

秋田県玉川温泉の化学成分の経年変化

東邦大学理学部化学科

吉池 雄蔵

(平成5年2月16日受付, 平成5年3月11日受理)

Variation in Chemical Composition of the Tamagawa Hot Springs, Akita Prefecture (1912–1991)

—Obuki Spring—

Yuzo YOSHIIKE

Department of Chemistry, Faculty of Science, Toho University

Abstract

Obuki Spring in the Tamagawa Hot Springs, a typical volcanic acid hot spring in Japan, is situated at the western flank of the Yakeyama Volcano in the western part of the Hachimantai National Park, Akita Prefecture. and was found about 300 years ago.

Obuki spring has many characteristic properties, such as strong acidity (pH=1.2), high temperature (98°C), large discharge (about 10000 l/min.), large heat discharge (4.2×10^{11} kcal/yr). One of the properties of this spring is $\text{Cl}^- > \text{SO}_4^{2-}$ -type (Cl^- , 3000mg/l; SO_4^{2-} , 1000mg/l) which is characteristic of the early stage of volcanic acid hot spring in the course of the differentiation of volcanic emanation.

Significant variation of sulfate ion in the activity of the Obuki Spring has not been observed for a long time. But from 1972 to 1978 the concentration of sulfate ion have gradually increased and then decreased after 1978. The object of this study is to make clear the formation of a volcanic hot spring in connection with the volcanic phenomena. This investigation has been carried out for explanation of the variations in chemical properties, especially the SO_4^{2-} contents of the spring since 1954.

緒言

秋田県玉川温泉(秋田県仙北郡田沢湖町)は、八幡平国立公園の西端部にあり(図1)八幡平火山と焼山火山に関連をもつ温泉と考えられている。この温泉は一切経温泉(福島県)や川湯温泉(北海道)と並ぶ、日本でも代表的な火山性酸性泉の一つである。付近には後生掛、蒸ノ湯、銭川、赤川、澄川、藤七等の温泉が点在し、非常に変化に富んだ景観と、多種類の泉質の温泉群を構成している。

玉川温泉の出現は806年(大同元年)の焼山火山(海拔1386m)大爆発によるものといわれているが、

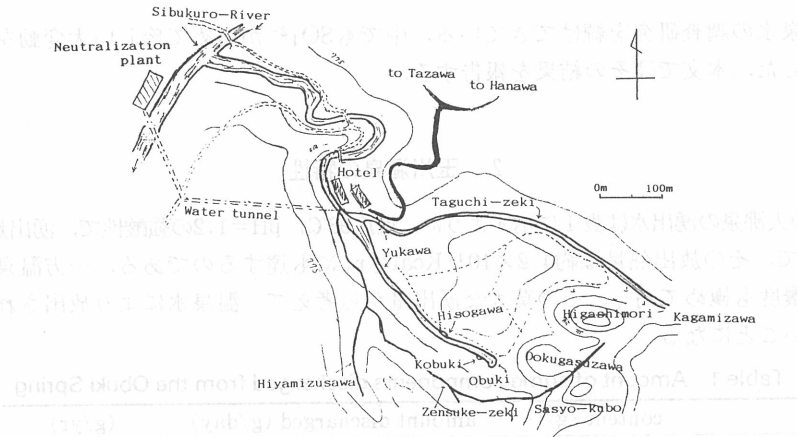


Fig. 1 Tamagawa Hot Spring (Akita pref.)

温泉が発見されたのは江戸時代初期か中期と考えられている¹⁾。

この温泉は強い酸性泉の熱水で、下流での人間生活環境にも様々な影響を及ぼし、その処理対策に江戸時代から苦心が払われている。先ず周辺の山から沢水、湧水を導き善助堰を、天保12年(1841)には田口堰を築き、沢水による希釈によって強い酸性水の処理を試みていた。この災害防止対策方法が永年に渡って利用されていたが、明治初年の台風で田口堰がくずれ、明治大正時代には、この方法による防止対策だけでは、下流の住民にはまだ多くの被害がもたらされていたようである。昭和時代になり湯川の流れを変えて、付近の土壌中に温泉水を放流し、酸性を中和する方法が用いられていたが、十分な効果を発揮する事は出来なかった。さらに1970年代になり草津温泉(群馬県)で行われているのと類似の、石灰岩の小片を用いる簡易中和処理法を、国の事業として試験的に行っていた。その後玉川ダム建設により、玉川水系の水資源確保、多目的水利用計画の一環として、恒久的な中和施設が大沸泉下流約5~600mの地点に建設され、1989年10月より一部運転、1991年4月より本運転を開始した。しかしpH1.2の強酸性泉、温度98℃で、1分間に約10,000リットルに達する温泉水を200年以上も絶え間なく湧出する源泉水の処理、処分は非常に困難な事である^{3, 4, 5, 6)}。

玉川温泉について特筆されることは、一つの湧出口から湧出する温泉としては極めて膨大な湧出量と、それと共に湧出される成分(物質)の多いことである^{7, 8)}。それらの物質の沈殿により生成した物質のうちでも北投石は特に有名である^{7, 8)}。この鉱物は、1898年(明治31年)桜井広三郎が鉛を含む硫酸バリウム塩として報告されたが、前後して1907年台湾北投温泉で発見された北投石との比較から、1912年にこの鉱物も北投石であることが確認された。

一方、温泉の研究は1920年代から盛んになってきた。途中戦争などによる社会的な事情等により研究報告が減少しているが、昭和20年代以降、医学的研究と共に、地球科学的部門から温泉ガス、沈殿物、地質等についてより一層詳細な研究がなされるようになった^{7, 8, 9, 10, 11, 12)}。

