

### 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  
「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	外山浩太郎	k_toyama533@igcl.c.u-tokyo.ac.jp
東海大学理学部	特定研究員	西野佳奈	kana-nishino@tsc.u-tokai.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	高木充朗	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
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
国立環境研究所	室長	田中敦	tanako@nies.go.jp
九州大学・理学研究院	准教授	清川昌一	kiyokawa@geo.kyushu-u.ac.jp

#### (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、火山噴火の逼迫度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。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とともに、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。さらに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度評価への有効性を検証する。

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に変動することが知られている。これらは噴火の逼迫性を評価する上で、多くの火山で実施されている地球物理学観測とは独立の情報であり、他の観測と組み合わせる

ことにより噴火逼迫度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、火山活動に関係ないものか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 ( $\text{D}/^1\text{H}$  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、一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化し、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。

$^3\text{He}/^4\text{He}$  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  $^3\text{He}$  や、大気成分の混入の指標となる  $^{20}\text{Ne}$  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 ( $^3\text{He}$  に対し  $M/\Delta M > 510$ 、 $^{20}\text{Ne}$  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  $^3\text{He}/^4\text{He}$  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 (カナリア諸島 El Hierro 島の例: Padron *et al.*, *Geology* 2013、御嶽火山の例: Sano *et al.*, *Scientific Reports* 2015)。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 (McMurtry *et al.*, *Goldschmidt Conference* 2016; Tomonaga *et al.*, *Goldschmidt Conference* 2016)。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、 $^3\text{He}$  や  $^{20}\text{Ne}$  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  $^3\text{He}/^4\text{He}$  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、また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  $\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{CO}_2$ 、 $\text{SO}_2$ 、 $\text{H}_2\text{S}$ 、 $\text{HCl}$  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ブルームを伴う熱水活動 (Wen *et al.*, *Scientific Reports*, 2016) 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索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。

上記の実施内容のうち、東京大学ではプロジェクトの総合的推進と、マグマ起源ヘリウムを高精度かつ高いスループットで測定するシステムの構築、マグマ起源ヘリウムや二酸化炭素の炭素同位体比をオンサイト計測する可搬型の装置の開発、火山における試料採取及び調査、そして海底火山・海底温泉試料採取法と同位体比分析技術の開発を実施する。ヘリウムのオンサイト同位体比分析技術の開発では大阪大学、火山における試料採取および調査では気象庁・気象研究所の協力を得る。

再委託先の名古屋大学では、噴煙中水蒸気・水素の酸素・酸素オンサイト同位体比測定技術の開発と、採取した噴煙の水素・酸素同位体比の高精度分析による噴気温度測定を実施する。

再委託先の東海大学では、火山ガス成分連続観測技術の開発と、箱根山をはじめとした火山の地球化学的火山活動モニタリングを実施する。

それぞれの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、連携する次世代火山研究・人材育成総合プロジェクトの研究推進事業（以下「本事業」という。）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した。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の開発を進めた。

- ・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した。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した。
- ・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、霧島山硫黄山、桜島、那須岳、阿蘇山、九重山で行った。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った。
- ・摩周湖で、底層水の採取・分析技術の検討を行った。

### 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した。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、またイオン源にも高感度化の工夫を施すことにより  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比分析を試みた。火山ガスからヘリウムを選択的に分離する、可搬型で簡便な抽出装置の検討も行った。
- ・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した。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し、年度末にフィールドで作動試験を実施した。
- ・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、霧島山硫黄山、桜島、那須岳、阿蘇山、九重山で行った。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も継続して行った。
- ・火山湖である鰻池で、底層水の採取・分析技術の開発を行った。

### 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のために、草津白根山の火山ガスおよび周辺の温泉水溶存ガスを両方のシステムを用いて分析し、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  比マップを作成する。これを課題 B サブテーマ 4 の集中観測で得られる、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。
- ・前年度に構築した噴煙中水蒸気の安定同位体比分析システムの改善・フィードバックを完了する。主に噴気孔にアクセス可能な火山噴気帯で真空容器を用いて採取した噴煙試料を実験室に持ち帰って分析することで、噴煙（プルーム）中の水蒸気の安定同位体比を分析するとともに、噴気孔で直接採取することで決定した水蒸気の安定同位体比と比較することで新手法の確度を確認する。

- ・ 前年度に製作した噴煙試料自動採取装置の作動試験を継続し、年度内に運用可能にする。
- ・ 箱根山、草津白根山、霧島山硫黄山、伊豆大島等における火山ガス・温泉ガス・土壌ガス等の予備調査を継続する。箱根山、草津白根山、霧島山硫黄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。
- ・ 紫外線パルス蛍光法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、底層水などの採取・分析技術の開発を行う。

#### 5) 令和 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) 令和 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) 令和4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) 令和5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) 令和6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) 令和 7 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 30 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 b、c の技術開発を進めつつ、東海大学と気象庁・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、九重山、阿蘇山、那須岳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。

観測にあたっては、サブテーマ 4 が実施する予定の機動観測と可能な限り時期を合わせて試料採取を行い、連携を図る。

なお、研究期間中に国内の火山で、噴火の予兆が把握された場合もしくは噴火が発生した場合において、次世代火山研究・人材育成総合プロジェクトのプロジェクト・リーダーが当該火山を対象とした緊急観測の実施を決定した際は、ここで実施する現地観測について、その一部もしくはその全てに代えて緊急観測を実施することを可能とする。

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

平成 28 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

量分析計について、昨年度までに高感度化と低バックグラウンド化を主とした改良を進め、火山活動の指標の一つと期待される  $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$  比を実験室で測定できる目処は立っている。一方で  $^4\text{He}$  の 100 万分の 1 程度しか存在しない  $^3\text{He}$  については現状では検出が難しいことから、大阪大学と共同で開発した同型の装置用のイオン検出手法 (Jensen *et al.*, 2017) を本装置にも導入し、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  分析を試みる。またフィールドで簡便に He と Ne を火山ガスから分離し、質量分析計に導入するための多孔質セラミック膜の開発と、それを用いたコンパクトな真空ラインの製作も開始する。

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

昨年度までに開発してきたヘリウム精製・分離ラインと質量分析計を統合し、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  比分析の完全あるいは一部自動化システムを構築する。この高精度  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比測定に特化した装置では分析が難しくなる  $^{20}\text{Ne}$  を定量するため、四重極質量分析計を別予算で新たに導入する。

d) 熱水の兆候を示す底層水の採取法の検討

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、鰻池での調査を実施する。鰻池での業務に関しては九州大学の協力を仰ぐ。

