

3. 3 地球化学的観測技術の開発

(1) 業務の内容

(a) 業務題目 先端的な火山観測技術の開発

サブテーマ3 地球化学的観測技術の開発

(b) 担当者

所属機関	役職	氏名	メールアドレス
東京大学大学院総合文化研究科	准教授	角野浩史	sumino@igcl.c.u-tokyo.ac.jp
名古屋大学大学院環境学研究科	教授	角皆潤	urumu@nagoya-u.jp
東海大学理学部	教授	大場武	volcano.ohba@gmail.com
東京大学大学院理学系研究科	准教授	森俊哉	mori@eqchem.s.u-tokyo.ac.jp
東京大学大気海洋研究所	助教	鹿兒島涉悟	kagoshima@aori.u-tokyo.ac.jp
東京大学大学院総合文化研究科	特任研究員	川名華織	kawana@igcl.c.u-tokyo.ac.jp
東京大学大気海洋研究所	教授	佐野有司	ysano@aori.u-tokyo.ac.jp
気象庁・気象研究所	室長	高木朗充	atakagi@mri-jma.go.jp
気象庁・気象研究所	研究官	谷口無我	myaguchi@mri-jma.go.jp
気象庁・気象研究所	研究官	福井敬一	kfukui@mri-jma.go.jp
大阪大学大学院理学研究科	教授	豊田岐聡	toyodam@phys.sci.osaka-u.ac.jp
滋賀県立大学環境科学部	教授	丸尾雅啓	

(c) 業務の目的

本委託業務では、噴気孔から噴出する火山ガスや温泉水溶存ガス、火山周辺の土壌ガスについて、マグマ起源の成分の指標となるヘリウム・炭素・水素・酸素の同位体比を火山近傍のフィールドのその場（オンサイト）で計測可能にする技術を、最先端のレーザー計測技術と質量分析技術を取り入れ開発し、火山噴火の切迫性評価手法の高度化に貢献することを目的とする。また、大気中に拡散した火山ガス成分濃度の連続観測を実現し、火山活動度の把握や、噴気地帯に近接した観光地における火山ガス災害防止に寄与する。さらに、従来法で採取した試料の実験室における高精度同位体比分析においても、高いスループットで測定する技術を開発する。海底の火山から放出される火山ガスを分析する技術を開発し、航行する船舶などに重大な災害をもたらすと懸念される、海底火山の噴火切迫性評価への有効性を検証する。これらと併せて、高度な火山ガス分析を行うことのできる将来の火山化学の担い手を育成する。

火山の噴火前に、噴気孔から噴出する火山ガスや温泉水溶存ガス中の深部マグマ起源の成分の混入率や、火山周辺の土壌ガスを通しての二酸化炭素の拡散放出量が変動することが知られている。これらは噴火の切迫性を評価する上で、多くの火山で従来から実施されている地球物理学観測とは独立の情報であり、従来の観測と組み合わせることにより噴火切迫性評価の精度を格段に上げられると考えられる。しかし、これまで火山ガスや温泉水溶存ガス、火山周辺の土壌ガスのうちどれだけが深部マグマ起源のもので、どれだけが天水や地下水、生物等に由来するか、火山活動との関係の有無の判別は容易ではなかった。高いヘリウム同位体比（ $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比）とヘリウム

/ネオン比 ($^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 比) で特徴づけられるマグマ起源ヘリウムや、二酸化炭素を構成する炭素の同位体比 ($^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比) は、それを識別する上で、極めて有力な地球化学的指標である。また、噴気中の水蒸気や水素を構成する水素の同位体比 (D/H 比) や酸素の同位体比 ($^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$ 比) は水蒸気の起源や大気中に放出される直前の噴気温度を反映することから、水蒸気爆発かマグマ爆発かといった噴火タイプの判断の指標ともなる、火山観測に有用な地球化学的指標である。

しかし、これまでこれらのような同位体指標は、実験室で目的成分の分離抽出と精製を行った後、据付型の質量分析計を用いて測定されてきたため、試料採取と実験室での分析を交互に繰り返さざるを得ず、火山活動のようなダイナミックなプロセスの追跡に応用するには限界があった。また分析が、熟練したオペレーターによる手作業に負うところが大きかったため、1日に測定できる試料数に限界があった。とくにヘリウムの同位体分析においてはそれが顕著であり、試料によってヘリウム濃度や夾雑成分の寄与が大きく異なるために精製手順が複雑で、1日4試料程度の分析が限界であった。そこで本研究では、これまでに蓄積した分析ノウハウを取り入れ、可能な限り自動化を施したマグマ起源ヘリウム分析システムを開発し、高精度かつ高いスループットの分析を実現する。

ヘリウム同位体比分析においては、全ヘリウム中の1千万分の1から10万分の1程度しか存在しない ^3He や、大気成分の混入の指標となる ^{20}Ne の検出において、妨害成分と区別して検出するために高い質量分解能 (^3He に対し $M/\Delta M > 510$ 、 ^{20}Ne に対し $M/\Delta M > 1800$) が必須であり、このために大型の磁場型の質量分析計を用いなければ分析が不可能であった。このため火山噴火に対応した火山ガスや温泉ガスのヘリウム同位体比の変化が検出されたとしても、それが分かるのは常に事後であった^{1,2)}。既存の可搬型の四重極質量分析計やイオントラップ質量分析計の質量分解能 ($M/\Delta M < 100$) では妨害成分を区別できず、また妨害成分の寄与を他の方法で補正する試みも海外の研究機関では始められているが、定量精度に大きな問題がある^{3,4)}。そこで本委託業務では、デスクトップPC程度の大きさで重量が40 kg弱と十分に可搬でありながら、 ^3He や ^{20}Ne を妨害成分と分離できる十分に高い質量分解能 ($M/\Delta M > 30000$) を有する、画期的な飛行時間型質量分析計をヘリウム同位体比分析に最適化し、マグマ起源ヘリウムのオンサイト分析を実現する。

また、これまで噴気ガス中の水蒸気の水素および酸素安定同位体比は、試料を大量に捕集し、水蒸気を濃縮しないと定量できなかった。このため、これらのデータが得られる火山は、観測者が噴気孔にアクセスできる平穏なものに限られ、噴火中の活動的な火山では、同位体比が定量されたことはなかった。本委託業務では、火山から放出された噴気ガスが大気で希釈されて形成された噴煙に着目し、その中に含まれる水蒸気等のオンサイト同位体比定量により噴気ガス中の水蒸気同位体比を求める技術を構築する。

既存の火山ガス成分の連続観測装置で用いられる定電位式化学センサー等は時間応答が悪く、特に低濃度の試料の分析に問題があった。本委託業務では、火山ガスの成分である H_2O 、 CO_2 、 SO_2 、 H_2S 、 HCl 等の吸光波長に対応するダイオードレーザーを利用した、レーザー分光法による大気拡散火山ガス観測法を開発する。これにより最小ppbレベルでの火山ガス成分の高時間分解能連続観測を実現する。

また、火山ガス中で水蒸気に次いで多く、山体から土壌を通して拡散放出されている二酸化炭素の起源を、炭素同位体比のみで特定するには限界があった。一方 $^3\text{He}/\text{CO}_2$ 比を指標として組み合

わせると、マグマ起源の二酸化炭素を明確に識別できる。本委託業務では最先端の可搬型赤外レーザー炭素同位体分光計を導入し、土壌ガス中の二酸化炭素の炭素同位体比のオンサイト分析を実現するとともに、マグマ起源ヘリウムのオンサイト分析技術と統合することで、マグマ起源二酸化炭素の放出量推定を高精度化する。

これらの手法を火山ガスの噴出が明確な火山に応用し、深部マグマ起源成分の放出率や噴気温度の推移を観測することで、噴火の逼迫度評価の高度化と、噴火タイプの迅速な判別に貢献する。また火山周辺の温泉ガス・土壌ガスの同位体比の分布をもとに、火山体周辺の深部起源ガスの上昇状況を把握する。上記の装置群の開発には時間を要するが、火山活動は現在も進行中であるため、装置の開発と並行して、従来の手法による噴気の採取と分析を行い、時空間的な同位体比データを蓄積する。また火山化学に携わる人材の不足は可及的速やかに解決すべき問題であることから、この活動と装置開発を通じて火山化学の担い手を育成する。

