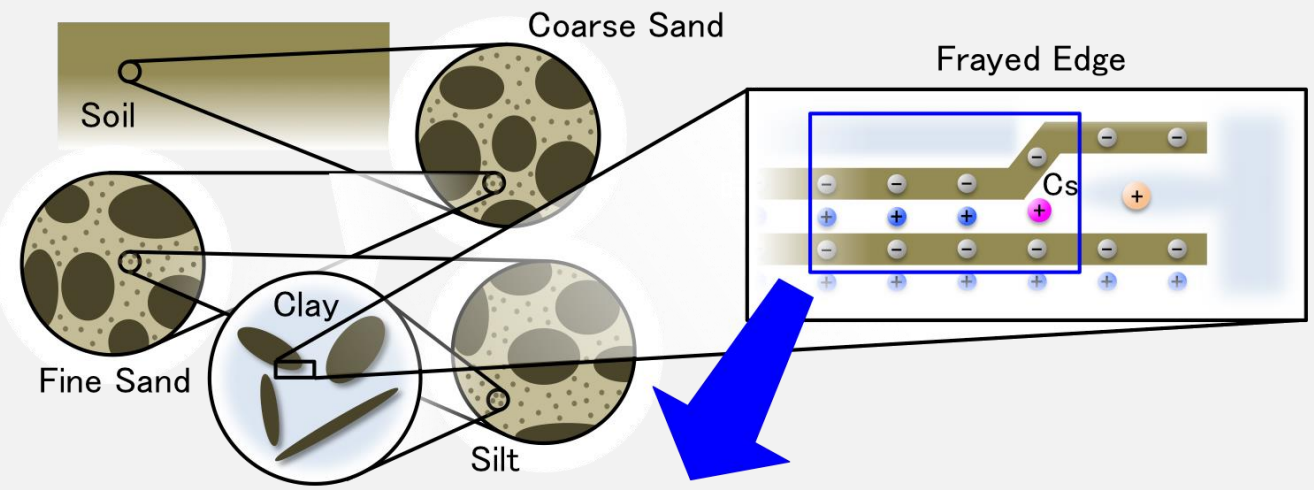
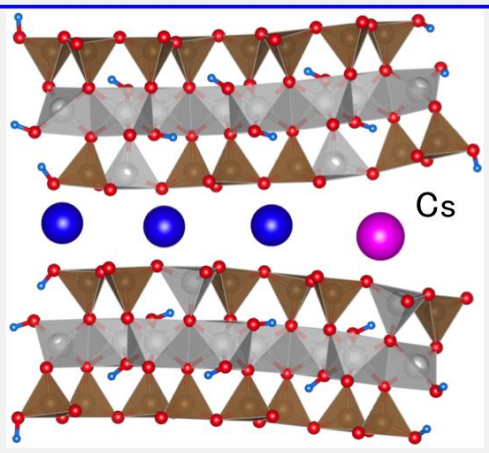
Computational Science & Engineering

計算科学技術部会　ニュースレター　第 20 号
AESJ-CSED　NEWSLETTER (No.20)
May 2013





Frayed Edge (Numerical Model)

日本原子力学会 計算科学技術部会 ニュースレター 第 20 号

2013 年 5 月

1. 巻頭言

原子力安全基盤機構 堀田 亮年 副部会長 1

2. 2013 年春の年会・計算科学技術部会全体会議開催報告 3

3. 2013 年春の年会・計算科学技術部会一般セッション開催報告 6

4. 2013 年春の年会・計算科学技術部会企画セッション開催報告 8

5. 一言一語 福島環境修復に向けた計算科学技術：
セシウム汚染廃棄土壌減容のための第一原理計算 10

日本原子力研究開発機構 奥村 雅彦他

6. 年間行事予定 24

7. 編集後記 25

表紙図提供： 日本原子力研究開発機構　奥村　雅彦様

「雲母様鉱物のほつれたエッジのモデリングと第一原理計算による吸着様態解析」

日本原子力研究開発機構は、放射性セシウムを不可逆的に吸着すると予想されてきた雲母様鉱物のほつれたエッジをモデル化し、ほつれたエッジが放射性セシウムを吸着する事を第一原理計算を用いて世界で初めて示すことに成功しました。今後は、吸着の詳細な機構を明らかにする事で、福島の環境復旧に役立つと期待されます。

