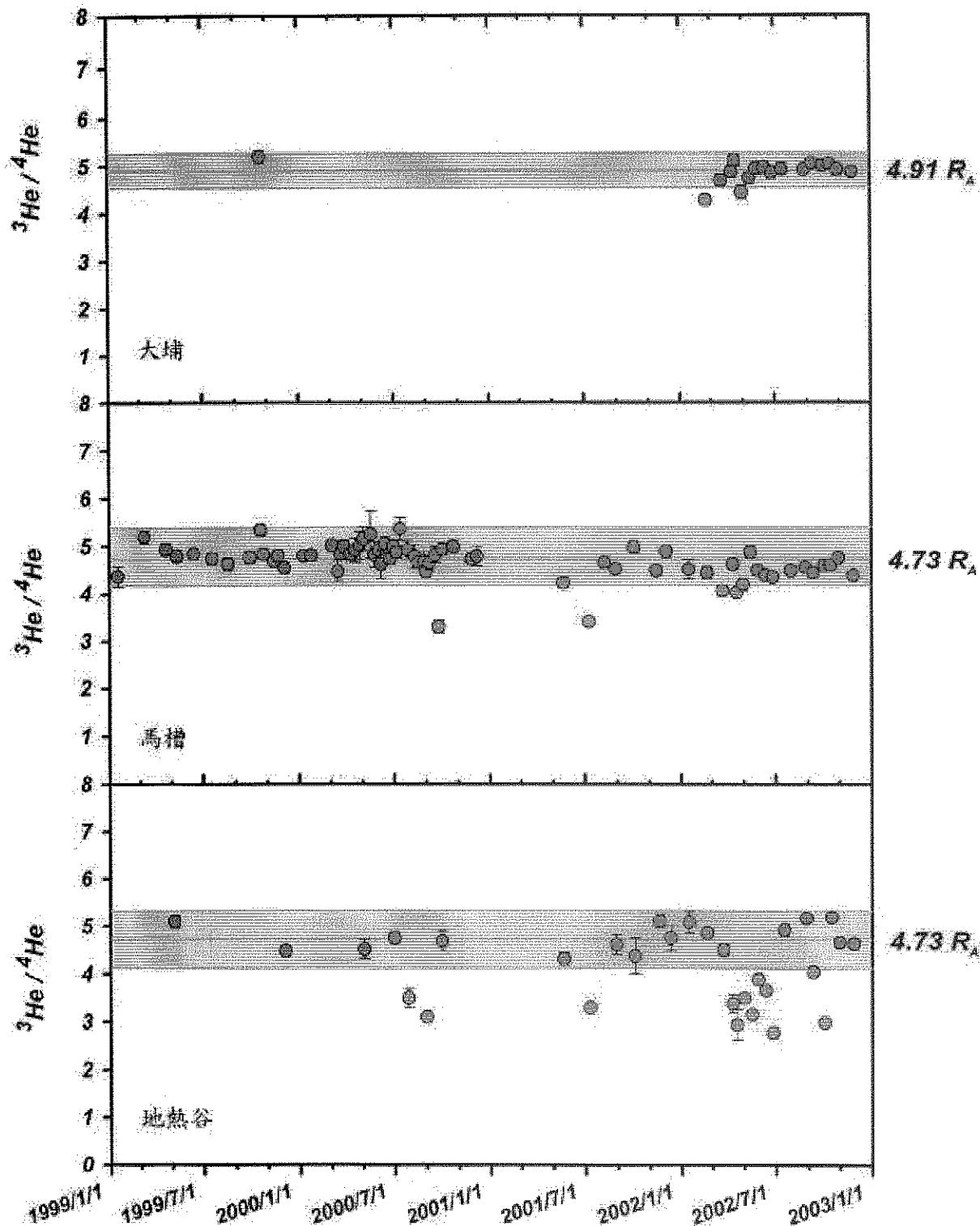
將近四年來（1999年1月至2002年10月），大屯火山地區火山噴氣氮同位素比值的連續監測結果對時間作圖（圖十），可發現同一時間內所採的樣品，大抵上皆是大油坑有最高的氮同位素比值，而硫磺谷、小油坑依序次之，而馬槽與地熱谷地區的噴氣則都有最低的氮同位素比值。基本上各地點的變化情形都相當一致，即某處的氮同位素比值增加時，其它各點之比值亦增加，暗示著他們有共同的岩漿噴氣來源，而有一致性的氮同位素比值變化；各採樣點之氮同位素值似乎沒有明顯隨時間變化，暗示著這兩年來大屯火山地區之噴氣系統相當穩定。



