

長野県の温泉についての同位体化学的調査報告

松葉谷 治・酒井 均

岡山大学温泉研究所 熱水地球化学部門

日下部 実

富山大学 理学部地球科学科

佐々木 昭

地質調査所 鉱床部

(1979年12月24日受付)

1. 序言

長野県北東部の糸魚川—静岡構造線の東側には多くの温泉が点在している。この地域はグリーンタフ累層が分布し新第三紀には広く海域であったと考えられる。東北、北陸、あるいは山陰地方のグリーンタフ地域に湧出する温泉は同位体比ならびに溶存成分について共通した特徴を有し、著者らによりグリーンタフ型温泉と呼ばれている (MATSUBAYA *et al.*, 1973 ; 松葉谷ほか, 1975a ; SAKAI and MATSUBAYA, 1974, 1977 ; 酒井・大木, 1978)。グリーンタフ型温泉の水はその地域の天水と類似した同位体比を有し、溶存成分は Na-Ca-Cl 型と CaSO₄ 型の混合により説明され、しかも Mg⁺⁺ 濃度の低いのが特徴である。また、溶存硫酸イオンの硫黄ならびに酸素同位体比は海水の溶存硫酸イオンの値と類似している。これらのことから、このグリーンタフ型温泉はグリーンタフ累層中に浸透した天水が加温されるとともに、その累層中の海塩を溶出してきたものと考えられる。長野県北東部の温泉はグリーンタフ地域に湧出することから、グリーンタフ型の特徴を有することが期待される。従来の報告によると溶存成分は Na-Ca-Cl 型と CaSO₄ 型の混合型のものが多く、Mg⁺⁺/Ca⁺⁺ 比はしばしば 1 に近く (飯島・宮島, 1968; 飯島・岩倉, 1972; 野口, 1967)、典型的なグリーンタフ型 (Mg⁺⁺/Ca⁺⁺ < 0.2) とは異なっている。

一方、糸魚川—静岡構造線の西側では温泉は少なくなる。下伊那郡大鹿村の鹿塩鉱泉は塩濃度が海水と同程度の高塩濃度泉で、中央構造線の東側の豊塩片麻岩から湧出している (中村・前田, 1958)。六甲断層帯の有馬および宝塚ならびに中央構造線沿いの大阪府河内長野市石仏に湧出する高塩濃度の温泉、鉱泉の水は特異な同位体比および化学組成を有する (MATSUBAYA *et al.*, 1973 ; 松葉谷ほか, 1974 ; SAKAI and MATSUBAYA, 1974, 1977)。鹿塩鉱泉がこれらと成因的に関連しているかど

うかは興味ある問題である。

このような観点から、温泉水、溶存硫酸イオン、ならびに溶存炭酸物質の水素、酸素、硫黄、および炭素の同位体比を測定し、それらの起源を明らかにする目的で第 1 図に示す各地点で 1976 年 10 月 17 日～20 日に温泉水の採集を行った。また、これらの採集地点付近の河川水、地下水などもあわせて採集した。なお、万座温泉および草津白根山は群馬県内に位置するが、そこでも試料採集を行った。本報告では温泉水の水素および酸素の同位体比、溶存炭酸物質の炭素同位体比、ならびに溶存硫酸イオンの硫黄同位体比についての測定結果を示し、それにより判明した事実を簡単に記す。ただし、溶存硫酸イオンについては酸素同位体比を測定した後に稿を改めて報告する予定である。

2. 分析法および結果

試料採集および同位体比測定は松葉谷ほか (1975b) に記した方法により行われた。温泉水の水素同位体比は試料水を金属ウランで還元して得られる水素について、また酸素同位体比は試料水と同位体交換平衡にした二酸化炭素についてそれぞれ質量分析計で測定された。溶存炭酸物質の炭素同位体比は、現地で酸化カルシウムを加えた後に密栓をして持ち帰った試料に真空中で希硫酸を加えて得られた二酸化炭素について測定された。溶存硫酸イオンは硫酸バリウムにした後グラファイトで還元し、さらに硫化銀に変え、それを酸化銅で酸化して得られた二酸化硫黄について測定された。

それぞれの同位体比は次式で示される δ 値、すなわちある標準試料からの千分偏差 (‰) で表される。

$$\delta X = \left(\frac{R_{\text{試料}}}{R_{\text{標準試料}}} - 1 \right) \times 10^3$$

