

原 著

## 北海道における改正温泉法によるメタン検出温泉の分布とその地球化学的特徴

内野栄治<sup>1)</sup>, 青柳直樹<sup>1)</sup>, 中山憲司<sup>1)</sup>

(平成 22 年 1 月 8 日受付, 平成 22 年 2 月 3 日受理)

### Regional Distribution and Geochemical Characteristics of Hot Springs Detecting Methane Based on “the Revised Hot Spring Law” in Hokkaido

Eiji UCHINO<sup>1)</sup>, Naoki AOYANAGI<sup>1)</sup> and Kenji NAKAYAMA<sup>1)</sup>

#### Abstract

In June 2007, a tragic gas explosion which took 3 lives, occurred by methane released from hot spring water in a spa facility, Shibuya-ku, Tokyo. Therefore, the Ministry of the Environment revised, the laws regulating hot springs to prevent further accidents like this, issued in November 2007, and coming into force in October 2008. Immediately, determinations of methane in the field with portable gas detectors were started, based on official manuals. This study reports the detection rate, regional distribution, geochemical characteristic, and strata of gas reservoirs etc. of hot spring released methane measured in 685 samples from all parts of the Hokkaido area. The results can be summarized as follows ;

1) There were 89 samples that exceeded the A test for methane detection and where it was needed to take measures to protect against disasters from methane. 2) There were 20 samples where the B test for methane detection showed it to be necessary to provide facilities to separate methane from the hot spring water. 3) Communities where at least one sample was detected, distributed widely across Hokkaido. 4) The hot spring water types were 63% of Na-Cl and 19% of simple spring waters. These two accounted for more than 80% of all hot springs where methane was detected in Hokkaido. 5) There were 33% of moor type hot spring water containing humic substances. 6) Among the main anions in hot springs where methane was detected, the composition and concentration of  $\text{SO}_4^{2-}$  was very low. 7) Most Na/Cl concentration ratios in hot spring waters where methane was detected were similar to that of sea water. 8) Many B/Cl mol ratios in hot spring waters where methane was detected showed a strong contribution of sea water. 9) The main reservoirs of hot spring water were : 80% from sedimentary rocks, and 15% from volcanic or igneous rocks. 10) Although the origins of the methane in the hot spring

<sup>1)</sup> 北海道立衛生研究所 〒060-0819 札幌市北区北 19 条西 12 丁目。 <sup>1)</sup> Hokkaido Institute of Public Health, North 19, West 12, Kita-Ku, Sapporo, Hokkaido 060-0819, Japan.

waters were uncertain, it may be assumed to originate in decomposition by bacteria of organic matter accumulated on the bottom of the sea or in wetlands in the ancient period from the main strata where the hot spring water is pumped up, or from the chemical characteristics such as pH, temperature,  $\text{SO}_4^{2-}$  concentration, Na/Cl ratio, B/Cl ratio, etc.

Key words : Revision of hot spring law, methane, flammable natural gas, hot spring water, portable gas detector, hot springs in the Hokkaido Area

## 要　　旨

2007 年 6 月、東京都渋谷区の温泉施設で可燃性天然ガス（メタン）による爆発火災が発生し、痛ましい人身事故がおきた。これを契機に環境省は温泉の採取に伴うメタンによる災害を防ぐため、温泉法を改正し、2008 年 10 月から施行した。当所では直ちに環境省告示（2008）の「温泉法におけるメタン濃度測定手法マニュアル」に基づき、携帯型可燃性天然ガス検出器によるメタン濃度現地試験を開始した。ここでは 2009 年 3 月までに当所を含む 6 分析機関で実施した道内 685 カ所の源泉の分析結果を基に、その検出率、検出した源泉の地域分布、泉質の特徴並びに主採取地層等について検討した。その結果、災害の防止のための措置を必要としない A 試験の基準を超過した 89 カ所、温泉水から可燃性天然ガスを分離するための B 試験の基準に係わる試験を実施した 20 カ所を検出したと判定し、検出率は約 16% であった。また、1 カ所でも検出した源泉がある市町村は調査した市町村全体の約 47% を占め、広域に分布していた。その泉質は強食塩泉を含む食塩泉系の温泉が最も多く 63%，以下、単純温泉が 19%，単純硫黄泉と冷鉱泉が 6%，重曹泉系の温泉が 5% を占めた。また、温泉水の色調、鉄含量、腐植質の分析結果等から、モール系と推定される源泉が少なくとも 33% あった。さらに、 $\text{SO}_4^{2-}$  が検出されない極めて嫌気的な環境にあった源泉が 51% あった。また、メタンを検出した温泉水の多くは Na/Cl 濃度比や B/Cl モル比などから海水の影響を強く受けていることが示唆された。一方、これらの貯留層の母岩は 80% が主に堆積岩類、15% が主に火山岩もしくは火成岩類からなっていた。従って、今回検出されたメタンの多くは源泉の泉質、貯留層の母岩、嫌気的環境等から約 160 万年以上前の新第三紀の太古に海底や低湿地に堆積した有機物がメタン細菌等の微生物により分解されたものと推定された。

キーワード：改正温泉法、メタン、可燃性天然ガス、温泉水、携帯型ガス検知器、北海道の温泉

## 1. はじめに

2007 年 6 月、東京都渋谷区の温泉施設で可燃性天然ガス（メタン）による爆発火災が発生し、女性従業員 3 名が死亡、通行人 1 人を含む 4 人が重傷を負うという痛ましい事故が起きた。2007 年 11 月、環境省はこれを契機に温泉の採取に伴い発生する天然ガスによる災害を防止するため、温泉法の一部を改正（改正温泉法、2007）した。それにより、温泉を汲み上げている、また汲み上げようとする全ての事業者に対して、温泉におけるメタン濃度を確認すること、そしてメタンが基準値を超えた場合、あるいは事前に相当量含まれていることが明らかな場合、安全対策を実施することが義務づけられた。

2008 年 10 月からの法律の施行に合わせ、当所では直ちに、「メタン濃度現地測定の依頼試験」を開始した。本試験の目的は温泉水中のメタン濃度を求めることがではなく、温泉を採取している施設の安全性を確保することにある。