巻頭言

「解析者としての責任」

原子力安全基盤機構　堀田 亮年

福島第一原子力発電所の事故以来、地震、津波などの自然災害、テロに対する想定の甘さが指摘され、原子力のように大きなリスクを内蔵する巨大技術を預かるものとしての我々の資質に疑義の目が向けられています。政府の事故調査・検証委員会によって、東電が試算により高さ15メートルを超える津波の遡上を予測していたことが明らかとされ、世間は「想定外の津波」としてきた主張が崩れたとして批判を強めました。一方で、研究者達が、貞観津波の高さ調査に基づき2008年に同原子力発電所の想定津波の高さを見直すよう迫っていた事実については、これほどの言い方はされませんでした。恐らくは、当事者組織によって解析結果が公に出されたからには、組織としての相応の議論と判断があって然るべきという見方があるからでしょうか。

この例だけでなく、シビアアクシデントの専門家による解析結果がCG化され、何度もオンエアされ、専門家がここまでいうからには現実がそうであったかのような印象を人々に与えたという例もありました。私達は、現実の炉内状況は遥かに複雑だと思っていますので、人々がこれほどまでにシミュレーション結果を信じたことを驚くと共に、シミュレーション結果を公に出す事の社会的影響の大きさを感じました。別の場面では、我々が示した解析結果が新聞などにおいて一部のみがクローズアップされ、本来の趣旨とは異なる受け止められ方をされた例も散見されました。

以上の逸話に共通していることは、シミュレーション結果は、もはや限られた専門家が占有を許される特別な情報ではなく、マスメディアなどが写真などと並んで利用すべき材料となっているということです。それは、福島第一原子力発電所の事故によって否応無しにもたらされた環境であり、我々がシミュレーション結果を露出する場合、どのような人によって、どのように受け止められるか、どのように使われるかということを、以前にも増して認識しておく必要があります。マスメディアの要請を受けて、解析結果をビジュアルに加工する技術に注力するだけでなく、それぞれの状況に応じて結果がどれだけ信頼できるかを、できるだけ正確かつ分かり易く説明する努力が必要です。

シミュレーションに基づいて何らかの意思決定がなされる場合、こうした情報が十分に伝わらないとすれば由々しき問題です。専門家の間では十分に議論されているからよいという曖昧な説明は到底受け入れられるものではなく、我々が信頼を失った状態が続く限り、本格的除染や廃炉もままならず、福島地方の復旧すら遅れることになります。それはシミュレーション解析者の責任なのか、それとも意思決定者の責任なのか。いずれにしても、外部からみれば、関係者の間ではきちんと意思疎通を取って適切な判断がなされたようには見えないので、関係者全員に非難が向くことになります。

解析者は、シミュレーションの難しさや規模の大きさについて語るときは饒舌ですが、信頼性の議論になると口が重くなる傾向があります。それは、実現象との比較に要する努力が膨大であり、かつそのための論理が意思決定者と共有されていないことが多いため、その説明を解析者のみが負う事が困難であるためです。現在、我々は、シミュレーションの信頼性の論理を“検証と妥当性確認（Verification & Validation：V&V）という枠組みによって形式化しようと提案しています。この活動は、当部会が牽引役となっていますが、これは様々な分野の解析者が集う場として必然的なことと思います。これまで、このような議論は熱流動や炉物理の分野のみでおこなわれ、他の分野、例えば燃料材料やシビアアクシデントでは厳格な不確かさの議論は馴染まないという意見が根強いと感じています。しかし、計算機によって数値を求め、それを安全基準と比較し保守的というのであれば、少なくともどの程度の確信をもってそのようにいえるのかを説明することは、解析者として自己を尊重するためにも最低限必要なことではないでしょうか。

この記事を執筆している際に、立川断層帯の掘削調査で、地下に埋まった劣化したコンクリートらしき物体を断層と見誤ったとされる専門家がその資質を問われるニュースが流されました。このような難しい判断を迫られる専門家の立場は非常に厳しいものです。本来は確信度や不確かさという観点が同時に判断材料とされるべき分野においても、そうしたことも含めて一部の専門家に対して判断を一任する状況があちらこちらに存在します。リスクを社会が共有するには、不確かさに対する議論を避けては通れません。“検証と妥当性確認”の論理を確立し、福島において痛い教訓を得た我々が発信していくことは、このような状況において非常に貴重なものであると信じています。