また、本委託業務では、海底の火山から放出される火山ガスを分析する技術を開発し、陸域に近い海底火山や海底温泉について、定期観測と噴火切迫度評価を行う体制を整える。浅海の火山活動による熱流体の放出は船舶事故を引き起こすことがあり、最近存在が確認されたトカラ列島付近の浅海における大規模なガスプルームを伴う熱水活動⁵⁾などの観測・評価の継続的实施は、防災の面で重要性が高い。しかしながら、海底火山活動を反映する熱水を含む底層水試料は、大型の採水システムや有人・無人の潜水艇を使わなければ採取が困難であるため、運行計画の不確実性が高い研究船による調査航海に頼らざるを得ず、継続的観測は難しいのが現状であった。そこで本委託業務では、可搬性の高い小型の採水システムを構築し、船上からの少人数のオペレーションによる試料採取を可能にすることで、チャーターが容易な漁船等を用いた継続的な海底火山活動観測法の確立を目指す。また、採水システムに温度・pH・濁度といった物理化学的指標のセンサーを付け、それらで熱水の兆候を探查しながら採水を行うことにより、火山の活動度を確実に反映する底層水試料の採取を試みる。採取試料は空気に汚染されないように保管し、実験室でマグマ起源ヘリウムなどの分析を行うことで火山活動を評価する。

それぞれの参加機関が採取した試料に含まれる各成分について、各機関が協力して同位体分析を行い、可能な限り多くの試料について網羅的な同位体比情報を得る。なお、本委託業務で得られたデータは、連携する本事業の課題Aにも提供する。

(d) 10か年の年次実施計画（過去年度は、実施業務の要約）

1) 平成28年度：

実験室でのマグマ起源ヘリウム測定の高スループット化のための、精製・分離ラインを開発した。可搬型質量分析計を導入し、 $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 比を指標としたマグマ起源ヘリウムの検出を最初の目標とした性能評価を行った。

水蒸気の高感度同位体比分析システムを構築した。航空機等に搭載して高濃度の噴煙を採取する、自動噴煙試料採取装置の設計を行った。

海底火山・海底温泉における水・ガス試料の採取・分析技術の開発を開始し、ニスキンボトルによる底層水の採取法の実施を野外調査で試みた。

上記の技術開発を進めつつ、箱根山、草津白根山、伊豆大島をはじめとした各火山におい

て火山ガス・温泉ガス・土壌ガス等を採取し、ヘリウム・炭素等の同位体比と、土壌を通しての二酸化炭素放出量の平常時のデータを蓄積した。また箱根山においては、定期的に噴気の採取と、化学組成と多成分同位体比の測定を継続して行った。それらの結果について、本プロジェクトを通して将来開発する装置群による集中観測や、ヘリウム-炭素同位体オンサイト測定システムによる連続測定を実施する、火山や観測地点の選定に向けての同位体比情報の網羅的解析を行った。

2) 平成29年度：

前年度に構築したヘリウム精製・分離ラインと組み合わせて用いる希ガス質量分析計に、高精度 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比測定に対応するための改造を施す。前年度に導入した可搬型質量分析計に改造を施し、ごく微量の希ガスの $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 比分析を可能にするとともに、希ガスを質量分析計へ導入するための試料導入系を開発する。

前年度に製作した水蒸気の高感度同位体比分析システムの作動試験を実施する。また、火山フィールドで現場観測用に活用する同位体比分析計を新規に購入し、立ち上げ試験を実施する。

火山ガス・温泉ガス・土壌ガスの予備調査を、前年度に引き続き箱根山、草津白根山、伊豆大島、桜島、霧島山硫黄山、那須岳、九重山等で行い、開発した装置の性能評価には、これらの火山で採取した試料を用いる。とくに霧島山硫黄山においては、課題Bサブテーマ4の集中観測による、地下比抵抗構造とも対比させ、地下深部の熱水系に関する知見を得ることを試みる。また、箱根山における毎月の噴気の採取と、化学組成と多成分同位体比の測定を継続して行う。

摩周湖で底層水の採取・分析技術の開発を行う。

3) 平成30年度：

前年度までに開発したヘリウム精製・分離ラインと希ガス質量分析計を接続し、高スループットのマグマ起源ヘリウム分析システムを構築する。協力機関である大阪大学から技術提供を受け、可搬型質量分析計に新しい検出手法を導入し、 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比分析を試みる。

噴気孔にアクセス可能な火山噴気地帯で採取した噴煙試料を実験室に持ち帰り分析することで、噴気孔における水蒸気や水素の同位体比を求める手法の確立を目指す。また、平成28年度に設計した噴煙試料自動採取装置の試験機を製作する。

火山ガス・温泉ガス・土壌ガスの予備調査を、引き続き箱根山と草津白根山、伊豆大島等で行う。箱根山における、毎月の噴気の採取と、その化学組成と多成分同位体比の測定も継続する。

鰻池等の火山湖で、底層水の採取・分析技術の開発を行う。

4) 平成31年度：

開発した高スループットのマグマ起源ヘリウム分析システムと、可搬型質量分析計それぞれの性能評価を兼ねて、草津白根山の火山ガスおよび周辺の温泉水溶存ガスをフィールドと

実験室の両方で分析し、ヘリウム-炭素同位体比マップを作成する。これを課題 B サブテーマ 4 の集中観測による地下比抵抗構造とも対比させ、地下深部の熱水系に関する知見を得る。

前年度に引き続き、噴煙試料の分析により噴気孔における水蒸気や水素の同位体比を求める手法の確立と、噴煙試料自動採取装置の開発を進める。

箱根山と伊豆大島等における火山ガス・温泉ガス・土壌ガスの予備調査を継続する。箱根山における毎月の噴気の採取と、その化学組成と多成分同位体比の測定も継続する。また、課題 B サブテーマ 1 で、ミュオグラフィによる火山透視画像の提供が始まる桜島についても、近傍の温泉について定期的な試料採取とヘリウム-炭素同位体比分析を開始し、山体内部構造の変化と温泉溶存ガスの同位体比との対応を調べる。

赤外ダイオードレーザー分光を利用した火山ガス成分連続観測装置を開発する。第 1 号機は可搬型とし、箱根山等において、大気に拡散した火山ガス濃度の時間変化や、ガス成分分布を調べ、次年度以降の連続観測の定点を選定する。

薩摩硫黄島周辺で調査を試み、火山ガスや底層水の採取・分析技術の開発を行う。

5) 平成 3 2 年度 :

草津白根山のヘリウム-炭素同位体比マップを引き続き作成し、経時変化をみる。箱根山と伊豆大島、桜島等における定期的な試料採取と同位体比分析も継続する。また最先端の赤外レーザー炭素同位体分光計を導入して上記試料の分析に用い、同一試料について既存の質量分析計で得られる結果と比較して性能評価を行う。

観測機器をフィールドに持ち込み、水蒸気の同位体比連続測定を実現するための準備と試験を行う。また、前年度までに開発した自動採取装置をセスナ機等に搭載し、噴煙試料採取の試験フライトを実施する。

前年度に開発した火山ガス成分連続観測装置の改良を行い、箱根山等において、大気に拡散した火山ガス濃度の時間変化や分布を調べる。また、設置型の装置を開発するための検討を行う。

前年度までに確立した試料の採取・分析技術を用いて、海底火山・海底温泉の観測を実施する。船舶を用いてトカラ列島で観測に適したサイトの探索と、火山活動を反映するデータの収集を行う。

6) 平成 3 3 年度 :

草津白根山のヘリウム-炭素同位体比マップの作成を引き続き実施し、経時変化をみる。箱根山と伊豆大島、桜島等における定期的な試料採取と同位体比分析も継続する。また課題 B サブテーマ 4 で実施される、有珠山での機動観測における二酸化炭素の拡散放出の調査と連携して、土壌ガス中二酸化炭素の炭素同位体比測定を実施する。

前年度に引き続き、フィールドにおける水蒸気の同位体比連続定量のための技術開発を行う。桜島で噴煙試料採取フライトを実施し、水素の同位体比から、桜島の噴気温度を見積もる。

赤外ダイオードレーザー分光による、現場設置型の火山ガス成分連続観測装置を開発する。

第2号機は箱根山大涌谷に設置し、大気に拡散した火山ガス濃度の時間変化を観測する。

前年度に続き、海底火山・海底温泉の観測を行う。トカラ列島や薩摩硫黄島周辺で観測に適したサイトの探索と、火山活動を反映するデータの収集を行う。

7) 平成34年度：

前年度までに蓄積した各火山における観測結果と、本事業の他課題・他サブテーマによって得られた知見をもとに、緊急性・機器設置の利便性なども考慮していずれか1つの火山を選定し、開発した観測装置群を集結させて設置し、集中観測を試みる。

フィールドにおける水蒸気の同位体比連続定量のための技術開発と、桜島における噴煙試料採取フライトを引き続き実施する。

前年度に引き続き、有珠山での機動観測における二酸化炭素の拡散放出の調査と連携して、土壌ガス中二酸化炭素の炭素同位体比測定を実施する。

引き続き箱根山大涌谷で火山ガス成分連続観測を行う。

前年度に続き、トカラ列島や鹿児島湾または長崎湾でのサイト探索と観測を実施する。本年度までに得られたデータを基に当該地域の火山活動を評価する。

8) 平成35年度：

可搬型質量分析計と赤外レーザー炭素同位体分光計を接続し、同一のガス試料についてマグマ起源ヘリウムの定量と $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比測定がオンサイトで可能なシステムを構築する。その性能評価も兼ねて、課題Bサブテーマ4の集中観測により地下比抵抗構造調査が開始される富士山について、周辺の温泉についてヘリウム-炭素同位体比マップを作成し、地下深部の熱水系に関する知見を得る。

