

原 著

## 北海道内温泉のラドン濃度

青柳直樹<sup>1)\*</sup>, 内野栄治<sup>1)</sup>, 市橋大山<sup>1)</sup>

(平成 27 年 3 月 10 日受付, 平成 27 年 3 月 20 日受理)

## Radon Contents of Hot Spring Waters in Hokkaido

Naoki AOYANAGI<sup>1)</sup>, Eiji UCHINO<sup>1)</sup> and Daisen ICHIHASHI<sup>1)</sup>

## Abstract

This report shows the relationships between the radon content and its regional distribution, its host rock, spring quality and other components that obtained based on data of 273 hot springs that were analyzed in 1999-2010 in Hokkaido. As the results, the overall mean value of radon concentration in Hokkaido spring was 3.90 Bq/kg and the median value of that was 1.60 Bq/kg. Only one cold spring in Oshamanbe-cho (Futamata spa) satisfied the definition of radioactive springs among the 273 springs in this investigation. There were 13 springs in the radon concentration range from 11.1 Bq/kg to less than 111 Bq/kg, 153 springs from 1.11 Bq/kg to less than 11.1 Bq/kg, and 106 springs of less than 1.11 Bq/kg, respectively. In relation to the regional distribution, there was a tendency for the radon concentration to be higher in the west and lower in the east, and there were no hot springs containing radon values of 11.1 Bq/kg or over in eastern Hokkaido. There was a positive correlation between the radon and  $\text{SO}_4$ , and a negative correlation between radon and  $\text{H}_2\text{SiO}_3$ . At hot springs with relatively high radon concentration ( $\geq 11.1$  Bq/kg), 57.1% were sulfate springs, and  $\text{H}_2\text{SiO}_3$  concentrations were low trend, and they were originated from Pre-tertiary sedimentary and volcanic rocks.

Key words : radon concentration, hot spring water, distribution, Hokkaido

## 要 旨

1999 年から 2010 年までに分析を行った道内温泉 273 カ所のラドン ( $^{222}\text{Rn}$ ) について, その濃度分布, 地理的分布, 湧出母岩, 泉質, その他成分濃度等との関係について解析した。

その結果, 道内温泉のラドン濃度は全体の平均値が 3.90 Bq/kg, 中央値が 1.60 Bq/kg であった。111 Bq/kg 以上の療養泉に該当する泉源は, 143 Bq/kg の長万部町 (二股温泉) 1 泉源のみであった。11.1 以上 111 Bq/kg 未満は 13 泉源, 1.11 以上 11.1 Bq/kg 未満は 153 泉源, 1.11 Bq/kg 未満は 106 泉源であった。地理的分布ではラドン濃度は西高東低の傾向を示し, 11.1

<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. \*Corresponding author : E-mail naokiao@iph.pref.hokkaido.jp, TEL 011-747-2736, FAX 011-736-9476.

Bq/kg 以上で北海道東部に分布するものはなかった。ラドンとその他溶存成分等との関係を調べたところ、 $\text{SO}_4$  と正の相関、メタ珪酸と負の相関があった。二股温泉を除く比較的ラドン濃度の高かった 11.1 Bq/kg 以上の 13 泉源について、その特徴を解析した結果、泉質は硫酸塩泉が 57.1% を占め、メタ珪酸濃度が低い傾向がみられた。また、湧出母岩は先第三紀の堆積岩類及び火山岩類が多かった。

キーワード：ラドン濃度、温泉水、分布、北海道

## 1. はじめに

日本の面積の約 22% を占める北海道には、約 250 の温泉地と約 2,200 本の源泉があり（環境省自然環境局, 2014）、多種多様な泉質を有する温泉が広範囲に渡って湧出している。この中には放射能泉も含まれているが、現在確認されているのは長万部町の二股温泉のみであり、北海道におけるラドンの測定例も全国的に見て少ない。これは日本の放射能泉の分布をみると西高東低で、花崗岩の分布傾向と一致していること（堀内, 1998）、道内における温泉の登録分析機関のラドン分析用機器保有率の低さ等から、積極的にラドンの分析が行われてこなかったことがあげられる。道内温泉のラドン濃度測定については、古くは湯川温泉（函館市）、根崎温泉（現湯川温泉, 函館市）、宮川温泉（現鯉川温泉, 蘭越町）、青山温泉（現薬師温泉, 蘭越町）、定山溪温泉（札幌市）等の記載がある（厚生大臣官房国立公園部, 1954）。このうち現在の放射能泉（療養泉）としての基準である 111 Bq/kg (8.25 M.E./kg) 以上に該当するのは、湯川温泉の洗心館内湯第二号 13.21 M.E./L、同温泉芳明館内湯 11.32 M.E./L、同温泉洗心館内湯第一号 11.24 M.E./L、同温泉林長館内湯新湯第一号 8.48 M.E./L の 4 泉源となっている。しかし、これらの泉源は現存しておらず、ラドン濃度測定もコールラウシュ、レーヴェンタール式フォンタクトスコープによる検定となっているため、現基準との単純比較は困難である。

筆者らは 1998 年から液体シンチレーションカウンタ (LSC) によるラドンの分析を開始し、その一部については既に公表してきた（例えば内野ら, 2000；青柳ら, 2003）。その後、IM 泉効計の測定値が過大に評価されるという問題点や（日本保健物理学会, 2004）、道内の登録分析機関におけるラドン測定例がほとんど無いことを踏まえ、本調査を継続してきた。本研究では道内温泉 273 カ所のラドン濃度を LSC 法で分析し、その濃度分布、地理的分布、湧出母岩、泉質、その他成分濃度等との関係について解析したので報告する。

## 2. 方 法

1999 年から 2010 年までに北海道内でラドン濃度測定を実施した 273 泉源を対象とし、ラドン濃度の分析結果について、北海道の地質構成の大まかな特徴から、北海道西部、中央部、東部の三つに区分し（日本の地質『北海道地方』編集委員会編, 1993）、療養泉の定義である 111 Bq/kg をもとに A:111 Bq/kg 以上、B:11.1 以上 111 Bq/kg 未満、C:1.11 以上 11.1 Bq/kg 未満および D:1.11 Bq/kg 未満の 4 区分に分類し、解析した。ラドンの試料採取および分析は LSC による方法で行った。現地では試料水約 1 L をできる限り泉源の近くから、中栓付きポリエチレン瓶に静かに採取し、トルエンベースのシンチレータ 40 ml を加え、10 分間激しく振とうした。分析は持ち帰った試料のトルエン層を低カリガラス LSC 測定用バイアル瓶に素早く移し、LSC-3500（アロカ製）を用いて、ラドンが崩壊生成物と放射平衡に達する 3 時間 10 分以降に行った。シンチレータの蛍光剤としては 2,5-ジフェニルオキサゾール (DPO) および 1,4-ビス[2-(5-フェニルオキサゾリル)]ベンゼン

(POPOP) を各々 4g/L, 0.1 g/L トルエン溶液となるよう調製した. その他温泉成分の分析は鉱泉分析法指針 (環境省自然保護局, 2002) に準じて行った. また, 主採取対象地層は北海道地熱・温泉ボーリング井データ集および索引図 (統合版) 等 (例えば, 北海道立地質研究所, 2008; 松波, 2010) を用いて調べた.