ここでは 2009 年 3 月までに当所で携帯型ガス検知器を用いて実施した 120 カ所に加え、他の分析機関で同様に実施した道内 685 カ所の分析結果を基に、メタンを検出した源泉の割合と地域分布を明らかにし、それらの泉質、主要成分組成の特徴並びに主採取対象地層の岩相等について検討した。

## 2. 方 法

測定は 2008 年 7 月に策定された環境省告示の「温泉法におけるメタン濃度測定手法マニュアル」(環境省自然環境局, 2008a) に基づき携帯型可燃性ガス検知器を用いて実施した。手法は Table 1 に示す A, B, C 試験の中から目的に合った試験を選び、メタンの採取状況並びに施設の構造等に応じ、水上置換法、槽内空気測定法、ヘッドスペース法を使い分けた。

なお、%LEL は可燃性ガスが空気と混合し、着火により爆発を起こす下限界 (Lower Explosion Limit) vol% 濃度を 100% LEL として表わす単位を言う。例えばメタンの場合、LEL が 5% であることから、50% LEL は 2.5% に相当する。また、本論文では災害の防止のための措置を必要としない A 試験の基準を超過、もしくは温泉水に相当量のメタンが既に含まれ、温泉水から可燃性天然ガスを分離するための設備を有するため、B 試験を実施したものと“検出した”と定義した。

Table 1 Analytical methods of flammable natural gas methane detected in hot spring waters with the portable gas detector

表 1 携帯型ガス検出器を用いた温泉の可燃性天然ガス（メタン）の分析方法

測定調査	測定調査の基準	測定方法	基準値
(A)	災害の防止のための措置を必要としない基準	水上置換法	50% LEL
		槽内空気測定法	25% LEL
		ヘッドスペース法	5% LEL
(B)	温泉水から可燃性天然ガスを分離するための基準	槽内空気測定法	25% LEL
		ヘッドスペース法	5% LEL
(C)	可燃性天然ガス排出口の基準	槽内空気測定法	25% LEL

(% LEL : 爆発下限界に対する割合を百分率で表したもの。)

当所で分析した源泉の所在地と件数は 31 市町村、120 件であった。その後、道内全体の検出状況を把握するため、釧路、旭川、函館、苫小牧、札幌にある登録分析機関にも協力を頂き、調査した源泉と検出した源泉の所在地を明らかにした。また、検出した源泉の泉質、主採取対象地層は当所で保管する最新の分析書、北海道鉱泉誌 (内野ら, 2005), 北海道地熱・温泉ボーリング井データ集 (松波ら, 1991, 1996, 2001) 等を用いて調べた。

## 3. 結果および考察

### 3.1 メタンの検出率

2008 年 3 月末現在 (環境省自然環境局, 2008b), 道内には 2,308 カ所に源泉が存在し、実際に利用されている源泉は 1,362 カ所ある。従って、ここで調査し解析した源泉は利用源泉数の約 5 割に相当する。

メタンの検出状況は Fig. 1 に示すように、A 試験の基準、すなわち、水上置換法の基準値 50% LEL、槽内空気測定法の基準値 25% LEL、ヘッドスペース法の基準値 5% LEL のいずれかを超えたものが 13.0%，揚湯試験や汲み上げ時に相当量のメタンが含まれ、既にガスセパレータ等の施設が整備されているため B 試験を実施した源泉が 2.9% あった。その結果、道内温泉においてメタンを検出した源泉は全体の約 16% あったことになる。これは温泉水に付随するメタンに対して安全対策を全く行わないで、従前通り汲み上げが可能な源泉が少なくとも約 84% あったことを意味している。

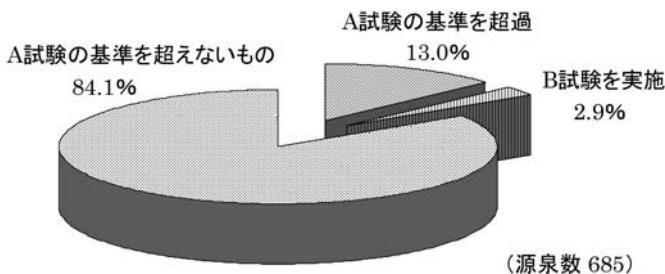


Fig. 1 Detection rates of methane gas from hot spring waters in Hokkaido

図1 道内温泉におけるメタンの検出状況

Fig. 2 にメタンを検出した源泉の地域分布を示す。調査した市町村は 26 市 81 町 8 村および、1 カ所でも検出した源泉を有する市町村は 16 市 35 町 3 村に達した。また、A 基準を超過した源泉 89 カ所を●、B 試験を実施した源泉 20 カ所を▲で示す。このようにメタンを検出した源泉は道内各地に広く見られた。

### 3.2 メタンを検出した源泉の泉質とその地域分布

メタンを検出した源泉の泉質を Table 2 に旧泉質名と新泉質名で示す。先に旧泉質名で大別すると、食塩泉が 54.9% と最も多く、以下、単純温泉 19.6%，硫黄泉 11.8%，冷鉱泉 5.9%，重曹泉 3.9%，

