

2. 3 地球化学的観測技術の開発

(1) 業務の内容

- (a) 業務題目 課題 B 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	機関種別	役職	氏名
東京大学	共同実施機関	准教授	角野 浩史
		准教授	森 俊哉
		特任助教	鹿兒島 涉悟
		特任研究員	小長谷 智也
		特任研究員	外山 浩太郎
		大学院生	服部 佑樹
		大学院生	大野 鷹士
		学部学生	滝口 孝寛
		教授	佐野 有司
東海国立大学機構名古屋大学	参加機関	教授	角皆 潤
		パートタイム勤務職員	伊藤 昌稚
		パートタイム勤務職員	新宮原 諒
東海大学	参加機関	教授	大場 武
		特定研究員	沼波 望
気象庁・気象研究所	協力機関	室長	菅野智之
		研究官	谷口無我
大阪大学	協力機関	教授	豊田岐聡
九州大学・理学研究院	協力機関	准教授	石橋 純一郎

(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 ^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 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 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、 ^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 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 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 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 (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、運行計画の不確定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・水素の水素・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（令和元年度）：

- ・ 過年度までに開発してきたマグマ起源ヘリウム分析用の可搬型質量分析計を用いて草津白根山などの火山ガスや温泉水溶存ガスを用いて分析し、性能評価を行った。また高感度化のための改良を施した。
- ・ 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

クを完了した。噴気孔にアクセス可能な火山噴気帯で、採取した噴煙試料を実験室に持ち帰って水蒸気の安定同位体比を分析し、噴気孔で従来法（低温凝縮法）により直接採取した試料で得られた結果と比較することで、新手法の確度を検証した。

- ・ 過年度までに製作した噴煙試料自動採取装置をドローンに搭載して採取した噴煙試料を分析し、高濃度の噴煙試料が問題なく採取できていたことを確認した。
- ・ 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・土壌ガス等の調査を継続した。箱根山、草津白根山、霧島山硫黄山における定期的な噴気の採取と、その化学組成と多成分同位体比の測定も継続した。
- ・ 火山ガス中の硫黄同位体比について、火山活動度の指標としての可能性を検討した。
- ・ 薩摩硫黄島周辺で調査を試み、ガス・海水・温泉水試料の採取・分析技術の開発を行った。

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作成し、周辺地域における深部起源流体の供給状況を明らかにした。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。
- ・ 前年度までに開発した自動噴煙試料採取装置をドローンやセスナ機に搭載し、噴煙試料採取の試験フライトを実施した。
- ・ 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、設置型の装置を開発するための検討を行った。
- ・ 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・土壌ガス等の調査を継続した。箱根山、草津白根山、霧島山硫黄山における定期的な噴気の採取と、その化学組成と多成分同位体比の測定も継続した。

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) 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) 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して行う。
- ・ 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) 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施と、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) 令和 2 年度の業務目的

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 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）等の同位体比のデータを蓄積するとともに、本プロジェクトを通して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。令和 2 年 5 月末から 6 月初めに、北海道で開催される国際火山学及び地球内部化学協会の火山ガス関係のワークショップに参加し、ワークショップ期間中に行われる樽前山・有珠山・十勝岳（うち有珠山は来年度以降、課題 B-4 の機動観測にあわせて調査する予定であり、今年度はその前の基礎データの取得も兼ねる）での共同火山ガス観測にて、他研究機関との火山ガス分析技術の比較を行う。

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・二酸化炭素測定に関わる技術開発

令和元年度に引き続き、草津白根山の火山ガスおよび周辺の温泉水溶存ガスを分析してヘリウム・炭素同位体比マップを作成し、経時変化をみる。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。また最先端の同位体比赤外分光計をリースにより調達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。この同位体比赤外分光計に関しては、大気に拡散した噴煙中の二酸化炭素の炭素同位体比をオンサイトで分析するための性能評価や試料導入系の開発を行いつつ、試験的な測定を霧島山硫黄山・草津白根山・箱根山等のいずれかの火山で実施する。

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

前年度に確立した、真空容器に採取した噴煙試料を実験室に持ち帰って分析する手法に関して、観測フェーズに移行する。具体的には阿蘇中岳で噴煙（プルーム）試料を採取し、本手法を用いて水蒸気 (H_2O) の安定同位体比を分析するとともに、水素 (H_2) の水素同位体比や二酸化炭素 (CO_2) の酸素同位体比を測定し、得られた H_2O の安定同位体比の妥当性について検討する。また、現場でリアルタイム観測（噴煙を直接導入して測定）実現に向けて、実験室レベルの検討を開始する。

b) 自動噴煙試料採取装置の製作

前年度ドローン搭載状態での作動試験に成功した噴煙試料自動採取装置を再度ドローンに取り付け、阿蘇中岳で噴煙（プルーム）試料を採取する。前年度の作動試験時の反省 (SO_2 濃度の閾値設定値が低すぎた) を改良するとともに、フライト中のリアルタイム SO_2 濃度モニタリングを実現し、より高濃度の噴煙試料採取を実現する。また草津や御嶽の噴煙試料採取に対応するため、これまでの SO_2 濃度モニタリング方式以外に、 H_2S 濃度モニタリング方式の実現に挑戦する。

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。

環境大気に拡散した微量 SO_2 、 H_2S ガスの観測技術を開発する。環境大気に含まれる ppb レベルの低濃度 SO_2 、 H_2S ガスの採取法を開発し、平行して採取した噴気孔から放出される火山ガス組成との対応関係を調べる。さらに大気に拡散した微量の火山ガスの分析値が噴気孔から放出される火山ガスの代理として利用できるか、気象条件なども考慮し検討する。

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) 令和2年度の成果

(a) 業務の要約

マグマ起源ヘリウム測定のための可搬型質量分析計、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。箱根山、草津白根山、伊豆大島、霧島山硫黄山、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・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、草津白根山、伊豆大島、霧島山硫黄山においては火山周辺のマグマ起源成分の空間分布を明らかにした。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

気象庁・気象研究所と九州大学の協力を得て、以下の表1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。火山によっては並行して、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。また課題Aとの連携として、火山観測データ一元化共有システム（JVDNシステム、JVDN: Japan Volcanological Data Network）への火山ガス・温泉ガス等の地球化学的データ提供のための検討を2020年6月から開始した。

箱根山を除くいずれの火山においても、年度の前半は新型コロナウイルス感染症の影響により出張計画を立てることが困難であったため、採取回数は例年に比べてやや少ない。また阿蘇山と桜島では、昨年度までは噴気ガスや温泉ガスの試料を採取していたが、出張計画を立てることが難しかったことに加え、現地協力者が高齢であるため新型コロナウイルスに感染した場合の重症化が懸念されたなどの理由により、今年度は噴気ガスや温泉ガスといった試料採取を実施せず、ドローンや航空機を用いた噴煙試料採取を実施したに留まった（再委託先の名古屋大学による成果を参照）。

また当初計画では、本事業課題Bサブテーマ4が集中的に機動観測を実施する有珠山について、2020年5月末から6月初めに北海道で開催されるIAVCEI（国際火山学及び地球内部化学協会）の火山ガスワークショップ期間中に行われる共同火山ガス観測にて、他研究機関との火山ガス分析技術の比較を行いつつ基礎データを取得する予定であった。しかし、新型コロナウイルス感染症の影響により当該ワークショップの来年度以降への延期が正式に決定したため、年度内の業務実施は不可能となった。しかし2020年9月に弥陀ヶ原火山において、産業総合技術研究所・活断層・火山研究部門の篠原宏志・特命上席研究員らと合同で噴気の調査・試料採取を行い（別予算で実施）、他研究機関との火山ガス分析技術の比較を実施し、試料の採取方法やその後の分析に問題ないことが確認できた。また樽前山と有珠山については、それぞれ2017年6月と2002年10月に

採取した試料を入手し、これらの分析により静穏時の基礎データを得た。

表1. 調査対象とした火山

火山	採取時期	試料の種類	分析項目 [‡]
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 ₂ (C)、 CO ₂ (C, O)、H ₂ O、H ₂
草津白根 山	6月、8月、10月	噴気、温泉ガス、温泉 水	He、CO ₂ (C)、H ₂ O、 H ₂
伊豆大島	3月*	噴気、温泉ガス、温泉 水、地下水	He、CO ₂ (C)、H ₂ O、 H ₂
霧島山硫 黄山	5月、7月、9月、10月、11 月、3月*	噴気、噴煙、温泉ガス、 温泉水	He、CO ₂ (C)、 CO ₂ (C, O)、H ₂ O、H ₂
九重山	3月	噴気	He、CO ₂ (C)
那須岳	10月	噴気	He、CO ₂ (C)
阿蘇山	10月	噴煙	He、CO ₂ (C, O)、 H ₂ O、H ₂
桜島	3月*	噴煙	CO ₂ (C, O)、H ₂
弥陀ヶ原 火山	9月	噴気	He、CO ₂ (C)

一部、別予算で試料採取を実施

*：緊急観測

‡：分析項目 He = ³He/⁴He 比、CO₂(C) = 二酸化炭素の炭素同位体比、CO₂(C, O) = 二酸化炭素の炭素・酸素同位体比、H₂O = 水（水蒸気）の水素・酸素同位体比、H₂ = 水素ガスの水素同位体比

b) マグマ起源ヘリウム・二酸化炭素測定に関わる技術開発

令和元年度に引き続き、草津白根山の火山ガスおよび周辺の温泉水溶存ガスを分析して経時変化をみるとともに、草津白根山西方の群馬県高山村の温泉郡も調査地点に加え、より広域なヘリウム・炭素同位体比マップを作成した。また最先端の同位体比赤外分光計（ThermoFisher Scientific 社製 Delta Ray Connect）をリースにより調達したが、リース業者による立ち上げが完了して試料の分析が可能となったのが 2021 年 3 月であったため、二酸化炭素の標準ガス試料を分析して性能の評価を実施したに留まった。ただし付随するオートサンプラーは従来使用してきたガスクロマトグラフィー燃焼炉－安定同位体比質量分析計に接続して多数の試料の分析に応用可能であったため、先行して導入し本委託業務における炭素同位体比分析に用いた。

