

546.79 : 556.55 : 543.426 (521.82)

宍道湖・中海湖水の懸濁物中のウラン含有量

望月 常一* 中尾 征三**

Uranium Contents of Suspended Matters in the Lakes
Shinji-ko and Naka-umi, Southwestern Japan

By

Tsunekazu MOCHIZUKI and Seizo NAKAO

Abstract

Uranium contents of the suspensions (coarser than 3.8μ), which had been obtained through filtration from the waters (0 m, 2 m, 5 m, in water depth, and near the bottom) of the Lakes Shinji-ko and Naka-umi, were analyzed quantitatively by the fluorescence method. Total uranium in the untreated lake-waters and of the filtrates were also analyzed after the same method.

Suspensions contain 1.3–4.6 ppm uranium from the Shinji-ko, and 0.4–1.5 ppm from the Naka-umi, which correspond to 0.014–0.050 $\mu\text{g/l}$ and 0.004–0.024 $\mu\text{g/l}$ in the respective lake-waters. Since the total uranium contents of these waters are 0.04–0.07 $\mu\text{g/l}$ and 0.8–1.8 $\mu\text{g/l}$, they constitute 10–90 % and 0–2 % of the total uranium in these waters. The difference of the uranium contents of suspensions between these lakes is probably caused by different assemblages of the planktons which are considered to be the major components of the samples.

要 旨

山陰の宍道湖・中海両湖の14点(各7点)で、水深0 m, 2 m, 5 m および湖底近くの各層から5 l ずつの湖水を採取し、これを濾過して得られた懸濁物(3.8 μ 以上)中のウラン含有量をケイ光法で分析した。また、原試水と濾液中のウランについても同法で分析し、分布を規制する要因と、流入河川の一部における既存データとの関連などについて若干の考察をおこなった。懸濁物のウラン含有量は、宍道湖で1.3～4.6 ppm、中海で0.4～1.5 ppmであり、湖水1 l中の懸濁物に含まれるウランの量に換算すると、宍道湖で、0.014～0.050 μg 、中海で0.004～0.024 μg となる。一方、原試水中の全ウラン含有量は、宍道湖で0.04～0.07 $\mu\text{g/l}$ 、中海では0.8～1.8 $\mu\text{g/l}$ であって、宍道湖では、全ウラン含有量に対する懸濁物中のウランの寄与度が約10～90%の広い範囲

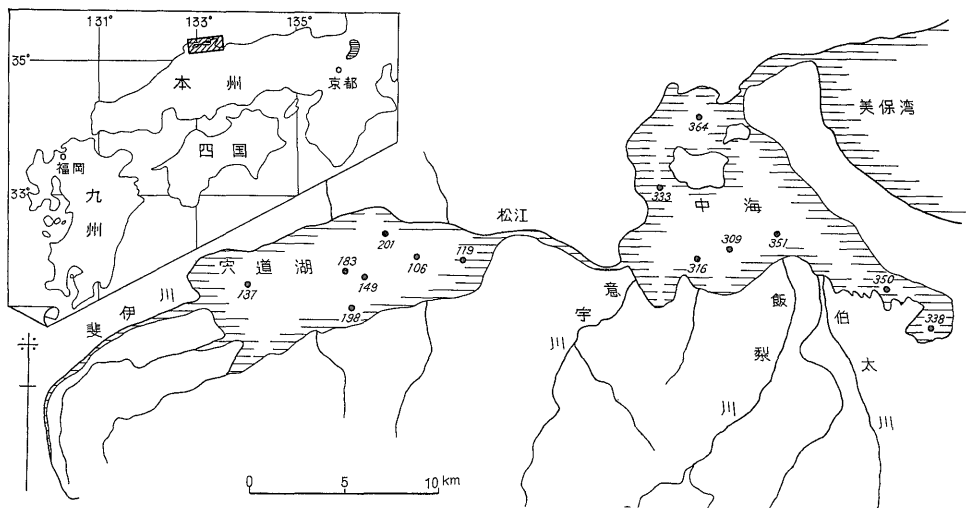
にあり、中海における寄与度0～2%と対照的である。懸濁物の内容を吟味していないので、両湖における懸濁物のウラン含有量の差が何を意味するかを精確に把握することはできないが、濾紙上の残渣を乾燥した際の色(宍道湖では淡緑色、中海ではクリーム色)から、分析試料とした懸濁物の主成分がプランクトンであって、かつ中海と宍道湖でその組成が違っていたと考えられ、これが重要な意味をもっていると思われる。