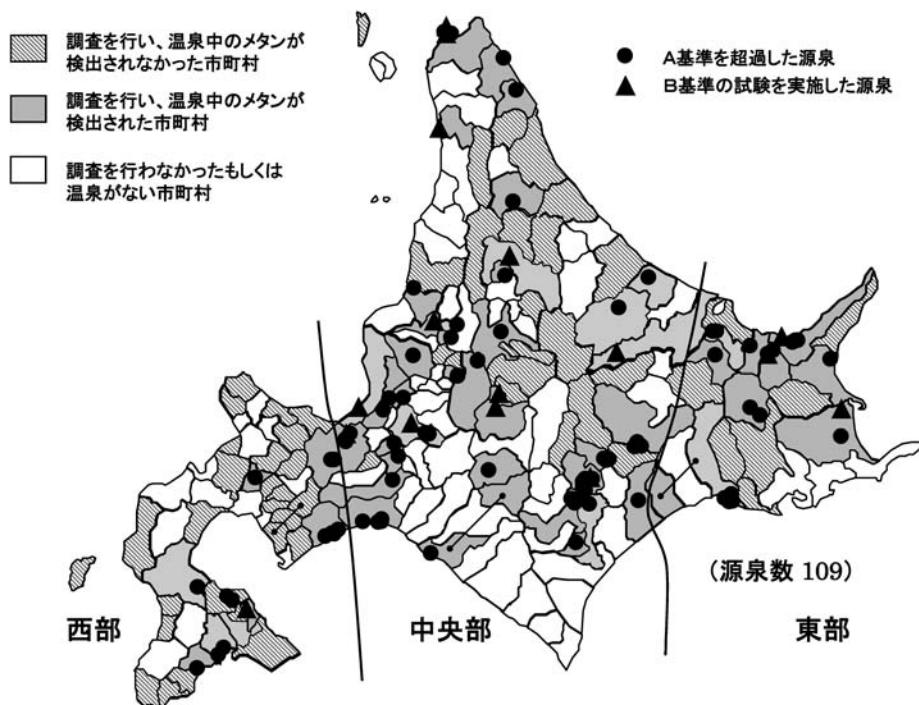


Fig. 2 Regional distribution of communities which were investigated for methane in hot spring waters and which released methane in Hokkaido

図2 道内においてメタンを調査した市町村と検出した温泉の地域分布

鉄泉 2.9%, 塩化土類泉 1.0% であった。一方、酸性泉や硫酸塩泉等は全く見られなかった。これは当所で分析した道内温泉の約 950 カ所の泉質の傾向、食塩泉 41%, 単純温泉 21%, 硫黄泉 11%, 重曹泉 8%, 芒硝泉 8%, 酸性泉 3%, 塩化土類泉 3%, 冷鉱泉 3% から判断しても食塩泉が際立つことが多い。また、新泉質名から解るように旧泉質名の硫黄泉、鉄泉の中には基本的に食塩泉に分類されるものが多い。それらの結果を踏まえ、メタンを検出した源泉を再分類すると、Fig. 3 に示すように

Table 2 Chemical water types and details of hot spring water where methane was detected in Hokkaido

表 2 道内においてメタンを検出した温泉の泉質とその内訳

旧泉質名	新泉質名	源泉数
食塩泉 (57)	ナトリウム-塩化物泉	28
	ナトリウム-塩化物強塩泉	11
	ナトリウム-塩化物・炭酸水素塩泉	12
	ナトリウム-強塩化物・炭酸水素塩泉	1
	ナトリウム・カルシウム-塩化物泉	5
鉄泉 (3)	含鉄-ナトリウム-塩化物強塩泉	3
硫黄泉 (12)	含硫黄-ナトリウム-塩化物泉	1
	含硫黄-ナトリウム-塩化物・炭酸水素塩泉	2
	含硫黄-ナトリウム・カルシウム-塩化物泉	1
	含硫黄-カルシウム・ナトリウム-塩化物泉	1
	含硫黄-ナトリウム-炭酸水素塩・硫酸塩・塩化物泉	1
	単純硫黄温泉	6
塩化土類泉 (1)	カルシウム・ナトリウム-塩化物泉	1
重曹泉 (4)	ナトリウム-炭酸水素塩泉	1
	ナトリウム-炭酸水素塩・塩化物泉	3
単純温泉 (19)	アルカリ性単純温泉	8
	単純温泉	11
冷鉱泉 (6)	冷鉱泉	6
(源泉数 102)		

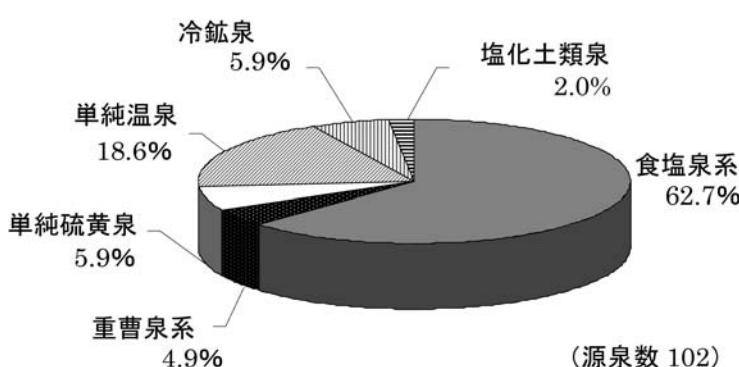


Fig. 3 Re-classification of the chemical water-type of hot springs which released methane in Hokkaido

図 3 道内においてメタンを検出した温泉の再分類による泉質別割合

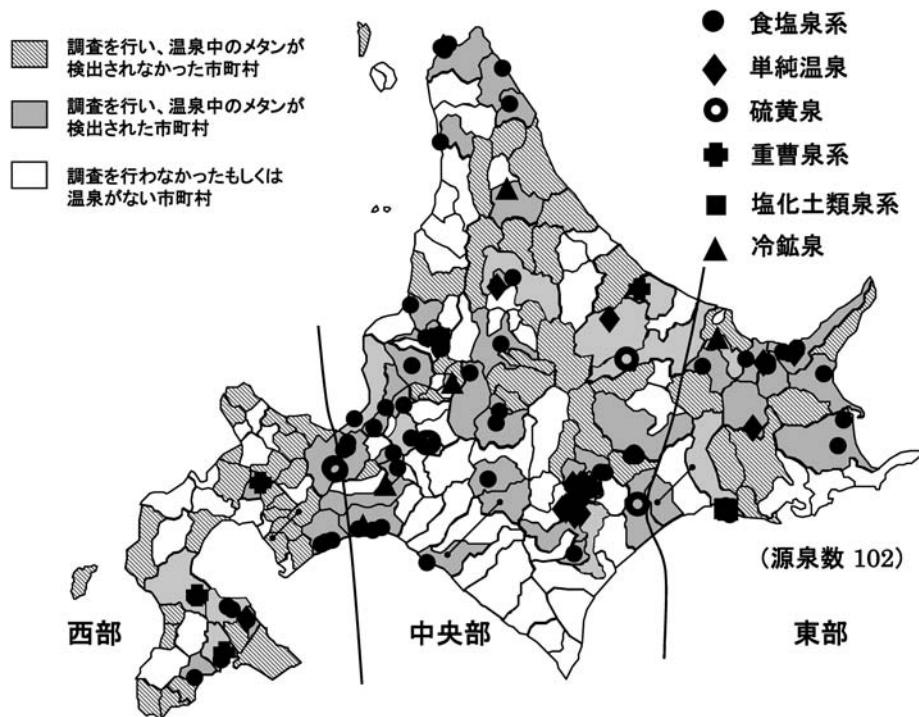


Fig. 4 Regional distribution by water-types of methane detected hot springs in Hokkaido