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

2018 年度までに確立した、現場で真空容器に採取した噴煙試料を実験室に持ち帰っ

て分析する手法を用いて、観測を実施した。具体的には 2020 年 10 月に阿蘇中岳と霧島硫黄山で、また 2021 年 3 月に霧島硫黄山で、噴煙（プルーム）試料を採取し、水蒸気（ H_2O ）の安定同位体組成を分析した。同時に水素（ H_2 ）の水素同位体比や CO_2 の炭素および酸素の同位体組成を分析した。

b) 自動噴煙試料採取装置の製作

過年度開発した自動噴煙試料採取装置 Se1PS の試作 1 号機に関して、2019 年度の観測の反省点を改善した上で、2020 年 10 月に京都大学火山研究センター所有のドローン (DJI S1000) に搭載し、阿蘇中岳で噴煙試料採取を再度実現した。具体的には、2019 年度にフライト中の振動で破損した基板上の電子パーツの強度を大幅に引き上げるとともに、動作閾値の SO_2 濃度設定値を従来の 4 倍以上の 19.9 ppm に引き上げた。さらに測定される SO_2 濃度を無線通信で送信する機能を追加し、ドローンのオペレータがフライト中の SO_2 濃度をリアルタイムでモニタリング出来るように改善した。さらに 2021 年 3 月には、桜島（鹿児島県）で民間の有人セスナ機に搭載して噴煙中を飛行し、噴煙試料採取を実現した。

さらに Se1PS を草津白根山や御嶽山等、 SO_2 ではなく H_2S が主たる硫黄成分である火山における噴煙試料採取に活用するため、これまでの SO_2 濃度モニタリング方式に加えて、 H_2S 濃度モニタリング方式に切り替えられるように、Se1PS の機能を追加した。

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、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、7 月、11 月に山頂地熱地帯で噴気の採取・分析を行った。

箱根山において、2020 年 1 月と 2 月に噴気孔から数百メートル程度離れた地点で環境大気を採取し、紫外線蛍光法硫化水素二酸化硫黄濃度計により、 $\text{SO}_2 \cdot \text{H}_2\text{S}$ 濃度の測定を行った。得られた結果について解析を行った。

(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^{3,4)}は、本プロジェクトの開始時点でマグマ起源へ

リウムの寄与がほぼ減衰しきっていた⁵⁾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 = 1.4×10^{-6} ）とほぼ等しいままで推移している（図 1）。

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

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

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。

また本年度は、平成 28 年度と同 29 年度に試料を採取し、マグマ起源ヘリウムの寄与がみられた北西部の岡田地域と、南東部の波浮地域の浄水取水井の地下水試料も採取し、分析を行った。いずれも以前の結果と同程度の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比が得られ、伊豆大島全体としては依然として、マグマ起源ヘリウムが地下水系に供給され続けていることが明らかとなった。

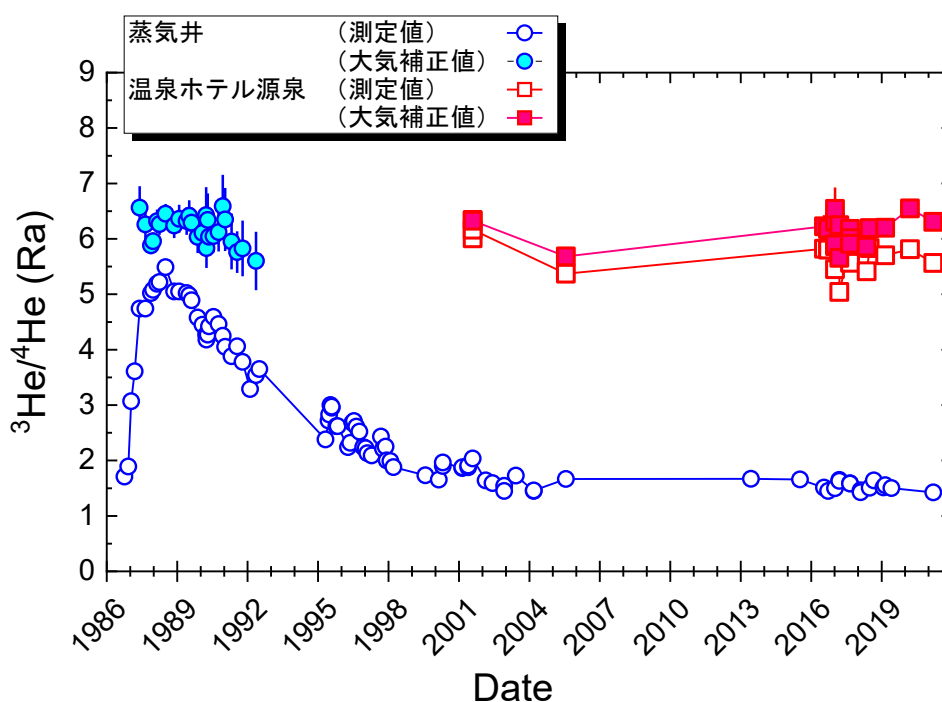


図 1. 伊豆大島火山、大島温泉ホテル付近の蒸気井と同温泉源泉の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比の経時変化。1999 年以前のデータは文献^{3,4)}より。大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比は補正に伴う誤差が 10%以下のもののみ示している。

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。本年度の北側噴気は、従来と同じく全地点で最も高い大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比（7.6~8.0 Ra）を一定して示した（図 2）。これは相対的に ^3He 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。これまでの変動を概観すると、2018 年 1 月の本白根山の噴火直後の試料が積雪のために噴気にアクセスできず採取できなかったため、この噴火に応答した変化に関しては不明であるものの、全体的には 2016 年から 2017 年までに比べ、高い大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比が 2018 年以後現在に到るまで観測されている。これは本白根山の噴火よりはむしろ、2018 年 4 月以降に湯釜付近で火山性地震が活発化したことに対応していると考えられる。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、大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比が一旦減少した後に上昇に転じた。以後は北側噴気に迫る高い大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比が継続して観測されており、本年度は殺生河原で 7.5~7.7 Ra、草津湯畑温泉で 7.1 Ra 程度であった。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大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 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たが、2019 年に入って万座干俣噴気地帯では噴気の勢いが弱くなり、また万座温泉でも湧出する温泉中のバブル（温泉ガス）の量が少なくなり、いずれも大気の混入の少ない試料を採取することができず、意味のある大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比を得ることができていない。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、全ての噴気でそれ以前より高い大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 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。炭素同位体比（ $\delta^{13}\text{C}_{\text{PDB}}$ ）はいずれの観測点でも -5~-1‰ 程度の、日本列島の火山に典型的な値が一定して観測されている。また本白根山地下の熱水だまりに由来すると考えられる本白根山南東山麓の噴気ガスを採取して分析した。噴気の勢いが弱く大気混入が大きかったため精度のよい測定値は得られなかったが、その $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比は 8.5 ± 2.1 Ra であったことから、殺生河原や草津湯畑で見られた 2018 年 1 月の本白根山噴火後の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比の低下は、この熱水だまりからのガス供給に由来するものではない可能性が高いことが示唆される。なお北側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。

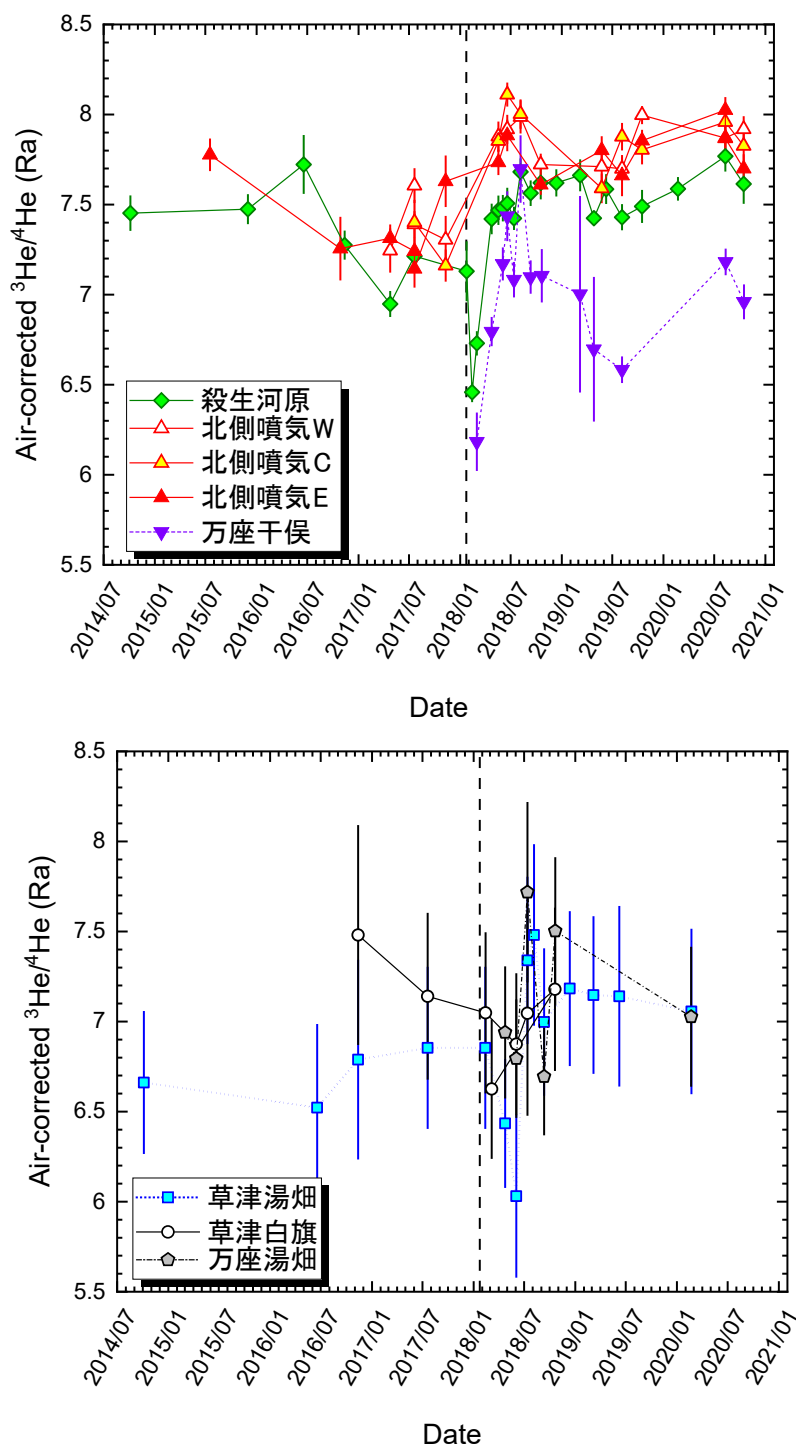


図 2. 草津白根山の北側噴気、殺生河原噴気、万座干俣噴気（上）と草津湯畑温泉、草津白旗温泉、万座湯畑温泉（下）の大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比（単位 Ra）。縦の点線は本白根山の噴火（2018 年 1 月 23 日）を示す。