圖十 大屯火山群各地噴氣之氦同位素比值隨時間之變化



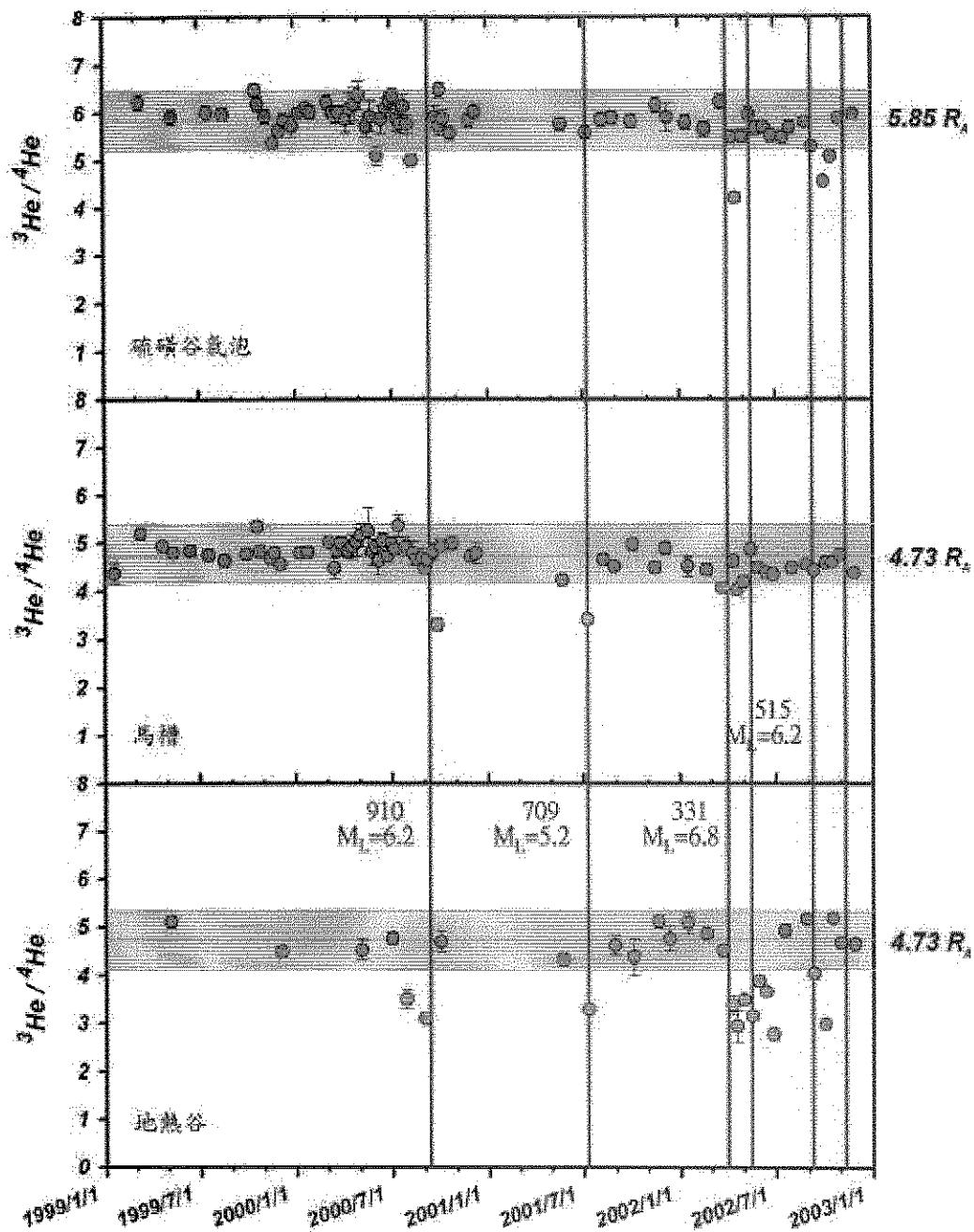
續圖十 大屯火山群各地噴氣之氦同位素比值隨時間之變化



續圖十 大屯火山群各地噴氣之氦同位素比值隨時間之變化

至於硫磺谷、馬槽及地熱谷這三個地區有少數幾個超出誤差範圍的樣本點（圖十一），可以

對比發生於宜蘭花蓮較大規模的地震，不排除此異常之氦同位素比值之變化，是導因於地震所造成影響。暗示此三處可能因為有較高比例之地殼源氣體成份，故當地震引發了地殼釋放出氣體時，其它噴氣地點則因為有較高之岩漿源成份，所以未有明顯成份變化；關於其中的變化，有待進一步的釐清與探討。



