

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 6 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25340057

研究課題名(和文) 河川への温泉成分流出の定量的理解と環境負荷・生態系への影響に関する研究

研究課題名(英文) Study of hot spring ingredient outflow into river for understanding of its environmental load and influence to ecosystem

研究代表者

大沢 信二(Ohsawa, Shinji)

京都大学・理学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：30243009

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：日本最大の温泉地、別府温泉の河川は、下水道未整備地域に存在する沸騰泉からの温泉排水の影響を強く受けている。沸騰泉から絶えず湧出し、未利用のまま河川へ排出されている温泉水の関与が疑われる。温泉に由来する有用金属元素Li, Cs, Rbの河川への年間排出量は、それぞれ34, 0.4, 5.4トン、厳しい環境基準が設けられているAsとBはそれぞれ1年間に4.3, 82トンである。温泉排水の流入が河川の珪藻量の増加も引き起こしており、別府湾へ流出する珪藻量は年間10ton以上にもなる。

研究成果の概要(英文)：From this study, it becomes understood that the rivers in the biggest hot spring area in Japan, Beppu, are strongly affected by hot spring drainage discharged from boiling hot springs existing in sewage unimproved area. The drainage of unused hot spring water from the boiling hot springs all the time is suspected of having a hand in the affair. Annual emission rates of Li, Cs and Rb, which are mainly derived from boiling hot spring water and useful metallic elements, are 34, 0.4 and 5.4 tons, respectively, whereas those of As and B, which are also originated from boiling hot spring water, are 4.3 and 82 tons, respectively. This study made it clear that inflows of hot spring drainage into rivers cause increase of diatom amount in several rivers in Beppu, and annual discharge rate of the diatom to the Beppu Bay is estimated to be more than 10 tons a year.

研究分野：地球流体化学

キーワード：温泉 河川 水質 有用金属元素 有害元素 流出量 珪藻 因子分析

1. 研究開始当初の背景

温泉水の河川への流出という現象は、古くから自然科学的興味の対象として研究されてきたものである(例えば, Webster, 1999; Mroczek, 2005). それは今も続いているが(例えば, 久保田ほか, 2010; 宮原ほか, 2008; Agtas et al., 2007), そのほとんどが依然として質的理解, すなわち水質の考察に留まっているもので, 研究事例のみが増えているように見える. そんな状況に至るとすでに研究の意義は薄れてしまったと見なされそうであるが, 平野部や都市部において深い井戸が掘られ, 元々温泉のなかったところに温泉が多数出現しているという近年の温泉事情を鑑みると, その意義は薄れるどころか, 逆に今後は研究や調査が必要とされる機会は増えてくると予想される. そのように深い温泉掘削で得られる温泉水の多くは, 石油・天然ガスと同じ様に, 永い間地下に眠っていたものであり, 地表環境とはほとんど交流のなかった代物である. 地中から取り出して使用した後の温泉水の行方をたどり, 環境へ負荷を与えるか否かに気を配っていくことは人間の義務であり, 「最も身近な水環境である河川への温泉排水の流出という現象の研究は大切である」と言っても言い過ぎではないであろう.

申請者は, 国内大規模を誇る別府温泉において, 上で述べたものとは少し違った動機によって河川への温泉排水の流出現象の研究に取り組みはじめた. その動機とは, 温泉を利用する旅館などの事業所からの排水が水質汚濁防止法に抵触し, 別府の基幹産業である観光を揺るがす社会問題となっていることである. これは市長が環境省へ陳情に行くなど, 県行政も重い問題と認識しているものである. 我々はまず手始めに, 別府の温泉湧出地域を流れ下る全ての河川の上流域から下流まで, 流域全体の水質化学的な調査を実施し, (1) 流下とともに湧水レベルであった河川水の溶存成分濃度が温泉水のそれに向かって高まって行くこと, (2) そのような濃度レベルになった河川水の Cl, Na, K と微量成分の Li, Cs, Rb, B は全量が温泉起源であること, (3) その特徴的なアルカリ塩化物型の水質は, 温泉排水が主として高温の温泉(沸騰泉)からもたらされていることを示唆していることなどを明らかにした. そして, 別府の河川は, 河川氾濫の防止や温泉水を含む地下水の水質保全を目的として護岸工事が施されており, 流域のほとんどでコンクリート三面張りになっているが, そのことが逆に災いして, 河川は巨大な水路と化しており, そこに棄てられた温泉排水はほとんどそのまま河口にまで達し, 別府湾に流出していると予見した. 本申請の研究課題は, 以上の助走的準備段階の研究の成果に基づいて計画したものであり, 近い将来には温泉と沿岸海域の生態系や生物生産性との関係

といった関連性がより不明な対象への研究につながっていくものと考えている.