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、過年度に引き続き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 2017 年以降、新燃岳の噴火の前にやや上昇し、噴火が起こり活動が終息しかけた頃に一旦減少した後、また上昇に転ずるという挙動を示してきた（図 3）。2018 年 6 月 28 日以降、新燃岳での噴火は起こっていないが、2019 年 11 月頃から現在まで、火山性地震がやや高い状態が断続的に続いている（気象庁発表資料）。本年度の硫黄山噴気の大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比は 2019 年 5 月に、定点 3 箇所のうち 2 箇所で 7.2 Ra 前後の低い値を示していたが、2019 年 11 月と 2020 年 2 月には 7.5~7.7 Ra の、2016 年以降観測された中で最も高い水準を示している。上記の新燃岳の噴火に対応した硫黄山噴気の大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比の経時変動は、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 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 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 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比は低下していると解釈できる。このモデルの妥当性の検証のため、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が、これまで試料採取の定点としてきた噴気の勢いが本年度に入ってから

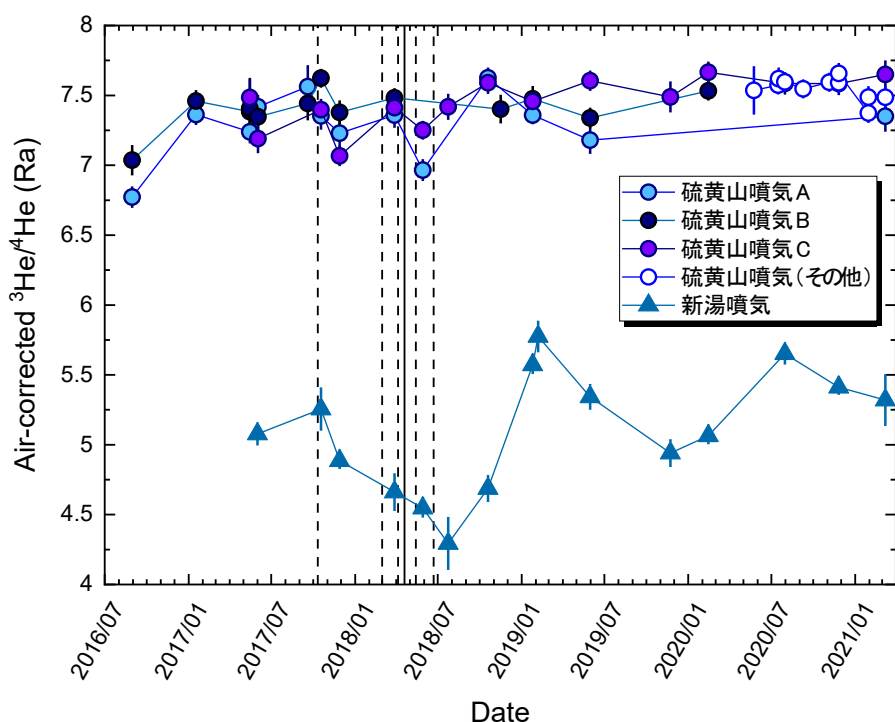


図 3. 霧島硫黄山の山頂の噴気（3 地点）とその他の噴気（2020 年 5 月以降）、新湯噴気の大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比（単位 Ra）。縦の点線は新燃岳の噴火（2017 年 10 月、2018 年 3 月、同 4 月、同 5 月、同 6 月）、同じく実線は硫黄山の噴火（2018 年 4 月）を示す。

託先である東海大学による成果を参照されたい。

また霧島火山群周辺の温泉の試料採取と分析も行った。その結果、新燃岳の 2011 年の噴火に伴う山体膨張の圧力源から推定されるマグマ溜り⁶⁾からの距離とはほぼ無関係に、それぞれの温泉は 3.2~6.5 Ra のやや低い $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比を示し、硫黄山や新燃岳、大幡池といった火口（跡）から放出される噴気ないしバブルガス（7.2~7.8 Ra）と比べて系統的に低いことが明らかになった（図 4）。この結果から、温泉においては熱やその他の溶存成分とともに地下水系に供給されたマグマ起源ヘリウムが、地下水に本来含まれていた地殻起源ヘリウム（ $^3\text{He}/^4\text{He} < 0.1 \text{ Ra}$ ）によって希釈されていることが示唆される。

iv) 那須岳

茶臼岳山腹で噴気を採取し、分析した。大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比は 4.6 Ra 程度で、昨年までの観測値（4.1~4.7 Ra）と比較してほとんど変化はなかった。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点が特徴である。また那須岳では、通常用いている硬質ガラス製のサンプリング容器の他に、土壌ガスの採取によく用いられるゴムキャップ栓付きのバイアル瓶への試料採取も同時に行い、この容器に採取したヘリウムがどの程度大気混入を受け、またどの程度の期間の保管に耐えるかを検証した。その結果、採取後 2 週間以内であれば $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ 比を指標とした大気混入の補正に耐えるデータが得られる場合があるが、大気混入の程度についてはバイアル瓶ご

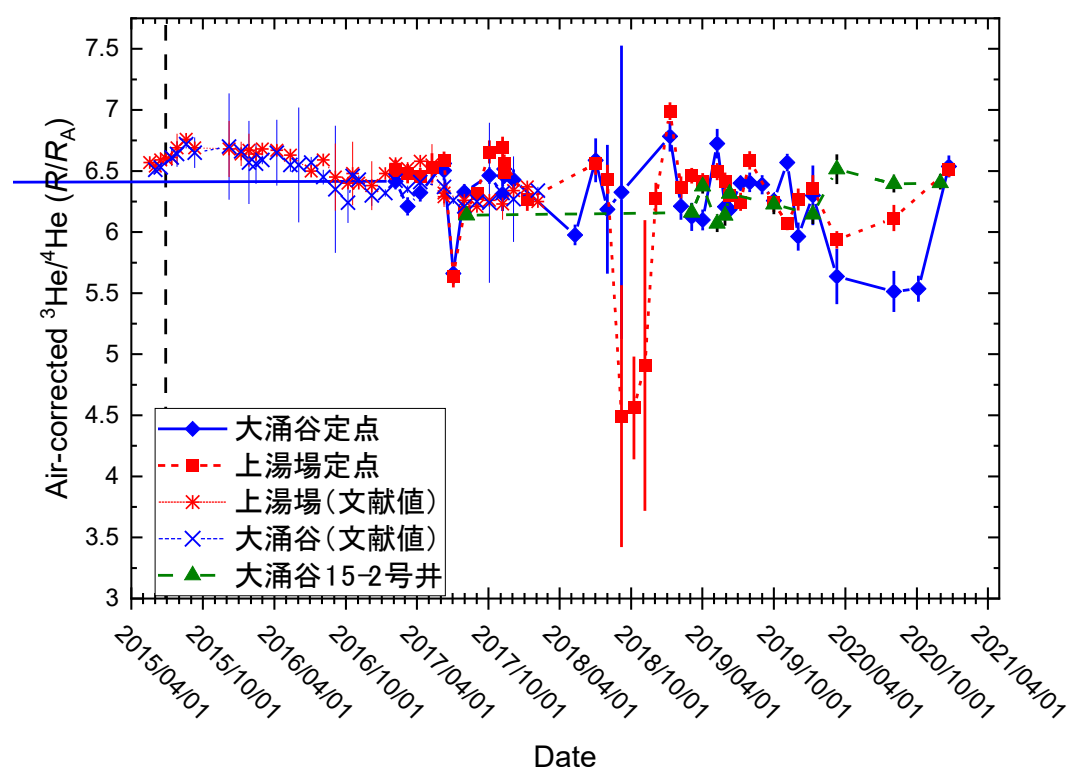


図 5. 箱根山の噴気の大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比（単位 Ra）。縦の点線は 2015 年 6 月に大涌谷で発生したごく小規模な水蒸気噴火を示す。文献値は⁸⁾より。

との個体差が大きいこと、また長期保存の間には He が選択的にゴムキャップを透過してくることから、 $^4\text{He}/^{20}\text{Ne}$ を指標とした補正にも限界があることが明らかとなった。

v) 箱根山

箱根山では定点（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きたが、大涌谷噴気の勢いが弱まり、大気混入の少ない試料の採取が困難となってきたことから、同じく大涌谷の掘削井（15-2 号井）の噴気も昨年度より定点に加えた。本年度も昨年度までと同程度の大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比（6.1～6.7 Ra）で推移しているが、大涌谷と上湯場では 6.0 Ra を切る低い値が見られることもあり、火山活動が低調になっていることがうかがえる。一方で、15-2 号井の噴気にはそのような傾向は見られていない。（図 5）。二酸化炭素の炭素同位体比（ $\delta^{13}\text{C}_{\text{PDB}}$ 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‰）⁷⁾とも大きな違いはない。なおこれらの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) 九重山

