

勝浦湯川地区におけるRa, Rnの存在と その起因に関する地球化学的考察

中央温泉研究所, 東京都立大学理学部*

甘露寺 泰雄, 堀内 公子*・村上 悠紀雄*

(昭和53年11月12日受理)

Geochemical Study on the occurrence and sources
of Ra and Rn in Katsuura-Yukawa Spa.

Yasuo KANROJI, Kimiko HORIUCHI*, Yukio MURAKAMI*

Hot Spring Research Center and *Department of Chemistry, Tokyo Metropolitan University.

Abstract

The simultaneously determined results of Ra and Rn by a liquid scintillation counter and the amounts of ordinary major components were presented for 13 water samples of Katsuura Spa. The relationship between Ra or Rn and these components were geochemically examined. These springs were clearly grouped into two types such as Na-Cl and Na-HCO₃. The authors considered that the native thermal water of this spa may be same to the latter type, in which Ra are originally occurred. The former type was formed by weak hydrothermal reaction on the intrusion of sea water, which was proved by the small evaporation residue mostly less than 400 mg/l. It was concluded that the occurrence of Rn may be closely related with the faults or fissures observed in this district.

1. ま え が き

那智勝浦, 湯川温泉は, 紀伊半島南東部, 熊野灘に面した海岸に位置し, 昭和51年現在源泉総数232, 泉温は最高56°C, 総湧出量21.8m³/minが報告されている¹⁾。これまでに, 地質学的研究,^{2,3)} 地質, 湧出状況, 化学成分などについての総括的な報告¹⁾がある。昭和50年秋に前記の調査の際, 下記の13源泉について液体シンチレーションカウンター(以下LSC)によりRaとRnの同時定量を行なった⁴⁾。Ra, Rnの定量値と他の主要化学成分, 湧出状況などとの関係を検討し, 温泉水中のRn及びRaが湧出機構や化学成分とどのような関係をもっているかを追求した。

2. 実験結果とまとめ

2. 1 温泉水中のRn及びRa含量

232ヶ所の源泉の中から各地区の代表例として, また採水の点から13ヶ所を選んで Ra, Rn の同時定量をおこなった。採取源泉13ヶ所の位置をFig 1に, Rn, Ra含量と主要化学成分の分析値をTable 1, 2に示した。¹⁾ 勝浦, 湯川温泉に関する研究によると, 陽イオンの主成分はすべてNa⁺大

勝浦湯川地区におけるRa, Rnの存在と その成因に関する地球化学的考察

東京大学理学部地球化学専攻 甘露寺 泰雄

〒277-8564 千葉県勝浦市湯川 甘露寺 泰雄

(昭和52年11月13日受理)

