リチウム同位体による地殻流体研究の新展開 —地殻活動の全貌解明に向けて—

西尾 嘉朗^{*1}

Geofluid research using lithium isotopic tool advances understanding of whole crustal activity

Yoshiro NISHIO^{*1}

Abstract

Deep-rooted fluids play important role in generating earthquakes and/or volcanic eruption, whereas it was difficult to research deep-rooted fluids from groundwater samples using traditional geochemical tools owing to contamination from surface water. The Li isotopic index, a new geofluid research tool, has a potential to provide us information about deep-rooted fluid without contamination from surface water. Based on the Li isotopic data of groundwater samples, it has been revealed that geofluid involving the earthquake swarms beneath the southeast flank of Ontake volcano in central Japan is attributed to non-volcanic deep-rooted fluid. Furthermore, this paper argues the relationship between inland large earthquakes and the discontinuous deep-seated fluid upwelling that is induced by the periodic breaking of the low-permeable barrier (cap) on the deep-seated fluid reservoir. The Li isotopic tool has a potential to provide us new information about the discontinuous deep-seated fluid upwelling.

Key words: lithium, stable isotope, earthquake, groundwater

I. 地殻流体科学とは

我々が目撃したり感じたりすることができる地震や火山噴火は、大きく広い地殻活動のほんの一部に過ぎず、認知可能な地震や火山噴火ばかりに目を取られていては、地震や火山噴火を深く理解することはできない(五十嵐, 2006)。さらに、五十嵐(2006)は、全地殻活動が氷山であるなら、地震や火山噴火といった活動を『氷山の一角』に例えた(Fig. 1)。この海面下の見えない氷山部分にあたる『地震や火山噴火の準備過程(静穏期)』において、最も重要な役割を演じているのが『地殻流体』である。ここで、地殻流体とは、

地殻および最上部マントルに存在する流体の総称である。つまり、地殻流体にはH₂Oだけではなく、CO₂やシリケートメルト(マグマ)も含まれる。この地殻流体の分布や挙動や物理化学状態は多くは不明であった。

地殻内での流体分布を可視化できる三次元地震波トモグラフィーや電気比抵抗構造といった地球物理学的手法は、地殻流体の起源や挙動の解明において極めて強力なツールであるが、流体がある程度濃集していないと検出できない。そこで、起源情報に強い同位体等の地球化学的情報と併用することで、地殻流体の起源や挙動の理解はより深まるはずである。しかし、湧水や井戸水といった

^{*1} 海洋研究開発機構・海底資源研究プロジェクト Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology

Fig. 1 Schematic illustration of the geofluid science revealing the whole crustal activity. If the crustal activity were regarded as an iceberg, the earthquake and volcanic eruption would be the tip of the iceberg. This figure was modified from the original drawn by deceased Prof. Igarashi. [url=<http://sakura.canvas.ne.jp/spr/georgei/research/fluid.html>]

地表で採取できる地下水試料の地球化学的情報を基に、地殻流体の起源に迫った研究はこれまで極めて少なかった。これは、地下水の地球化学研究に用いられてきた元素同位体指標の多くが、表層水混入の影響を非常に受けやすかったためである。また、地表で採取できる地下水試料から地殻深部流体の情報を得ようとした場合、深部流体上昇時における上部地殻との反応の影響も大きい。加えて、地殻流体から鉱物沈殿が起きた場合、鉱物相に分配されやすい元素は大きな影響を受ける。

地殻流体に関する理解は、研究調査ツールと共に劇的に進化してきた経緯から、用いる用語の多くに一般的でないものが含まれる。巻末の付録にて、本論文で用いた地殻流体に関する用語の説明を行っているので適宜参照されたい。

II. 地殻流体の新しい研究ツールとしてのリチウム同位体指標

II-1. 水・岩石相互作用に関わるLiの挙動と同位体分別

最も軽いアルカリ金属元素であるリチウム(Li)は、非常に流体相に分配されやすい元素の1つである。Fig. 2は、堆積物と水が共存する系において、温度を350°Cまで上げた後に冷却した際の、流体中のLi濃度の変化である (James et al., 2003)。このFig. 2のように、系の温度が上昇するにつれて、流体相のLi濃度が急速に上昇する。その結果、高温を経験した深部流体は、低温しか経験していない表層水に比べて著しくLiに富むため、他の元素に比べて深部流体-表層水間の濃度コントラストは極めて大きくなる。そして、高温となって流体相に分配されたLiは、温度降下時にも流体相に留まる (Fig. 2)。つまり、深部流体が地表付近まで上昇する際に、他の元素に比べてLiは、(1) 表層水混入によって深部流体が希釈を受ける際も、表層水由来のLiの混入による深部流体の同位体組成への影響は小さく、(2) 鉱物生成によって流体相から取り除かれにくい。

また、Liの2つの安定同位体 (${}^6\text{Li}=7.5\%$, ${}^7\text{Li}=92.5\%$) の間の大きな相対質量差から、Liが動く際に大きな同位体分別が起こる。一般に複数の同位体がある場合、高配位サイトにより軽い同位体が入りやすい (Oi et al., 1989)。ほとんどの珪酸塩ではLiは、ほぼ同じイオン半径を持つMgを置換して8面体6配位であるのに対して、水溶液中では4面体4配位を取る。この理由で、液相Liの方が共存する固相Liより重い ${}^7\text{Li}$ に富む。そして、その同位体分別の大きさは系の温度によって決まる。Fig. 3に、水-岩石間のLiの同位体分別と温度との関係を示す (Wunder et al., 2006)。流体相Liは共存する固相Liより高い $\delta^7\text{Li}$ 値を持ち、その流体相-固相間のLi同位体比の差は高温ほど小さくなる (Fig. 3)。言い換えると、流体とその流体が接していた固相のLi同位体組成が分かれば、この流体が固相と接していた最高

Fig. 2 Li concentration (nM) in the experimental fluid interacted with the sediment against temperature during the heating and cooling episodes (You et al., 1996).