フィールドにおける水蒸気の同位体比連続計測のための技術開発と、桜島における噴煙試料採取フライトを引き続き実施する。

伊豆大島において、二酸化炭素の拡散放出の調査を実施し、全土壌ガス試料の二酸化炭素の炭素同位体比測定により、山頂域におけるマグマ性ガスの放出分布をマッピングする。

引き続き箱根山大涌谷で火山ガス成分連続観測を行う。

前年度までの調査をもとにトカラ列島等における定点観測サイトを決定し、当該地域における定期観測を実施するために必要な装置・施設の体制を整える。

9) 平成36年度：

本サブテーマとは別の方式の可搬型分析装置を開発している海外の共同研究者を日本に招聘し、各々の装置のさらなる改良のための検討を共同で行う。

前年度までに開発してきた観測機器を火山の火口近傍に設置して、連続的な噴煙試料採取と水蒸気の同位体比測定を実施する。

前年度に引き続き伊豆大島において二酸化炭素の拡散放出量と同位体比の分布マップを作成し、前年度の結果と合わせてマグマ性二酸化炭素の放出状況からみた火山活動度の把握を行う。

引き続き箱根山大涌谷で火山ガス成分連続観測を行う。

前年度に引き続き、トカラ列島等における定期観測を実施するために必要な装置・施設の体制を整える。海底火山活動を反映するデータの収集を行う。

10) 平成37年度：

前年度に引き続き海外の共同研究者と連携し、国内の火山における火山ガスのヘリウム-炭素オンサイト同位体比測定の実験観測と、装置のさらなる高度化に向けた検討を行う。課題Bサブテーマ1によりミュオグラフィ火山透視画像とその自動診断結果が毎日提供される桜島近傍の井戸に、可搬型ヘリウム-炭素同位体比測定システムを数週間ないし数ヶ月間設置し、リアルタイム観測データを得て火山体内部のマグマの挙動と対応させ、将来の噴火活動の推移予測につながる知見を得る。

前年度に引き続き、火口近傍での連続的な噴煙試料採取と水蒸気の同位体比測定を実施する。

引き続き箱根山大涌谷で火山ガス成分連続観測を行う。

トカラ列島等における定期観測を実施し、海底火山活動を反映するデータの収集を行う。

(e) 平成28年度業務目的

1) 火山ガス中マグマ起源成分観測技術の開発

a) プロジェクトの総合推進

下記の技術開発を進めつつ、気象庁気象研究所の協力を得て箱根山、草津白根山、伊豆大島をはじめとした各火山において火山ガス・温泉ガス・土壌ガス等を採取し、ヘリウム・炭素・水素（再委託先、名古屋大学が実施）・酸素（同）の同位体比や二酸化炭素放出量の平常時のデータを蓄積するとともに、本プロジェクトを通して将来開発する装置群による集中観測や、ヘリウム-炭素同位体オンサイト測定システムによる連続測定を実施する、火山や観測地点の選定に向けての同位体比情報の網羅的解析を行う。

b) オンサイトマグマ起源ヘリウム測定に関わる技術開発

可搬型でありながら高い質量分解能を持つ飛行時間型質量分析計を導入し、大阪大学の技術協力を得て性能評価と、 $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 比を指標としたマグマ起源ヘリウムの検出を最初の目標とした分析プロトコルの構築を行う。

c) 高スループットマグマ起源ヘリウム測定に関わる技術開発

既存の磁場型質量分析計に接続してヘリウム同位体の高スループット分析を行うための、PC上のプログラムから制御可能な電動モーターバルブ、ガス成分トラップ類の温度制御システム等を備えた全自動ヘリウム精製・分離用真空ラインを導入し、分析プロトコルを構築する。

d) 熱水の兆候を示す底層水の採取法の検討

野外での採水器・センサーを用いた採水および実験室での分析という一連のプロトコルを実践することで、実用的な採水システムに関する検討を行う。滋賀県立大学の協力を得て琵琶湖での採水を実施する。

2) 水蒸気同位体比分析（再委託先：名古屋大学）

a) 噴煙試料の水蒸気同位体比分析に関わる技術開発

真空容器に採取し、実験室に持ち帰った噴煙（大気）試料を対象に、含まれる水蒸気の高感度同位体比分析システムを構築する。

b) 自動噴煙試料採取装置の設計

航空機等に搭載して高濃度の噴煙を採取する、自動噴煙試料採取装置の設計を行う。

3) 活火山の地球化学的モニタリング（再委託先：東海大学）

箱根山等において、従来型の噴気の手による繰り返し採取と分析を行い、活火山の地球化学的モニタリングを実施する。

なお、上記 1) ～3) で得られたデータは、連携する本事業課題 A に提供する。

(2) 平成28年度の成果

(a) 業務の要約

オンサイトあるいは高スループットマグマ起源ヘリウム測定に用いる可搬型質量分析計と真空ライン、水蒸気の高感度同位体比分析システム、航空機等に搭載して高濃度の噴煙を採取する自動噴煙試料採取装置を開発した。海底火山・海底温泉における水・ガス試料の採取・分析技術の開発のため、ニスキンボトルによる底層水採取を琵琶湖で実施した。箱根山、草津白根山、伊豆大島、那須山、霧島山硫黄山、霧島山新燃岳において火山ガス・温泉ガス等を採取し、ヘリウム・炭素等の同位体比と、土壌を通しての二酸化炭素放出量の平常時のデータを蓄積した。草津白根山、伊豆大島では山頂の火口から3~9 km離れた地点の温泉水や井戸水にもマグマ起源ヘリウムが含まれていることが明らかとなった。また箱根山においては、定期的に噴気の採取と、化学組成と多成分同位体比の測定を継続して行った。

(b) 業務の実施方法

1) 火山ガス中マグマ起源成分観測技術の開発

a) プロジェクトの総合推進

各火山において火山ガス・温泉ガス等を採取し、ヘリウム・炭素・水素・酸素の同位体比の平常時のデータを蓄積するとともに、本プロジェクトで将来開発する装置群による集中観測や連続測定を実施する、火山や観測地点の選定に向けての同位体比情報の解析を行った。実施した試料採取を表1に示す。

表1. 本プロジェクトで観測対象とした火山と調査日程・試料の種類

火山	日程	試料の種類
箱根山	平成29年1月10-11日	噴気
	平成29年2月6-7日	
	平成29年3月8-9日	
	平成29年3月28-29日	
草津白根山	平成28年11月12-13日*	噴気・温泉ガス、温泉水
伊豆大島	平成28年7月19-21日*	
	平成28年9月21日*	温泉水、地下水
	平成29年1月5-6日	
	平成29年3月15-16日	
霧島山硫黄山	平成28年8月29-31日*	噴気
	平成29年1月17-19日	
霧島山新燃岳	平成29年1月17-19日	噴気
那須岳	平成29年2月16-17日	噴気

*委託契約前のため別予算で実施

霧島山新燃岳と那須岳は、当初提案では観測対象としていなかったが、噴気活動が活発であり早期に平常時のデータを得ておくべきと判断され、また霧島山硫黄山については平成28年12月に噴火警報レベルが新たに導入されたため、観測を実施した。

$^3\text{He}/^4\text{He}$ 比並びに $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 比測定は上記全ての火山、炭素同位体比は伊豆大島と草津白根山、水の水素・酸素同位体比は箱根（東海大による再委託業務 3）「活火山の地球化学的モニタリング」による）の試料について分析した。

また伊豆大島においては多地点において土壌ガス中の二酸化炭素濃度を測定し、土壌を通しての二酸化炭素放出量の分布を求めた。

b) オンサイトマグマ起源ヘリウム測定にかかわる技術開発

大阪大学の協力のもと、可搬型でありながら高い質量分解能を持つ飛行時間型質量分析計（MSI.TOKYO社製 infiTOF）の市販モデルを用いたヘリウム同位体比測定の実験を行った。

c) 高スループットマグマ起源ヘリウム測定にかかわる技術開発

既存の磁場型質量分析計に接続してヘリウム同位体の高スループット分析を行うための、全自動ヘリウム精製・分離用真空ラインに用いる電動モーターバルブを設計した。市販の電動バルブが電磁コイルあるいは空圧弁を用いているのに対し、信頼性の高い全金属製のトルク締めマニュアルバルブを採用し、トルクモーターで開閉することにより、確実に開閉しかつリークタイト、開状態でのコンダクタンスも高いことが特徴である。またこのバルブと、PC上のプログラムから制御可能なガス成分トラップ類の温度制御システム等を備えた全自動ヘリウム精製・分離用真空ラインを設計・製作した。現在は組み立てを済ませ、真空排気とベーキングにより配管の内壁表面に吸着あるいは部材に溶け込んだヘリウムをはじめとした希ガスの除去を進めている。

d) 熱水の兆候を示す底層水の採取法の検討

海底火山近傍の熱水を含む底層水を採水するためのシステムの開発を行った。今年度は採水器に取り付けて用いる、水温・電導度複合センサーを導入し、滋賀県立大学の協力を得て平成29年2月20-22日に琵琶湖にて採水テストを実施した。水試料を銅管に採取し、実験室で $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比を分析した。

