



# 陸水域におけるウランおよび オキシアニオンの地球化学的研究

望月 陽人\*

## 1. はじめに

地球上の水のうち、陸水が占める割合は3%程度、湖沼水および河川水の割合はわずか0.01%程度にすぎない。しかしながら、水圏における微量元素の循環を明らかにするうえで、陸水域における研究の意義は大きい。たとえば、海水のpHは炭酸化学種 ( $\text{HCO}_3^-$ ,  $\text{CO}_3^{2-}$ ) の緩衝作用によっておよそ7.6~8.2の範囲に保たれ、時空間的な変動はほとんど見られない。これに対して陸水のpHは、温泉水や鉱山廃水に由来する強酸性 (pH 1前後) の水域から乾燥地域の塩湖のような強アルカリ性 (pH 11前後) の水域まで非常に広い範囲を示すとともに、同一の水域においても時間的に変動する。また、主要元素の相対的な濃度比は全海洋でほぼ一定であるが、陸水域では水域ごとにまったく異なる組成を示す。このように、水圏の物質循環において重要なパラメータが時空間的に大きく変動する陸水域において微量元素の分布や動態を観測し、水域の特徴もふまえながらその支配要因を解明することは、海洋を含めた水圏全体での物質循環を理解するうえで有用である。

Uは自然界に広く分布する放射性元素である。化学毒性を有し、腎機能などに障害を及ぼす (Kurttio et al., 2002) ことから、飲料水や公共用水の濃度基準値が国内外で定められている。中性で酸化的水域において、Uはカルシウム-ウラニル-炭酸錯体 ( $\text{CaUO}_2(\text{CO}_3)_2^-$ ,  $\text{Ca}_2\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^0$  (aq)) を形成して安定に溶存する (Dong et al., 2005)。この性質のために除去を受けにくく、酸

化的な海域や湖では均一な鉛直分布を示すことが多い (Ku et al., 1977; Falkner et al., 1991)。自然水におけるUの汚染は、ウラン鉱石の採掘・精製・濃縮やリン鉱石を原料とする肥料などに起因する。汚染発生時の挙動予測や対策立案の観点から、水圏におけるUの挙動とその支配要因を明らかにすることは重要である。

こうした背景から、筆者は京都大学総合人間学部および同大学院人間・環境学研究科において、陸水域でのUの分布と動態に関する研究を行ってきた。また、一部の水域では、「オキシアニオン」に分類されるVおよびMoも分析対象とした。これら元素は、Uと同様に、中性・酸化的水域において陰イオン (Vは  $\text{H}_2\text{VO}_4^-$  または  $\text{HVO}_4^{2-}$ , Moは  $\text{MoO}_4^{2-}$ ) として溶存する。本稿は、淡水湖・河川・塩湖におけるUおよびオキシアニオンの分布と動態に関する筆者の研究成果 (望月・杉山, 2012; Mochizuki et al., 2015, 2016, 2018a, 2018b) を要約したものである。

## 2. 淡水湖での研究

前章で述べたように、酸化的水域や湖沼におけるUの分布は鉛直方向に均一である (Ku et al., 1977; Falkner et al., 1991)。しかし、同じく酸化的水域である琵琶湖では、表層の溶存濃度が深層のおよそ2倍となる「表層高濃度型」の分布が夏季に観測されている (図1)。このような分布を示す機構を明らかにするため、琵琶湖において2年間にわたる観測を実施した (Mochizuki et

\*国立研究開発法人日本原子力研究開発機構幌延深地層研究センター研究員

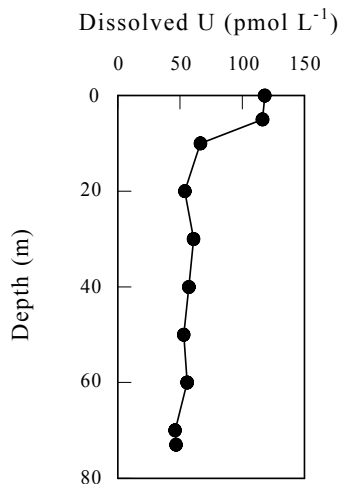


図1. 琵琶湖における溶存態ウランの鉛直分布 (2010年8月;望月, 2011).

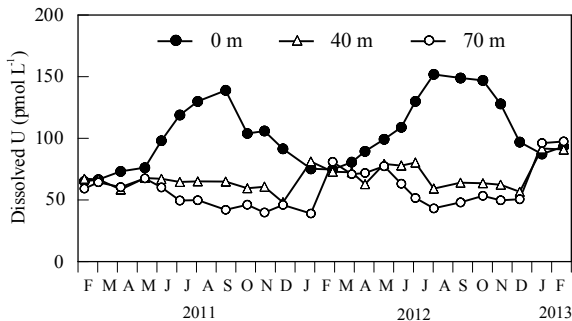


図2. 琵琶湖における溶存態U濃度の季節変動 (Mochizuki et al., 2016).

al., 2016).