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

水蒸気の安定同位体比分析システムの構築を完了する。主に噴気孔にアクセス可能な火山噴気帯で真空容器を用いて採取した噴煙試料を実験室に持ち帰ることで、噴煙 (プルーム) 中の水蒸気 ( $\text{H}_2\text{O}$ ) の安定同位体比分析を実現する。問題点があれば、分析システムにフィードバックして、改善する。

b) 自動噴煙試料採取装置の製作

前年度に設計した自動噴煙試料採取装置の試作機を製作する。

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、草津白根山、霧島山硫黄山等において、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、研究期間中に国内の火山で、噴火の予兆が把握された場合もしくは噴火が発生した場合において、次世代火山研究・人材育成総合プロジェクトのプロジェクト・リーダーが当該火山を対象とした緊急観測の実施を決定した際は、ここで実施する現地観測について、その一部もしくはその全てを、緊急観測に代えて実施することを可能とする。

なお、上記 1) 2) 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 30 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の開発を継続した。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、底層水の採取を鰻池で実施した。箱根山、草津白根山、伊豆大島、霧島山硫黄山、桜島、那須岳、阿蘇山、九重山において火山ガス・温泉ガス等を採取し、ヘリウム・炭素等の同位体比の平常時のデータを蓄積した。また箱根山、草津白根山、霧島山硫黄山においては、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

以下の表に示す各火山にて火山ガスや温泉ガス等を採取し、ヘリウム・炭素・水素・酸素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。火山によっては同時に、再委託先の名古屋大学による水蒸気同位体比分析技術の開発や、同じく東海大学による活火山の地球化学的モニタリングのための試料採取を実施している。

火山	採取時期	試料の種類	分析項目 <sup>‡</sup>
箱根山	4月*、5月*、6月*、7月*、 8月、9月、10月*、11月*、 12月*、1月、2月、3月*	噴気、噴煙	He、CO <sub>2</sub> (C)、 CO <sub>2</sub> (C, O)、H <sub>2</sub> O、H <sub>2</sub>
草津白根山	4月、5月*、6月、7月、8月*、 9月、10月、12月、3月	噴気、温泉ガス、温 泉水	He、CO <sub>2</sub> (C)、H <sub>2</sub> O、 H <sub>2</sub>
伊豆大島	6月、7月、9月*、12月*、2月	噴気、温泉ガス、温 泉水、地下水、土壤 ガス	He、CO <sub>2</sub> (C)、H <sub>2</sub> O、 H <sub>2</sub>
霧島山硫 黄山	5月、7月、10月、1月、2月	噴気、噴煙、温泉ガ ス、温泉水	He、CO <sub>2</sub> (C)、 CO <sub>2</sub> (C, O)、H <sub>2</sub> O、H <sub>2</sub>
九重山	7月	噴気	He、CO <sub>2</sub> (C)
那須岳	11月*	噴気	He、CO <sub>2</sub> (C)
阿蘇山	7月	噴気	He、CO <sub>2</sub> (C)
桜島	2月、3月*	観測孔ガス、噴煙	He、CO <sub>2</sub> (C)、 CO <sub>2</sub> (C, O)、H <sub>2</sub> O、H <sub>2</sub>

\*：別予算で試料採取を実施

‡：分析項目 He = <sup>3</sup>He/<sup>4</sup>He 比、CO<sub>2</sub>(C) = 二酸化炭素の炭素同位体比、CO<sub>2</sub>(C, O) = 二

酸化炭素の炭素・酸素同位体比、 $H_2O$  = 水（水蒸気）の水素・酸素同位体比、 $H_2$  = 水素ガスの水素同位体比

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

平成 28 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について、大阪大学と、可搬型質量分析計の実際の製造を請け負っている MSI. TOKYO 社と装置の仕様の検討を重ね、微量な  $^3He$  に由来する信号を電氣的ノイズと識別して計数する、パルスカウンティング法を開発した。並行して、本装置によるヘリウムの検出感度そのものの向上も試みた。また多孔質セラミック膜と、加熱した石英ガラス管を用いた、火山ガスからの He と Ne の選択的な分離のテストも行った。

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

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した。このヘリウム分離・精製ラインを用いて火山ガス試料の分析や、上記で述べた可搬型質量分析計の評価を実施した。

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、九州大学の協力を得て 2018 年 7 月に鰻池での調査を実施した。水試料を鉛ガラス容器に採取し、実験室で  $^3He/^4He$  比等を分析した。

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関わる技術開発

過年度に構築した、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行い、当初予定の性能が出ることを確認した。2017 年 7 月に霧島硫黄山、2017 年 11 月に薩摩硫黄島硫黄山、2018 年 7 月に箱根山（大涌谷・上湯場）で噴煙（大気）試料を採取するとともに、含まれる水蒸気の同位体比を測定した。また噴気孔で従来法（低温凝縮法）に基づく水蒸気試料採取と分析を行った。

また前年度導入し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に対して、実験室内で試験測定を実施した。

b) 自動噴煙試料採取装置の製作

試作 1 号機を製作し、2019 年 2 月に霧島硫黄山で動作試験を行った。

### 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）

箱根山において、毎月火山ガス試料の採取・分析を実施した。草津白根山においては、5月、6月、8月、10月に山頂北側地熱地帯で噴気の採取・分析を行った。霧島硫黄山において、5月と10月に山頂地熱地帯で噴気の採取・分析を行った。

#### (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・温泉ガス等の同位体比の特徴について以下の通りまとめる。

###### i) 伊豆大島

これまで同様、三原山北方の温泉ホテル付近の蒸気井、同温泉の源泉、元町付近の小清水源泉、大津源泉、岡田港付近の抗井（4箇所）、波浮港付近の抗井（2箇所）について試料採取と分析を実施した。1986年の噴火当時に $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比の上昇が見られた蒸気井（Sano *et al.*, 1991）は、本プロジェクトの開始時点でマグマ起源ヘリウムの寄与がほぼ減衰しきっていたが、今年度もほぼ同様であった（図1）。これに対し温泉ホテル源泉では依然としてマグマ起源ヘリウムの寄与が非常に顕著に見られ、式（1）および（2）により求められる大気由来ヘリウムの混入が起こる前の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比（以下、これを大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比と呼ぶ）は、1986年の噴火当時に蒸気井で観測された大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比（平均6.2 Ra、ただしRaは大気の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比 =  $1.4 \times 10^{-6}$ ）とほぼ等しいままで推移している（図1）。その他の地点でも寄与の程度はやや低いものの、明瞭なマグマ起源ヘリウムの寄与が観測されている。

$$\text{大気補正 } ^3\text{He}/^4\text{He} \text{ 比} = ((^3\text{He}/^4\text{He} \text{ 比})_{\text{Measured}} - r)/(1 - r) \quad (1)$$

$$r = (^4\text{He}/^{20}\text{Ne})_{\text{Air}} / (^4\text{He}/^{20}\text{Ne})_{\text{Measured}} \quad (2)$$

