

昭和56年 1 月

特 別 講 演

水素および酸素同位体比からみた  
温泉水の起源

秋田大学 松葉谷 治

はじめに

温泉水や火山噴気などの起源を水の水素および酸素同位体比から推定する試みは1950年代の後半から始まり<sup>1)</sup>、今日まで多くの研究がなされている。日本でも多くの研究が行われているが、それらの紹介はまた別の機会にゆずり、本講演では私が岡山大学温泉研究所に在職中に酒井均教授と共同で行った研究をまとめて紹介する。なお、我々の研究は地質調査所の佐々木昭博士、富山大学の日下部実博士、大阪市立大学の鶴巻道二博士をはじめとする多くの方々の協力によって行われたものである。

1. 日本の温泉水の水素および酸素同位体比

水の水素あるいは酸素同位体比は同位体比用質量分析計で測定され<sup>2)</sup>、次式に示すようにある標準試料と比較した時の偏差として千分率（パーミル，‰）で表わされる。

$$\delta X = \frac{R_x - R_{ST}}{R_{ST}} \times 1000, \text{‰}$$

ここで  $\delta X$  は  $\delta D$  または  $\delta^{18}O$  で  $R$  は  $D/H$  または  $^{18}O/^{16}O$  である。X と ST はそれぞれ試料と標準試料を意味する。標準試料としては標準平均海水 (SMOW) が用いられる。

日本各地の約300の温泉、鉱泉の  $\delta D$  および  $\delta^{18}O$  の関係を図1に示す<sup>3-8)</sup>\*。これらの測定された温泉は日本全域を表わすように選ばれたものではなく、まだ測定されていない地域もたくさん残っている。また、同一地域内で測定した泉源の数も様々であり、この測定点の数が日本の温泉の分布度を表わしているわけではない。それにもかかわらず、図1は日本の温泉のおおよその傾向を表わしていると思われる。

図1において、海水は  $\delta D$  および  $\delta^{18}O$  が 0 ‰ を中心とした狭い範囲に入る。また、日本の天水（降水起源の水）は Craig<sup>9)</sup> により指摘された世界の天水の平均的な関係を表わす式(1)と日本海側の冬季の降水の平均的な関係を表わす式(2)の間に分布し、日本海側では

\* 文献3, 4, および5中の測定値は、SMOW 標準への較正值の変更のため  $\delta D$  で  $-2.0\text{‰}$ ,  $\delta^{18}O$  で  $-0.2\text{‰}$  の変更がなされている。

$$\delta D = 8 \delta^{18}O + 10 \quad (1)$$

$$\delta D = 8 \delta^{18}O + 26 \quad (2)$$

式(2)に近く太平洋側では式(1)に近くなる。また、北に行くほど図の左下に分布し南に行くほど右上に分布する。この天水のおおよその分布範囲を横破線で表わす。<sup>10)</sup>

温泉水の結果をみると大部分は天水の範囲と重なっているが、それから外れるものとして2つの傾向がみられる。1つは天水の領域と海水を結ぶ線に沿って分布するもので、他はそれよりも小さい  $\delta D/\delta^{18}O$  の傾きで右上方に分布するものである。我々は、この  $\delta D$  と  $\delta^{18}O$  の関係をはじめとして、溶存硫酸イオンの硫黄および酸素同位体比、溶存化学成分の組成、湧出母岩あるいは湧出地域の地質などにに基づき、日本の温泉、鉱泉をその成因ならびに物質の起源という観点から

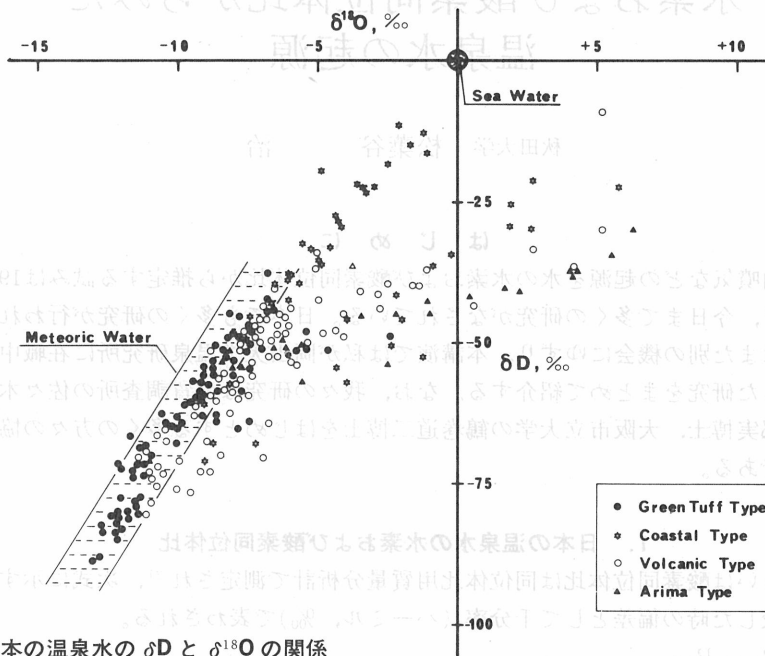


図1. 日本の温泉水の  $\delta D$  と  $\delta^{18}O$  の関係

グリーンタフ型、海岸温泉型、火山性型、および有馬型の4型に分類し、水の起源として天水、海水、化石海水（地層中に残っている古い時代の海水）、あるいはマグマ水などが考えられると推定した<sup>3-8,11-15)</sup>。以下にこの4型について水の起源を主として説明する。