図2には、琵琶湖北湖の観測地点 (北緯 35 度 13 分, 東経 136 度 00 分: 水深 73 m) における表層 (深度 0 m), 中層 (40 m) および深層 (70 m) の U 濃度の変動を示す. 表層の U 濃度は春から夏にかけて増加し, 秋から冬にかけて減少した. 一方, 中層および深層の U 濃度は春から晩秋にかけて徐々に減少し, 冬季に表層とほぼ同じ値まで増加した. このため, 夏季に観測された表層高濃度型の鉛直分布 (図1) は, 表層の U 濃度が春から夏にかけて増加したことによるものであるといえる.

夏季には, 温度成層した湖の表層のみに河川などから U が供給され, これが表層の濃度増加を引き起こしている可能性が考えられる. しかし, 琵琶湖北湖における物質収支をもとに U の濃度変動をシミュレートしたところ, 実際に観測され

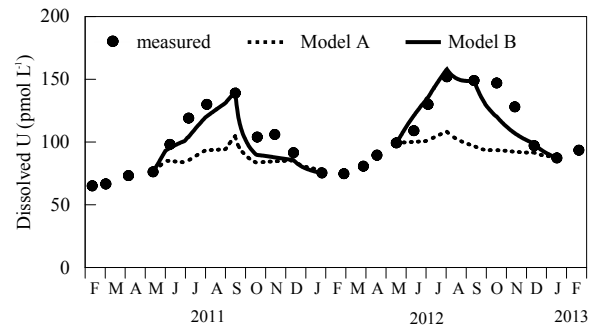


図3. 琵琶湖における U の物質収支モデルと実測値の比較 (Mochizuki et al., 2016).

Model A: 水の流入出のみを考慮して計算したもの. Model B: 水の流入出に加えて湖水-堆積物間の U の反応も考慮して計算したもの.

たような変動は再現できなかった (図3の点線). このため, 表層への U の供給のみでは濃度変動は説明できず, 湖の内部で起こる反応に主な原因があると考えられる.

琵琶湖表層の pH は, 冬季には7前後であるが, 生物活動の隆盛により春から夏にかけて9前後まで上昇する. この7~9のpH範囲において, 堆積物に含まれる水和酸化鉄へのUの吸着率はpH上昇とともに低下する (石橋ら, 1967; Hsi and Langmuir, 1985; Fox et al., 2006). 水槽に琵琶湖の湖水と堆積物を入れ, 二酸化炭素を除去した空気と二酸化炭素ガスを吹き込んで湖水のpHを

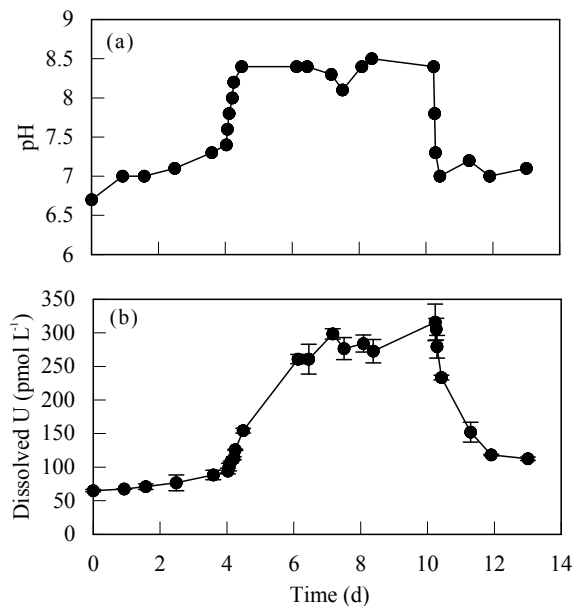


図4. 琵琶湖の湖水・堆積物を用いた室内実験における (a) pH, (b) 溶存態U濃度の時間変化 (Mochizuki et al., 2016).

上下させたところ、湖水中の U 濃度は pH に呼応するように変動した (図 4)。また、U の濃度変化を再現するように U の吸脱着速度を任意に設定し物質収支モデルに組み込んだところ (図 3 の実線)、その吸脱着速度は室内実験で得られた値ともおおむね一致した。したがって、表層水の pH 変化にともない、表層水と接する沿岸域の堆積物で U の吸脱着反応が生じ、湖水中の U 濃度が増減したと考えられる。なお、琵琶湖では V も U と同様の季節的な濃度変動を示す。U と同様に、湖水の pH 変動にともなう湖水-沿岸堆積物間の吸脱着反応がその原因と考えられている (Harita et al., 2005)。一方、Mo の分布は季節によらず鉛直方向に一様である。Mo の水和酸化鉄への吸着は V や U より低い pH 領域で生じるため (石橋ら, 1958)、琵琶湖表層で生じる pH 変動 (7~9) の影響を受けず、湖水に安定に溶存するためと考えられる (Harita et al., 2005)。