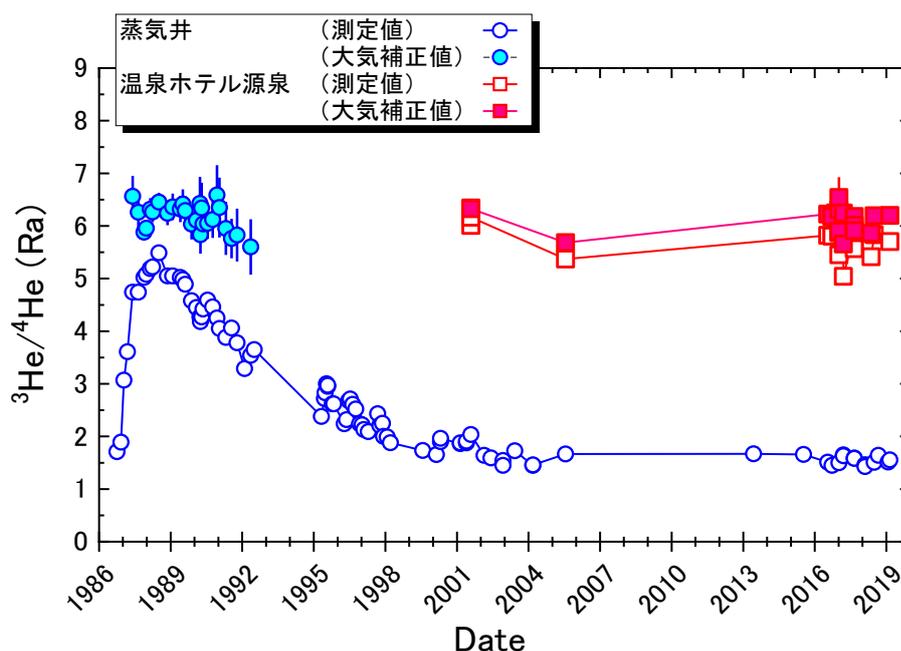


図1. 伊豆大島火山、大島温泉ホテル付近の蒸気井と同温泉源泉の  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比の経時変化。1999年以前のデータは Sano *et al.* (1991)と Shimoike *et al.* (2000)より。大気補正  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比は補正に伴う誤差が10%以下のもののみ示している。

また三原山山頂と三原山の外輪山にあたる楡形山の西麓で、土壌二酸化炭素拡散放出の調査を行った。山頂部では118点、楡形山西麓では34点、延べ約150点の二酸化炭素拡散放出率を測定し、放出率分布を調べた。山頂部では山頂火口内の南西部と東部および、1986年噴火のB火口列の斜面や内部を中心に二酸化炭素の土壌拡散放出が見られ、検出限界以下から1800 g/m<sup>2</sup>/dayの範囲の二酸化炭素拡散放出率が測定された。現在、観測した118点のデータを基に、山頂部全体の拡散放出分布図を作成し、二酸化炭素拡散放出量を推定したところ6.0±0.4 ton/dayという結果が得られた。一方、楡形山西麓では、検出限界以下から740 g/m<sup>2</sup>/dayの範囲の拡散放出率が見られた。また、上記の拡散放出率測定で高い値が得られた地点を中心に、山頂部では19地点、楡形山西麓では1地点で、約40 cmの深さの土壌ガスをサンプリングプローブを用いて抽出し、ガラス製のバイアル瓶に採取した。これらのサンプルに対しては、土壌ガス化学組成と二酸化炭素の炭素同位体比の分析をおこなった。土壌ガスは基本的には大気に二酸化炭素が数百 ppm から1.5%過剰に付け加わったような化学組成であった。サンプルの多くは二酸化炭素濃度が2000 ppmを超えるものであったが、これらのサンプルの二酸化炭素の炭素同位体比は-1.25‰~-4.35‰の値範囲で、従来の結果と同様であった。

さらに今年度は、2018年8月末から9月の始めに行われた課題Bサブテーマ4を

中心とした緊急観測訓練の際に、山頂火口の南西部の一地点に、土壌二酸化炭素拡散放出率の自動繰り返し測定装置の設置を行った。この装置を用いて拡散放出率の時間変動の監視を継続している。今後も、高い放出率が見られた地点を中心に、拡散放出率の分布測定と炭素同位体比の測定をくりかえし、その推移を注視するとともに、自動繰り返し測定装置の時間変動データと合わせて、伊豆大島の噴火発生場の理解へとつなげていきたい。なおこの緊急観測訓練の際に、山頂部に弱いながらも認められる噴気地帯ガス試料を採取したが、噴気が微弱すぎるために大気の混入が激しく、マグマ起源ヘリウムを明瞭に検出することはできなかった。

## ii) 草津白根山

過年度に引き続き、湯釜火口湖の北側の噴気地帯（北側噴気3地点）と、東側斜面の噴気地帯である殺生河原、草津温泉の湯畑・白旗温泉、西山麓の万座干俣噴気地帯と万座湯畑温泉で試料採取と分析を実施した。北側噴気は全地点で最も高い大気補正  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比（7.6～8.1 Ra）を一定して示している（図2）。これは相対的に  $^3\text{He}$  に富む、マグマ起源の火山ガス成分が北側噴気で卓越していることを意味する。殺生河原と草津湯畑温泉では、2017年まで比較的一定した大気補正  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比が観測されていたが、2018年1月の本白根山の噴火からそれぞれ3週間後と3ヶ月後に、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  比が一旦減少した後に上昇に転じ、以後は北側噴気に迫る高い  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比が継続して観測されている。2018年3月から観測を開始した西山麓の万座干俣噴気地帯と万座湯畑温泉でも  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比の上昇は見られ、2018年6月～8月に最高値に達して以後、やはり7 Ra前後の高い値で推移している。2018年4月以降の湯釜付近の火山性地震の活発化と同時期に、全ての観測点で北側噴気に迫る高い大気補正  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比が観測されていることは、湯釜下の熱水溜りからの火山ガス成分の供給が、広範囲にわたっていることを示唆しており、今後も推移を注意してみていく必要がある。