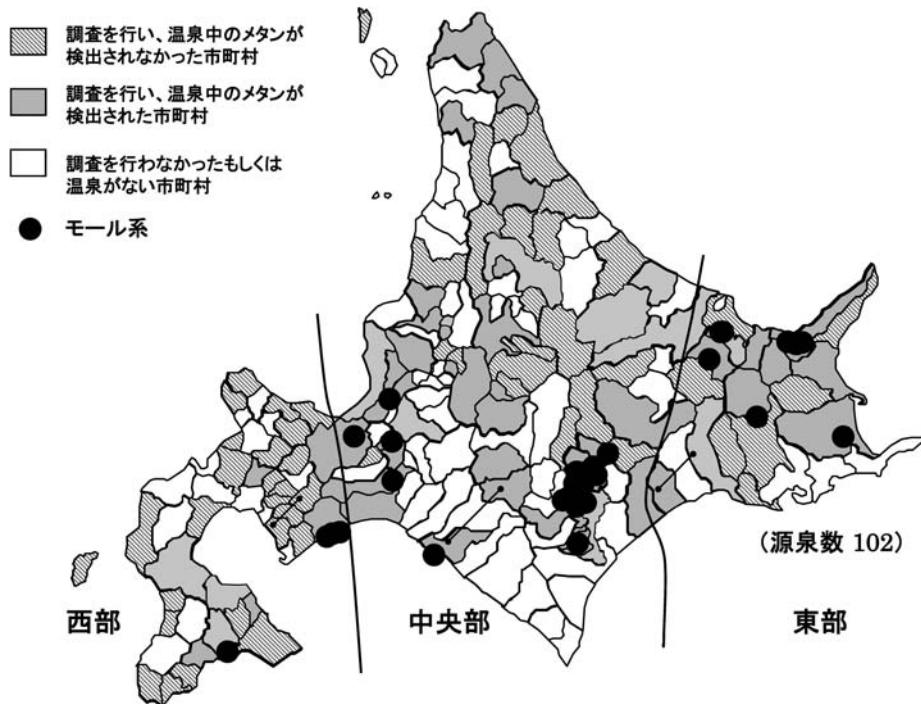
図4 道内においてメタンを検出した温泉の泉質別地域分布

食塩泉系の温泉と単純温泉が大多数を占め、各々が全体の約64%と約19%を占め、両者で全体の8割を超えた。さらに食塩泉系の中では、1kg当たり $\text{Na}^+$ が5.5g,  $\text{Cl}^-$ が8.5gを超える強食塩泉が約23%を占めた。

次に、液性について鉱泉分析法指針（環境省自然環境局、2002）に基づき述べると、メタンを検出した源泉のpHは6.8～9.8の範囲にあり、弱アルカリ性が最も多く、全体の71.6%を占め、以下、アルカリ性と中性が共に18.6%を占めた。泉温は6.1～70.9°Cの範囲にあり、高温泉が49.0%と最も多く、以下、冷鉱泉21.6%，温泉と低温泉がいずれも14.7%であった。浸透圧について見ると低張性の温泉が最も多く、全体の71.6%を占め、以下、高張性の温泉が25.5%，等張性の温泉が2.9%を占めた。これらを道内温泉の一般的な傾向（内野ら、2005）と比較すると、pHは弱アルカリ性、泉温は比較的低温、そして浸透圧は高張性の温泉が多かった。

一方、北海道は地質構成上の大まかな特徴（日本の地質『北海道地方』編集委員会、1993a）から北海道西部、中央部、東部の三つに区分されている。これは特に第三紀の地層や火山、資源等の記述に有用とされる。今回、メタンを検出した温泉水を採取した地層は新第三系が圧倒的に多く、不明なものを除き、全体の約86%を占めた。その新第三系の堆積相を地域毎に述べると、西部は激しい海底火山活動によって形成された火山岩や火碎岩からなり、東部は一部で泥質岩が多いものの、西部と類似し火山岩や火碎岩に富んでいるとされる。また、中央部は日高山脈を境にその西側が主に海成の厚い堆積岩、東側が瀬戸内海～内陸の堆積盆、北～北東部がグリーンタフを伴い、火山岩や火碎岩からなるなど堆積相が地域により異なるとされる。

道内における可燃性天然ガス田（日本の地質『北海道地方』編集委員会、1993b）は1920年代ま



でに道北の豊富町の新第三系の貯留層で発見されて以来, その近隣の遠別町, 道南の長万部町等で開発されてきた。また, 横山・松波(1998)は道内温泉の成因調査並びに開発や利用を目的に, 1970年代から長年にわたって温泉に付随する天然ガス(酸素, 二酸化炭素, 窒素, メタン等)を分析する中で, ガスクロマトグラフを用いてメタンを測定している。その結果, メタン型は堆積岩からなる厚い古第三系・新第三系~第四系の堆積盆において主体であったと総括している。

メタンを検出した源泉の泉質別地域分布をFig. 4に示す。最も多い食塩泉系の温泉は道内各地に広く分布していた。その中で強食塩泉は北海道中央部の日高山脈の西側に位置する稚内市, 天塩町, 留萌市, 新十津川町, 岩見沢市, 札幌市, 南幌町, 長沼町, 苦小牧市で見られた。これらの温泉の主採取地層は主に新第三紀鮮新世堆積岩類, 新第三紀中新世堆積岩類およびその混合で全て堆積岩からなっていた。なお, 今回メタンを検出した食塩泉系温泉の採取地層は不明な5源泉を除き, 堆積岩類が全体の約85%を占め, 堆積岩類と火山岩類の混合が約5%, 火山岩類が10%を占めた。