琵琶湖の北湖は中栄養湖に分類されるが、世界最大・最深の淡水湖であるバイカル湖やモンゴルの淡水湖であるフブスグル湖は湖水中の栄養塩濃度が低く、(極)貧栄養湖に分類される。これらの湖において、V は生物活動などのために表層の濃度がわずかに低く、Mo および U の濃度は鉛直方向にほぼ均一である (Mochizuki et al., 2018a)。V および U の鉛直分布は琵琶湖のものとは異なり、むしろ酸化的な海洋での分布と類似している。湖の水文学的パラメータが異なるため単純な比較はできないが、このような微量元素の分布の違いは湖の栄養度の違いと関係している可能性がある。すなわち、生物生産が相対的に乏しい貧栄養湖では夏季における表層の pH 上昇の度合いが琵琶湖などの中栄養湖に比べて小さく、そのため元素の溶脱量も少ないと考えられる。また、バイカル湖の湖岸は急峻であるため、表層水と接する沿岸堆積物の面積が小さいことも関係している可能性がある。

バイカル湖において V、Mo および U の滞留時間を計算したところ、Mo は湖水の滞留時間 (約

330 年) とほぼ同じ (345 年) であったのに対し、V および U はそれぞれ 103 年、195 年と、湖水のそれよりも短かった (Mochizuki et al., 2018a)。pH が中性付近であるバイカル湖において V および U は堆積物に除去され、このため湖水より短い滞留時間を示すと考えられる。一方、琵琶湖と同様に、Mo の堆積物への吸着除去はほとんど起こらず、そのため湖水と同程度の滞留時間を示したと推測される。以上のことから、水和酸化鉄に代表される堆積物への吸着挙動の違いが湖における微量元素の分布や滞留時間に影響を与えていることが示唆される。

### 3. 河川における研究

2011 年 3 月に発生した福島第一原子力発電所の事故を受けて、原発事故以前に採取された全国 194 河川の試料水中の U 濃度を定量し、本邦河川水中の自然レベル U 濃度を明らかにした (望月・杉山, 2012)。本邦河川水中の U 濃度は 0.002~6.3 nmol L<sup>-1</sup> の範囲に及び、算術平均値は 0.17 nmol L<sup>-1</sup> であった。また、U 濃度が上位 5% であった河川の大部分では、集水域に花崗岩が分布しており、地表の U 濃度も高かった (今井ら, 2004)。花崗岩中の U 濃度は一般的に他の火成岩や堆積岩に比べて高い (Rogers and Adams, 1969) ことから、その風化により河川水中の濃度も高くなったと考えられる。

沖縄島南部の比謝川と国場川における U 濃度はそれぞれ 4.2, 6.3 nmol L<sup>-1</sup> であり、国内の他の河川と比べても特異的に高かった。しかし、同地域には花崗岩の分布は認められず、一般的に花崗岩よりも U 濃度の低い石灰岩や泥灰岩 (CaCO<sub>3</sub> を多量に含む泥質堆積岩) が分布している。河川堆積物の分析にもとづく地表の U 濃度も、他の U 高濃度河川の集水域と比べると低い (今井ら, 2004)。

このことを受けて、沖縄島の河川において、U の分布に関する調査を行った (Mochizuki et al., 2015)。その結果、島南部の 12 河川における U

濃度は  $0.75\sim 15\text{ nmol L}^{-1}$  であり、北中部の 12 河川 ( $0.008\sim 1.3\text{ nmol L}^{-1}$ ) よりも有意に高かった。また、国場川 ( $4.5\sim 10\text{ nmol L}^{-1}$ ) と報得川 ( $9.8\sim 15\text{ nmol L}^{-1}$ ) の U 濃度は、日本の公共用水基準値である  $8.4\text{ nmol L}^{-1}$  ( $2.0\text{ }\mu\text{g L}^{-1}$ ; 環境省, 2004) を超過していることが判明した。

沖縄島南部の河川では、U 濃度のほかにも Ca 濃度とアルカリニティー ( $[\text{HCO}_3^-] + 2[\text{CO}_3^{2-}] + [\text{OH}^-] - [\text{H}^+]$ ) が高く、いずれも本邦河川の平均値 (沖縄島河川を含まない; 小林, 1961) の約 10 倍の値を示す。また、pH も 8 前後であり、国内の半数以上の河川 (小林, 1961) よりも 1 程度高い。このような特異的な水質が岩石からの U の供給に与える影響を検証するため、島から採取した岩石を用いて室内実験を行った。二酸化炭素ガスと空気の吹込みにより石灰岩を純水に溶解させ (この溶液中の U 濃度は河川に比べて十分低い)、ろ過した溶液に泥灰岩を加えて攪拌した。その結果、図 5 に示すように、泥灰岩を加えた直後に溶液中の U 濃度は上昇した。また、カルシウム-ウラニル-炭酸錯体に関する熱力学定数 (Dong and Brooks, 2006) を組み込んで熱力学計算ソフト MINEQL+ (ver. 4.6; Schecher and McAvoy, 2007) で U の溶存化学種割合を計算すると、島南部の河川では  $\text{Ca}_2\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^0$  (aq) が約 70%,  $\text{CaUO}_2(\text{CO}_3)_3^{2-}$  が約 30% を占めた (Mochizuki et al., 2015)。したがって、 $\text{CaCO}_3$  の

