

[資 料]

兵庫県北部の温泉の飲用利用基準からみた泉質特性

矢野美穂* 川元達彦 巻幡希子 英保次郎

Ingredient Characteristics of Hot Springs in North Area of Hyogo Prefecture : Related with Drinking Standard of Hot Springs

Miho YANO*, Tatsuhiko KAWAMOTO, Nobuko MAKIHATA and Jiro EIHO

Water Environment Division, Hyogo Prefectural Institute of Public Health and Environmental Sciences, 2-1-29, Arata-cho, Hyogo-ku, Kobe 652-0032, Japan

はじめに

兵庫県は422の源泉(2005年3月現在)を有しており、なかには飲用利用許可を得て飲用にも利用している源泉がある。しかしながら、飲用利用許可の条件となる温泉の飲用利用基準は、一ヵ月程度温泉地に滞在する一般の温泉利用者を対象として設定されており、長期に亘り温泉を利用する地域住民等については必ずしも適合しないため、利用実態に応じて考慮することが必要¹⁾とされている。

また、温泉水は、その起源が多種多様であるため種々の成分を含有しており、誤った利用方法や利用施設の管理の不備のために人に健康影響を与える場合が想定される。一方、温泉の飲用利用基準で定められた基準項目はヒ素、フッ素等の6項目のみであり、各都道府県に対して行ったアンケート調査結果²⁾からも飲用利用基準の見直しを必要とする意見が多数あった。特に、メタホウ酸は温泉水中に高濃度に含まれることから、環境省が飲用利用基準改訂に向けて検討を講じている項目の一つである³⁾。

今回の報告では、兵庫県内の飲用利用許可施設数の半数以上を占める北部の源泉を対象として、飲用利用基準からみた泉質特性について検討した。温泉水は温泉の形

成過程で接触する地質や熱源の影響を受け、それぞれの成分的特徴を有する。既報⁴⁾により、対象とした地域の源泉を分類し、飲用利用基準及び飲用利用基準への追加が検討されている項目に焦点を当て、それらの濃度分布とこれらに影響を与える因子について考察したので、その結果を報告する。

方 法

1. 調査源泉

図1に、1965年3月から2005年3月までの期間に当センターで温泉分析を行った兵庫県内の297源泉の地点を示した(源泉が密集している地域については必ずしも全源泉を示していない)。今回の報告では、図1中で実線より北部の1市3町から湧出する64源泉を調査対象とした。

2. 検討項目

検討項目は、飲用利用基準に定められたヒ素、フッ素、銅、鉛、水銀、遊離炭酸及び追加が検討されているメタホウ酸とした。

3. 試料及び分析方法

飲用に利用される温泉水は、浴槽に供給される温泉水とは異なり加水等の処理を行うことなく源泉水が直接供給されていることから、分析試料は源泉水とした。試料の採水は原則として源泉の湧出口で行ったが、湧出口での採水が困難な場合のみ湧出口にできるだけ近い位置で行うこととした。検討項目の分析方法は、鉱泉分析法指