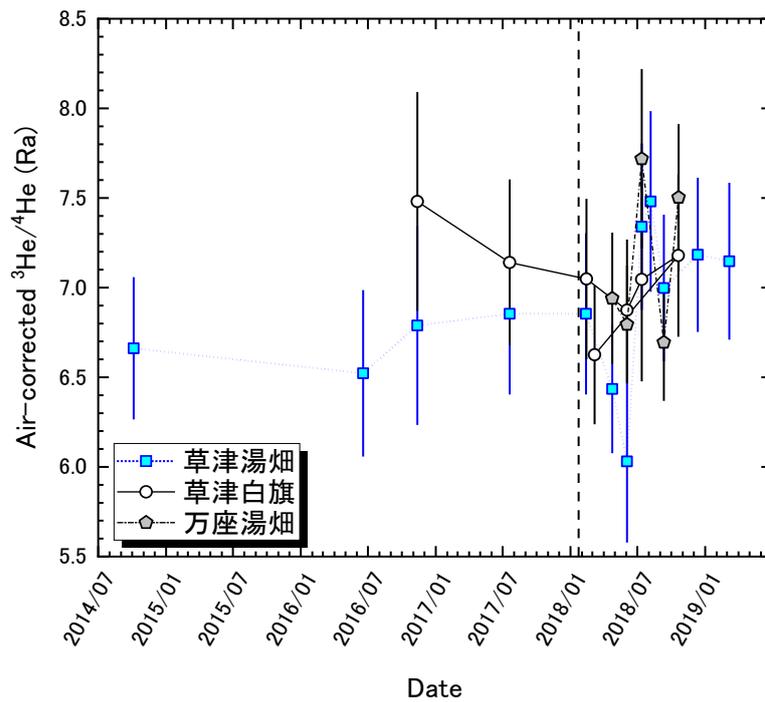
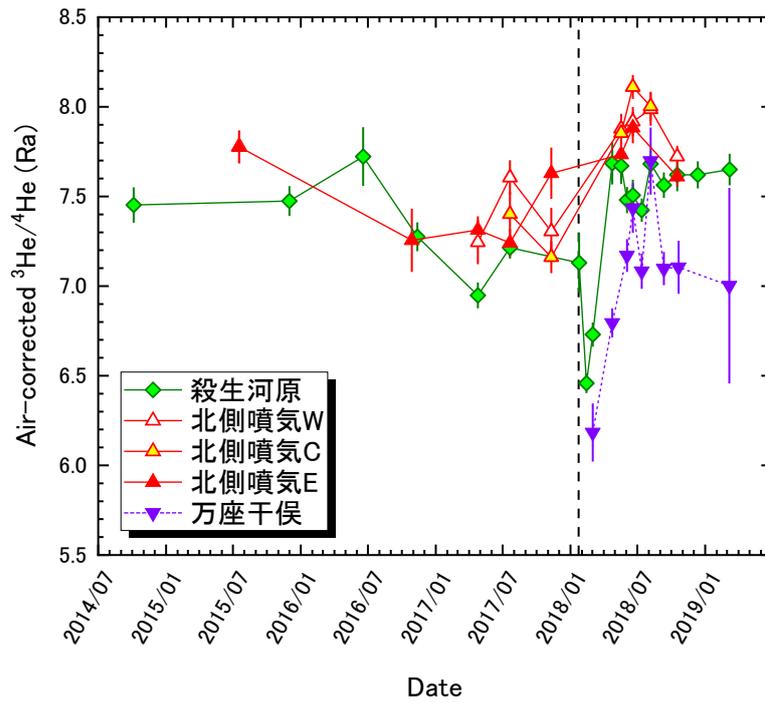


図 2. 草津白根山の北側噴気、殺生河原噴気、万座干俣噴気（上）と草津湯畑温泉、草津白旗温泉、万座湯畑温泉（下）の大気補正  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比（単位 Ra）。縦の点線は本白根山の噴火（2018年1月23日）を示す。

iii) 霧島山硫黄山

定点として硫黄山山頂と、南山麓の新湯温泉付近の噴気地帯を観測対象として、調査と試料採取を実施した。硫黄山噴気の大気補正  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比は 2018 年 3 月から 6 月にかけての新燃岳の噴火と、2018 年 4 月の硫黄山の噴火の前に、それまでの観測値である 7.2 Ra から 7.4 Ra へとわずかに上昇した (2018 年 3 月 28 日)。そして噴火活動が終息しかけた 2018 年 5 月 29 日には、7.0 Ra まで減少した。その後はまた上昇に転じ、2018 年 10 月 19 日には 7.5 Ra という、2016 年以降観測された中で最も高い水準を示した (図 3)。2017 年の新燃岳の噴火の前後にも同様の大気補正  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比の経時変動が起こっており、これらの変動は地下に異なる  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比を持つ 2 つのガス供給源を仮定すると説明できる。高い  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比の供給源はマグマだまりであり、火山活動に伴いマグマだまりの圧力上昇によりガス供給量が増加すると、低い  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比を持つガス供給源からの寄与は相対的に減少し、噴気の大気補正  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比は上昇する。また噴火後は、マグマだまり起源のガスの供給量が減少し、低い  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比を持つガス供給源からの寄与が相対的に大きくなるため、噴火後に大気補正  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比は低下していると解釈できる。2018 年 6 月以降 2019 年 3 月現在までは、新燃岳でも硫黄山でも噴火は発生していないが、硫黄山噴気の大気補正  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比は依然として高く、また新湯噴気の大気補正  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比は 2018 年 7 月以降上昇を続けていることから、上記モデルの妥当性の検証も含め、今後も  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比と噴火活動の盛衰を注意深く見ていく必要がある。

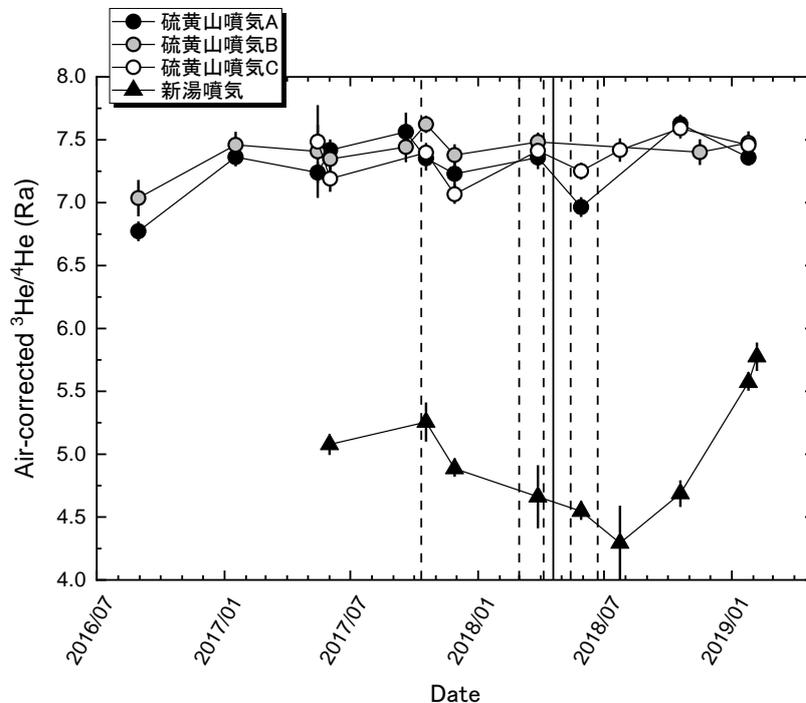


図 3. 霧島硫黄山の山頂噴気 (3 地点) と新湯噴気の大気補正  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比 (単位 Ra)。縦の点線は新燃岳の噴火 (2017 年 10 月、2018 年 3 月、同 4 月、同 5 月、同 6 月)、同じく実線は硫黄山の噴火 (2018 年 4 月) を示す。

iv) 那須岳

高原山で噴気を採取した。大気補正  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比は 4.1  $R_A$  程度で、依然として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。