溶解により生じた  $\text{Ca}^{2+}$  と  $\text{CO}_3^{2-}$  が泥灰岩中の U とカルシウム-ウラニル-炭酸錯体を形成し、U 濃度が上昇したと考えられる。泥灰岩中の U 濃度の測定結果 ( $9.8\sim 13\text{ nmol g}^{-1}$ ) は花崗岩の報告値 ( $9.2\sim 63\text{ nmol g}^{-1}$ ; Rogers and Adams, 1969) よりも低い。沖縄島南部では上述のメカニズムのために岩石中の U が河川水に溶出しやすく、高い濃度を示した可能性がある。このことは、地球化学図 (今井ら, 2004) における同地域地表の U 濃度が低かったこととも調和的である。すなわち、河川堆積物は上流域の岩石の風化・運搬過程で溶解しなかった細屑物が集積したものであるため、河川水に溶出する U は地表での濃度が低くなったと考えられる。

#### 4. 塩湖における研究

塩湖は、乾燥地域に分布し顕著な流出河川をもたない湖である。水の蒸発が卓越するため、湖水の塩濃度は  $\text{g L}^{-1}$  から数百  $\text{g L}^{-1}$  におよぶ。塩湖の主要化学組成は、カルシウム-炭酸塩鉱物の沈殿により、流入水の組成を反映して二分される (Eugster and Hardie, 1978)。すなわち、流入水においてアルカリニティーが Ca (および Mg) の当量濃度より高い場合、湖水は炭酸化学種に富みアルカリ土類金属が涸渇する。流入水の濃度関係が逆の場合、湖水はアルカリ土類金属に富み炭酸化学種が涸渇する。また、湖水の pH は、前者の湖では 8~10、後者の湖では 6~8 となる。こうした水質の差が微量元素の分布や動態に与える影響について、炭酸化学種に富む塩湖での現地調査および炭酸化学種が涸渇した塩湖での先行研究結果にもとづいて検証した (Mochizuki et al., 2018b)。

塩湖における溶存態 U 濃度を表 1 に示す。炭酸化学種に富む塩湖では、炭酸化学種が涸渇した塩湖に比べて相対的に U 濃度が高い。塩濃度や流入河川水中の U 濃度は両種の湖で同程度であるので、炭酸化学種に富む塩湖では U が濃縮され、炭酸化学種が涸渇した塩湖では除去されると

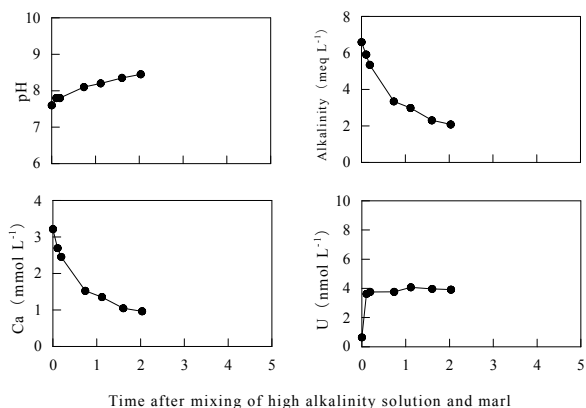


図 5. 高アルカリニティー溶液と泥灰岩を反応させた場合の、pH、アルカリニティー、Ca 濃度、U 濃度の時間変化 (望月, 2016)。

表1 塩湖における溶存態U濃度 (nmol L<sup>-1</sup>)

	Saline lakes		Inflowing water		
	Conc.	Ref.	Conc.	Ref.	Name
Carbonate-rich saline lakes					
Lake Airkhan	154	[11]			
Lake Tsagaan	288	[11]			
Lake Van	387	[11]	6.84	[11]	Anonymous stream
	394*	[8]	4.29	[7]	Anonymous stream
	319*	[7]	11.1	[7]	Bendirmahi River
Lake Mono	1.35 × 10 <sup>3</sup>	[2]			
	2.31 × 10 <sup>3</sup>	[3]			
Lake Shaazgai	3.59 × 10 <sup>3*</sup>	[9]			
Lake Shar Burdiin	6.25 × 10 <sup>4</sup>	[10]	360	[10]	Anonymous well
Carbonate-depleted saline lakes					
Lake Dabuxan	2.32	[4]			
Dead Sea	7.23	[5]	24.4	[5]	Jordan River
	10.1	[6]	3.49	[6]	Jordan River
Ocean	14	[1]			

\* 表層水の平均値.