水質環境部

* 別刷請求先：〒652-0032 神戸市兵庫区荒田町2-1-29
兵庫県立健康環境科学研究所センター
水質環境部 矢野美穂

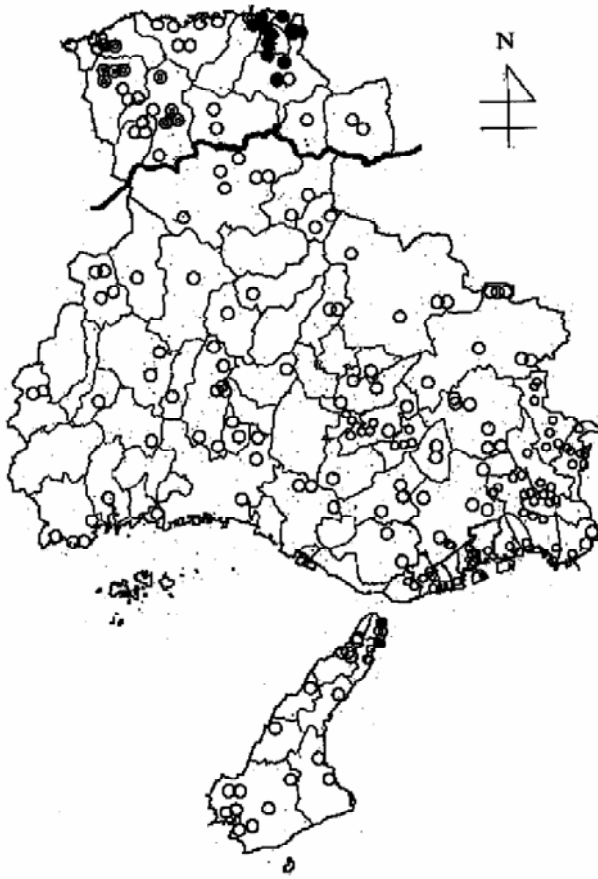


図1 兵庫県下の源泉地点

○：海岸型温泉， △：グリーンタフ型温泉，
●：その他の温泉

注1) 1965年3月から2005年3月までの期間に当センターで分析を行った297源泉

注2) 源泉が密集している地域については、全ての源泉を示すことができていない

針及び上水試験方法に従った。また、各項目の定量下限値は、ヒ素については0.010mg/kg、フッ素は0.050mg/kg、銅及び鉛は0.020mg/kg、遊離炭酸は0.01mg/kg、水銀は0.0001mg/kg、メタホウ酸は0.050mg/kgとした。

結果および考察

1. 飲用利用基準項目及びメタホウ酸の濃度分布

対象源泉水中の飲用利用基準項目及びメタホウ酸の濃度分布を図2に示した。

1) ヒ素

64源泉におけるヒ素の濃度範囲はN.D.～0.60mg/kgであり、中央値は0.050mg/kgであった。この値は兵庫県下の297源泉の中央値0.010mg/kgの5倍高い値であり、北部の源泉の多くはヒ素濃度が高いことが明らかとなった。しかし、全国の平均値0.34mg/kg⁵⁾と比較すると本県北部の平均値は0.064mg/kgと低濃度レベルにあった。

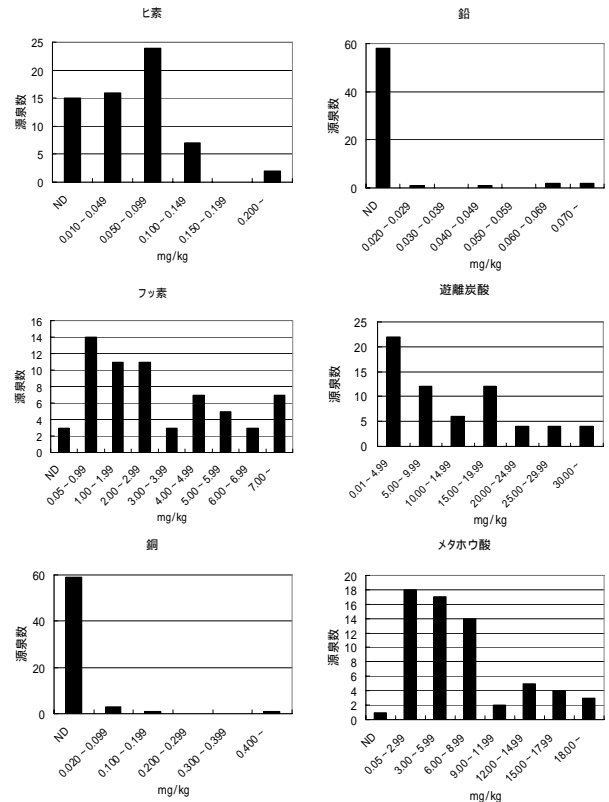


図2 兵庫県北部源泉水中のヒ素、フッ素、銅、鉛、遊離炭酸及びメタホウ酸の濃度分布

飲用利用基準には、1日に温泉水を1000mL飲用した場合の各項目の総摂取量制限の値(総摂取量)が示されている¹⁾。ヒ素の総摂取量は0.3mgであることから、最高濃度0.60mg/kgを示した温泉は現時点では飲用利用許可を受けていないが、飲用利用許可を受ける場合には1日の飲用総量は計算式(0.3/ヒ素濃度×1000)により500mLまでとなり制限量の揭示が必要である。また、総摂取量0.3mgは水道水質基準におけるヒ素の基準値が0.05mg/Lであった当時の水道水質基準値をもとに設定されたものであり、現在では水道水質基準値が0.01mg/Lとなっていることから、今後、飲用利用基準における総摂取量も論議の対象になるものと考えられる。今後は、新たに掘削された源泉の泉質に注視していくとともに、既存の源泉についても再分析を行う等飲用利用の監視強化が必要と考える。

