

放射光および第一原理計算による物質科学に基づくセシウムの粘土への吸着機構

矢板 毅

日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究センター 〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1

小林 徹

日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究センター 〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1

池田隆司

日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究センター 〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1

松村大樹

日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究センター 〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1

町田昌彦

日本原子力研究開発機構システム計算科学センター 〒277-0871 千葉県柏市若柴178-4

奥村雅彦

日本原子力研究開発機構システム計算科学センター 〒277-0871 千葉県柏市若柴178-4

中村博樹

日本原子力研究開発機構システム計算科学センター 〒277-0871 千葉県柏市若柴178-4

要旨

福島第一原子力発電所の事故により放出された放射性セシウムは、福島の間接線量を高める原因となっており、現在も除染作業が続けられている。本研究においては、土壌中におけるセシウムの構造および化学結合状態などを原子、分子レベルより明らかにすることから、セシウムの土壌における中長期的安定性、線量の高い土壌廃棄物に対する化学除染方法の評価および開発（本解説で触れないが、化学処理法、湿式分級法、焼却処理、アルカリ溶融法などを検討中）、中間貯蔵施設等の保管方法に関する安全性評価に資する知見を得ること、また福島県飯舘村における現地調査を通じた森林、農地土壌、溜池底土などにおける季節変動、存在状態評価など、福島という土地固有の特徴を考慮した環境挙動を把握し、基礎的知見を含めた“総合診断的な研究”を実施している。本稿では、この中でも粘土鉱物での存在状態を明らかにするため、放射光などによるX線分析および第一原理分子動力学計算を用いたセシウムの存在状態について得られた結果の一部について紹介する。

1. はじめに

2011年の東京電力福島第一原子力発電所（1F）事故に伴い、多量の放射性Csが放出され¹⁾、未だに深刻な環境汚染をもたらしている。そこで空間線量を下げたための除染作業が国および地方自治体の主導により行われている。これら汚染物質は、中間貯蔵施設での保管後、最終処分などが検討されている²⁾が、安定な保管法や環境負荷の低い処分法は必ずしも完全に確立出来ていないとはいえない。これは、複雑な環境試料を相手にしなければならないこと、極微量Csの環境での挙動が十分理解されていないことなどの問題があり、高度な科学技術を通しての詳細なメカニズムの理解が不可欠であり、放射光のような先端分析装置の果たす役割は大きい。

今回の原発事故で放出された放射性Csは、同様に核分

裂収率の高いSr-90などが1Fサイト外ではあまり検出されていないことから考えて、ハロゲン化合物など比較的揮発性の高い化学種がガスとして放出された可能性が高いと考えられている。すなわち、大気中に拡散されたCsは、キャリアフリーの元素（土壌ベースの濃度はpptレベル）として環境中に広く薄く分布していると考えられる。キャリアフリーの元素の挙動は、Csのようなアルカリ金属であっても、マクロ量の元素から推定される挙動とは異なる可能性がある。ゆえに、環境試料中の放射性Csの存在状態を直接知る必要があると思われるが、これらを直接検出する構造および電子状態解析的なプローブはなく、この点も一つの問題点として指摘されている³⁾。しかしながら、放射光利用分析のような高感度、高分解能分析や理論計算等に基づく総合的な解釈によれば、現実的なモデルに近づける可能性もあり、その方針において研究を実施している。

そこで我々は土壌すなわちセシウム吸着において極めて重要な粘土鉱物に焦点を当て、理論計算と実験の両面から解釈を試み、物質科学的な観点から問題解決への糸口を探ることとした。本稿では、その結果の一部を解説する。

2. 粘土の基本的結晶構造

粘土鉱物は、基本的に Fig. 1 に示したような二次元に連続した2つのシートが積み重なる層状構造を形成している。層状珪酸塩の Si-O 四面体による層を四面体シート (tetrahedral sheet) といい、この四面体シートと重なる Al, Mg-O 等の八面体の層を八面体シート (octahedral sheet) いう。四面体シートは、 Si^{4+} または Al^{3+} (Fe^{3+} が入ることもある) を4つの O^{2-} が囲んだ四面体が、4つの頂点のうち3つを隣の四面体と共有し、残りの1つの頂点は同じ方向を向いて六角網状に広がったもので、 $(\text{M}_1^{\text{IV}}, \text{M}_2^{\text{III}})_2\text{O}_5$ ($\text{M}_{1,2}$ は中心金属イオン) の組成をもつ。八面体シートと組み合う場合は、Fig. 2 左図のように頂点の酸素が共有される形を取る。八面体シートは、 Al^{3+} , Mg^{2+} , Fe^{2+} などの陽イオンを6個の OH^- または O^{2-} が囲んだ八面体が稜を共有することによって二次元的に広がったもので $\text{M}_2^{\text{III}}(\text{OH})_6$ または $\text{M}_3^{\text{II}}(\text{OH})_6$ (M は中心金属イオン) の組成をしめす。中心イオン M が三価である場合は八面体の陽イオンが占めるべき位置の1/3が欠損