2 地点で採取した噴気の大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比は 7.0 Ra および 7.2 Ra であり、2018 年に得られた値である 6.1～6.8 Ra よりもやや高かった。これが火山活動度の上昇を示しているかを明らかにするには、今後も試料採取と分析を継続していく必要がある。

vii) 有珠山

本事業課題 B サブテーマ 4 が実施した集中的な機動観測に時期を合わせた試料採取を実施することはできなかったが、2002 年 10 月に昭和新山で採取された噴気孔温度 202℃の噴気試料を入手できたため、それを分析して平常時の基礎データを得た。試料の大気混入率が大きかったために、大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比は精度よく得られなかったが、5 Ra 程度という大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比は 2000 年 3 月の噴火以前の 1998 年から 1999 年にかけて採取された噴気で報告されている 4.3～6.6 Ra の範囲⁹⁾に収まっていることから、噴火後も噴火前と変わらない、マグマ起源ヘリウムを多く含む火山ガスが放出されていることがうかがえる。

viii) 樽前山

本年度中の試料採取は実施できなかったが、2017 年 6 月に噴気孔温度がそれぞれ 508℃と 375℃の異なる噴気孔に由来する 2 試料が入手できたため、その分析を行った。それぞれ大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比は 2.91 ± 0.05 Ra と 2.83 ± 0.06 Ra であり、他の火山で見られる値よりも著しく低い。火山ガスの上昇中に地殻起源 He が混入していると考えられるが、噴気温度が高いことからこの $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比は、マグマに地殻物質が混入しており、マグマから放出されるガスそのものの $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比が低いことを示している可能性もある。

b) マグマ起源ヘリウム測定に関わる技術開発

令和元年度より継続している、草津白根山の火山ガスおよび周辺の温泉水溶存ガスの分析による $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比と炭素同位体比 ($\delta^{13}\text{C}_{\text{PDB}}$) マップ作成のために、本年度は草津白根山西方の群馬県高山村の温泉ガス等も採取し、分析を行った。その結果を、過年度に採取・分析していた北西の五色温泉、西の万座空吹噴気、南西の万座ハイウェー沿噴気、北東の穴地獄冷泉、東の尻焼き温泉等の結果と合わせたところ、湯釜火口から離れるほど大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比が低いことが分かった。これは湯釜火口からの距離に比例して、高い $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比 ($\sim 8.0 \text{ Ra}$ 程度) を持つマグマ起源成分の寄与が小さく、低い $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比 ($< 0.02 \text{ Ra}$) を持つ地殻起源のヘリウムの寄与が顕著になっていることを示している (図 6)。しかしその寄与の、湯釜火口からの距離に対する変化率は東西で異なり、東側でより広範囲に地下の熱水系が広がっていることを示唆している。この熱水系は、本事業課題 B サブテーマ 4 が実施した草津白根火山における集中的な電磁気探査によって得られた深部定比抵抗構造から推定される、白根山から本白根山の地下数 km にわたって広範に広がる熱流体溜りに対応すると考えられる。一方西側では、マグマ起源のヘリウムと炭素 ($\delta^{13}\text{C}_{\text{PDB}} \approx -3 \text{ ‰}$) が、火山から遠ざかるにつれ地殻起源ヘリウム ($^3\text{He}/^4\text{He} < 0.1 \text{ Ra}$) と生物起源炭素 ($\delta^{13}\text{C}_{\text{PDB}} < -20 \text{ ‰}$) により希釈されているものの、マグマ起源成分の寄与は火山中心から 20 km 離れた地点まで到達していることや、さらに西方の長野盆地西縁断層帯に近い温泉では別の起源を持つ流

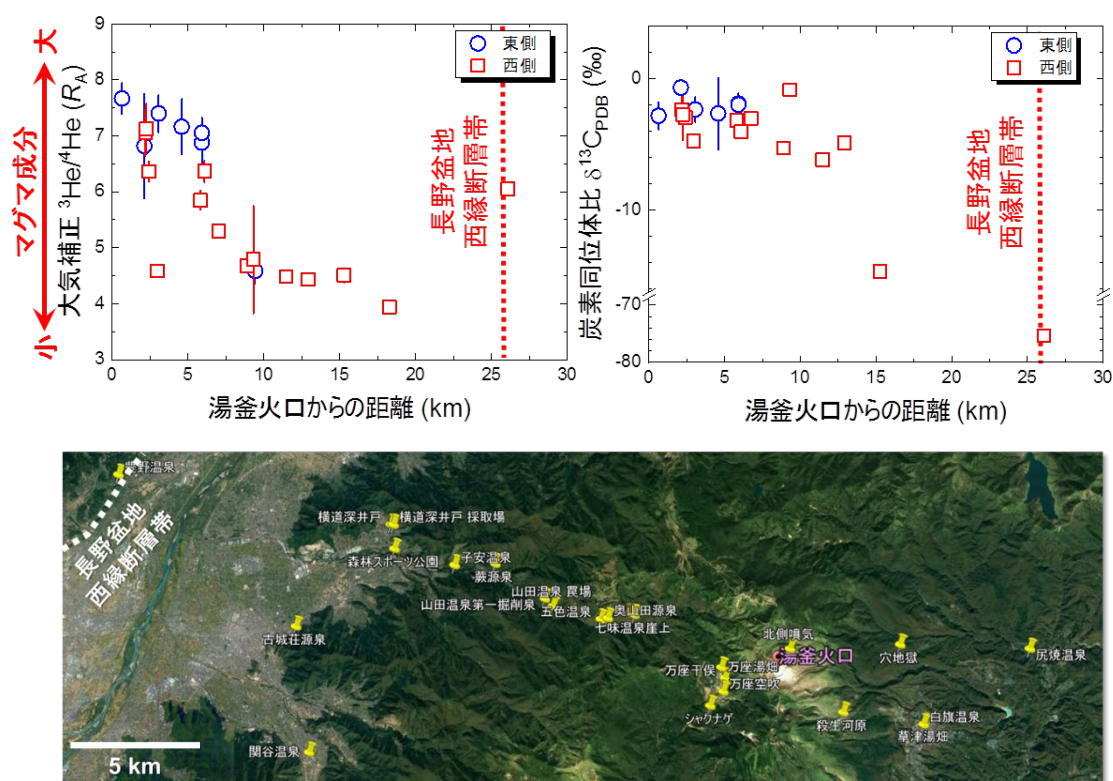


図 6. 草津白根山周辺の噴気、温泉ガス、温泉水の大気補正 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比と炭素同位体比。

体が関与していることが明らかとなった。

最先端の同位体比赤外分光計を用いた二酸化炭素の同位体比分析技術の開発については、当該装置の立ち上げが完了して分析が可能となったのが 2021 年 3 月であったため、二酸化炭素の標準ガス試料を分析して性能評価を実施したに留まった。これまで二酸化炭素の同位体比分析に使用してきたガスクロマトグラフー燃焼炉ー安定同位体用質量分析計からなる分析システムに比べて短い時間で同位体比が得られ（従来システムは約 20 分であったのに対し、本装置では数分程度）、炭素同位体比（ $\delta^{13}\text{C}_{\text{PDB}}$ ）の繰り返し測定精度も 0.5‰程度であり、火山近傍のフィールドでの連続分析にも問題なく使用可能であることが確認できた。また実験室において多数の試料の分析を処理するために本装置のリース開始に先駆けて導入したオートサンプラーは、従来型の分析システムに接続して動作テストを実施したが、こちらもセプタム栓付きの 12 mL ガラスバイアルに採取した複数の試料を問題なくサンプリングできることが確認できた。

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

2018 年度までに確立した、現場で真空容器に採取した噴煙試料を実験室に持ち帰って分析する手法¹⁰⁾を用いて、2020 年 10 月に阿蘇中岳と霧島硫黄山で噴煙（ブルーム）試料を採取し、水蒸気（ H_2O ）の安定同位体組成を分析した。いずれの噴煙においても水素・酸素同位体比ともに濃度の逆数との間に直線相関が認められ、その外挿値として火山由来の水蒸気の水素・酸素同位体比組成を決定することに成功した。阿蘇中岳で求めた水蒸気の端成分安定同位体組成は地下水とマグマ水の混合線上にプロットされた（図 7）。混合線上にプロットされることから、得られた噴気孔における H_2O の同位体比推定値は妥当であると考えられるが、これは阿蘇中岳から放出される水蒸気の中に占めるマグマ水（マグマ起源の水蒸気）の割合（マグマ水混合比）が半分程度しか無いことを意味しており、残りは天水（地下水）由来であることが明らかになった。また 2019 年の測定結果との比較から、このマグマ水混合比は過去 1 年間ほとんど変化していない可能性が高いことも分かった。同時に採取した噴煙試料の水素（ H_2 ）の水素同位体比や二酸化炭素（ CO_2 ）の酸素同位体比と比較することで、得られたマグマ水混合比の妥当性を検討したが、必ずしも整合的とは言えない結果となった。噴気孔別にマグマ水混合比に差が無いか調べるなど、引き続き阿蘇中岳でマグマ水混合比の観測を実施し、天水（地下水）由来の水蒸気の混入過程に関して検討する必要がある。霧島硫黄山では、2021 年 3 月末にも追加の緊急観測を実施したが、解析は 2021 年度に実施する。

なお、キャビティリングダウン分光同位体分析装置（CRDS）を観測現場に持ち込んで噴煙を直接導入して測定するオンサイト・リアルタイム水素・酸素同位体比分析の実現に向けて 2020 年度前半に可搬型の状態で実験を実施する計画となっていたが、新型コロナウイルス禍により実施できなかった。代わりに実験室にて、固定電源に接続した状態で室内大気を導入・測定する実験を実施し、同時に真空容器に採取した試料と比較し