### 3. 結果および考察

#### 3.1 地域別ラドン濃度とその頻度分布

北海道全体と地域別 (西部, 中央部, 東部) のラドン濃度を Table 1, その頻度分布を Fig. 1 に示す. 北海道全体のラドン濃度の平均値は 3.90 Bq/kg, 中央値は 1.60 Bq/kg, 最高値は 143 Bq/kg であった. 地域別平均値では西部 5.47 Bq/kg, 中央部 3.99 Bq/kg, 東部 1.91 Bq/kg と西高東低の傾向が見られた. このことは, 11.1 Bq/kg 以上の比較的ラドン濃度の高い温泉 (A および B) の頻度分布でも同様の傾向を示し, 東部においては濃度区分 A, B は見られなかった. また, 濃度区分 C は北海道西部 51.0%, 中央部 66.3%, 東部 51.2% と何れも各地域の半分以上を占め, 北海道全体の濃度区分で最大数となった. 放射能泉基準より 1~2 桁低い濃度区分 C, D は, 合わせると全体の約 95% となり, 北海道に放射能泉が少ないことを反映した.

#### 3.2 ラドン濃度の地域分布と主採取地層

Figure 2 に調査した泉源の所在地とその泉源のラドン濃度区分 A~C を色分けして示す. また, 北海道の市町村を合併前の平成 16 年当時 (212 カ所) で区分し, 調査対象とした泉源の所在する市町村を青色で示す. 濃度区分 A の地域は北海道西部の長万部町 (二股温泉) 1 カ所であった. 二股温泉には通称二股ラジウム温泉と炭酸泉の 2 系統の利用泉源があり, 前者は数カ所の自然湧出泉の混合から成る食塩泉, 後者は単独の泉源で本調査中最大のラドン濃度となった放射能泉である. また, 二股温泉は先第三紀堆積岩類から湧出している. 北山ら (1980) が調査した当時 (1979 年

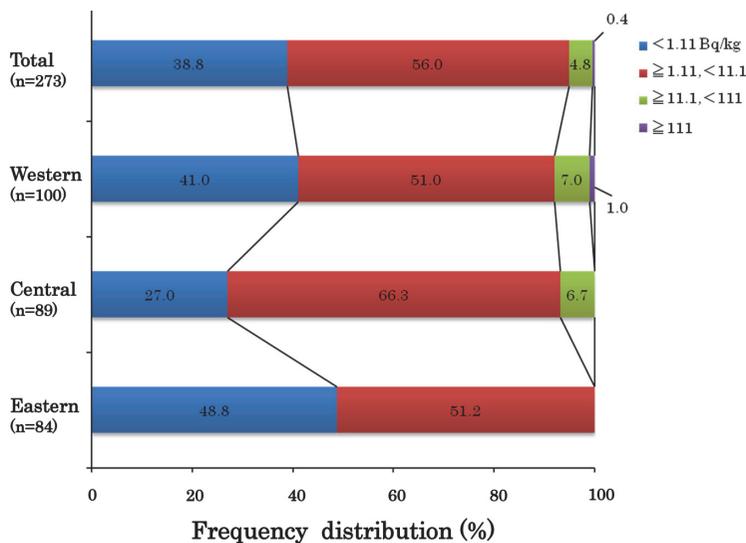


Fig. 1 Frequency distribution of radon content of hot spring waters in Hokkaido

図 1 道内温泉のラドン濃度頻度分布

Table 1 Radon concentrations in hot spring waters by region in Hokkaido

表 1 道内温泉の地域別ラドン濃度

	Total	Western	Central	Eastern
Mean	3.90	5.47	3.99	1.91
Median	1.60	1.46	2.14	1.22
Highest	143.2	143.2	49.83	10.43
Lowest	<0.02	0.04	<0.02	<0.02
n	273	100	89	84

(Bq/kg)

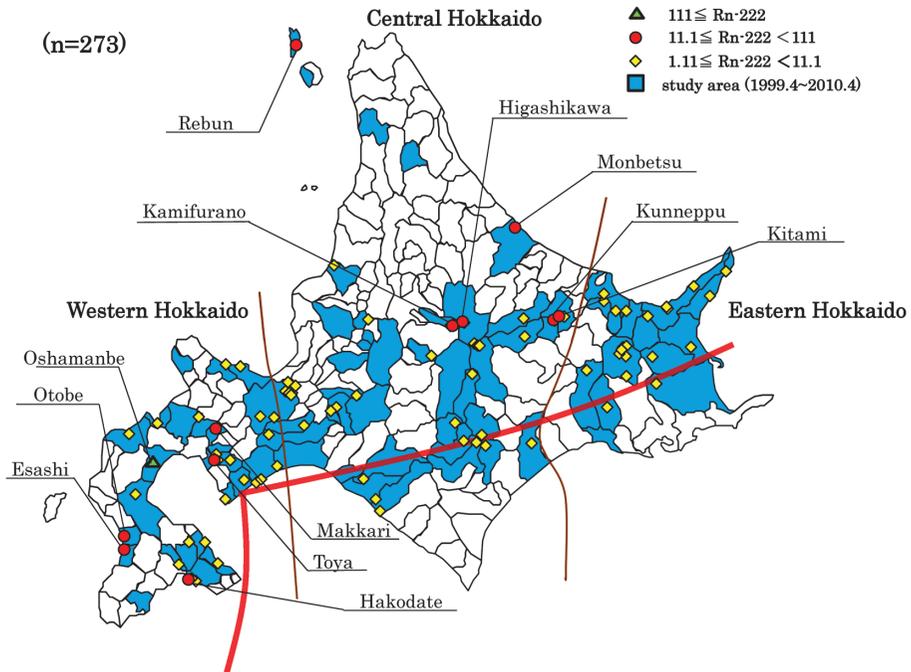


Fig. 2 Regional distribution of radon content of hot spring waters in Hokkaido  
The red line shows the Quaternary volcanic front (Sugimura, 1991).