ここで、X は D, ¹⁸O, ¹³C, あるいは ³⁴S を、R 試料および R 標準試料はそれぞれ試料ならびに標準試料の同位体比 (D/H, ¹⁸O/¹⁶O, ¹³C/¹²C, ³⁴S/³²S) を表す。

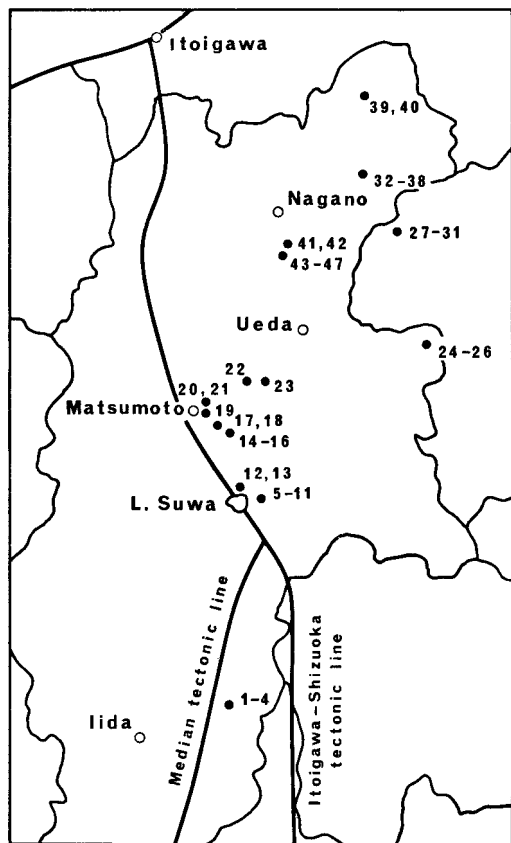


Figure 1 Locality map of hot springs in Nagano Prefecture. Numbers correspond to those in Table 1.

標準試料は水素および酸素は標準平均海水 (SNOW), 炭素は矢石化石 (PDB), 硫黄は Canyon Diablo 隕鉄のトロイライトである. 測定精度は水素で $\pm 2\%$, 酸素, 炭素, および硫黄で $\pm 0.2\%$ である.

温泉水の δD および $\delta^{18}O$, 溶存炭酸物質の $\delta^{13}C$, ならびに溶存硫酸イオンの $\delta^{34}S$ の測定結果を第 1 表にまとめ, また水の δD と $\delta^{18}O$ の関係を第 2 図に示す.

3. 考察

3.1. 鹿塩鉱泉

鹿塩鉱泉の 2 源泉の Cl^- 濃度は 19.7 g/l (No. 1) および 23.8 g/l (No. 2) であり, 第 2 図に示されるように, その水素および酸素同位体比はこの地域の天水の値より重い同位体を濃縮する方向に大きくずれている. 著者らは有馬温泉をはじめとする高塩濃度で重い同位体を濃縮している温泉を有馬型温泉と呼んだが, その

後の研究により, 有馬, 宝塚, および石仏のものを除くとすべて海水起源であることが判明した (松葉谷ほか, 1975a, 1978; SAKAI and MATSUBAYA, 1974; 酒井・大木, 1978).

鹿塩鉱泉の δD と Cl^- および δD と $\delta^{18}O$ の関係を見ると, 第 3 図に示されるように有馬などと同様にそれぞれ直線関係が見られ, 深部塩水と地表水の混合物であると考えられる. 鹿塩の場合, 深部塩水がどんな Cl^- 濃度を持っているかを推定する手がかりは何もないが, δD と Cl^- あるいは δD と $\delta^{18}O$ の関係をそれぞれ Cl^- 濃度の高いほうに外挿していくと, 今までに測定されている最高の Cl^- 濃度から推定された有馬の深部塩水 ($Cl^- = 44g/l$, $\delta D = -33\%$, $\delta^{18}O = +8.0\%$)* と良く似たところに達する. これは大変興味あることである. 第 2 表に示されるように, 鹿塩は化学成分についても有馬と良く似ており, 両者の成因には共通するものがあるのではないと思われる. 一方, 鹿塩は石仏と同様に中央構造線沿いの領家変成帯の片麻岩を湧出母岩としているので, これらの成因には広域の構造運動あるいはそれともなう変成作用が関係しているかとも思われる. しかしながら, 有馬と宝塚は六甲断層帯に沿った山陽型の白亜紀花崗岩質岩体から湧出しており, 領家変成作用との関係は明らかではない. 松葉谷ほか (1974) は有馬の深部塩水とイリノイあるいはアルバータの油田塩水との類似性を指摘した. あるいは, 日本の温泉水や火山噴気の中に δD が $-20 \sim -30\%$ の起源不明の水が含まれていることがしばしば推定されている (酒井・大木, 1978). このような塩水の海水と天水の中間の δD 値が, 岩石-水相互作用による水の水素同位体比の変化, 島弧におけるプレートのもぐり込みによる海水起源の重水素に富んだ水の供給, あるいは堆積累層中の水の移動にもなう同位体分別 (COPLIN and HANSHAW, 1973) などによるものかどうかは, まだ一義的な解答が得られる段階ではない. 今後これらに関する知見がさらに蓄積されれば, 有馬をはじめとする高塩濃度深部塩水の起源についてより具体的な考察が可能になることと思われる.