以上

2013 年春の年会・計算科学技術部会全体会議

開催報告

1. 日時:2013年3月28日(木) 12:00～13:00

2. 場所:近畿大学東大阪キャンパス21号館424室(日本原子力学会2013年「春の年会」O会場)

3. 議事次第

第10回部会賞表彰式

1)部会賞表彰

全体会議

1)部会長挨拶

2)小委員会活動報告と次年度活動計画

a. 総務小委員会

b. 企画小委員会

c. 広報小委員会

d. 出版・編集小委員会

e. 経理小委員会

3)次期役員選出

4)部会講演会

5)次期部会長挨拶

4. 議事概要および決定事項(敬称略)

(1)第10回部会賞表彰式

1)部会賞表彰

中島部会長から部会表彰の趣旨説明が行われ、部会賞表彰が行われた。

受賞者は以下の 7 名 8 件である。

部会功績賞　笠原　文雄　氏　((独)原子力安全基盤機構)

部会業績賞　越塚　誠一　氏　(東京大学大学院)

部会業績賞　大島　宏之　氏（日本原子力研究開発機構）

部会 CG 賞　中瀬　正彦　氏（東京工業大学）

部会 CG 賞　宮村　浩子　氏（日本原子力研究開発機構）

部会奨励賞　櫛田　慶幸　氏（日本原子力研究開発機構）

部会学生優秀講演賞　中瀬　正彦　氏（東京工業大学）

部会学生優秀講演賞　恒吉　達矢　氏（名古屋大学大学院工学研究科）

(2)全体会議

0)開会

西田総務小委員長の司会により全体会議が開始された。

1)部会長挨拶

中島部会長より開会の挨拶が行われた。

2)小委員会活動報告と次年度活動計画

a. 総務

西田総務委員長より、平成24年度活動報告および平成25年度活動計画が説明された。

b. 企画

山本企画委員長より、平成24年度活動報告および平成25年度活動計画が説明された。

c. 広報

巽広報委員長より、平成24年度活動報告および平成25年度活動計画が説明された。

d. 出版・編集

町田出版・編集委員長より、平成24年度活動報告および平成25年度活動計画が説明された。

e. 経理

堀田経理委員長より、平成24年度活動報告および平成25年度活動計画が説明された。

以上の各小委員会の活動計画が承認された。

3)次期役員選出

中島部会長より、平成25年度の部会役員候補が紹介され、全体会議参加者により承認された。

部会長および副部会長は以下の通り:

部会長　　越塚 誠一　東京大学

副部会長　山本 章夫　名古屋大学

副部会長　堀田 亮年　原子力安全基盤機構

副部会長　奥田 洋司　東京大学

副部会長　中島 憲宏　日本原子力研究開発機構

各小委員会委員長は以下の通り:

総務小委員会　西田 明美　日本原子力研究開発機構

企画小委員会　堀田 亮年　原子力安全基盤機構

広報小委員会　巽 雅洋　　原子燃料工業㈱

出版・編集小委員会　町田 昌彦　日本原子力研究開発機構

経理小委員会　秋葉 博　アライドエンジニアリング

表彰小委員会　越塚 誠一　　東京大学

部会等運営委員会　堀田 亮年　原子力安全基盤機構

学会事故調委員　中島 憲宏　　日本原子力研究開発機構越

なお、各小委員会の委員構成は、各委員長に委ねられる。

4)次期部会長挨拶

越塚次期部会長より挨拶が行われた。

5)西田総務委員長により、全体会議閉会の言葉があった。

以上

2013 年春の年会・計算科学技術部会一般セッション

開催報告

◆ 日時：2013 年 3 月 28 日(木)　9:50～10:55　O 会場

座長：東大　笠原先生

O22 1/f 揺らぎの媒質中での中性子飛程長サンプリング

(JAEA) ○植木太郎

巨視的断面積の変動が非整数ブラウン運動モデルで記述される媒質について、デルタ追跡法を適用し、中性子飛程長分布の指数法則からのズレが、負相関の時は小さく、正相関の時に大きくなることを確認した。

O23 T 字合流配管の温度ゆらぎ現象の数値解析 LES Dynamic SGS における温度場の差分スキームの影響

(INSS) ○中村　晶、歌野原陽一、三好弘二

高低温水が合流する T 字配管では、熱疲労によるき裂発生が懸念される。温度差・配管形状・流速比などの状態に応じて疲労評価を行うためには、配管に生じる温度変動を予測する必要がある。LES を用いた熱流動数値解析はその手段の一つであるが、温度場の差分スキームによっては評価精度に影響があるため、その影響を調べた。