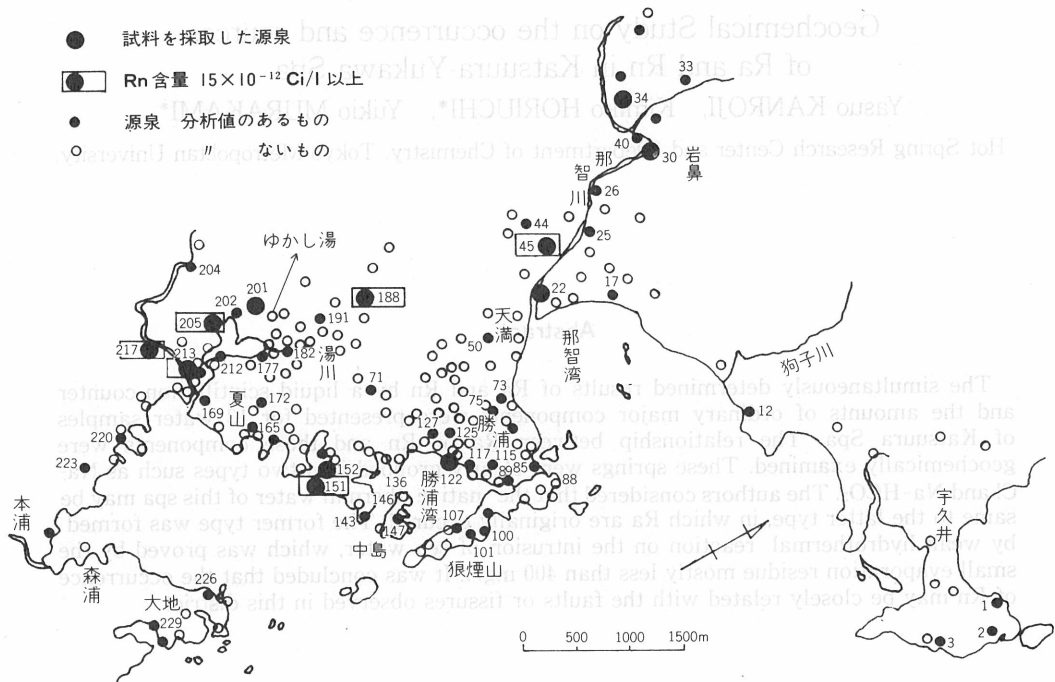


Fig. 1 Location of Sampling Stations

であるが、陰イオンでは Cl^- を主要成分とするタイプと HCO_3^- を主要成分とするタイプ [$Cl^- > HCO_3^-$ 型(●印)と $HCO_3^- > Cl^-$ 型(▲)]にわけて考えていく。Rnの最高は湯川温泉 No.213の $21.6 \times 10^{-12} Ci/l$ であり、温度の最高($55.2^\circ C$)の勝浦中島の4号No.147はRnは $0.5 \times 10^{-12} Ci/l$ 以下の最低値を示した。

Raは $1.67 \sim 3.93 \times 10^{-12} Ci/l$ の範囲で、白浜温泉でみられた程($0.98 \sim 7.26 \times 10^{-12} Ci/l$)⁴⁾の大きなバラツキはない。

Table 1 勝浦温泉におけるRa, RnとδRn値

泉名	泉質	温度 ℃	pH	蒸発 残留物 mg/l	Ra ×10 ⁻¹² Ci/l	Rn ×10 ⁻¹² Ci/l	δRn値
188 岩崎医院	単純泉	17.8	6.4	139	3.39±0.32	17.8±0.6	0.59
22 大桑	NaCl 泉	24.0	6.2	343	3.52±0.32	7.19±0.64	0.34
45 西本商事	"	30.0	6.8	262	2.21±0.31	15.9±0.7	1.62
201 宮本周三2	HCO ₃ 単純硫黄泉	33.8	6.8	163	2.02±0.33	6.85±0.48	0.39
34 宮本周三1	NaCl 泉	34.0	6.45	300	2.48±0.33	7.91±0.64	0.66
30 那智温泉K.K.	"	34.0	6.86	281	2.61±0.34	13.0±0.7	1.12
213 開発公社二河1号	含S-NaCl-HCO ₃ 泉	36.8	8.80	192	3.93±0.35	21.6±0.6	0.86
205 安田徳松	含S-NaCl 泉	38.6	7.2	167	1.88±0.32	20.2±0.6	1.63
217 開発公社二河1号	単純泉	40.1	8.80	97	1.72±0.28	19.8±0.6	1.02
152 なぎさや4号	単純硫黄泉	41.2	8.0	379	2.34±0.26	13.1±0.6	1.74
122 なぎさや3号	"	43.0	6.4	1255	2.80±0.39	13.7±0.6	4.89
151 尾畑山	含S-NaCl 泉	53.0	8.2	328	1.67±0.32	19.9±0.8	3.58
147 中の島4号泉*	"	55.2	7.2	1691	3.79±0.32	0.5>	-1.47

*貯水タンクに長時間おいたものより採取したため考察では除外

Table 2. 主要化学成分

No.	名称	Cl ⁻	HCO ₃ ⁻ mg/l	Ca ²⁺	備考
188	岩崎医院	15.91	55.06	11.0	HCO ₃ 型 揚湯
22	大桑	56.7	38.62	20.4	Cl 型 自噴
45	西本商事	88.21	39.72	4.93	" 揚湯
201	宮本周三2	16.26	54.29	6.81	HCO ₃ 型 自噴
34	宮本周三1	114.8	46.53	3.91	Cl 型 "
30	那智温泉 K K	145.6	32.55	8.49	" "
213	開発公社二河1号	26.64	58.17	2.13	" "
205	安田徳松	20.06	51.96	1.73	" "
217	開発公社二河2号	10.38	53.51	7.91	" "
152	なぎさや4号	124.5	24.12	16.6	Cl 型 "
122	なぎさや3号	550.1	37.23	57.2	" 揚湯
151	尾畑山	95.47	40.33	5.74	" 自噴
147	中の島4号泉	765.8	35.86	25.4	" 揚湯エアリフト

