

1-4 ヨウ素酸イオンを効果的に取り除くにはどうする？ ーバライト（BaSO₄）へのヨウ素酸の共沈を分子レベルで評価ー

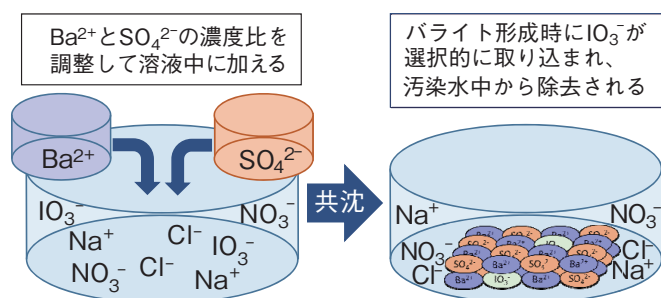


図1-7 バライト生成を利用したIO₃⁻の除去法の確立
ヨウ素酸（IO₃⁻）を含む水溶液に対して、Ba²⁺/SO₄²⁻等のパラメーターを調整してBaCl₂とNa₂SO₄の水溶液を添加します。ただちにバライトが生成沈殿し、その時にIO₃⁻が塩化物イオンや硝酸イオンの競合効果を受けずに選択的にバライトに取り込まれます。

核燃料の核分裂生成核種の中には半減期が極めて長いものが存在し、それらの適切な処理処分方法の開発は重要な課題です。特に東京電力福島第一原子力発電所での汚染水処理に含まれるヨウ素129（¹²⁹I）は、核分裂生成核種の中でも半減期が特に長く（1.6 × 10⁷年）、かつ水溶液中からの除去が困難なヨウ化物（I^{-3⁻）の陰イオンとして存在します。これらヨウ素の陰イオンのうちI⁻に対してはヨウ化銀（AgI）の生成による処理が知られている一方、IO₃⁻は水溶液中に多く存在する塩化物イオンや硝酸イオンとの競合によりイオン吸着時の除去効率が著しく低下するため、有効な処理処分法は未だ開発されていません。そこで本研究では、IO₃⁻に対する新規の除去方法として、極めて安定な鉱物であるバライト（BaSO₄）中にIO₃⁻を取り込ませることによりIO₃⁻を除去する手法の開発を行いました。イオン半径が大きな元素から構成されるバライトは様々な元素を取り込むことができ、また著者の先行研究よりIO₃⁻と同様の長半減期の陰イオン核種であるセレン79（⁷⁹Se）も効果的に取り込むことも分かっています。}

バライトは、塩化バリウム（BaCl₂）の水溶液と硫酸ナトリウム（Na₂SO₄）の水溶液を混ぜるだけで生成し沈殿します。その時、水溶液中に含まれるIO₃⁻等の微量イオンがバライトの結晶中に取り込まれます（共沈反応）。本研究では、バライトを生成させるときのIO₃⁻の除去挙動を、水溶液のpH、加えるBa²⁺とSO₄²⁻のモル比（Ba²⁺/SO₄²⁻）等のパラメーターを様々に変化した室内実験により詳細に調べ、IO₃⁻除去に最適な条件を見つけ出しました（図1-7）。その結果、バライトによるIO₃⁻の除去に最も影響を与えるパラメーターがBa²⁺/SO₄²⁻

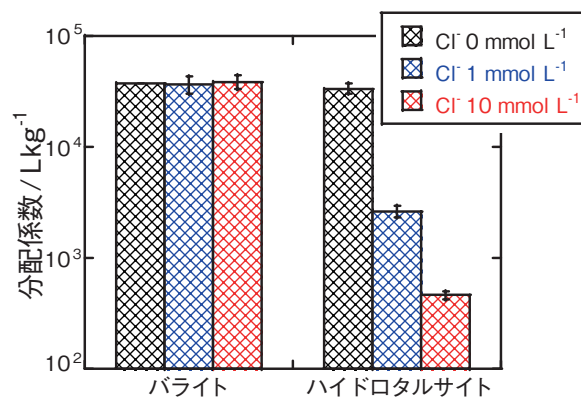


図1-8 バライトとMg-Al LDHへのIO₃⁻の除去効率の比較
競合イオンとして塩化物イオン（Cl⁻）を添加した系での、バライトとハイドロタルサイト（Mg-Al LDH）に対するIO₃⁻の分配係数（K_d）を求めます。Cl⁻濃度の上昇によりMg-Al LDHの分配効率は著しく減少する一方、バライトは一定の高い分配効率を示します。

であることが分かり、SO₄²⁻の割合が小さいほど多くのIO₃⁻が、塩化物イオンや硝酸イオンの影響を受けずに分配されました。しかし置換されるIO₃⁻とSO₄²⁻は電荷の数が異なり、取り込まれたIO₃⁻がバライト内部で安定に存在しているかは分かりません。そこで本研究では広域X線吸収微細構造（EXAFS）法により、得られたバライト内部でのIO₃⁻の局所構造の特定を行いました。その結果、バライト構造内でのIO₃⁻とSO₄²⁻の電荷の違いによる不整合は、不純物としてバライトに置換されるナトリウムイオンとの結合（I-Na）により補填されており（2IO₃⁻ + 2Na⁺ ⇌ Ba²⁺ + SO₄²⁻）、バライト内部にてIO₃⁻は安定に存在していることが示されました。

これら従来の手法に対するバライトを用いたIO₃⁻の除去手法の優位性を示すため、従来陰イオン処理に用いられてきたハイドロタルサイトに代表される層状複水酸化物（LDH）と本研究のバライト共沈法とのIO₃⁻に対する分配効率の比較を行いました（図1-8）。競合イオンとして塩化物イオン（Cl⁻）濃度を变化させた系でのそれぞれの分配係数（固液分配比、K_d：K_d値が大きいほど固相側に分配されます）を明らかにしたところ、LDHはCl⁻濃度の上昇により著しく除去効率を減少させた一方、本研究のバライト共沈法はCl⁻濃度の影響を受けずに一定の高い除去効率を示しました。このバライト共沈法の高い除去効率は、硝酸イオンや硫酸イオン等の他の陰イオンを含んだ系においても確認されており、放射性元素を含む汚染水からIO₃⁻を効果的に除去する手法として本研究で明らかにしたバライト共沈法が非常に有用であることが示されました。

（徳永 紘平）

●参考文献

Tokunaga, K. et al., Effective Removal of Iodate by Coprecipitation with Barite: Behavior and Mechanism, Chemosphere, vol.266, 2021, 129104, 10p.