2. 研究の目的

人類にとっての恵みである温泉の環境負荷・生態系に与える影響の実態解明およびその手法の構築を終局的な目標とし, 特に, 本研究では, 近年, 社会問題となっている水質汚濁防止法に抵触する温泉排水の環境流出に対する問題の解決の糸口を探ることを念頭におき, 日本大規模の温泉地である大分県別府温泉の主要河川を対象にして, [I]「温泉排水の河川への際立った流出箇所は?」, [II]「河川への温泉成分の排出量は?」, [III]「温泉成分の河川生態系への影響は?」の解明を目指し, 野外調査・観測によって, 以下に述べるところまでを明らかにする.

[I]の「温泉排水の河川への際立った流出箇所は?」では, 偏在していると予想される温泉排水の河川への流入場所を特定するとともに, その検出方法を確立する. また, 下水道整備網や暗渠の分布などとの比較検討から特定流出域の存在理由についても考察する. [II]の「河川への温泉成分の排出量は?」では, 生態系に対して有害なもの(例えば, As)と人にとって有用なもの(例えば, Li や Rb)が1年間を通してどのくらい流出しているかという量的な状況を把握する. さらに後者については, 有価金属市場の取引額を参照して, 有用金属元素を温泉(排水)から回収した場合の経済的な試算を行う. [III]の「温泉成分の河川生態系への影響は?」では, 別府温泉の河川に生息する熱帯性の魚(テラピアやグッピー)の食物になっていると推定される珪藻の分布状況や河川水質との関係, 浮遊珪藻の河口域への流出量を明らかにする.

3. 研究の方法

[I] 温泉排水の河川への際立った流出箇所の特定とその方法の確立(「温泉排水の河川への際立った流出箇所は?」)

別府の河川流域に存在する全て(約 3000)の泉源の温泉分析書を集め, 泉質を判断するのに必要な温泉水の化学分析値を収集し, 泉質分類を行う. そして, それを基にした泉質マップの作成につなげる作業として, 保健所所蔵の温泉台帳を閲覧し, 台帳に記載してある詳細地図を手掛かりに正確な泉源位置を求め, 泉源の分布図を作成する. 後に, 作成した泉源分布図上の泉源位置に泉質分類作業で決定された泉質情報を貼り付けて泉質マップにする. 準備段階の研究で得ている上流から下流までの河川水質分布図を作成した泉質マップと対比させ, 泉質と河川水質が変化する地点に着目し, 下水道整備網や暗渠の分布なども参考にしながら, その周辺にある泉源の泉質をチェックするという方法によって, 温泉排水の河川への流入地点を特定

する。

〔Ⅱ〕河川への温泉成分<有用なもの>と有害なもの>の排出量・負荷量の見積り(「河川への温泉成分の排出量は?」)

別府温泉の主要河川の非感潮域の下流域において、河川流量を測定し、同時に河川水を採取して主要化学成分の化学分析データと生物起源ケイ酸(=珪藻)の密度データを得る。現地では、pH、ORPなどをポータブル多項目水質計で測定する。河川流量測定は、河川断面積と河川水の流速から求める(例えば、新井, 1994)。断面積は、巻尺と折尺を用いて川幅と水深を計測し、計算によって求める。流速は水深計測位置、水深6割の深さにおいて、ポータブル電流流速計を用いて計測する。河川水の採取を同じ地点の河川流心部で行い、試料水は現地においてメンブレンフィルターでろ過し、ろ液とフィルターを実験室に持ち帰る。ろ液試料については、容積を量った後、イオンクロマトグラフを使っての主要化学成分(Na, K, Mg, Ca, NH₄, Cl, NO₃, SO₄)の分析とモリブデンブルー法による溶存無機ケイ酸(SiO₂)の分析を行う。一方のフィルター試料からは、河川水中の生物ケイ酸(BSi)の密度データを得る。測定方法は、DeMaster(1981)に準拠し、フィルター上の懸濁物を一定容積のアルカリ溶液で抽出し、抽出液を無機ケイ酸の分析と同じモリブデンブルー法で分析する。