3.2. 松代温泉

松代温泉は溶存炭酸物質に富んだ高塩濃度泉で, 鹿塩と同様に重い同位体を濃縮している (第 2 図). 4 源泉 ($Cl^- = 2.8, 4.8, 7.1, 8.8g/l$) と地下水について δD , $\delta^{18}O$, および Cl^- の関係を見ると (第 4 図), 群馬県の八塩, 磯部あるいは青森, 秋田県境の湯の沢, 矢立など新第三紀の化石海水を含むものと良く似た関係を示

* MATSUBAYA *et al.*, (1973) ではこの深部塩水は $\delta^{18}O = +8.2\%$ と推定されていたが, その後 SMOW 標準への対比について若干の修正がなされたため, $+8.0\%$ となった.

Tabel 1 Stable isotope ratios of hot springs and surface waters in Nagano Prefecture.

No.	Locality	Temp. °C	pH	H ₂ O δD	H ₂ O δ ¹⁸ O	ΣCO ₂ δ ¹³ C	SO ₄ ⁻ δ ³⁴ S
1	Kashio (Yamakage-kan)	16	6.6	-57.0	- 4.6	- 8.0	-
2	ditto (Shioyu-so)	14	6.6	-54.2	- 2.5	- 0.1	-
3	ditto, Shio River	—	—	-71.0	-11.1	—	-
4	ditto, ground water	—	—	-74.9	-11.3	—	-
5	Kami-Suwa (Koryu)	84	6.8	-82.9	-12.1	- 9.9	+16.6
6	ditto, ground water	—	—	-80.1	-11.7	—	—
7	ditto, ground water	—	—	-80.6	-11.3	—	—
8	ditto, ground water	—	—	-77.4	-11.1	—	—
9	ditto, ground water	—	—	-80.7	-12.1	—	—
10	ditto, Kami River	—	—	-82.4	-12.3	—	—
11	ditto, Lake Suwa	—	—	-73.8	-11.2	—	—
12	Shimo-Suwa (Takei)	51	6.3	-81.9	-12.2	-10.3	+14.2
13	ditto (Tanga)	63	6.0	-84.2	-12.3	—	+ 2.6
14	Tobira (Gunyo-kan)	13	5.6	-78.1	-11.6	—	—
15	ditto (Meishin-kan)	28	5.6	-82.1	-12.3	—	—
16	ditto, stream	—	—	-76.7	-11.6	—	—
17	Iriyamabe (Kazan-so)	—	6.8	-80.2	-11.9	- 8.4	+17.4
18	ditto, stream	—	—	-79.3	-12.0	—	—
19	Genkoji	—	5.8	-80.6	-11.5	-17.5	—
20	Asama (No. 2)	49	—	-87.9	-12.9	—	+16.6
21	ditto (No. 4)	52	—	-88.4	-13.1	-13.9	+16.4
22	Takeyu (Rokumei-so)	—	—	-84.1	-12.3	—	+19.8
23	Reisenji (Naka-ya)	—	—	-83.3	-12.8	-17.8	+19.9
24	Hoshino	42	7.6	-79.2	-11.6	- 7.0	—
25	Shiotsubo	32	7.6	-83.7	-12.3	-13.4	+20.8
26	ditto , stream	—	—	-79.7	-11.6	—	—
27	Manza (Karabuki)	—	1.2	-76.4	- 9.6	—	+24.0
28	Kusatsu-Shirane, Lake Yugama	16	—	-70.4	- 8.8	—	+21.0
29	ditto , cold spring	—	—	-84.1	-12.6	—	+ 2.8
30	ditto , Lake Karegama	14	—	-58.5	- 9.6	—	—
31	ditto , Lake Yumi-ike	10	—	-71.0	- 9.6	—	—
32	Kakuma (Yoda-ya)	89	5.8	-80.9	-11.8	- 3.0	+13.8
33	ditto, Kakuma River	—	—	-86.7	-13.1	—	—
34	Araigawara	—	4.3	-82.2	-12.8	-14.4	+ 8.9
35	Shibu (Yumoto-ryokan)	91	5.8	-83.3	-12.4	—	+15.4
36	ditto, Yokoyu River	—	—	-81.0	-11.5	—	—
37	Yudanaka (No. 4)	97	6.4	-80.1	-11.5	- 3.9	+14.4
38	Hoshikawa (Daifunsen)	97	5.9	-83.2	-12.1	- 3.6	+13.9
39	Nozawa (Takenoshi-gama)	77	—	-80.5	-12.5	-24.7	+16.6
40	ditto, stream	—	—	-73.2	-12.2	—	—
41	Hoshina (Eiho-so)	31	6.2	-81.1	-12.2	- 6.5	+10.6
42	ditto, stream	—	—	-80.2	-11.8	—	—
43	Matsushiro (Kagai No. 2)	34	6.5	-68.0	- 7.3	- 1.1	+16.1
44	ditto	31	6.6	-70.8	- 9.1	- 2.5	—
45	ditto (Matsushiro-so)	47	—	-46.0	- 2.0	+ 0.4	+14.1
46	ditto (New No. 3)	45	—	-57.2	- 4.0	—	—
47	ditto, ground water	—	—	-72.3	-11.2	—	—