図 2 道内温泉のラドン濃度分布図

11月)は、この放射能泉のラドン濃度は13.94 M.E./kg (188 Bq/kg)であったが、本調査(2000年1月)では143 Bq/kgであった。この濃度差は経年変化により生じた可能性は十分にあるが、IM泉効計と液体シンチレーションカウンタとの測定方法の違いによるところが大きいかもしれない。

濃度区分Bの地域は11市町村、西部の函館市(大手町温泉、江差町(五厘沢温泉)、乙部町(館浦温泉、緑町温泉、烏山温泉)、旧洞爺村(現洞爺湖町、洞爺温泉)および真狩村(真狩温泉)、中央部の北見市(東相内温泉)、紋別市(紋別温泉)、上富良野町(十勝岳温泉)、東川町(旭岳温泉)、礼文町(礼文温泉)および訓子府町(訓子府温泉)の13泉源であった。

これら各泉源の採取地層を以下に記す。西部の大手町温泉と五厘沢温泉は新第三紀貫入岩、館浦温泉は先第三紀火山岩類、緑町温泉、烏山温泉は先第三紀堆積岩類、洞爺温泉と真狩温泉は新第三紀火山岩類から湧出している。中央部の東相内温泉、訓子府温泉および礼文温泉は先第三紀堆積岩類および火山岩類、紋別温泉は先第三紀堆積岩類から湧出している。十勝岳温泉および旭岳温泉は湧出機構の詳細が不明ではあるが、火山地域の自然湧出泉であることから第四紀火山噴出物からの湧出と推定される。

Bに区分される比較的ラドン濃度の高い地域についてはその詳細を後で考察するが、乙部町(館浦温泉)のように73.9 Bq/kg とほぼ鉍泉基準(74 Bq/kg)の泉源や、礼文町(礼文島温泉)49.8 Bq/kgのように鉍泉レベルに近い泉源も確認された。

濃度区分Cの地域は64市町村(西部の札幌市南区(定山溪温泉)、函館市(湯川温泉、川汲温泉、柏木温泉、昭和温泉)、小樽市(朝里川温泉、塩谷温泉)、千歳市(丸駒温泉)、室蘭市(祝津温泉)、登別市(登別温泉)、旧上磯町(現北斗市、七重浜温泉)、旧大野町(現北斗市、大野温泉)、鹿部町(渡島温泉)、七飯町(東大沼温泉)、森町(濁川温泉)、八雲町(上八雲温泉)、旧虻田町(現洞爺湖町、洞爺湖温泉)、壮瞥町(洞爺湖温泉)、白老町(石山温泉、竹浦温泉、虎杖浜温泉、ポロト白老温泉)、寿都町(湯別温泉)、蘭越町(湯の里温泉)、ニセコ町(ニセコ温泉)、余市町(鶴亀温泉)、旧洞爺村(現洞爺湖町、洞爺温泉)および島牧村(千走川温泉)、中央部の札幌市(中央区、東区、白石区、豊平区、厚別区)、帯広市(白樺温泉、帯広温泉)、北見市(北見温泉)、岩見沢市(万字温泉)、恵庭市、北広島市、滝川市、留萌市(カムイワ温泉)、浦幌町(留真温泉)、置戸町(置戸温泉)、音更町(十勝川温泉)、上川町(層雲峡温泉)、上士幌町(岩間温泉、糠平湖さわと温泉、鹿の谷温泉)、上富良野町(吹上温泉)、栗山町、訓子府町(訓子府温泉)、鹿追町、士幌町(しほろ温泉)、清水町、当別町(太美温泉)、旧常呂町(現北見市、サロマ湖温泉)、東川町(旭岳温泉、天人峡温泉)、平取町(びらとり温泉)、幕別町(十勝幕別温泉)、旧丸瀬布町(現遠軽町、丸瀬布温泉)、芽室町、旧門別町(現日高町)、由仁町(伏見温泉)および旧留辺蘂町(現北見市、温根湯温泉)、東部の網走市(稲富温泉、呼人温泉)、旧阿寒町(現釧路市、阿寒湖温泉)、釧路町、清里町(清里温泉)、小清水町(小清水温泉)、標津町(川北温泉)、斜里町(知床温泉、知床豊倉温泉、知床斜里温泉)、弟子屈町(屈斜路温泉、美里温泉、摩周温泉、奥摩周温泉、鑑別川沿温泉)、中標津町(養老牛温泉)、別海町(西春別温泉)、旧女満別町(現大空町)、羅臼町(湯ノ沢温泉)、鶴居村(雪裡温泉)および東藻琴村(現大空町)の153泉源であった。

それらの主たる採取地層は、西部の定山溪温泉が新第三紀貫入岩類、湯川温泉、川汲温泉は新第三紀貫入岩類および堆積岩類、柏木温泉、昭和温泉は新第三紀火山岩類および堆積岩類、朝里川温泉、塩谷温泉は新第三紀火山岩類および火山砕屑物、祝津温泉、湯の里温泉、洞爺温泉は新第三紀火山砕屑岩類、大野温泉は先第三紀および新第三紀堆積岩類、七重浜温泉、渡島温泉、上八雲温泉、石山温泉、竹浦温泉、虎杖浜温泉、ポロト白老温泉、鶴亀温泉は新第三紀堆積岩類、濁川温泉は更新統カルデラ堆積物、洞爺湖温泉は第四紀カルデラ堆積物、湯別温泉、千走川温泉は新第三紀火山岩類、ニセコ温泉は新第三紀火山砕屑岩類および堆積岩類からなる。また中央部の札幌市(中央区、