以上の作業で得られる河川水に関する濃度や密度データに河川流量を掛けて、単位時間当りに河川水によって河口域まで運ばれる主要化学物質と浮遊珪藻の量を計算する。この作業を季節的に繰り返して行い、年間量を見積もる。

〔Ⅲ〕排出温泉成分の河川生態系、特に珪藻を根幹とした食物連鎖系への影響(「温泉成分の河川生態系への影響は?」)

別府温泉の河川に棲む外来魚と同種の熱帯性の魚が、重要な生態系の一次生産者である珪藻を食すという情報に注目し、珪藻と温泉水の主要な成分であるケイ酸の関係を見るために、生物ケイ酸(BSi)密度と水質との関係を客観的に評価する探索的因子分析を行う。

4. 研究成果

〔Ⅰ〕温泉排水の河川への流出箇所の特定とその方法の確立

調査河川の水質分布から(図1)、大まかには、冷川を除く5河川すべてにおいて河川水質の型が変化している地点はどの河川も上流域から中流域にあり、C1型に変化して、それより下流は同じ水質を維持していることが確認できた。河川水質の変化が起こっている平田川上流域、新川、平田川、春木川、朝見川の中流域から下流域の周辺の温泉の泉質を見てみると、変化後の河川水質との対

応が見られるため、これらの地点で温泉排水の影響が明瞭に表れはじめていえる。しかし、境川と朝見川の下流域では流域に存在する温泉の泉質の多くがHCO₃型であるにも関わらず、河川水質はC1型のままである。これらのエリアは下水道整備域に含まれているおり、一帯の温泉は低温であることから温泉排水は河川ではなく、下水道へ排水されている可能性が高い。