火山性酸性泉をとりあげ火山現象の一面として温泉活動を考え、温泉の生成機構を解明するためには、温泉そのものの性質の変動(温度、pH、流量、湧出量、濃度、溶存成分の変化等)を測定することが重要なことと考えられる。

特殊な酸性泉、たとえば北海道十勝岳新々噴火口の温泉¹¹⁾、箱根大涌谷の酸性泉、福島県吾妻山一切経の温泉などは成分、濃度の変動も激しく、一時的な現象のものもあるのに比べると、玉川温泉の活動状況は大局的には、相当長期間にわたって極端な変動がなかったように見える。これらを確めるため著者らは、1954年以来玉川温泉の大沸源泉と、その周辺に大小点在して湧出

している温泉水の調査研究を続けてきている。中でも SO_4^{2-} が極めて珍しい大変動を示していることがわかった。本文ではその結果を報告する。

2 玉川温泉の特性

玉川温泉の大沸泉の湧出水は表1に示すように、温度 98°C 、 $\text{pH}=1.2$ の強酸性で、湧出量は約 $10,000\text{ l/min}$ 。前後で、その放出熱量は約 $4.2 \times 10^{11}\text{ Kcal/yr}$ にも達するのである。一方温泉水中に含まれる成分の濃度も極めて高く、その莫大な湧出量から考えて、温泉水により放出される物質の量も非常に多いことになる。

Table 1 Amount of some components discharged from the Obuki Spring

	content (g/l)	amount discharged (g/day)	(g/yr)
Cl	3	4×10^7	1.5×10^{10}
SO_4	1.2	1.5×10^7	5.6×10^9
F	0.1	1.3×10^6	4.7×10^8
H_2S	0.02	2.6×10^5	9.4×10^7
H_2SiO_3	0.3	4×10^6	1.4×10^9
Total-Fe	0.1	1.3×10^6	4.7×10^8
Al	0.2	2.6×10^6	9.4×10^8
Ca	0.15	2.0×10^6	7.1×10^8
Na	0.06	7.8×10^5	2.8×10^8
Pb	0.001	1.3×10^4	4.7×10^6
Ra	20×10^{-4}	2.6×10^{-4}	0.09

Temp. = 98°C $\text{pH}=1.2$

Discharge = $9.3 \times 10^9\text{ l/min.} = (1.3 \times 10^4\text{ ton/day}) = (4.7 \times 10^6\text{ ton/yr})$

Heat discharged = $1.2 \times 10^9\text{ Kcal/day} = (4.2 \times 10^{11}\text{ Kcal/yr})$

2-1 流量

玉川温泉の湧出量は、年間を通してほとんど変化なく、定常的に湧出しているという報告もある⁷⁾。

表2は1971年以降の流量(湧出量)の測定値である。

測定地点は大沸泉から約110m程下流で、この地点では大沸泉より川下に点在している小沸泉、ヒソ川泉など湯川に添った小さな温泉の流入はあるが、大沸泉の湧出量が特に大きいので測定にそれ程大きな影響はないと考えられる。20年間の測定では1971年に最高値を示し、1971~75年までの5年間に湧出量は約1/2に減少している。最近十数年(1977~1987)の湧出量はほとんど一定の値を示しているが、1989年以降はこれまでの湧出量よりさらに少なく、僅かずつ減少傾向にある。しかしながらこの温泉の湧出量についての測定記録は非常に少なく、このような莫大な湧出量が一つの湧出口から湧きでることに対して、温泉水の供給源(降水との関係)や、どの様な導水機構で玉川温泉に供給されるかは不明である。

玉川温泉は春から秋までの調査は可能であるが、冬期間は積雪が多く、交通が全く途絶えて、厳寒期の調査には困難を伴う。しかし四季にわたる流量が測定されれば、水源の供給源やその変

Table 2 Discharge from Tamagawa Hot Spring

Data	l/min.	Data	l/min.
1971. 8 .26	15200	1979. 9 . 1	9600
10.27	14500	80.10. 5	9800
10.28	16300	81. 8 .30	10000
72.10.11	13900	82. 9 .29	10000
73. 7 .30	10900	83. 9 .15	9900
74. 8 .12	8200	84. 8 . 1	10900
8. 15	8900	85. 8 .31	9200
8. 18	8600	86.10. 3	10600
10. 4	9600	87. 9 .15	9200
75.10.11	8500	88. 9 .20	11500
76. 9 .24	8700	89.10.13	7500
77. 8 . 3	9200	90. 9 . 2	8700
78.10.30	10600	91. 9 . 9	7000

化等が次第に明確になってくると思われる。(1992年12月より冬季間でも一部宿泊営業が行なわれている)

2-2 玉川温泉の溶存成分

a) 測定方法

試料とした温泉はポリエチレン製ビンに採取し、実験室に持ち帰り、塩化物イオンの分析はVolhard法滴定により、硫酸イオンは重量法でBaSO₄として定量した。ホウ素はメチレンブルーを用いた抽出吸光度定量法^{15, 16, 17, 18)}により、フッ化物イオンは一定量の試料を蒸留後ドータイトアルフッソンの用いた吸光度定量、シリカはモリデン黄法、鉄はジピリジル法、アルミニウムはオキシン法による吸光度定量法を用いた。カルシウム、マグネシウムはキレート光度測定、ナトリウム、カリウムはフレイム分光光度法でそれぞれの測定を行った。

b) 測定結果

流量(湧出量)は表2の様な変動を繰り返している。大沸泉水中の溶存成分の湧出量は、表1に示す湧出量と溶存成分濃度から計算すると、莫大な溶存成分やエネルギーの放出量となる。元来温泉水中の溶存成分が数十年間以上も定常的に一定であるということは、極めてまれであって、特に火山性酸性泉の場合は変動も大きく、時には十勝岳新々噴火口の温泉にみられる様な変動の大きい温泉もあり、温泉の性質を火山活動によると考えると、長期間一定であるとはいえないようである。