2) 水蒸気同位体比分析（再委託先・名古屋大学により実施）

a) 噴煙試料の水蒸気同位体比分析にかかわる技術開発

既存設備であるCRDS分光に基づく水同位体分析計を改造することで、真空容器に採取し、実験室に持ち帰った噴煙（大気）試料を対象に、含まれる水蒸気の高感度同位体比分析システムを構築した。

b) 自動噴煙試料採取装置の設計

航空機等に搭載して高濃度の噴煙を採取する、自動噴煙試料採取装置の設計を行った。

3) 活火山の地球化学的モニタリング（再委託先・東海大学により実施）

箱根山等において、従来型の噴気の人手による繰り返し採取と分析による、地球化学的モニタリングを実施した。試料採取は平成28年11月、12月、平成29年1月（3回）、2月、3月（2回）に行った。火山ガス組成と水蒸気の水素・酸素同位体比の経時変化データの蓄積が進んでいる。

(c) 業務の成果

1) 火山ガス中マグマ起源成分観測技術の開発

a) プロジェクトの総合推進

各火山について得られた、火山ガス・温泉ガス等のヘリウム・炭素・水素・酸素の同位体比について以下の通りまとめる。

i) 伊豆大島

伊豆大島では1986年の噴火の際に、三原山北側山麓の東京大学大学院理学系研究科附属地殻科学実験施設の観測用井戸（以下、蒸気井と呼ぶ。図1のGRC大島観測井）から噴出する蒸気の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比が、マグマ起源ヘリウムの寄与率の増加に伴い上昇し、最高値5.5Ra（Raは大気中ヘリウムの $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比 $=1.4 \times 10^{-6}$ ）に達した後、噴火活動の収束とともに減少に転じたことが報告されている^{6,7)}。本年度はこの蒸気井で新たにガス試料を採取したほか、蒸気井から数250m程離れた場所にある、大島温泉ホテル源泉（図1）5号井で温泉ガスも採取し、それぞれ $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比と $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 比を測定した。なお本プロジェクトの事業開始以前（1999年～2013年）に不定期に採取していた試料についても、いくつかは本年度に分析を行っている。以上の結果を過去の報告値と合わせて、図2に示す。



図1. 伊豆大島における蒸気ガス、温泉ガス、温泉水、井戸水採取地点と $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比（黄色の数字、単位Ra）。括弧内の数字は大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比。 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比の測定値が大気値（1 Ra）に近い、すなわち大気混入率の高い地点においては信頼できる大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比が得られないため、「-」としている。

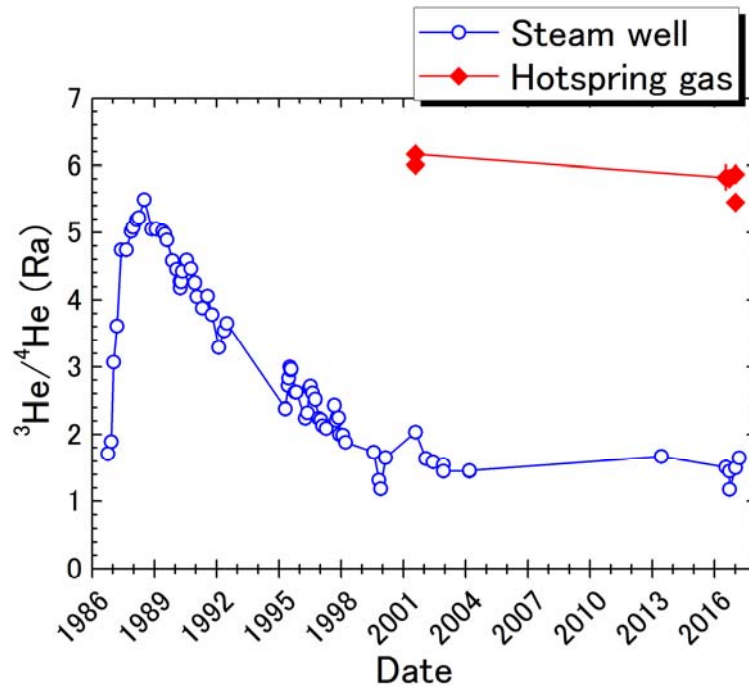


図2. 伊豆大島山麓蒸気井 (Steam well)、温泉ガス (Hotspring gas) の $^3\text{He}/^4\text{He}$ の経時変化。1999年以前のデータは文献^{6,7)}より。

前回の1986–87年噴火以降蒸気井ガスの $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比は減少を続け、現在では噴火直前の値よりもさらに大気値に近づいている。すなわち蒸気井の源である高温の帯水層へのマグマ起源ガスの供給は、噴火前のレベル以下に落ちていることが分かる。一方で温泉ガスの $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比は、2001年と現在で変わらず6 Ra前後と高い。 $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 比を指標として大気成分の混入を補正した $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比（以後、大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比と呼ぶ）は6.3 Ra程度であり、これは1986年の噴火時の蒸気井ガスの大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比（5.9~6.5 Ra）とほぼ等しい。

また島内の他の温泉や井戸で採取した温泉水や井戸水を分析した結果は、図1に示したとおりである。大気混入率は地点ごとに、例えば水を汲み上げるポンプの吸い込み口で水面付近の空気を巻き込みやすいなど、井戸の状態によって大きく異なるが、大気混入率の小さい地点における測定値から得られる大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比は、島の沿岸部であっても山麓の蒸気井ガスや温泉ガスのもつ値とほとんど等しい（岡田7号井、小清水源泉、大津源泉、大滝第二）。これは後述する草津白根山をはじめ、他の火山で見られている、火山体中心から離れるにつれ地殻起源ヘリウムの寄与が相対的に大きくなり、大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比が低くなるという傾向と大きく異なる。すなわち伊豆大島においては、火山体中心から6~7 km離れた地点でも、依然としてマグマ起源ヘリウムの寄与が支配的であると言える。

マントルに存在するヘリウムの同位体比は8Ra程度であることが知られている。伊豆大島で観測された6.3Raという大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比は、マントルと等しい $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比をもつマグマに由来するヘリウムに、火山体を構成する地殻由来のヘリウム（0.02 Ra程度の、低い $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比をもつ）が加わった結果と解釈することもできる。しかし、マントル成分と地殻

成分の火山体内での混合率が、蒸気井で見られたようにマグマ起源ガスの供給量が減少しているにもかかわらず、30年間にわたり一定であるとは考えにくい。また上に述べたように、火山体中心から離れても大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比がほとんど変化しない伊豆大島特有の特徴は、地殻が比較的薄い海上の火山島であるために、そもそも地殻起源ヘリウムの寄与が少ないことで説明できる。したがってマグマそのものの $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比がもとより 6.3 Ra であり、1986年の噴火時から現在に到るまで変わっていないと解釈する方が無理はない。

一方で伊豆諸島の他の島（新島、式根島、三宅島、青ヶ島）や伊豆半島の温泉ガスや、火山岩中のかんらん石斑晶の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比の最高値は 8 Ra 程度であり、伊豆小笠原弧直下のマンツルの $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比も、通常のマントルと同様の値をもつことが示されている⁸⁾。伊豆大島においても、2~3万年前の先カルデラ火山古期山体形成時のものと考えられる、北東沿岸部の泉津地域の海食崖で採取した玄武岩中のかんらん石斑晶から、7.4 Ra という $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比が得られている⁸⁾。従って現在の温泉ガス観測から明らかになった、直近で活動したマグマの $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比は、その起源であるマンツルの値よりも低くなっていると考えられる。しかし $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比を下げる要因として最も可能性の高い、マグマだまりへの地殻物質の混入は、1986年噴火時の溶岩についての岩石学・鉱物学的研究からは示されていない。伊豆大島の地下に現在存在しているマグマの $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比を解釈するには、さらなる研究が必要である。