[1] Ku et al. (1977), [2] Anderson et al. (1982), [3] Simpson et al. (1982), [4] Yui et al. (1998), [5] Gavrieli and Halicz (2002), [6] Möller et al. (2007), [7] Yaman et al. (2011), [8] Zorer and Şahan (2011), [9] Isupov et al. (2011), [10] Linhoff et al. (2011), [11] Mochizuki et al. (2018b).

表2 塩湖における溶存態V濃度 (nmol L<sup>-1</sup>)

	Saline lakes		Inflowing water		
	Conc.	Ref.	Conc.	Ref.	Name
Carbonate-rich saline lakes					
Lake Airkhan	219	[6]			
Lake Tsagaan	57.2	[6]			
Lake Van	989	[6]	197	[6]	Anonymous stream
			53.0	[4]	Anonymous stream
	510*	[4]	100	[4]	Bendirmahi River
Lake Shar Burdiin	11,300	[5]	550	[5]	Anonymous well
Carbonate-depleted saline lakes					
Dead Sea	11.4*	[3]	61.5*	[2]	Jordan River
Ocean	36	[1]			

\* 表層水の平均値.

[1] Collier (1984), [2] Sandler et al. (1988), [3] Lavi and Alfassi (1989), [4] Yaman et al. (2011), [5] Linhoff et al. (2011) [6] Mochizuki et al. (2018b).

考えられる。炭酸化学種に富む塩湖の湖水および流入水におけるUの溶存化学種割合を、沖縄島河川と同様の熱力学的計算 (Dong and Brooks, 2006; Schecher and McAvoy, 2007) により見積もった。その結果、湖水では  $UO_2(CO_3)_3^{4-}$  が、流入河川では  $Ca_2UO_2(CO_3)_3^0$  (aq) の割合がもっとも高かった。  $CaCO_3$  の沈殿析出のために湖水からCaが涸渇し、これにともないUの溶存化学種割合が変化したといえる。また、湖水のpHは8~10であるため、Uは堆積物に吸着されず安定に溶存し、湖内に濃縮されたと考えられる (石橋ら,

1967; Hsi and Langmuir, 1985; Fox et al., 2006)。これに対して炭酸化学種が涸渇した塩湖ではUが炭酸錯体を形成できず、またpHが6~8でありUが堆積物に吸着除去されやすいために、その濃度が低くなると考えられる。

塩湖におけるVおよびMoの溶存態濃度を、それぞれ表2、表3に示す。これらオキシアニオンも、炭酸化学種に富む塩湖で相対的に濃度が高かった。これら元素は炭酸錯体を形成しないものの、第2章で述べたように、中性から弱アルカリ性にかけて水和酸化鉄への吸着率が低下する (石

**表3** 塩湖における溶存態 Mo 濃度 (nmol L<sup>-1</sup>)

	Saline lakes		Inflowing water		
	Conc.	Ref.	Conc.	Ref.	Name
Carbonate-rich saline lakes					
Lake Airkhan	789	[4]			
Lake Tsagaan	680	[4]			
Lake Van	143	[4]	56.2	[4]	Anonymous stream
			15.6	[3]	Anonymous stream
	136*	[3]	38.6	[3]	Bendirmahi River
Carbonate-depleted saline lakes					
Dead Sea	89.3*	[1]			
Ocean	107	[2]			

\* 表層水の平均値.

[1] Lavi and Alfassi (1989), [2] 藤永ら (2005), [3] Yaman et al. (2011), [4] Mochizuki et al. (2018b).

**表4** 塩湖における溶存態 Sr 濃度 (μmol L<sup>-1</sup>)

	Saline lakes		Inflowing water		
	Conc.	Ref.	Conc.	Ref.	Name
Carbonate-rich saline lakes					
Lake Airkhan	5.29	[7]			
Lake Tsagaan	10.1	[7]			
Lake Van	0.06	[7]	6.48	[7]	Anonymous stream
Lake Mono	< 0.5	[2]			
Lake Shar Burdiin	9.22	[6]	3.10	[6]	Anonymous well
Carbonate-depleted saline lakes					
Lake Chaka	114	[3]			
Lake Dabuxan	1,010	[3]	5.02	[3]	Golmud River
Lake Xiaoqaidam	125	[3]			
Dead Sea	3,380*	[1]	51.8	[5]	Jordan River
	3,980	[5]			
Ocean	91	[4]			

\* 表層水の平均値.

[1] Nissenbaum (1977), [2] Neumann and Dreiss (1995), [3] Vengosh et al. (1995), [4] 藤永ら (2005), [5] Möller et al. (2007), [6] Linhoff et al. (2011), [7] Mochizuki et al. (2018b).