v) 箱根山

定点（大涌谷、上湯場）において毎月採取される噴気試料の分析を継続している。本年度も昨年度と同程度の  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比（6.0～6.8  $R_A$ ）で推移しているが、定点噴気の勢いが弱まり大気の混入が激しい、すなわち大気補正  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比が精度よく得られない月もあった。二酸化炭素の炭素同位体比（ $\delta^{13}\text{C}$  値）は-1‰程度と、日本列島の火山ガスで見られる-10～-1‰の範囲に入っており、大涌谷噴気について過去に報告されている値（-2.3～0.5‰、大場ほか、2007）とも大きな違いはない。これら噴気の化学組成や酸素・水素同位体比については再委託先である東海大学による成果を参照されたい。

vi) 桜島

春田山、持木、有村、黒髪 の 4 地点でボーリング抗内ガスを 2019 年 2 月に採取した。うち有村では昨年度に引き続き、有意にマグマ起源成分の寄与を示す  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比が得られ、大気補正  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比は 7.4  $R_A$  であった。一方他の地点では大気成分が卓越しており、マグマ起源ヘリウムはごくわずかにしか検出されなかった。有村の試料は二酸化炭素濃度も 40%以上と高く、 $\delta^{13}\text{C}$  値も -7‰と火山ガスに典型的な値であったのと対照的に、春田山の試料に 15%程度含まれる二酸化炭素は  $\delta^{13}\text{C}$  値が -22‰と非常に低いことから、有機物起源が示唆された。

vii) 阿蘇山

西山麓（南阿蘇村吉岡）の噴気地帯で採取した噴気試料の大気補正  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比は 4.6  $R_A$  であり、前年度（5.0  $R_A$ ）からほとんど変化はなかった。

viii) 九重山

噴気の大気補正  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比は 6.1  $R_A$  であり、前年度（6.8  $R_A$ ）と大きな変化はなかった。

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

平成 28 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について、昨年度までに高感度化と低バックグラウンド化を主とした改良を進め、火山活動の指標の一つと期待される  $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$  比を実験室で測定できる目処は立っている。一方で  $^4\text{He}$  の 100 万分の 1 程度しか存在しない  $^3\text{He}$  については依然として検出が難しかったため、大阪大学と共同で開発した同型の装置用のイオン検出手法（Jensen *et al.*, 2017）を本装置にも導入し、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  分析を試みた。大阪大学と、可搬型質量分析計の実際の製造を請け負っている MSI.TOKYO 社と装置の仕

様の検討を重ね、微量な  $^3\text{He}$  に由来する信号を電氣的ノイズと識別して計数する、パルスカウンティング法を開発した。2019年1月に既存の可搬型質量分析計の本体に搭載された FPGA のプログラム書き換えによりこの機能を実装させ、テストと性能評価を継続している。また並行して、本装置によるヘリウムの検出感度そのものの向上も試み、イオン源のアーチャー径の最適化により同型機の市販モデルと比較して140倍の高感度化が達成できている。

また火山ガスから He と Ne を選択的に分離するための多孔質セラミック膜の試作品も完成し、その性能評価を行った。この多孔質セラミック膜は、いわゆる分子ふるい効果を利用して、分子サイズの小さいヘリウムを選択的に透過させることを目指している。しかし現状では、十分に径の小さい分子ふるいを作成することができおらず、ヘリウムのみならず他の気体分子も透過してしまうため、実用化には到っていない。そこで他の方法として、加熱した石英ガラス管を用いた分離も検討した。一度内部を真空にした石英ガラス管を大気に曝しておく、大気中に含まれる様々な気体分子のうち、単原子分子であり原子半径も小さいヘリウムとネオンが選択的に石英ガラス管内に侵入する。透過率を高めるために石英ガラス管を  $800^\circ\text{C}$  に加熱し、1時間かけて外気からガスを透過させたところ、石英ガラス管中に蓄積したガスのうち、ヘリウムとネオンはそれぞれ 1.5% と 6% を占めていた。大気中のもとのヘリウムとネオンの濃度は 5.2 ppm と 18 ppm であるので、他の気体成分と比べていずれも約 3000 倍濃縮できていることになる。今後はさらに選択性の高い条件と、より短時間でこれら目的成分を集めることのできる高い透過率を達成できる条件を模索していく必要がある。

#### 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

本プロジェクトで独自に開発したトルクモーター駆動の自動バルブを用いたヘリウム精製・分離ラインの一部自動化は完了している。また別予算で導入した四重極質量分析計も問題なく稼働している。このヘリウム分離・精製ラインを用いて火山ガス試料の分析や、上記で述べた可搬型質量分析計の評価を実施した。

#### d) 熱水の兆候を示す底層水の採取法の検討

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、2018年7月に、鰻池および周辺における観測を実施した。鰻池底層（水深 57 m）、表層（水深 1 m）の水を採水器で採取し、船上で鉛ガラス容器に分取した。また、鰻池近傍 50 m 程度に位置する噴気（ $99.4^\circ\text{C}$ ）を鉛ガラス容器に採取し、 $^3\text{He}/^4\text{He}$  比を測定した。 $^3\text{He}/^4\text{He}$  比の測定値は鰻池の底層で 0.87 Ra、表層では 1.05 Ra であり、鰻池底層から大気よりも低い  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比を持つ流体が供給されている可能性が示された。近傍噴気における  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比の測定値は 1 Ra よりも高く、鰻池底層の流体と異なる値を持つと考えられるが、 $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$  比が大気に近いため高精度での大気補正  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比の評価はできなかった。このように今年度は、底層水採取に必要な採水器を用いた観測手法の確認および、海底熱水調査

でも重要と考えられる、周辺の陸上における熱水系との比較を含む火山活動調査を実施することができた。今後は噴気・流体の持つ  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比の評価を高精度で行うために、大気成分の混入を低減させるようサンプリング手法を改善すべきである。

## 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

過年度に構築した、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行い、当初予定の性能が出ることを確認した。これで真空容器に採取した噴煙（大気）試料に関して、含まれる水蒸気の同位体比が測定出来るようになった。また 2017 年 7 月に霧島硫黄山、2017 年 11 月に薩摩硫黄島硫黄山、2018 年 7 月に箱根山（大涌谷・上湯場）で噴煙（大気）試料を採取するとともに、含まれる水蒸気の同位体比を測定した。また噴気孔で従来法（低温凝縮法）に基づく水蒸気試料採取と分析を行った。霧島硫黄山や箱根山では、噴気孔周辺で採取した噴煙試料から、噴気の水蒸気の同位体比が推定出来ることを確認した。

また前年度導入し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に対して、実験室内で試験測定を実施した。

### b) 自動噴煙試料採取装置の開発

製作した試作 1 号機の本体は、内容量 2.6 L (250 mm×170 mm×90 mm) の市販のプラスチック容器の中に納めており、重量は 1 kg である。市販のものを改造した  $\text{SO}_2$  センサーにより  $\text{SO}_2$  濃度をモニタリングし、外気の  $\text{SO}_2$  濃度が高い、すなわち火山ガス濃度が高い時にポンプを駆動することで、上記のプラスチック容器の外に接続したデドラーバッグに、外気を捕集する。外部からの制御は必要としない自律型であり、動作中の  $\text{SO}_2$  濃度も同時に記録できる。2019 年 2 月に霧島硫黄山で動作試験を行い、問題なく噴煙試料を採取できていることが確認できたが、数日後にポンプが故障していることが分かった（写真 1）。これは吸引した  $\text{SO}_2$  による腐食に起因するものであり、使用後に十分な洗浄が必要であることが明らかになった。