O24 デブリベッドのセルフ・レベリング挙動評価手法の開発

(JAEA) ○田上浩孝、飛田吉春、(九大) 郭　連城、張　　斌、守田幸路

ナトリウム冷却高速増殖炉(SFR)の ATWS による炉心損傷事故(CDA)におけるデブリベッドの冷却性に大きな影響を与えるセルフ・レベリング現象をオイラー方程式系で評価する手法のアルゴリズムを開発し、模擬試験による検証解析を実施した。

O25 Numerical Simulation of Bubbling Fluidized Bed using a CFD-DEM Hybrid Code

(Kyushu Univ.) ○Lian Cheng Guo, Koji Morita, (JAEA) Hirotaka Tagami, Yoshiharu Tobita

A hybrid method for bubbling fluidized bed analysis is developed by coupling the multi-fluid model of SIMMER-III with the discrete element method (DEM). Numerical simulations of a typical system of Geldart's group B particles show reasonable agreements with corresponding

experimental results.

◆ 日時：2013 年 3 月 28 日(木)　10:55～12:00　O 会場

座長：日立　光安様

O26 教育用 FBR プラント設計プログラム FP-Design の開発

(東大) ○笠原直人、(FBR 高等研) 高橋忠男

FBR プラントは、複数の学術領域にわたる要素技術が結合して構成されている複雑なシステムである。その全体を理解した上でバランスのとれたプラント設計を行える俯瞰力を養うため、プラント全体を一元的に設計できるプログラム FP-Design を開発し、学生教育への活用を開始した。

O27 地震ハザード評価の高度化のための地震動生成法

(JAEA) ○西田明美、(大成建設) 五十嵐さやか、坂本成弘、(東京都市大) 村松　健、

(東大) 高田毅士

確率論的地震リスク評価手法の高度化を目的として、対象サイトの地震ハザードと調和し、震源特性の違いが認識可能な地震動群を生成する手法を提案し、その震源特性の傾向を分析した。

O28 組立構造解析手法における部品結合技法

(JAEA) ○中島憲宏、西田明美、鈴木喜雄、川上義明、岡田達夫

有限要素解析技術を利用して、原子力発電施設のような大型組立構造物の解析をするために、入力データの作成を効率化する技術として、部品毎に有限要素分割されたデータを結合する技法を開発した。連続体とみなせる大型組立構造物の有限要素解析に適用する一方、大型組立構造物の有限要素解析技術を利用した解析技術に今後適用していく。

O29 非構造格子におけるハイブリッド並列プログラミングの最適化行列格納形式、ブロッキング、オーダリングの効果

(東大) ○奥田洋司

京をはじめ、近年の計算機アーキテクチャにおいては、階層的メモリやネットワーク構造に配慮した実装が必須となっている。本講演では、非構造格子の代表的な解法である有限要素法における、ハイブリッドプログラミングの留意点、実効性能に対する効果について、京ないしは東京大学の FX10 での単体ノード性能評価に基づき発表する。

2013 年春の年会・計算科学技術部会企画セッション

開催報告

◆ 「モデリング・シミュレーションの高度化」

日時：2013 年 3 月 28 日(木)　13:00～14:30　O 会場

座長：堀田亮年（JNES）

- 我が国における国産コード開発プロジェクトの紹介　松本昌昭（三菱総研）
- 国産コード開発におけるV&V　岡本孝司（東大）
- V&V の適用と実施の国際動向について　笠原文雄（JNES）

我が国における国産コード開発プロジェクトの紹介

松本昌昭（三菱総研）

平成24年度発電用原子炉等安全対策高度化技術基盤整備事業のひとつであるモデリング・シミュレーションの高度化について紹介された。プロジェクトの背景、開発対象の検討、開発、活用に関する検討が行われた。

プロジェクトの背景では、本研究開発が必要となった背景が示され、目的や実施内容、今年度の具体的な実施計画、開発委員会の体制等の最新の状況の報告がなされた。開発対象の検討では、国内外の現状を調査しPRODASに登録された国産コードの利用状況の詳細な報告がなされた。また、国外のコードの利用が選択される理由を分析した結果が示された。開発、活用に関する検討では、国内のソフトウェアは開発されても利用が進まないことから、米国での開発、活用を支援する体制を紹介すると共に、国内での開発、活用の拡大に向けた課題が議論された。