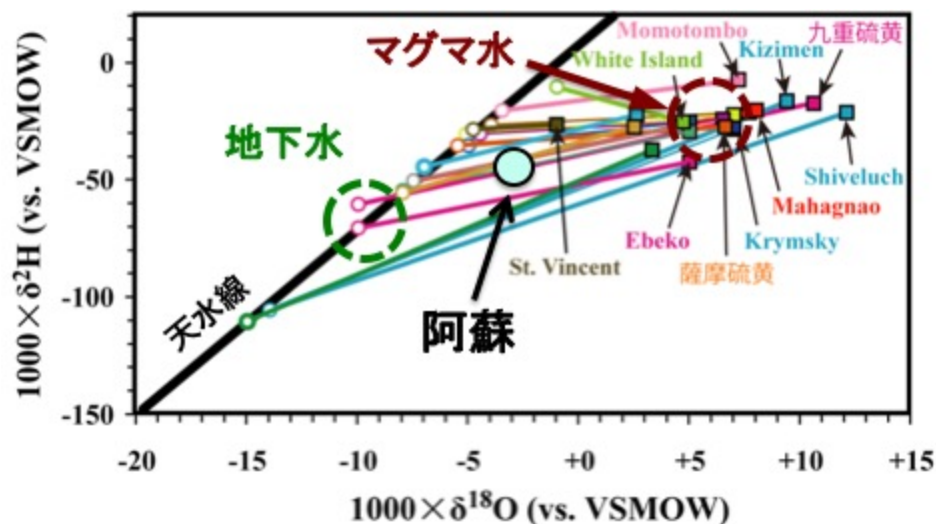


図 7. 噴煙から推定した阿蘇噴気ガス中の H_2O の $\delta^2\text{H}$ 値および $\delta^{18}\text{O}$ 値。阿蘇以外の高温火山噴気 H_2O の同位体比データは文献¹²⁾より。

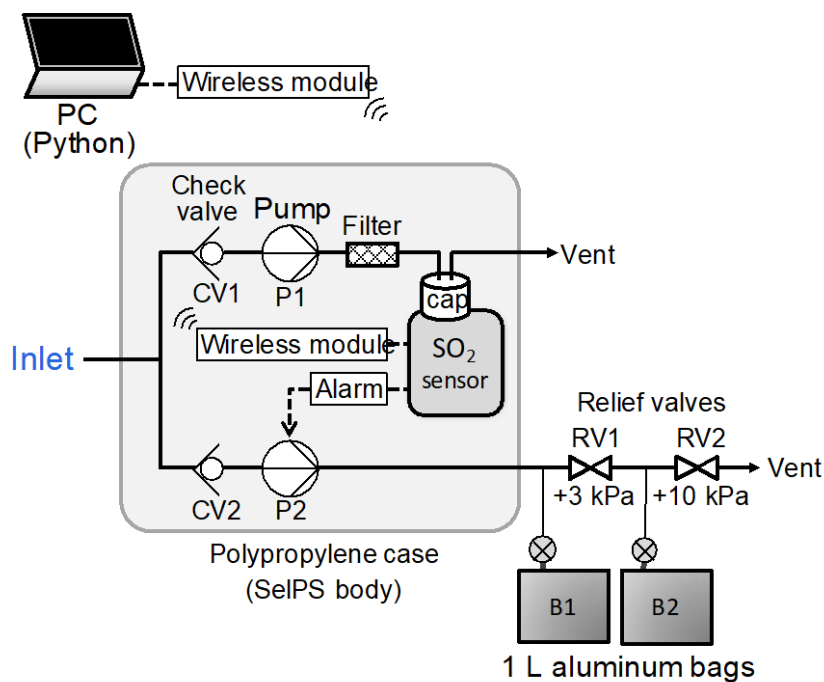


図 8. SelPS1 号機(2020 年度 Ver.)の流路図

たところ、総合的な結果を得ることができた。

b) 自動噴煙試料採取装置の開発

2020 年 10 月に京都大学火山研究センターと共同で阿蘇中岳第一火口において実施した、ドローンに搭載した SelPS (図 8) を用いた噴煙試料採取実験では、計 7 フライトで 14 個の噴煙試料を採取した (図 9)。本年度新しく増設した無線データ送信モジュールによる SO_2 濃度データ送信も問題無く成功した (図 9)。基地局 (=オペレータ) 側で飛行中の SO_2 濃度の連続モニタリングが実現し、ドローンのフライトが効率的に

なった。また送信された SO_2 濃度データは、 SO_2 計内部メモリのデータと良く一致することを確認した（図 9）。

試料採取用ポンプを駆動させ、噴煙試料をデドラーバッグに導入する SO_2 濃度閾値は 19.9 ppm に設定した。最初の 4 フライト 8 試料は、2019 年度と同様に火口南壁の噴気孔群から放出された噴煙を採取し、後半の 3 フライト 6 試料は第一火口中央の噴気孔から放出された噴煙を採取した（図 9）。各フライトの飛行時間は最短 3 分から最長でも 6 分程度であり、フライトインターバルも最長でも 10 分と、いずれも 2019 年度よりも大幅に改善し、効率的な試料採取が実現出来るようになった。

採取した試料は採取後速やかに、コック付きのガラス製真空容器に移して密封し、実験室に持ち帰った後で、 H_2 や CO_2 、 H_2O 等の濃度と同位体組成を測定した。その結果、同じ日にマニュアルでコック付きのガラス製真空容器に採取した試料と整合的な結果となり（図 10）、Se1PS を用いることで高濃度の噴煙試料が問題なく採取できることを確認した。さらに噴気孔に依らず全試料が同一直線上にプロットされ、この直線関係から求めた噴気孔由来の H_2 の端成分の $\delta^2\text{H}$ は $-239 \pm 5\text{‰}$ となった。これは、①両噴気孔群の最高噴気温度に有意差が無い、もしくは、②両噴気孔群の噴気温度は 400 度を大きく下回っており、HIRETS 温度は深部で急冷された際に固定されている、のいずれかであることを示している。得られた噴煙の観測から推定される H_2O の $\delta^2\text{H}$ 値（ $-63 \pm 7\text{‰}$ ）を元に HIRETS 温度（ AET_D ）を計算すると $724 \pm 38^\circ\text{C}$ なり、阿蘇中岳では過去最低に匹敵する低温であった。2021 年 3 月末には、緊急観測の一環として、有人セスナ機に Se1PS を搭載する形で桜島（鹿児島県）の噴煙観測を実施した。

Journal of Volcanology and Geothermal Research 誌に投稿した Se1PS 開発論文が 2021 年 2 月に受理され、編集者に依って Invited Research Article（招待論文）に選定された¹¹⁾。また日経新聞（全国版）や中日新聞等で Se1PS に関する記事が掲載された。

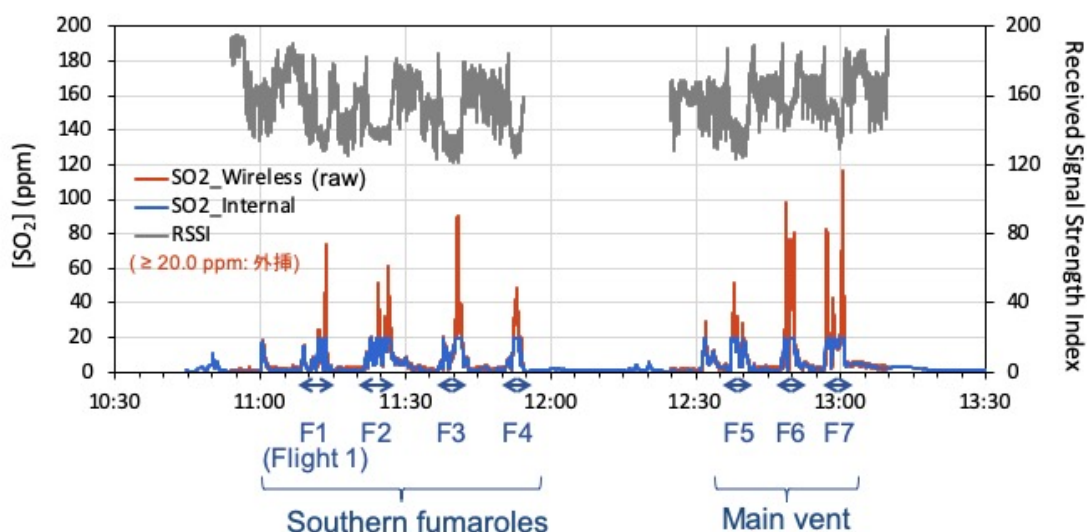


図 9. ドローンに搭載した Se1PS を用いた阿蘇中岳における噴煙試料採取時

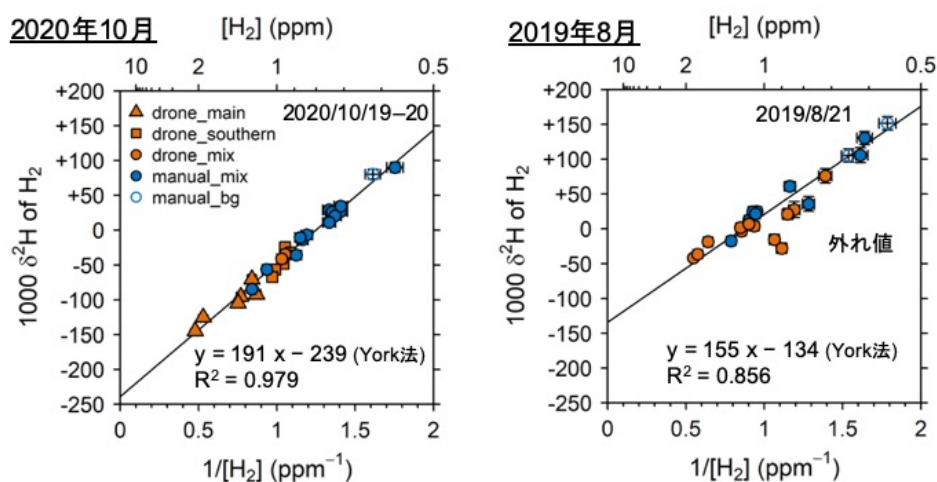


図 10. ドローンに搭載した SeIPS を用いて採取した阿蘇中岳の噴煙試料（オレンジ色）と火口縁においてマニュアルで真空容器に採取した阿蘇中岳の噴煙試料（青色）の H_2 濃度（逆数）と H_2 同位体組成の関係。左図は 2020 年度、右図は 2019 年度の観測結果を示す。2019 年度はすべて火口南壁の噴気孔群から放出された噴煙であるのに対して、2020 年度は火口南壁（オレンジ色■）に加えて、中央火口から放出された噴煙（オレンジ色▲）も採取した。