## 2. グリーンタフ型

グリーンタフ型はグリーンタフ累層あるいは類似の第三紀の海成の火山性堆積累層を湧出母岩とする温泉で、温度は一般にそう高くない。溶存成分は Na, Ca, - Cl, SO<sub>4</sub>, HCO<sub>3</sub> 型で Cl-濃度は 3 g/l 以下のものが多い。水の  $\delta D$  および  $\delta^{18}O$  はその地域の天水の値とほぼ等しく、また溶存硫酸イオンの  $\delta^{34}S$  および  $\delta^{18}O$  は海水中のものと良く似ている。これらのことからグリーンタフ型の温泉は地表から海成堆積層中に浸透していった天水がその地温で温められるとともに、その化学成分を溶出してきたものと考えられる。

日本海側のグリーンタフ型温泉について  $\delta D$  および  $\delta^{18}O$  を天水の値と比較すると、図2に示すように温泉水のほうが天水よりもやや右側に分布する。これは温泉水とケイ酸塩鉱物あるいは

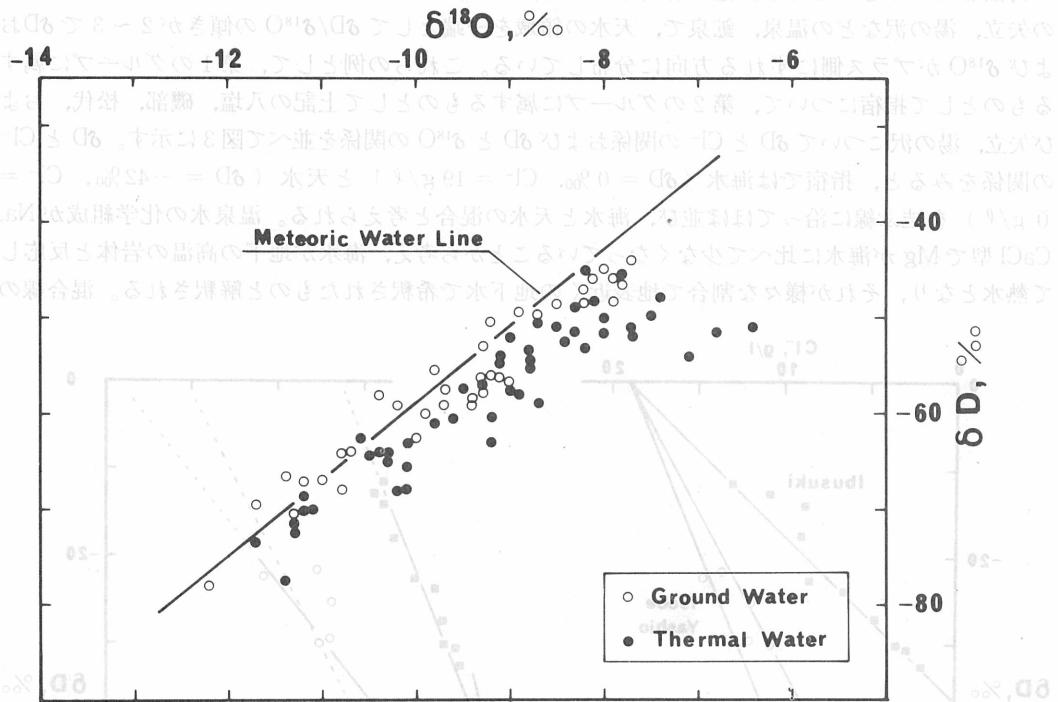


図2. 日本海側のグリーンタフ型温泉水ならびに天水の  $\delta D$  および  $\delta^{18}O$  の関係

炭酸塩鉱物との間で酸素同位体交換が若干起っていることによる。これによる  $\delta^{18}O$  のずれは 1 %程度である。しかし、新潟県瀬波温泉のようにやや大きいずれを示すものもある。瀬波温泉の場合は温泉水が比較的高温の花崗岩質の岩体と接触しているのではないかと推定され、むしろ後述の火山性型と似たものと考えられる。また、大分県挾間町の一群の温泉、鉱泉あるいは北海道の渡島半島東側の大船、銀婚湯、二股などでも大きな  $\delta^{18}O$  のずれがみられ、最高 6%ほどのずれである。これは恐らく炭酸塩鉱物に富んだ地層中に比較的長く滞留していた結果、炭酸塩鉱物との酸素同位体交換が進んだことによると考えられる。これらの温泉水が溶存炭酸物質に富んでいることもこの考えを支えていると思われる。

グリーンタフ型温泉の化学組成は最近急速に発展してきた岩石-水相互作用の概念でかなり良く説明できる。低温での一例であるが、青函トンネルの抗内水に含まれる  $Cl^-$  濃度が約  $3g/l$  の層間水の場合、その化学組成はモンモリロナイト系の粘土鉱物とのイオン交換ならびに石膏および方解石の溶解平衡でうまく説明することができる<sup>16)</sup>。

グリーンタフ累層から湧出する温泉ではないが、 $\delta D$  および  $\delta^{18}O$  がその地域の天水とほぼ同じ温泉が花崗岩地帯などにみられる。これは成因的にはグリーンタフ型には属さないが、水の起源という点では天水が地下の地温で温められたものでありグリーンタフ型と同様に考えて良いであろう。図1ではこの種のものもグリーンタフ型と同じ印で示してある。

**3. 海岸温泉型**

海岸温泉型に属するものは図1にみられるように2つのはっきり異なるグループに分けられる。一つは天水と海水を結ぶ線に沿って分布するもので、伊豆半島、紀伊半島、薩摩半島などの海岸