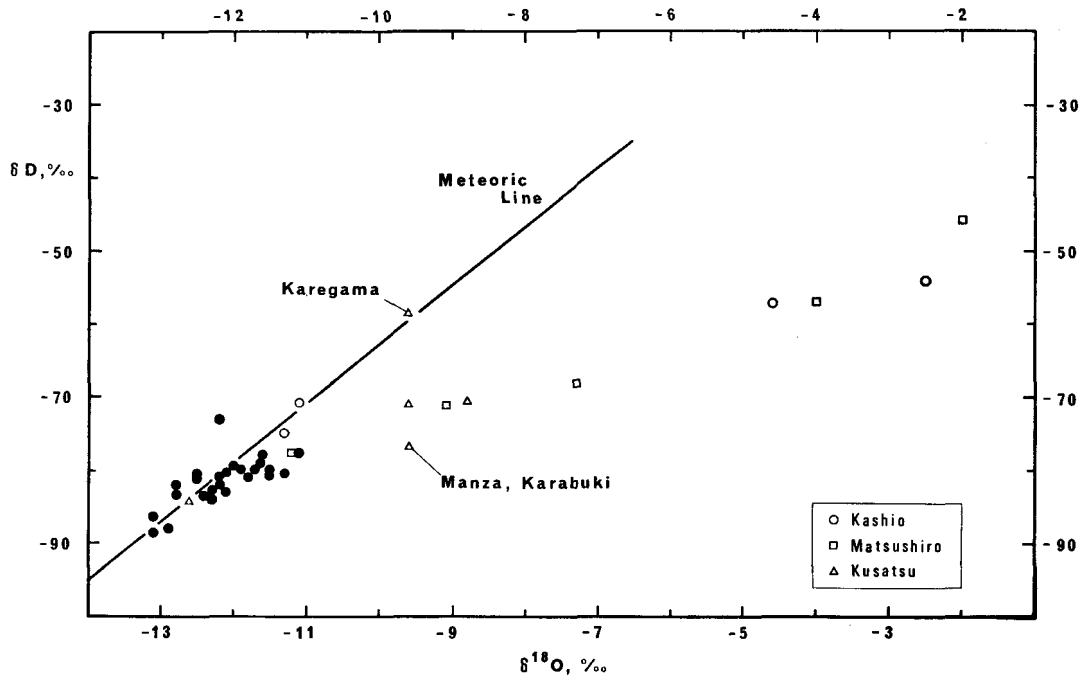


Figure 2 δD versus $\delta^{18}O$ plot for the hot springs studied.