し、ホールができるが、二価イオンの場合はホールが出来ない。これらはそれぞれ、2八面体 (dioctahedral), 3八面体 (trioctahedral) といわれ、結晶構造は異なる。陽イオンに対する OH^- イオンの結合数は、2八面体では、陽イオン2に対して1個、3八面体では、陽イオン3に対して1個の量的関係となる。その結果、3八面体シートの H^+ は、3つの陽イオンからの反発から結果として O-H 結合は、シート面に垂直になり、2八面体はホール方向に傾いている。このそれぞれのシートの厚さは 2.2 \AA 程度で、これらが重なって 1:1 層 (1:1 型構造) あるいは 2:1 層 (2:1 型構造) (以上の比は、四面体:八面体シートを表す) と呼ばれる複合層が形成される。

本稿では、特にセシウム収着で重要な 2:1 構造の粘土鉱物を中心に述べる。2:1 層の両表面はいずれも四面体シートの酸素からなり、多くの 2:1 層の鉱物 ($\text{X}_{2-3}(\text{Si}, \text{Al})_4\text{O}_{10}(\text{OH})_2$, X は, Al, Mg, Fe など) は陽イオン置換 ($\text{Si}^{4+} \rightarrow \text{Al}^{3+}$) などによって負の層間電荷 (layer charge) を示す。この層間電荷は、タルク、パイロフィライト 0:雲母、雲母粘土鉱物 0.6-1.0:脆雲母 ~ 2:緑泥石 0.8-1.2:パーミキュライト 0.6-0.9:スメクタイト 0.2-0.6 となっている。

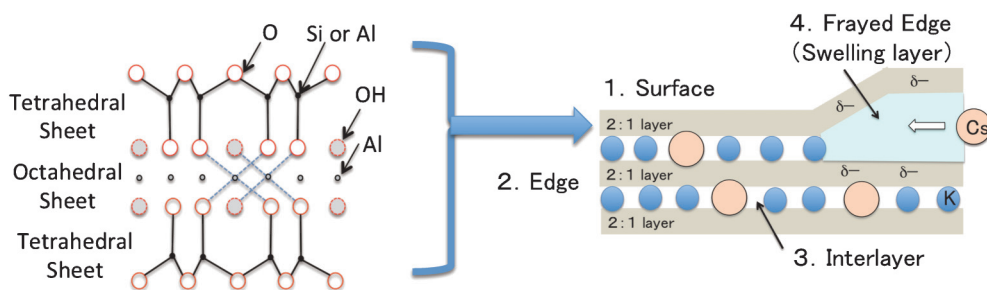


Fig. 1 (Color online) The 2:1 sheet structure (left) of clay mineral and the hour dominant sorption sites of 2:1 type clay mineral (right). The sorption sites were mentioned to be three in the text; however, collapsed (3.) and swelled (4.) layers were distinguished in this figure.

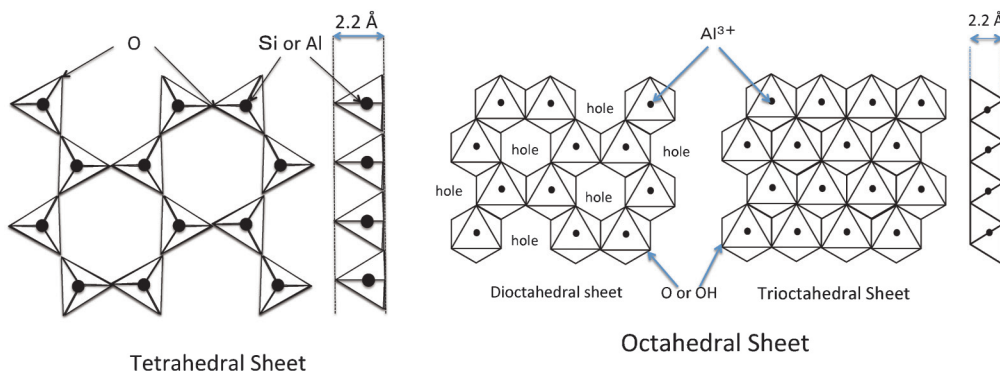


Fig. 2 (Color online) The tetrahedral (left) and octahedral (right) sheets of clay minerals.