に湧出しているものである。他は群馬県の八塩、磯部、長野県の松代、あるいは秋田、青森県境の矢立、湯の沢などの温泉、鉱泉で、天水の領域を一端として  $\delta D/\delta^{18}O$  の傾きが2~3で  $\delta D$  および  $\delta^{18}O$  がプラス側にずれる方向に分布している。これらの例として、第1のグループに属するものとして指宿について、第2のグループに属するものとして上記の八塩、磯部、松代、および矢立、湯の沢について  $\delta D$  と  $Cl^-$  の関係および  $\delta D$  と  $\delta^{18}O$  の関係を並べて図3に示す。 $\delta D$  と  $Cl^-$  の関係を見ると、指宿では海水 ( $\delta D = 0\%$ ,  $Cl^- = 19\text{ g/l}$ ) と天水 ( $\delta D = -42\%$ ,  $Cl^- = 0\text{ g/l}$ ) を結ぶ線に沿ってほぼ並び、海水と天水の混合と考えられる。温泉水の化学組成がNa, CaCl型でMgが海水に比べて少なくなっていることから考え、海水が地下の高温の岩体と反応して熱水となり、それが様々な割合で地表近くの地下水で希釈されたものと解釈される。混合線の

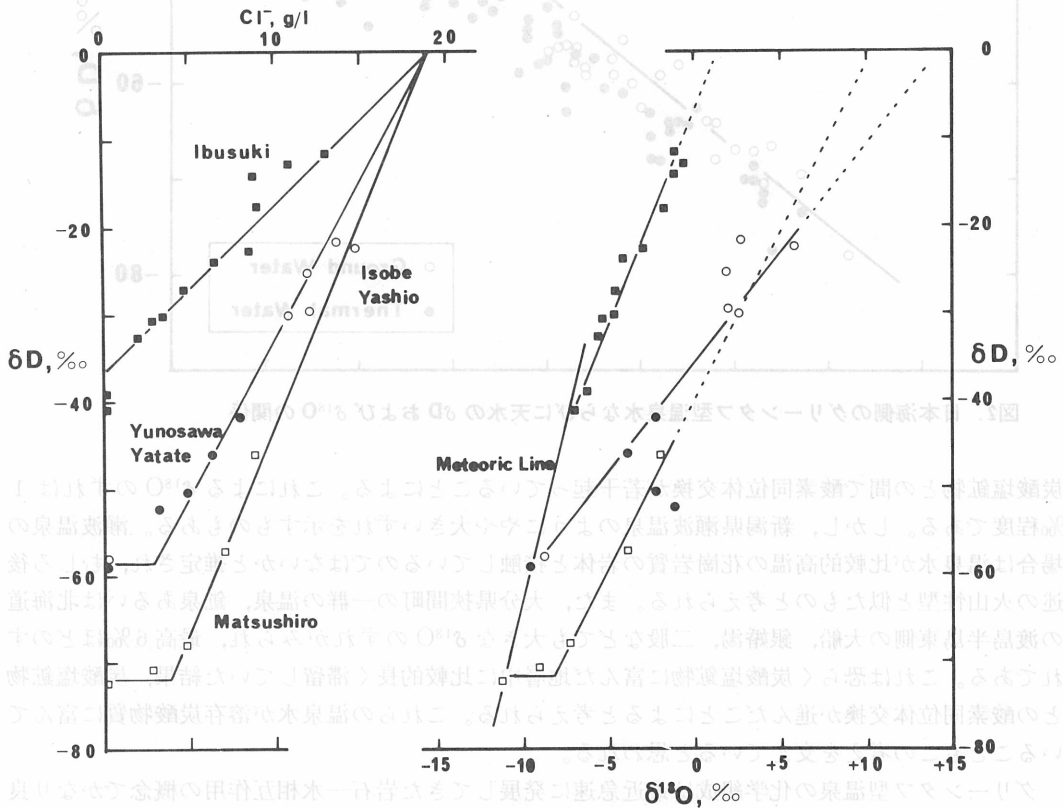


図3. 海岸温泉型の温泉、鉱泉の  $\delta D$  と  $Cl^-$  および  $\delta D$  と  $\delta^{18}O$  の関係

一端が天水そのものよりも  $\delta D$  が5%ほどプラスにずれたところになっているが、この理由は定ではない。池田湖の水 ( $\delta D = -24\%$ ) が地下水中に混入している可能性が考えられる。

一方、八塩、磯部などでも海水と天水の混合関係がみられる。しかし、八塩、磯部、松代、あるいは矢立、湯の沢はいずれも海岸よりもはるかに内陸に位置し、現在の海水が混入しているとは考えられない。したがって、これらは地層中にとり残された古い時代、恐らく新第三紀の海水を含んでいるものと推定される。これらの場合  $Cl^- = 0$  の天水との混合を考えるよりも  $Cl^- = 3 \sim 5\text{ g/l}$  の天水起源の水との混合を考えたほうが測定結果をうまく説明できる。このような  $Cl^-$  濃度の天水起源の水は青函トンネルの坑内水にみられる層間水<sup>16)</sup>と同質のものと考えられる。松代の場合は  $\delta^{18}O$  もプラス側に3%ほどずれており挾間町の温泉、鉱泉と同質のものではないかと解