火山性酸性泉が、数百年間枯渇することなく、著しい湧出量の変化も認められないという事実は一時的な調査および検討では、このような温泉の湧出機構について、そのすべてを考察することは困難であり、少なくとも20~30年間の研究調査の結果によりこれを考察し、火山性酸性泉をよりよく理解する事が必要な事を示している。

三浦彦次郎¹⁹⁾は昭和初期に玉川温泉水中の溶存成分について、初めて系統的に分析した。その後は多数の研究者により引き継がれてきた。

この温泉の特徴として、Cl⁻, SO₄²⁻の溶存成分量が、日本の他の酸性泉の大多数に認められるような、Cl⁻<SO₄²⁻の型でなく、Cl⁻>SO₄²⁻型の酸性泉であり、大沸泉は、火山性酸性泉の初期の新しい火山活動の影響の多い、Cl⁻>SO₄²⁻型の温泉の代表とされている^{7, 20)}。

大沸泉における一日間のCl⁻とSO₄²⁻の成分変化には、著しい変化がなくほとんど一定であり、季節変化もほとんど認められないとの報告⁷⁾がある。また著者も同様な結果を得ており表3には、1986~1989年の月別Cl, SO₄²⁻濃度変化を示す。

この火山性酸性泉において代表的な成分であるCl⁻, SO₄²⁻の溶存量の変化は、火山性酸性泉の温泉活動を考える場合、非常に重要であり、それらの成分の変動等により火山活動の盛衰消長を知ることが出来る。太秦、室住、安孫子らは^{22, 23)}北海道登別温泉のハロゲン化合物、SO₄²⁻等の濃度を継続観測することにより、Cl⁻, SO₄²⁻

Table 3 Monthly variation in Cl⁻, SO₄²⁻ contents of Obuki Spring (mg/l)

DATA	Cl ⁻	SO ₄ ²⁻	DATA	Cl ⁻	SO ₄ ²⁻
'86. 3	2740	1630	'88. 4	2490	1250
10	2670	1540	5	2470	1250
11	2620	1520	6	2480	1240
12	2620	1520	7	2480	1220
'87. 1	2620	1500	8	2500	1220
2	2620	1500	9	2500	1220
3	2600	1480	10	2480	1180
4	2500	1430	11	2480	1200
5	2460	1380	12	2470	1190
9	2460	1330	'89. 1	2470	1190
10	2470	1330	2	2480	1170
11	2500	1320	3	2470	1160
12	2510	1320	4	2440	1150
'88. 1	2510	1300	6	2440	1090
2	2510	1290	10	2440	1080
3	2500	1290			

の多いものは活火山性酸性泉であると推定し、その活動推移を報告している。

フッ化物イオンはマグマ発散物の分化から考え、塩素、イオウ等と同様、火山発散物の主要な成分と考えられるので、その変動が火山活動による影響が非常に大きい温泉であれば、この成分の変化を知ることも重要である。またホウ素は火山地帯の噴気口に、ホウ酸として多量に含まれていることが、古くから知られている。そこでホウ素が火山性酸性泉中で、ハロゲン元素と共に、どのような挙動を示すか興味ある。

温泉水中の SO_4^{2-} の生成機構は、マグマ中に存在しているS、硫黄化合物 H_2S 、 SO_2 などの一部が、火山発散物として噴出の後、分化過程で酸化されると考えられるが、玉川温泉水中の SO_4^{2-} の生成機構は SO_2 が火山ガスからの水や、地下水に溶けて H_2SO_3 となり、これが自己酸化還元反応で H_2SO_4 が生成されると考えるのが、模型実験等から妥当であると思われる。このことはすでに、岩崎ら^{1,7,20)}が述べている。玉川温泉はこのような機構による、 $\text{Cl}^- > \text{SO}_4^{2-}$ 型の日本での代表的な活火山性酸性泉の一つである²⁵⁾。

3 塩化物イオン、硫酸イオンの濃度の変動

1940年代の末期に玉川温泉研究会が発足し、1950年代には飛躍的な研究発展があり、以後多くの研究者による研究対象^{7,9)}とされてきた。その間の玉川温泉(大沸泉)における溶存成分の濃度変化の結果を表4に示す。火山性温泉ガスなど日本の高温の火山ガス中には必ず塩化物が含まれていて、塩素は火山発散物中の元素で自然界に存在する形態が比較的簡単で、水に溶けやすいものが多い上に、測定が容易で正確にできるので火山噴出物中のマグマ性揮発性成分の挙動を知る手がかりとなる。特に火山性酸性泉の活動の消長を観測する指標として、 Cl^- および Cl^- と生成機構の極めて著しく異なる SO_4^{2-} 等の経年濃度変化を長期間測定しつづけてきた。