1. 緒 言

筆者らは1967年以降、山陰地方(島根・鳥取両県下)の宍道湖・中海・美保湾を対象として、ウランの沈殿機構の解明を主題とする研究をすすめており、泥質堆積物中のウラン分布について水野・望月(1970)、宍道湖周辺の河川水中のウラン異常について石原・望月(1969)、美保湾周辺海域の海水中のウラン分布について望月(1970)等の報告がある。石原・望月(1969)や水野・望月(1970)は、ウランが主として粘土鉱物・コロイドに吸着されて

* 技術部

** 地質部



第1図 試料採取位置

沈殿したのであろうと考えている。

一般に湖水中には、動物・植物プランクトンのほかに陸上から河川によって運ばれてきた粘土鉱物、珪酸塩の風化残留物などが懸濁物として存在する。筆者らは宍道湖・中海における湖水全ウランに対する懸濁物中のウランの寄与度を明らかにし、さらに堆積物中のウランの起源を考察するための一資料を得る目的で、湖水をろ過して得られた懸濁物、原試水および汙液中のウランを定量し、それぞれの水深との関係や相互の関係を吟味した。

本研究を行なうにあたっては、地質部水野篤行技官から全般にわたって御指導を頂いた。また、地質部小野寺公児技官には採水に関して多大な御援助を頂いた。両氏に対して、心から謝意を表する。

2. 試料採取および分析方法

試料採取は1969年8月、1970年8月に行なった。採取位置を第1図に示す。採取地点数は、宍道湖・中海各7、計14である。これらの地点で、エクマン式転倒採水器を用い、水深0 m, 2 m, 5 m および底付近から5 l ずつの試水を採取した。採水後ただちに東洋汙紙 No. 5A・22 cm (重量とウラン含有量^{注1)} が測定されている) でろ過して懸濁物(3.8 μ以上^{注2)}) を汙別し、懸濁物については乾燥重量を求めた後に、また汙液と原試水については、それぞれ 500 ml ポリエチレンビンに入れ、塩酸

注1) 0.002 μg, U/sheet: 3枚の汙紙についてそれぞれのウラン含有量を求め平均して1枚あたりのウラン含有量として用いた(分析者: 望月)。

注2) 半谷・安部(1972, p. 224)による。

(1 + 1) 20 ml を添加して実験室に持帰り、ウランの定量分析を行なった。

懸濁物の乾燥重量は、懸濁物の付着した汙紙を乾燥器で乾燥(90°C)し、秤量びんに入れ、デシケーター中で室温まで冷却したのちに測定した重量から予め測定しておいた汙紙の重量を差し引いて求めた。

ウランの定量分析法は以下によった。

- 1) 上記の方法で乾燥重量を求めた懸濁物の付着した汙紙を磁製るつぽに入れ、500°Cで3時間加熱灰化し、デシケーター中で室温まで冷却したのち重量を測定する。
- 2) 灰化した試料を白金皿に移し、弗化水素酸および硫酸(1 + 1)を加えて加熱分解し、白煙をあげたのち冷却する。
- 3) これに少量の水を加えて加熱する。
- 4) ろ過。水で洗浄する。
- 5) 汙液にアスコルビン酸を加えて、pH を1.0~1.5に調節する。
- 6) この溶液を、陰イオン交換樹脂(SO₄型)を充填した極微量カラムに通し、ウランを樹脂に吸着させる。
- 7) この樹脂から、ウランを1N塩酸で溶離し、その一定量を白金皿に分取して、ウランをケイ光法によって定量した。

湖水中のウランについては、試水に磷酸アルミニウム塩を加えて、ウランをアルミニウムに吸着共沈させ、ろ過した沈殿を少量の硫酸で溶解し、アスコルビン酸を加えてpHを1.0~1.5に調節する。以下、懸濁物の場合と同様の方法で、ウランの定量分析を行なった。

第1表 分析結果 (宍道湖)