し、松代も化石海水と天水起源の水の混合したものと考えられる。 δD と $\delta^{18}O$ の関係を $\delta D = 0\%$ まで外挿すると、松代も八塩、磯部あるいは湯の沢、矢立も $\delta^{18}O$ が同じような値 (+11~+13‰) となり、化石海水が周囲の岩石との酸素同位体交換により重酸素を濃縮していることを示している。

化石海水と天水の混合モデルにおいて筆者らは当初、単に塩濃度ゼロの地表水を考えていたが (SAKAI and MATSUBAYA, 1974; 松葉谷ほか, 1975a), その後青函トンネルの坑内水が Cl^- 濃度が約 3g/l の天水起源の層間水と海水の混合物であることが判明した (MIZUKAMI *et al.*, 1977). そこで、八塩、磯部あるいは湯の沢、矢立についても改めて δD と Cl^- の関係を見ると (第4図), 青函トンネルの坑内水と同様に Cl^- 濃度が約 3g/l の天水起源の水と海水の混合を考えたほうがより良く両者の関係を説明できることがわかる。松代についても、 Cl^- 濃度が約 4g/l の天水起源の水を考えると結果を大変良く説明することができる。

一方、 δD と $\delta^{18}O$ の関係を見ると、八塩、磯部および湯の沢、矢立では Cl^- を含んだ天水起源の水は同位体的には地表水とほとんど変わっていないが、松代の場合は地表水よりも 3%ほど重酸素を濃縮していると考えたほうが良いようである。同様なことは函館市谷地頭温泉にも見られる (松葉谷ほか, 1978)。渡島半島の内浦湾沿いには溶存炭酸物質に富んだ食塩水が点在し、その δD

はこの地域の地表水と同じであるが、 $\delta^{18}O$ は様々な程度に重酸素を濃縮する方向にずれている (ずれは 4%以下)。また、まったく同様な温泉が大分市狭間町にも湧出している ($Cl^- < 6g/l$, $\delta^{18}O$ のずれは 6%以下) (松葉谷ほか, 1978)。これらの水はグリーンタフ型温泉と同様な機構で天水起源の水が海成堆積累層中の海塩を溶出してきたものと考えられる。そして、堆積累層中に炭酸塩鉱物が多く含まれる場合、炭酸塩鉱物との酸素同位体交換により重酸素が濃縮されたものとみられる。松代の Cl^- 濃度が約 4g/l の天水起源の水もこれと同種類のものであろう。

3.3. その他の温泉

松代を除く長野県北東部の温泉水の δD および $\delta^{18}O$ はこの地域の地表水と区別なく $\delta D = -70 \sim -90\%$, $\delta^{18}O = -11 \sim -13\%$ の範囲に入り、日本の天水の平均的関係 ($\delta D = 8\delta^{18}O + 17$) を示している。したがって、これらの温泉水は天水が単に加温されたもので、その溶存成分はグリーンタフ型温泉と同様に湧出母岩との相互作用により規制されていると考えられる。ただし、長野県北東部の温泉の Mg^{++}/Ca^{++} 比は他のグリーンタフ地域に比べて一般に大きい。この差が何によるかは今のところ明らかでない。阿部ほか (1978) は長野県北東部の糸魚川-静岡構造線沿いに点在する温泉、鉱泉について水素および酸素同位体比を測定し、奉納温泉以外はすべて