2.2 泉温とRn及びRa含量

泉温とRn及びRa含量の関係は全体としてあまりはっきりした相関が認められない (Fig 2,3). ここで最高温を示すNo.147はエアリフト揚湯で、集湯槽に集められた温泉水について分析を行なったため、揚湯の際Rnが逸散している可能性が大きいので、Rn含量は実際にはもう少し高いとみられる。しかしこれを除いてみると、Rnの溶解度は25°Cで0.235、55°Cで0.118と減るのに対し、Cl⁻>HCO₃⁻型源泉では逆に泉温が高い程Rn含量が高くなる傾向がある。

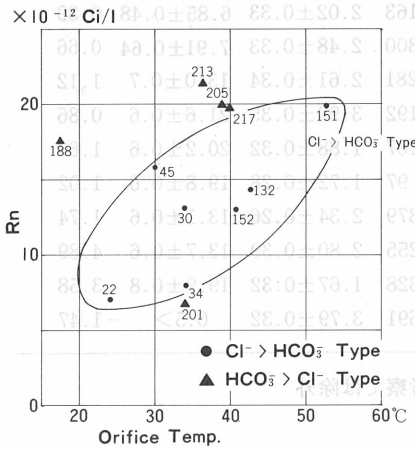


Fig. 2 Relationship between Rn-Content and Temperature

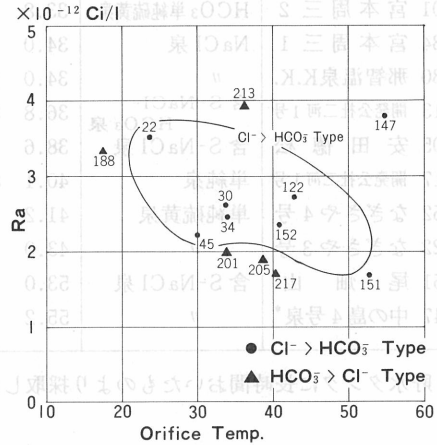


Fig. 3 Relationship between Ra-Content and Temperature

泉温とRa含量の関係は、あまりはっきりした相関がないが (Fig3), Cl⁻>HCO₃⁻型の源泉では同様にNo.147を除くと、泉温とRa含量とがほぼ逆相関を示すようである。HCO₃⁻>Cl⁻型源泉ではNo.213ははずれるが、やはり温度と逆相関がみられる。いかえると温度の低いものにRaが多いことになる。ここでRn, Raの同時定量値より⁴⁾、白浜と同様δRn値⁵⁾ (後述)と温度の関係を出してみると、Cl⁻>HCO₃⁻型では明らかな正の相関を示している。しかし、HCO₃⁻>Cl⁻型ではほとんど大差がないことがみられ明らかに二群にわけて考え得る。(Fig 4)

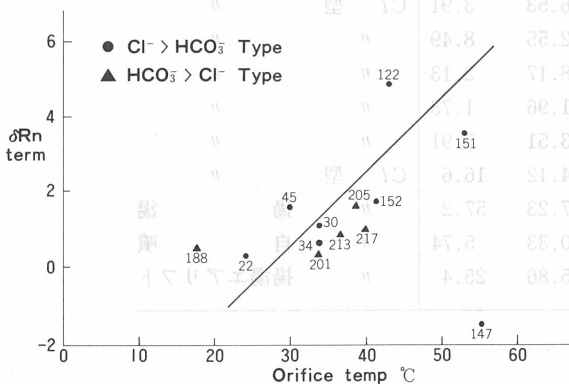


Fig. 4 Relationship between δRn term and Temperature

2.3 主要化学成分とRa及びRnの含量

まず蒸発残留物は78~10,160 mg/l の範囲であるが¹⁾、今回採取した試料の中の最高はNo.147の1,961mg/l、次いでNo.122の1,255mg/lである。HCO₃⁻>Cl⁻型は蒸発残留物が200mg/l以下と低濃度である。以下の検討の際No.147は上述の理由により、No.122はこの点で特異な状態がおこる。Cl⁻>HCO₃⁻型の源泉は主として勝浦港を中心として海岸側に分布しているのに対しHCO₃⁻>Cl⁻型源泉是那智川の上流や、湯川温泉のゆかし瀧を中心とした内陸部にある。後者は温度はさほど高くなく蒸発残留物も200mg/l以下と