積される。

次に  $\delta D$  と  $\delta^{18}O$  の関係を見ると、指宿の場合は海水の  $\delta^{18}O$  が 2%ほどプラス側にずれており、ケイ酸塩鉱物あるいは炭酸塩鉱物と若干酸素同位体交換を起したものと推定される。ところが、化石海水の場合混合の関係を  $\delta D = 0\%$  まで外挿すると  $\delta^{18}O$  は +10~+15% となり、海水よりもはるかに高い値になる。海成の炭酸塩鉱物あるいはケイ酸塩鉱物と海水が 100~150°C で再び同位体交換平衡に達すると、このような高い  $\delta^{18}O$  値になる。恐らく炭酸塩鉱物との反応が大きく寄与しているものと推定される。

秋田県森岳温泉は化石海水を含むものと考えられ、 $\delta D$  と  $Cl^-$  の関係はそれを示している。ところが  $\delta D$  と  $\delta^{18}O$  の関係は指宿の場合と似ており、八塩、磯部などでみられた  $\delta^{18}O$  のずれはほとんど起っていない。この差は海水が貯留されていた地層中に炭酸塩鉱物が多量に含まれていたかどうかによるのではないかと考えられる。

#### 4. 火山性型

火山性温泉は第四紀の火山活動にともなう温泉で、 $\delta D$  および  $\delta^{18}O$  はその地域の天水よりもわずかにプラス側にずれているものが多いが、なかには大きくずれているものもある。

熱水の  $\delta D$  および  $\delta^{18}O$  からその起源を推定する研究が始められた頃、Craig<sup>17)</sup> は地球深部よりでてくる熱水がある固有の同位体比を持ち、それが異なった同位体比の天水と様々な割合で混合すると、その混合関係を表わす線は深部熱水の値に向って集まるはずであると考へた (図4の(3)の場合)。彼はこの予想に基づきいくつかの火山性の温泉や噴気について  $\delta D$  および  $\delta^{18}O$  を測定したところ、予想に反して図4の線(1)および(2)で示す2つの関係がみいだされた。関係(1)は硫酸酸性泉に多くみられ、 $\delta D/\delta^{18}O$  の傾きがいつもほぼ3であることから地表近くでの蒸発のさいの同位体効果によるものと解釈された。一方、関係(2)は中性の食塩泉に多くみられ、その  $\delta D$  がその地域の天水と同じであり、 $\delta^{18}O$  だけがプラス側にずれていることから天水が高温の岩体と反応して酸素同位体交換を起したと解釈された。

さて、日本の火山性温泉の場合この関係(1)あるいは(2)の典型的な例はほとんどなく、多くのものが  $\delta D/\delta^{18}O$  の傾きが 2~3 でプラス側にずれている。そこで、この傾向が何によるかを明らかにするために、まず蒸発、凝縮のさいの同位体効果について考える。水と水蒸気間の水素および酸素同位体の分配係数は 100°C で 27% および 5.0%、また 150°C で 14% および 3.6% である。実際に噴気地帯でみられる噴湯と噴気を比較すると、北海道の 2, 3 の地域でみられるように  $\delta D$  で 18~26%、 $\delta^{18}O$  で 3.7~6.2% だけ噴湯に重い同位体が濃縮されており、熱水と水蒸気が 150~100°C でほぼ同位体交換平衡にあることを示している。大分県大岳地域あるいは秋田県大沼地域の地熱発電用の井戸より得られた水蒸気と熱水の間では  $\delta D$  で 14~31%、 $\delta^{18}O$  で 4.2~6.7% の分別があり<sup>18,19)</sup> これらもほぼ同位体交換平衡にあると考えられる。このような井戸の場合、熱水と水蒸気の量比が判っているので気-液分離を起す前の熱水全体の  $\delta D$  および  $\delta^{18}O$  を計算で求めることができる。このようにして求めた  $\delta D$  は大岳でも大沼でもそれぞれの地域の天水の値とほぼ同じであり、 $\delta^{18}O$  は 2~3% だけプラス側にずれている<sup>18,19)</sup>。これは天水起源の水が Craig により指摘されたように岩石との酸素同位体交換を起した結果と考えられる。この気-液分離した後の熱水と天水を比較すると、天水から  $\delta D/\delta^{18}O$  の傾き 2~3 でずれている。日本の火山性温泉の多くは、このように蒸発のさいの同位体効果と岩石との酸素同位体交換が重複しているのではないかとと思われる。 $\delta D/\delta^{18}O$  の傾きの変動は両者の寄与の程度の差、気-液分離の起る温度、そのさいの熱水と水蒸気の間比などに寄因するのではないかとと思われる。しかし、このような機構で説明できるのは  $\delta^{18}O$  のずれにして 5% 程度までのように思われ、秋田県後生掛温泉の大湯沼 ( $\delta D =$

