



## 福島原子力事故関連情報アーカイブ

Fukushima Nuclear Accident Archive

Title	放射性セシウムで汚染された土壌浄化のための亜臨界水イオン交換システムの開発 2 - 理論計算によるバーミキュライトからの Cs 脱離機構の解析
Alternative_Title	Development of subcritical water ion exchange system for cleaning of soil contaminated by radioactive cesium 2 - Theoretical analysis of desorption mechanism of Cs from vermiculite
Author(s)	渡邊 真太(東京工業大学), 福田 達弥(東京工業大学), 針貝 美樹(東京工業大学), 中瀬 正彦(東京工業大学), 竹下 健二(東京工業大学) Watanabe, Shinta(Tokyo Inst. of Technology); Fukuda, Tatsuya(Tokyo Inst. of Technology); Harigai, Miki(Tokyo Inst. of Technology); Nakase, Masahiko(Tokyo Inst. of Technology); Takeshita, Kenji(Tokyo Inst. of Technology)
Citation	第 10 回環境放射能除染研究発表会要旨集, p.54 The 10th Workshop of Remediation of Radioactive Contamination in Environment
Subject	セッション : 除染と減容化
Text Version	Publisher
URL	<a href="https://f-archive.jaea.go.jp/dspace/handle/faa/230608">https://f-archive.jaea.go.jp/dspace/handle/faa/230608</a>
Right	© 2021 Author
Notes	禁無断転載 All rights reserved. 「第 10 回環境放射能除染研究発表会要旨集」のデータであり、発表内容に変更がある場合があります。 学会は発表の機会を提供しているもので、内容に含まれる技術や研究の成果について保証しているものではないことをお断りいたします。



## 放射性セシウムで汚染された土壌浄化のための亜臨界水イオン交換システムの開発

## (2) 理論計算によるバーミキュライトからの Cs 脱離機構の解析

渡邊真太, 福田達弥, 針貝美樹, 中瀬正彦, 竹下健二

東京工業大学 科学技術創成研究院

【緒言】福島第一原子力発電所の事故により発生した放射性 Cs は、土壌の分級細粒物に含まれる粘土鉱物層間に高選択吸着されている。我々のグループでは、亜臨界水を用いて、高選択吸着された Cs イオンを高速かつ高効率に取り除く研究を行っている。粘土鉱物に取り込まれた Cs イオンと亜臨界水中のイオンとの高速イオン交換反応は、実験的に観測されているが、原子・分子スケールでのその反応機構については明確に解明されていない。したがって、実際の土壌処理、廃棄物減容システムへの適用に向けて、Cs イオンの高速交換反応挙動を明確に解明する必要がある。これに資する目的から、本研究では、分子動力学(MD)計算と第一原理計算を用いて、代表的な粘土鉱物であるバーミキュライト中および固液界面での Cs イオンの挙動を原子・分子スケールで評価・解析した。

【理論計算】MD 計算は、力場パラメータとして clayff を使い、等温定圧アンサンブル(NPT アンサンブル)にて 100 ps のタイムスケールで行った。その際の温度および圧力は、常温常圧下モデルとして、300 K, 0.1 MPa、亜臨界水下モデルとして、523 K, 4 MPa とした。各 MD 計算において、Cs の平均 2 乗変位(Mean Square Displacement: MSD)を計算し、拡散係数を算出した。さらに、密度汎関数理論(DFT)に基づく第一原理計算により、電子状態および構造特性解析を行った。単位格子の層間にアルカリ金属および  $\text{Mg}(\text{H}_2\text{O})_6^{2+}$  を挿入したモデルで計算を行い、Cs の層間への固定化を解析した。Nudged Elastic Band 法により Cs の層間拡散障壁エネルギーを計算した。本研究における DFT 計算は、QUANTUM-ESPRESSO コードを用いて、Projector augmented-wave 法により実施した。

【結果・考察】MD 計算の結果から、常温常圧下を想定したモデルでは、Cs イオンが取り込まれた層は、10.5 - 11.5 Å 程度まで収縮し、安定的に固定化されることが分かった。一方で、亜臨界水下を想定したモデルでは、層間の  $\text{H}_2\text{O}$  分子、 $\text{Mg}(\text{H}_2\text{O})_6^{2+}$  錯体が、層間を押し広げることで、Cs イオンは層内をランダムウォークによって拡散することが可能となることが示唆された。拡散係数について、常温常圧下モデルと亜臨界水下モデルとを比較すると、後者の方が 5-10 倍程度大きくなり、層間吸着して固定化している Cs がランダムウォークによって拡散しやすくなると考えられる。また、亜臨界水下において、水分子自体が活性化されることで MSD が大きくなり、Cs イオンのランダムウォークを助けるドライビングフォースとなることが分かった。

さらに、第一原理計算により電子密度分布を解析し、層間に固定化される Cs および  $\text{Mg}(\text{H}_2\text{O})_6^{2+}$  錯体の構造特性についても評価・解析したところ、Cs が層間に取り込まれた場合、周囲の 12 個の酸素とイオン半径と程度の距離で安定的に固定化されることが分かった。これは、イオン結合的な相互作用により強固に層間に固定化されるものと考えられる。また、Cs の拡散障壁エネルギーおよび Cs 脱離における生成エンタルピーの評価から、Cs の脱離反応は、層間内での Cs の拡散が律速になっていることが示唆された。

【謝辞】本研究は、科学研究費補助金基盤研究 (B) (一般)「金属イオンを含有した亜臨界水による土壌粘土鉱物からの Cs 脱離に関する研究 (課題番号 18H03398)」及び環境省環境研究総合推進費「汚染土壌浄化・再利用と廃棄物高減容化を目指した亜臨界水処理システムの開発」の成果の一部である。

## Development of Subcritical Water Ion Exchange System for Cleaning of Soil contaminated by Radioactive Cesium

## (2) Theoretical Analysis of Desorption Mechanism of Cs from Vermiculite

Shinta Watanabe, Tatsuya Fukuda, Miki Harigai, Masahiko Nakase and Kenji Takeshita

Tokyo Institute of Technology