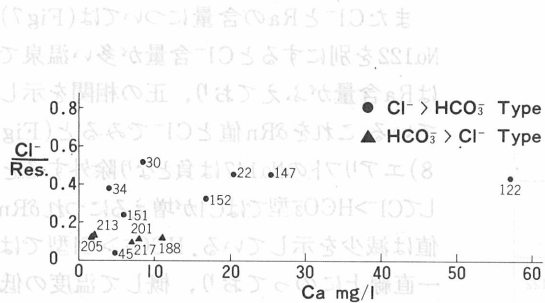


Fig. 5 Relationship between Cl⁻/Res. and Ca²⁺ Content

しているとみられる。海水の混入については、水素と酸素の同位体比による研究からも海水混入型であることが指摘されている⁶⁾。温泉水の主要成分の組成からみて、Rn及びRaとδRn値との相関関係を検討する成分としては白浜同様に⁷⁾Cl⁻, HCO₃⁻及びCa²⁺をとりあげた。まずCl⁻とRnの相関々係(Fig 6)はNo.122を別にすると一応右下りの直線にのり逆相関を示している。Cl⁻含量が多い温泉ではRn含量が高くない点が指摘出来る。すなわち、Cl⁻が増加してもRnは多くならないことである。

HCO₃⁻>Cl⁻型ではほとんど一直線上にのり、温度の低いものほどCl⁻含量もRn含量も小さくなっていることがわかる。

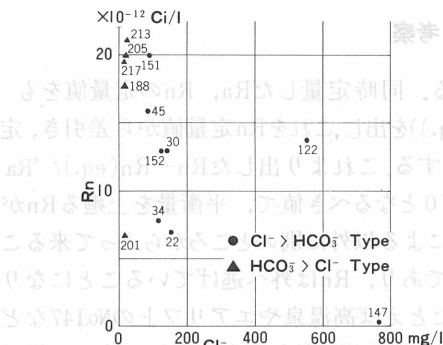


Fig. 6 Relationship between Rn and Cl⁻ Contents

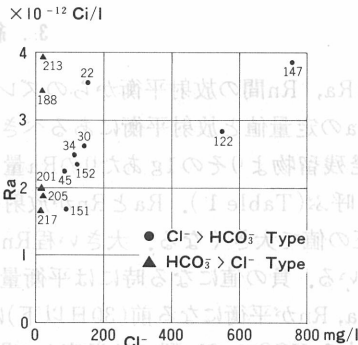


Fig. 7 Relationship between Ra and Cl⁻ Contents

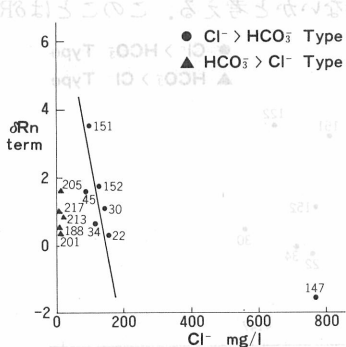


Fig. 8 Relationship between δR term and Cl⁻ Content

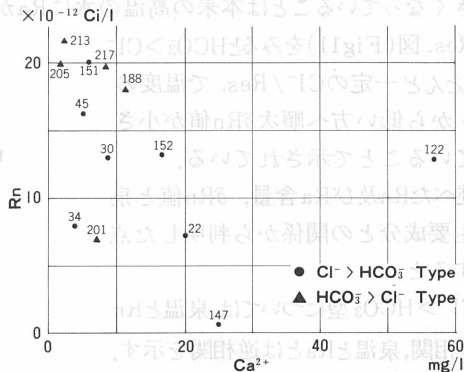


Fig. 9 Relationship between Rn and Ca²⁺ Contents

少なく、地下水型というべき性質のものである。これに対してCl⁻>HCO₃⁻型は海水の混入により生成したものと考えられ、また蒸発残留物の多いものほど位置と湧出状況からみて海水の混入が進んでいる。そこでCl/Res. (蒸発残留物)とCaと(Fig 5)をみると海水の混入のあるものはCl⁻/Res.は当然大きくなり、HCO₃⁻>Cl⁻型はそれほど大きくならず、せまい範囲の変動であり、明らかに二群に区別出来る。HCO₃⁻>Cl⁻型の特色からみると、海水が混入し、Caの増大をもたらしている