3. Cs を選択的に吸着する粘土, その吸着サイトおよび吸着状態

本稿で議論の対象とする鉱物は粘土であり, 土壌中の鉱物のなかでも Cs を選択的に吸着することは既に述べたが, 福島において Cs が吸着している粘土の種類は予想以上に限定されていることが, イメージングプレートと SEM/TEM-EDS および μ XRD 等の結果から明らかにされつつあり⁴⁾, その鉱物は, 風化を受けた雲母鉱物類であることが指摘されている。Bradbury ら⁵⁾の風化 illite に関する等温吸着線によれば, その変曲点の数から想定される吸着部位は 3 つあると推定される。その候補は Fig. 1 右図に示したように, 選択的ではあるが交換容量の小さいほつれた端面 (FES: Frayed Edge Site, 風化によって生ずる) から, 端面, 表面など比較的吸着容量の大きいサイトなどまでが考えられている。粘土の表面あるいは層間には, 四面体あるいは八面体シートの中心元素の原子価に伴う永久電荷が広く分布 (八面体シート由来) あるいは局在 (四面体シート由来) して存在しており, 負に帯電している部分に Cs 吸着が起りやすい。粘土が存在する環境の pH に依存した -OH 基に対するプロトン化および脱プロトン化による変異電荷にも注意が必要である。吸着サイトの中では, 粘土層間は見かけ上不可逆的な吸着ポイントとなる可能性も考えられている。粘土鉱物には, Fig. 3 の概念図に示したように smectite のような水和イオンをコアにした膨潤層を持つものと, 雲母のような層間が水和しておらず K^+ で満たされた閉層しているものがある。雲母は風化を受けると, 雲母と vermiculite の中間状態として端面からほつれたような膨潤層が形成され, これが先に述べた FES (Fig. 1 右図) である。風化は一般的に外周縁部から進むため端部に多く見られ⁶⁾, その結果, 周縁部に Cs が濃縮されるという指摘が多い⁷⁾。膨潤層に存在する水和した Ca^{2+} や Mg^{2+} は, イオン交換されやすいが, 閉じた層間に存在している K^+ はイオン交換されにくい。さらに Cs^+ や NH_4^+ は K^+ よりさらに層間に取り込まれやすく, 安定化する事が知られている⁸⁾。この理由としては, 接触

面の四面体シートの六員環ポケットサイズが, Cs^+ や NH_4^+ のイオンサイズにフィットすること, イオンサイズに由来する表面電荷の低さから水和エネルギーが小さく⁹⁾, 裸のイオンとして振る舞う可能性が高く, 結果として粘土との相互作用は水和イオンにくらべ強くなると考えられている。

本研究では福島で Cs を吸着する鉱物として注目される雲母系粘土鉱物として illite, sericite, 膨潤層を持つ粘土鉱物として vermiculite を, 1:1 粘土鉱物として kaolinite を用い, Cs を十分吸着させた場合の Cs の局所構造について EXAFS 測定を行った。CsCl 水溶液は比較対象試料である。測定は, SPring-8 の BL11XU おいて実施した。SPring-8 BL11XU では, La の K 吸収端においては, 0.1 mM (10 ppm 程度) の試料について透過法による EXAFS スペクトルの測定および解析が可能であり, ppt オーダーでは無いが, 比較的薄い濃度の構造決定が可能である。なお福島では, 風化雲母, vermiculite などかなり限定的な鉱物に吸着している可能性が SEM/TEM-EDS とイメージングプレートを用いた研究⁴⁾により示されており, 分離した鉱物ベースの重量で見た場合, サブ ppm オーダーまで濃縮されている場合がある事が示されている。従って, 層間における存在状態については, 大きな膨潤層を持つ vermiculite によって, また, 表面における存在状態については illite, sericite (マクロ量の Cs との反応考えた場合), kaolinite などの粘土鉱物間の比較を通して, 粘土鉱物への Cs 吸着状態について検討した。

得られた EXAFS 振動に対するフーリエ変換の絶対値, すなわち動径構造関数を Fig. 4 に示した。なお, Cs-K 吸収端 EXAFS においては, 多電子励起への配慮が必要であり¹⁰⁾, 粘土のモデル構造による FEFF によるシミュレーション結果と実スペクトルを比較しつつ, 振動抽出を行った。Fig. 4 の結果からは, 全ての粘土鉱物中の Cs において, 特徴的な 2 つの相互作用がある事が分かる。まず表面吸着が主体的であると考えられる illite と sericite は, 共に雲母系鉱物としてそのスペクトル形状が酷似しており, vermiculite は, 第二近接のピークが大きいことが分かる。kaolinite は, 雲母系同様表面吸着が主体的であると考えられるが, 第一近接の構造がやや異なる。全体として, 第一近接 (2.0-2.6 Å) および第二近接 (3.5 Å) に特徴的な違いが見いだされていることから, 以下第一原理分子動力学計算により詳細にピークの帰属を試みた。Fig. 5 に分子動力学計算から得られた動径分布関数 $g_{CsX}(r)$ の一例を示す。まず, Fig. 5 左図に示した $g_{CsO}(r)$ に注目すると, Cs-O 間距離にはおよそ 3.0 Å の成分 ($Cs-O_1$) と 3.3 Å の成分 ($Cs-O_2$) の 2 成分があることがわかる。このうち前者 ($Cs-O_1$) は粘土鉱物の骨格を形成する四面体シートの酸素と Cs との相関に相当し, 後者 ($Cs-O_2$) は, Cs 水溶液での $Cs-OH_2$ 間距離に近いことから, 端部周辺あるいは表面で水和した状態で留まっている Cs と水分子

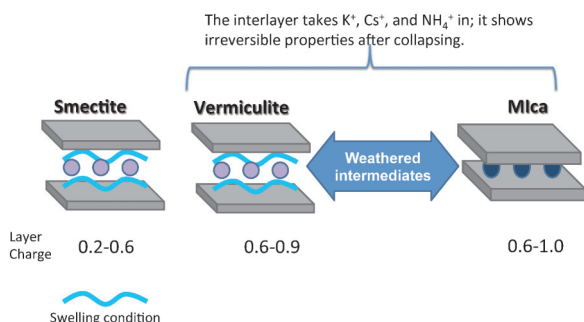


Fig. 3 (Color online) The connectional pictures of swelled and collapsed clay minerals.