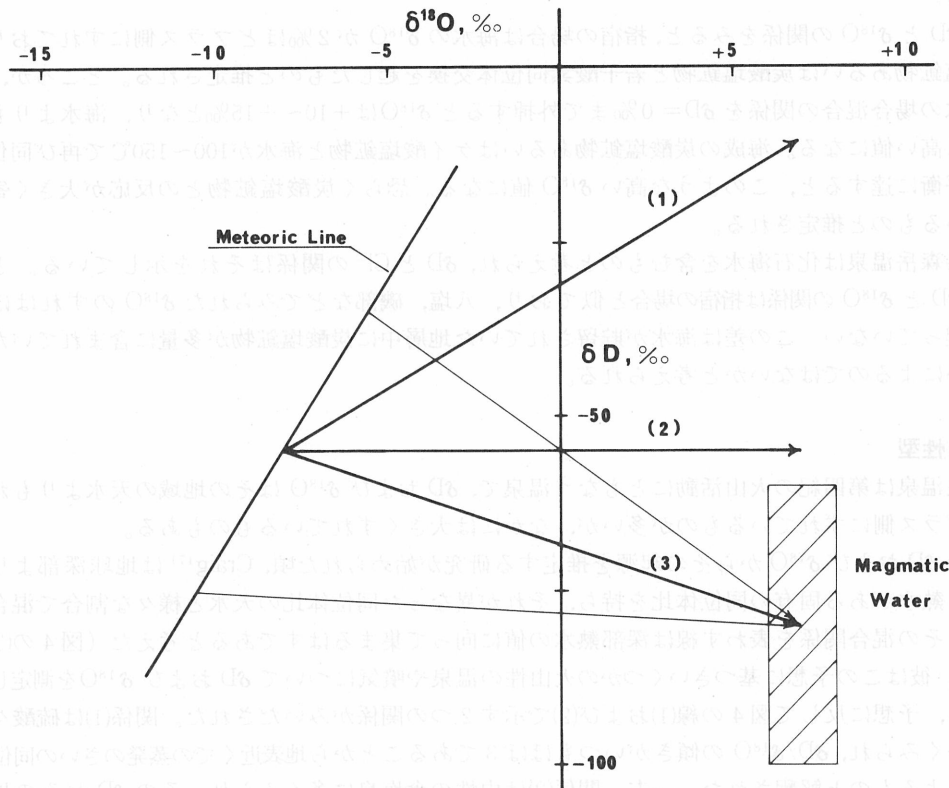


図4. 火山性型の熱水の  $\delta D$  と  $\delta^{18}O$  の関係。

(1)は蒸発のさいの同位体効果, (2)は岩石との酸素同位体交換, (3)はマグマ水との混合を表わす。

$-30.1\text{‰}$ ,  $\delta^{18}O = +5.2\text{‰}$ ) のように天水の  $\delta^{18}O$  との差が16‰もある場合を説明することは困難である。

湖水の蒸発のように開いた空間への蒸発の場合、気相中での水分子の拡散のさいの同位体効果が平衡状態での水-水蒸気間の同位体分別に重複してくることが知られている<sup>20)</sup>。この動的効果が熱水の場合でもあることが実験的に確められており、80℃の熱水の蒸発では両方の効果を合せると  $\delta D$  で43‰,  $\delta^{18}O$  で15.6‰である<sup>21)</sup>。今、大湯沼が地下からの熱水 ( $\delta D = -62.5\text{‰}$ ,  $\delta^{18}O = -8.2\text{‰}$ ) の供給と蒸発による水蒸気の散失で釣合っているとすると、大湯沼の熱水の同位体比は供給される熱水よりもこの動的効果を含んだ蒸発のさいの分別ぶんだけずれるので、 $\delta D = -20\text{‰}$ ,  $\delta^{18}O = +7.4\text{‰}$ になると予想される。この予想値は大湯沼の実測値とよく似ており、大湯沼の同位体比をこのようなモデルで説明できることを示している。

温泉水あるいは火山噴気のなかには  $\delta D$  が  $-20 \sim -40\text{‰}$ ,  $\delta^{18}O$  が  $0 \sim +6\text{‰}$  の範囲に入るものがあり(図5)、上述の蒸発のさいの動的同位体効果では説明できないことがある。火山噴気については、この他にも日下部ほか<sup>22)</sup>により多くの測定結果が報告されている。また、Mizutani<sup>23)</sup>は昭和新山についての20年間にわたる観測の結果、そのマグマから放出される熱水は  $\delta D = -32\text{‰}$ ,  $\delta^{18}O = +7.4\text{‰}$ であると推定した。岩石-水相互作用のさいに酸素同位体交換により熱水の  $\delta^{18}O$  が変るとともに含水鉱物が生じることにより熱水の  $\delta D$  も変るという考えでこれらの熱水の同位体比を説明することができる<sup>22)</sup>。しかし、北海道から薩摩硫黄島まで日本各地で似たよ