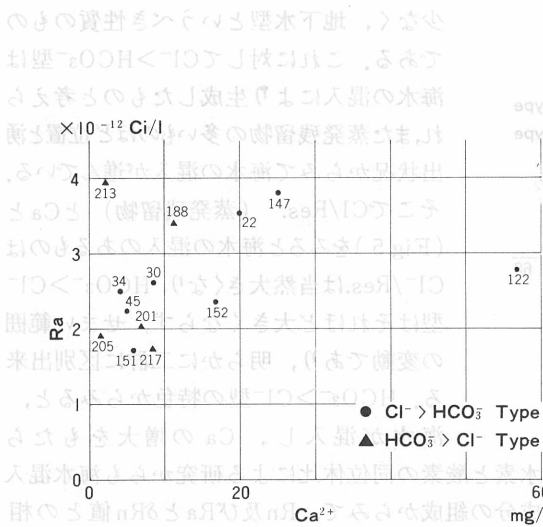


Fig. 10 Relationship between Ra and Ca²⁺ Contents

またCl⁻とRaの含量については(Fig7) No.122を別にするとCl⁻含量が多い温泉ではRa含量がふえており、正の相関を示している。これをδRn値とCl⁻でみると(Fig 8)エアリフトのNo.147は負となり除外するとしてCl⁻>HCO₃⁻型ではCl⁻が増えるにつれδRn値は減少を示している。HCO₃⁻>Cl⁻型では一直線上にのっており、概して温度の低いものほどδRn値は小さくなっている。

Ca²⁺とRnとの関係は(Fig 9)No.122を除くとCl⁻含量との相関とよく似たパターンを示し、Ca²⁺含量の多い温泉はRa, Rn含量が少なくなっている。なお、Ca²⁺含量とRaとは、白浜温泉ではほぼ逆相関を示したが⁷⁾勝浦、湯川のCl⁻>HCO₃⁻型では、Ca²⁺含量の高いものはRa含量も高くなっている(Fig10)。No.122はCa²⁺の増加ほどRaは大きくなりがやほりこの傾向がみられる。

3. 結果に対する考察

δRn値はRa, Rn間の放射平衡からのズレを示している。同時定量したRa, Rnの定量値をもとにしてRaの定量値と放射平衡にあるべきRn量(Rn(eq.))を出し、これをRn定量値から差引き、定量した蒸発残留物よりその1gあたりのRa量(°Ra)を算出する。これより出したRn-Rn(eq.)/°RaをδRn値と呼ぶ(Table 1)。RaとRnが放射平衡にあれば0となるべき値で、平衡量を上廻るRnがあるとき正の値で大きくなる。大きい程RnはRaの崩壊による以外に別のところから入って来ることを示している。負の値になる時には平衡量を下廻るRnであり、Rnは外へ逃げていることになりあるいはRa, Rnが平衡になる前(30日以下)に噴出した、たとえば高温泉やエアリフトのNo.147などがその例である。HCO₃⁻>Cl⁻型では温度との関係を見るとCl⁻>HCO₃⁻型より少し大きい値だが相互に大きな差がないことはRaとRnが十分に一緒に行動している時間があることであり、温度と共に少し大きくなっていることは本来の高温の水にRaが多いためではないかと考える。このことはδRn値-Cl⁻/Res. 図(Fig11)をみるとHCO₃⁻>Cl⁻型ではほとんど一定のCl⁻/Res. で温度の高いほうから低い方へ順次δRn値が小さくなっていることで示されている。