次に多い単純温泉は日高山脈の東側に位置する帯広市, 音更町, 幕別町を中心とした十勝平野の他, 北海道東部の清里町, 斜里町および弟子屈町, 北海道西部の鹿部町, 北海道中央部の北~北東に位置する遠軽町, 劍淵町で見られた。十勝平野の温泉の採取地層の大部分は主に新第三紀鮮新世堆積岩であった。他の地域の採取地層は弟子屈町, 鹿部町および遠軽町が新第三紀中新世火山岩類, 清里町が新第三紀鮮新世火山岩類・新第三紀中新世火山岩類の混合, 劍淵町が新第三紀中新世火山岩類・先新第三紀火成岩類の混合, 斜里町が新第三紀鮮新世堆積岩類・新第三紀中新世堆積岩類・新第三紀中新世火山岩類の混合であった。その他, 単純硫黄泉は浦幌町, 北見市(旧留辺蘂町), 岩見沢市(旧栗沢町)と札幌市の一部で, 重曹泉系は上湧別町, 音更町の一部, 北斗市(旧上磯町),

八雲町で、塩化土類泉は釧路市のみで、冷鉱泉は大空町（旧女満別町）、音更町と苫小牧市の一帯、歌志内市、千歳市でそれぞれ見られた。

一方、泉質とは別に、温泉水の色調、鉄含量、腐植質濃度（青柳ら、2005）等から判断し、少なくともモール系と推定される温泉は約33%あった。その分布はFig. 5に示すように、北海道中央部の十勝平野の音更町、士幌町、帶広市、幕別町、更別村、石狩平野の札幌市、千歳市、当別町、南幌町、勇払平野の白老町、日高町（旧門別町）、北海道東部の斜里町、別海町、大空町（旧女満別町）、美幌町、弟子屈町、北海道西部の北斗市（旧上磯町）で見られた。これらの主な採取地層は弟子屈町の新第三紀鮮新世火山岩類と千歳市の第四紀堆積岩類を除き、全て新第三紀鮮新世堆積岩類、新第三紀中新世堆積岩類またはそれら二つの混合であった。

### 3.3 メタンを検出した源泉の成分組成

メタンを検出した源泉の化学的特徴を明らかにするため、蒸発残渣物1 g/kg以上について、主要陰イオン $\text{Cl}^-$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{HCO}_3^-$ の組成比（当量%）をFig. 6に示す。 $\text{Cl}^-$ 型が圧倒的に多く、 $\text{SO}_4^{2-}$ 型は全くなかった。またFig. 7に示すように、メタンを検出した全源泉中、 $\text{SO}_4^{2-}$ を検出しない（1 mg/kg以下）源泉が51.0%見られた。これらは温泉を胚胎している多くの貯留層が硫酸還元により極めて嫌気的な環境にあることを示唆している。一方、 $\text{SO}_4^{2-}$ 濃度が比較的高い源泉は札幌市の一帯と北海道西部のニセコ町、八雲町および鹿部町で見られた。この札幌市の温泉の貯留層は主に新第三紀堆積岩類と新第三紀中新世堆積岩類の二つからなり、泉質は強食塩泉であった。このような傾向は他の強食塩泉では見られないことから現海水の影響を受けている可能性がある。八雲町の温泉の主な貯留層は新第三紀中新世堆積岩類であったが、その泉温は49.8~64.3°Cであり、同じ堆積岩類を貯留層とする温泉と比べ非常に高かった。これは八雲地域のこの周辺で発達した割れ目が地表

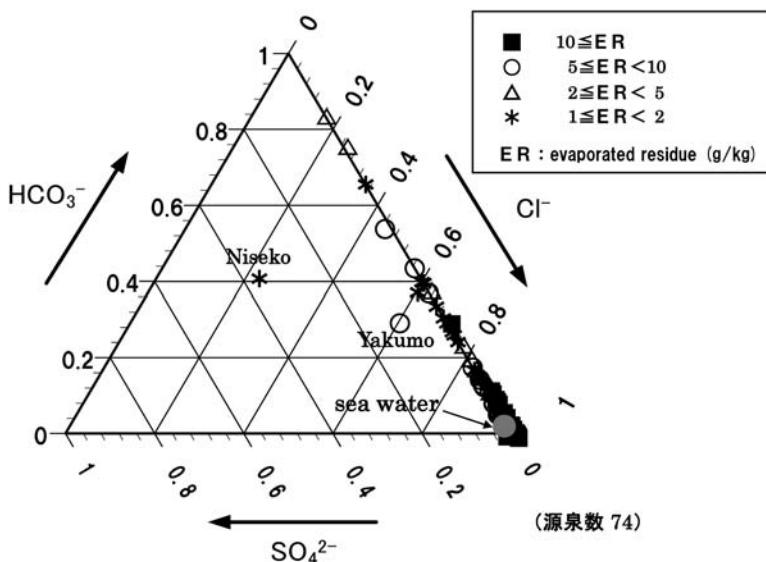


Fig. 6 The proportion (meq., %) of main anion  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ , and  $\text{HCO}_3^-$  of hot spring waters where methane was detected in Hokkaido

●: concentration data for sea water are quoted from Nishimura (1983).