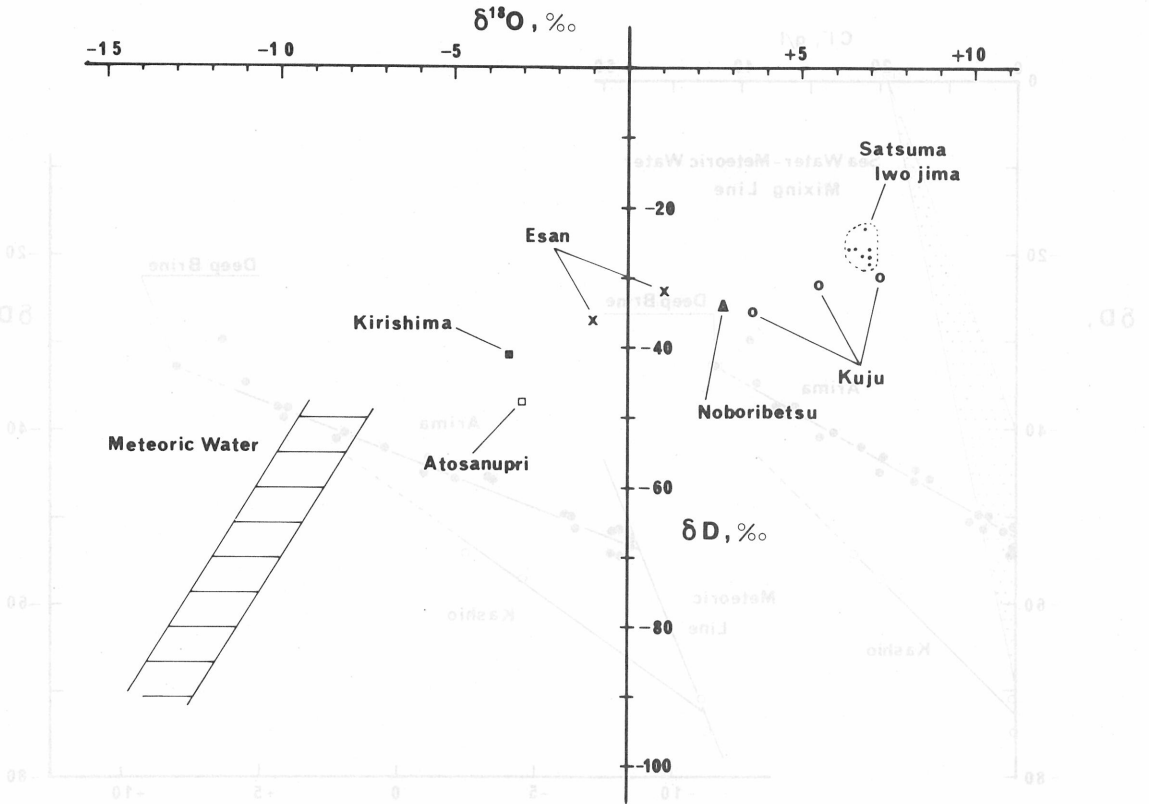


図5. Dおよび<sup>18</sup>Oを濃縮した火山噴気ならびに温泉水のδDとδ<sup>18</sup>Oの関係

うな同位体比を持つ熱水が見いだされることは、日本列島の地下のマグマから放出される水のδDが地域に無関係に-20~-40‰であるのではないかという疑いが生じてくる。もし、これが事実であるとするならばCraigが予想した図4の(3)の場合が起っていることになる。ただ、マントルからくる水のδDは-60~-100‰であるという考えが広く受け入れられているのに対して、-20~-40‰がまったく違っているのが興味あることであり、今後の解明が望まれる。

5. 有馬型

有馬型は高塩濃度のNa, Ca-Cl, HCO<sub>3</sub>型で、δDおよびδ<sup>18</sup>Oは天水の値よりも大きくプラス側にずれている。我々がこの研究を始めた頃は有馬型についての考えがはっきりと定まっておらず、化石海水を含むものも有馬型に含めたこともあったが、現在は兵庫県の有馬、宝塚地域の温泉、鉱泉、大阪府石仏地域の鉱泉(天見鉱泉)、ならびに長野県の鹿塩地域の鉱泉だけが有馬型に属する。これらのδDとCl<sup>-</sup>の関係およびδDとδ<sup>18</sup>Oの関係を図6に示す。

まず、δDとCl<sup>-</sup>の関係をみると海水あるいは化石海水と天水の混合とはまったく異なっており、それよりもはるかに高いCl<sup>-</sup>濃度を有している。有馬、宝塚、および石仏のδDとCl<sup>-</sup>ならびにδDとδ<sup>18</sup>Oの関係がよい直線性を持つこと、ならびにこれらの化学組成が濃度に関係なくほぼ一定であることから考え、この地域の地下に起源の塩水があり、それが天水で様々な割合で希釈されたものと考えられる。この深部塩水のCl<sup>-</sup>濃度を今まで測定された最高の測定値(44 g/l)と同じとすると、そのδ<sup>18</sup>Oは+8.0‰、δDは-32‰と推定される。一方、鹿塩の場合はCl<sup>-</sup>濃度