これまで述べたとおり本年度までの研究により、2つの重要なことが明らかとなった。1つは前回の噴火以後、マグマ起源ヘリウムの放出率は減少の一途をたどり、現在は前回の噴火以前のレベル以下になっていること、もう1つはマグマそのものの $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比が、この30年間変化していないことである。これらのことから、次の噴火活動が始まるにあたり、蒸気井や温泉ガスなどの $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比に2通りの変動が起こる可能性があると予想される。1つは、前回活動したマグマがそのまま再活発化した場合、温泉ガスなどの大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比は 6.3 Ra のまま変化せず、蒸気井で観測されるマグマ起源ヘリウムの寄与率のみが増大し、 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比が上昇するというシナリオである。これはすなわち前回の 1986年の噴火で起こったことを再現することを意味する。もう1つは、マグマの再活発化がより深部の、マンツルから上昇した高い $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比をもつマグマの付加によって引き起こされた場合、蒸気井におけるマグマ起源ヘリウムの寄与率の上昇だけでなく、蒸気井や温泉ガスなどの大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比の値そのものの上昇も観測されるというシナリオである。この観点から、今後も伊豆大島の蒸気井や島内各所の温泉ガス、温泉水、地下水の定期的な $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比観測を継続していくことは、将来の噴火現象の理解と噴火切迫性評価手法の開発において、きわめて重要な意義を持つと言える。

炭素同位体比 ($\delta^{13}\text{C}$ 値) は、表 2 に示す値が得られた。温泉 (水温 30°C 以上) と井戸水 (岡田 3 号井) に含まれる炭素の同位体比は日本列島の火山ガスで見られる -10~-1‰ の範囲⁹⁾ に入り、とくに温泉においてはマグマ起源ヘリウムの寄与とも合わせて炭素のうち相当量もマグマ起源と考えられるが、井戸水においてはほとんどが低い同位体比を持つ、地層中の有機物起源と考えられる。

表 2. 伊豆大島の温泉ガス、温泉水、地下水の水温と炭素同位体比

採取地点	水温 (°C)	$\delta^{13}\text{C}$ 値 (‰)
大島温泉ホテル源泉	85	-1.5
大津源泉	31	-7.7
小清水源泉	44	-4.6
岡田 3 号井	19	-6.1
岡田 5 号井	18	-13.9
岡田 7 号井	23	-13.1

2016 年 7 月に伊豆大島三原山山頂部において、伊豆大島での今後の土壌ガス調査を展開する候補領域を見極めるための土壌ガスの放出分布の予備調査を実施した。合計 114 地点で、土壌表面から放出する二酸化炭素量を測定した。現在伊豆大島では、山頂火口の内部、剣ヶ峰付近の火口壁面、三原新山の西側に弱い噴気があるが、高温噴気は見られていない。2016 年 7 月の調査では、三原新山西側の噴気地帯周辺、剣ヶ峰付近の火口原の東側領域と 1986 年噴火によって形成された B 火口列周辺において明瞭な土壌ガスの放出が見られた。

ii) 草津白根山

草津白根山では 2014 年 3 月以降、火山性地震の増加、山頂付近の膨張、地下温度の上昇を示す全磁力変化、湯釜火口付近の北側噴気の活発化などが報告され、2014 年 6 月 3 日に噴火警戒レベルが 1 から 2 に引き上げられた。その後 2015 年 4 月までには火山性地震、山体膨張、全磁力変化は平常時に戻ったものの、噴気活動は依然として活発であり、また湯釜湖水に含まれる火山ガス成分濃度も上昇したままである。草津白根山の火山ガスや温泉ガスのヘリウムと炭素の同位体比は、北側噴気、東側斜面の噴気地帯である殺生河原、温泉地として名高い草津温泉の湯畑、山頂から 9.5 km 離れた谷あいの尻焼温泉など各所について 1994 年に報告されている¹⁰⁾。東京大学では 2014 年 10 月からこれらの噴気や温泉を採取し、データを蓄積している。本年度も北側噴気、殺生河原、湯畑、白旗温泉、尻焼温泉で試料を採取し、ヘリウムと炭素の同位体比測定を実施した。図 3 に試料採取地点と、それぞれで観測された $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比を示す。

全ての地点でマグマ起源ヘリウム ($^3\text{He}/^4\text{He}$ 比 = 7.8 Ra、北側噴気で最も高い大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比より推定) の寄与が見られるが、湯釜火口からの距離が大きくなるに従って、大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比が低くなる傾向が見て取れる。とくに最も遠い (湯釜火口から 9.5 km) 尻焼温泉では顕著である。

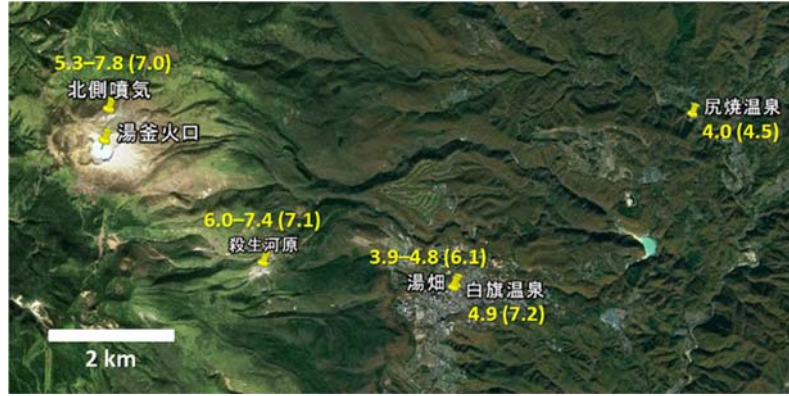


図 3. 草津白根山における噴気、温泉ガス、温泉水採取地点と $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比 (黄色の数字、単位 Ra)。括弧内の数字は大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比。白旗温泉と尻焼温泉以外の地点については、2014 年～2016 年にかけて複数回採取した試料の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比の範囲と、大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比の平均値を示している。

表 3. 草津白根山の噴気・温泉ガス・温泉水の大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比

地点	試料タイプ	大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比 (Ra)	
		2014-2016 年	1994 年 ¹⁰⁾
北側噴気	噴気	6.2-7.8	8.1
殺生河原	噴気	6.2-7.5	7.5
湯畑	温泉ガス	5.0-6.5	6.8
白旗温泉	温泉ガス	7.2	7.0
尻焼温泉	温泉水	4.5	5.2

とくに近年、大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比が顕著に高くなっている地点はない。2014 年の試料採取は 10 月であり、火山性地震の数と全磁力変化からは既に異常が見られなくなっている時期に当たる。従って仮に、2014 年 3 月からの活発化により $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比に変動が起こっていたとしても、観測にかからなかった可能性はある。一方で湯釜湖水の化学組成や噴気の活動度は依然として高いが、その影響は少なくとも $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比には見えていないことになる。しかし湯釜火口から最も近い北側噴気は、1994 年の時点で既に、日本列島で取り得る $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比の最高値を示していたため、仮に 2014 年の活発化でマグマ起源ヘリウムの寄与が増加しても、 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比のそれ以上の増加につながらなかった可能性もある。噴気地帯では大気に解放した噴気孔から試料ガスを採取するため、その際に大気の混入が起こることは避けられず、それゆえマグマ成分/大気成分の寄与率の比を火山活動の尺度として用いることは難しい。一方温泉ガスの採取においては、温泉の湧き出し口から遊離してくるガスを水中で捕集するため、採取時の大気混入の程度は低く抑えることができる。従って温泉ガスが採取でき、適度にマグマ成分と地殻成分が混合している湯畑が、今後の火山活動の推移をモニタリングするには適しているかもしれない。

炭素同位体比と、 $\text{CO}_2/{}^3\text{He}$ 比を図 4 に示す。この図においては、試料のデータはマントル

と海成炭酸塩、有機堆積物の三成分の混合で説明され、これら起源の異なる炭素がそれぞれどのような割合で含まれているかが分かる。草津白根山のデータは日本列島の他の火山のデータの分布域⁹⁾の中にあり、1994年のデータと比べて大きな違いはなく、やはり2014年の活発化の影響は見られていない。

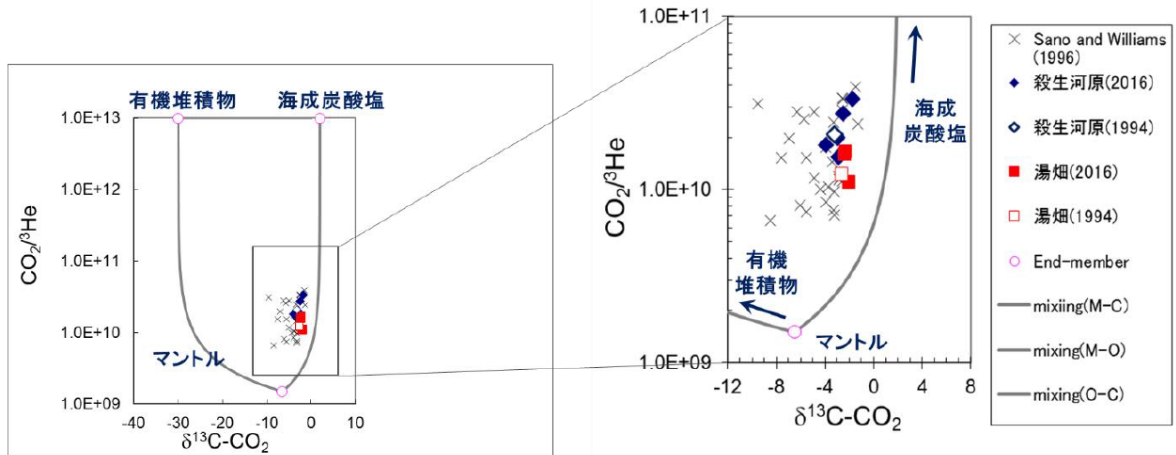


図4. 草津白根山、殺生河原噴気と湯畑温泉ガス中の二酸化炭素の炭素同位体比 ($\delta^{13}\text{C}$ 値) と $\text{CO}_2/{}^3\text{He}$ 比。日本列島の他の火山のデータは文献¹⁰⁾より。