V&V のための精度保証付実験データ

岡本孝司（東大）

原子力安全解析コードの状況を確認し、V&Vのための精度保証付実験データのニーズについて議論した。V&V標準化、国産独自コード開発、V&V用精度保証実験データベースの拡充を課題として挙げ、それぞれの動向についての紹介がなされた。

V&V標準化では日本国内だけでなく世界中での動向や、原子力分野に限らず産業界での動向も事例を挙げて紹介された。国産独自コード開発については、基盤技術・知識集約としてのモデリング・シミュレーション技術、炉物理解析コード、安全解析コードが紹介された。また、情報基盤の構築として、V&Vデータベースの構築への取り組みも紹介された。

V&V の適用と実施の国際動向について

笠原文雄（JNES）

ASME2012 Verification & Validation Symposiumと、米国での火災解析モデルのV&V(NUREG-1824)について紹介された。ASME2012 Verification & Validation Symposiumは米国機会学会(ASME)の主催で、2012年5月米国ラスベガスで開催され、約200名の参加があった。会合全体としては、V&V標準に基づいたモデル検証、解検証（verification）を行い、その後試験との比較によるシミュレーションの妥当性確認(validation)を実施して解析コードの信頼性を示す方法論はかなり定着していると感じられた。パネルセッションでは、JAEAの鈴木氏からV&Vへの取り組みについての報告が行われた。

米国での火災解析モデルのV&V(NUREG-1824)は、米国原子力規制委員会（NRC）と米国電力研究所（EPRI)との共著で2007年5月に発表された。リスク情報に基づくパフォーマンスベースの火災防護の裏付けを行うために、火災の結果を確実に予測可能な検証及び実証（V&V）済みの火災モデルが必要であるということからまとめられ、五つの火災モデルの検証と実証（V&V）結果をとりまとめたものとなっている。

一言一語

福島環境修復に向けた計算科学技術：

セシウム汚染廃棄土壌減容のための第一原理計算

日本原子力研究開発機構

奥村 雅彦　中村 博樹　町田 昌彦

Ⅰ． 緒言

2011 年 3 月 11 日に発生した東北地方太平洋沖地震に伴う東京電力福島第一原子力発電所事故[1]により、環境中に大量の放射性物質が放出され[2,3]、その大半は海洋上に降下したが地表へも大量に降着した[2-5]。放射性物質による地表の汚染については、文部科学省による広範囲の土壌汚染地図[6]や茨城大学・日本大学による東日本における核種別の汚染地図[7]が作成されており、関東から東北にかけての放射性物質の分布は広範囲に把握されている。この地表に降り注いだ放射性物質による土壌汚染は、住民の避難や農作物による放射性物質の吸収など、生活への直接的影響が大きいため、除染による早期の環境修復が求められている。

地表に降下した放射性物質による環境汚染については、チェルノブイリ原子力発電所事故後に理解が進み、幾つかの除染方法が提案されたが、除染や廃炉によって生み出される大量の放射性廃棄物の処理方法については、未だ確立した手法は存在しない[7]。つまり、環境中に放射性物質が放出された場合の環境復旧の効果的手段については、手探りの状態であるといえる。しかしながら、今回の事故に起因する汚染土壌の除染作業（表土の除去）に伴う除去土壌が膨大な量となることは避けられない事態となっており、早急に効果的手段を確立する必要がある。環境省の試算によると、除染に伴う除去土壌の推定量は最大で約 2,800 万 m^3 にものぼると見られている[8]（簡単な例えでは、最大で東京ドーム約 33 個分にも上ると試算される）。 こうした状況を鑑みると、大量の放射性物質を伴った除去土壌の処理は、福島第一原子力発電所事故からの復旧において、解決すべき最も大きな課題の一つであると言える。

除去土壌処理を困難としている最大の要因は、その量の多さにある。そこで、除去土壌から微量の放射性物質を分離し、放射性物質が含まれる物質の体積を減らして処理する事が望まれるが、その標準手法は未だ確立していない。当然の如く、効率的・経済的な放射性物質の分離方法の創出が望まれるが、そのためにはまず、土壌汚染についての物理的・化学的な理解が必要不可欠であることが分かる。