Fig. 3 Li isotopic fractionation between solid and fluids against temperature (Wunder et al., 2006). $\Delta^7\text{Li}_{\text{solid-fluid}} = \delta^7\text{Li}_{\text{solid}} - \delta^7\text{Li}_{\text{fluid}}$

温度を推定することができる。ここで、 $\delta^7\text{Li}$ 値とは、分析試料の $^7\text{Li}/^6\text{Li}$ 比を、標準試料であるL-SVECの $^7\text{Li}/^6\text{Li}$ 比からのずれを千分率(‰)単位で表したものである ($\delta^7\text{Li} = [\frac{^7\text{Li}}{^6\text{Li}}]_{\text{sample}} / [\frac{^7\text{Li}}{^6\text{Li}}]_{\text{L-SVEC standard}} - 1 \times 1000$)。また、 $\Delta^7\text{Li}_{\text{solid-fluid}}$ は、流体相と固相の $\delta^7\text{Li}$ 値の差である ($\Delta^7\text{Li}_{\text{solid-fluid}} = \delta^7\text{Li}_{\text{solid}} - \delta^7\text{Li}_{\text{fluid}}$)。

II-2. 高精度Li同位体分析の歴史

このように深部流体の起源情報を我々にもたらししてくれるツールとして期待されるLi同位体比であるが、これまで分析が困難であったことから、その報告は極めて限られていた。初期のLi同位体分析で用いられていた熱イオン質量分析装置 (TIMS) は、前処理時に非常に高度な分離精製技術を必要としたからである。2000年以降、より簡便・高精度にLi同位体比を測定することができるマルチコレクター ICP質量分析装置 (MC-ICP-MS) の普及によって、その状況は大きく変わる。MC-ICP-MSを用いたLi同位体比の高精度分析が初めて報告されたのは1999年のことである (Tomascak et al., 1999)。著者は、日本での導入は2例目となる第二世代MC-ICP-MS (IsoProbe, GV Instrument) を用いて、45 ngLiという微量Liを、 $\pm 0.8\%$ (2SD) という高精度でLi同位体比を分析することに成功した。そして、MC-ICP-MS装置を用いた高精度Li同位体分析としては2例目となる論文を2002年に発表した (Nishio and Nakai, 2002)。その後、著者は、第三世代MC-ICP-MS (Neptune, Thermo Sci. Co.) を用いて、2 ngLiという極微量Liを $\pm 0.3\%$ (2SD) と、さらに高精度でLi同位体比を測定することに成功した。これは、分析に必要なLi量、誤差共に、現在の世界最高レベルである。堆積物中の間隙水や鉱物中の流体包有物といった水の量が限られた試料に、極微量Liの高精度同位体比測定は極めて有効である。

II-3. 主要な地球試料のLiの濃度と同位体比

Fig. 4に、地球の主要な試料のLiの濃度と同位体比を示す。現在の海水の $\delta^7\text{Li}$ 値は $+31\%$ (Nishio et al., 2010) であり、流入する河川水の平均値 $+23.5\%$ (Huh et al., 1998) や海洋底熱水の平均値 $+9\%$ (Burton and Vigier, 2012) に比べると高い。この高 $\delta^7\text{Li}$ 値は、海洋底が低温変質を受ける際に生成されるス멕タイト等の含水鉱物に軽い ^6Li が優先的に取り込まれることによる。新鮮な中央海嶺玄武岩 (MORB) のLi濃度

Fig. 4 Abundances and isotopic compositions of lithium in major terrestrial samples (Wunder et al., 2006). Some data were modified to data reported recently.

と $\delta^7\text{Li}$ 値は、それぞれ約5 ppmLiと約+3%である (Nishio et al., 2007; Tomascak et al., 2008)。この新鮮なMORBは、海洋底で低温変質を受けるにつれてLi濃度と $\delta^7\text{Li}$ 値が高くなる。最も変質したMORBのLi濃度と $\delta^7\text{Li}$ 値はそれぞれ74 ppmLiと+14%である (Chan et al., 1992)。この最も変質したMORBと海水の $\delta^7\text{Li}$ 値の差(17%)こそが、深海底の4°Cという温度での固相-液相間のLi同位体分別の値であり、これ以上MORBを変質させても+14%より高い $\delta^7\text{Li}$ 値にはならない (Chan et al., 1992)。そして、スポンジが水を吸うように海水Liを集めた変質した海洋地殻や海洋堆積物は、海溝を通して地球内部に沈み込む。その際に、水を含んだスポンジを押しつぶすように脱水するスラブ起源流体にLiは多く含まれる。

大陸地殻のLi濃度と $\delta^7\text{Li}$ 値は、それぞれ18 ppmLiと+1.2%である (Teng et al., 2008)。世界の河川水の流量加重平均のLi濃度(1.5 ppbLi)と $\delta^7\text{Li}$ 値(+23%)は、この大陸地殻と低温で反応した水の値として説明できる (Huh et al., 1998)。一方、高温の水-岩石相互作用により、温泉水は河川水より高Li濃度・低 $\delta^7\text{Li}$ 値となる。多くの温泉水のLi濃度は、高くても1000 ppbLiであるが、有馬温泉水のように50,000 ppbLiと非常にLiに富む温泉水も存在する (Masuda

et al., 1985)。

II-4. Li同位体指標を用いた地殻流体研究の歴史

前章(II-3)のLi同位体分析を簡便にするMC-ICP-MS装置の普及によって、2000年以降にLi同位体指標を用いた地球科学研究論文が数多く報告されている。中でも、火山岩試料のLi同位体組成から、地球内物質循環を議論した研究論文が多い (Chan et al., 1999; Elliott et al., 2004; Tomascak, 2004; Nishio et al., 2005; Elliott et al., 2006; Nishio et al., 2007)。一方、固体地球試料に比べて、地表で採取できる水試料のLi同位体研究は多くはない。また、その多くが、河川水といった表層水端成分に卓越した水試料を用いた地表付近の風化に関する研究である (Huh et al., 1998; Huh et al., 2001; Kisakurek et al., 2005; Vigier et al., 2009; Millot et al., 2010)。一方、非表層水(深部流体)のLi同位体研究は、地球化学研究でよく用いられる熱水(温泉水)ですら、報告例は極めて少ない。海底熱水系 (Chan et al., 1992; Chan et al., 1994; James et al., 1995) も陸上熱水系 (Millot and Negrel, 2007; Millot et al., 2010) の研究も、高温マグマと水との間のLi同位分別に関する議論にとどまっていた。地温勾配を超える高温の地下水試料であれば、その採取地点より深部(高温部)起源

の水であることは明らかであるが、このような高温の地下水試料が採取できる場所は限られる。一方、表層水の中にわずかししか含まれない深部流体成分の情報をういた深部流体研究は皆無であった。地球化学でよく用いられていた元素同位体指標は、表層水成分の影響を大きく受けるからである。特に地震活動に関与する深部流体を探る際に用いる断層付近の地下水試料の大半は、表層水成分に卓越している。Nishio et al. (2010) では、表層水成分に卓越した地下水試料を含めて、Li同位体指標を適用することで、木曽御嶽火山の南東麓で起こる群発地震に関与する流体が非火山性の深部流体である事を明らかにした。このように採取時は低温の表層水成分に卓越した地下水試料のLi同位体組成を用いた深部流体研究は、陸上試料では例がなく、泥火山流体やデコルマ流体といった海底試料を用いた研究のみであった (You et al., 1995; Chan and Kastner, 2000; Scholz et al., 2009; Scholz et al., 2010)。