1960年代までの大沸泉中の SO_4^{2-} 、 Cl^- 濃度は各々約1000mg/l、3000mg/lであったが、1970年代の SO_4^{2-} はそれまでとは異なる変動を示し、1972年900mg/l、その後6年間に年々増加した遂に1978年には3000mg/lと最大濃度値を示した。これは今までの約3倍に達する最大濃度であった。それ以後現在までは年々減少し、1991年9月には800mg/lの濃度を示している(表4, 図2)。一方その間における塩化物イオンは硫酸イオンのような大きな変動はなく、約300mg/l前後で変化を繰り返していた。ただ硫酸イオン濃度が最大値(3000mg/l)を示した1978年の塩化物イオン濃度は、それまでの濃度より約10%程度高濃度であった。その後の塩化物イオン濃度は年々減少し、1991年9月には2310mg/lであった。松葉谷ら²⁶⁾によれば1980年の大沸泉の Cl^- は5g/lと示されている。この濃度は今までの研究者ではまだ知られていない数値である。火山性酸性泉で代表される成分の Cl^- 、 SO_4^{2-} 濃度はこのような経年変動を繰り返していたが、湧出量(流量)との関係を求めてみても、この10年間の湧出量はそれほど著しい変動もなく、ほぼ一定であることから、水と火山発散物との量比のこの変化があるとしても、それだけでは十分な説明がつかない(表5, 図3)。

その間の $\text{Cl}^-/\text{SO}_4^{2-}$ 濃度比は1972年に3.26と最大値を示し、1977年には1.10と最小値を得たが、以後再び増加し、ここ1~2年は1960年代後半の比と似ている。この SO_4^{2-} 濃度の減少傾向は何に起因するか十分な説明は出来ないが、 SO_4^{2-} 生成は火山発散物としての H_2S 、 SO_2 等の酸化反応によるものであるから、この酸化生成機構に変化があったか、またはマグマ発散物が熱と共に地下水に導入される過程に変化があったとも思われる。同時に他の陰イオン成分として F^- の変動は、1971年以降年々増加し、1978年には最高値(130mg/l)であり、その後年々減少して、1991年にはその1/2量の濃度になっている(図3, 表5)。この間火山発散物としての Cl^- の変動とは同一

Table 4 Chemical composition of Obuki Hot Spring in 1951-1991 (mg/l)

Data	Cl	SO ₄	SiO ₂	Fe	Al	Ca	Mg	Na	K	B	F
1951.6.11	2180	910									
52.10.15	2380	1130									
53.10.15	2640	1100									
54.10.4	2480	980		73.6	119	127	49	85	78		
55.10.8	2680	1100		80.8	116	164	59	99	56		
56.10.6	3240	1330		105	158	210	83	114	65		
57.10.16	3410	1440		112	198	227	78				120
58.10.18	3260	1440		113	230	188	101	68	25		120
59.10.2	2980	1400	318	104	194	158	57.4	67.5	33.6	34	99
60.8.29	2890	1310	317	87.8	164	158	57.5	68.5	41.1	38	87
61.10.19	2910	1380	311	82.3	154	175	62.8	76.5	40.3	38	81
62.10.5	3050	1280	310	9.19	163	177	59.6	74.5	44.0	38	80
63.10.4	3110	1290	310	96.7	162	178	55.7	69.5	41.5	35	70
64.10.6	3040	1220	310	88.9	137	173	53.0	65.8	39.8	33	64
66.10.6	3110	1180	314	86.0	150	172	50.2	59.0	37.7	36	64
67.10.4	3190	1180	315	89.5	144	175	50.3	56.5	37.7	38	64
68.8.23	3150	1060	313	89.0	154	172	49.3	52.5	36.1	38	65
69.9.30	3090	1060	313	88.3	138	165	45.1	48.5	36.1	33	69
70.8.23	3110	1050	307	83.9	140	155	45.0	46.8	36.3	31	69
71.8.24	3100	970	311	82.1	147	153	43.1	46.8	35.5	32	71
72.10.10	2930	900	300	79.0	136	139	36.0	41.0	39.0	34	69
73.10.5	2960	1200	300	106	152	134	37.0	41.0	36.0	31	76
74.10.5	2980	1710	300	129	173	132	37.0	42.0	36.5	32	87
75.10.11	3030	2180	311	148	181	131	36.7	43.0	37.0	28	95
76.9.26	2930	2500	290	151	202	135	37.0	42.0	34.5	24	101
77.7.26	2990	2720	285	155	236	160	44.3	49.5	30.0	24	109
78.10.30	3380	3000	286	183	287	164	46.7	49.0	31.0	28	130
79.9.1	3160	2780	275	167	246	150	42.8	46.0	31.6	25	123
80.10.6	3100	1540	286	144	227	142	43.1	43.5	36.6	25	128
81.8.29	3130	2500	290	137	216	135	43.3	43.0	34.1	24	121
82.9.29	3020	2290	289	125	195	128	38.3	38.3	34.2	22	119
83.9.17	2900	2070	291	116	183	123	34.6	39.0	37.2	22	116
84.8.2	2890	1920	298	106	173	122	35.2	39.0	33.3	21	110
85.8.31	2730	1680	296	91.5	153	113	32.2	35.5	32.5	19	98
86.10.1	2670	1540	297	82.0	147	112	32.2	37.0	33.8	19	95
87.9.13	2470	1330	300	67.6	124	104	32.8	32.0	30.0	17	82
88.9.18	2500	1220	304	62.0	114	102	32.2	31.0	30.0	18	83
89.10.11	2440	1080	307	57.1	100	102	29.8	34.0	30.0	18	78
90.8.31	2480	900	313	52.2	95	104	32.8	34.0	31.0	20	77
91.9.7	2310	810	314	51.0	101	96	34.0	35.0	30.0	22	73
92.8.31	2400	900									