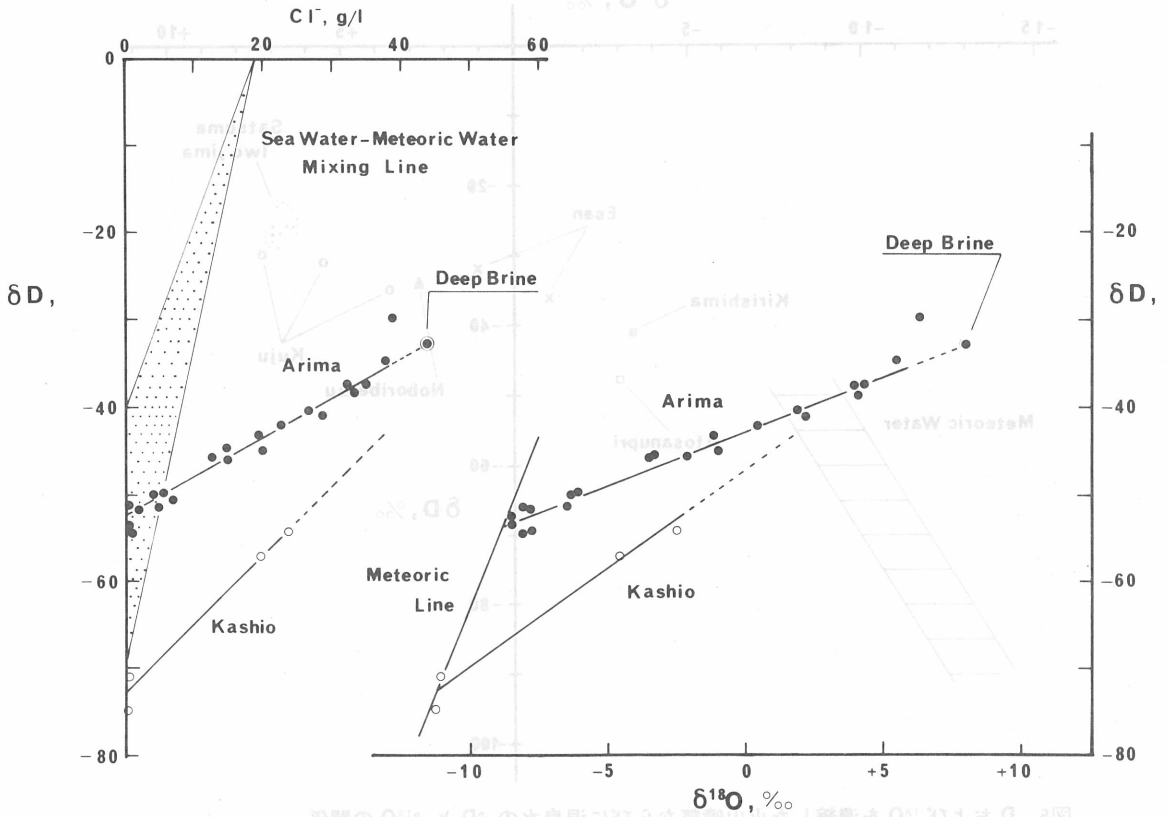


図6. 有馬型の温泉，鉱泉の  $\delta D$  と  $Cl^-$  ならびに  $\delta D$  と  $\delta^{18}O$  の関係

の近い測定値が2個しかなく、有馬のように深部塩水が希釈されたものかどうかははっきりしないが、この地域の天水とこの鉱泉を結ぶ線を外挿すると有馬の深部塩水の値とほぼ似たところに達する。したがって、鹿塩の地下にも有馬と同様な深部塩水があると考えて良いように思われる。

このような深部塩水の起源あるいは成因についてはいくつかの可能性が考えられるが、有馬、石仏、および鹿塩の3地域すべてにあてはまるものはない。石仏および鹿塩は中央構造線に沿っており、構造運動のさいの変成作用により生じた塩水の可能性が考えられる。一方、有馬、宝塚は六甲断層帯に位置しているが、花崗質マグマの残液ではないかと考えられている。

また、このような変成作用や火成作用とは無関係で、堆積層中で海水あるいは天水が変質したものであるとも考えられる。北アメリカ大陸のイリノイあるいはアルバーターの油田塩水は海水よりもはるかに高い  $Cl^-$  濃度を持ち、最高で180 g/lにもなる。この塩水の  $\delta D$  と  $Cl^-$  濃度が直線関係を示し、その傾きは  $Cl^-$  濃度1 mole/lあたり14‰である。有馬、宝塚、および石仏の場合は  $\delta D$  と  $Cl^-$  濃度の関係がイリノイあるいはアルバーターの油田塩水とよく似ているが、鹿塩の場合は1 mole/lあたり25‰程度になり、これらと一致しない。イリノイあるいはアルバーターの油田塩水は海水を起源としているのではないかと考えられるが、塩の濃縮の機構あるいは同位体比の変化の過程は明らかではない。しかし、有馬型の深部塩水もこのような堆積層中での海水あるいは天水の変質により生じたとする考えを否定することはできないように思われる。

有馬型の塩水の成因を考えるためには、変成作用における水の挙動あるいは堆積層中での水の



変質などについての知見が蓄積されることが必要であるが、上記の3地域以外の地域で新に有馬型の塩水が発見されることも大いに役にたつと思われる。

## 引用文献

- 1) Craig, H., Boato, G., and White, D.E.(1956). Isotopic geochemistry of thermal waters. Proceedings of the Second Conference on Nuclear Processes in Geologic Settings, Publication 400 of the National Academy of Science-National Research Council.
- 2) 酒井均, 松葉谷治(1976)。新実験化学講座10, 宇宙地球化学, 丸善, P. 471-510。
- 3) Matsubaya, O., Sakai, H., Kusachi, I., and Satake, H.(1973). Hydrogen and oxygen isotopic ratios and major element chemistry of Japanese thermal water systems. *Geochem.J.* **7**, 123-151.
- 4) 松葉谷治, 酒井均, 鶴巻道二(1974)。有馬地域の温泉, 鉱泉の水素と酸素の同位体比について。岡山大学温泉研究所報告**43**, 15-28。
- 5) 松葉谷治, 酒井均, 佐々木昭(1975)。秋田県, 青森県の黒鉱地域およびその周辺の温泉水についての同位体化学的研究。地質調査所月報**26**, 1-11。
- 6) 松葉谷治, 上田晃, 日下部実, 松久幸敬, 酒井均, 佐々木昭(1975)。薩摩硫黄島および九州の二, 三の地域の火山ならびに温泉についての同位体化学的調査報告。地質調査所月報**26**, 375-392。
- 7) 松葉谷治, 酒井均, 上田晃, 堤真, 日下部実, 佐々木昭(1978)。北海道の温泉ならびに火山についての同位体化学的調査報告。岡山大学温泉研究所報告**47**, 55-67。
- 8) 松葉谷治, 酒井均, 日下部実, 佐々木昭(1980)。長野県の温泉についての同位体化学的調査報告。岡山大学温泉研究所報告**50**, 17-24。
- 9) Craig, H.(1961). Isotopic variations in meteoric waters. *Science* **133**, 1702-1703.
- 10) 松葉谷治, 酒井均(1977)。地表水の水素および酸素同位体の挙動。日本地球化学会年会講演要旨集, C12。
- 11) 酒井均(1974)。温泉水からみた黒鉱式鉱化作用。海洋科学 **6**, 202-208。
- 12) 酒井均(1974)。温泉水からみた黒鉱鉱化液の同位体地球化学。地球化学**7/8**, 47-55。
- 13) Sakai, H. and Matsubaya, O.(1974). Isotopic geochemistry of the thermal waters of Japan and its bearing on the kuroko ore solutions. *Econ. Geol.* **69**, 974-991.
- 14) Sakai, H. and Matsubaya, O.(1977). Stable isotopic studies of Japanese geothermal systems. *Geothermics* **5**, 97-124.
- 15) 酒井均, 大木靖衛(1978)。日本の温泉。科学**48**, 41-52。
- 16) Mizukami, M., Sakai, H., and Matsubaya, O.(1977). Na-Ca-Cl-SO<sub>4</sub>-type submarine formation waters at the Seikan Undersea Tunnel, Japan. Chemical and isotopic documentation and its interpretation. *Geochim. Cosmochim. Acta* **41**, 1201-1212.
- 17) Craig, H.(1963). The isotopic geochemistry of water and carbon in geothermal areas. *Nuclear Geology on Geothermal Areas*, edited by E. Tongiorgi 17-53
- 18) Mizutani, Y.(1972). Isotopic composition and underground temperature of the Otake geothermal water, Kyushu, Japan. *Geochem. J.* **6**, 67-73.
- 19) Sakai, H.(1977). Sulfate-water isotope thermometry applied to geothermal systems. *Geothermics* **5**, 67-74.
- 20) Craig, H. and Gordon, L.I.(1965). Isotopic oceanography: Deuterium and oxygen 18 variations in the ocean and the marine atmosphere. *Marine Geochemistry*, edited by D.R. Schink and J.T. Corless,