試料番号	採水年月日	水深 (m)	pH	塩素量 (ppm)	懸濁物 (mg/5 l)	ウ ラ ン			
						原試水中の 全ウラン μg/l	汙液中の全 ウラン μg/l	湖水1lの懸 濁物中のウ ラン μg	懸濁物中の ウラン* ppm
S-106	1969年8月10日	0	8.7	1,000	101	0.05	0.02	0.028	1.3
		2	8.6	1,000	55	0.05	0.03	0.018	1.7
		5	8.5	1,000	35	—	—	0.026	3.7
S-119	1969年8月10日	0	8.6	—	42	0.04	0.02	0.014	1.8
		2	8.7	—	38	—	—	0.016	2.1
		5	8.0	—	30	—	—	0.028	4.6
S-137	1969年8月12日	0	9.2	1,100	80	—	—	0.026	1.6
		2	9.1	1,200	74	0.04	0.02	0.026	1.7
		5	8.7	1,200	泥まじり	0.10	—	—	—
S-149	1969年8月12日	0	9.2	1,100	46	0.04	0.02	0.018	2.0
		2	8.9	1,100	64	0.04	0.02	0.022	1.7
		5.5	8.2	1,100	58	0.04	0.02	0.018	1.6
S-183	1970年8月17日	0	7.4	600	62	0.05	0.02	0.030	2.5
		2	7.4	600	64	0.06	0.02	0.034	2.5
		4	7.2	700	40	0.05	0.02	0.024	3.0
		Bottom	7.2	700	33	0.06	0.03	0.017	2.6
S-198	1970年8月18日	0	8.6	500	99	0.05	0.02	0.032	1.6
		Bottom	8.0	600	32	0.07	0.02	0.050	1.7
S-201	1970年8月18日	0	7.8	500	72	0.04	0.02	0.018	1.3
		2	7.8	500	44	0.04	0.02	0.034	3.8
		5	7.2	—	50	0.04	0.02	0.028	2.9

* 乾燥重量に対して求めたものである

3. 湖水中の全ウランおよび塩素量・pHの分布

分析結果を第1表(宍道湖)および第2表(中海)に示した。また、第2図に湖水中の全ウラン量と水深との関係を示した。全ウラン量は、宍道湖で0.04~0.07 μg/l、中海で0.8~1.8 μg/lとなっており、宍道湖では水平的、垂直的の変異も少ない。これは汙液に関しても指摘できることである(第3図)が、中海における全ウラン量の水平・垂直両変異は塩素量の変異と密接な関係をもっている(塩素量とウラン量が正の相関を有する)ように思われる。塩素量は、宍道湖では、500~1,200 ppmの間にあり、各点での垂直変異はきわめて小さく、水平的変異が大きい。一方、中海での塩素量は、8,500~17,000 ppmで、今回の観測点に関する限りでは水平的変異よりも垂直的変異の方が大きい。pHは、宍道湖で7.2~9.2、中海で7.1~9.0と大差なく、一般に深部で低下するが、

宍道湖の全点と中海の4点では水深0 mと2 mのpHがほぼ同じであり、以深で急に低下している。底層の低pH値は、プランクトン遺骸を含む種々の有機物が分解して生じる炭酸の影響を受けたものと思われる。

4. 懸濁物および汙液中のウラン

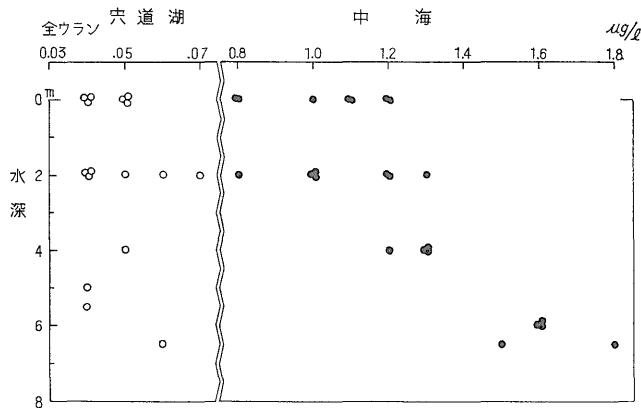
懸濁物の量は、宍道湖で4.0~20.2 mg/l(平均10.4 mg/l)、中海では9.8~24.6 mg/l(平均16.4 mg/l)である。懸濁物のウラン含有量は、第1,2表に示すように、宍道湖で1.3~4.6 ppm(平均2.2 ppm)、中海で0.4~1.5 ppm(平均0.8 ppm)であり、しかも、中海で1.3 ppm以上の値を示すのは、わずか3試料にすぎず、過半数の試料が1.0 ppm未満の値を示している。宍道湖と中海における懸濁物のウラン含有量のこのような差異は、試料とした懸濁物の主体を成すと思われるプランクトンの組成の違いに起因すると考えられる(これは、汙紙上