2) フッ素

フッ素の濃度範囲はN.D.～12.3mg/kg、中央値2.10mg/kgであり、兵庫県下の297源泉の中央値1.96mg/kgと比べ僅かに高い傾向にあった。一方、全国の平均値1.9mg/kg^{5,6)}に対して本県北部の平均値は3.16mg/kgであったことから、全国平均値の1.7倍と高い濃度レベルであった。また、飲用利用基準で定めるフッ素の1日の総摂取量は1.6mgであり、最高濃度12.3mg/kgを示した温泉は

既に飲用利用許可を受けているが、計算式（1.6/フッ素濃度×1000）により1日の飲用総量は130mLまでに制限されることを飲用上の注意事項として掲示している。また、全ての対象源泉のフッ素濃度を総摂取量と比較した場合、フッ素の項目により飲用制限が必要となる源泉数は61%と多く、フッ素の摂取は斑状歯やフッ素症を引き起こす⁷⁾とされていることから、飲泉上の監視強化が必要な項目であることが明らかとなった。

3) 銅、鉛、遊離炭酸、水銀

銅及び鉛の検出濃度範囲は、それぞれ N.D. ~ 3.35mg/kg, N.D. ~ 0.1mg/kg, 中央値は共に N.D. と低く、検出率についてもそれぞれ 7.8%, 9.4% と低かった。銅及び鉛の最高濃度を示した温泉は、共に現時点では飲用利用許可を受けていないが、飲用利用許可を受ける場合には、銅の最高濃度 3.35mg/kg を示した温泉については、飲用利用基準で定める 1 日の総摂取量 2.0mg から 1 日の飲用総量は計算式（2.0/銅濃度×1000）により 590mL まで、鉛の最高濃度 0.1mg/kg を示した温泉については、飲用利用基準で定める 1 日の総摂取量 0.2mg から 1 日の飲用総量は計算式（0.2/鉛濃度×1000）により 500mL までの制限量の掲示が必要となる。

遊離炭酸の濃度範囲は、0.01 ~ 456mg/kg, 中央値 9.23mg/kg であり、1 回の飲用の総摂取量 1000mg に対して、いずれの温泉についても制限する必要はなく問題となる濃度レベルではなかった。

水銀については、全試料から全く検出されなかった。

これら 4 項目については、ヒ素及びフッ素と比較して検出頻度及び濃度が低く直ちに問題となる濃度レベルにはなかった。

4) メタホウ酸

メタホウ酸は飲用利用基準の項目にはないが、全国的に高い検出率及び検出濃度の実態があることから追加項目として検討されている³⁾。メタホウ酸の濃度範囲は N.D. ~ 27.3mg/kg, 中央値 5.00mg/kg であり、兵庫県下の 297 源泉の中央値 5.87mg/kg と同程度の値であった。全国の平均値 38.2mg/kg⁵⁾ との比較では、本県北部の平均値は 6.69mg/kg と低濃度レベルであった。

一方、平成16年4月に施行された水道水質基準では、「ホウ素およびホウ素化合物」が基準項目となり基準値 1.0mg/L が設定された。この値は、ラットにホウ酸を投与した催奇形性試験の結果⁸⁾ から耐容一日摂取量 0.096 mg/kg/day が算出され、水道水の寄与率40%、人の平均体重50 kg, 1日に飲用する水の量2L の条件のもとに設定されたものである。これをメタホウ酸に換算すると 4.0 mg/L となる。温泉の飲用利用基準における総摂取量は主に水道水質基準値に2L を掛けた値が用いられており、

この方法を適用すると総摂取量は8.0 mg となる。また、比較的水質が類似していると考えられるミネラルウォーターの製造基準は、ホウ酸として30mg/L 以下であり、メタホウ酸に換算すると21.3mg/L 以下となる。今回検討した64源泉の中には、これらの値を超える源泉（それぞれ7源泉, 2源泉）が存在することから、メタホウ酸については、早期の飲用利用基準の設定が望まれる。