このように、水文学分野においてもLi同位体指標の活躍が期待できるきっかけを報告したNishio et al. (2010) を、次章 (Ⅲ章) で紹介する。Li同位体ツールを用いた地殻深部流体研究の理解に必要な基礎的な事柄は本章で述べたが、さらに詳細は西尾 (2010) を参照されたい。

Ⅲ. Li同位体を用いた地殻深部流体の研究例 —木曽御嶽火山の南東麓の群発地震に 関わる非火山性流体について—

Ⅲ-1. 群発地震に関与する地殻流体

木曽御嶽火山の南東麓では1976年から現在に至るまで微小地震が多発している (Fig. 5a)。1976年以前に関しては、地震記録の残る1923年までの間には群発地震は起こっていなかった。ここで、多くは微小地震であるが、M4より大きい地震も年に1-2回程度起こる。山体崩壊を引き起こして王滝村に大きな被害を与えた長野県西部地震 (M6.8) がこの群発地震域で発生したのは、

群発地震開始から8年後の1984年9月である。また、群発地震開始から3年後の1979年に、有史以来では初噴火となる水蒸気爆発を起こし約1,000 mの高さまで噴煙は上昇した。その後、1991年、2007年にも小規模な噴気活動が起きている。このように木曽御嶽火山の南東麓の群発地震活動は、木曽御嶽火山の火山活動にも影響を与えた可能性も考えられる。この木曽御嶽火山周辺においては、群発地震が起こっていない地域 (以下、非群発地震域) (Fig. 5b) と群発地震域 (Fig. 5c) の地下10 km以浅の電気比抵抗構造が調査されている (Kasaya et al., 2002; Kasaya and Oshiman, 2004)。群発地震域下 (Fig. 5c) に見られる地下10 kmから地表付近の低比抵抗領域が、非群発地震域 (Fig. 5b) では見られない。また、低比抵抗領域と高比抵抗領域の境界付近の高比抵抗領域内で群発地震が起こっている事が、Fig. 5cから読み取れる (Kasaya et al., 2002)。この木曽御嶽火山南東麓の低比抵抗は、水によるものと考えられている (Kasaya et al., 2002; Kasaya and Oshiman, 2004)。しかし、木曽御嶽火山南東麓の群発地震発生の鍵をにぎる低比抵抗は、火山近傍という理由で火山性流体である可能性も含めて、その起源は不明のままであった。そこで、Nishio et al. (2010) では、木曽御嶽火山周辺の群発地震多発域と非群発地震域の両方から、湧水や井戸水といった地下水試料 (温泉・鉱泉を含む) を採取してLi同位体組成をはじめとする地球化学調査を実施した。採取時に水温が25°Cを超えていたのは、火口に近い採取地点 (KNS, NGG, YKW) の湧水のみである。本研究で分析した地下水試料は、火山性ガスが水底から湧出している地点の水を採取したものである (KRB, KYK, OTKサイトを除く)。火山性ガスの湧出が確認できなかったKRB, KYK, OTKサイトも、掘削孔 (井戸) から採取された地下水である (河川水でない)。一方、AKG, SJM, SRKサイトでは、川の浅瀬の火山性ガス湧出地点であるため、採取した水試料に河川水の混入はさけることができない。特にAKGサイトは、完全に川の

Fig. 5 Locations of sampling sites (open circles) and geology in the Ontake volcano area (a). The epicenter of the 1984 western Nagano Prefecture earthquake (M6.8) and the causative fault are shown as a star and dashed line, respectively. Dots are epicenters of earthquakes during 2001–2005 at depths of -1 to 40 km (Nakamichi et al., 2009). The electrical conductivity profiles along X–X' (b) and Y–Y' (c) are from Kasaya et al. (2002). Circles in (b) and (c) are earthquake hypocenters during the period October–December 1995. A low-resistivity fluid conduit from deep crust to the surface is inferred beneath the southeast flank of Ontake volcano near this earthquake swarm region (Kasaya et al., 2002; Kasaya and Oshiman, 2004). These figures have been already presented in Nishio et al. (2010).

中であり、採取試料は河川水である。加えて、詳細は後述するが、SRKサイトでは、火山性ガス湧出地点から離れた河川水 (SRK-river) を採取分析している。

Ⅲ-2. 群発地震域の地下水の特徴：低 $\delta^7\text{Li}$ 値

Figs. 6a と 6b は、木曾御嶽火山周辺の地下水

の $\delta^7\text{Li}$ 値と $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比が、試料採取地点の御嶽火山口からの距離と共にどのように分布するか示したものである (Nishio et al., 2010)。これら Figs. 6a と 6b において、灰色の影のある部分は、群発地震が起きていない場所の試料データである。一方、群発地震域の地下水試料データは破線で囲んだものである。Fig. 6a のように、南東麓

Fig. 6 Variations of $\delta^7\text{Li}$ values (a) and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios (b) with distance from the volcanic cone. The large open circles show the non-surface fluid data, defined by Cl/Li ratios less than 1100 and Cl/Sr ratios less than 350 (details are discussed in III-4). The dotted line loops are around the active earthquake site data and the weak grey shades underlay inactive earthquake site data. These figures have been already presented in Nishio et al. (2010).

の群発地震域試料の $\delta^7\text{Li}$ 値は、他の御嶽火山周辺の地下水の $\delta^7\text{Li}$ 値に比べて、有意に低い (Nishio et al., 2010)。一方、同時に測定した $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比は、群発地震域試料と非群発地震域試料の間に大きな違いは見られなかった (Fig. 6b)。このように、地殻流体の研究では比較的汎用的に用いられ

るSr同位体指標では見ることができなかった『群発地震域試料と非群発地震域試料の違い』が、比較的新しい地殻流体研究ツールであるLi同位体指標を用いることで見える事が明らかとなった。