厚別区)は新第三紀火山碎屑岩類および堆積岩類, 丸瀬布温泉は新第三紀貫入岩類, 丸駒温泉, 登別温泉, 吹上温泉, 旭岳温泉, 天人峡温泉は第四紀火山噴出物, 札幌市(東区, 白石区), 白樺温泉, 帯広温泉, 恵庭市, 北広島市, 滝川市, 栗山町, 十勝幕別温泉, 旧門別町(現日高町), びらとり温泉, 伏見温泉は新第三紀堆積岩類, 札幌市(豊平区), 岩間温泉, 糠平湖さわと温泉, 鹿の谷温泉は新第三紀火山碎屑岩類, 北見温泉, 温根湯温泉は古第三系の火山岩類, カムイワ温泉, 層雲峡温泉, 清水町, サロマ湖温泉は先第三紀堆積岩類, 留真温泉と鹿追町は古第三系の堆積岩類, 置戸温泉は新第三紀火山岩類, 十勝川温泉は新第三紀および第四紀堆積岩類, しほろ温泉は第四紀火山岩類, 太美温泉は第四紀堆積岩類, 丸瀬布温泉, 芽室町は先第三紀および新第三紀堆積岩類からなる。そして東部の湯ノ沢温泉は新第三紀貫入岩類, 呼人温泉, 清里温泉は新第三紀火山岩類および堆積岩類, 稲富温泉, 小清水温泉, 旧女満別町(現大空町), 東藻琴村(現大空町)は新第三紀火山岩類, 阿寒湖温泉は第四紀火山岩類および堆積岩類, 釧路町は先第三紀堆積岩類, 川北温泉, 西春別温泉は新第三紀堆積岩類, 知床温泉, 知床豊倉温泉, 知床斜里温泉, 雪裡温泉は古第三系の堆積岩類, 屈斜路温泉, 美里温泉, 摩周温泉, 奥摩周温泉は中新統火砕岩類, 鑑別川沿温泉は第四紀火山岩類, 養老牛温泉は新第三紀火山碎屑岩類からなる。

### 3.3 ラドン濃度とその他溶存化学成分等の特徴

#### 3.3.1 泉温, pH

日本における放射能泉は25℃未満の冷鉱泉が多く全体の86.5%を占める。またその液性は中性が最も多く全体の約50%を占め, これに弱アルカリ性, アルカリ性を加えると90%以上となり, pH3未満の酸性域では見られない(堀内, 1998)。道内温泉については, 放射能泉の該当は現在1件のみであるが, ラドン濃度区分(B~D)毎に泉温およびpHの各頻度分布図(Fig. 3およびFig. 4)からその特徴について検討した。Aについては泉温20.8℃, pH6.2の二股温泉1件のみなので, 頻度分布図は省略した。また, 道内温泉全体の泉温, pHの各頻度分布も併せて示す(内野ら, 2005)。泉温について, CとDは道内温泉全体の頻度に近い分布を示し, 42℃以上の高温泉が約7割を占め25℃未満の冷鉱泉は約1割であった。比較的ラドン濃度の高いBは, 冷鉱泉の割合がC, Dおよび道内全体の2倍以上であった。pHではラドン濃度が高くなると, pH3未満の酸性域の分布は減少する傾向が見られ, Bでは日本の放射能泉と同様に見られず, 中性からアルカリ性が約85%を占めた。

#### 3.3.2 トリリニアダイアグラムと泉質

Figure 5-1から5-3に濃度区分毎のトリリニアダイアグラム(水収支研究グループ, 1975)を示す。濃度区分AおよびBでは, 主としてIV区画のアルカリ非炭酸塩型に分布し, 主要成分のバランスは海水起源のものが多かった。陽イオンはNa+Kの占める比率が高い傾向にあった。陰イオンではSO<sub>4</sub>の比率が高く, 副成分としてClを含むものが多い傾向にあった。泉質は硫酸塩泉57.1%と塩化物泉28.6%で全体の8割以上を占め, 残りは炭酸水素塩泉と冷鉱泉が共に7.1%であった。濃度区分CではIV区画に分布する海水起源のものが多いが, III区画のアルカリ炭酸塩型である停滞性深層地下水起源のものも見られた。陽イオンではNa+K, CaおよびMgをバランス良く含むものが若干見られたが, Na+Kの占める比率が高かった。陰イオンでは, Clの比率が高い傾向にあるが, 全体的な広がりを見せた。泉質は塩化物泉41.2%と単純温泉29.4%で全体の7割を占め, 残りは順に炭酸水素塩泉9.8%, 硫黄泉8.5%, 硫酸塩泉4.6%, 酸性泉3.3%, 冷鉱泉2.6%, 鉄泉0.7%であった。濃度区分DではCよりもさらにアルカリ炭酸塩型が多く分布し, 陽イオンではNa+Kの占める比率が高い傾向にあったが, 陰イオンではCと同様の傾向を示しつつもHCO<sub>3</sub>の比率が高いものも多かった。泉質は塩化物泉29.2%, 炭酸水素塩泉23.6%, 単純温泉19.8%, 酸性泉12.3%,

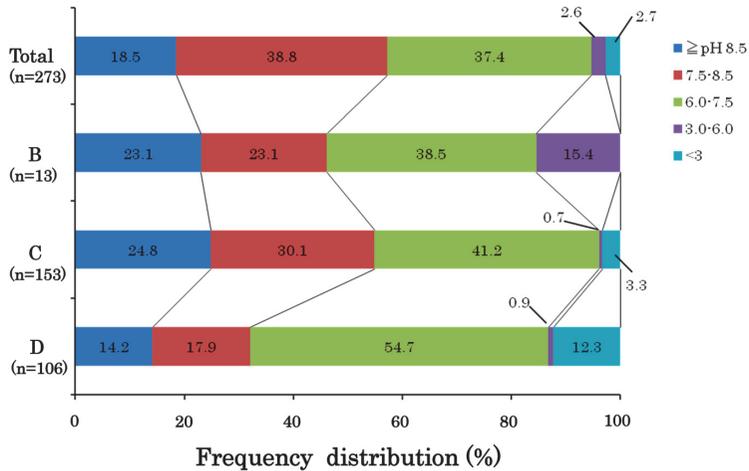


Fig. 3 Frequency distribution of pH of hot spring waters in Hokkaido  
 B : Radon concentration  $\geq 11.1$  Bq/kg, C :  $\geq 1.11$ ,  $< 11.1$ , D :  $1.11 >$