2. ヒ素、フッ素、メタホウ酸濃度に影響を与える要因

温泉の成分は岩石との熱水反応や地上への上昇通路の地層に影響される⁹⁾ことが報告されている。我々は既報⁴⁾において、兵庫県北部の温泉を泉質特性から海岸型温泉及びグリーンタフ型温泉に分類できることを報告した。海岸型温泉は現在の海水と火山岩との相互作用により形成された温泉であり、グリーンタフ型温泉は緑色凝灰岩に浸透した天水中に硫酸カルシウムが溶解し形成された温泉である。これらは温泉水中の塩素イオンを基準イオンとして、硫酸イオン及びカルシウムイオンとの濃度比から分類される。この方法に従って、今回の対象源泉を分類した結果、海岸型温泉が17源泉、グリーンタフ型温泉が21源泉であった。これらの温泉群別にヒ素及びフッ素濃度と泉温との相関関係を検討した。その結果、ヒ素については図3に示すように海岸型温泉及びグリーンタフ型温泉共に、有意な相関関係が認められた（それぞれ $r=0.874$ 及び $r=0.574$, 共に $p<0.01$ ）。また、図4に示すようにフッ素についても同様に海岸型温泉及びグリーンタフ型温泉それぞれについて有意な相関関係が認められ

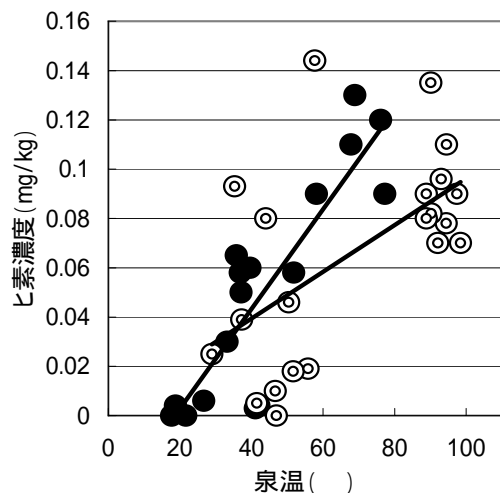


図3 ヒ素濃度と泉温との関係
 海岸型 (○) $y = 0.002X - 0.0377$ ($r = 0.874$)
 グリーンタフ型 (●) $y = 0.0009X + 0.0013$ ($r = 0.574$)

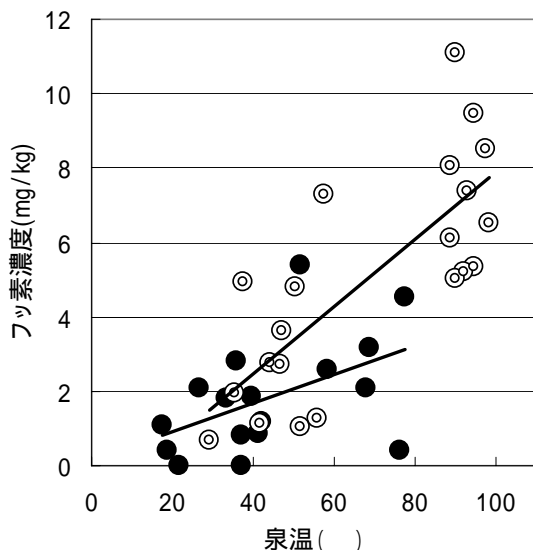


図4 フッ素濃度と泉温との関係
 海岸型 (○) $y = 0.0384X + 0.136$
 $(r = 0.490)$
 グリーンタフ型 (●) $y = 0.0979X - 1.79$
 $(r = 0.767)$

た(それぞれ $r=0.490$ 及び $r=0.767$ $p<0.05$ 及び $p<0.01$).

ヒ素については、久保田¹⁰⁾がグリーンタフ地域である新潟平野及び宍道低地帯から湧出する温泉水中のヒ素濃度について調査し、基盤花崗岩類及びグリーンタフ火山岩類分布域では、堆積岩分布域と比較して温泉水中のヒ素濃度が高い傾向があることを報告している。フッ素については、中牟田¹¹⁾高橋¹²⁾が花崗岩から湧出する温泉水中のフッ素濃度が高い傾向を示すこと、甘露寺¹³⁾が流紋岩質の酸性岩からフッ素の溶出することを報告している。さらに、淵⁵⁾甘露寺¹³⁾はヒ素、フッ素等の濃度と泉温との間で正の相関関係が認められたことを報告している。これらの報告は、今回我々が対象としたグリーンタフ(緑色凝灰岩)、花崗岩及び流紋岩が広く存在している北部地域^{14,15)}から湧出する温泉について、上記の我々の研究結果を論理的に裏付けるものと考えられる。