* The ball in the interlayers present ions.

の酸素原子との相関に相当すると考えられる。一方, Fig. 5 右図からセシウムが層間内部に取り込まれ無水状態で層間に固定されると Cs-Si あるいは Cs-Al 間の相関に由来するピークが約4.0 Å に現れることがわかる。以上のように, 第一原理分子動力学計算により, 第一, 第二近接は, それぞれ, Cs-O_{1,2}, Cs-Si(Al) と帰属した。このモデルに基づくカーブフィッティングを実施したところ, それぞれの原子間距離は, vermiculite, illite, sericite で第一近接よ

り順に, 概ね R_{Cs-O1} が約 3 Å, R_{Cs-O2} が約 3.3 Å, R_{Cs-Si} が約 4.1 Å となった。これらは, 第一原理分子動力学計算により得られた原子間距離とほぼ一致する。

本測定において, 最も注目すべき点は, Cs-Si(Al) に由来するピーク強度については, vermiculite とその他で大きく異なる点である。第二近接の強度は, Cs が多く層間に取り込まれ, 閉層した状態にあることを示しており, vermiculite は, 交換容量の大きい膨潤層間を持つことから, その膨潤層が閉じ, 多くの Cs を層間において安定的に捕捉していることを示している。一方, 2つの雲母系粘土鉱物は, 端部の風化に由来する FES は, 限定的なためその交換容量が小さい事を指摘している Bradbury らの結果⁵⁾と一致する。ただし, 第一近接の構造については厳密に見ると vermiculite とその他の粘土との構造の違いがある。Sawhney によれば, 低濃度の実験では, Cs の選択性は illite が高いが, 濃度が高くなると逆に vermiculite の選択性が高くなることを指摘している¹¹⁾。illite および sericite の第一近接の近距離相互作用が認められるという特徴は, 層間構造を持たない kaolinite においても観察されることから必ずしも層間における相互作用特有のものでもない可能性もあり, 今後詳細な検討が必要である。

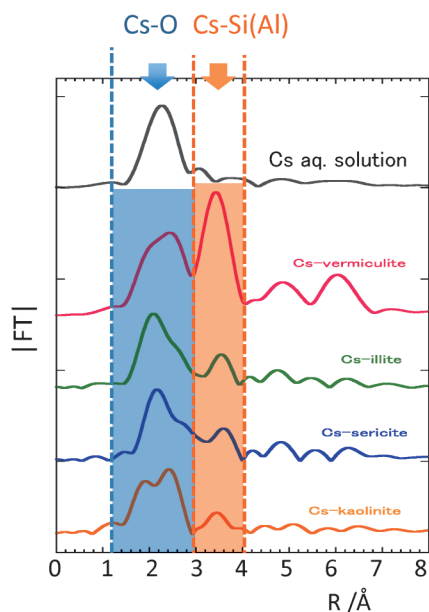


Fig. 4 (Color online) The radial structural functions of Cs-K EX-AFS for Cs in clay minerals.
* The phase shifts were not corrected.

4. 粘土鉱物と Cs の化学結合特性および吸着の選択性を示すメカニズム

実験室で吸着させた Cs に対する剥離は可能であるにもかかわらず, 福島汚染土壌をもちいる除染作業, それに伴う化学処理などにおいて, 実験室の結果を再現できないことがしばしばある。この理由としては, 放射性 Cs は, 一般的にはキャリアフリー (すなわち極微量) であり, その