図 3 道内温泉におけるラドン濃度区分毎の pH の頻度分布

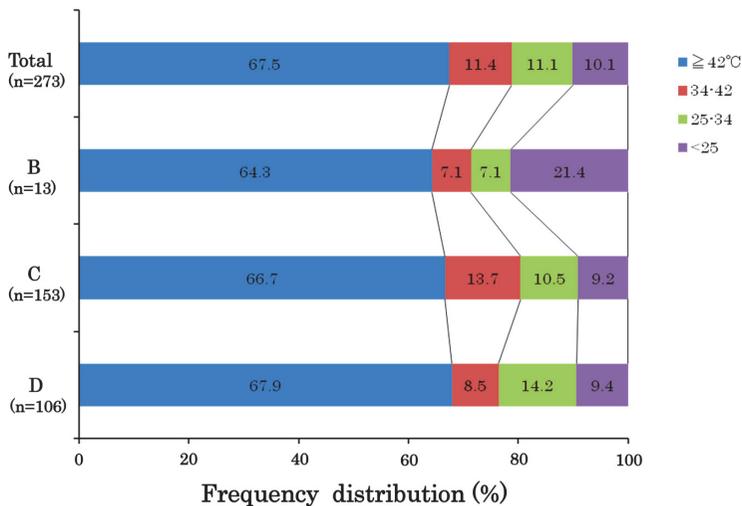


Fig. 4 Frequency distribution of temperature of hot spring waters in Hokkaido  
 B : Radon concentration  $\geq 11.1$  Bq/kg, C :  $\geq 1.11$ ,  $< 11.1$ , D :  $1.11 >$

図 4 道内温泉におけるラドン濃度区分毎の泉温の頻度分布

硫酸塩泉 7.5%, 硫黄泉 3.8%, 冷鉱泉 1.9%, 二酸化炭素泉と鉄泉が共に 0.9% であった。

### 3.3.3 各種成分濃度との関係

ラドンは、化学的に不活性であるが、フッ素との化合物が知られている (Stein, 1970)。温泉水中では、共存する他の化学成分とほとんど相関が見られないが (堀内ら, 1996)、地域を限定した場合、鳥取県三朝温泉ではラドン含量の対数値と pH に負の相関 (杉原, 1960) が見られるという報告もある。そこで、道内温泉についてもラドンと他成分等 30 項目について相関を検討し、その

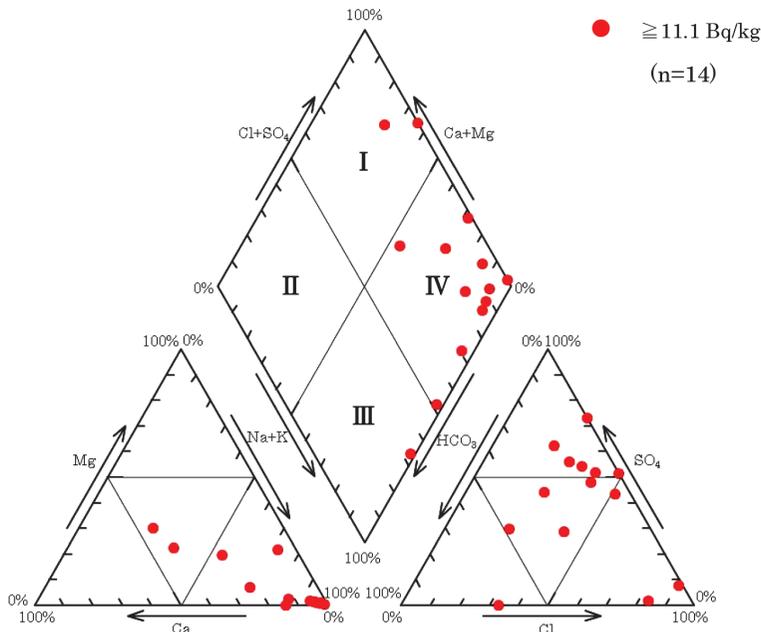


Fig. 5-1 Trilinear-diagrams of hot spring waters in Hokkaido that were grouped by radon concentration ( $\geq 11.1$  Bq/kg ; A and B groups)  
 I : noncarbonate hardness type, II : carbonate hardness type, III : carbonate alkali type, IV : noncarbonate alkali type

図 5-1 道内温泉におけるラドン濃度区分毎のトリリニアダイアグラム

結果を Table 2 に示す。ラドンと  $SO_4$  に有意水準 1% で正の相関, ラドンとメタ珪酸に有意水準 1% で負の相関があった。

ラドンは希ガスの中でも最も水への溶解度が大きな元素であり,  $^{226}Ra - ^{222}Rn$  壊変系列で  $\alpha$  壊変による反跳の結果, 地中空隙, 地下水, さらには近接土壌粒子内へ移動する (福井, 1995)。ラドンと  $SO_4$  の関連については, 調査した道内温泉のうち, 濃度区分 B に分類された温泉に海水起源のものが多く, 陰イオンも  $SO_4$  の割合が高かったことから, これらの海水起源の地下水とラジウムを含有する湧出母岩の接触度合が反映された結果と考えられる。さらに火山地帯などの自然湧出泉では, その液性が酸性から弱酸性を示すことから, 主要成分の硫酸イオンの起源は火山ガス中の  $SO_2$  の溶解込みによると考えられるが, この  $SO_2$  ガス体と共にラドンも供給されている可能性が示唆される。

ラドンとメタ珪酸については, 地層の種類との関連が考えられる。ラドンはラジウム ( $^{226}Ra$ ) の娘核種であるが, その起源は地層中のウラン ( $^{238}U$ ) であり, 地層中のウラン含有量は酸性岩で高く, 塩基性岩になるほど低くなる傾向にある (例えば村上, 1987 ; 松田ら, 1999)。つまり, 湧出母岩中の  $SiO_2$  濃度が高いほど, そこから壊変生成するラドン濃度も高くなる。しかしながら, 道内温泉におけるラドンとメタ珪酸には負の相関が見られたことから, ラドンが  $\alpha$  反跳により水中へ拡散しやすい条件下においては,  $SiO_2$  は岩石中に留まり, ラドン濃度とは逆に水中への溶出は少なくなることが考えられる。細田ら (2007) は, 酸性岩やその風化 (脱ケイ酸作用) などによって細粒化してできた土壌では, ラドンの散逸率と  $SiO_2$  との間には負の相関を示す場合があることを報告