地質調査所月報 (第23巻 第7号)

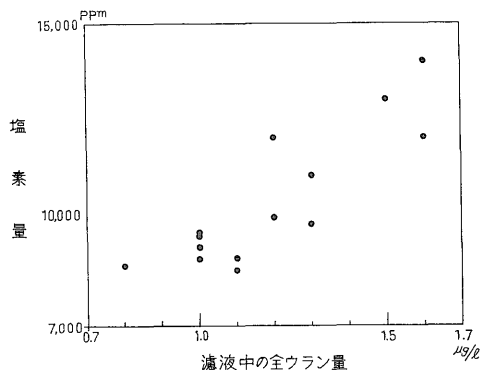
第2表 分析結果 (中海)

試料番号	採水年月日	水深 (m)	pH	塩素量 (ppm)	懸濁物 (mg/5 l)	ウ ラ ン			
						原試水中の 全ウラン μg/l	汙液中の全 ウラン μg/l	湖水1lの懸 濁物中のウ ラン μg	懸濁物中の ウラン* ppm
N-309	1969年 8月15日	0	7.9	8,800	74	1.0	1.1	0.018	1.2
		2	7.9	10,000	67	1.0	—	0.008	0.7
		6	7.1	14,000	96	1.6	1.6	—	—
N-316	1969年 8月17日	0	8.4	8,800	123	0.8	1.0	0.018	1.5
		2	8.4	9,500	81	1.0	1.0	0.018	1.2
		5	8.2	13,000	81	1.6	1.5	0.016	1.0
N-333	1969年 8月17日	0	8.5	9,700	84	1.1	—	0.014	0.9
		2	8.5	9,900	75	1.2	1.2	0.016	1.1
		5.5	8.0	14,000	(泥まじり) 222	1.6	—	0.024	0.5
N-338	1969年 8月17日	0	8.8	10,000	99	1.2	—	0.016	0.8
		2	8.2	11,000	105	1.3	1.3	0.008	0.4
N-350	1970年 8月20日	0	8.8	9,400	102	1.1	1.0	0.012	0.6
		2	8.0	9,700	60	1.2	1.3	0.006	0.6
		4	7.4	11,000	83	1.3	1.3	0.008	0.5
N-351	1970年 8月20日	0	8.8	8,500	108	1.2	1.1	0.018	0.8
		2	8.6	9,500	49	1.0	1.0	0.012	1.3
		4	7.8	11,000	50	1.2	1.3	0.006	0.6
		Bottom	7.8	12,000	(泥まじり) 190	1.5	1.6	—	—
N-364	1970年 8月22日	0	9.0	8,600	52	0.8	0.8	0.004	0.5
		2	8.0	9,100	63	0.8	1.0	0.016	1.4
		4	8.0	12,000	69	1.3	1.2	0.014	1.0
		Bottom	8.2	17,000	98	1.8	—	0.008	0.4

* 乾燥重量に対して求めたものである



第2図 穴道湖・中海湖水中の含ウラン量の垂直分布



第3図 中海湖水の塩素量と濾液中の全ウラン量との関係

の試料を乾燥させた際の色が両湖で異なり—宍道湖では淡緑色、中海ではクリーム色—、また泥質懸濁物を示すような色ではないことから推定される)。さらに、濾液のウラン含有量がより少ない宍道湖の“プランクトン”の方が、中海のそれよりもウラン含有量が多いことから、定量されたウランの大部分が、生物代謝によって、“プランクトン”中に濃縮されていたものであろうと推察される。なお、三宅・杉村・前田(1967)によれば、海水中のプランクトンは0.15～1.8 ppm、海藻は0.04～2.1 ppmのウランを含むそうであるから、宍道湖の“プランクトン”(平均2.2 ppm)は海藻と比較しても、やや多量のウランを含むといえよう。