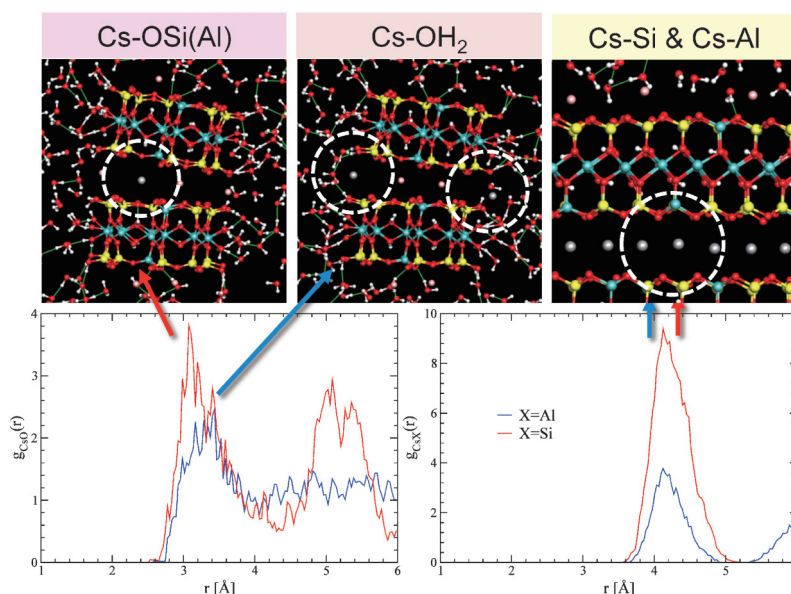


Fig. 5 (Color online) The molecular dynamics simulations of radial distribution functions (lower figure) of Cs-clay minerals based on the model structure (upper pictures).

挙動は、マクロ量の実験のみでは説明出来ていないこと、環境に存在する粘土鉱物は純粋なものは殆ど存在せず、複雑なコンポジットであること、粘土鉱物の特異的吸着点に関する理解が十分でないことなど様々な要因が考えられる。もちろん、アルカリ溶融など、構成鉱物を完全に破壊すれば、Csを100%取り出すことは可能であるが、膨大な土壌の構成物の化学結合を切断するに必要なアルカリ塩が多量に必要となり、必ずしも現実的でない。そこで改めて基本に立ち返り、このCsと粘土鉱物の相互作用（化学結合）の多様性を理解することで、他のイオンからの違いについて考えてみる。これまで過去の研究結果を紹介してきたように、Csの粘土鉱物への取り込みにおける選択性は、粘土鉱物の四面体シートの六員環にフィットすること、無水和のCsイオンと粘土との強い相互作用などが要因として考えられてきたが、さらに実験事実として注目したいのは、EXAFSの実験より粘土鉱物の酸素とCsの原子間距離が約3 Å程度のものがあり、たとえ表面吸着が支配的な illite などにおいても予想以上に強く相互作用しており、酸化物結晶から得られるCsのイオン半径と酸素とのイオン半径の¹²⁾よりやや短い点である。すなわち、軌道間の相互作用に由来する、共有結合的相互作用を含む化学結合をしている可能性を考える必要がある。Csのような1価の第3周期以降のアルカリ金属イオンは、最外殻が閉殻の安定なs, p軌道からなり、ドナー原子とはイオン相互作用をすることが主たる反応であると考えられるが、この結果は、粘土鉱物との強固な相互作用を説明する上で極めて興味深い。そこでCsと粘土との化学結合特性について理論計算の観点から明らかにすることを試みた。

Csと粘土鉱物が強く結合する状況として、雲母系のFESあるいはvermiculiteの閉層構造などが考えられるが、低濃度のCsに対しての選択性は、FESの方が高いと考えられており、このFESに取り込まれた状態を想定した計算を行った。計算のモデルとしては、バルクの白雲母のカリウムの一つをセシウムに置換した状態で計算を行った（Fig. 6左図¹³⁾）。Fig. 7には、全電子、Kの3p軌道及びCsの5p軌道電子の状態密度、周辺最近接12個の酸素原子（Fig. 6参照）の2p軌道電子の状態密度の和のエネルギー依存性をそれぞれ示した。まず、カリウムの3p軌

道の状態密度の位置と形に注目してみると、約-11 eVにシャープなピークを観察することができる。化学結合を形成していると考えられる酸素との状態密度とのオーバーラップは認められず、いわゆる原子軌道の状態を維持していると考えられる。すなわち、静電的相互作用に基づく、イオン結合を形成していることを示している。一方、Csの5p軌道は、約-6 eVの部分に存在し、化学結合を形成していると考えられる酸素とオーバーラップしていることがわかる。また、その軌道は、Kの3p軌道に比べブロード化し、歪んだ構造を取っていることが分かる。すなわちCsの5p軌道は、酸素の2p軌道と軌道相互作用を通じて分子軌道を形成し、ドミナントなイオン結合に加え、電子を共有する共有結合を形成している可能性を示唆している。この共有結合的な化学結合特性を示す傾向は、(001)面間距離が短いほど強くなることも確認されている。

これらのCsに関する化学結合について視覚的に検証するために、雲母類粘土鉱物に対し、セシウムが吸着したサイトの近傍のみを切り取り、適当な処理を行った後、電子の波動関数を視覚化した。計算はAmsterdam Density Functional program (ADF)¹⁴⁾を用いた。Fig. 8に、Csと近接酸素が結合している際の波動関数を示したが、Csの波動関数は点線の部分に示したように、近接酸素にその存在密度がある事が分かる。すなわち、Csと粘土鉱物の酸