圖十一 大屯火山群各地噴氣之氦同位素比值變化與地震活動之關連。圖中紅色線標示規模大於 5.0，且大屯火山地區震度大於 3 之地震（地震資料來源：中央氣象局網站 <http://www.cwb.gov.tw>）。

六、結論

- (一) 參考國外之經驗，新設立之火山氣體採樣與分析方法，能夠富集火山氣體、降低採樣過程中空氣之混染，可以完整分析出火山噴氣中所有氣體成份，更能代表原始火山氣體性質。
- (二) 利用新的採鹼液法所分析大屯火山區各噴氣地點之氣體組成，與之前利用真空瓶四極桿質譜儀分析所得成份大至相符。火山噴氣中主要皆以水氣為主(>95%)；而溫泉氣泡之水氣含量則明顯較少(13~65%)。去水後氣體組成皆以二氧化碳(82~95%)為主，其次為硫化物(硫化氫+二氧化硫)、與氮氣，為典型低溫火山氣體組成。
- (三) 火山氣體中之硫化物含量與氯同位素比值並未成正比，主要是因為受到不同程度之產硫作用與水解作用影響。
- (四) 自1999年1月至2002年11月為止，所得到大屯火山區各地氣體的校正後氯同位素比值之平均值分別為：
地熱谷： $4.7R_A$ ；硫磺谷： $5.8R_A$ ；中山樓： $6.0R_A$ ；小油坑： $5.1R_A$ ；
冷水坑： $5.6R_A$ ；八煙： $4.9 R_A$ ；馬槽： $4.7R_A$ ；大油坑： $6.7R_A$ ；
四磺坪： $5.9R_A$ ；大埔： $4.9R_A$ 。
- (五) 由氯同位素估計，大屯火山氣體成份中平均有>60%氯氣成份源於岩漿端成份。由碳與氯同位素估算，亦有高達約25%氣體源自於地函源氣體端成份。
- (六) 大油坑與馬槽雖然地理位置相鄰近，可是卻可能有不同的噴氣來源、或者有不同上升至地表的管道，造成不同之氣體組成。
- (七) 本研究其間，大屯火山地區噴氣之氯同位素比值，並未有明顯異常之變化，顯示本地區之供氣系統相對穩定；且其成份變化未受到溫度與雨量等環境因素之影響，有利於吾人利用此方法監測地震與火山活動。
- (八) 綜合本研究結果顯示，大屯火山群地底深處可能存在有岩漿庫持續噴氣中，最有可能位置為大油坑底下。唯需配合其他研究方法(如地震波、重力、磁力異常等)，以進一步確認本地區可能存在的岩漿庫數量、位置、深度、與大小。

七、誌謝

本研究承陽明山國家公園管理處蔡處長伯祿、楊副處長健源、詹秘書德樞、保育課呂理昌課長、黃光瀛先生及黃琡珺小姐之支持與樣品採集之協助；本研究經費承蒙陽明山國家公園管理處、經濟部中央地質調查所、與國科會之補助，使本研究得以持續進行。

自1999年以來，承蒙羅清華教授傾力協助稀有氣體質譜儀實驗室之設立與測試，林博文、張瑞龍、盧毅君、蕭敦仁、呂佩娟、江政鴻、傅慶州、李曉芬、張佳菱等諸位先生小姐協助樣品採集、處理與分析；陳淑珍、沈鈞傳、何蓓芳等諸位先生小姐；文化大學地質系年佩芬、陳

勇全同學；台大地質系莊崇暉、張禹璇同學熱心幫忙採集樣品，使本研究能持續順利進行完成；兩位匿名審查者詳細審閱本文初稿，提供寶貴意見，使本文謬誤減至最少，僅此表示誠摯的謝忱。