iii) 霧島山硫黄山

霧島山えびの高原硫黄山火口内の噴気地帯の二地点で噴気を採取した。噴気温度はいずれも95~97°C程度であった。大気補正 ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ 比は2016年8月30日時点で6.8 Raであったが、2017年1月17日には7.4 Raと、若干の有意な上昇が見られた。硫黄山では2016年12月12日に火山性地震の増加と、それに伴う火山性微動と山体の膨張を示す傾斜変動が観測されたため、噴火警戒レベルが1から2に引き上げられた。しかしこれらの異常は12月16日以降見られなくなったため、2017年1月13日には噴火警戒レベルが再び1に引き下げられた。上記の大気補正 ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ 比の上昇が、一時的な活動の活発化と関係しているかどうかは、平穏時の経時変化のデータの蓄積がなされていない現時点では不明である。

iv) 霧島山新燃岳

霧島山新燃岳西側斜面(山頂火口縁から約200 m西側)の噴気地帯の2ヵ所で、95°C前後の噴気を採取した。大気補正 ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ 比は7.4 Raであった。

v) 那須岳

那須火山帯高原山と、茶臼だけで噴気を採取した。大気補正 ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ 比は2.1~2.7 Raであり、マグマ起源ヘリウムの寄与が他の火山に比べて非常に低いことが特徴である。

vi) 箱根山

大涌谷と上湯場の二箇所で採取した噴気の大気補正 ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ 比は、6.2~6.6 Raの狭い範

囲で推移していた。再委託先の東海大学による 3) 活火山の地球化学的モニタリング (後述) にあるとおり、観測期間中に 2015 年度のように規模の大きな群発地震は発生せず、火山ガスの化学組成や水素・酸素同位体比は安定していたことと調和的である。

b) オンサイトマグマ起源ヘリウム測定に関わる技術開発

飛行時間型質量分析計 (MSI. TOKYO 社製 infiTOF) の市販モデルを用いた $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比測定のテストの結果、 ^4He の検出は十分に可能であるものの、その百万分の一程度しか存在しない ^3He の検出には、純ヘリウムとして数 mL/分の流量で試料を導入する必要があることが分かった (論文投稿中)。これは通常の火山ガスとしては数十 L/分という膨大な量の試料ガスの導入に相当し、現実的にはイオンを生成し、質量分析部内を気体分子との衝突なしに飛行させることが不可能な量である。そこで本委託業務で開発したモデルではイオン源部を次年度以降に改良できるように設計を変更した。完成した質量分析計を用いてヘリウムガスや大気を測定し、 ^3He と ^4He 、 ^{20}Ne がそれぞれ同重体による妨害 (^3He に対しては HD と H_3 、 ^{20}Ne に対しては ^{40}Ar の二価イオン) と分離して検出できていることを確認した。

c) 高スループットマグマ起源ヘリウム測定に関わる技術開発

完成したヘリウム精製・分離用真空ラインは現在真空排気を続けており、真空度は 10^{-7}Pa まで達している。開発した電動モーターバルブの動作状態も良好である。

d) 熱水の兆候を示す底層水の採取法の検討

琵琶湖北西部の湖底では堆積物の噴出現象が確認されており、地下水・ガスが放出されている可能性があるため、その近傍のサイト (北緯35度22分、東経136度6分、水深88 m) で水温測定と採水を実施した。採取した水試料の溶存ガスをヘッドスペース法で抽出し、その圧力を測定することによって大気混入の影響が極めて小さいことを確認した後、精製して $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比を測定した。50 m以深では水温が $7.6\text{ }^\circ\text{C}$ と一定であり、 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比は殆ど大気の数値で変動が見られず、湖底からの熱流体放出の兆候は検出されなかった (図5)。試料への大気汚染の影響の小ささと、水温データと矛盾しない同位体分析結果から、試料採取法は良好であることを確認できた。本調査は琵琶湖の全層循環の直後に実施されており、大規模な湖水混合によって湖底流体の兆候が検出困難となった可能性がある。流体の兆候・起源についてより精密に議論するためには、水温躍層が発達する時期に調査を行う必要があると考えられる。

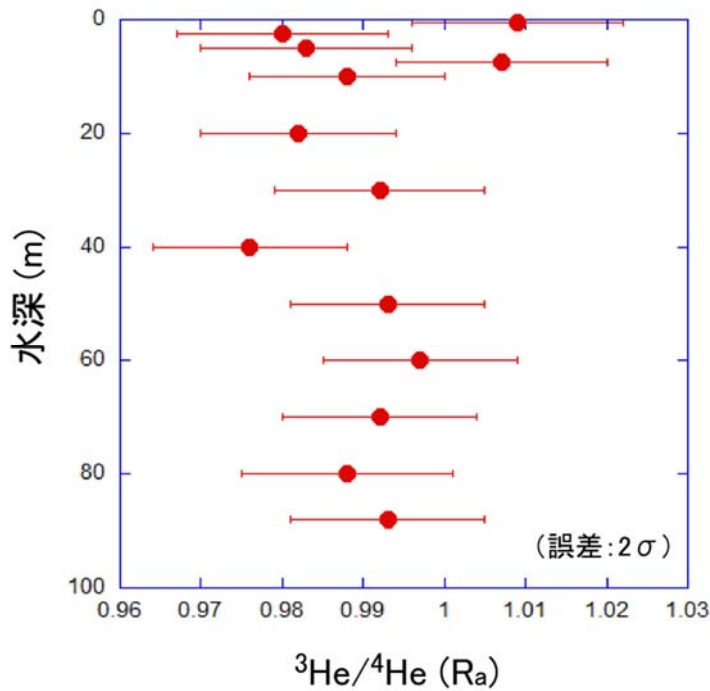


図5. 琵琶湖採取試料の水深と $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比

2) 水蒸気同位体比分析 (再委託先・名古屋大学により実施)

a) 噴煙試料の水蒸気同位体比分析
に関わる技術開発

既存設備であるCRDS分光に基づく、水試料(液体)の水同位体分析計を改造することで、真空容器に採取し、実験室に持ち帰った噴煙(大気)試料を対象に、含まれる水蒸気の高感度同位体比分析システム(図6)を構築する作業を完了した。また噴煙(大気)試料測定を実現するため、同位体分析計制御用の測定プログラムを新規に製作した。

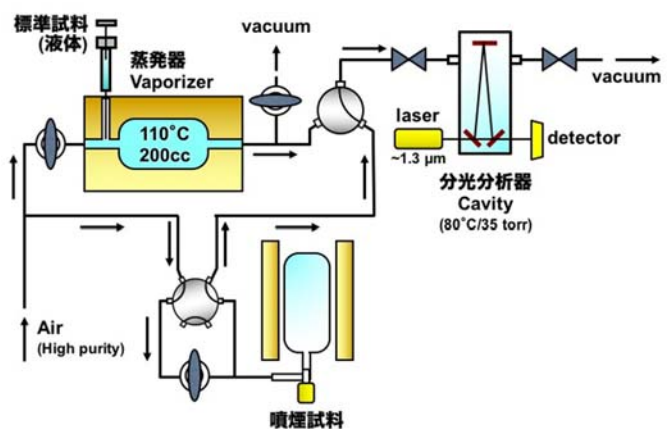


図6. 噴煙(大気)試料中の水蒸気同位体比測定システムの模式図

b) 自動噴煙試料採取装置の設計

航空機等に搭載して高濃度の噴煙を採取する、自動噴煙試料採取装置の設計を行った。総重量は3 kg程度となる見込みとなった。

3) 活火山の地球化学的モニタリング（再委託先・東海大学により実施）

箱根山では2015年の4月末から群発地震が頻発し、同年6月末に、ごく小規模な水蒸気噴火が発生した。これは箱根山では観測史上初めての噴火であった。群発地震と噴火により、大涌谷周辺に観光客が立ち入れなくなり、箱根町は観光面において大きな打撃を受けた。この火山活動の前後で、火山ガスの化学組成と安定同位体比に大きな変動が観測された。本プロジェクトでは、2017年1月から3月まで、箱根山の大涌谷と上湯場の二か所で噴気の採取・分析を繰り返し実施した。