図 6 道内においてメタンを検出した温泉の主要陰イオン $\text{Cl}^-$ と $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{HCO}_3^-$ 組成 (m 当量, %)

●: 海水のデータは西村 (1983) から引用

近くの泉脈をなしているという報告（北海道立地下資源調査所編, 1976）と関連していると思われる。ニセコ町の温泉の主な貯留層は主に新第三紀中新世火山岩類からなっていた。

メタンを検出した源泉の  $\text{Na}^+$  と  $\text{Cl}^-$  濃度の関係を Fig. 8 に示す。一部の強食塩泉と塩化土類泉を除く多くの温泉の  $\text{Na}^+/\text{Cl}^-$  濃度比は、海水のその組成比に極めて近いライン上にプロットされる。これは海水の影響を強く受けている温泉が非常に多いことを示唆している。ラインから外れた

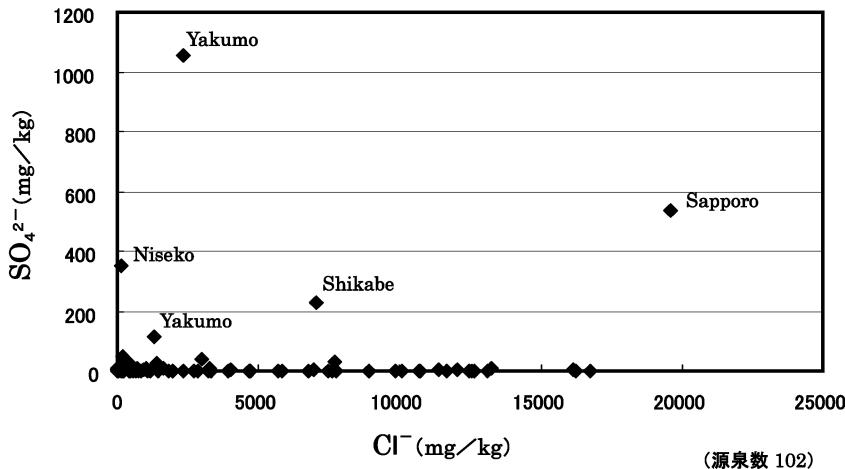


Fig. 7 Relationship between  $\text{SO}_4^{2-}$  and  $\text{Cl}^-$  concentrations of hot spring waters with detected methane in Hokkaido

図 7 道内温泉においてメタンを検出した温泉の  $\text{SO}_4^{2-}$  と  $\text{Cl}^-$  濃度の関係

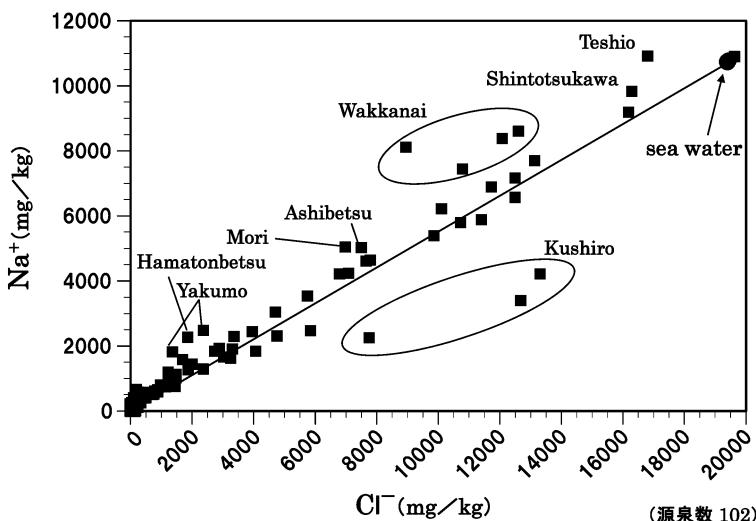


Fig. 8 Relationship between  $\text{Na}^+$  and  $\text{Cl}^-$  concentrations of Hot Springs where methane was detected in Hokkaido

● : concentration data for sea water are quoted from Nishimura (1983).

図 8 道内においてメタンを検出した温泉の  $\text{Na}^+$  と  $\text{Cl}^-$  濃度の関係

● : 海水のデータは西村ら (1983) から引用

稚内市の強食塩泉は天水により薄められているものの、 $\text{Na}^+/\text{Cl}^-$  濃度比が海水のそれと比べて明らかに高い。これは温泉を胚胎している地層中の岩石類から  $\text{Na}^+$  が溶出していることを示唆している。この傾向は強食塩泉である天塩町と新十津川町の他、食塩泉の芦別市、森町、八雲町、浜頓別町等の温泉でも見られる。一方、釧路市の温泉は逆に  $\text{Na}^+/\text{Cl}^-$  濃度比が海水のそれと比較し明らかに低く、ほぼその分だけ  $\text{Ca}^{2+}$  濃度が増加し 2,700~3,750 mg/kg とメタンを検出した源泉の中で最も高い値を示した。これらは水中の  $\text{Na}^+$  が貯留層の Ca 型スメクタイトのような粘土鉱物の  $\text{Ca}^{2+}$  とのイオン交換による結果を反映したものと思われる。

杉崎ら(1962)は我が国最大のメタン産出地域である「南関東ガス田」において、化石海水とされるガス付随水の特徴について詳細に検討した。その結果、水中での  $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{K}^+$  の減少、 $\text{Na}^+$  と有機物起源の  $\text{NH}_4^+$  と  $\text{HCO}_3^-$  の増加、地層中の  $\text{Na}^+$  と水中の  $\text{K}^+$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{Ca}^{2+}$  とのイオン交換による  $\text{Na}^+$  の増加、水中での生物起源と推定される  $\text{Br}^-$  と  $\text{I}^-$  の増加等を明らかにした。また、Maekawa *et al.* (2006) も同じ千葉県の「南関東ガス田」の多くの塩水について種々の化学成分を分析し、 $\text{I}^-$  濃度が高く、 $\text{NH}_4^+$  と  $\text{Br}^-$  濃度等の間で相関があることを報告した。これらは道内でメタンを検出した稚内市と天塩町の強食塩泉で見られた先の  $\text{Na}^+$  濃度の傾向、非常に高い  $\text{NH}_4^+$  濃度 (Fig. 9)、 $\text{HCO}_3^-$  濃度 (Fig. 10) 並びに海水と比べ明らかな  $\text{Br}^-/\text{Cl}^-$  や  $\text{I}^-/\text{Cl}^-$  濃度比の増加等を示す結果とよく一致していた。