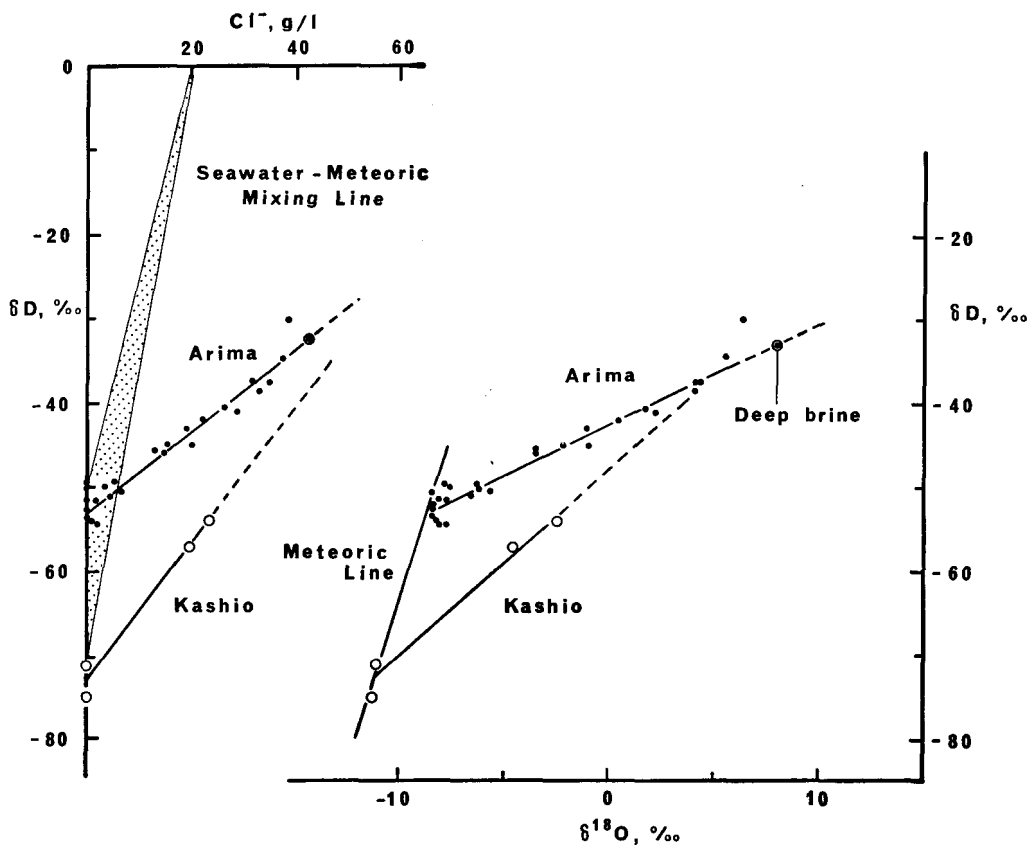


Figure 3 δD versus Cl^- and δD versus $\delta^{18}O$ plots for hot and mineral springs in Kashio and Arima.

Table 2 Chemical composition of the Arima-type brines.

	Cl^- g/l	Equivalent ratios					
		Na/Cl	K/Cl	Ca/Cl	Mg/Cl	$\Sigma CO_2/Cl$	Br/Cl
Kashio*	23.8*	0.898	0.002	0.124	0.012	0.004	0.8×10^{-3}
Arima**	38.6	0.740	0.091	0.165	0.004	0.016	0.7
Takarazuka**	12.4	0.847	0.053	0.085	0.015	0.217	1.1
Ishibotoke**	14.8	0.770	0.021	0.166	0.044	0.211	1.1

* Except for Cl^- , by NAKAMURA and MAEDA (1958).

Cl^- , by this study.

** By MATSUBAYA *et al.* (1974). About Arima, $\Sigma CO_2/Cl$ is the value of No.13 and the others are those of No.1 in Table 1 in MATSUBAYA *et al.* (1974).