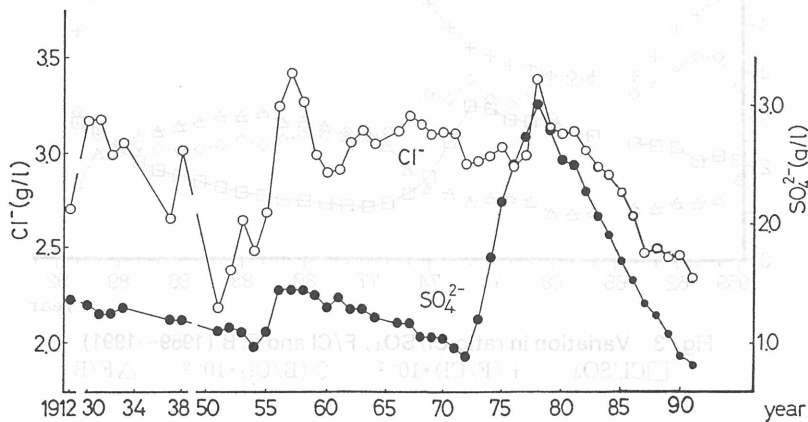
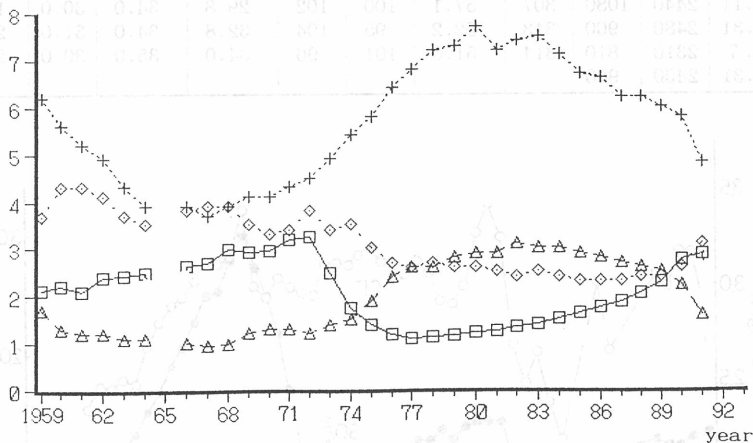


Fig. 2 Variation in Chloride and Sulfate Contents of Obuki Spring

Table 5 Cl, SO₄²⁻, F and B Contents of Obuki Hot Spring

data	Content (mg/l)				Ratio			
	Cl	SO ₄	F	B	Cl/SO ₄	(F/Cl) *10 ⁻²	(B/Cl) *10 ⁻²	F/B
1959.10.2	2980	1400	99	34	2.13	6.2	3.7	1.7
60.8.29	2890	1310	87	38	2.21	5.6	4.3	1.3
61.10.19	2910	1380	81	38	2.11	5.2	4.3	1.2
62.10.5	3050	1280	80	38	2.38	4.9	4.1	1.2
63.10.4	3110	1290	70	35	2.41	4.3	3.7	1.1
64.10.6	3040	1220	64	33	2.49	3.9	3.5	1.1
66.10.6	3110	1180	64	36	2.64	3.9	3.8	1.0
67.10.4	3190	1180	64	38	2.70	3.7	3.9	0.95
68.8.23	3150	1060	65	38	2.97	3.9	3.9	0.97
69.9.30	3090	1060	69	33	2.92	4.1	3.5	1.2
70.8.23	3110	1050	69	31	2.96	4.1	3.3	1.3
71.8.24	3110	970	71	32	3.20	4.3	3.4	1.3
72.10.10	2930	900	69	34	3.26	4.5	3.8	1.2
73.10.5	2960	1200	76	31	2.47	4.9	3.4	1.4
74.10.5	2980	1710	87	32	1.74	5.4	3.5	1.5
75.10.11	3030	2180	95	28	1.39	5.8	3.0	1.9
76.9.26	2930	2500	101	24	1.17	6.4	2.7	2.4
77.7.26	2990	2720	109	24	1.10	6.8	2.6	2.6
78.10.30	3380	3000	130	28	1.13	7.2	2.7	2.6
79.9.1	3160	2780	123	25	1.14	7.3	2.6	2.8
80.10.6	3100	2540	128	25	1.22	7.7	2.6	2.9
81.8.29	3130	2500	121	24	1.25	7.2	2.5	2.9
82.9.29	3020	2290	119	22	1.32	7.4	2.4	3.1
83.9.17	2900	2070	116	22	1.40	7.5	2.5	3.0
84.8.2	2890	1920	110	21	1.51	7.1	2.4	3.0
85.8.31	2730	1680	98	19	1.63	6.7	2.3	2.9
86.10.1	2670	1540	95	19	1.73	6.6	2.3	2.8
87.9.13	2470	1330	82	17	1.85	6.2	2.3	2.7
88.9.18	2500	1220	83	18	2.05	6.2	2.4	2.6
89.10.11	2440	1080	78	18	2.26	6.0	2.4	2.5
90.8.31	2480	900	77	20	2.76	5.8	2.6	2.2
91.9.7	2310	810	73	22	2.85	5.9	3.1	1.9
92.8.31	2400	900	75	23	2.67	5.8	3.1	1.9

Fig. 3 Variation in ratio Cl/SO₄, F/Cl and F/B (1959~1991)

□ Cl/SO₄ + (F/Cl) * 10⁻² ◇ (B/Cl) * 10⁻² △ F/B

ではなく、むしろ SO_4^{2-} と同様な変化を示している。

ホウ素は火山活動により発散されるハロゲン化物等としばしば比較検討されている。この大沸泉におけるホウ素は1960年代から1990年代までの間に約1/2量の変化である。この F^- , B , Cl^- の関係は F/Cl , B/Cl で比較した場合 B/Cl 比は1970年中期よればほぼ一定値であり、 F/Cl は B/Cl より大きな変化でハロゲン化合物でも必ずしも正変動ではない(図3, 表5)。