277-374.

21) Matsubaya, O. and Sakai, H.(1978). D/H and  $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$  fractionation factors in evaporation of water at 60 and 80 °C. *Geochem. J.* **12**, 121-126.

22) 日下部実, 蔦木泰宏, 吉田稔(1977)。本邦火山ガス凝縮水の酸素および水素同位体比。地球化学**11**, 14-23。

23) Mizutani, Y.(1978)。Isotopic compositions of volcanic steam from Showashinzan Volcano, Hokkaido Japan. *Geochem. J.* **12**, 57-63。

of the Second Conference on Nuclear Processes in Geology. *Journal of the Nuclear Energy Research Committee*, 1978, 1, 421-470.

2) 松葉谷 治(1978) 松葉谷温泉(10) 温泉地質学, 温泉地質学, 北巻, 1, 421-470.

3) Matsubaya, O., Sakai, H., Kusachi, I. and Sakai, H.(1978). Hydrogen and oxygen isotopic ratios and major element chemistry of Japanese thermal water systems. *Geochem. J.* **12**, 151-161.

4) 松葉谷 治, 櫻井 均 (1974) 青森地域の温泉, 温泉の水素と酸素の同位体比. *温泉科学* **4**, 12-28.

5) 松葉谷 治, 櫻井 均 (1975) 林田町, 青森県の温泉地質学. *温泉科学* **5**, 1-11.

6) 松葉谷 治, 上田 繁, 日下部実, 松本 幸夫 (1975) 湯沢温泉. *温泉科学* **5**, 175-192.

7) 松葉谷 治, 櫻井 均, 日下部実 (1978) 北浦町の温泉. *温泉科学* **8**, 1-11.

8) 松葉谷 治, 櫻井 均 (1980) 長野県の温泉. *温泉科学* **10**, 1-11.

9) Craig H.(1961) Isotopic variations in meteoric waters. *Science* **133**, 1702-1703.

10) 松葉谷 治, 櫻井 均 (1977) 温泉の水素と酸素同位体. *温泉科学* **7**, 1-11.

11) 櫻井 均 (1974) 温泉の水素と酸素同位体. *温泉科学* **4**, 202-208.

12) 櫻井 均 (1974) 温泉の水素と酸素同位体. *温泉科学* **4**, 14-20.

13) Sakai, H. and Matsubaya, O.(1974) Isotopic geochemistry of the thermal waters of Japan and its bearing on the tectonic evolution. *Earth Planet. Sci. Lett.* **22**, 371-381.

14) Sakai, H. and Matsubaya, O.(1977) Stable isotopic studies of Japanese geothermal systems. *Geothermics* **2**, 37-121.

15) 櫻井 均 (1978) 日本各地の温泉. *温泉科学* **8**, 41-52.

16) Mizukami, M., Sakai, H. and Matsubaya, O.(1977) Na-Ca-Cl-SO<sub>4</sub>-type-sulphate formation waters of the Sakai Undersea Tunnel, Japan. *Chemical and Isotopic Documentation and Interpretation*. *Geochim. Cosmochim. Acta* **41**, 1201-1212.

17) Craig H.(1963) The isotopic geochemistry of water and carbon in geothermal media. *Nuclear Geology on Geothermal Areas*, edited by E. Tonnoir, 17-53.

18) Mizutani, Y.(1972) Isotopic composition and underground temperature of the Okinawa geothermal water, Kyushu, Japan. *Geochim. Cosmochim. Acta* **36**, 67-73.

19) Sakai, H.(1977) Sulphate water isotopic geochemistry applied to geothermal systems. *Geothermics* **2**, 67-74.

20) Craig H. and Gordon, L.(1965) Isotopic geochemistry: Deuterium and oxygen 18 variations in the ocean and the marine atmosphere. *Marine Geotectonics*, edited by D.R. Stohler and J.T. Gibbs, 13-31.