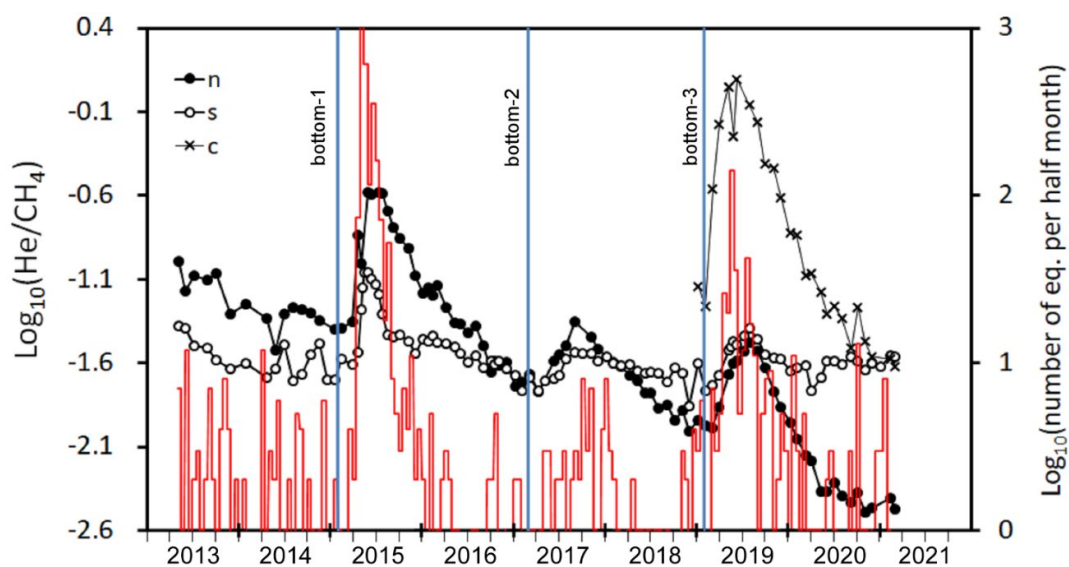


図 11. 箱根山火山ガスの He/CH_4 比（地震回数は気象庁の観測に基づく。青縦線は、 He/CH_4 比の極小期を示す。）

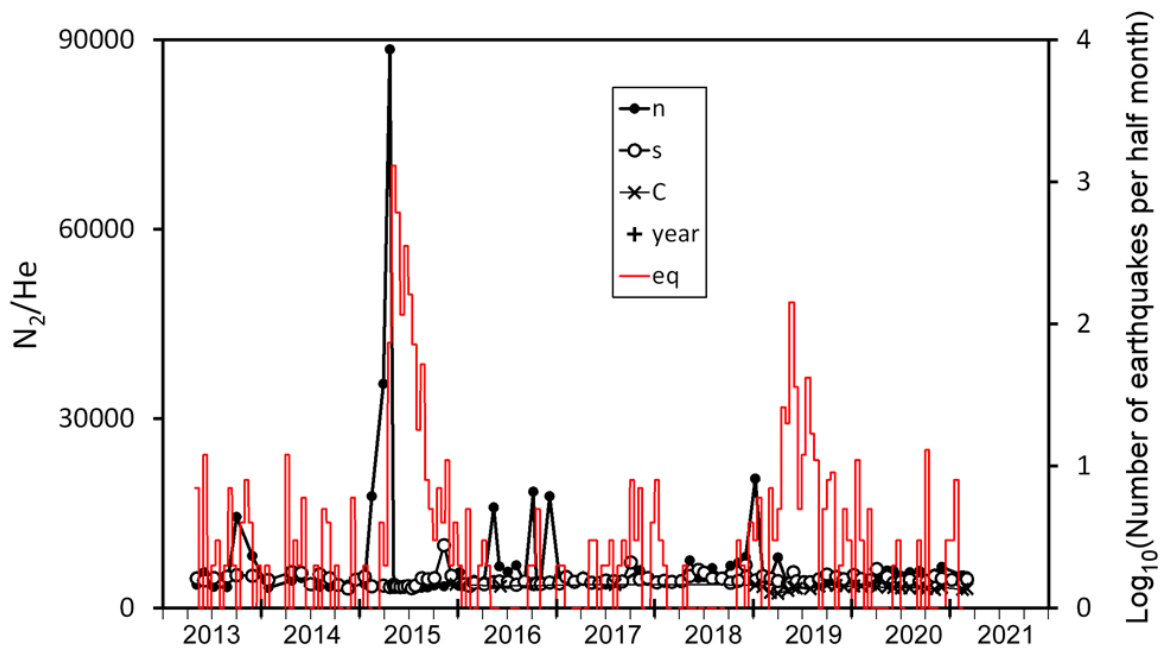


図 12. 箱根山火山ガスの N_2/He 比（地震回数は気象庁の観測に基づく）

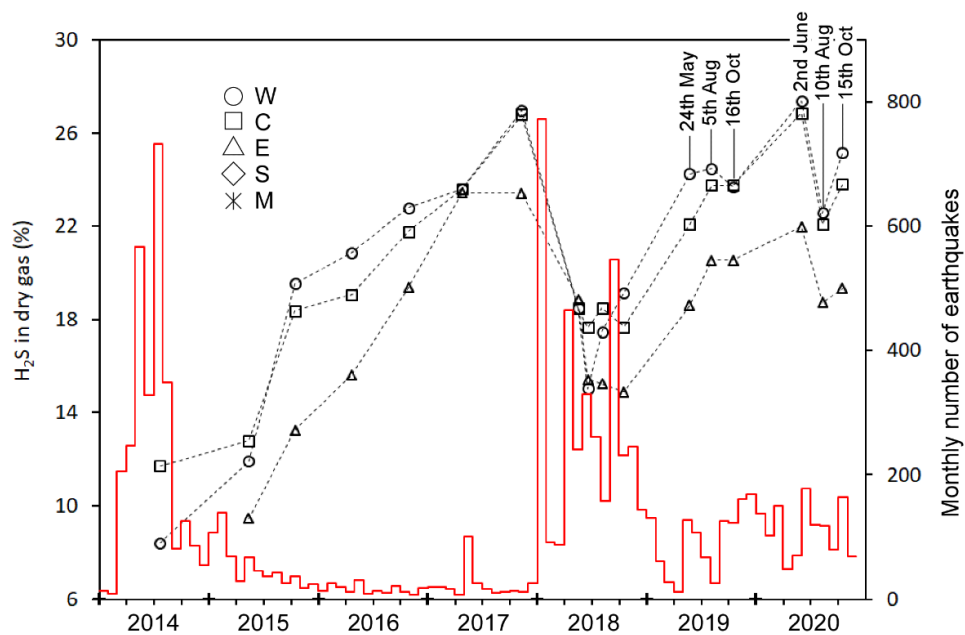


図 13. 草津白根山火山ガスの H_2S 濃度（ドライガス）（地震回数は気象庁の観測に基づく）

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、霧島硫黄山、草津白根山等において、従来の手法による火山ガスの採取・分析を繰り返し実施した。箱根山では、2020年4月から2021年3月まで、毎月3地点（n、s、c）で噴気を採取・分析した。箱根山では、地震活動や地殻変動に連動し、火山ガスの CO_2/H_2S 比や He/CH_4 比が変動してきた。これらの比の分子である CO_2 や He

はマグマに起源する成分で、分母の H_2S や CH_4 は浅部熱水系に起源する成分である。これらの比の上昇は、浅部熱水系に供給されるマグマ起源ガスの流量増大を意味している。これらの比の変動は、ほぼ2年の周期を有し、最近では2015、2017、2019年に極大を示した。図11に He/CH_4 比の時間変化を示す。

2020年度は2019年5月から7月にかけて出現した極大から一貫して低下する傾向が継続した。これと調和するように、2020年度において箱根山の地震活動は静穏であった。大涌谷の自然噴気では、2015年の活発化に先立ち、 N_2/He 比が急激に増大する現象がみられたが、2020年度では、類似した変化は観測されていない（図12）。 N_2 は大気由来成分、 He はマグマ由来成分であり、 N_2/He 比の急激な増加は、浅部熱水系に供給されるマグマ起源ガスの流量の低下と、それに伴う浅部熱水系の流体圧の低下を意味している。2015年の活発化ではそれに先立ち、浅部熱水系の流体圧の低下が起きていたと考えられる。

草津白根山では2020年6月8月10月の3回、湯釜火口の北方斜面で放出する噴気（W、C、E）を採取・分析した。噴気の H_2O を除いた成分（＝ドライガス）中の H_2S 濃度は、2017年11月に22%を超える値に達した後、2018年5月には全ての噴気で H_2S 濃度は18～19%以下に低下し10月まで低い値を維持したが2020年6月に向けて再び上昇した。2020年6月から8月にかけて急激な低下が起きたが、その傾向は維持されず、2020年8月から10月にかけて上昇した（図13）。

既存の研究によると、草津白根山では、ドライガス中の H_2S 濃度が10%程度に低下すると火山活動が活発化し、噴火の可能性が高まる。2020年10月の観測結果は、その時点で火山活動が活発化する傾向にないことを示している。噴気の $\text{He}/\text{H}_2\text{S}$ 比は、2019