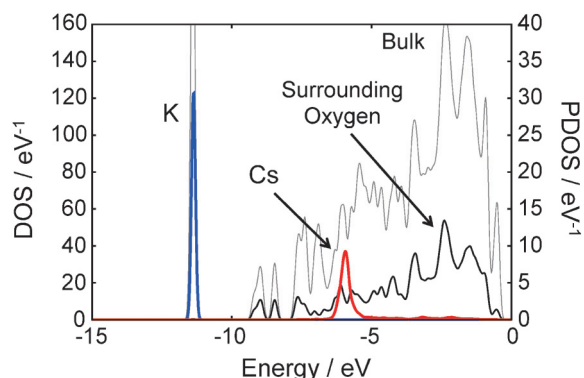


Fig. 7 (Color online) DOS and PDOS of Cs and K-muscovite system

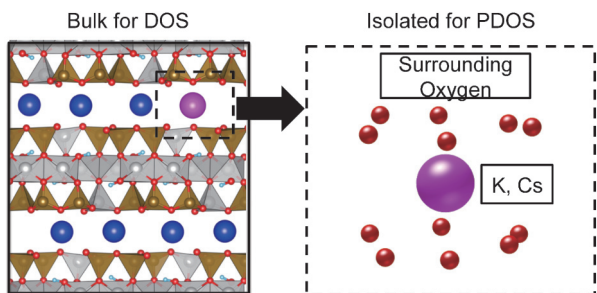


Fig. 6 (Color online) Calculation models of Cs-muscovite system.

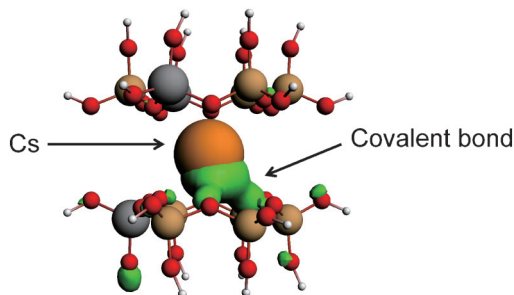


Fig. 8 (Color online) Probable molecular orbitals of Cs-muscovite system.

* The green colored region denotes the covalent bond.

素の間には電子を共有する分子軌道が形成されることが分かる。つまり、化学結合形態は単なるイオン結合だけではなく、共有結合性も有することが改めて示された。このことは、重元素としての特徴を Cs も示しており、粘土鉱物との相互作用において、K 以下のアルカリ金属に対する選択性を示す相互作用であり、不可逆ともいわれる Cs と粘土の強い相互作用を支える要因の一つであるといえる。

5. SAXS による粘土鉱物への Cs 吸着の特徴¹⁵⁾

最後に、環境中での挙動を解く鍵となる一つの興味ある研究結果について紹介する。放射性セシウムが、特定粘土に濃縮する傾向があることは既に述べた。放射性 Cs は、極めて微量かつ拡散された状態で放出されたと考えた場合、選択的に粘土鉱物に取り込まれるということは、Cs と物質が、大気中浮遊物、地表近くの土壌中などでの相互作用を通じて収斂していくと考えるのが妥当だろう。しかしながら、粒子に一度取り込まれた Cs が水を媒体として鉱物間を移行することは容易に想定できるが、一方で、一度粒子に取り込まれたものがなかなか剥がれにくい事ということもこの解説において述べてきた。そこで、Cs イオンが粘土に吸着するという現象をメゾスコピックレベル (1~1000 nm) 観察した研究例を示す。

Fig. 9 は、パーミキュライトの懸濁液に対する X 線小角散乱スペクトルの Cs 濃度依存性である。これによると、Cs 濃度が最大初期濃度の 1000 ppm 以外の試料において、ピーク P₁ すなわち (001) 面の反射 ($d = 14.9 \text{ \AA}$) が検出され、Mg²⁺などを核とする水和殻による膨潤層の存在がある事が分かる。さらに Cs 濃度の増加に伴って、ピーク P₁ の回折強度が減少し、ピーク P₂ が新たに出現する。これまでの DXAFS などの結果¹⁶⁾と合わせると、あまり水和していない Cs イオンが層間に侵入し、相互作用している事がわかる。1000 ppm の試料においては、ブロードだが、(001)面の反射は、 $d = 12.6 \text{ \AA}$ 程度を示し、さらに閉層する傾向にあることが分かる。一方、1 ppm の試料においては、長周期の相互作用に基づく回折ピーク P₃ が $q = 0.18 \text{ \AA}^{-1}$ ($d = \text{約} 33 \text{ \AA}$) を中心に観測されている (q は波数ベクトルの絶対値)。このピークは、Cs 懸濁液中で大きく膨潤する層が形成されたことによる可能性が高いが、その詳細は今のところ明らかにされていない。ピーク P₃ はその後の Cs の進入により消失するため、Cs 濃度が 5 ppm 以上の試料で、何らかの層間秩序が失われていることも確認されている。これらのことから、Cs が吸着することにより、粘土内での電荷分布あるいは電子密度の偏りが、K が作り出す秩序とは異なり不規則になりつつあることを示している。また、SAXS の測定結果により得られたスタック数 (結晶ドメインあたりの粘土層の平均枚数) によれば、この一連の変化に伴い、層状構造のスタック数の減少が認められる (Fig. 10)。すなわち、Cs の分布や電