**表5** 塩湖における溶存態 Ba 濃度 (nmol L<sup>-1</sup>)

	Saline lakes		Inflowing water		
	Conc.	Ref.	Conc.	Ref.	Conc.
Carbonate-rich saline lakes					
Lake Airkhan	61.8	[6]			
Lake Tsagaan	44.4	[6]			
Lake Van	1.72	[6]	45.3	[6]	Anonymous stream
Lake Mono	38 #	[2]			
Lake Shar Burdiin	2,930	[5]			
Carbonate-depleted saline lakes					
Dead Sea	32,800 *	[1]	~ 1,170	[1]	Jordan River
	16,400	[4]	947	[4]	Jordan River
Ocean	30 - 150	[3]			

# nmol kg<sup>-1</sup>.

\* 表層水の平均値.

[1] Chan and Chung (1987), [2] Johannesson and Lyons (1994), [3] 藤永ら (2005), [4] Möller et al. (2007), [5] Linhoff et al. (2011), [6] Mochizuki et al. (2018b).

橋ら, 1958: 桑本, 1960). このため, Uと同様に, 炭酸化学種に富む塩湖では湖水に濃縮されるが, 炭酸化学種が涸渇した塩湖では堆積物に移行すると考えられる. 一方, 微量アルカリ土類金属 (Sr, Ba) は炭酸化学種に富む塩湖の方が低濃度である (表4, 表5). 炭酸塩鉱物の沈殿,  $\text{CaCO}_3$  への共沈, 堆積物への吸着などにより, これら元素が湖水から除去されるためと推測される.

## 5. おわりに

さまざまな陸水域におけるUおよびオキシアニオン (V, Mo) の分布と動態に関して, pH, 主要化学組成などのパラメータとの関係性に着目しながら考察した. 湖の表層域では生物活動によりpHが季節的に変動し, その度合いは湖の栄養度によって異なる. 中栄養湖に分類される琵琶湖では, 夏季のpH上昇にともないVおよびUが沿岸域の堆積物から溶脱し, 表層水中の濃度が増加する. 一方, 貧栄養湖に分類されるバイカル湖では琵琶湖のような濃度変動は観測されず, 表層のpH変動が相対的に小さいことが関係している可能性がある. また, バイカル湖におけるUおよびオキシアニオンの滞留時間は, 各元素の水和酸化鉄の吸着率により説明できた. 以上より, 湖水-堆積物間の吸脱着反応が微量元素の分布や滞留時間を支配しており, 湖水のpHがそれに影響を与える重要なパラメータであることが示された.

Ca濃度およびアルカリニティーが高い沖縄島南部の河川では, Uが全国的にみても高い濃度を示す. Uがカルシウム-ウラニル-炭酸錯体を形成して泥灰岩から溶出し, 安定に溶存するためと考えられる. また, 乾燥地域に分布する塩湖のうち炭酸化学種に富む湖では, アルカリ土類金属が富む湖に比べてUやオキシアニオンが相対的に高い濃度を示すことが明らかとなった. 炭酸化学種に富む塩湖はpHが8~10と高いためこれら元素が堆積物に吸着されないこと, Uについてはこれに加えて溶存安定性の高いウラニル-炭酸錯体を形成することが原因であると推測された. 一方

で, 微量アルカリ土類金属 (Sr, Ba) は沈殿形成や共沈などにより, 炭酸化学種に富む塩湖で相対的に濃度が低かった. 水域の主要化学組成は微量元素の化学形態や溶存安定性を左右し, pHとともに元素の分布や動態に影響を与えることが示唆された.

## 謝辞

本奨励賞の受賞にあたり, 選考委員の皆様をはじめ海洋化学研究所関係者の皆様に御礼申し上げます. 京都大学大学院人間・環境学研究科の杉山雅人教授には, 大学・大学院時代の指導教員としてご指導いただくとともに, 本賞への推薦をしていただきました. この場をお借りして厚く御礼申し上げます. 京都大学化学研究所の宗林由樹教授には誘導結合プラズマ質量分析装置を使用させていただき, 宗林研究室の皆様には多くの助言を賜りました. ここに深く御礼申し上げます. 京大大学生態学研究センターの中野伸一教授, 合田幸子技術職員, 故 小板橋忠俊技術職員をはじめ, フィールド調査の際にお世話になりました皆様に, この場をお借りして御礼申し上げます.