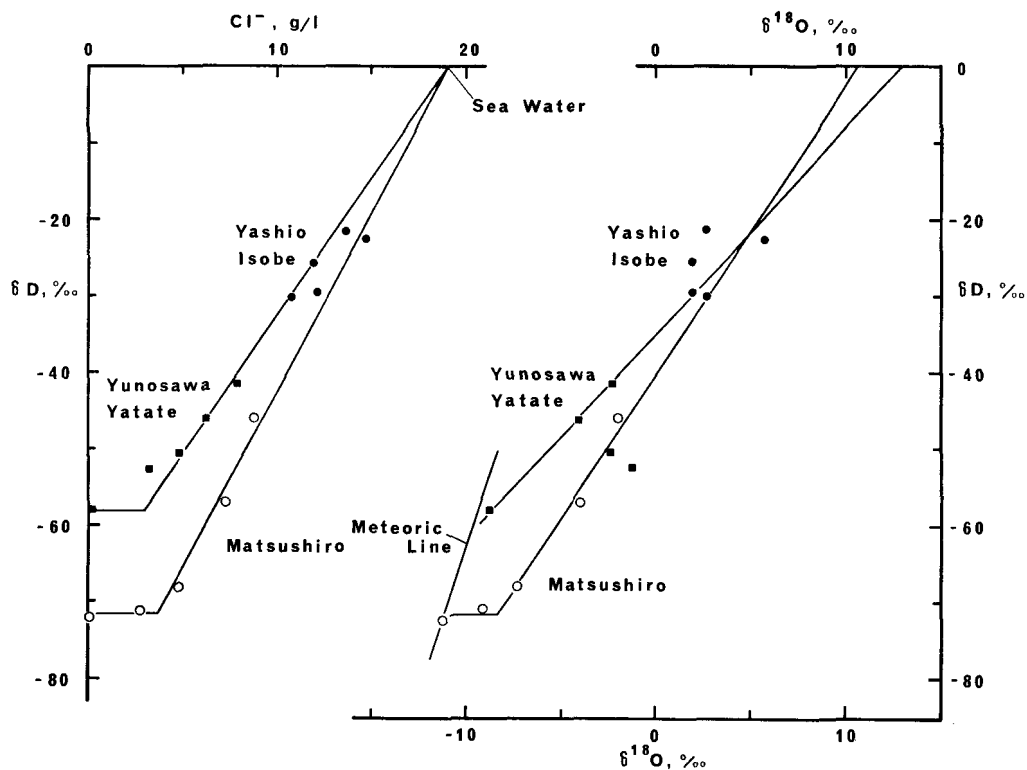


Figure 4 δD versus Cl^- and δD versus $\delta^{18}\text{O}$ plots for hot springs in Matsushiro and for other high saline hot springs containing fossil water.

天水起源であることを報告している。奉納温泉は松代と同様に化石海水を含んでいるのではないかと推測されている。

万座空吹は水蒸気とともに噴出している噴湯で、気-液分離のさいの同位体分別により噴湯のほうに重い同位体が濃縮されたものと思われる。北海道の数例の火山で観測された気-液分離のさいの同位体分別は、 100°C における平衡での同位体分別より若干大きく、 δD で18~26‰、 $\delta^{18}\text{O}$ で4~6‰であった(松葉谷ほか, 1978)。万座空吹でも同程度の同位体分別が起っているとみなし、噴気と噴湯の量比をほぼ等量と考え、分離する前の熱水の同位体比はこの地域の天水とほぼ同じか、あるいは若干重酸素を濃縮していると推定される。

草津白根山の湯釜も天水よりも重い同位体を濃縮しているが、すぐ近くに位置する弓池(淡水)もほぼ同じ同位体比を持っていることからみて蒸発のさいの同位体効果(SAKAI and MATSUBAYA, 1977; 酒井, 1977)によると思われる。ただし、湯釜は湯釜あるいは弓池に比べて重水素が重酸素よりもさらに濃縮されている。湯釜が干上る直前の浅い水溜りである以外は両者の間に特に差異はなく、この差が生じた理由は明らかでない。

4. まとめ

鹿塩鉱泉はその δD 、 $\delta^{18}\text{O}$ および Cl^- 濃度の関係から深部塩水と地表水の混合物と考えられる。また、この深部塩水は有馬、宝塚、ならびに石仏の塩水と共通の成因を有するようと思われるが、その成因はまだ明らかではない。筆者らはかつて重い同位体を濃縮した高塩濃度泉を有馬型温泉と名命したが、その後の研究によりこれらの中、八塩、磯部、湯の沢、矢立などは海水起源であることが判明し、有馬型には属さないことがわかった。したがって、有馬型に属するものは現在のところ有馬、宝塚、および石仏の温泉、鉱泉と今回の鹿塩鉱泉だけである。

松代温泉は化石海水と天水起源の水の混合したものと考えられる。この天水起源の水は、単なる地表水ではなく、 Cl^- 濃度が約4g/lで $\delta^{18}\text{O}$ が3‰ほどプラス側にずれたものと考えられる。このような水は、天水が炭酸塩鉱物を多く含む海成堆積累層中を循環するさいに溶解成分を供給されるとともに炭酸塩鉱物と酸素同位体交換を起し重酸素を濃縮したものと解釈される。