放射性物質による土壌汚染については、大気圏内での米ソによる核実験、そしてチェルノブイリ原子力発電所

の事故に関連し、観測・実験を中心に研究が進んでおり、土壌に吸着された放射性物質の中でも、中・長期的な影響が最も大きいのが ^{137}Cs（半減期約 30 年）であることが分かっている[7]。しかし、土壌における ^{137}Cs の振る舞いに関しては、後に述べるように、観測・実験結果やその解釈が矛盾するなど、未だ完全な理解には至っていない。その主な理由は、^{137}Cs の土壌への吸着形態についての原子・分子レベルでの理解が欠如しているためと考えられる。なぜなら、現在の観測・実験技術では、^{137}Cs がどのように土壌へ吸着しているかをそのレベルで直接捉えることは出来ないからである。つまり、^{137}Cs の土壌への吸着形態についてより深く理解するためには、観測・実験と相補的な手法による解析が必要であると考えられる。

そこで、本研究では、土壌汚染及び除染研究において解決されるべき課題である原子・分子レベルの Cs の土壌への吸着形態について、数値シミュレーションにより新しい知見を得る事を目的とした。研究手法としては、上記観点に立ち、第一原理計算（密度汎関数法）を用いて、放射性核種と土壌との化学的結合形態を原子・分子レベルから明らかにする。具体的には、土壌成分の中で最も放射性物質を強く吸着することが分かっている粘土鉱物、特に、雲母様鉱物への Cs の吸着についてのシミュレーションを行い、その化学的形態を理解する上で最も基本となる電子構造の計算を通して放射性物質の吸着形態を明らかにする。

Ⅱ．背景

1.粘土鉱物における Cs の吸着と脱離

地表に降着した放射性核種は、その後、地下へ向かって浸透していくが、セシウムの場合、そのほとんどが地表近くに留まる事が知られており[7]、今回の事故による ^{137}Cs も地表近くに留まっている事が確認されている[9,10]。この性質のおかげで ^{137}Cs によって地下水が汚染される可能性が非常に低くなる[7]一方、人間への放射線の直接的な影響や農作物による放射性物質の吸収の影響が大きくなってしまう。この、地表近くの土壌によって ^{137}Cs が保持される原因となるのが、土壌に含まれる粘土鉱物である。土壌を構成する粒子は、その粒径から、粗砂（coarse sand、2.0～0.2mm）、細砂（fine sand、0.2～0.02mm）、シルト（0.02～0.002mm）、粘土（0.002mm 以下）と分けられるが[11]（図 1 参照）、これらのうちで粘土が単位重さあたりの Cs 吸着量が最も多い事がわかっている[12, 13, 14]。さらに、その粘土鉱物の中でも、特に 2:1 型フィロ珪酸塩鉱物[11]に吸着しやすい事もわかっている[15, 16, 17]。この鉱物は、Si で構成される四面体シートが Al などで構成される八面体シートを挟んだ 2:1 型の単位層を基本とする層状物質で、八面体シートの構造の違い（2 八面体と 3 八面体）により、大きく分けて 2 種類存在する事が知られている[11]（図 2）。これらの物質の特徴は、四面体シートの Si が Al に置換される事によって 2:1 型の単位層が負に帯電し、層間に陽イオンを挟み込む事によって多重の層間化合物を構成する（図 2 参照）。この性質により、2:1 型フィロ珪酸塩鉱物は層間の陽イオンとして放射性セシウムを取り込んでしまうのである。尚、この 2:1 型フィロ珪酸塩鉱物には、雲母類の他に、層間に水を含むスメクタイト、バーミキュライトなどの種類があるが[14]、最も強固に Cs を吸着するのが白雲母などの無水の雲母様鉱物であることがわかっているため[18]、本研究では放射性セシウムを吸着した無水の雲母様鉱物のエネルギー的安定性についてイオ