以上述べたRn及びRa含量、δRn値と泉温及び主要成分との関係から判明した点を要約すると、

- (1) Cl⁻>HCO₃⁻型については、泉温とknとは正の相関、泉温とRaとは逆相関を示す。
- (2) Cl⁻含量が高い温泉で、Ra含量も

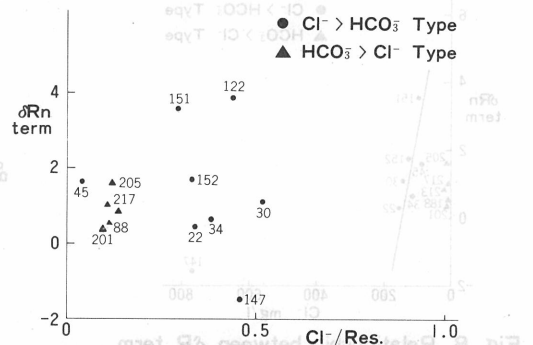


Fig. 11 Relationship between δRn term and Cl⁻/Res.

- 高い源泉, あるいはRn含量が特に少ない源泉はみあたらない。
- (3) HCO_3^- とRn及びRaの関係は はっきりしない。
 - (4) Ca^{2+} とRn及びRaとは, Cl^- とやや類似した相関を示す。

以上述べたことから勝浦, 湯川は白浜温泉にくらべるとRn及びRaの含量が大きくばらつかず, 比較的安定していることが言えそうである。換言すれば, 白浜, 勝浦温泉共に海水の混入により形成された $\text{Cl}^- > \text{HCO}_3^-$ 型の温泉が存在するけれども, 今回分析の対象となった13源泉は, Cl^- 含量からみて海水の混入率もさほど高くなく, かつ白浜ほど高温ではないので, 海水混入過程でおきる地層中の岩石, 鉱物とのハイドロサーマル反応⁸⁾が白浜ほど進行せず, 海水の混合も単なる混入にとどまっていると推定されるからである。この一つの証左として白浜温泉と関連してハイドロサーマルな反応に起因するとした CO_2 は最高176mg/lで大部分は30mg/lとぐんと少なくなっていることである。しかもRn含量の大きいNo.151, 205, 213, 217などの源泉はいずれも CO_2 が10mg/l以下