長野県北東部の温泉は松代以外はいずれも天水起源であり、同位体的にはグリーンタフ型に属するものと考え

られる。

謝 辞

同位体比測定の大部分と原稿作製は岡山大学温泉研究所野儀多鶴恵、高見里美両氏による。両氏に謝意を表す。

引用文献

- 阿部修治, 酒井 均, 飯島南海夫 (1978) 長野県姫川流域の諸温泉の研究. 温泉科学 **29**, 58-67.
- COPLEN, T. B. and HANSHAW, B. B. (1973) Ultrafiltration by a compacted clay membrane. 1. Oxygen and hydrogen isotopic fractionation. *Geochim. Cosmochim. Acta* **37**, 2295-2310.
- 飯島南海夫, 宮島征子 (1968) フォッサ・マグナ北部における温泉の地質学的・地化学的研究 (その1) —中央隆起帯の温泉— 温泉工学会誌 **6**, 61-84
- 飯島南海夫, 岩倉素子 (1972) フォッサ・マグナ北部における温泉の地質学的・地化学的研究 (その2) —東部堆積盆地の温泉— 温泉工学会誌 **8**, 125-134.
- 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.
- 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. 岡大温研報 **43**, 15-28.
- 松葉谷 治, 酒井 均, 佐々木 昭 (1975a) 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. 地調月報 **26**, 1-11.
- 松葉谷 治, 上田 晃, 日下部 実, 松久幸敬, 酒井 均, 佐々木 昭 (1975b) 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. 地調月報 **26**, 375-392.
- 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. 岡大温研報 **47**, 55-67.
- MIZUKAMI, M., SAKAI, H., and MATSUBAYA, O. (1977) Na-Ca-Cl-SO₄-type submarine formation waters at the Seikan Undersea Tunnel, Japan. Chemical and isotopic documentation and its interpretation. *Geochim. Cosmochim. Acta* **41**, 1201-1212.
- 中村久由, 前田憲二郎 (1958) 本邦高濃度の温泉地質学的意義. 地調月報 **9**, 431-440.
- 野口喜三雄 (1967) 長野県の温泉の化学成分. 温泉化学 **18**, 47-64.
- 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.
- SAKAI, H. and MATSUBAYA, O. (1977) Stable isotopic studies of Japanese geothermal systems. *Geothermics* **5**, 97-124.
- 酒井 均 (1977) 立見辰雄編「現代鉱床学の基礎」東京大学出版会, 110-115ページ.
- 酒井 均, 大木靖衛 (1978) 日本の温泉. 科学 **48**, 41-52.

AN ISOTOPE STUDY OF HOT SPRINGS IN NAGANO PREFECTURE

by Osamu MATSUBAYA, Hitoshi SAKAI, Minoru KUSAKABE, and Akira SASAKI

Abstract

Water samples from 28 hot springs and mineral springs in Nagano Prefecture, central Japan, were examined for their stable isotope ratios of hydrogen, oxygen, carbon, and sulfur.

Spring waters of Kashio are highly saline and enriched in heavy isotopes of oxygen and hydrogen ($\delta^{18}\text{O} = -2.5 \sim -4.6\%$, $\delta\text{D} = -54 \sim -57\%$). Linear relationships among δD , $\delta^{18}\text{O}$, and Cl^- suggest that spring waters are the mixtures of a deep brine and local surface water. Extrapolation of the linear relationships indicates that the deep brine is both isotopically and chemically very similar to the deep brine previously suggested for the springs of Arima, Takarazuka, and Ishibotoke of which δD , $\delta^{18}\text{O}$, and Cl^- are estimated as -33% , $+8.0\%$, and 44g/l , respectively. A common origin may be warranted among these postulated brines, while their provenance is yet to be worked out.

The hot springs in Matsushiro are a Na-Ca-Cl type of high carbonate content. Their hydrogen

and oxygen isotope ratios ($\delta D = -71 \sim -46\%$, $\delta^{18}O = -9.1 \sim -2.0\%$) are higher than the local surface water. On the basis of the relationships among δD , $\delta^{18}O$, and Cl^- , they are considered to be the mixtures of fossil sea water and certain water of meteoric origin of which Cl^- is about 4g/l and $\delta^{18}O$ is higher by about 3‰ than the local surface water. The latter may be meteoric water circulating in the marine sedimentary formations (Green Tuff formations) with soluble sea salts. Isotopic exchange with carbonate minerals in the formations explains its ^{18}O enrichment. Spring waters from Yashio and Isobe (Gunma Pref.) as

well as Yunosawa and Yatate (Akita Pref.) were previously interpreted to be mixtures of fossil sea water and local surface water of low Cl^- content. Re-examination of their data revealed that the meteoric waters responsible for these springs contain about 3g/l Cl^- , similar to the value obtained for Matsushiro. However, unlike Matsushiro, the meteoric waters in these areas are found to be isotopically similar to the local surface waters.

Waters from other hot springs studied here are of simply meteoric origin, thus belonging to the GreenTuff type water previously defined.