写真 1. 霧島硫黄山における動作試験の様子

### 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）

噴気にはマグマに由来する成分と、熱水系に由来する成分が含まれており、その比はマグマ脱ガス活動の良い指標となる。ここでは、マグマ及び熱水系に由来する成分として、それぞれ  $\text{He}$  と  $\text{CH}_4$  を用いて成果を説明する。

箱根山において、毎月火山ガス試料の採取・分析を実施した。火山ガス試料として地熱地帯である大涌谷と上湯場で自然に噴出している噴気（それぞれと N と S とする）を用いた。N 噴気の  $\text{He}/\text{CH}_4$  比は 2018 年 4 月に 0.021 で、2019 年 3 月にかけて緩やかに 0.010 まで低下した（図 4）。S 噴気の  $\text{He}/\text{CH}_4$  比は 2018 年 4 月に 0.025 で、それ以降変化が少なく 2019 年 3 月には 0.018 であった。N および S 噴気の  $\text{He}/\text{CH}_4$  比は 2017 年の 9 月に極大値（N=0.044、S=0.029）が記録され、2019 年 3 月まで減少する傾向が継続している。これらのことから、箱根山では現在までマグマ脱ガス活動が低調であると推定される。

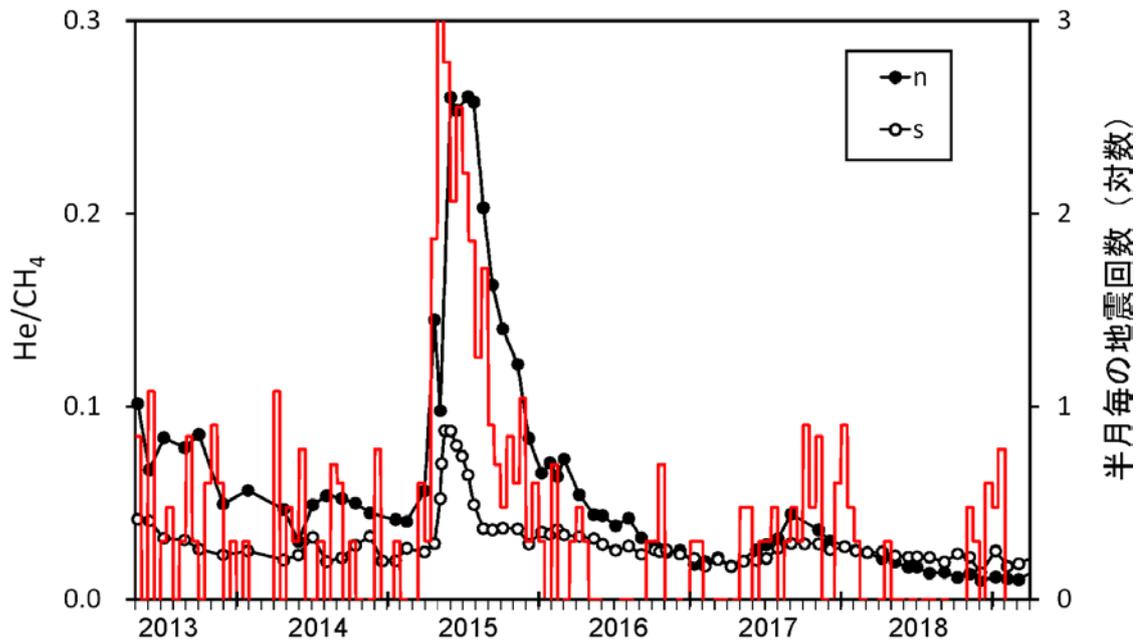


図 4. 箱根山噴気成分比の時間変化. 赤線は気象庁の観測による地震回数

草津白根山においては、5月、6月、8月、10月に山頂北側地熱地帯で噴気の採取・分析を行った。火山活動に敏感なW噴気のHe/CH<sub>4</sub>比は6月に極大に達し、その後低下した(図5)。6月の極大値(5.2)は、4月末に発生した白根山群発地震の影響と考えられる。群発地震と同期してマグマ脱ガス活動が活発化し、その影響がW噴気に現れたと考えられる。このマグマ脱ガス活動は10月までに急速に衰えたと推定される。なお10月以降は積雪のため山頂域へアクセスができなくなり、以後の試料採取は行わなかった。2018年1月の地震数増加は、本白根山の噴火に対応している。

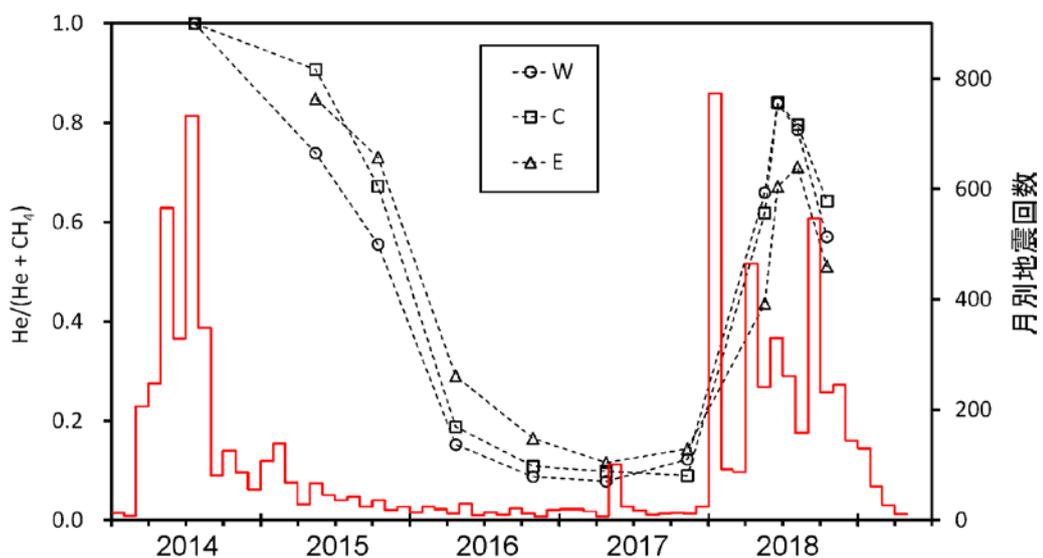


図 5. 草津白根山噴気成分比の時間変化. 赤線は気象庁の観測による地震回数

霧島硫黄山において、5月、10月、1月に山頂地熱地帯で噴気の採取・分析を行った。火山活動に敏感な a 噴気の  $\text{He}/\text{CH}_4$  比は、2018年1月に極大に達し、その後減少した（図6）。霧島硫黄山では4月に小規模な水蒸気噴火が発生している。10月に  $\text{He}/\text{CH}_4$  比は 1.0 まで低下したが、2017年5月に記録された極小値である 0.6 よりは高く、依然として噴火のポテンシャルが維持されている可能性が高い。