一方金属成分元素(鉄, アルミニウム, カルシウム)は塩化物イオン, または硫酸イオンに変動があったときに変化があり, 最近20年間では1971年から年々増加をして1978年に最大となりその後は年々減少をしている(表4, 図4)。これは先の硫酸イオンの変動とまったく同一の動きであった。成分別では, 鉄, アルミニウムの変動が大きく, カルシウムの変化はこの二成分より小さい。アルカリ金属(Mg , Na , K)の変動は先の金属と比較して非常に小さく, ほとんど一定といえる(表4)。

火山発散物(火山ガス)中には極めて少量しか存在していない金属元素でも, 大沸泉(表1)では, Al , Fe , Ca などが多い。これは温泉が生成する過程で, マグマから熱と揮発性物質(HCl , HF , H_2S , SO_2 等)が地下水に導入され, pH の低い温泉(酸性泉)となる。そしてこれらの成分は温泉水が周囲や通路の岩石などと反応し, 溶解して温泉水中に取り入れられ地表に湧出してくると考えられる。

著者^{13, 14)}はこの反応の模型実験として玉川温泉の大沸泉と, その周辺に産出している安山岩質岩石を用いて大沸泉の湧出口の100m下流にて連続的に120時間, 250時間実際に現場でも反応させた時に温泉水中に, 溶解してくる金属元素の時間的変化を測定した。反応の初期には, 金属成分は非常によく溶解するが, ある時間が経過すると, 次第に溶解する量が小さくなり, 最終的には一定量を示す(図5a, 図5b)。

温泉水が一定の通路を通して湧出している場合, 長い年月の間に, 湧出路の周囲の物質との反応が進み, 岩石成分の新たな溶出が減少してほとんど一定状態となる。そうなれば金属元素の濃度の変化も小さくなる。しかしそこに何等かの地殻の変動, あるいは新しい湧出路の出現か, または火山活動のマグマ発散物の分化の大小により, H^+ 濃度(酸濃度)の変化があり, 溶出模型実験で得られたように, 新たに金属元素の溶出があり, 極端な変動もあるものと思われる。

この事から, 大沸泉水中に含まれている, 塩化物イオン, 硫酸イオンの濃度変化により, 金属成分(Fe , Al , Ca)の溶存にどのような変動があるか, Cl/Metal , SO_4/Metal 比で示す(図6a, 6b)。 Cl/Metal 比では Fe , Al , Ca 共に1970年頃までほとんど一定比で溶存していたが, 1972年以降,

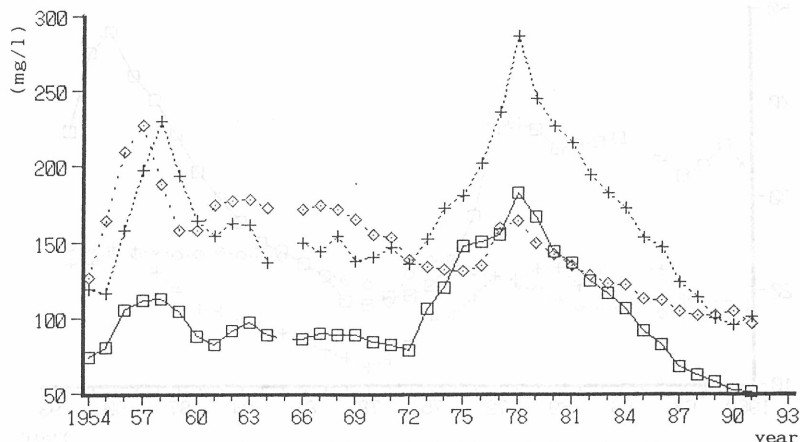


Fig. 4 Variation in Al, Ca and Fe Contents of Obuki Spring

□鉄 +アルミニウム ◇カルシウム

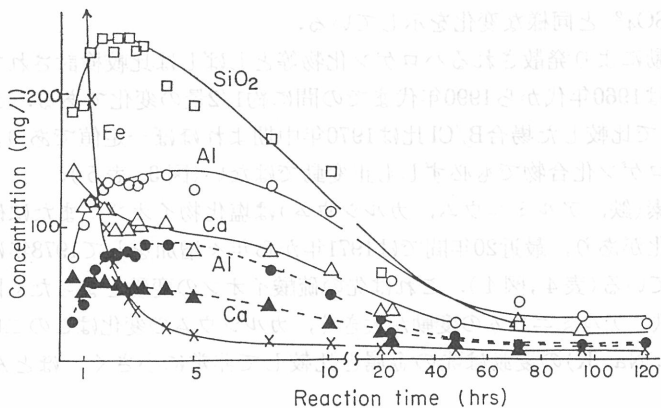


Fig. 5a Amounts increased in concentrations of components in the hot spring water after reaction with rock at each stage of interaction

The solid line: Sample about 50g.

The dotted line: Sample about 25g.