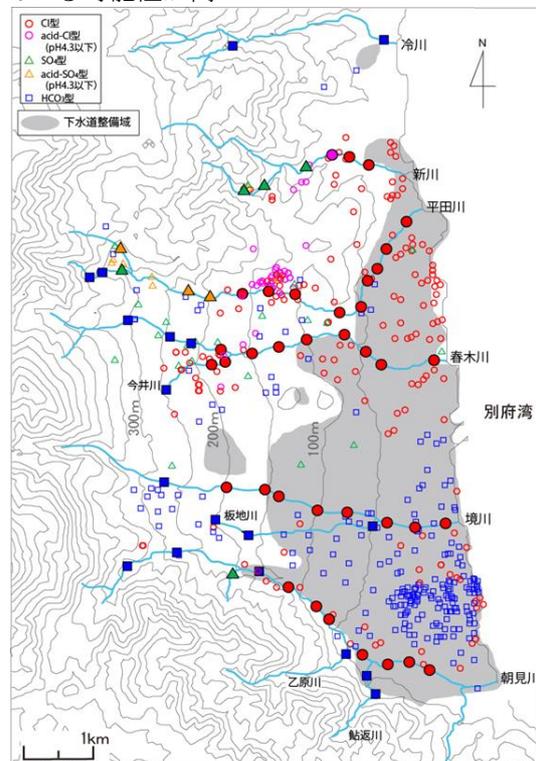


図1 温泉の泉質および河川の水質の分布と下水道整備域

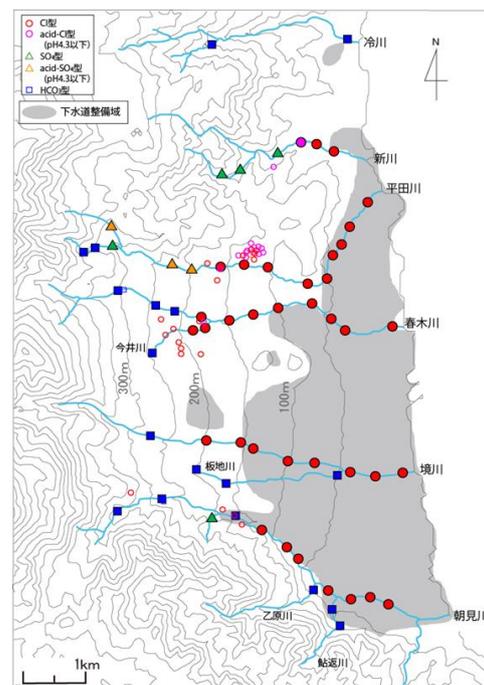


図2 沸騰泉の位置(白抜き丸、色は河川水質に準じて配色)と河川水質分布

朝見川の下水道整備地域の最上流部では河川水質が HCO_3 型から C1 型へ変化しているが、温泉排水が河川ではなく下水道へ流されているとすれば河川水質の変化は起きないはずである。その変化の原因が周辺の温泉にあると考え、特徴をみたところ、周辺の温泉は沸騰泉であることがわかった。沸騰泉の多くは湧出量の調整をせずに絶えず湧出させているため、源温度に近い水温の温泉水の余剰分が河川へ排水されている可能性がある。同様の可能性を他の河川でも確認するために、図1の温泉から沸騰泉だけを抜き出して(図2)、河川水質との関係を見たところ、沸騰泉は各河川において河川水質の型が C1 型に変化している地点付近に多いことが分かった。このことから、沸騰泉が各河川の水質へ大きく影響を与えており、その影響が下流域へと続いていると結論付けられた。

境川に関しては流域に沸騰泉の分布が見られず、河川水質の型が C1 型に変化している地点付近に同型の温泉は見られないため(図1)、温泉排水以外の影響の可能性がる。境川の NO_3 濃度は、平田川や春木川のそれと同レベルであるが、Li 濃度には平田川と境川で大きな差がある。温泉排水の指標となる Li 濃度が低い境川は、生活排水の影響が相対的に強く、C1 型河川水質は生活排水によるものと考えられる。この解釈が妥当であれば、春木川の水質には温泉排水と生活排水の両方が同程度に影響していると言えよう。

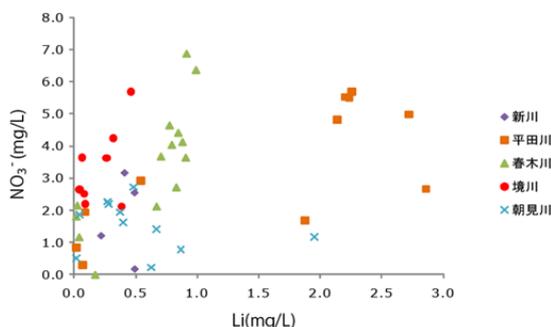


図3 河川の Li 濃度と NO_3 濃度の関係図(河川水の主要溶存化学成分の総量値 $\geq 200 \text{mg/L}$)

〔Ⅱ〕河川への温泉成分<有用なもの<と有害なもの>の排出量・負荷量の見積り

河川最下流部の非感潮域における春・夏・秋・冬の4回分の河川流量と河川水中の微量化学成分濃度から各成分について1年間の流出量を推算した(成分濃度に河川水量を掛けると成分量となる)。温泉に由来する有用金属元素である Li, Cs, Rb の河川への年間排出量はそれぞれ 34, 0.4, 5.4 トン、逆に厳しい環境基準が設けられている有害な As と B が、それぞれ1年間に 4.3, 82 トン河川へ流出していることも明らかとなった。

As 濃度はどの河川でも沸騰泉が多数分布する上・中流域ですでに環境基準値 10ppb を超えていることが判明したので(図4)、再び河川水質に注目し、それと流域付近に分布

する温泉の水質との比較を行ったところ、下水道未整備地帯に集中的に存在する沸騰泉からの影響が際立って大きいことが確認できた。沸騰泉からの有害元素の流出を阻止すれば河川の現状を改善することができるので、例えば、As 同様に沸騰泉に多く含まれ、金属市場での取引金額の大きな Li, Cs, Rb などを回収し、有害元素の除去のためのインフラ整備に投資するといった方法の検討を行ってみたいことを提案したい。