## 参考文献

- Anderson, R. F., M. P. Bacon and P. G. Brewer (1982): Elevated concentrations of actinides in Mono Lake. *Science*, **216**, 514-516.
- Chan, L. H. and Y. Chung (1987): Barium and radium in the Dead Sea. *Earth and Planetary Science Letters*, **85**, 41-53.
- Collier, R. W. (1984): Particulate and dissolved vanadium in the North Pacific Ocean. *Nature* **309**, 441-444.
- Dong, W., W. P. Ball, C. Liu, Z. Wang, A. T. Stone, J. Bai and M. Zachara (2005): Influence of calcite and dissolved calcium on uranium (VI) sorption to a Hanford subsurface sediment. *Environmental Science and Technology*, **39**, 7949-7955.

- Dong, W. and S. C. Brooks (2006): Determination of the formation constants of ternary complexes of uranyl and carbonate with alkaline earth metals ( $Mg^{2+}$ ,  $Ca^{2+}$ ,  $Sr^{2+}$ , and  $Ba^{2+}$ ) using anion exchange method. *Environmental Science and Technology*, **40**, 4689–4695.
- Eugster, H. P. and L. A. Hardie (1978): Saline Lakes. In *Lakes: Chemistry, Geology, Physics*, A. Lerman (ed.), 237-293. Springer-Verlag, New York.
- Falkner, K. K., C. I. Measures, S. E. Herbelin, J. M. Edmond and R. F. Weiss (1991): The major and minor element geochemistry of Lake Baikal. *Limnology and Oceanography*, **36**, 413–423.
- Fox, P. M., J. A. Davis and J. M. Zachara (2006): The effect of calcium on aqueous uranium (VI) speciation and adsorption to ferrihydrite and quartz. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **70**, 1379–1387.
- 藤永太一郎・宗林由樹・一色健司 (2005) : 海と湖の化学 微量元素で探る. 京都大学学術出版会, 京都.
- Gavrieli, I. and L. Halicz (2002): Limnological changes in depth distributions of uranium and rare earth elements in a hypersaline brine: The Dead Sea. *Israel Journal of Earth Sciences*, **51**, 243–251.
- Harita, Y. T. Hori and M. Sugiyama (2005): Release of trace oxyanions from littoral sediments and suspended particles induced by pH increase in the epilimnion of lakes. *Limnology and Oceanography*, **50**, 636–645.
- Hsi, C. K. D. and D. Langmuir (1985): Adsorption of uranyl onto ferric oxyhydroxides: Application of the surface complexation site-binding model. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **49**, 1931–1941.
- 今井登・寺島滋・太田充恒・氏家(御子柴)真澄・岡井貴司・立花好子・富樫茂子・松井幸敬・金井豊・上岡晃・谷口政規 (2004) : 日本の地球化学図. 独立行政法人産業技術総合研究所地質調査総合センター, 茨城. インターネットサイト URL : <https://riodb02.ibase.aist.go.jp/geochemmap/> (2018年10月5日確認).
- 石橋雅義・藤永太一郎・桑本融 (1958) : 海洋に関する化学的研究 (第77報) モリブデンの水酸化第二鉄に対する共沈について. *日本化学雑誌*, **79**, 1496–1499.
- 石橋雅義・藤永太一郎・桑本融・荻野善紀 (1967) : 海洋に関する化学的研究 (第99報) ウラン (VI) の水酸化鉄 (III) 沈殿による共同沈殿. *日本化学雑誌*, **88**, 73–76.
- Isupov, V. P., A. G. Vladimirov, N. Z. Lyakhov, S. L. Shvartsev, S. Ariunbileg, M. N. Kolpakova, S. S. Shatskaya, L. E. Chupakhina, L. V. Kuibida and E. N. Moroz (2011): Uranium in saline lakes of Northwestern Mongolia. *Doklady Earth Sciences*, **437**, 352–356.
- Johanesson, K. H. and W. B. Lyons (1994): The rare earth element geochemistry of Mono Lake water and the importance of carbonate complexing. *Limnology and Oceanography*, **39**, 1141–1154.
- 環境省 (2004) : 要監視項目及び指針値 (人の健康の保護に係る項目). URL : <http://www.env.go.jp/water/impure/item.html> (2016年12月11日確認).
- 小林純 (1961) : 日本の河川の平均水質とその特徴に関する研究. *農学研究*, **48**, 63–106.
- Ku, T. L., K. G. Knauss and G. G. Mathieu (1977): Uranium in open ocean: concentration and isotopic composition. *Deep-Sea Research*, **24**, 1005–1017.
- Kurttio, P., A. Auvinen, L. Salonen, H. Saha, J. Pekkanen, I. Mäkeläinen, S. B. Väisänen, I. M.