ここで、もう1つ重要な点は、この木曽御嶽火山南東麓の群発地震域の地下水で観測された -5% という $\delta^7\text{Li}$ 値は、他の御嶽火山周辺の地下水試料と比較しただけでなく、地球の水試料の値としても有意に低いことである。II-1章で述べたように、岩石のような固体と水のような液体が接している系において、液相(水)の $\delta^7\text{Li}$ 値は固相(岩石)の $\delta^7\text{Li}$ 値より必ず高い(重い ^7Li に富む)。そして、その水と岩石の間の $\delta^7\text{Li}$ 差は系の温度に依存する。例えば、河川水の $\delta^7\text{Li}$ 値の流量加重平均は $+23\%$ (Huh et al., 1998) であるが、上部地殻 ($\delta^7\text{Li} = +0\%$; Teng et al., 2004) と常温で接していた流体の値として説明できる。ここで、木曽御嶽火山南東麓の群発地震域の地下水で見つかった -5% という $\delta^7\text{Li}$ 値を説明するためには、この水と共存していた岩石の $\delta^7\text{Li}$ 値が -5% より低いことを意味する。しかし、下部地殻 ($\delta^7\text{Li} = +2.5\%$; Teng et al., 2008) も、マントル ($\delta^7\text{Li} = +3\%$; Elliott et al., 2006; Nishio et al., 2007; Tomascak et al., 2008) も、 $\delta^7\text{Li}$ 値は -5% より高い。また、実際に著者は日本全国の温泉や鉱泉を含めた地下水のLi同位体を調査しているが、 $\pm 0\%$ より低い $\delta^7\text{Li}$ 値が見つかる事は極めて希である。

III-3. 火山性流体

前節で述べたように、木曽御嶽火山南東麓の群発地震域の地下水試料の $\delta^7\text{Li}$ 値が系統的に低い事が明らかとなった。ここで、III-1節で述べたように、木曽御嶽山は火山であるため、群発地震域の低 $\delta^7\text{Li}$ 値の地下水の起源を議論する際に、火山性流体は避けては通れない。そこで、本節では、木曽御嶽山の火山性流体の同位体的特徴について述べる。この木曽御嶽火山周辺では、温泉や鉱泉といった湧水と共に湧き出るガスのヘリウム同位

体比 ($^3\text{He}/^4\text{He}$ 比) や二酸化炭素 (CO_2) の炭素同位体比 ($\delta^{13}\text{C}$ 値) が報告されている。その結果、試料採取地点が御嶽火口に近いほど、 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比が高く、 $\delta^{13}\text{C}$ 値が高い傾向が明らかとなった (Sano et al., 1984; Sano et al., 1998; Takahata et al., 2003)。この $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比と $\delta^{13}\text{C}$ 値の、火口からの距離との相関は、火口下のマグマ溜まりから距離が近いほど火山性端成分 (高 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比, 高 $\delta^{13}\text{C}$ 値) に卓越し、火道やマグマ溜まりから放出された火山性ガスが地殻内を移動するにつれて地殻成分 (低 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比, 低 $\delta^{13}\text{C}$ 値) の寄与を受けた結果と解釈されている (Sano et al., 1984; Sano et al., 1998; Takahata et al., 2003)。

一方、地下水試料の $^7\text{Li}/^6\text{Li}$ 比や $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比は、 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比等の揮発性成分と異なって火口からの距離との相関は見ることができない (Figs. 6a, 6b)。しかし、火口から 5 km 以内の試料は、火口から離れた非群発地震域試料よりも $\delta^7\text{Li}$ 値も $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比も低い傾向が見られる (Figs. 6a, 6b)。火口に最も近い湧水試料の $\delta^7\text{Li}$ 値や $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比は、木曽御嶽火山岩の値 ($\delta^7\text{Li} = +2.7\%$; $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr} = 0.706285$) とよく一致しており、表層水 (表層地下水) が高温火山岩 (マグマ) と接した火山性流体成分が、この湧水試料の中には他の試料より多く含まれるものとして説明できる。火山性流体が地表まで移動する際に、表層水等の他の端成分による希釈は避けることはできないが、火口に近い地下水試料に関しては、他の端成分の Li や Sr の影響を受けない程度に火山性流体端成分に富んでいると言える。これらの地下水や火山岩の分析結果から、木曽御嶽山の火山性流体の $\delta^7\text{Li}$ 値は +3%, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比は 0.706 程度と推定される。このように木曽御嶽火山の南東麓の群発地震域の地下水で見つかった +3% より有意に低い $\delta^7\text{Li}$ 値を、御嶽山の火山性流体で説明することはできない。

Ⅲ-4. 表層水混入時の Li 同位体組成への影響

I 章で述べたように、地表で採取する水試料は

表層水混入の影響は避けることができない。特に群発地震域の試料採取地点の 1 つである SRK サイト (Fig. 5a) は、 CO_2 を主にしたガスの湧出が観察できる川の浅瀬での湧水地点である。つまり、この SRK サイトで採取された試料においては、地下だけでなく、採取時にも河川水といった表層水が有意に混入している。Fig. 7a は、分析した全試料の $\delta^7\text{Li}$ 値と $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比でプロットした図である。Nishio et al. (2010) で分析した木曽御嶽火山周辺の地下水は、約 10 年間にわたって数年ごとに採取されたものである。そのうち、2000 年、2005 年、2007 年の調査で採取された SRK サイト試料の $\delta^7\text{Li}$ 値は、+1.1% から +4.9% とばらついているが、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比が高くなるにつれて、 $\delta^7\text{Li}$ 値が低くなる (Fig. 7a)。この SRK サイトの Li と Sr の同位体変動 (Fig. 7a) は、河川水 (表層水) と非表層水 (深部流体) の混合の結果として説明できる (Nishio et al., 2010)。2007 年度の採取の際には、ガス湧出地点 (SRK サイト) だけでなく、SRK サイトから 10 m ほど上流にいった地点の河川水試料 (SRK-river) を採取分析している。その結果は、2007 年の SRK サイトの $\delta^7\text{Li}$ 値が +1.1% であったのに対して、SRK サイト付近の河川水は +2.8% と高い $\delta^7\text{Li}$ 値であった (Nishio et al., 2010)。一方、2007 年の SRK サイトの $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ が 0.71777 であったのに対して、SRK サイト付近の河川水は 0.71516 と低い $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ であった (Nishio et al., 2010)。さらに、Li 濃度も、2007 年の SRK サイトの 50 $\mu\text{g}/\text{L}$ に対して、SRK サイト付近の河川水は 16 ppbLi と、SRK サイトを離れると Li 濃度が低くなっている。つまり、SRK サイトでは河川水の影響を受けた試料ほど、Li 濃度は低く、 $\delta^7\text{Li}$ 値は高く、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比は低くなっている。表層水のような低温でしか固相と反応していない水は、高温を経験した地殻深部流体に比べて、低い Li 濃度と高い $\delta^7\text{Li}$ 値を持つことが予測される。実際に、世界の河川水の流量加重平均の Li 濃度と $\delta^7\text{Li}$ 値は、それぞれ、1.5 ppbLi と +23% である (Huh et al., 1998)。ここで、前述の SRK サイト

Fig. 7 Correlations between $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio and $\delta^7\text{Li}$ value for all analyzed fluid samples (a) and for non-surface fluids (b). Non-surface fluid data were selected from water samples with Cl/Li ratios less than 1100 and Cl/Sr ratios less than 350, showing relatively little contamination by near-surface meteoric water (details are discussed in III-4). Fig. 7b also shows $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios and $\delta^7\text{Li}$ values of the Ontake volcanic rocks. The dotted line loops and the weak grey shades are as same as those in Fig. 6. These figures have been already presented in Nishio et al. (2010).