今回我々が明らかにした本県北部においてヒ素及びフッ素濃度が高いこと、海岸型温泉及びグリーンタフ型温泉においてヒ素及びフッ素濃度が泉温に相関して高くなることは、今後の温泉の飲用利用に関する指導において有用な知見であると考えられる。

一方、メタホウ酸については、泉温との相関は得られなかった。これは、地質からのメタホウ酸の溶出に対し泉温の影響が小さいためと推測された。

まとめ

温泉水中の飲用利用基準項目及びメタホウ酸について、兵庫県北部の64カ所の源泉について調査した結果、以下の知見が得られた。

1. 兵庫県北部に位置する温泉水中のヒ素及びフッ素濃度は、兵庫県全体の濃度レベルよりも高い傾向にあった。
2. 銅、鉛、水銀については検出濃度及び検出率が低く、遊離炭酸についても低濃度であった。
3. メタホウ酸の濃度レベルは、水道水質基準やミネラルウォーターの規格基準との比較から、これらの基準値を超える温泉水が認められ、温泉の飲用利用基準への追加設定が望まれる。
4. 海岸型温泉及びグリーンタフ型温泉において、温泉水中のヒ素及びフッ素濃度と泉温との間には高い正の相関があることが明らかとなった。
5. ヒ素及びフッ素濃度が高い泉質の特性を明らかにし、今後の飲泉に関する指導において有用な知見が得られた。

謝辞

本研究の遂行に当たり、貴重な資料及び情報の提供を頂いた県業務課ならびに豊岡及び洲本健康福祉事務所業務・生活衛生課の皆様へ感謝いたします。また貴重な意見を提供頂きました全日本検数協会顧問寺西清博士及び(財)中央温泉研究所長甘露寺泰雄博士に深く感謝いたします。

文献

- 1) 環境庁自然保護局長通知:「温泉の利用基準について(通知)」,昭和51年7月12日,環自企第424号
- 2) (財)中央温泉研究所:平成9年度温泉の各種利用基準等に関する調査,環境庁業務報告書(1998)
- 3) (財)中央温泉研究所:平成10年度温泉の各種利用基準等に関する調査,環境庁業務報告書(1999)
- 4) 矢野美穂,川元達彦,巻幡希子,谷本高敏:兵庫県北部の温泉の源泉水質,兵庫県立健康環境科学研究所年報,1,42-48(2004)
- 5) 淵 祐一,安藤章夫,山田謙吾:大分県下の温泉について(第3報),大分県公害衛生センター年報,10,48-57(1982)
- 6) 桶田幾代,野村真美,高橋政教,小林英一:青森県内における温泉中のフッ素濃度について,青森県衛生研究所報,17,31-33(1980)

- 7) 日本環境管理学会:改定3版水道水質基準ガイドブック, p.55-58, 丸善株式会社, 東京(2004)
- 8) Price C. J. et al.: Developmental toxicity NOAEL and postnatal recovery in rats fed boric acid during gestation. *Fundamental and applied toxicology*, **32**, 179-193 (1996)
- 9) 湯原浩三, 瀬野錦蔵: 温泉学第9版, p.21-22, 地人書館, 東京(1991)
- 10) 久保田喜裕, 横田大樹, 石山 豊: 新潟平野, 宍道低地帯における温泉水中のヒ素濃度, *地球科学*, **55**, 11-22 (2001)
- 11) 中牟田啓子, 広田敏郎, 松原英隆: 福岡市における地下水のフッ素汚染について, *福岡市保健環境研究所報*, **26**, 98-102 (2001)
- 12) 高橋政教, 平出博昭, 高橋ひとみ, 村上淳子, 阪崎俊璽, 安田徳彦, 石塚伸一: 青森県の温泉中のヒ素およびフッ素含有量について, *青森県環境保健センター研究報告*, **9**, 21-26 (1998)
- 13) 甘露寺泰雄, 高橋 保, 堀内公子: 塩原温泉の化学成分と温泉水の賦存流動状況との関係に関する地球化学的考察, *温泉工学会誌*, **28**, 2-13 (2002)
- 14) 兵庫県土地地質図編纂委員会: 兵庫の地質, 初版, p.154-159, 189-196, 兵庫県, 兵庫(1996)
- 15) 兵庫県土地地質図編纂委員会: 兵庫の地質, 初版, 兵庫県地質図, 兵庫県, 兵庫(1996)