箱根山では2016年度に2015年度のように規模の大きな群発地震は発生しなかった。これに対応し、火山ガスの化学組成や同位体比は安定していた。一例として、 CO_2/CH_4 比の変動を図7に示す。火山ガスの成分として、 CO_2 は主にマグマに由来し、 CH_4 は浅部熱水系に由来する。 CO_2/CH_4 比の上昇はマグマ脱ガス活動の活発化に対応する。 CO_2/CH_4 比は2015年の火山活動に対応し、明確な上昇を示したが、その後、急速に低下し、本プロジェクトの実施期間中は緩やかな低下傾向を保った。

2016年10月7日に大涌谷で採取した噴気には、いわゆるシーリングの兆候が観測された。シーリングとは、マグマから発散する揮発性物質が、地殻中の通路の「目詰まり：シーリング」により、浅部熱水系に供給される流量が減少することを意味する。シーリングの具体的な兆候としては、 N_2/He 比が45000へ上昇したことが挙げられる（図8）。通常、この比は、4000程度で、2015年の活発化の際にも、顕著な上昇が観測されている。10月7日の観測結果を受け、臨時に10月19日に追加の観測を実施したが、通常値に復帰していた。また10月7日の大涌谷噴気では、 H_2O の酸素同位体比（ $\delta^{18}\text{O}_{\text{SMOW}}$ ）が-9.7‰まで減少した（図9）。酸素同位体比も2015年活発化に先立ち低下している。2015年10月7日の大涌谷噴気に見られた N_2/He 比の上昇と H_2O の酸素同位体比の低下は、浅部熱水系でシーリングが起き、マグマ性流体の供給が低下し、それを補うように、地下水成分と大気混入成分が増加したことを示している。しかしシーリングの規模は小さく、そのために、マグマの増圧は起きなかったために、 CO_2/CH_4 比に変化が見られなかったと考えられる。

なお、東海大学では、2013年から箱根山の観測を継続しており、上記には委託研究期間よりも以前の情報も含まれている。火山活動を正しく評価するには長期間のデータを見渡すことが必要であり、長期間の傾向を提示することが理解につながると判断して報告した。

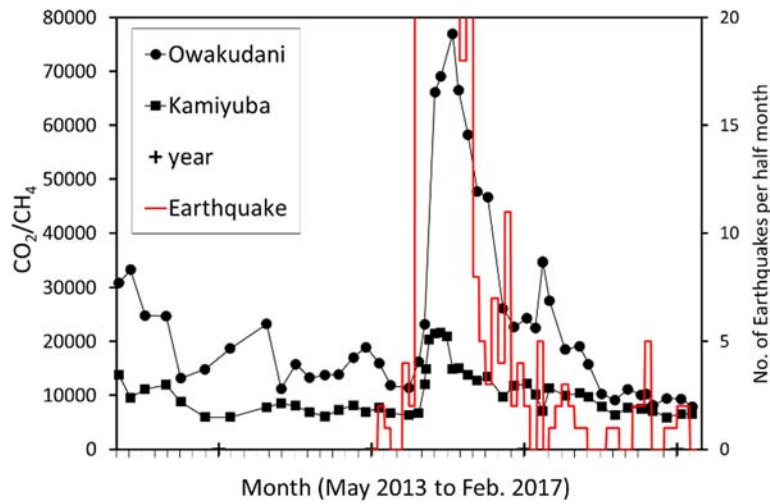


図7. 箱根山大涌谷噴気のCO₂/CH₄比の時間変化（地震回数は気象庁の観測に基づく）

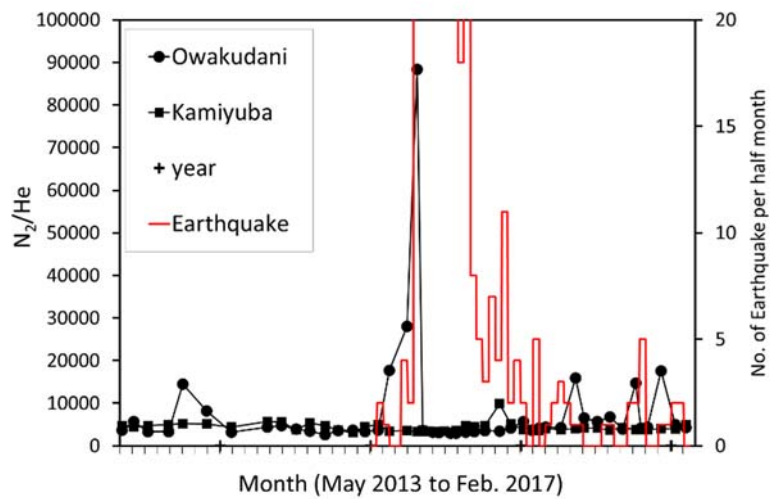


図8. 箱根山大涌谷噴気のN₂/He比の時間変化（地震回数は図7と同様）

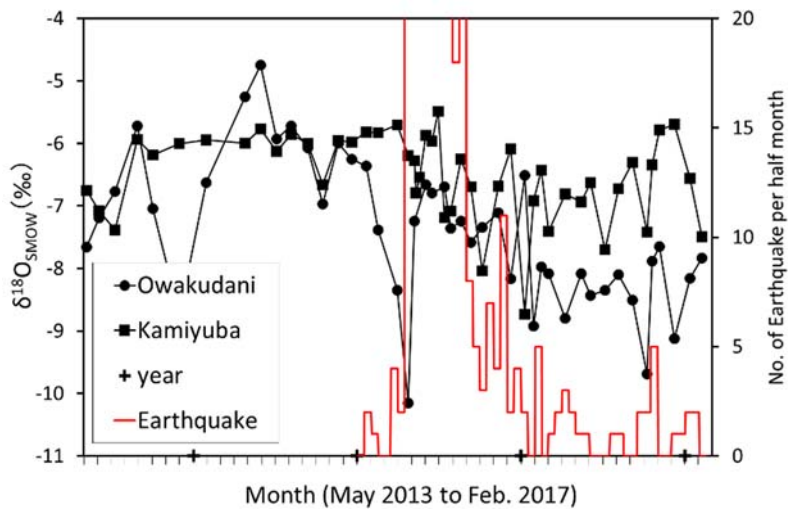


図9. 箱根山大涌谷噴気のH₂O酸素同位体比の時間変化（地震回数は図7と同様）

(d) 結論ならびに今後の課題

本年度に実施した、伊豆大島と草津白根山における火山ガス・温泉ガスの試料採取とヘリウムの結果から、マグマ起源のヘリウムは火口から離れた地点でも検出されることが明らかとなった。火口近傍はマグマ活動が活発した場合に立入が規制され、試料採取が不可能となる可能性が高いが、火口から数 km 離れた地点であれば噴火直前、あるいは噴火中でも試料採取が可能と期待され、マグマ起源ヘリウムの寄与率が噴火活動に伴いどのように変動するかをモニターする上では、都合がよいと考えられる。また伊豆大島においては前回の噴火で上昇した、山麓の蒸気井へのマグマ起源ヘリウムの寄与が落ち着き噴火前のレベルに戻っていることが明らかとなった。従って仮に、次にマグマ起源ヘリウムの寄与が上昇するようなことがあれば、それはマグマからのガス放出が活発化することを意味し、スペイン・カナリア諸島の El Hierro 島で 2011 年の噴火の際に観測された、火山性微動の活発化などにも先行する噴火活動の先駆的現象¹⁾ に対応する可能性がある。またマグマ起源ヘリウムの同位体比そのものが、新たなマグマの貫入によって上昇する可能性もある。今後も継続して注視する必要がある。

伊豆大島における土壌ガス中の二酸化炭素濃度調査では、現在弱い噴気が確認される地点だけでなく、それ以外の地点においても土壌を通して二酸化炭素が放出されていることが明らかとなった。これらは次の火山活動の活発化において噴気孔、ひいては火道となる可能性もあるので、今後も同様の観測を継続する。

その他の火山、すなわち箱根山や霧島硫黄山、霧島新燃岳、那須岳でも平常時のヘリウム同位体比のデータが得られた。一方で当初計画では各火山で採取した全ての試料について、ヘリウム・炭素・水素・酸素全ての同位体比を網羅的に測定するとしていたが、現場での試料の噴出あるいは湧出状況によって、それぞれの同位体比の分析に供することのできる形態（生ガス、凝縮水、乾燥ガス、アルカリに吸収されないガス等）の全てが採取できないために、全ての試料について、当初挙げていた全ての同位体比を分析することが不可能となっている。今後は複数成分の同位体比分析に適した噴気や温泉ガスが採取できる地点を探索したり、試料採取のプロトコルを統一する必要がある。