次に懸濁物中のウランと湖水(原試水)中の全ウランとの量的関係をみる。まず、第1、2表の懸濁物中のウラン(ppm)と懸濁物量より湖水1 l中に含まれる懸濁物中のウラン量を求めて、両表の右から2番目の欄に示し

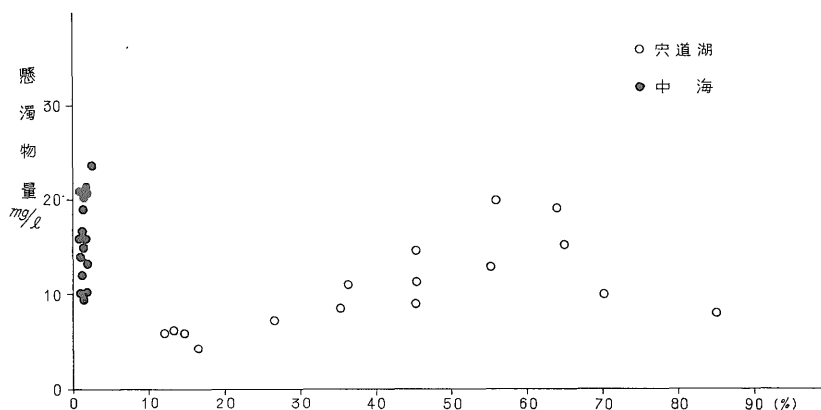
た。その値は宍道湖で0.014～0.050 µg, 中海で0.004～0.024 µgと、懸濁物量がむしろやや多い中海のほうが、宍道湖よりも低い範囲にある。次に、これらの値を原試水中の全ウラン量(µg/l)で割った値(換言するならば、懸濁物中のウランの原試水全ウランに対する寄与度、%)と懸濁物量との関係を第4図に示す。図で明らかのように、中海の懸濁物中のウランの寄与度は、最大で2%と非常に低いが、宍道湖における寄与度は最低で12%、最大で85%と大きく変動し、中海における寄与度よりも全体に高い。

また、濾液中の全ウラン(前述のように濾紙を用いて濾過したものであるから、濾液中に含まれるのは溶存ウランだけではない)と原試水中の全ウランとの差は、宍道湖で0.02～0.05 µg/l、中海で0.0～0.2 µg/lとなり、絶対値は中海の方が大きい、原試水中の全ウラン量に対する割合で考えると、中海の方は有意な差としては認め難く(大半が10%以下である)、一方、宍道湖では50～70%ときわめて重要である。

以上に述べたことから、宍道湖では、湖水全ウランのかなりの部分(最大85%)が、3.8 µ以上のサイズの懸濁物(多分プランクトンを主体とする)に含まれるものであるのに対して、中海における湖水全ウランの98%以上が3.8 µ以下のサイズの懸濁物(粘土、コロイド粒子、プランクトンなど)に含まれるか、あるいは溶存ウランとして存在することが明らかとなった。

5. 流入河川のデータとの関係

宍道湖に注ぐ河川の上流部にあたる阿用川の河川水に関する望月の未公表資料では、河川水中の全ウラン含有量は0.42 µg/l、懸濁物量は10.2 mg/l、懸濁物のウラン含



第4図 懸濁物中のウランの原試水全ウランに対する寄与度と懸濁物量との関係
懸濁物中のウラン量(µg/l)/原試水中の全ウラン量(µg/l)

第3表 大東阿用川の植物(葦)葉片中の
ウラン含有量 1969年8月採取

採取場所	試料番号	灰分 (%)	ウラン	
			灰分中 (ppm)	乾燥物中
鉾山の影響を うけるところ	Sh-125	8.5	0.05	0.00
	Sh-128 (1)	11.8	0.09	0.01
	〃 (2)	12.6	0.12	0.01
	Sh-129	10.9	0.05	0.00
鉾山の影響を うけないところ	Sh-123 (1)	15.2	0.03	0.00
	〃 (2)	11.8	0.11	0.01
	Sh-124	11.3	0.14	0.01