八、引用文獻

- 王季蘭，1999。大屯火山區地熱氣體與溫泉水之地球化學特徵，國立中央大學應用地質研究所碩士論文，共 101 頁。
- 何孝恆，2001。台灣北部地區大屯火山群火山噴氣來源之探討，國立台灣大學地質學研究所碩士論文，共 80 頁。
- 莊文星、陳汝勤，1989。台灣北部火山岩之定年與地球化學研究，經濟部中央地質調查所彙刊，5: 125-166。
- 陳正宏，1990。台灣的火成岩，經濟部中央地質地質調查所，共 137 頁。
- 陳耀麟，2002。大屯火山區溫泉水之化學成份及其對河水之影響，國立台灣大學地質學研究所博士論文，共 216 頁。
- 楊燦堯，2000。陽明山國家公園大屯火山群噴氣之氮同位素比值研究，國家公園學報，10(1): 73-94。
- 謝佩珊，2000。台灣地區溫泉與泥火山氣體來源之初探，台灣大學地質研究所碩士論文，共 77 頁。
- Cartigny, P., S.R. Boyd, J.W. Harris and M. Javoy, 1997. Diamonds and the isotopic composition of mantle nitrogen. *Terra Nova* 9: 175-179.
- Casadevall, T.J., W. Rose, T. Gerlach, L.P. Greenland, J. Ewert, R. Wunderman and R. Symonds, 1983. Gas emissions and eruptions. Mount St. Helens through 1982. *Science* 221: 1383-1385.
- Chen, C. H. and S.B. Lin, 2002. Eruptions younger than 20 Ka of the Tatun Volcano Group as viewed from the sediments of the Sungshan Formation in Taipei Basin. *Western Pacific Earth Sciences* 2: 191-204.
- Chen, C.H., C. H. Chen, S. Nakada and S.A. Mertzman, 1996. The northern Taiwan volcanic zone behind the southern Okinawa Trough-the western extension of the Ryuku volcanic front? Extended abst. for annual meeting of Geol. Soc. China, Taipei, p. 450-452.
- Giggenbach, W.F., 1975. A simple method for the collection and analysis of volcanic gas samples. *Bulletin of Volcanology* 39: 132-145.
- Hoefs, J., 1997. *Stable isotope geochemistry*. 2nd ed. Springer-verlag, Berlin, 201pp.
- Javoy, M., F. Pineau, and H. Delorme, 1986. Carbon and nitrogen isotopes in the mantle. *Chemical Geology* 57: 41-62.
- Lupton, J.E., 1983. Terrestrial inert gases: isotopes tracer studies and clues to primordial components in the mantle. *Annual Review of Earth and Planetary Sciences* 11: 371-414.
- Marty, B., 1995. Nitrogen content of the mantle inferred from N₂-Ar correlation in oceanic basalts. *Nature* 377: 326-329.

- Marty, B. and F. Humbert, 1997. Nitrogen and argon isotopes in oceanic basalts. *Earth and Planetary Science Letters* **152**: 101-112.
- Matuso, S., M. Suzuki, and Y. Mizutani, 1978. *Nitrogen to argon ratio in volcanic gases*. Japan Science Society Press, Tokyo, 17-25.
- Noguchi, K and H. Kamiya, 1963. Prediction of volcanic eruption by measuring the chemical composition and amounts of gases. *Bulletin of Volcanology* **26**: 367-378.
- Notsu, K., S. Nakai, G. Igarashi, J. Ishibashi, T. Mori, M. Suzuki, and H. Wakita, 2001. Spatial distribution and temporal variation of ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ in hot spring gas released from Unzen volcanic area, Japan. *Journal of Volcanology and Geothermal Research* **111**: 89-98.
- Ohnishi, T. and M. Kamada, 1981. Correlation between minor constituents of volcanic gas at Mochiki and volcanic activity of Sakurajima Volcanol., Paper presented at 1981 IAVCEI Symposium.
- Oskarsson, N. 1984. Monitoring of fumarole discharge during the 1975-1982 rifting in Karafla volcanic center, North Iceland. *Journal of Volcanology and Geothermal Research* **22**: 97-121.
- Ozima, M. and F.A. Podosek, 2002. *Noble gas geochemistry*, 2nd ed., Cambridge University Press, Cambridge, UK, 286pp.
- Peters, K.E., R.E. Sweeney and I.R. Kaplan, 1978. Correlation of carbon and nitrogen stable isotope ratios in sedimentary organic matter. *Limnology and Oceanography* **23**: 598-604.
- Poreda, R. and H. Craig, 1989. Helium isotope ratios in Circum-Pacific volcanic arcs. *Nature* **338**: 473-478.
- Poreda, R.J., A.W.A. Jeffery, I.R. Kaplan and H. Craig, 1988. Magmatic helium in subduction-zone natural gases. *Chemical Geology* **71**: 199-210.
- Sano, Y. and B. Marty, 1995. Origin of carbon in fumarolic gas from island arcs. *Chemical Geology* **119**: 265-274.
- Sano, Y. and H. Wakita, 1985. Geographical distribution of ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ ratios in Japan: implications for arc tectonics and incipient magmatism. *Journal of Geophysical Research* **90**: 8729-8741.
- Sano, Y., Y. Nakamura and H. Wakita, 1984. Helium-3 emission related to volcanic activity. *Science* **224**: 150-151.
- Sano, Y., N. Takahata, Y. Nishio and B. Marty, 1998. Nitrogen recycling in subduction zones. *Geophysical Research Letters* **25**: 2289-2292.
- Sano, Y., N. Takahata, Y. Nishio, T.P. Fischer and S.N. Williams, 2001. Volcanic flux of nitrogen from the Earth. *Chemical Geology* **171**: 263-271.
- Song, S.R., T.F. Yang, Y.H. Yen, S.J. Tsao and H.J. Lo, 2000. The Tatun Volcano Group is active or extinct? *Journal of the Geological Society of China* **43**: 521-543.
- Symonds, R.B., W.I. Rose, G.J.S. Bluth and T.M. Gerlach, 1994. Volcanic-gas studies: methods, results, and applications. In: (Carroll and Holloway ed.) *Volatile in magmas. Review in Mineralogy* **30**: 1-66.