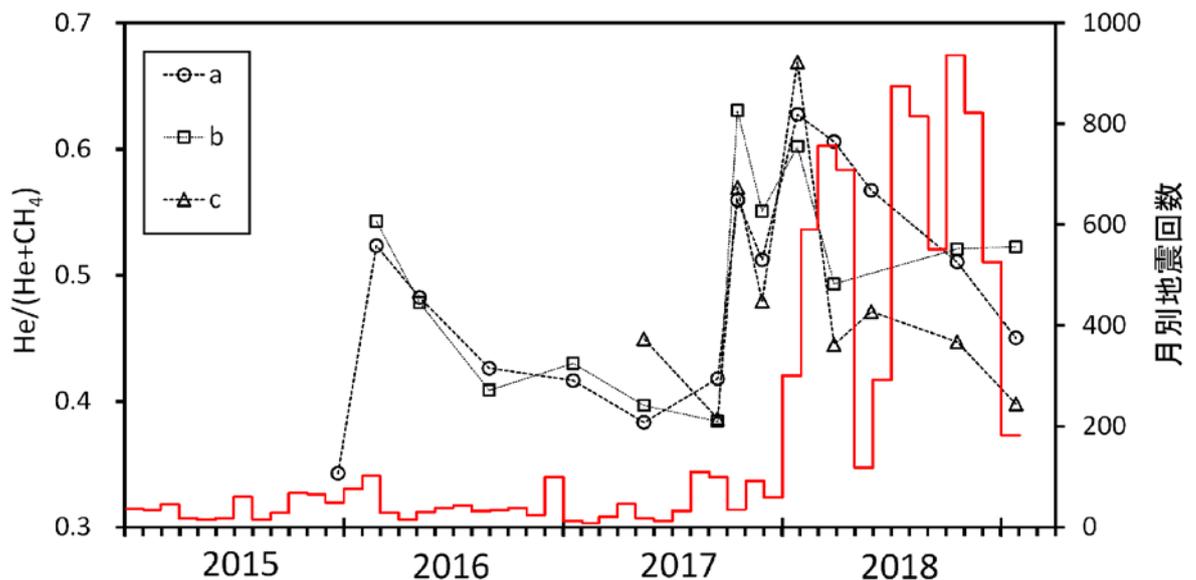


図6. 霧島硫黄山噴気成分比の時間変化. 赤線は気象庁の観測による地震回数

#### (d) 結論ならびに今後の課題

草津白根山においては、2018年1月の本白根山の噴火とその後の白根山直下の地震活動の活発化に対応すると思われる火山ガスの  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比の変化が観測されている。一方霧島山硫黄山の山頂噴気の  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比の経時変化は、新燃岳の噴火前には増加、噴火後には減少する傾向を示した。これらの経時変動は、地下に異なる  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比を持つ2つのガス供給源を想定する必要がある。高い  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比を持つガスの供給源はマグマだまりであり、火山活動の活発化に伴いマグマだまりからのガス供給量が増加すると、低い  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比を持つガスの供給源からの寄与は相対的に減少し、噴気の  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比は上昇すると考えられる。また噴火後は、マグマだまり起源のガスの供給量が減少し、低い  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比を持つガス供給源からの寄与が相対的に大きくなるため、噴火後に  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比は低下すると考えることができる。このように  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比の経時変化は、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 (Padrón *et al.*, 2013) と同様に、マグマだまりにおけるガスの圧力変化を反映している可能性があり、火山近傍の定点における  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比の定期観測が、火山の活動度を監視する上で有用である可能性を示唆している。その他の火山（伊豆大島、箱根山、桜島、那須岳、阿蘇山、九重山）でも平常時の  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比のデータが得られた。これらは各火山の今後の活動度を評価する上できわめて重要な基礎データであるが、試料採取地点

の数が増加する一方であるため試料採取・分析ともにマンパワーが限界に達しつつあり、今後はポストドク雇用の財源の確保や、活動度のモニタリングに適した地点のみの継続測定に絞る効率化などの対策を取る必要がある。

2018 年度に箱根山で火山ガスを繰り返し採取・分析し化学組成の変動を調べた結果、2017 年 5 月～10 月にかけて起きた極めて小規模な火山活動活発化の後に緩やかな活動度の低下傾向が認められた。草津白根山では 2018 年 4 月の地震活動活発化に対応した化学組成の変動が観測されたが、2018 年 10 月には早くも反転する傾向が明確になった。火山ガスの化学的なモニタリングは採取・分析に手間と時間を要する。今後の課題としてポストドクの確保が挙げられる。平成 30 年度まで東海大の研究費によりポストドクを雇用し、火山ガスのモニタリングに従事させてきた。東海大の研究費は平成 30 年度末で終了となる。箱根山や草津白根山でのモニタリングを継続するには平成 31 年度以降もポストドクを確保する必要がある。

装置開発の面では、可搬型質量分析計やヘリウム分離・精製ラインの開発はおおむね順調に進行している。水蒸気の同位体比測定では、噴気孔にアクセス可能な火山噴気帯で真空容器を用いて採取した噴煙試料を実験室に持ち帰って噴煙中の水蒸気 ( $\text{H}_2\text{O}$ ) や水素 ( $\text{H}_2$ ) の安定同位体比分析を実現するとともに、ここで得られた結果から大気の寄与を補正することで、噴気孔における安定同位体比や平衡温度を遠隔から求める手法に関して、およそ確立の目処が立った。またドローン搭載用の自動噴煙試料採取装置の開発では試作 1 号機が完成するとともに、噴気地帯における地上作動試験を前倒しで実現することで、ドローン搭載試験への移行に目処が立った。今後とも地上作動試験を継続するとともに、試作機で採取した噴煙試料と、これとは別に、従来法を用いて手動で採取した噴煙試料について、含まれる水蒸気 ( $\text{H}_2\text{O}$ ) や水素 ( $\text{H}_2$ ) の濃度や安定同位体比を求めて両者を比較し、試作 1 号機を用いた試料採取法に問題が無いか検証をするともに、自動噴煙試料採取装置のさらなる安定性や軽量化などの実現を目指して改良を進める。

底層水の採取法を鰻池で検討し、湖水の  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比等と水温・pH の測定が可能であることを確認した。今後は他のサイトでも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。また、流体・噴気の持つ  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比を高精度で評価するため、大気成分の混入を低減させることを目指してサンプリング手法の改良を進める。

(e) 引用文献

- 1) Jensen, K.R., Hondo, T., Sumino, H. and Toyoda, M.: Instrumentation and Method Development for On-Site Analysis of Helium Isotopes. *Analytical Chemistry*, Vol. 89, pp. 7535-7540, 2017.
- 2) 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.
- 3) 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 Planet. Sci. Lett.*, Vol. 107, pp. 95-100, 1991.
- 4) 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. *Sci. Rep.*, Vol. 5, No. 13069, 2015.
- 5) Shimoike, Y. and Notsu, K.: Continuous chemical monitoring of volcanic gas in Izu-Oshima volcano, Japan. *J. Volcanol. Geotherm. Res.*, Vol. 101, pp. 211-221, 2000.
- 4) 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. *Sci. Rep.*, Vol. 6, No. 34126, 2016.