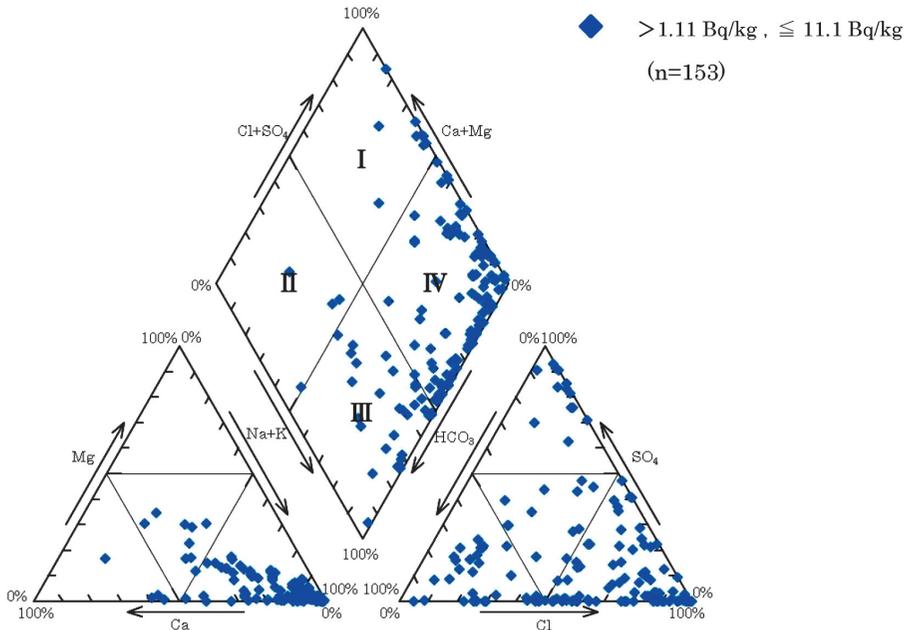


Fig. 5-2 Trilinear-diagrams of hot spring waters in Hokkaido that were grouped by radon concentration ( $\geq 1.11$  Bq/kg,  $< 11.1$  Bq/kg ; C group)  
 I : noncarbonate hardness type, II : carbonate hardness type, III : carbonate alkali type, IV : noncarbonate alkali type

図 5-2 道内温泉におけるラドン濃度区分毎のトリリニアダイアグラム

している。後述するが、本研究でラドン濃度が比較的高い泉源の湧出母岩は先第三紀の古い地層で深度も 1,000m 以上のものが多いことから、酸性岩が風化して細粒化していることが考えられる。このことは、地層中の  $\text{SiO}_2$  が脱ケイ酸作用により減少する一方、岩石の表面積が格段に大きくなる分、岩石表面からラドンが  $\alpha$  反跳により水中へ拡散していく頻度が高くなっていることを示唆している。道内温泉は全国的にみるとラドン濃度レベルは低い、中でも銩泉基準 (74 Bq/kg) に近いラドン濃度の泉源が存在することから、次の項でこれら比較的高いラドン濃度の温泉について、 $\text{SiO}_2$  濃度や地層等との関連についてももう少し詳細に検討する。

### 3.4 比較的高いラドン濃度の温泉の特徴

Table 3 に濃度区分 B の温泉の分析結果を示す。ここではこれまで述べてきた泉温、pH、主要陽・陰イオン、湧出母岩の他にもガス成分を除く溶存物質 (D.M.)、メタ珪酸についても記した。ただし、先にも述べたが、Table 中の 2 泉源 (旭岳温泉と十勝岳温泉) の湧出母岩についてはその湧出経路が不明であるため、活火山に位置する自然湧出泉であることから、第四紀火山岩類と推測して表記した。濃度区分 B ではこれら自然湧出泉を除くと、11 泉源中 7 泉源 (約 64%) が先第三紀の堆積岩類もしくは火山岩類の古い地層で、多くは 1,000m 以深からの湧出である。溶存化学成分では、 $\text{SO}_4$  濃度の高いものが多く約 6 割は硫酸塩泉で、 $\text{SiO}_2$  (表中ではメタ珪酸) については、11 泉源中 9 泉源 (約 82%) が銩泉基準 (50 mg/kg) 未満の低い濃度という特徴を示した。このうち、ラドン濃度が銩泉基準あるいはそれに近いレベルの 2 泉源 (乙部町館浦温泉と礼文温泉) に着目して、ラ

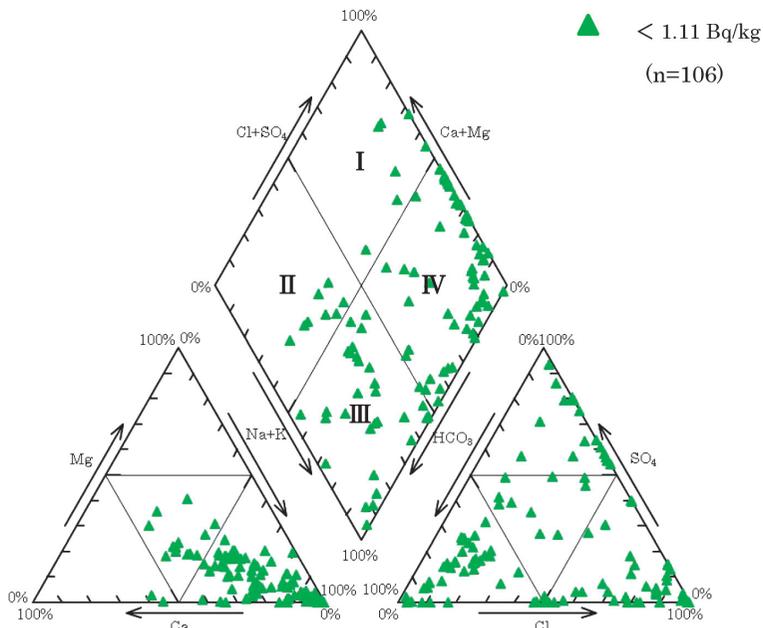


Fig. 5-3 Trilinear-diagrams of hot spring waters in Hokkaido that were grouped by radon concentration (<1.11 Bq/kg ; D group)  
 I : noncarbonate hardness type, II : carbonate hardness type, III : carbonate alkali type, IV : noncarbonate alkali type

図 5-3 道内温泉におけるラドン濃度区分毎のトリリニアダイアグラム

ドンの起源について考察する。乙部町館浦温泉は渡島帯の松前層群に、礼文温泉は礼文一樺戸帯の礼文層群アナマ層に湯脈がある。松前層群は砂岩、泥岩、チャート、緑色岩類、石灰岩などから、アナマ層は細粒火砕岩、火山性砂岩、シルト岩、粘板岩から構成されている。どちらも中・古生界の地質で、この中の特に粘土層にラジウムが濃縮されている可能性が高く、酸性岩すなわち SiO<sub>2</sub> の含有量と共にウランの含有量も多いと考えられる。なぜなら、ラジウムは岩石中や断層沿いに地下水によって浸出し、ほぼすべて粘土によって捕獲され、そのイオン半径が大きいためいったん捕獲されると外に出にくく、ラドンだけが地下水に出ていくものと考えられているからである(西村, 1978)。したがって、鉱泉基準レベルにある泉源は、先第三紀の風化した酸性岩類を含む粘土層がラドンの供給源になっている可能性が高いと考えられる。これらラドンの供給源については、湧出母岩となっている岩石試料のラジウム含量分析を行っていないため推測となるが、礼文温泉については、報告書(アクアジオテクノ(株), 2008)から前述の可能性が示唆される。つまり、礼文温泉の採取層は、地質構成および物理検層の結果から風化の進んだ地層であること、自然放射能検層からガンマ線量が強く、断層、破碎帯および割れ目の多い岩盤であることがあげられる。