次にメタンを検出した源泉の  $\text{B}/\text{Cl}$  モル比を Fig. 11 に示す。一般に  $\text{Cl}$  および  $\text{B}$  が少ない陸水起源の地下水から生成した高温の熱水では、 $\text{Cl}$  濃度は海水に比べて非常に低く、その  $\text{B}/\text{Cl}$  モル比は貯留層を構成している岩石の種類に対応することが知られている(茂野, 1992)。そして、火山岩の場合は 0.01~0.1 程度、海成の碎屑性堆積岩類の場合は 0.1~1.0 程度の値をそれぞれ示すとされる。一方、海水～化石海水起源の地下水が多量に混入する熱水系では 0.001~0.01 程度に低くなるとされる。これに従い、ホウ素濃度が極めて低い (1 mg/kg 未満) 5 試料を除き、ここで得られた結果をプロットすると、約 66% が 0.01~0.1 の範囲にあった。実際の温泉の貯留層は堆積岩類が約 81%、火山岩類が約 15% からなっていることから、これらの多くの貯留層が海水や化石海水の混入により  $\text{Cl}^-$  濃度の高い海水側へシフトした結果を反映したものと思われる。実際、海水～化石海水起源地下水の混入を示唆する  $\text{B}/\text{Cl}$  モル比 0.01 以下の温泉が約 24% あったことからもこの考え方を示す。

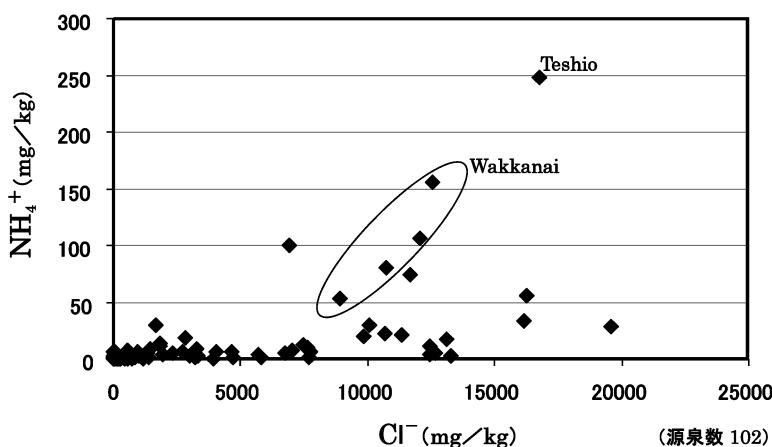


Fig. 9 Relationship between  $\text{NH}_4^+$  and  $\text{Cl}^-$  concentrations of Hot Springs where methane was detected in Hokkaido

図 9 道内においてメタンを検出した温泉の  $\text{NH}_4^+$  と  $\text{Cl}^-$  濃度の関係

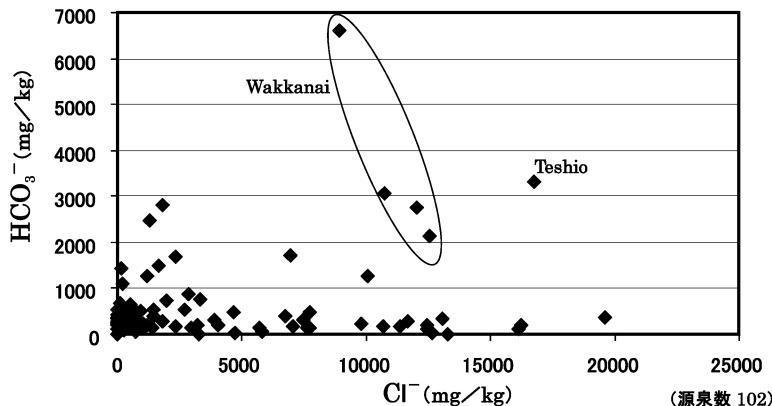


Fig. 10 Relationship between  $\text{HCO}_3^-$  and  $\text{Cl}^-$  concentrations of hot spring waters where methane was detected in Hokkaido

図 10 道内においてメタンを検出した温泉の  $\text{HCO}_3^-$  と  $\text{Cl}^-$  濃度の関係

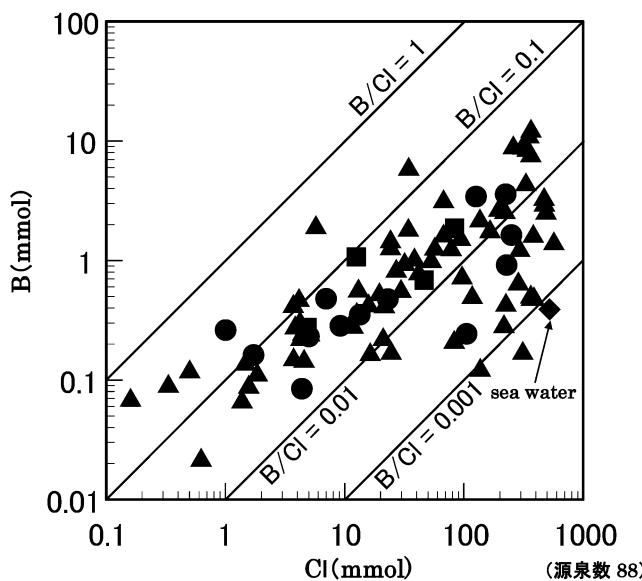


Fig. 11 B/Cl mol ratio of hot spring waters where methane was detected in Hokkaido  
◆ : concentration data for sea water are quoted from Nishimura (1983). ▲ : sedimentary rock, ● : volcanic rock or igneous rocks, ■ : both mixture

図 11 道内においてメタンを検出した温泉の B/Cl モル比  
◆ : 海水のデータは西村ら (1983) から引用. ▲ : 堆積岩, ● : 火山岩  
もしくは火成岩, ■ : 両者の混合

唆された。

### 3.4 道内温泉のメタンの起源

一般に地下深部のメタンの生成起源として、1) 地熱と圧力による化学的分解、2) 微生物による分解、3) 深部地殻ガスの無機反応または惑星始原ガス、の3点が考えられている（持丸・鎌形