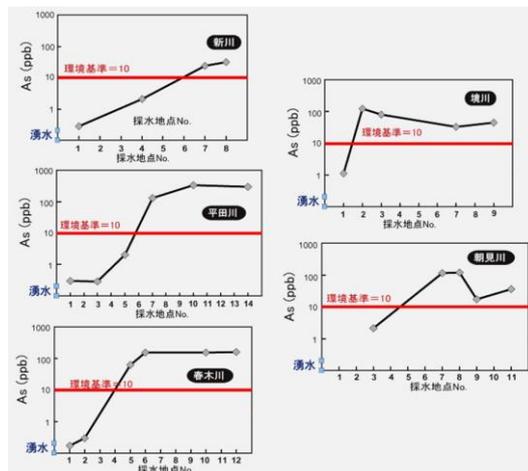


図4 流下にもなる河川水の As 濃度の変化(上図)と環境基準値(10ppb)以上の流域(下図の太い赤線)

河川水の SiO_2 濃度と河川への温泉排水流入の有力な指標のひとつである Li/C1 比との関係を図5に示した。河川水の Li/C1 比が湧水や温泉排水の影響を受けていない通常の河川である冷川のそれより大きくなり、温泉水の Li/C1 比に近づくにつれて、 SiO_2 濃度が増加し、温泉水の値の範囲に入るという関係が見て取れ、河川水中の SiO_2 は、基本的に、Li, Cs, Rb, As, B と同様に温泉排水由来で

あることが示唆された。

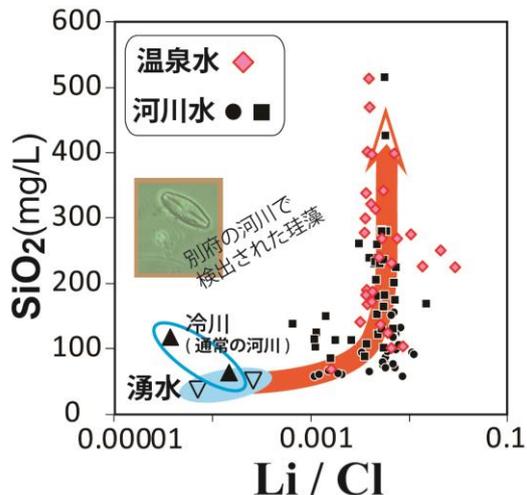


図5 河川への温泉排水流入の指標のひとつ Li/Cl 比と SiO₂ 濃度の関係

〔Ⅲ〕排出温泉成分の河川生態系、特に珪藻を根幹とした食物連鎖系への影響

共通性の推定に SMC 法を、因子軸の回転にノイリマックス法を採用した因子分析の結果を、表1に示す。因子負荷量をみると2つの因子で累積寄与率が78.8%となり、別府温泉の河川水質を形成している因子はほぼこの2つの因子で代表されることがわかる。この2つの因子を個別にみると、因子1は温泉由来の成分と考えられる Li や Na, Cl の因子負荷量が大きく、温泉排水の影響を表す因子、因子2は温泉に通常あまり含まれない栄養塩類 (NO₃⁻, PO₄³⁻) の負荷量が大きく、河川への栄養塩類の供給は生活廃水が担っている場合が多く、因子2は生活廃水の影響を表す因子であると考えられる。

表1 河川水の溶存成分の因子負荷量および寄与率

	Factor 1	Factor 2	Factor 3
Li ⁺	0.978	0.154	0.029
Na ⁺	0.965	0.124	0.203
K ⁺	0.979	0.108	0.092
Mg ²⁺	0.177	0.046	0.928
Ca ²⁺	0.784	0.205	-0.107
Cl ⁻	0.961	0.081	0.201
Br ⁻	0.950	0.066	0.259
NO ₃ ⁻	0.518	0.746	0.137
PO ₄ ³⁻	0.373	0.838	0.124
SO ₄ ²⁻	0.863	-0.087	0.246
HCO ₃ ⁻	-0.278	0.798	-0.107
SiO ₂	0.916	0.247	0.064
Factor Contribution rate (%)	61.6	17.2	9.5