含有量は 7.2 ppm、河川水 1 l 中の懸濁物に含まれるウランは 0.13 μg となっている。ただし、ここでいう懸濁物は、採水地点の10数m上流の底質を攪乱して流したものを含んでおり、したがって、多量の粘土鉱物などが混入していると考えられる。一方、石原・望月(1969)は、阿用川、山佐川を中心とする河川水質、とくにウラン異常について検討した結果、大東鉾山(モリブデン鉱床)のウラン鉱物を含む輝水鉛鉱採掘に伴われる排水中の溶存ウランが、阿用川本流にはいった後は、容易に河川水中から除去されると考え、そのひとつの機構として、水中のコロイド(粘土鉱物などを含む)によるウランの吸着・吸収を考えている。この問題に関しては、河川水域に生育する植物によるウランの吸収・吸着が重要な意味をもつ可能性が考えられるので、阿用川に生育する葦の葉(鉾山の影響を受けるところと受けないところ、計5地点で採集した7試料)のウランを定量した。その結果は、第3表に示されるように、鉾山の影響を受けるもので0.05~0.12 ppm、影響を受けないもので0.03~0.14 ppm(いずれも灰分に対して)であって、両者の間に有意の差は認め難く、また乾燥重量に対するウラン濃度(0.00~0.01 ppm)から考えても、河川水からのウランの除去に関して、このような植物の果たす役割は重要なものではないといえる。

この研究の目的は、石原・望月(1969)が考えるような、ウランを多量に吸着した粘土鉱物などが、宍道湖に運びこまれた後、どのような挙動を示し、水質にどのような影響を与えるかということを解明することであったが、採取された宍道湖・中海両湖の懸濁物(3.8 μ 以上)は、大半がプランクトンであると思われ、したがって、直接的な解答を引き出すことはできなかった。しかし、とくに宍道湖における沝液のウラン含有量(0.02~0.03

$\mu\text{g/l}$)に注目すれば、河川水域でウランを吸着したと考えられる粘土鉱物等の大半は、湖にはいって急速に沈積していることが予想される。

6. むすび

宍道湖・中海の湖水、沝別懸濁物および沝液中のウランを定量分析した結果、以下のことが明らかとなった。

(1) 湖水中の全ウラン量は、宍道湖で0.04~0.07 $\mu\text{g/l}$ 、中海で0.8~1.8 $\mu\text{g/l}$ である。

(2) 主にプランクトンからなると思われる3.8 μ 以上のサイズの懸濁物(95℃で乾燥した)には、宍道湖で1.3~4.6 ppm、中海で0.4~1.5 ppmのウランが含まれる。

(3) 沝液中の全ウラン量は、宍道湖で0.02~0.03 $\mu\text{g/l}$ 、中海で0.8~1.6 $\mu\text{g/l}$ である。

(4) 3.8 μ 以上の懸濁物に含まれるウランが湖水全ウランに対して占める割合は、宍道湖で約10~90%、中海で0~2%である。

(5) 両湖における懸濁物のウラン含有量の差異は、主に懸濁物を構成するプランクトンの種類の違いに起因すると考えられる。

(6) 宍道湖流入河川中でウランを吸着すると考えられている粘土鉱物などは、宍道湖に運び込まれた後、かなり急速に沈殿していると考えられる。

(7) ウランの堆積作用を把握するためには、3.8 μ 以下の細粒懸濁物の内容や、堆積物中のウランに関する既存データなどを含めて総合的に考察する必要がある。

引用文献

- 半谷高久・安部喜也(1972):水質汚濁研究法。346 p.丸善 K.K. 東京。
- 石原舜三・望月常一(1969):島根県東部の阿用川を中心とする水の化学的性質—とくにウランの異常について。地質調査所月報。vol. 20, p. 435-448。
- 三宅泰雄・杉村行男・前田 勝(1967):海水および海産生物のウラン含量について。地球化学討論会講演要旨集。A-31。
- 水野篤行・望月常一(1970):山陰沖の底質柱状試料中のウラン分布。地質調査所月報。vol. 21, p. 287-292。
- 望月常一(1970):美保湾、隠岐諸島周辺海域の水質、とくにウラン含有量について。地質調査所月報。vol. 21, p. 271-278。