2008). そのような地下深部のメタンの起源については様々な手法で検討されている。例えば、坂田ら (1996) は東北日本地域における新第三紀堆積盆地の火山性貯留岩と堆積性貯留岩に集積する天然ガスの起源について、ガス化学組成、ヘリウムの同位体比、メタンの炭素同位体比等を用いて検討し、浅層の微生物起源ガスと深層の熱分解起源ガスの混合モデルによって説明している。また、金子ら (2002) は南関東ガス田のメタンについて、その炭素同位体比、水素同位体比等を用いて測定した結果、 $\text{CO}_2$  ( $\text{HCO}_3^-$ ) と  $\text{H}_2$  ( $\text{H}^+$ ) から古細菌が  $\text{CH}_4$  を生成する  $\text{CO}_2$  還元反応による微生物起源であったと報告している。

今回、道内の温泉で検出されたメタンの起源は不明であるが、その多くは温泉を胚胎している地層が主に新第三系の堆積岩類であること、温泉水の特徴として強食塩泉を含む食塩泉やモール系温泉に多いこと、微生物が生育可能な泉温、pH であること、海水由来が多いということ、 $\text{SO}_4^{2-}$  がほとんど存在しないこと等から、約 160 万年以前の太古に海底や低湿地に堆積した有機物が微生物により分解され供給されたものと推定される。

#### 4. ま と め

道内の温泉において、携帯型ガス検出器を用いてメタンを検出した源泉の検出率、地域分布、泉質的特徴、主採取地層等について解析した。ここでの「検出」は、災害の防止のための措置を必要としない A 試験の基準を超過、もしくは温泉水からメタンを分離するための B 試験を実施したものとした。

調査解析した源泉は 115 市町村の 685 カ所であった。検出した源泉の内訳は A 試験の基準を超過した源泉が 89 カ所、B 試験を実施した源泉が 20 カ所あった。全体の検出率は 15.9% であった。検出した源泉がある市町村は 54 カ所に達し、道内各地に散在していた。泉質は食塩泉系の温泉が約 63% と最も多く、ついで単純温泉が約 19% であった。また、モール系と推定される源泉が少なくとも約 33% あった。そして、 $\text{SO}_4^{2-}$  がほとんど検出されない源泉が 51.0% あった。主採取地層は堆積岩が約 80%，火山岩類が約 15% であった。メタンの起源については不明であるが、温泉の採取地層、温泉水の特徴等から、多くは約 160 万年以前の太古、海底や低湿地に堆積した有機物が微生物により分解され供給されたものと推定した。

#### 謝 辞

調査にご協力頂いた北海道立地質研究所の高橋徹哉氏と(株)ホクカン、(株)環境総合科学、(株)環境科学研究所、太平洋総合コンサルタント(株)、(財)北海道薬剤師会公衆衛生検査センターの関係諸氏に、感謝申し上げます。

#### 引用文献

- 青柳直樹、市橋大山、内野栄治 (2005) : 北海道の温泉の腐植質濃度、第 58 回温泉科学会大会講演要旨集、p. 50.
- 北海道立地下資源調査所編 (1976) : 北海道の地熱・温泉 (A) 西南北海道中南部、p. 95、北海道立地下資源調査所、札幌。
- 改正温泉法 (2007) : 平成 19 年 11 月 30 日法律第 121 号
- 金子信行、前川竜男、猪狩俊一郎 (2002) : アーケアによるメタンの生成と間隙水への濃集機構、石油技術協会誌、67, 97-110.
- 環境省自然環境局編 (2008a) : 温泉法におけるメタン濃度測定手法マニュアル、環境省、東京。

- 環境省自然環境局編 (2008b) : 平成 19 年度温泉利用状況, 環境省, 東京.
- 環境省自然環境局編 (2002) : 鉱泉分析法指針, 環境省, 東京.
- Maekawa, T., Igari, S. and Kaneko, N. (2006) : Chemical and isotopic compositions of brines from dissolved-in-water type natural gas fields in Chiba, Japan, *Geochem. J.* **40**, 475–484.
- 松波武雄, 秋田藤夫, 高見雅三, 若浜 洋, 岡崎紀俊編 (1991) : 北海道地熱・温泉ボーリング井データ集～1990, 北海道立地下資源調査所, 札幌.
- 松波武雄, 鈴木豊重, 藤本和徳, 秋田藤夫, 若浜 洋編 (1996) : 北海道地熱・温泉ボーリング井データ集 1991～1996, 北海道立地下資源調査所, 札幌.
- 松波武雄, 秋田藤夫, 柴田智郎, 藤本和徳, 鈴木隆広, 高橋徹哉編 (2001) : 北海道地熱・温泉ボーリング井データ集 1996～2000, 北海道立地質研究所, 札幌.
- 持丸華子, 鎌形洋一 (2008) : 天然ガス田でメタンを作る微生物を探る, *BIO INDUSTRY*, **25**, 44–52.
- 日本の地質『北海道地方』編集委員会編 (1993a), 日本の地質 1 北海道地方, p. 80, 共立出版, 東京
- 日本の地質『北海道地方』編集委員会編 (1993b), 日本の地質 1 北海道地方, 190–192, 共立出版, 東京
- 西村雅吉編 (1983) : 海洋化学—化学で海を解く—, p. 4, 産業図書, 東京.
- 坂田 将, 高橋 誠, 猪狩俊一郎, 松久幸敬, 星野一男 (1996) : 火山性貯留岩に集積する天然ガスの炭化水素の起源に関する地球化学的研究, 地質調査所月報, **47**, 619–642.
- 茂野 博 (1992) : 熱水の深部環境を地球化学データから予測する, 地質ニュース, **457**, 16–33.
- 杉崎隆一, 吉本泰介, 加藤喜久雄, 杉浦 孜 (1963) : 南関東ガス田の地球化学的考察—とくにガス成分と鉱床の存在状態との関連について—, *Bull. Geol. Soc. Japan*, **69**, 67–81.
- 内野栄治, 青柳直樹, 市橋大山, 都筑俊文編 (2005) : 北海道鉱泉誌, 北海道立衛生研究所, 札幌.
- 横山英二, 松波武雄 (1998) : 北海道の温泉付随ガス, 地下資源調査所報告, **69**, 75–91

(本論文は, 2009 年 9 月 8 日, 日本温泉科学会第 62 回大会にて発表)