各河川の2因子の因子得点を X-Y グラフ上

にプロットすると (図6), 平田川は X 軸の正の側に、春木川と境川は Y 軸の正の側にプロットされ、相対的に見て、別府の6河川の中で河川水質への温泉排水の影響が大きいのが前者であり、生活廃水の影響が大きいのが後者であることを示している。また、春木川は X 軸の正の側に、境川は負の側にプロットされ、春木川は境川よりも相対的に温泉排水の影響を強く受けていることを指し示しており、前出の Li-NO₃ 濃度の関係から推測された内容と整合的である。

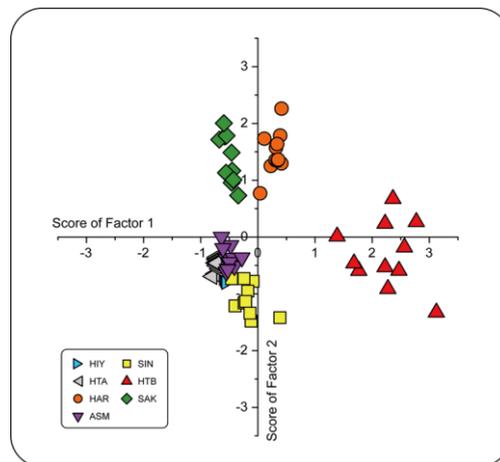


図6 各河川の2因子の因子得点の関係

表2 BSi 濃度 (珪藻量), 溶存成分濃度および水温の相関行列

	W.T.*	Li ⁺	Na ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺	Cl ⁻	Br ⁻	NO ₃ ⁻	PO ₄ ³⁻	SO ₄ ²⁻	HCO ₃ ⁻	SiO ₂	BSi
W.T.*	1													
Li ⁺	0.57	1												
Na ⁺	0.56	0.97	1											
K ⁺	0.57	0.99	0.99	1										
Mg ²⁺	0.49	0.21	0.35	0.27	1									
Ca ²⁺	0.36	0.79	0.83	0.82	0.54	1								
Cl ⁻	0.53	0.95	0.99	0.97	0.36	0.82	1							
Br ⁻	0.55	0.94	0.99	0.97	0.41	0.82	0.99	1						
NO ₃ ⁻	0.51	0.63	0.64	0.63	0.25	0.65	0.60	0.60	1					
PO ₄ ³⁻	0.55	0.50	0.48	0.47	0.22	0.42	0.45	0.43	0.84	1				
SO ₄ ²⁻	0.56	0.86	0.91	0.92	0.38	0.80	0.89	0.90	0.53	0.29	1			
HCO ₃ ⁻	0.56	-0.15	-0.19	-0.21	-0.11	-0.02	-0.22	-0.23	0.41	0.54	-0.38	1		
SiO ₂	0.56	0.95	0.93	0.95	0.24	0.76	0.91	0.90	0.71	0.57	0.85	-0.10	1	
BSi	0.43	0.81	0.80	0.81	0.54	0.66	0.79	0.78	0.36	0.25	0.71	-0.25	0.73	1

各溶存成分の濃度, BSi 濃度および水温の相関関係を表2に示す。温泉由来と考えられる成分との相関性は非常に高く, BSi 濃度, 即ち河川を流下する珪藻量には温泉排水に含まれる成分が関係していることが強く示唆される。その反面, 珪藻の成長に必要な栄養成分となる栄養塩類 (NO₃⁻, PO₄³⁻) との相関はほとんどなく, また, 水温と BSi 濃度との間にも強い相関は見られなかった。

温泉排水の影響の強い平田川と春木川について, 河川流量と BSi 濃度から河川から別府湾に流出する年間の珪藻量 (フラックス) を見積もった。平田川と春木川の流量は共に年間を通して大きな変化は見られず (前者は 0.3m³/sec 程度, 後者は 0.1m³/sec 程度), 計算は各月の観測データから一日あたりの珪藻フラックスを求め, それらの値の平均値を使い年間珪藻フラックス量を計算した。求めた年間フラックスは, 平田川で9.2トン, 春木川で1.2トンとなり, 2つの河川を合わ