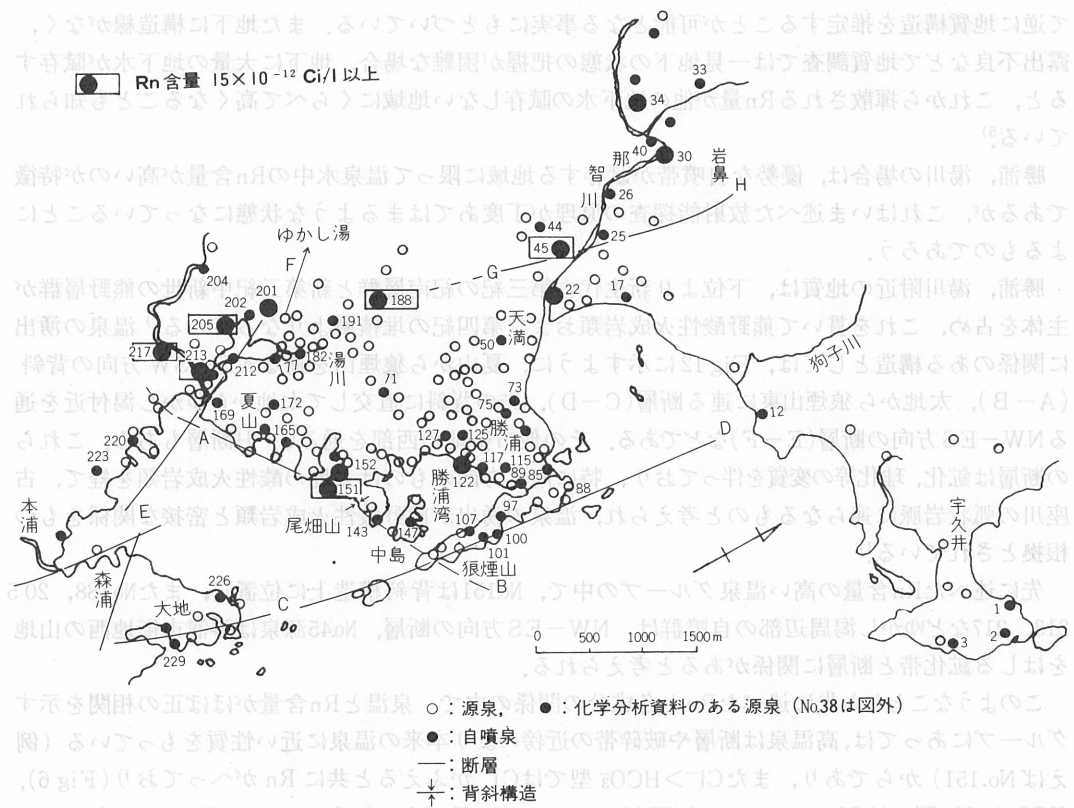


Fig. 12 Location of Thermal Springs and Tectonic Lines

である。白浜のようにCO₂が自噴の大きな要因となるとは考えられない。

したがって対象の13源泉のRnやRaの差が何に起因するか温泉の湧出状況、地質構造、さらに海水の混入を考慮にいれて次の様な湧出機構を想定した。

いまRn含量の多い源泉、たとえば 15×10^{-12} Ci/l以上の源泉、No.45, 188, 151, 205, 213, 217などについてその分布状況をしらべると(Fig.12), 1つはNo.151を含む通称尾畑山附近と、他はNo.188, 205, 213, 217等を含むゆかし渦周辺及び那智川沿い(No.45)に限られていることがわかる。

一方勝浦、湯川温泉には前述したように200を越える多数の源泉があるが、その中で自噴泉をピックアップすると(Fig.12), 那智川流域; 勝浦の海岸より尾畑山附近及びゆかし渦周辺に限られていることがわかる。即ち、Rnの含量の高い源泉は自噴泉の存在する地域に分布していることが特筆されてくる。自噴泉の存在するところは地下より湧出してくる温泉の圧力が他の地域にくらべて高いからであることは言うまでもない。これは1つは地下に何らかの地質構造線(Tectonic line)があってそれが温泉の湧出路として重要な役割を果していることに関連するからであろう。

一般に地下水や温泉の賦存状態、地質構造(断層や破碎帯)などを捜査する手段として、いわゆる放射能探査法⁹⁾が用いられる。この原理は、断層や亀裂などの発達している地域にあっては、これらを通路として地下より供給されるガスを通して起こるRnの拡散が、亀裂や断層の発達していない地域にくらべて著しいため、地表面や土壤中¹⁰⁾の放射能が高く、これを検知することによって逆に地質構造を推定することが可能となる事実にもとづいている。また地下に構造線がなく、露出不良などで地質調査では一見地下の状態の把握が困難な場合、地下に大量の地下水が賦存すると、これから揮散されるRn量が他の地下水の賦存しない地域にくらべて高くなることも知られている⁵⁾。

勝浦、湯川の場合は、優勢な自噴帯が賦存する地域に限って温泉水中のRn含量が高いのが特徴であるが、これはいま述べた放射能探査の原理が丁度あてはまるような状態になっていることによるものであろう。

勝浦、湯川附近の地質は、下位より新生代古第三紀の紀南層群と新第三紀中新世の熊野層群が主体を占め、これを貫いて熊野酸性火成岩類および第四紀の堆積層よりなっている¹⁾。温泉の湧出に関係のある構造としては、Fig.12に示すように、夏山から狼煙山を通るNE-SW方向の背斜(A-B)、太地から狼煙山東に連る断層(C-D)、先の背斜に直交して太地からゆかし渦付近を通るNW-ES方向の断層(E-F)などである。その他市街地の西部を通るG-H断層もある。これらの断層は鉍化、珪化等の変質を伴っており、特に南北方向のものは太地の酸性火成岩類を経て、古座川の弧状岩脈に連らなるものと考えられ、温泉の湧出が熊野酸性火成岩類と密接な関係をもつ根拠とされている¹⁾。

先に述べたRn含量の高い温泉グループの中で、No.151は背斜構造上に位置し、またNo.188, 205, 213, 217などゆかし渦周辺部の自噴群は、NW-ES方向の断層、No.45源泉は勝浦市街地西の山地をはしる鉍化帯と断層に関係があると考えられる。

