

チャクチ海、ベーリング海および太平洋におけるヨウ素-129の分布 およびヨウ素の溶存状態に関する研究

2015年3月 海洋物質循環学分野 47-136629 三輪一爾

指導教員 准教授 小畑元

キーワード：ヨウ素-129、ヨウ素スペシエーション、

1. はじめに

ヨウ素はハロゲン元素のひとつであり、原子番号は53、原子量は126.9044である。37種類の同位体を持ち安定同位体は ^{129}I のみである。代表的な放射性同位体に ^{129}I がある。1960年代以降、イギリス Sellafield とフランス La Hague にある核燃料再処理施設から周辺環境へ大量の ^{129}I が放出されている(Smith et al., 1998)。環境中の ^{129}I の主な供給源はこの2施設である。 ^{129}I は半減期が1570万年と非常に長く海洋のトレーサーとして利用可能である。

海水中のヨウ素は主に、 I^- (iodide)、 IO_3^- (Iodate)、有機ヨウ素として存在している。無機ヨウ素は海洋の酸化還元環境によって形態が決定され、酸化的な環境では IO_3^- 、還元的な環境では I^- として溶存する。現在の海洋は酸化的状态にあるので IO_3^- が熱力学的に安定であるが、 I^- も海水中に存在する。海洋中の I^- は生物活動を介して大気・海洋内を循環するため、海洋におけるヨウ素の動態を知るには存在形態を解明(スペシエーション分析)する必要がある。

チャクチ海は西部北極海の一部であり、ベーリング海と隣接している。チャクチ海、ベーリング海北部には広大な大陸棚が存在し、本研究のサンプリングを行った点の水深20–81 mであった。チャクチ海は今後、北極海を経由して Sellafield と La Hague を起源とする放射性物質の流入が考えられる海域である。

そこで本研究は、チャクチ海、ベーリング海、北太平洋における ^{129}I の分布とその供給経路を明らかにすることを目的とした。また海水中の ^{129}I の循環を明らかにするためには海洋中のヨウ素の存在形態を把握する必要がある。しかし、ベーリング海・北極海においてヨウ素のスペシエーション分析を行った研究は今までない。そこでベーリング海およびチャクチ海におけるヨウ素スペシエーション分析も本研究の目的とした。

2. 実験方法

海水中のヨウ素の分析には Cathodic Stripping Voltammetry (CSV 法)を用いた(Campos et al., 1997)。CSV法では I^- を分析できる。また、海水試料中の IO_3^- を還元することにより無機態ヨウ素濃度、有機物分解および還元反応により全ヨウ素濃度を測定することが可能である。 ^{129}I 分析は、海水中のヨウ素を AgI として抽出後、加速器質量分析装置を用いて行った(Smith et al., 1998)。加速器質量分析装置で測定した $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比と CSV 法で求めた全ヨウ素量から、海水中の ^{129}I 量を算出した。

3. 結果と考察

北太平洋、ベーリング海、チャクチ海における ^{129}I の鉛直分布を明らかにした。先行研究(Suzuki et al., 2013)により、北太平洋の表層水中の ^{129}I 濃度(北緯36度から44度)

は高緯度になるほど濃度が高くなることが観測されている。これは北緯 55 度付近に位置する Sellafield と La Hague が放出した ^{129}I が、大気を経由して太平洋に供給されているためと考えられる (Moran et al., 1999)。本研究海域においては、さらに高緯度の海域においても表層水中の ^{129}I 濃度が上昇する傾向がみられた (図 1)。本研究では北緯 50 度より高緯度の縁辺海においても、 ^{129}I が Sellafield と La Hague から大気経由で供給されていることを示した。

また、北太平洋、ベーリング海、チャクチ海における海水中的ヨウ素の分布を明らかにした。大陸棚などの縁辺域では海水中的 IO_3^- が I^- に還元されることが知られている (Wong, 1995)。大陸棚上に位置するチャクチ海、ベーリング海北部では北太平洋の外洋域と比較して I^- 濃度が高かった (図 2)。さらにベーリング海、チャクチ海では底層に向かって I^- の増加傾向がみられた。還元的な堆積物からは間隙水を経由して I^- が底層水に供給される (Price and Calvert, 1973)。ベーリング海、チャクチ海大陸棚域の底層においては堆積物を起源とする I^- が供給されている可能性が示された。