より 10 m 上流の場所で採取された河川水試料の Li 濃度 (16 ppbLi) と $\delta^7\text{Li}$ 値 (+2.8‰) は、河川水の平均値ではなく、深部流体端成分の影響を受けていると言える。一方、この木曽御嶽火山周辺では、非群発地震域にある AKG サイト (Fig. 4a) でも河川水試料を採取している。この AKG

サイトの $\delta^7\text{Li}$ 値は +12.6‰, Li 濃度は 0.6 ppbLi であり、河川水の平均値に近い。群発地震域の SRK サイト付近の河川では、高 Li 濃度・低 $\delta^7\text{Li}$ 値の地殻深部流体がいたる場所で湧出していると思われる。

次に表層水端成分の混入によって、深部流体端成分が希釈されていく際の Li 同位体組成への影響を定量的に議論する。 $\delta^7\text{Li}$ 値を Cl/Li 比でプロットした Fig. 8a において、2 成分混合の結果となるデータは直線上に分布する。ここで、群発地震域の試料である SRK サイトや KYK サイト (Fig. 5a) の長期変動データは直線上に分布することから、2 成分混合の結果で説明ができる。2 成分のうち、高 $\delta^7\text{Li}$ ・高 Cl/Li の端成分は、低温しか経験したことのない表層水の典型的な特徴であることから、表層水端成分と考えられる。一方、もう一つの低 $\delta^7\text{Li}$ ・低 Cl/Li の端成分が非表層水 (深部流体) 端成分であろう。さらに、SRK サイト試料データから、 Cl/Li 重量比が 1100 以下の試料では、 Cl/Li 比に関わらず $\delta^7\text{Li}$ はほぼ同じであることから (Fig. 8a), Nishio et al. (2010) では、 Cl/Li 重量比が 1100 以下の試料の $\delta^7\text{Li}$ 値には表層水の影響はなく、非表層水 (深部流体) の $\delta^7\text{Li}$ 値と考えた。同様に、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}\text{-Cl}/\text{Sr}$ データ (Fig. 8b) から、Nishio et al. (2010) では、 Cl/Sr 重量比で 350 以下の試料の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比には表層水の影響はなく非表層水 (深部流体) の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比であると考えた。

III-5. Li と Sr の同位体組成から見た群発地震に 関与する地殻流体の起源

Fig. 7a は、分析した全試料の $\delta^7\text{Li}$ 値と $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比でプロットした図であるが、これらのデータは表層水混入によって有意に影響を受けたデータも含まれる。そこで、Nishio et al. (2010) では、 Cl/Li 重量比が 1100 以下で Cl/Sr 比が 350 以下の試料の $\delta^7\text{Li}$ 値と $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比を、非表層水 (深部流体) の値としてプロットした (Fig. 7b)。この Fig. 7b を見ると、群発地震域試料 (点線で囲んだ領域) と非群発地震域 (ハッチの領域) で

Fig. 8 Correlations between Cl/Li weight ratio and $\delta^7\text{Li}$ value (a) and between Cl/Sr weight ratio and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio (b). Fig. 8a' is an enlargement of Fig. 8a. Different linear Cl/Li- $\delta^7\text{Li}$ correlations were observed in samples KYK and SRK (a). Different linear Cl/Sr- $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ correlations were also observed in samples KYK, SRK, DKS, KKH-A, NGG-C, and YY (b). Nishio et al. (2010) has inferred that these reflect binary component mixing between near-surface meteoric water (high Cl/Li, high Cl/Sr) and non-surface fluid (low Cl/Li, low Cl/Sr). These figures have been already presented in Nishio et al. (2010).

$\delta^7\text{Li}$ - $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 図における分布が大きく異なることが分かる。非群発地震域は、Ⅲ-3節で述べたような火山性流体 ($\delta^7\text{Li}=+3\%$; $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}=0.706$) が上部地殻内を移動する際に高 $\delta^7\text{Li}$ ・高 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 地殻成分の影響を受けることで説明でき

る (Fig. 7b)。

一方、群発地震域の地下水試料は、このような火山性流体が上部地殻内を移動するモデルでは、得られたLiとSrの同位体組成は説明できない (Fig. 7b)。火山性流体と同様に0.706と低い $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比でありながら、 -5% と低い $\delta^7\text{Li}$ 値である端成分が、群発地震域試料を説明するには必要となる (Fig. 7b)。マントルの $\delta^7\text{Li}$ 値は $+3\%$ (Elliott et al., 2006; Nishio et al., 2007; Tomaschak et al., 2008) である。そして、地殻の $\delta^7\text{Li}$ の平均値は、上部、中部、下部の順に、 $\pm 0\%$ 、 $+4\%$ 、 $+2.5\%$ である (Teng et al., 2008)。Ⅱ章で述べたように、固液共存系では、液相は固相より $\delta^7\text{Li}$ 値が高い (Fig. 3)。よって、マントル及び地殻の上部、中部、下部と地殻流体がいかなる温度で反応しても、 $\pm 0\%$ より有意に低い $\delta^7\text{Li}$ 値の流体を作ることはできない。流体試料の低い $\delta^7\text{Li}$ 値を説明できる説として、(1) 地殻内のLi同位体組成の不均質性、(2) 拡散による ^6Li の選択的移動、(3) 常温に近い温度で流体から固相 (断層粘土等) に取り込まれたLiが高温流体の通過等で再溶出、(4) 沈み込んだ海洋地殻 (エクログait) からの高温脱水、などが考えられる。1から3のモデルでは、低い $\delta^7\text{Li}$ 値の水を長期にわたって供給し続けることは難しい。そこで、著者は、これらの説の中で (4) ではないかと考えている。実際に、エクログait試料の中には、 -11% もの低い $\delta^7\text{Li}$ 値が見つかった (Zack et al., 2003)。加えて、木曾御嶽火山南東麓の群発地震域下の地殻下部に深で発生している深部低周波地震 (名古屋大学大学院環境学研究科, 2006) は、群発地震に関与する流体が、マントルと地殻の境界付近を通じて注入されている可能性を示唆する (Fig. 9)。ここで、前弧のようにマントルが比較的低温であるなら、スラブ起源流体は水として上昇するだろう (Fig. 9)。一方、マントルが十分に高温でなら、スラブ起源流体は生成したメルトに含まれる形で上昇する。そして、マントル-下部地殻の境界付近で圧力低下に伴ってメルトから脱水することで、深部マグマ性流体として下部地

Fig. 9 A schematic illustration of non-surface fluid circulation beneath studied region. Nishio et al. (2010) has deduced that the fluid-X associated with the earthquake swarms is not simple volcanic fluid, but is rather influenced from the lower crust. Nishio et al. (2010) has speculated that this fluid-X associated with the earthquake swarms may be originated from aqueous fluids derived from subducted slab and/or deep magma. This figure has been already presented in Nishio et al. (2010).