このようなことから先に述べたRnと各成分の関係の中で、泉温とRn含量がほぼ正の相関を示すグループにあっては、高温泉は断層や破碎帯の近傍のより本来の温泉に近い性質をもっている(例えばNo.151)からであり、またCl⁻>HCO₃⁻型ではCl⁻がふえると共にRnがへっており(Fig.6), HCO₃⁻>Cl⁻型ではCl⁻にまったく無関係である。Cl含量が高い温泉ではRn含量の特に高い温泉がみられないのは、Rnは海水混入にともなう増加分が少ないことを示唆するものであろう。

また泉温が高いCl⁻型の温泉ではRa含量が低くなっているのは、RaがCa²⁺と何等かの関係をもっているように思われる。ハイドロサーマルな反応でCa²⁺が増えることはRaの増加になると言える。蒸発残留物が少ない本来の温泉にRaがごく少しだけあり、これがCa²⁺の増加と共に

ふえてゆく。しかし蒸発残留物の少ないことでもわかるようにハイドロサーマルな反応はそれほど大きいものでない。また白浜にくらべて著しくCO₂が少ないこともその裏付けといえるわけで、本来の温泉にRaが少しあったと考えてよい。

さてRaはイオン半径が大きいので粘土層などに吸着されるとこれは溶脱しにくいものである。しかし、その崩壊によって出来るRnは容易に水中にとけてくるものであり、 δRn 値が0より大きくなっていることがこれを示している。RnはRaそのものの崩壊生成物以外にラドンが希ガスであるため系外からの流入などにより、湧出する過程で入ったものであり、しかしこの際も蒸発残留物がいずれもきわめて小さいことより、これらが周囲から溶解するさいにRn やRaを一緒にとかし出したとは考えにくい。むしろ断層その他がよいRn の通路であることより上述の考えは支持されよう。

ま と め

勝浦, 湯川湯泉では、温泉水はいくつかの断層, 破碎帯を通して湧出してくる。自噴泉は主として断層付近に位置し、温泉水中のRn含量はこれら断層付近の優勢な自噴帯及びその周辺の源泉で高くなっているのが特徴である。

温泉水はCl⁻>HCO₃⁻型とHCO₃⁻>Cl⁻型に分けられ、前者は溶存成分が多く、後者は少ない。Cl⁻>HCO₃⁻型はHCO₃⁻>Cl⁻型に海水が浸入して形成されたものと考えられる。

温泉水中のRn及びRa含量のばらつきは、源泉が前記地質構造線に近接しているか否かという事実と海水の混入現象の程度によって説明される。ただし、白浜温泉とちがって、地下の温泉賦存帯がさほど高温でないこと、海水混入過程での海水と周辺物質とのハイドロサーマルな反応の進行が緩慢なことが関係して、Rn, Ra含量がばらつかず安定しているのが特徴といえる。いずれにしても今回採取した勝浦, 湯川温泉中のRn, Ra含量からみる限り、本地域は地下水系が卓越したタイプということができよう。

文 献

- 1) 高橋 保, 田中 昭, 佐藤幸二, 温泉科学, **28**, 165 (1978)
- 2) 中村久由他, 地調月報, **9**, No.5 (1958); 中村久由, 地調報告 (本邦諸温泉の地質学的研究) 第192号 (1962)
- 3) 横山次郎, 和歌山県温泉調査報告, 勝浦, 湯川温泉, 湯峯川湯温泉, (1960)
- 4) 堀内公子, 村上悠紀雄, 温泉科学, **29**, 68 (1978)
- 5) 堀内公子, 村上悠紀雄, 地球化学, **12**, No.2, 印刷中 (1978)
- 6) O. Matsubaya, H. Sakai, I. Kusachi and H. Satake, *Geochem. J.*, **7**, 123 (1973)
- 7) 堀内公子, 甘露寺泰雄, 村上悠紀雄, 温泉科学, **29**, No.4, 175 (1979)
- 8) 酒井 均, 科学, **45**, 145 (1975)
- 9) 落合敏郎, 放射能式地下水探査法, 昭晃堂, 20p (昭和40年) 東京; 初田甚一郎, 物理探査, **2**, 31 (1949); 落合敏郎, 同誌, **4**, 2, 78 (1951)
- 10) 村松久和他, (1977年) 日本地球化学会年会, 講演番号2407; 飯島南海夫他, 1978年日本地球化学会年会, 講演番号 6D 06
- 11) 益子 安他, 日本温泉科学会第27回大会講演要旨, 温泉科学, **25**, 112 (1974)