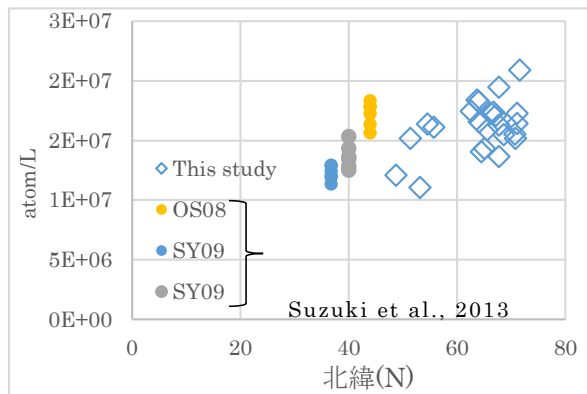


図 1：表層ヨウ素-129 の緯度毎の分布

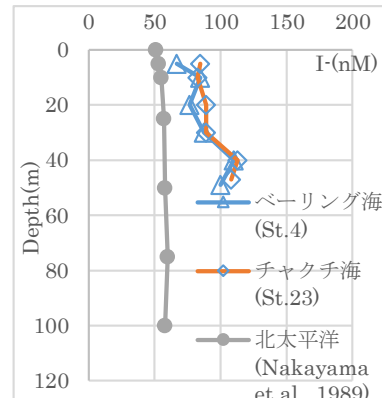


図 2：ベーリング海・チャクチ海の I^- 分布

4. 引用文献

- Campos, M. L. A. M. (1997) : New approach to evaluating dissolved iodine speciation in natural waters using cathodic stripping voltammetry and a storage study for preserving iodine species. *Marine Chemistry* 57, 107–117.
- Moran, J. E., Oktay, S., Santschi, P. H., Schink, D. R. (1999) : Atmospheric dispersal of ^{129}I from nuclear fuel reprocessing facilities. *Environmental Science and Technology* 33, 2536–2542.
- Price, N. B., Calvert, S. E. (1973) : The geochemistry of iodine in oxidised and reduced recent marine sediments. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 37, 2149–2158.
- Smith, J. N., Ellis, K. M., Kilius, L. R. (1998) : ^{129}I and ^{137}Cs tracer measurements in the Arctic Ocean. *Deep Sea Research* 45, 959–984.
- Suzuki, T., Otosaka, S., Kuwabara, J., Kawamura, H., Kobayashi, T. (2013)a : Iodine-129 concentration in seawater near Fukushima before and after the accident at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. *Biogeosciences* 10, 1401–1419.
- Wong, G. T. F. (1995) : Dissolved iodine across the Gulf Stream Front and in the South Atlantic Bight. *Deep-Sea Research* 42, 2005–2023.

Distributions of I-129 and iodine speciation in the Chukchi Sea, Bering Sea and Pacific Ocean

Mar.2015 Marine Biogeochemical Cycle, 47136629 Kazuji Miwa
Supervisor; Associate Professor, Hajime Obata

Keyword: Iodine-129, Iodine Speciation

1. Introduction

Iodine (I) belongs to halogen family and its atomic number is 53, standard atomic weight is 126.9044. In the natural environment, iodine has 37 isotopes and only I-127 is stable isotope. It was reported that the major radioisotope I-129 had been released in high concentration from two European nuclear fuel reprocessing plants in Sellafield (U.K.) and La Hague (France) since the 1960s (Smith et al., 1998). The longest-lived radioisotopes, I-129 has a half-life of 15.7 million years and it serves I-129 as a tracer of nuclear fuel.

There are three principle species in the speciation of dissolved iodine in seawater; iodide (I^-), iodate (IO_3^-) and dissolved organic iodine (DOI). The speciation of dissolved iodine is determined by the redox status in seawater. IO_3^- is the main species in the oxic condition whereas dissolved iodine exists as I^- in the reducing environment. Since iodide is transported to the whole ocean and atmosphere via biological activities, it is important to investigate iodine speciation to elucidate the dynamics of iodine in the ocean.

The Chukchi Sea is a part of the Arctic Ocean, and adjoined to the Bering Sea. The seasonally ice-covered Chukchi Sea and Bering Sea shelves are among the largest continental shelves in the world with shallow sea depths (20 - 81 m). It is expected that the radioisotopes from the nuclear fuel reprocessing plants in Sellafield and La Hague would flow into the Chukchi Sea via Arctic Ocean in the future.

In this study, the distribution of I-129 was investigated in the Chukchi Sea, Bering Sea, and North Pacific Ocean to clarify the source of I-129 in 2013 summer. Furthermore, iodine speciation was determined in order to elucidate the iodine cycle in this study area.