殻に注入されているのかもしれない (Fig. 9)。このスラブ起源流体の上昇経路を含めて、木曽御嶽火山南東麓で起こる群発地震に関与している地殻流体の起源の詳細は不明のままであるが、少なくとも他の非群発地震域のような上部地殻内でのマグマと表層水の反応で生じた火山性流体ではない (Nishio et al., 2010)。今後、日本各地の地下水のLi同位体分布を明らかにしていくことで、低 $\delta^7\text{Li}$ 値の地下水の起源が明らかになるであろう。

Ⅳ. 内陸大地震前の地殻深部流体の挙動の解明にむけて

Ⅲ-1章で述べたように、木曽御嶽火山南東部の群発地震が開始した8年後の1984年9月に長野県西部地震 (M 6.8) が起こっている。また、木曽御嶽火山の火山活動においても、群発地震が開始した3年後の1979年に、有史以来では初噴火となる水蒸気爆発を起こした後、1991年、2007年に小規模な噴気活動が起きている。このように木曽御嶽火山の南東麓の群発地震活動に関与した地殻深部流体は、内陸大地震や木曽御嶽火山の活動にも影響を及ぼした可能性が考えられる。このような観点から、地下水のLi同位体を

含めた地球化学データの時間変化情報から、地震や火山噴火といった地殻変動に伴う地殻深部流体の挙動に関する知見が得られることが期待される。

下部地殻は上部地殻に比べて (1) 地震波の反射面が多く層状に分布、(2) 低比抵抗であることから、流体溜まりが下部地殻には偏在している可能性が指摘されている (Gough, 1986; Jones, 1987)。下部地殻に偏在する流体溜まりに関して、シリカ成分に富む地殻深部流体が下部地殻内を上昇する際に、400–500°Cまで温度が低下すると、シリカ鉱物が沈殿することによって形成される難透水層が流体のキャップロック (帽岩) として機能するモデルも提案されている (Stanley et al., 1990)。もし、このキャップロックが何らかの理由で破壊すれば、その下に貯留されていた高圧水が、比較的ドライな環境下でひずみを貯めていた上部地殻に浸透して、断層面の有効法線応力を下げるであろう (Fig. 10)。この『キャップロックの破れに伴う地殻深部流体の水漏れ』で、木曽御嶽火山の南東麓で1976年から現在まで続く群発地震と、群発地震開始の8年後の1984年のM6.8の長野県西部地震が説明できるかもしれない。木曽御嶽火山の南東麓以外においても、内陸大地震の前に群発地震が起こる場合がある。例えば、1995神戸地震の2ヶ月前に猪名川町で群発地震が発生している (Yoshida, 1995)。また、2000年の鳥取県西部地震は震源域周辺で1989年以降に群発地震が発生している。このような内陸大地震発生も『キャップロックの破れに伴う地殻深部流体の水漏れ』で説明できるのかもしれない (Umeda et al., 2001)。このような内陸大地震の準備段階として『キャップロックの破れに伴う地殻深部流体の水漏れ』については、三次元地震波トモグラフィー・電気比抵抗構造・GPSによる高感度測位といった地球物理学的観測に加えて、本論文で紹介したような湧水や井戸水といった地表で採取できる地下水試料を用いた地球化学的観測を加えた総合観測によって、今後詳細が明らかになっていくことが期待される (Fig. 11)。本論

(a) before leak of deep-seated fluid

(b) after leak of deep-seated fluid

Fig. 10 Schematic illustrations of deep-seated fluid behaviors before leak (a) and after leak (b). It is speculated that the deep-seated fluid upwelling (leaking) caused by breach of the less-permeable cap triggered the initiation of the large earthquake.

文で述べてきたように、地殻深部流体の高感度指標であるLi同位体ツールは、『地殻深部流体の水漏れ（上昇）』を検出できる可能性を持つ。そして、この地殻深部流体の挙動を明らかにするための地球化学観測においては、できるだけ表層水の影響を受けずに深部流体の情報を手に入れる必要がある。ここで、断層は深部から表層への『みず道』であり、断層付近の湧水・井戸水は地殻深部流体の情報をさぐる上で重要な地下水試料である (Fig. 12)。大地震発生が危惧される断層付近の地下水のLi同位体組成等の地球化学観測を前述

Geochemical Observation

Laboratory Experiment, Modeling Research

Fig. 11 Schematic illustration of comprehensive study for geofluid behavior. It is composed of geochemical observation, geophysical observation, laboratory experiment, and modeling.

Fig. 12 Advantage of Li isotopic index as a tool for geofluid research. Li isotopic data of groundwater samples provide us information about deep-crustal fluid without contamination from surface water and/or shallow-crustal fluid, while other geochemical data are influenced significantly by contamination from surface water and/or shallow-crustal fluid.

の地球物理観測と併せて行う総合観測によって、地殻深部流体の動きが把握できれば、特に大地震発生が致命的被害を及ぼす原子力発電所の運転に関する判断材料となるかもしれない。

謝 辞

本論文は、2012年に神奈川県温泉地学研究所で行われた「2012年度日本水文科学会学術大会」の際に行われたシンポジウム「地殻流体研究に果たす水文科学の役割」において発表した内容をまとめたものである。発表の機会を与えてくださったコンピーナー、鈴木秀和博士・安原正也博士・風早康平博士と日本水文科学会に感謝します。また、本論文に関する2名の匿名査読者と安原正也博士の有益なコメントに感謝します。

付 録

地殻および最上部マントルに存在する流体を総称して『地殻流体』と呼ぶ。この定義に従えば、地殻流体には H_2O だけではなく、 CO_2 やシリケートメルト（マグマ）も含まれる。以下に地殻流体のさらに詳細な分類について述べる。

A. 表層水：

降雨後に、地下深部に移動して常温より有意に高温を経験していない、浅部のみを移動してきた水を『表層水』と呼ぶ。

B. 非表層水（深部流体）：

表層水に対して、深部まで移動して高温を経験した水は、『非表層水（深部流体）』と呼ぶ。

● 非表層水（深部流体）の細分類

B1. 400°C以下しか経験していない流体

本論文では該当する流体に対して用語を用いていない。

B2. 400°C以上を経験している流体

B2a. 火山性流体：

主に上部地殻の場合において、マグマが上昇する過程の減圧によって直接マグマから脱ガス・脱水した流体や、表層水が深部に移動してマグマとの接触反応により高温を経験した水を区別せずに総じて『火山性流体』と呼ぶ。