ラドンの供給源については、これまでも北海道西部および中央部でラジウム濃度の高い地域(富田ら, 2014)や、北海道の温泉地におけるγ線異常地域(例えば秋田ら, 1995; 輪嶋ら, 1997)等の報告がある。今回、道内温泉のラドン濃度についてその特徴をまとめたが、北海道内の泉源の1割強を調べたに過ぎず、温泉地におけるラジウムの高濃度地域やガンマ線高線量地域に着目した放射能泉の調査が今後の課題である。ラドンを含む放射能泉には環境省自然環境局長通知による適応

Table 2 The relationship of radon concentrations and the concentrations of other components etc. of hot spring waters in Hokkaido hot springs

表 2 道内温泉におけるラドン濃度と他成分濃度等との関係

	r	n		r	n
Temp.	0.034	272	HS	-0.042	272
pH	0.107	272	S <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	-0.051	272
D.M.	-0.004	230	CO <sub>3</sub>	0.039	272
Na	0.011	272	HPO <sub>4</sub>	-0.083	226
K	-0.021	272	H <sub>2</sub> SiO <sub>3</sub>	* -0.219	230
Mg	0.012	272	HBO <sub>2</sub>	-0.011	272
Ca	-0.034	272	H <sub>2</sub> S	-0.049	272
Cl	-0.026	272	CO <sub>2</sub>	-0.069	272
SO <sub>4</sub>	* 0.327	272	As	-0.020	272
HCO <sub>3</sub>	-0.053	272	Pb	-0.057	227
NH <sub>4</sub>	-0.034	230	Cu	-0.001	230
Fe	-0.049	265	Zn	-0.059	230
Al	-0.103	224	Cd	-0.051	229
Mn	-0.084	224	Hg	-0.036	272
F	0.053	230	Humic acid	-0.025	245

\* : significantly different with  $p < 0.01$  (Hasebe and Ohzeki, 1971), n : number of hot springs.

症や疾病への適応例 (Yamaoka *et al.*, 2004) が多くあり, その愛好者も多い. 一方, 放射能泉に含有するラドンには, 肺がんリスク等負の側面も指摘されており (WHO, 2009), 北海道においては, 冬季の居住環境が室内のラドン濃度を高める要因となり, WHO の示す室内環境基準 100 Bq/m<sup>3</sup> を超過する例も見られる (財団法人日本分析センター, 2004). これらのことから, 今後特に道内温泉地におけるラジウム同位体を含めたラドンやトロンの実測例を増やしていくことが, 北海道の温泉利活用にとって重要であると考えられた.

#### 4. ま と め

1999 年から 2010 年までに分析を行った道内温泉 273 カ所のラドン (<sup>222</sup>Rn) について, その濃度分布, 地理的分布, 湧出母岩, 泉質, その他成分濃度等との関係について解析した. 結果の概要をまとめると, 道内温泉のラドン濃度は全体の平均値が 3.90 Bq/kg, 中央値が 1.60 Bq/kg であった. 療養泉 (111 Bq/kg) に該当する泉源は, 長万部町 (二股温泉) の 143 Bq/kg のみであった. 濃度区分別では 11.1 以上 111 Bq/kg 未満は 13 泉源, 1.11 以上 11.1 Bq/kg 未満は 153 泉源, 1.11 Bq/kg 未満は 106 泉源であった. 地理的分布ではラドン濃度は西高東低の傾向を示し, 11.1 Bq/kg 以上で北海道東部に分布するものはなかった. ラドンとその他溶存成分等との関係では, SO<sub>4</sub> と正の相関,

Table 3 Analytical results of hot springs with the relatively high radon concentrations in the hot spring waters of Hokkaido

表 3 道内温泉における比較的ラドン濃度の高い温泉の分析結果

Name of hot spring	Well type	Depth (m)	Host rock	Temp. (°C)	pH	Dissolved matter (g/kg)	Na (mg/kg)	K (mg/kg)	Mg (mg/kg)	Ca (mg/kg)	Cl (mg/kg)	SO <sub>4</sub> (mg/kg)	HCO <sub>3</sub> (mg/kg)	H <sub>2</sub> SiO <sub>3</sub> (mg/kg)	Rn (Bq/kg)
Otobe (Tateura)	WP	1,245	PTv	71.8	7.2	5.408	1,651	35.1	14.5	62.6	949.8	2,042	542.8	49.8	73.9
Rebun	WP	1,303	PTs-v	47.1	8.6	1.400	408.1	5.3	0.2	59.8	355.2	407.9	64.9	34.5	49.8
Gorinsawa	WP	96	Mv	46.6	7.5	2.619	779.3	16.1	5.3	23.4	339.1	758.4	639.2	35.2	33.1
Higashiaionai	WP	1,023	PTs-v	25.1	9.5	1.045	347.7	1.4	2.0	5.4	111.9	413.2	0.0	30.1	31.0
Otobe (Toriyama)	WP	1,216	PTs	70.3	7.4	5.462	1,661	33.9	17.5	83.4	1,159	2,014	389.7	43.4	27.4
Otobe (Midorimachi)	F	1,309	PTs	68.2	7.3	5.184	1,556	34.3	13.9	52.9	772.3	1,993	656.5	42.5	18.2
Asahidake	N	—	Qv	48.0	5.9	—	123.0	31.0	90.0	217.0	356.0	568.0	172.0	—	17.6
Makkari	WP	450	Mv	24.2	7.0	1.094	161.4	32.6	34.8	76.8	214.5	203.1	269.4	92.3	17.4
Kunneppu	WP	1,200	PTs-v	50.2	8.0	1.255	353.7	5.7	1.4	6.0	113.0	207.4	428.1	27.4	17.0
Tokachidake	N	—	Qv	52.0	3.0	—	91.0	28.0	36.0	108.0	259.0	374.0	0.0	—	15.9
Toya	WP	1,101	Mv	39.0	8.0	1.325	358.1	2.7	5.8	44.3	134.5	545.4	183.2	21.8	14.6
Hakodate (Ohtemachi)	F	1,016	Mv	58.1	6.8	27.80	7,645	396.5	1,269	588.7	15,370	1,837	395.2	154.1	13.6
Monbetsu	WP	1,200	PTs	20.4	8.8	0.836	246.3	3.3	0.9	2.0	114.2	1.0	397.0	21.4	11.5

N type : natural springs, F type : flowing after drilling, WP type : extracted by machinery such as water pumps after drilling, PT : Pre-Tertiary, M : Miocene, Q : Quaternary, s : sedimentary rock, v : volcanic rock.