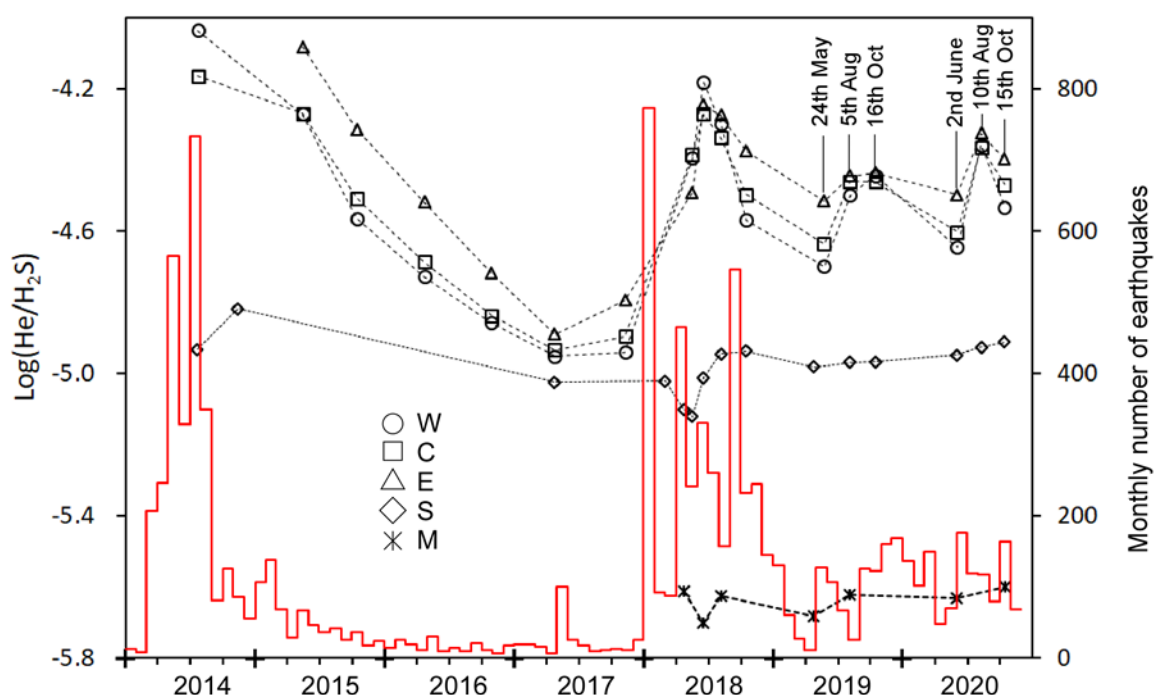


図14. 草津白根山火山ガスの $\text{He}/\text{H}_2\text{S}$ 比（地震回数は気象庁の観測に基づく）

年 5 月から 10 月にかけて上昇し、これは 2019 年 9 月から始まった地震活動の活発化に対応していると考えられる。He/H₂S 比は 2020 年 6 月には、2019 年 5 月のレベルまで低下したが、2020 年 6 月から 8 月にかけて急激に上昇した。しかし、その傾向は維持されず、2020 年 8 月から 10 月にかけて低下した（図 14）。

He はマグマに由来する成分、H₂S は熱水系に由来する成分であり、He/H₂S 比の変動は、2020 年 8 月から 10 月にかけて、湯釜直下に存在する浅部熱水系に対し、マグマ起源成分の流量が低下傾向にあることを意味している。

この成果を、本事業課題 B サブテーマ 4 により 2019 年 12 月 18 日に北海道大学で開催された「火山活動推移モデル・活動評価手法研究集会」で発表した。課題 B サブテーマ 4 では、火山噴火切迫度（VUI, 0: No unrest、1: Negligible unrest、2: Minor unrest、3: Moderate unrest、4: Heightened unrest）を評価するための新たな観測指標を見出し、気象庁等の防災情報発表機関に提供することで、噴火警報・予報の高度化に貢献することを目標としている。研究集会では、草津白根山は、2014 年から 2019 年の期間において、VUI の 1 と 2 の状態に相当する火山活動を繰り返していることを提示し、火山ガスの化学組成が VUI の評価に有用であることを発表した。

霧島硫黄山では、2020 年 7 月、11 月の 2 回、山頂域の三カ所（c、h、V2）で噴気の採取・分析を行った。噴気の SO₂/He 比は 2017 年 5 月と 2018 年 3 月に局大値が観測されている。2017 年 5 月はいわゆる噴火未遂とみられる火山活動の活発化が起きている。2018 年 3 月の一か月後には小規模な水蒸気噴火が起きた。霧島硫黄山では SO₂/He 比が火山活動活発化の良い指標となると考えられる（図 15）。

2020 年の変化としては、噴気 c において、2020 年 7 月から 11 月にかけて SO₂/He 比の上昇が起きている。噴気 h は同期間で逆に低下しているが、比の絶対値は高い値を

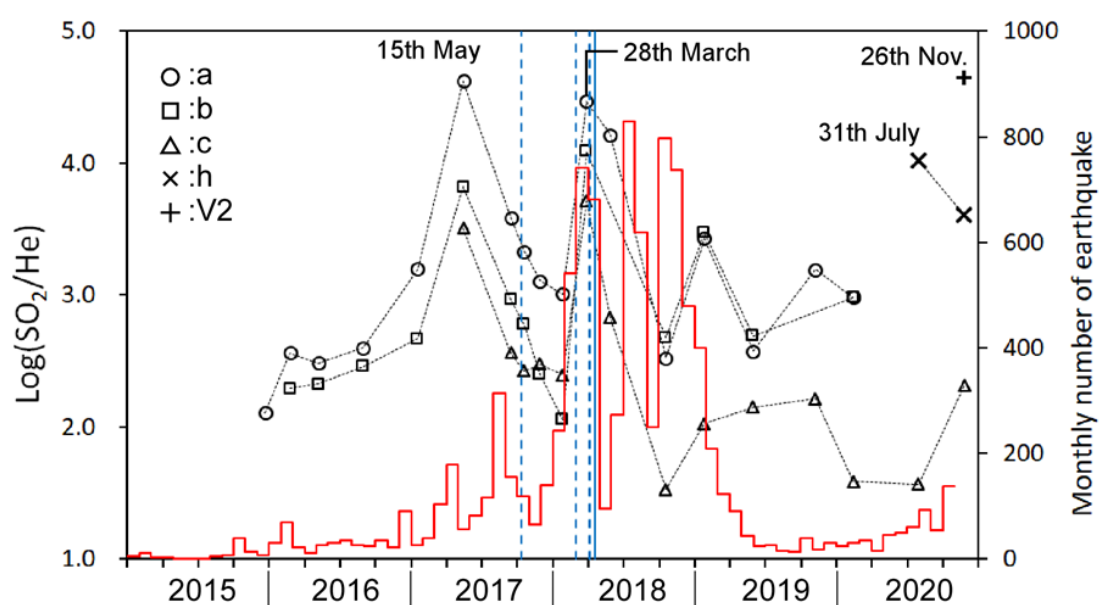


図 15. 霧島硫黄山火山ガスの SO₂/He 比（地震回数は気象庁の観測に基づく）

維持している。V2 の SO_2/He 比は高く、2017 年 5 月に噴気 a で観測された値に匹敵する。霧島硫黄山では、マグマ起源成分である SO_2 は、マグマから脱ガスし地殻を上昇する過程で、浅部熱水系内において、酸化や加水分解などの作用により部分的に「除去」され、噴気に含まれる濃度が低下すると考えられる。マグマ起源成分の流量が上昇すると、この除去効果が低下し、噴気に含まれる SO_2/He 比が上昇すると考えられる。そのため、地震回数などを指標とした火山活動度と良い相関を示すと考えられる。

活火山の噴気孔から放出される火山ガスには SO_2 や H_2S が含まれており、 $\text{SO}_2/\text{H}_2\text{S}$ 比は火山活動を反映し変化することが既存の研究により明らかにされている。 SO_2 や H_2S は一般的な環境大気にはほとんど含まれておらず、噴気孔から放出され周囲の環境大気に拡散した火山ガスの $\text{SO}_2/\text{H}_2\text{S}$ 比は噴気孔の値を反映することが期待される。火山活動が活発化し、噴火警戒レベルが引き上げられた場合、噴気の直接採取によるモニタリングが困難となる。火口から離れた安全な場所で環境大気を観測することにより、火山ガスの $\text{SO}_2/\text{H}_2\text{S}$ 比を推定できれば、火山活動の評価に貢献する。そこで環境大気に拡散した微量 SO_2 、 H_2S ガスの観測手法の検討を、令和元年度に備品として購入した紫外線蛍光法硫化水素二酸化硫黄濃度計 (Thermo Scientific Model 450iQ) を用いて実施した。令和 2 年度は新型コロナウイルス感染拡大の影響により環境大気を採取するための出張が制限され、またこの濃度計は現状では AC100V の電源が必要で、さらに現場に持ち出すことにより故障する可能性があるため、令和元年度にテドラバックに採取した、箱根山の噴気孔から数百メートル程度離れた地点の環境大気を研究室で分析した。この結果から、テドラバックに採取した大気に含まれる微量の SO_2 と H_2S は、テドラバックの内壁に吸着されることにより濃度が低下する可能性が示された。その濃度低下の効果を調べたところ、 SO_2 、 H_2S 濃度は採取してから経過した時間に対し、線形的に減少することが明らかとなった。すなわち試料大気を採取後に時間を空けて、少なくとも 2 回分析することにより、採取時の補正濃度を推定することが可能であることが確認された。

(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ている。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⁹⁾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、那須岳、阿蘇山、九重山）でも平常時の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比のデータが蓄積されている。また草津白根山と伊豆大島、そして霧島山硫黄山においては、周辺の噴気や温泉の $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比マップの構築がほぼ完了した。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ほぼ限界であり、今後はポスト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。