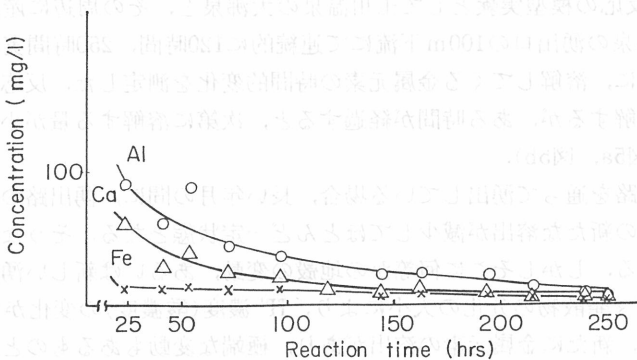


Fig. 5b Amounts increased in concentration of componets in the hot spring water after reaction with rock (about 50g) at later stage of interaction

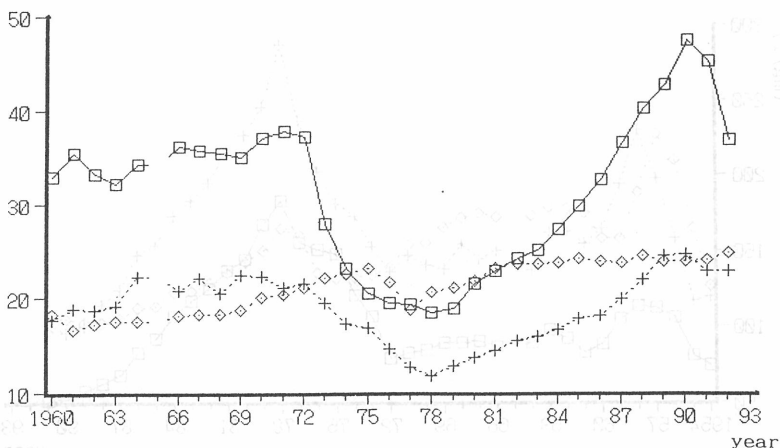
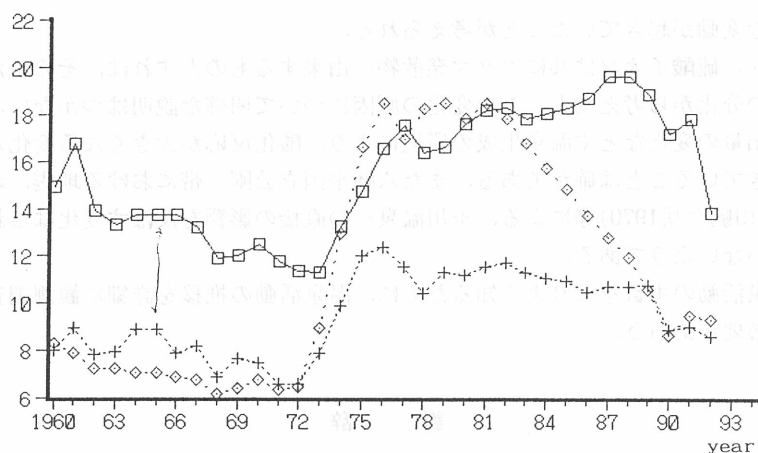


Fig. 6a Ratio of Variation in Cl/Metal Contents

□ Cl/Fe + Cl/Al ◇ Cl/Ca

Fig. 6b Ratio of Variation in SO₄/Metal Contents□SO₄/Fe +SO₄/Al ◇SO₄/Ca

特にCl/Fe比に大きな変化があり、1978年までは減少傾向であり、その後は増加をしている。この間(1972~1984)の塩化物イオン濃度はほぼ一定であることから、この変化は主として鉄の濃度変化による増減変動である。またCl/Al, Ca比は、鉄ほど変動せず、わずかな変化で経年している。一方SO₄/Metal比はCl/Metal比と同様に1972年までは、ほぼ一定比であったが、1972年以降には大きな変化であった。特にSO₄/Feは1972年以降1988年まで増加しており、必ずしもその傾向は一致していない。しかし、SO₄/Alは1975年以降10数年間はほぼ一定比であり、これはSO₄濃度とAl濃度の経年変化が正の変化を繰り返していたことといえる。

この様にして火山性酸性泉の場合、火山活動によりマグマ発散物の地下水への導入のされかたの大小により、温泉水の酸濃度(pH)の値が変り、またその熱水と岩石の接触の状況との相異で金属元素の溶出が変化する。他方地震や地殻変動等の原因により湧出通路の变化や、新しい岩石との接触により、岩石からの金属元素の溶解は一時的に大きくなる。しかしそれが再び時間の経過と共に減少し一定量を示すようになる。これはその成分が溶液中で飽和に達しているということではない。ただこの玉川温泉(大沸泉)での塩化物イオンの変化に比べ、1972年以降の硫酸イオンの変化は非常に大きく、これはマグマ発散物の分化だけにより説明することは非常にむずかしく、この約20年間の変動は1950年代から60年代の玉川温泉の性質とは異なったものになってきたと思われる。

4 結 論

火山活動に伴う火山現象の一面として、温泉活動を考え、この温泉の消長を知ることは、温泉そのものの性質の変動(温度, pH, 湧出量, 濃度, 溶存成分の変化等)を測定することが最も重要なことと考え、これまで約30数年間の玉川温泉大沸泉の推移を観測し続けてきている。一般に大沸泉は日本の火山性酸性泉としては、珍しく著しい変化はないといつてよいくらい、性質の変動もごくわずかであるといわれてきた。しかし長い年月の間には、これまで記したようなさまざまな変化があり、特に最近の硫酸成分の変動ははげしい、1972年にはそれまで測定された値の最低値である900mg/lであったが、その後は年々高くなり、1978年には3000mg/lと最高値を示した。これは塩化物濃度に等しい値である。1979年以後は年々減少し、この1年余りは再び900mg/l以下を示している。同時にその間のフッ化物イオンの変動も硫酸成分の変化によく類似してお