装置開発の面では、可搬型質量分析計やヘリウム分離・精製ラインはおおむね当初想定した性能を持つものが開発できているが、開発に時間がかかったためにこれらを実際に用いた分析手法の構築までには到っていない。しかし次年度にスケジュール上の遅れを取り戻すことは十分に可能である。噴煙試料の水蒸気同位体比分析に関わる技術開発では、真空容器（内容積 1 リットル程度）に採取し、実験室に持ち帰った噴煙試料を対象に、含まれる水蒸気の高感度同位体比分析システムを構築する作業と、これに必要となる同位体分析計制御用の測定プログラムの製作・改良を完了した。大気試料を対象に実施した予察的な実験では、水素同位体比が 2 パーミル以内、酸素同位体比が 1 パーミル以内の高い測定精度で測定出来る目処がついており、現状でも既に観測に投入可能な状況にある。次年度以降に本格的な実験と改良を実施することで、さらなる精度の向上を目指すとともに、確度の検証も進める。また、航空機等に搭載して高濃度の噴煙を自動採取する、自動噴煙試料採取装置の設計も順調に終了した。見込まれる総重量は 3 kg 程度となり、無人航空機やドローン等に搭載するには、課題が残る結果となった。予算の都合で試験機の製作は平成 30 年度以降となったが、この試験機を通じて再検討を進め、軽量化を目指す。

底層水の採取法を琵琶湖で検討し、湖水のヘリウム同位体比と水温の測定が可能であることを確認した。今後は銅管以外に真空容器を用いた採水法を検討するとともに、手法の確立に向けて測定項目を増やしていく。

(e) 引用文献

- 1) 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.: Diffusive helium emissions as a precursory sign of volcanic unrest, *Geology*, Vol. 41, pp. 539-542, 2013.
- 2) Sano, Y., Kagoshima, T., Takahata, N., Nishio, Y., Roulleau, E., Pinti, D.L. and Fischer, T.P.: Ten-year helium anomaly prior to the 2014 Mt Ontake eruption, *Scientific Reports*, Vol. 5, 13069, 2015.
- 3) McMurtry, G., Hilton, D. and Blessing, J.: Development of a field-portable helium isotope detector for survey and long-term monitoring, *Goldschmidt Abstracts*, Vol. 2016, pp. 2038, 2016.
- 4) Tomonaga, Y., Brennwald, M.S., Rüssel, R. and Kipfer, R.: Advances in the on-site and remote-controlled analysis of dissolved (noble) gases in water bodies, *Goldschmidt Abstracts*, Vol. 2016, pp. 3151, 2016.
- 5) Wen, H.-Y., Sano, Y., Takahata, N., Tomonaga, Y., Ishida, A., Tanaka, K., Kagoshima, T., Shirai, K., Ishibashi, J.-i., Yokose, H., Tsunogai, U. and Yang, T.F.: Helium and methane sources and fluxes of shallow submarine hydrothermal plumes near the Tokara Islands, Southern Japan, *Scientific Reports*, Vol. 6, 34126, 2016.
- 6) Sano, Y., Notsu, K., Ishibashi, J., Igarashi, G. and Wakita, H.: Secular variations in helium isotope ratios in an active volcano: Eruption and plug hypothesis, *Earth and Planetary Science Letters*, Vol. 107, pp. 95-100, 1991.
- 7) Shimoike, Y. and Notsu, K.: Continuous chemical monitoring of volcanic gas in Izu-Oshima volcano, Japan. *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, Vol. 101, pp. 211-221, 2000.
- 8) Shimizu, A.: Noble gas geochemistry of the Izu-Ogasawara subduction system. 東京大学博士論文, p. 135, 2006.
- 9) Sano, Y. and Williams, S.N.: Fluxes of mantle and subducted carbon along convergent plate boundaries, *Geophysical Research Letters* Vol. 23, pp. 2749-2752, 1996.
- 10) Sano, Y., Hirabayashi, J., Ohba, T. and Gamo, T.: Carbon and helium isotopic ratios at Kusatsu-Shirane volcano, Japan, *Applied Geochemistry*, Vol. 9, pp. 371-377, 1994.

(f) 成果の論文発表・口頭発表等

著者	題名	発表先	発表年月日
Tsunogai, U., L. Cheng, M. Ito, D. D. Komatsu, F. Nakagawa, H. Shinohara	Remote determinations on fumarole outlet temperatures in an eruptive volcano	Geophysical Research Letters 誌 (Vol. 43, No. 22, p. 11620- 11627)	平成 28 年 11 月 26 日

(g) 特許出願、ソフトウェア開発、仕様・標準等の策定

1) 特許出願

なし

2) ソフトウェア開発

なし

3) 仕様・標準等の策定

なし

(3) 平成29年度業務計画案

(a) 火山ガス中マグマ起源成分観測技術の開発

1) プロジェクトの総合推進

下記 2)、3)の技術開発を進めつつ、気象庁・気象研究所の協力を得て箱根山、草津白根山、伊豆大島、桜島、霧島山硫黄山、那須岳、九重山等の各火山において火山ガス・温泉ガス・土壌ガス等を採取し、ヘリウム・炭素・水素（再委託先、名古屋大学ならびに東海大学が実施）・酸素（同）等の同位体比の平常時のデータを蓄積するとともに、本プロジェクトを通して将来開発する装置群による集中観測や、ヘリウム-炭素同位体オンサイト測定システムによる連続測定を実施する、火山や観測地点の選定に向けての同位体比情報の網羅的解析を行う。

箱根山、草津白根山、伊豆大島においては昨年度に引き続き重点的に、定期的な試料採取と分析を実施するが、今年度はこれらに加えて、昨年10月の噴火の直前に大量の二酸化硫黄放出が観測された阿蘇山、噴気活動が活発であり気象庁による噴火警戒レベルの運用が平成28年12月から開始された霧島山硫黄山、噴火警戒レベルは1であるものの、長期にわたり火山ガス活動が活発な那須岳と九重山等について、将来の活動状況の推移次第で極めて重要な情報となり得る、現時点での同位体比データを取得しておくために火山ガス試料の採取と分析を実施する。とくに霧島山硫黄山においては、課題Bサブテーマ4と連携し、可能な限り時期を合わせて試料採取を実施する。

また桜島は、以前より噴火活動が活発であり、本サブテーマの当初提案でも平成31年度より観測対象としていたが、課題Bサブテーマ1やサブテーマ2で桜島をすでに対象として研究を開始しており、サブテーマ間の連携を早期に開始する観点から、前倒しして本年度から予察的な試料採取と分析を開始する。

2) オンサイトマグマ起源ヘリウム測定に関わる技術開発

前年度に導入した、可搬型でありながら高い質量分解能を持つ飛行時間型質量分析計は、様々なガス種の分析に対応した汎用的な仕様であり、大気中に5 ppm程度しか含まれないヘリウムの検出は現状でも可能であるものの、より質のよい同位体比データを得るためには、ヘリウムに特化するための改良が必要である。これまでの性能評価の結果から、イオン源における希ガス以外のガス種の圧力を低く抑え、また質量/電荷比のドリフトを補正すると、より安定してヘリウム同位体の検出が行えると期待される。そこで今年度は、イオン源へのゲッターポンプの追加と真空ポンプに通じるゲートバルブのリモート制御化、ソフトウェア的にドリフトを補正する機能の追加といった改良を施す。前年度に引き続き大阪大学の技術協力を得て性能評価と、希ガスを質量分析計へ導入するための試料導入系の開発を行い、 $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 比を指標としたマグマ起源ヘリウムの検出を最初の目標とした分析プロトコルの構築を進める。

3) 高スループットマグマ起源ヘリウム測定に関わる技術開発

前年度に構築した全自動ヘリウム精製・分離ラインと組み合わせて用いる希ガス質量分析計に、高精度 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比測定に対応するための改造を施す。また質量分析計と精製ラインを包括的に制御するLabVIEWプログラムを作成し、ヘリウム同位体の高スループット分析プロトコル

の構築を進める。

4) 熱水の兆候を示す底層水の採取法の検討

温度・pHの測定をしながら底層水を採取し、船上で真空容器等に捕集して実験室でヘリウム等の同位体組成を分析する手法を開発するため、摩周湖での調査を実施する。摩周湖での業務に関しては国立環境研究所の協力を仰ぐ。

(b) 水蒸気同位体比分析（再委託先：名古屋大学）

1) 噴煙試料の水蒸気同位体比分析に関わる技術開発

前年度に構築した、真空容器に採取して実験室に持ち帰った噴煙（大気）試料中の水蒸気の高感度同位体比分析システムについて、実験室大気や模擬大気試料を対象に試験測定を開始する。また火山フィールドにおける現場観測用のキャビティリングダウン分光型水同位体比分析装置を新規に購入し、実験室内で試験測定を開始する。

2) 自動噴煙試料採取装置の製作準備

次年度の試作機の製作に向けて、購入物品の選定などの準備作業を開始する。

(c) 活火山の地球化学的モニタリング（再委託先：東海大学）

箱根山等において、従来型の噴気の人手による繰り返し採取と分析を行い、活火山の地球化学的モニタリングを実施する。

なお、上記(a)～(c)で得られたデータは連携する本事業の課題Aに提供する。