2. Method

Seawater samples were obtained during Hokkaido University T/S *Oshoro-maru* C255 cruise from June 14 to August 6 in 2013. The samples to analyze iodine speciations (I^- , IO_3^- and DOI) were stored at -20°C after sample collection. Iodine speciations in seawater samples were determined by cathodic stripping voltammetry (CSV) (Campos et al., 1997). An UV irradiation was applied to measure DOI to degrade organic matters in the samples. Iodine isotopes ratios ($^{129}I/^{127}I$) were measured at the accelerator mass spectrometry (AMS), after iodine was extracted from seawater to AgI (Smith et al., 1998). I-129 concentration in seawater was calculated by $^{129}I/^{127}I$ and total iodine concentration determined by CSV.

3. Result and Discussion

The surface I-129 concentration tended to increase to the northward in this study area.(Fig. 1). This trend was also recognized comparing with the previous study in the Pacific Ocean (Suzuki et al., 2013). (Moran et al., 1999) suggested that the I-129 was transported east and west via atmosphere. Therefore, the observed high I-129 in the high latitude in this study area could be caused by the atmospheric transport of the I-129 release from the nuclear fuel reprocessing plants in Sellafield and La Hague.

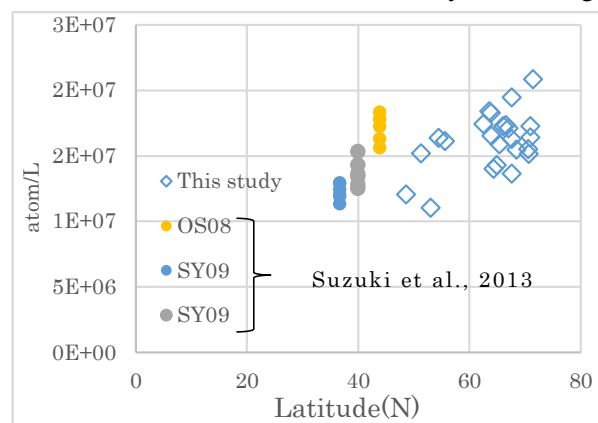


Fig.1: Latitudinal distribution of surface I-129

The vertical distributions of iodine speciation was investigated in the Chukchi Sea and northern Bering Sea shelf. In the Chukchi Sea and northern Bering Sea shelf, the concentration of I- was higher than that in the North Pacific open ocean (Fig.2). Iodide concentration in the Chukchi Sea and Bering Sea increased near the bottom layer. It has been suggested that iodate reduction to iodide in the shelf-sea region (Wong, 1995). Therefore, it was suggested that iodide might be released from anoxic sediment by pore water (Price and Calvert, 1973). In the Chukchi Sea and Bering Sea, it is suggested that iodide is provided from sediment in bottom.

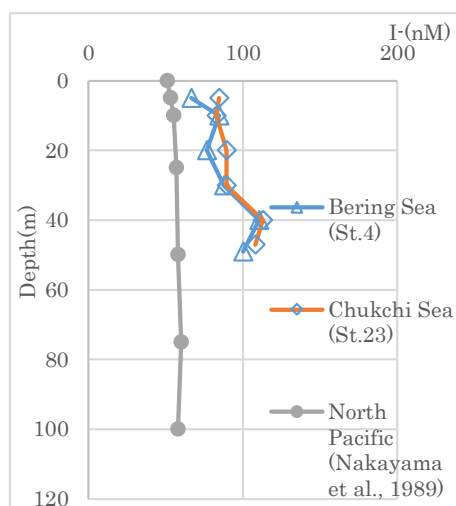


Fig.2: Distribution of iodide in Chukchi Sea and Bering Sea

4.Reference

- Campos, M. L. A. M. (1997) : New approach to evaluating dissolved iodine speciation in natural waters using cathodic stripping voltammetry and a storage study for preserving iodine species. *Marine Chemistry* 57, 107–117.
- Moran, J. E., Oktay, S., Santschi, P. H., Schink, D. R. (1999) : Atmospheric dispersal of 129 iodine from nuclear fuel reprocessing facilities. *Environmental Science and Technology* 33, 2536–2542.
- Price, N. B., Calvert, S. E. (1973) : The geochemistry of iodine in oxidised and reduced recent marine sediments. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 37, 2149–2158.
- Smith, J. N., Ellis, K. M., Kilius. L. R. (1998) : ¹²⁹I and ¹³⁷Cs tracer measurements in the Arctic Ocean. *Deep Sea Research* 45, 959–984.
- Suzuki, T., Ootosaka, S., Kuwabara, J., Kawamura, H., Kobayashi.T. (2013)a : Iodine-129 concentration in seawater near Fukushima before and after the accident at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. *Biogeosciences* 10, 1401–1419.
- Wong, G. T. F. (1995) : Dissolved iodine across the Gulf Stream Front and in the South Atlantic Bight. *Deep-Sea Research* 42, 2005–2023.