せると少なくとも年間 10 トン以上の珪藻が別府湾へ流出している計算となる。この量が海の生態系にとってどの程度の意味を持つかは今のところ明確ではらないが、自然状態を保っている冷川の BSi 濃度に比べて平田川のそれが 3 倍以上の濃度であることを考えると、別府温泉の河川は自然状態よりも数倍の珪藻を別府湾へ排出していることが想定される。

〔IV〕その他

温泉成分や浮遊珪藻を多量に含んだ河川水が海洋に流出した後どのように挙動するのかという未知の問題、また、温泉由来の可能性のあるガスや地下水が海底湧出するとされる場所(野満ほか, 1940)などを探るために、小型船を用いた沿岸海域の試験的な調査・観測を実施し、次期計画の足掛かりとなるデータや情報を入手することができた。(5. 主な発表論文等の学会発表の⑦)。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 1 件)

- ① Makoto Yamada, Jun Shoji, Shinji Ohsawa, Taketoshi Mishima, Masaki Hata, Hisami Honda, Masahiko Fujii, Makoto Taniguchi, Hot spring drainage impact on fish communities around temperate estuaries in southwestern Japan. Journal of Hydrology, 査読有, 2016, In Press, DOI:10.1016/j.ejrh.2015.12.060 <http://dx.doi.org/10.1016/j.ejrh.2015.12.060>

〔学会発表〕(計 7 件)

- ① 緒方ひかる, 瀬尾千明, 大上和敏, 大沢信二, 大分県湯布院地域の河川水質に及ぼす温泉水の影響について, 日本陸水学会, 2013 年 9 月, 龍谷大学瀬田キャンパス
- ② 山田誠, 大沢信二, 三島壮智, 酒井拓哉 温泉排水と河川を流下する珪藻量の関係, 陸水物理研究会, 2013 年 11 月, 豊泉荘(大分県別府市)
- ③ Makoto Yamada, Shinji Ohsawa, Taketoshi Mishima and Takuya Sakai Relationship between hot spring drainage and the amount of diatom flowing in river, Ocean Sciences Meeting, 2014 年 2 月, Honolulu, Hawaii.
- ④ 山田 誠, 秦 正樹, 宇都宮達也, 三島壮智, 小路 淳, 大沢信二, 谷口真人, 温

泉排水が河口周辺の魚類群集に与える影響. 日本温泉科学会, 2014 年 9 月, 三朝町営国民宿舎(鳥取県東伯郡三朝町)

- ⑤ 辺笛, 大沢信二, 三島壮智, 谷口真人, 別府温泉地域における熱水中無機ヒ素の自然酸化過程, 日本温泉科学会, 2014 年 9 月, 三朝町営国民宿舎(鳥取県東伯郡三朝町)
- ⑥ Makoto Yamada, Jun Shoji, Taketoshi Mishima, Hisami Honda, Masahiko Fujii, Shinji Ohsawa and Makoto Taniguchi The impact of thermal energy and materials derived from the hot spring drainage on the fish community near the estuary. American Geophysical Union Fall Meeting, 2014 年 12 月, San Francisco
- ⑦ 大沢信二, 杉本亮, 本田尚美, 三島壮智, 谷口真人 ラドン曳航観測による別府地熱帯沿岸域の海底温泉湧出の検出. 日本地熱学会平成 27 年学術講演会, 2015 年 10 月, 別府コンベンションセンター

〔図書〕(計 件)
該当なし

〔産業財産権〕
該当なし

〔その他〕
ホームページ等
該当なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

大沢 信二 (OHSAWA, Shinji)
京都大学・大学院理学研究科・教授
研究者番号: 30243009

(2) 研究分担者

該当者なし

(3) 連携研究者

山田 誠 (YAMADA, Makoto)
奈良女子大学・共生科学研究センター・非常勤研究員
〈現在: 総合地球環境学研究所・プロジェクト研究員〉
研究者番号: 50434981

大上 和敏 (OUE, Kazutoshi)
大分大学・教育福祉科学部・准教授
〈現在: 大分大学・教育学部・准教授〉
研究者番号: 20583876