メタ珪酸と負の相関があった。二股温泉を除く比較的ラドン濃度の高かった 11.1 Bq/kg 以上の 13 泉源についてその特徴を解析した結果、泉質は硫酸塩泉が 57.1% を占め、メタ珪酸濃度が低い傾向がみられ、湧出母岩は先第三紀の堆積岩類および火山岩類が多かった。ラドンが鉱泉基準または同レベルの乙部町と礼文町の泉源では、先第三紀の風化した酸性岩類を含む粘土層がラドンの供給源として示唆された。

## 謝 辞

本論文をまとめるに当たり、地質学的面からご教示頂いた地方独立行政法人北海道立総合研究機構地質研究所 資源環境部長 高橋徹哉氏、同資源環境部資源環境グループ主査 鈴木隆広氏に感謝申し上げます。

## 引用文献

- 秋田藤夫, 松波武雄, 若濱 洋, 早川福利 (1995) : 北海道幌加温温泉における  $\gamma$  線スペクトル調査, 45, 277-289.
- 青柳直樹, 市橋大山, 内野栄治 (2003) : 北海道の温泉及び冷鉱泉のラドン濃度 (第 2 報), 道衛研所報, 53, 55-57.
- 福井正美 (1995) : 地下水とラドン, 日本原子力学会誌, 37 (11), 1017-1025.
- 長谷部清, 大関邦夫 (1971) : 推計学のあらし, 新版 分析化学実験 (日本分析化学会北海道支部編), pp.41-82, 化学同人, 京都.

- 北海道立地質研究所編 (2008): 北海道地熱・温泉ボーリング井データ集および索引図 (統合版) 北海道における地熱・温泉利用の現状—2007年度版一, DV, 北海道立地質研究所, 札幌.
- 堀内公子, 酒井幸子, 関 茂雄, 木暮金太夫 (1996): 群馬県の温泉のラドン濃度, 温泉科学, **46**, 79-86.
- 堀内公子 (1998): 放射能と温泉, 放射線科学, **41** (10), 420-428.
- 細田正洋, 山本裕右, 原田和正, 郡 寿也, 福士政広, 下道國 (2007): ラドン・トロン散逸率における土壌の物理・化学的特性の実験的解釈, 保健物理, **42**, 89-97.
- 株式会社アジアジオテクノ編 (2008): 平成19年度礼文町温泉掘削工事報告書, 株式会社アクアジオテクノ, 札幌.
- 環境省自然環境局編 (2002): 鉱泉分析法指針, 環境省, 東京.
- 環境省自然環境局編 (2014): 平成25年度温泉利用状況, 環境省, 東京.
- 北山正治, 佐藤洋子, 井上勝弘 (1980): 二股温泉の温, 鉱泉水中のラドン濃度, 道衛研所報, **30**, 101-102.
- 厚生大臣官房国立公園部編 (1954): 日本鉱泉誌, p.640, 厚生省, 東京.
- Stein, L. (1970): Ionic Radon Solution, Science, **17**, 362-364.
- 松田秀晴, 湊 進 (1999): 日本における主な岩石中の放射能, RADIOISOTOPES, **48**, 760-769.
- 松波武雄 (2010): 温泉・地熱資源, 日本地方地質誌1. 北海道地方 (日本地質学会編), 435-441, 朝倉書店, 東京.
- 水収支研究グループ編 (1975): 地下水資源学 広域地下水開発と保全の化学, 286-287, 共立出版株式会社, 東京.
- 村上悠紀雄 (1987): 放射能から火山・地熱・温泉へ (II), 温泉科学, **37**, 248-267.
- 日本保健物理学会編 (2004): 水中ラドンに関する活動報告書, pp.16-23, 日本保健物理学会, 東京.
- 日本の地質『北海道地方』編集委員会編 (1993): 日本の地質1 北海道地方, p.80, 共立出版, 東京.
- 西村 進 (1978): 水中のラドンの測定とその応用 (II) 地震予知, RADIOISOTOPES, **27**, 747-742.
- 杉原 健 (1960): 温泉水中のラドン含量と水素イオン濃度との関係, ならびにそのひん度分布, 日本化学雑誌, **81**, 78-81.
- 富田純平, 高田貴裕, 玉村修司, 張 頤, 高島容子, 秋田藤夫, 長尾誠也, 山本政儀 (2014): 北海道中・西部における塩化物泉中のラジウム (Ra) 同位体, 温泉科学, **64**, 146-164.
- 内野栄治, 青柳直樹, 市橋大山, 都築俊文 (2000): 北海道の温泉および冷鉱泉のラドン濃度, 道衛研所報, **50**, 97-99.
- 内野栄治, 青柳直樹, 市橋大山, 都築俊文編 (2005): 北海道鉱泉誌, 北海道立衛生研究所, 札幌.
- 輪嶋隆博, 細川洋一郎, 竹腰光男, 藤田 智, 金子昌幸, 安河内太郎 (1997): ポータブル型γスペクトロサベイメータを用いた北海道の環境γ線量の調査, RADIOISOTOPES, **46**, 291-297.
- World Health Organization (2009): WHO handbook on indoor radon, WHO press, Geneva.
- Yamaoka K., Mitunobu F., Hanamoto K., Mori S., Tanizaki Y. and Sugita K. (2004): Study on biological effects of radon and thermal therapy on osteoarthritis, J. Pain, **5**, 20-25.
- 財団法人 日本分析センター編 (2004): ラドン濃度測定調査データ集 (屋内, 屋外及び職場環境調査結果), 財団法人 日本分析センター, 千葉.

(本研究の一部は, 2003年9月26日, 日本温泉科学会第56回大会および2012年9月27日, 日本温泉科学会第65回大会にて発表)