り、何か大きな変動が起きていたことが考えられる。

塩化物イオン、硫酸イオンは共にマグマ発散物に由来するものとすれば、その量が変化しなければ、それらの分化から考えても、この変化の原因について明確な説明はつかない。ただ温泉活動において湧出量の変化などや温泉生成の環境により、酸化反応が大きくなる変化など、なんらかの変化が起きていることは確かである。また八幡平国立公園一帯における地震、地熱開発および火山噴火(秋田駒ヶ岳1970)等による、玉川温泉への直接の影響を及ぼす変化はこれまでのところ見出されていないようである。

今後この温泉活動の本質をよりよく知るために、温泉活動の推移を詳細に観測調査研究し、さらに検討する必要がある。

謝 辞

本研究に終始御指導をいただいた東京工業大学名誉教授岩崎岩次先生に深く感謝申し上げます。また1959～1964年までの試料の提供と種々の御助言をいただいた埼玉大学名誉教授小澤竹二郎先生に深く感謝申し上げます。

文 献

- 1) 岩崎岩次：玉川温泉の地球化学的研究，温泉科学，14 (2)，27-37 (1963)
- 2) 岩崎岩次：温泉の化学，温泉科学，21 (2)，49-64 (1970)
- 3) 後藤達夫，梅津芳生，浅部喜幸：玉川水系の水質の総合解析(1)，水温の研究，25 (4)，5544-5557 (1981)
- 4) 後藤達夫：酸性温泉水の処理対策，温泉科学，32 (3)，105-123 (1982)
- 5) 梅津芳生，後藤達夫，浅部喜幸：玉川温泉水の石灰岩による中和反応効果に関する試験研究，温泉科学，32 (4)，164-179 (1982)
- 6) 後藤達夫：玉川温泉の化学組成と玉川の水質改善，温泉科学，41 (1)，1-35 (1990)
- 7) Eiiti Minami : "Geochemistry of the Tamagawa Hot Springs. (1963) I. Iwasaki et al p7-72
- 8) 綿抜邦彦：北投—その地球化学，地球化学，Vol. 24 (2) p79-83 (1990)
- 9) 玉川温泉研究会第十周年誌(1959)南 他：p125-162
- 10) 岩崎岩次：“火山化学”講談社(1970)
- 11) 吉田 稔，小沢竹二郎，岩崎岩次，小坂丈子：固化する温泉十勝岳新々噴火口温泉と温泉固化生成物(温泉のかたまり)，温泉科学，19 (1)，1-14 (1968)
- 12) 岩崎岩次，吉池雄蔵，吉田征子，大森禎子，安田清江：玉川毒水の水質(その1)鉄の含有量，工業用水，No. 224，28-38 (1977)
- 13) 岩崎岩次，吉池雄蔵，吉田征子，大森禎子：玉川温泉における岩石と温泉水との連続反応による温泉水の濃度変化，温泉科学，27 (1)，1-16 (1976)
- 14) Iwaji Iwasaki, Yuzo Yoshiike, Seiko Yoshida, Teiko Omori: Studies by the dynamic method on the reaction of rock with hot spring water of the Tamagawa Hot Springs in Japan. : Pub. No119 of the International Association of Hydrological Science, Proc. of the Grenoble Symposium. France p119-127 (1975)
- 15) 吉池雄蔵：酸性温泉水中のホウ素の定量，地球化学討論会要旨集(1969)
- 16) 内海 喩，伊藤舜介，磯崎昭徳：極微量のホウ素の抽出光度定量，日化誌，86 (9)，921-925 (1965)
- 17) 内海 喩，磯崎昭徳：天然水中のホウ素の抽出吸光度定量，日化誌，88 (5)，545-549 (1967)
- 18) 磯崎昭徳，内海 喩：岩石中のホウ素のメチレンブルー-テトラフルオロホウ酸錯塩による抽出吸光

- 光度定量, 日化誌, **88** (7), 741-744 (1967)
- 19) 三浦彦次郎: 渋黒温泉成因の化学的研究, 日化誌, **59**, 179, 375, 597 (1938), **60**, 257, 526 (1939), **61**, 761 (1940), **77**, 417 (1956)
- 20) 岩崎岩次: 温泉の化学—温泉の生成機構を中心として—, 温泉科学, **27** (2/3), 42-69 (1976)
- 21) Yuzo Yoshiike, Takeziro Ozawa, Iwaji Iwasaki: Variation in Chemical Composition of Obuki Spring in the Tamagawa Hot Spring, Akita Prefecture, Japan. Kagoshima International Conference on Volcanoes, Proceedings p894-897 (1988); 吉池雄蔵, 小沢竹二郎, 岩崎岩次: 秋田県玉川温泉の溶存成分の経年変化. 鹿児島国際火山会議論文集, p961-964 (1988)
- 22) 太秦康光, 室住正世: 温泉の化学的研究, 日化誌, **76** (8), 844-855 (1955), **77** (2), 267-270 (1956)
- 23) Tsutomu Abiko: Temporal Variation in Chemical Composition of Hot Spring Waters Accompanied with Volcanic Activities. Kagoshima International Conference on Volcanoes, Proceedings p354-357 (1988)
- 24) 岩崎岩次, 山谷和久: 日本の温泉から湧出される物質, 火山, **18** (3), 143-152 (1973)
- 25) 岩崎岩次: 玉川温泉(秋田県)はどこからくるか, 温泉科学, **42** (3), 123-138 (1992)
- 26) 松葉谷治, 越中浩, 小室昭一: 秋田県の温泉の同位体地球化学的調査報告, 秋田大学鉱山学部地下資源研究施設報告, 第48号, 昭和58年3月(1983)