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、2019年5月後半から7月後半にかけて、火山性地震の回数が上昇し、噴火警戒レベルが1から2へ引き上げられたのと同期して $\text{CO}_2/\text{H}_2\text{S}$ 比や He/CH_4 比の上昇が見られた。これは $\text{CO}_2/\text{H}_2\text{S}$ 比および He/CH_4 比の高いマグマ起源のガスの浅部熱水系に対する流量が増加し、同時に地震回数が増加したことを示していると考えられる。草津白根山では2019年5月から10月にかけて、噴気放出量の大きな噴気において $\text{He}/\text{H}_2\text{S}$ 比が単調に増加し、また火山性地震も活発化していたことから、この期間にマグマ脱ガス活動が活発化していたと考えられる。霧島山硫黄山では勢いが非常に強い噴気が出現し、地震活動が活発であった期間に高い SO_2/He 比が観測された。これらの観測事実の蓄積から、火山ガス組成という地球化学的パラメータの、火山活動度の指標としての有用性が示されつつある。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クを雇用し、火山ガスのモニタリングに従事させてきた。箱根山や草津白根山、霧島山硫黄山でのモニタリングを継続するには、今後もポストクを確保する必要がある。

装置開発の面では、ヘリウム同位体比分析用の可搬型質量分析計の開発は最終段階に入っており、今後はより多くの試料を分析してデータの質を評価しつつ、フィールドに持ち出す方法の検討を始める必要がある。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 (H_2O) や水素 (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がほぼ確立した。また開発した自動噴煙試料採取装置を実際にドローンに搭載して噴煙試料を採取することに成功したことから、今後は同様にドローンを活用している本事業課題Bサブテーマ4等とも連携して更に実用試験を重ねつつ、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。近年新たに導入した同位体比赤外分光計による噴気や温泉ガスの二酸化炭素同位体比分析と、紫外線蛍光法硫化水素二酸化硫黄濃度計による環境大気中の SO_2 、 H_2S 濃度の分析は今後も様々な試料の分析を実施して得られる結果の検証と、フィールドに持ち出す方法の検討を進めていく必要がある。

(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) 角野浩史: 希ガス同位体質量分析の温故知新, *J. Mass Spectrom. Soc. Jpn.*, Vol.63, pp.1-30, 2015.
- 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) 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.
- 5) 角野浩史, 川名華織, 山根康平, 清水綾, 森川徳敏, 秋山良秀, 森俊哉, 野津憲治: 伊豆大島火山におけるヘリウム同位体比の時空間変化, *月刊地球*, Vol.40, pp.149-155, 2018.
- 6) Nakao, S., Morita, Y., Yakiwara, H., Oikawa, J., Ueda, H., Takahashi, H., Ohta, Y., Matsushima, T. and Iguchi, M.: Volume change of the magma reservoir relating to the 2011 Kirishima Shinmoe-dake eruption-Charging, discharging and recharging process inferred from GPS measurements, *Earth, Planets, Space* Vol.65, pp.505-515, 2013.
- 7) 大場武, 代田寧, 澤毅, 平徳泰, 攪上勇介: 箱根カルデラ中央火口丘大涌谷地熱地帯における火山ガス組成の時間変化, *神奈川県温泉地学研究所報告*, Vol.39, pp.1-42, 2007.
- 8) Kagoshima, T., Sano, Y., Takahata, N., Lee, H., Lan, T. and Ohba, T.: Secular Variations of Helium and Nitrogen Isotopes Related to the 2015 Volcanic Unrest of Mt. Hakone, Central Japan, *Geochem., Geophys., Geosys.*, Vol.20, <https://doi.org/10.1029/2019GC008544>, 2019.
- 9) Hernandez, P.A., Notsu, K., Salazar, J.M., Mori, T., Natale, G., Okada, H., Virgili, G., Shimoike, Y., Sato, M. and Perez, N.M.: Carbon dioxide degassing by advective flow from Usu volcano, Japan. *Science*, Vol.292, pp.83-86, 2001..
- 10) Takahashi, K.U., Tsunogai U., Nakagawa F. and Sukigara C.: Stable hydrogen and oxygen isotopic compositions of water vapor in volcanic plumes sampled in glass bottles using cavity ring-down spectroscopy, *J. Volcanol. Geotherm. Res.*, Vol.384, pp.232-240, 2019.
- 11) Shingubara, R., Tsunogai U., Ito M., Nakagawa F., Yoshikawa S., Utsugi M. and Yokoo A.: Development of a drone-borne volcanic plume sampler, *J. Volcanol. Geotherm. Res.*, Vol.412, 107197, 2021.
- 12) Giggenbach, W. F.: Isotopic shifts in waters from geothermal and volcanic systems along convergent plate boundaries and their origin, *Earth Planet. Sci.*

(f) 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3年度の業務計画案

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・気象研究所等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、西之島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）等の同位体比のデータを蓄積するとともに、本プロジェクトを通して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。

本課題 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、有珠山周辺の噴気や温泉ガスを採取・分析し、また土壌ガス中二酸化炭素の炭素同位体比測定を実施する。草津白根山や霧島山硫黄島などにおいても、課題 B 全体で実施を計画している、現地での研究集会（コロナウィルス感染拡大が終息しない場合にはオンラインにて開催）を通して、とくに課題 B サブテーマ 2 と 4 による観測で得られる地球物理データと、本サブテーマで得られる地球化学データを比較し、両者の知見を共有して相補的に解釈することで、より正確に火山の内部状態を理解することを目指す。また課題 A との連携として、JVNDN へのデータ提供を開始する。

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・二酸化炭素測定に関わる技術開発

昨年度に引き続き、草津白根山の火山ガスおよび周辺の温泉水溶存ガスを分析してヘリウム・炭素同位体比マップを作成し、経時変化をみる。前年度末にリースにより調達した同位体比赤外分光計を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。この同位体比赤外分光計に関しては、大気に拡散した噴煙中の二酸化炭素の炭素同位体比をオンサイトで分析するための性能評価や試料導入系の開発を行いつつ、試験的な測定を霧島山硫黄山・草津白根山・箱根山等のいずれかの火山で実施する。

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

2019 年度に真空容器に直接採取した噴煙（プルーム）試料を実験室に持ち帰って分析する手法を確立し、成果として発表した（Takahashi et al., JVGR, 2019）。ところが、2020 年 10 月に実施した霧島硫黄山および阿蘇中岳の噴煙観測に際して、この真空容器への直接採取と同時に、下記 b で開発した自動噴煙試料採取装置 Se1PS を用いて噴煙試料を採取し、この両者について水蒸気同位体比を測定して比較したところ、水素 (H_2) や二酸化炭素 (CO_2) は両者間で整合的な濃度および同位体比を示す一方で、水蒸気では高濃度試料を中心に系統的に異なる同位体比を示すことが判明した。これは、高濃度（＝高湿度）の噴煙試料採取時に、Se1PS 内部の流路上で水蒸気の吸着（もしくは凝縮）が進行し、吸着（もしくは凝縮）された水蒸気と残った水蒸気の間で同位体分別が進行していたことを示している可能性が高い。火山によっては Se1PS を使わないと噴煙試料の採取が難しく、またその他の場合であっても、大気由来の水蒸気による同位体比の変動を最小限に抑える上で、高濃度試料の採取は不可欠である。そこで 2021 年度はまずこの問題の解決のため、室内実験で以下の各課題に取り組む。

(1) 温度および湿度を調整した均一な大気を密閉室内に準備し、真空容器への直接採取と Se1PS を使った採取を同時に実行し、それぞれの水蒸気濃度および同位体比を比較してその差異を定量化する、(2) Se1PS にヒーターを巻きつける等により昇温して

(1) と同様の実験を実行する、(3) Se1PS の接ガス部の材質を可能な限りテフロンに変更して (1) と同様の実験を実行する、(4) Se1PS を使わずに直接テドラーバックに採取する方式に変更して (1) と同様の実験を実行する、(5) 得られた (1) - (4) の結果を元に、Se1PS で採取した試料の水蒸気同位体比に差異が生じる原因を解明するとともに、同位体比の補正や、Se1PS の昇温、さらに Se1PS の接ガス部の素材の変更等によって水蒸気同位体比の真値を求めることができないか、可能性を探る。

また、噴煙を直接同位体アナライザーに導入して測定する、噴煙のリアルタイム観測の実現に向けて研究を開始する。具体的には、コロナ禍で 2020 年度に実現出来なかったポータブル電源と、耐振動性能に関して実験室レベルの検討を開始する。

b) 自動噴煙試料採取装置の製作

前年度ドローンに搭載した実作動試験に成功した噴煙試料自動採取装置 Se1PS (Shingubara et al., JVGR, 2021) を用いて、京都大学火山研究センターと共同で、現在噴火活動中の伊豆小笠原諸島西之島で、同島では世界初となる噴煙試料採取を実現する。具体的には、東京大学大気海洋研究所の共同利用制度により海洋研究開発機構の「新青丸」を用いた観測航海を実現して西之島に数 km 程度まで接近し、Se1PS をドローンに取り付けて噴煙試料を採取する。現場で Se1PS を用いて火山周辺の二酸化硫黄 (SO_2) や硫化水素 (H_2S) の濃度分布やその放出フラックスを定量化する他、採取した噴煙試料の持ち帰り分析を通じて水蒸気 (H_2O) や水素 (H_2)、二酸化炭素 (CO_2) 等の濃度・同位体組成を世界で初めて定量化し、水素の安定同位体比から見積もる HIReTS 温度や、 H_2O - CO_2 間の酸素同位体平衡温度等を推定する。また船上から塩化水素 (HCl) やアンモニア (NH_3) の大気中濃度も観測する。共同利用申請は既に採択内定済みであり、旅費はこの共同利用から支出される。また草津白根山や御嶽山の噴煙試料採取に対応する目的で開発した、 H_2S 濃度モニタリング方式の Se1PS に関して、実験室レベルの作動試験を行う。

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、草津白根山、霧島山硫黄山等において、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。また人手により繰り返し採取・分析の対象となるような、小規模で接近可能な噴気の化学組成を連続的に観測する装置の開発に取り組む。

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。