B2b. 地殻深部流体：

現在、下部地殻に存在する流体や、下部地殻を経由してきた流体の総称。

● 地殻深部流体の細分類

B2b-1. 深部マグマ性流体：

沈み込むスラブから脱水した水は、融点以上の温度場では周辺のマントル橄欖岩等と反応することで含水メルトを生成する。この含水メルトはその浮力によって上昇する際の減圧によって再び脱水する。主に下部地殻・上部マントルの場合において脱水した水を、特に『深部マグマ性流体』と呼ぶ。

B2b-2. スラブ起源流体：

沈み込むスラブから脱水した水は、前弧域のように融点以下の温度場ではメルトを生成しない。このように含水メルトを経験せずに地表まで上昇してきた水を特に『スラブ起源流体』と呼ぶ。

参考文献

- 五十嵐丈二 (2006)：地殻流体の科学, <http://sakura.canvas.ne.jp/spr/george-i/research/fluid.html>, 2013.2.4 参照。
- 名古屋大学大学院環境学研究科 (2006)：第167回地震予知連絡会資料。
- 西尾嘉朗 (2010)：リチウム同位体が拓く地殻流体科学. 地質ニュース, **670**, 13–21.
- Burton, K. W., Vigier, N. (2012): Lithium Isotopes as Tracers in Marine and Terrestrial Environments. In: Baskaran, M. (Ed.), *Handbook of Environmental Isotope Geo-*

- chemistry*. Springer Berlin Heidelberg, pp. 41–59.
- Chan, L.-H., Edmond, J. M., Thompson, G., Gillis, K. (1992): Lithium isotopic composition of submarine basalts: implications for lithium cycle in the oceans. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **108**, 151–160.
- Chan, L.-H., Kastner, M. (2000): Lithium isotopic compositions of pore fluids and sediments in the Costa Rica subduction zone: implications for fluid processes and sediment contribution to the arc volcanoes. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **183**, 275–290.
- Chan, L.-H., Leeman, W. P., You, C.-F. (1999): Lithium isotopic composition of Central American Volcanic Arc lavas: implications for modification of subarc mantle by slab-derived fluids. *Chem. Geol.*, **160**, 255–280.
- Chan, L. H., Gieskes, J. M., You, C. F., Edmond, J. M. (1994): Lithium isotope geochemistry of sediments and hydrothermal fluids of the Gwauymas Basin, Gulf of California. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **58**, 4443–4454.
- Elliott, T., Jeffcoate, A., Bouman, C. (2004): The terrestrial Li isotope cycle: light-weight constraints on mantle convection. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **220**, 231–245.
- Elliott, T., Thomas, A., Jeffcoate, A., Niu, Y. (2006): Lithium isotope evidence for subduction-enriched mantle in the source of mid-ocean-ridge basalts. *Nature*, **443**, 565–568.
- Gough, D. I. (1986): Seismic reflectors, conductivity, water and stress in the continental crust. *Nature*, **323**, 143–144.
- Huh, Y., Chan, L.-H., Edmond, J. M. (2001): Lithium isotopes as a probe of weathering processes: Orinoco River. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **194**, 189–199.
- Huh, Y., Chan, L.-H., Zhang, L., Edmond, J. M. (1998): Lithium and its isotopes in major world rivers: implications for weathering and the oceanic budget. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **62**, 2039–2051.
- James, R. H., Allen, D. E., Seyfried, W. E. (2003): An experimental study of alteration of oceanic crust and terrigenous sediments at moderate temperatures (51 to 350 degrees C): Insights as to chemical processes in near-shore ridge-flank hydrothermal systems. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **67**, 681–691.
- James, R. H., Elderfield, H., Palmer, M. R. (1995): The Chemistry of Hydrothermal Fluids from the Broken Spur Site, 29 ° N Mid-Atlantic Ridge. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **59**, 651–659.
- Jones, A. G. (1987): MT and reflection—an essential combination. *Geophysical Journal of the Royal Astronomical Society*, **89**, 7–17.
- Kasaya, T., Oshiman, N. (2004): Lateral inhomogeneity deduced from 3-D magnetotelluric modeling around the hypocentral area of the 1984 Western Nagano Prefecture earthquake, central Japan. *Earth Planets and Space*, **56**, 547–552.
- Kasaya, T., Oshiman, N., Sumitomo, N., Uyesshima, M., Iio, Y., Uehara, D. (2002): Resistivity structure around the hypocentral area of the 1984 Western Nagano Prefecture earthquake in central Japan. *Earth Planets and Space*, **54**, 107–118.
- Kisakurek, B., James, R. H., Harris, N. B. W. (2005): Li and delta Li-7 in Himalayan rivers: Proxies for silicate weathering? *Earth Planet. Sci. Lett.*, **237**, 387–401.
- Masuda, H., Sakai, H., Chiba, H., Tsurumaki, M. (1985): Geochemical Characteristics of Na-Ca-Cl-HCO₃ Type Waters in Arima and Its Vicinity in the Western Kinki District, Japan. *Geochem. J.*, **19**, 149–162.