- Teng, L.S. 1996. Extensional collapse of the northern Taiwan mountain belt. *Geology* **24**: 949-952.
- Teng, L.S., C-H. Chen, W.S. Wang, T.K. Liu, W.S. Juang and J.C. Chen, 1992. Plate kinematic model for late Cenozoic arc magmatism in northern Taiwan. *Journal of the Geological Society of China* **35**(1): 1-18.
- Wang, K.L., S.L. Chung, and C.H. Chen, 2002. Geochemical constraints on the petrogenesis of high-Mg basaltic andesites from the Northern Taiwan Volcanic Zone. *Chemical Geology* **182**: 513-528.
- Wang, K.L., S.L. Chung, C.H. Chen, R. Shinjo, T.F. Yang and C-H. Chen, 1999. Post-collisional magmatism around northern Taiwan and its relation with opening of the Okinawa Trough. *Tectonophysics* **308**: 363-376.
- Yang, T.F., Y. Sano and S.R. Song, 1999. $^3\text{He}/^4\text{He}$ ratio of fumaroles and bubbling gases of hot springs in Tatun volcano Group, North Taiwan. *Il Nuovo Cimento* **22C**: 281-286.

Compositions and Sources of Fumarolic Gases from Tatun Volcano Group, North Taiwan

Tsanyao Frank Yang^{1, 2}, Hsiao-Heng Ho¹, Pei-Shan Hsieh,¹
Nien-Jiung Liu¹, Yu-Gau Chen¹ and Cheng-Hong Chen¹

(Manuscript received 1 June 2003; accepted 9 July 2003)

ABSTRACT : Utilizing new methods for sample collection and analytical procedures, representative fumaroles and bubbling gases of hot springs in the Tatun Volcano Group, North Taiwan are analyzed for their gas compositions. The result shows that most of the fumarolic gas samples mainly contain steam water (>90%), however, bubble gases contain much less water vapors. The dry gases of the samples after dehydration are dominated with CO₂ (>70%) and minor sulfurous (H₂S+SO₂) and nitrogen contents, typical of low temperature fumaroles.

In the great majority of sample sites, more than 60% of the helium is mantle-derived for these fumaroles based on the ³He/⁴He data. The highest helium isotopic ratio of 6.7R_A (R_A is the ³He/⁴He ratio of air) is obtained from the fumarolic gas of Da-Yiou-Keng. Up to 90% of magmatic component was estimated for its gas sources. Carbon and nitrogen isotopic data also reach to similar results that large amount of a mantle-derived component was involved. This implies that a magma chamber may exist underneath Tatun Volcano area.

There were no significant anomalous variations of helium isotopic ratios of the gas samples observed in this area during the studied period, suggesting that the de-gassing system in this area was relatively steady. However, few data show anomalous variations in Ti-Reh-Ku, Liu-Huang-Ku, Ma-Tsao and may be able to correlate with big earthquakes occurred in northeast Taiwan. Further continuous surveillance on gases is necessary for better understanding the relationship between the composition variations of fumarolic gases with earthquake events.

KEYWORDS : Tatun Volcano Group, fumaroles, mantle source component, magma chamber

1. Institute of Geosciences, National Taiwan University

2. Corresponding author