

## 化学形態とヨウ素同位体比に基づく堆積岩地域でのヨウ素の挙動解明 Behavior of iodine in sedimentary rocks based on iodine speciation and $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ratios

東郷 洋子<sup>1\*</sup>, 高橋 嘉夫<sup>2</sup>, 天野 由記<sup>3</sup>, 松崎 浩之<sup>4</sup>, 鈴木 庸平<sup>4</sup>, 村松 康行<sup>5</sup>, 岩月 輝希<sup>3</sup>

TOGO, Yoko<sup>1\*</sup>, TAKAHASHI, Yoshio<sup>2</sup>, AMANO, Yuki<sup>3</sup>, HIROYUKI, Matsuzaki<sup>4</sup>, SUZUKI, Yohey<sup>4</sup>, YASUYUKI, Muramatsu<sup>5</sup>, IWATSUKI, Teruki<sup>3</sup>

<sup>1</sup>産業技術総合研究所, <sup>2</sup>広島大学, <sup>3</sup>日本原子力研究開発機構, <sup>4</sup>東京大学, <sup>5</sup>学習院大学

<sup>1</sup>AIST, <sup>2</sup>Hiroshima University, <sup>3</sup>JAEA, <sup>4</sup>The University of Tokyo, <sup>5</sup>Gakushuin University

### 【はじめに】

日本は世界で二番目のヨウ素生産国であり、ヨウ素は地下の鹹水から産出される。このような高ヨウ素濃度の鹹水は、ヨウ素同位体比 ( $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ) の年代が産出する地層の年代よりも古いことが特徴である [1]。しかし、高ヨウ素濃度の鹹水形成過程には未解明な点が多い。一方、放射性廃棄物中に含まれる放射性ヨウ素  $^{129}\text{I}$  は、易動性が高く、長半減期 (1570 万年) であることから、地層処分時の安全評価の際には重要な核種の一つである。そのため、地下岩石圏でのヨウ素の挙動を理解することが急務となっている。しかし、ヨウ素は環境中で様々な化学形態 ( $\text{IO}_3^-$ ,  $\text{I}^-$ ,  $\text{I}_2$ , 有機ヨウ素など) をとり、それぞれ易動性が大きく異なるため、環境中での挙動理解は容易ではない [2]。そこで、本研究では北海道幌延地域を対象に、固液両相のヨウ素の濃度分布、化学形態、ヨウ素同位体比を調べ、長期地下環境中でのヨウ素の挙動解明を試みた。

### 【方法】

岩石および地下水試料は日本原子力研究開発機構幌延深地層研究センターで掘削されたボーリング孔から採取した。主な岩相は珪藻質泥岩 (声問層) および珪質泥岩 (稚内層) である。岩石試料中のヨウ素の化学形態は、K 吸収端 XANES により決定した (SPring-8, BL01B1)。さらに、岩石を両面研磨した薄片を作成し、micro-XRF を用いた岩石中のヨウ素のマッピングを行った (SPring-8, BL37XU)。地下水中のヨウ素の化学形態分析は高速液体クロマトグラフィー接続 ICP-MS を用いて、 $\text{I}^-$ 、 $\text{IO}_3^-$ 、有機ヨウ素の分離検出を行った。また、地下水および岩石から抽出したヨウ素の同位体比 ( $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ) を東京大学タンデム加速器研究施設 (MALT) にて測定した。岩石中のヨウ素は、加熱分離法 (全ヨウ素) と水抽出法 (主に  $\text{I}^-$ ) を用いて抽出した。

### 【結果・考察】

地下水中のヨウ素濃度は地下深部で高く (最大で海水の 600 倍)、塩化物イオン濃度と非常によく相関していた ( $R^2 = 0.90$ )。また、HPLC-ICP-MS を用いて決定した地下水中のヨウ素の化学形態は  $\text{I}^-$  であった。岩石中のヨウ素濃度は、声問層で高く、その下位の稚内層で低くなっていた。岩石中のヨウ素の K 吸収端 XANES から、ヨウ素は岩石中では有機ヨウ素と  $\text{I}^-$  の混合であることが分かった。また、岩石薄片のヨウ素のマッピングを行ったところ、声問層および稚内層において数・数十  $\mu\text{m}$  のヨウ素の濃集域が確認された。ヨウ素濃集域では炭素濃度が高く、有機ヨウ素である可能性が高い。また、地下水のヨウ素同位体比は岩石から加熱分離および水抽出したヨウ素の同位体比よりも低かった。これらのことから、幌延地域のヨウ素の移動変遷は以下のように推測される。堆積時にヨウ素は珪藻質堆積物中の有機物に濃縮した。埋没・圧密過程では、特に稚内層以深において、岩石中に固定されていたヨウ素が  $\text{I}^-$  として溶出した。形成した高ヨウ素濃度の地下水は圧密作用によって比較的均一に声問層まで分布した。その後、隆起・侵食過程において、塩素と同様に天水により希釈された。

岩石中に固定された有機ヨウ素は有機物の熟成過程で無機化し、地下水中に放出されたと考えられるが、そのメカニズムは分かっていない。今後、様々な深度において岩石中の炭素の化学形態を調べ、有機物の熟成に伴うヨウ素の無機化メカニズムを明らかにする必要がある。

[1] Muramatsu, Y., Fehn, U., Yoshida, S. Earth Planet. Sci. Lett. (2001) 192, 583-593.

[2] Shimamoto, Y.S., Takahashi, Y., Terada, Y. Environ. Sci. Technol. (2011) 45, 2086-2092.

キーワード: ヨウ素, X 線吸収端近傍構造, HPLC-ICP-MS, ヨウ素同位体比

Keywords: Iodine, XANES, HPLC-ICP-MS,  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  ratio