## (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
<u>角野浩史</u> , <u>川名華織</u> , <u>山根康平</u> , <u>秋山良秀</u> , <u>大場武</u> , <u>谷口無我</u> , <u>寺田暁彦</u>	Helium isotope ratios of fumaroles and hot-spring gases at Kusatsu-Shirane volcano	日本地球惑星科学連合 2018 年大会	2018 年 5 月 23 日
<u>外山浩太郎</u> , <u>角野浩史</u> , <u>川名華織</u> , <u>山根康平</u> , <u>秋山良秀</u> , <u>大場武</u> , <u>谷口無我</u> , <u>寺田暁彦</u>	草津白根火山周辺の噴気及び温泉ガス中の希ガス同位体組成	日本火山学会 2018 年秋季大会	2018 年 9 月 26 日
<u>大場武</u> , <u>西野佳奈</u> , <u>沼波望</u> , <u>谷口無我</u>	2018 年本白根山噴火の原因について	2018 年日本地球惑星科学連合学会	2018 年 5 月 23 日
<u>大場武</u> , <u>西野佳奈</u> , <u>谷口無我</u>	霧島硫黄山の火山ガスについて	2018 年日本地球惑星科学連合学会	2018 年 5 月 23 日
<u>沼波望</u> , <u>宮崎遼</u> , <u>大場武</u>	箱根カルデラ内の早川河川床砂化学組成にみられる火山活動の影響	2018 年日本地球惑星科学連合学会	2018 年 5 月 23 日
<u>T. Ohba</u> , <u>K. Nishino</u> , <u>N. Numanami</u> , <u>M. Yaguchi</u>	Variable N <sub>2</sub> /He ratio of non-atmospheric end member found in fumarolic gas at Kusatsu-Shirane volcano, Japan	28th Annual V.M. Goldschmidt Conference	2018 年 8 月 15 日
<u>大場武</u> , <u>西野佳奈</u> , <u>谷口無我</u> , <u>外山浩太郎</u> , <u>角野浩史</u>	草津白根山火山ガス組成の変化と解釈	日本火山学会 2018 年秋季大会	2018 年 9 月 26 日
<u>西野佳奈</u> , <u>諸石喜大</u> , <u>左合正和</u> , <u>大場武</u> , <u>谷口無我</u>	箱根山大涌谷における温泉水の地球化学的特徴	日本火山学会 2018 年秋季大会	2018 年 9 月 26 日

<u>沼波望</u> , <u>大場武</u>	箱根カルデラ内の早川河川床砂化学組成にみられる火山活動の影響	日本火山学会 2018 年秋季大会	2018 年 9 月 26 日
<u>諸石喜大</u> , <u>西野佳奈</u> , <u>左合正和</u> , <u>大場武</u> , <u>谷口無我</u>	箱根大涌谷における温泉水の地球化学的特徴	日本火山学会 2018 年秋季大会	2018 年 9 月 26 日
<u>伊藤昌稚</u> , <u>角皆潤</u> , <u>高橋幸士</u> , <u>栗田直幸</u> , <u>中川書子</u> , <u>篠原宏志</u>	火山噴煙中の水蒸気の同位体組成定量	日本地球惑星科学連合 2018 年大会	2018 年 5 月 23 日
<u>角皆潤</u> , <u>倉和臣</u> , <u>中川書子</u> , <u>大場武</u> , <u>篠原宏志</u>	火山性流体中の水同位体組成に発見された負の三酸素同位体異常とその起源	2018 年度日本地球化学会第 65 回年会	2018 年 9 月 12 日
<u>T. Kagoshima</u> , <u>Y. Sano</u> , <u>A. Tanaka</u>	Helium isotopes in Lake Mashu	28th Annual V.M. Goldschmidt Conference	2018 年 8 月 14 日

※下線は本委託業務の業務参加者・業務協力者

(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) 令和元年度業務計画案

#### 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 b) の技術開発を進めつつ、東海大学と気象庁・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、九重山、阿蘇山、那須岳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。

観測にあたっては、本事業課題 B サブテーマ 4 が実施する予定の機動観測と可能な限り時期を合わせて試料採取を行い、連携を図る。また同じくサブテーマ 1 で、ミュオグラフィによる火山透視画像の提供開始が予定されている桜島についても、観測用ボアホール等のガスについて定期的な採取とヘリウム-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。

なお、研究期間中に国内の火山で、噴火の予兆が把握された場合もしくは噴火が発生した場合において、次世代火山研究・人材育成総合プロジェクトのプロジェクト・リーダーが当該火山を対象とした緊急観測の実施を決定した際は、ここで実施する現地観測について、その一部もしくはその全てに代えて緊急観測を実施することを可能とする。

##### b) マグマ起源ヘリウム測定に関わる技術開発

過年度までに開発してきた、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のために、草津白根山の火山ガスおよび周辺の温泉水溶存ガスを両方のシステムで分析して結果を比較するとともに、草津白根山周辺の  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比マップを作成する。課題 B サブテーマ 4 で予定されている集中観測によって得られる地下比抵抗構造とこれを対比させ、地下深部の熱水系に関する知見を得る。

##### c) 熱水の兆候を示す底層水の採取法の検討

底層水やガス試料を真空容器等に捕集し、実験室でヘリウムや炭素等の濃度・同位体比を測定する手法の検討を薩摩硫黄島周辺で実施し、年度内にこの手法を確立する。薩摩硫黄島での業務に関しては九州大学の協力を仰ぐ。

#### 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

前年度に構築した水蒸気安定同位体比分析システムの改善・フィードバックを完了する。主に噴気孔にアクセス可能な火山噴気帯で真空容器を用いて採取した噴煙試

料を実験室に持ち帰って分析することで、噴煙（プルーム）中の水蒸気（ $H_2O$ ）の安定同位体比を分析するとともに、噴気孔で直接採取することで決定した水蒸気（ $H_2O$ ）の安定同位体比と比較することで新手法の確度を確認する。

b) 自動噴煙試料採取装置の製作

前年度に製作した噴煙試料自動採取装置の作動試験を継続し、年度内に運用可能にする。

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、草津白根山、霧島山硫黄山等において、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。

紫外線パルス蛍光法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。

なお、研究期間中に国内の火山で、噴火の予兆が把握された場合もしくは噴火が発生した場合において、次世代火山研究・人材育成総合プロジェクトのプロジェクト・リーダーが当該火山を対象とした緊急観測の実施を決定した際は、ここで実施する現地観測について、その一部もしくはその全てを、緊急観測に代えて実施することを可能とする。

なお、上記 1) 2) 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。