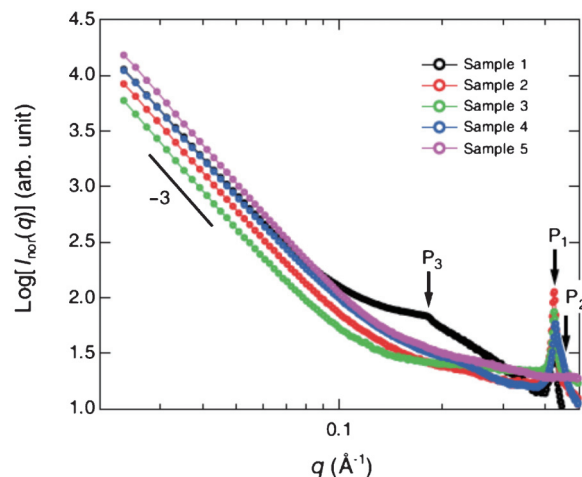


Fig. 9 (Color online) SAXS spectrum of vermiculite in Cs suspended solutions¹⁵⁾.

* Cs concentrations in the sample solutions are sample 1: 1 ppm, sample 2: 5 ppm, sample 3: 20 ppm, sample 4: 100 ppm, sample 5: 1000 ppm.

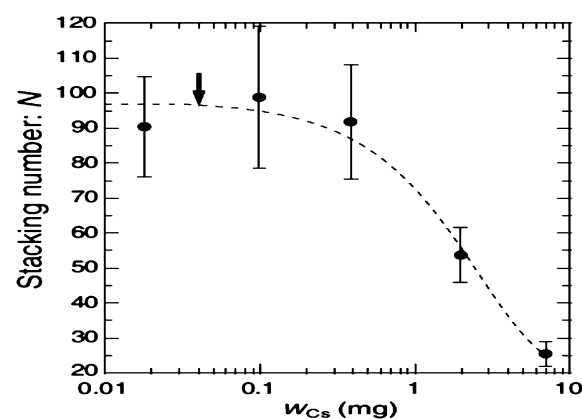


Fig. 10 Structural changes in the crystal domain of vermiculite. N with the error plotted as a function of W_{Cs} (absorbed Cs weight) on logarithmic scales¹⁵⁾. Dashed lines is a visual guide and single exponential function, $\exp(-W_{Cs}/W_{Cs}^*)$, respectively. Errors in N in the numerical SAXS analyses are within 63% accuracy.

荷密度が低い層間が剥がれ、結果として粘土の構造を多様に変化させる可能性を示唆している。こうして生まれた剥離面は、また新たな Cs 吸着面として働く可能性もあるとともに、固体-固体間での Cs 移行の可能性を示すユニークな実験結果であるとも考えられる。この実験は、Cs 懸濁液の実験に基づくものであるが、実環境を考えたとき、K⁺, NH₄⁺など主要な 1 価イオンとの比較などからさらなる知見を得ることが可能であろう。

6. おわりに

これまでの解説の中で、EXAFS, 理論計算, SAXS などの分析による粘土鉱物中の Cs の存在状態および選択性

に関する研究について紹介した。Csは、様々な相互作用を通じて粘土鉱物と強く、選択的に結合することが明らかとなった。このことはCsの中間貯蔵において長期的安定性を評価する上で有用であるとともに、中間貯蔵後の減容化処理法（全分解か、部分的処理か）を考える上で有用な知見であると考えられる。また、今回はあまり触れなかったが、特定鉱物への収斂という観点から考えると、ハンドピッキングが可能ならばそれが最も有効かつ環境負荷の小さい減容化法であると考えられるが、現実的ではない。ゆえに、吸着粒子の性質を考慮した高度化した分級法の開発などは今後極めて重要であろう。また、地方自治体で進められつつある焼却処理の評価、すなわち焼却後の粘土の材料としての変化、これに伴うCsの安定性評価、除染法・減容化法なども今後の課題であろう。一方で、スタック数の減少など新しい吸着挙動メカニズムなどから、環境移行のモデルを考える必要もあるであろう。いずれにせよ、これらの知見を活かし、一日も早い福島の実環境回復に貢献できることを期待している。