- Millot, R., Negrel, P. (2007): Multi-isotopic tracing ($\delta^7\text{Li}$, $\delta^{11}\text{B}$, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) and chemical geothermometry: evidence from hydro-geothermal systems in France. *Chem. Geol.*, **244**, 664–678.
- Millot, R., Scaillet, B., Sanjuan, B. (2010): Lithium isotopes in island arc geothermal systems: Guadeloupe, Martinique (French West Indies) and experimental approach. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **74**, 1852–1871.
- Nakamichi, H., Kumagai, H., Nakano, M., Okubo, M., Kimata, F., Ito, Y., Obara, K. (2009): Source mechanism of a very-long-period event at Mt Ontake, central Japan: Response of a hydrothermal system to magma intrusion beneath the summit. *J. Volcanol. Geotherm. Res.*, **187**, 167–177.
- Nishio, Y., Nakai, S. (2002): Accurate and precise lithium isotopic determinations of igneous rock samples using multi-collector inductively coupled plasma mass spectrometry. *Anal. Chim. Acta*, **456**, 271–281.
- Nishio, Y., Nakai, S., Kogiso, T., Barszczus, H. G. (2005): Lithium, strontium, and neodymium isotopic compositions of oceanic island basalts in the Polynesian region: constraints on a Polynesian HIMU origin. *Geochem. J.*, **39**, 91–103.
- Nishio, Y., Nakai, S. I., Ishii, T., Sano, Y. (2007): Isotope systematics of Li, Sr, Nd, and volatiles in Indian Ocean MORBs of the Rodrigues Triple Junction: Constraints on the origin of the DUPAL anomaly. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **71**, 745–759.
- Nishio, Y., Okamura, K., Tanimizu, M., Ishikawa, T., Sano, Y. (2010): Lithium and strontium isotopic systematics of waters around Ontake volcano, Japan: Implications for deep-seated fluids and earthquake swarms. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **297**, 567–576.
- Oi, T., Nomura, M., Musashi, M., Osaka, T., Okamoto, M., Kakihana, H. (1989): Boron isotopic compositions of some boron minerals. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **53**, 3189–3195.
- Sano, Y., Nakamura, Y., Wakita, H., Urave, A., Tominaga, T. (1984): Helium-3 emission related to volcanic activity. *Science*, **224**, 150–151.
- Sano, Y., Nishio, Y., Sasaki, S., Gamo, T., Nagao, K. (1998): Helium and carbon isotope systematics at Ontake volcano, Japan. *J. Geophys. Res.*, **103**, 23863–23873.
- Scholz, F., Hensen, C., De Lange, G. J., Haeckel, M., Liebetrau, V., Meixner, A., Reitz, A., Romer, R. L. (2010): Lithium isotope geochemistry of marine pore waters—Insights from cold seep fluids. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **74**, 3459–3475.
- Scholz, F., Hensen, C., Reitz, A., Romer, R. L., Liebetrau, V., Meixner, A., Weise, S. M., Haeckel, M. (2009): Isotopic evidence $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$, $\delta^7\text{Li}$ for alteration of the oceanic crust at deep-rooted mud volcanoes in the Gulf of Cadiz, NE Atlantic Ocean. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **73**, 5444–5459.
- Stanley, W. D., Mooney, W. D., Fuis, G. S. (1990): Deep Crustal Structure of the Cascade Range and Surrounding Regions from Seismic Refraction and Magnetotelluric Data. *Journal of Geophysical Research-Solid Earth and Planets*, **95**, 19419–19438.
- Takahata, N., Yokochi, R., Nishio, Y., Sano, Y. (2003): Volatile element isotope systematics at Ontake volcano, Japan. *Geochem. J.*, **37**, 299–310.
- Teng, F.-Z., Rudnick, R. L., McDonough, W. F., Gao, S., Tomascak, P. B., Liu, Y. (2008): Lithium isotopic composition and concentration of the deep continental crust. *Chem. Geol.*, **255**, 47–59.

- Teng, F. Z., McDonough, W. F., Rudnick, R. L., Dalpe, C., Tomascak, P. B., Chappell, B. W., Gao, S. (2004): Lithium isotopic composition and concentration of the upper continental crust. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **68**, 4167–4178.
- Tomascak, P. B. (2004): Developments in the understanding and application of lithium isotopes in the Earth and planetary sciences. In: Johnson, C. M., Beard, B. A., Albarede, F. (Eds.), *Geochemistry of Non-Traditional Stable Isotopes*. The Mineralogical Society of America, Washington, DC, pp. 153–195.
- Tomascak, P. B., Carlson, R. W., Shirey, S. B. (1999): Accurate and precise determination of Li isotopic compositions by multi-collector sector ICP-MS. *Chem. Geol.*, **158**, 145–154.
- Tomascak, P. B., Langmuir, C. H., le Roux, P. J., Shirey, S. B. (2008): Lithium isotopes in global mid-ocean ridge basalts. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **72**, 1626–1637.
- Umeda, Y., Matsumura, K., Shibutani, T., Ohmi, S., Katao, H. (2001): The 2000 Western Tottori Earthquake—Precursory Swarm Earthquake, Main Shock and Aftershock—. *Japan Society for Natural Disaster Science*, **19-4**, 501–512.
- Vigier, N., Gislason, S. R., Burton, K. W., Milot, R., Mokadem, F. (2009): The relationship between riverine lithium isotope composition and silicate weathering rates in Iceland. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **287**, 434–441.
- Wunder, B., Meixner, A., Romer, R. L., Heinrich, W. (2006): Temperature-dependent isotopic fractionation of lithium between clinopyroxene and high-pressure hydrous fluids. *Contrib. Mineral. Petrol.*, **151**, 112–120.
- Yoshida, A. (1995): Change of seismic activities surrounding the focal region of the Hyogo-ken Nanbu Earthquake before and after its occurrence and seismotectonics in the Kinki district. *Chishitsu News*, **490**, 26–32.
- You, C.-F., Castillo, P. R., Gieskes, J. M., Chan, L. H., Spivack, A. J. (1996): Trace element behavior in hydrothermal experiments: Implications for fluid processes at shallow depths in subduction zones. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **140**, 41–52.
- You, C. F., Chan, L. H., Spivack, A. J., Gieskes, J. M. (1995): Lithium, boron, and their isotopes in sediments and pore waters of Ocean Drilling Program Site-808, Nankai Trough—implications for fluid expulsion in accretionary prisms. *Geology*, **23**, 37–40.
- Zack, T., Tomascak, P. B., Rudnick, R. L., Dalpe, C., McDonough, W. F. (2003): Extremely light Li in orogenic eclogites: The role of isotope fractionation during dehydration in subducted oceanic crust. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **208**, 279–290.

(原稿受付：2013年2月4日)

(原稿受理：2013年7月1日)

この論文に対する「討論」を2014年5月31日まで受け付けます。

リチウム同位体による地殻流体研究の新展開 —地殻活動の全貌解明に向けて—

西尾 嘉朗

要 旨

地殻深部流体は、地震発生や火山噴火といった地殻活動において重要な役割を担う。しかし、多くの地球化学指標は表層水の影響を大きく受けやすいため、これまで深部流体の物質科学的研究は遅れていた。比較的新しい研究ツールであるリチウム (Li) の同位体指標は、この地殻深部流体に関する非常に強力な研究ツールであることが最近の研究から明らかになりつつある。近年、地下水の Li 同位体データを基に、木曽御嶽火山の南東麓で現在も続く群発地震に関与する流体が非火山性の深部流体であることが明らかとなった。内陸大地震発生に大きく関わる間欠的な深部流体の上昇は、下部地殻の深部流体だまりを覆う難透水層 (帽岩) の破れによるものかもしれない。リチウム同位体指標によって、この深部流体が上昇する『水漏れ現象』に関してより高度な知見を我々にもたらしてくれる事が期待される。

キーワード：リチウム，安定同位体，地震，地下水