- Penttilä and H. Komulainen (2002): Renal effects of uranium in drinking water. *Environmental Health Perspectives*, **110**, 337–342.
- 桑本融 (1960): 海洋に関する化学的研究(第84報) バナジウム (V) の水酸化第二鉄沈殿による共同沈殿. *日本化学雑誌*, **81**, 1669–1673.
- Lavi, N. and B. Alfassi (1989): Determination of trace elements Cd, Co, Mo, Se, Ti and V in natural waters by neutron activation analysis. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **130**, 71–80.
- Linhoff, B. S., P. C. Bennett, T. Puntsag and O. Gerel (2011): Geochemical evolution of uraniumiferous soda lakes in Eastern Mongolia. *Environmental Earth Sciences*, **62**, 171–183.
- 望月陽人 (2011) 琵琶湖におけるウランの分布と動態. 京都大学総合人間学部卒業論文.
- 望月陽人・杉山雅人 (2012): 本邦河川水中の自然レベルウラン濃度. *陸水学雑誌*, **73**, 89–107.
- Mochizuki, A., K. Hosoda and M. Sugiyama (2015): Distribution and supply mechanisms of high uranium concentration in the rivers of Okinawa Island, Japan. *Geochemical Journal*, **49**, e9–e14.
- 望月陽人 (2016): 陸水域におけるウランの分布と動態ならびにその支配要因. 京都大学大学院人間・環境学研究科博士学位論文.
- Mochizuki, A., K. Hosoda and M. Sugiyama (2016): Characteristic seasonal variation in dissolved uranium concentration induced by the change of lake water pH in Lake Biwa, Japan. *Limnology*, **17**, 127–142.
- Mochizuki, A., T. Murata, K. Hosoda, T. Katano, Y. Tanaka, T. Mimura, O. Mitamura, S. Nakano, Y. Okazaki, Y. Sugiyama, Y. Satoh, Y. Watanabe, A. Dulmaa, C. Ayushsuren, D. Ganchimeg, V. V. Drucker, V. A. Fialkov and M. Sugiyama (2018a): Distributions and geochemical behaviors of oxyanion-forming trace elements and uranium in the Hövsgöl–Baikal–Yenisei water system of Mongolia and Russia. *Journal of Geochemical Exploration*, **188**, 123–136.
- Mochizuki, A., T. Murata, K. Hosoda, A. Dulmaa, C. Ayushsuren, D. Ganchimeg, V. V. Drucker, V. A. Fialkov, T. Depci, T. Üner, F. Oğhan and M. Sugiyama (2018b): Distribution of trace elements and the influence of major-ion water chemistry in saline lakes. *Limnology and Oceanography*, **63**, 1253–1263.
- Möller, P., E. Rosenthal, S. Geyer, J. Guttman, P. Dulski, M. Rybakov, M. Zilberbrand, C. Jahnke and A. Flexer (2007): Hydrochemical processes in the lower Jordan valley and in the Dead Sea area. *Chemical Geology*, **239**, 27–49.
- Neumann, K. and S. Dreiss (1995): Strontium 87/strontium 86 ratios as tracers in groundwater and surface waters in Mono Basin, California. *Water Resources Research*, **31**, 3183–3193.
- Nissenbaum, A. (1997): Minor and trace elements in Dead Sea water. *Chemical Geology*, **19**, 99–111.
- Rogers, J. J. W. and J. A. S. Adams (1969): Uranium: Abundance in common sedimentary rocks. In *Handbook of Geochemistry*, K. H. Wedepohl (ed.): 92K1–92K8. Springer-Verlag, Berlin.
- Sandler, A., I. B. Brenner and L. Halicz (1988): Trace element distribution in waters of the northern catchment area of Lake Kinneret, Northern Israel. *Environmental Geology and Water Sciences*, **11**, 35–44.
- Schecher, W. D. and D. C. McAvoy (2007):

- MINEQL+: A chemical equilibrium modeling system, version 4.6. Environmental Research Software, Hallowell, Maine.
- Simpson, H. J., R. M. Trier, J. R. Toggweiler, G. Mathieu, B. L. Deck, C. R. Olsen, D. E. Hammond, C. Fuller and T. L. Ku (1982): Radionuclides in Mono Lake, California. *Science*, **216**, 512-514.
- Vengosh, A., A. R. Chivas, A. Starinsky, Y. Kolodny, Z. Baozhen and Z. Pengxi (1995): Chemical and boron isotope compositions of non-marine brines from the Qaidam Basin, Qinghai, China. *Chemical Geology*, **120**, 135-154.
- Yaman, M., M. Ince, E. Erel, E. Cengiz, T. Bal, C. Er and F. Kilicel (2011): Distribution study of U, V, Mo, and Zr in different sites of Lakes Van and Hazar, river and seawater samples by ICP-MS. *Clean-Soil, Air, Water*, **39**, 530-536.
- Yui, M., Y. Kikawada, T. Oi, T. Honda, D. Sun and K. Shuai (1998): A preliminary investigation on the determination of lanthanoids, thorium and uranium in brine and deposit of a salt lake in China. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **231**, 83-86.
- Zorer, Ö. S. and T. Şahan (2011): The concentration of  $^{238}\text{U}$  and the levels of gross radioactivity in surface waters of the Van Lake (Turkey). *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **288**, 417-421.