参考文献

- 1) 原子力安全に関するIAEA関係会議に対する日本国政府の報告書“東京電力福島原子力発電所の事故について”, “http://www.kantei.go.jp/jp/topics/2011/iaea_houkokusho.html”.
- 2) 環境庁放射性汚染物質処理情報サイト, http://shiteihai-ki.env.go.jp/radiological_contaminated_waste/.
- 3) 高橋ほか: 放射光 **27**, 20 (2014).
- 4) Mukai *et al.*: ES&T, ASAP (2014).
- 5) Bradbury *et al.*: J. Con. Hydrog **42**, 141 (2000).
- 6) G. F. Walker: Nature **177**, 239 (1956).
- 7) J. P. Mckinley *et al.*: ES&T **38**, 1017 (2004).
- 8) R. F. Reitemeier: Advan. Agron. **3**, 113 (1951).
- 9) T. Ikeda and M. Boero: J. Chem. Phys. **137**, 041101 (2012).
- 10) J. Padeznic *et al.*: Phys. Rev. A **68**, 042505 (2003).
- 11) B. L. Sawhney: Clays Clay Minerals **20**, 99 (1972).
- 12) R. D. Shannon: Acta Cryst. **A32**, 751 (1976).
- 13) K. Momma and F. Izumi: J. Appl. Crystallogr. **44**, 1272 (2011).
- 14) G. te Velde *et al.*: J. Com. Chem. **22**, 931 (2001).
- 15) R. Motokawa *et al.*: Sci. Rep. **4**, 6585 (2014).
- 16) 矢板, 池田, 松村: ATOMOS **56**, 366 (2014).

著者紹介



矢板 毅

独日本原子力研究開発機構, 量子ビーム応用研究部門・ユニット長
E-mail: yaita@spring8.or.jp
専門: アクチノイド化学, 分子設計, 地球環境科学, X線発光・吸収分光



町田昌彦

独日本原子力研究開発機構, システム計算科学センター・室長
E-mail: Machida.masahiko@jaea.go.jp
専門: 理論及び計算物理学, 放射線科学, 生命科学



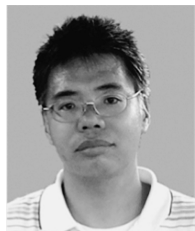
小林 徹

独日本原子力研究開発機構, 量子ビーム応用研究部門・任期付研究員
E-mail: tohru-k@spring8.or.jp
専門: 錯体化学, 有機合成



奥村雅彦

独日本原子力研究開発機構, システム計算科学センター・研究副主幹
E-mail: okumura.masahiko@jaea.go.jp
専門: 環境中のマイクロ現象とその原子・分子シミュレーション解析



池田隆司

独日本原子力研究開発機構, 量子ビーム応用研究部門・研究主幹
E-mail: ikeda.takashi@jaea.go.jp
専門: 計算科学, 特に水の化学物理



中村博樹

独日本原子力研究開発機構, システム計算科学センター・研究副主幹
E-mail: nakamura.hiroki@jaea.go.jp
専門: 計算物理学, 原子・分子のシミュレーション



松村大樹

独日本原子力研究開発機構, 量子ビーム応用研究部門・研究副主幹
E-mail: daijyu@spring8.or.jp
専門: X線吸収分光/触媒反応の時間分解観測

Cs adsorption mechanism on clay minerals based on material sciences using synchrotron radiation and first principle calculation

Tsuyoshi YAITA	Quantum Beam Science Center, Japan Atomic Energy Agency, 1-1-1 Kouto, Syo-cho, Sayo-gun, Hyogo 679-5148
Toru KOBAYASHI	Quantum Beam Science Center, Japan Atomic Energy Agency, 1-1-1 Kouto, Syo-cho, Sayo-gun, Hyogo 679-5148
Takashi IKEDA	Quantum Beam Science Center, Japan Atomic Energy Agency, 1-1-1 Kouto, Syo-cho, Sayo-gun, Hyogo 679-5148
Daiju MATSUMURA	Quantum Beam Science Center, Japan Atomic Energy Agency, 1-1-1 Kouto, Syo-cho, Sayo-gun, Hyogo 679-5148
Masahiko MACHIDA	Center for Computational Science & e-Systems, Japan Atomic Energy Agency, Kashiwanoha Campus 148-4, 178-4 Wakamurasaki, Kashiwa-shi, Chiba 277-0871
Masahiko OKUMURA	Center for Computational Science & e-Systems, Japan Atomic Energy Agency, Kashiwanoha Campus 148-4, 178-4 Wakamurasaki, Kashiwa-shi, Chiba 277-0871
Hiroki NAKAMURA	Center for Computational Science & e-Systems, Japan Atomic Energy Agency, Kashiwanoha Campus 148-4, 178-4 Wakamurasaki, Kashiwa-shi, Chiba 277-0871

Abstract The radioactive Cs released from Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident is one of the important sources to increase air dose rate in environment, and thus the local and Japanese governments are still promoting the decontamination project in the contaminated area in Fukushima. On this backgrounds, in this study, "the comprehensive researches", i.e., the elucidation of Cs speciation through the structural and electronic structural studies in clay minerals for supporting to develop the promising volume reduction methods of soil wastes (we will not touch the chemical treatment, wet classification, incineration, and alkaline fusion methods in this article) and the evaluation of Cs stability in soil wastes over mid- to long-term period, and the field investigation for elucidation of seasonal variation of bottom soil of agricultural reservoir in litate village on considering the features of local soil in Fukushima, have been performed. In this article, we introduce a part of the results obtaining by the synchrotron based X-ray analysis and the first principle molecular dynamics simulation methods.