ン交換前後のエネルギー変化の観点から議論する。

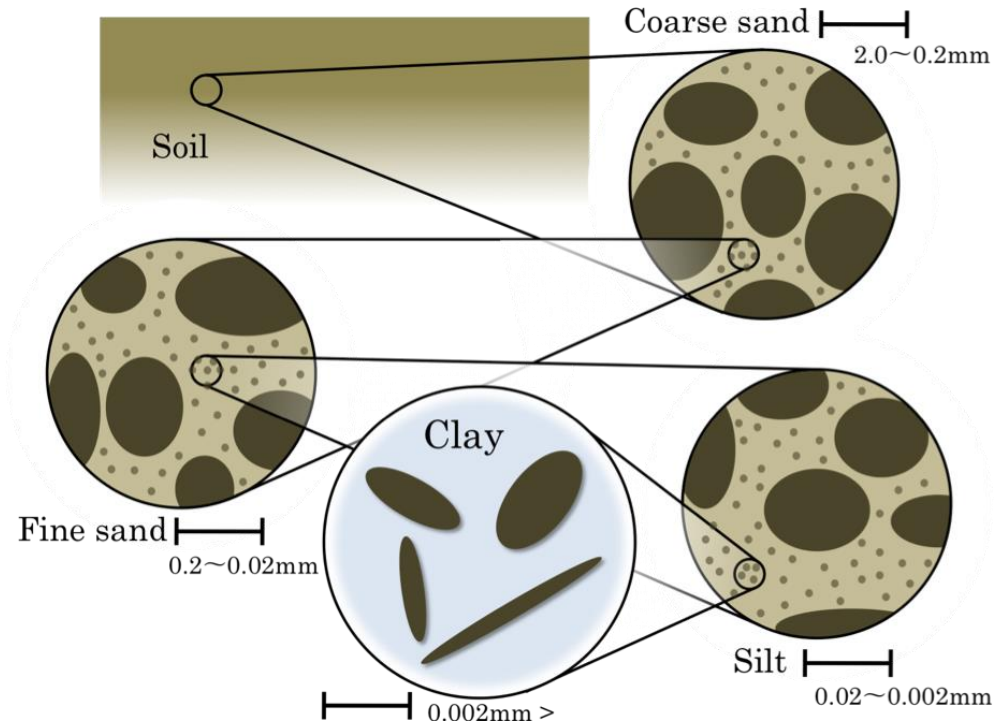


図 1. 土壌の構成

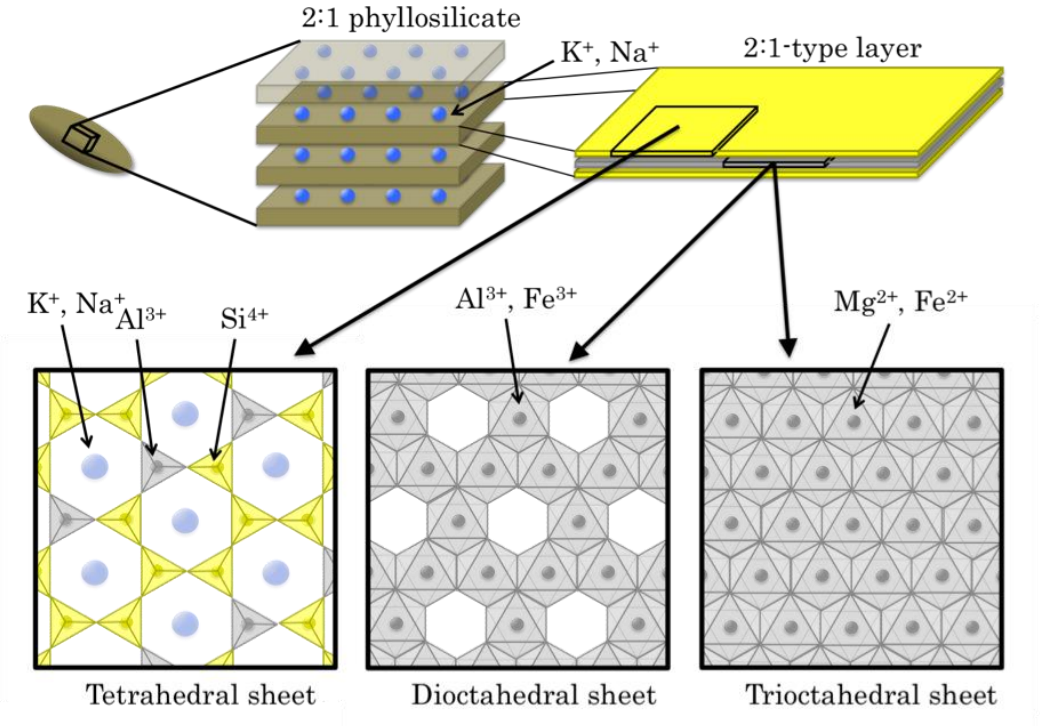


図 2. 2:1 フィロ珪酸塩

放射性セシウムの雲母様鉱物への吸着においては、時間的に早い吸着と遅い吸着がある事が知られている[19]。これは、雲母様鉱物には違う性質を持った複数の吸着サイトが存在する事を示唆しており、その他の様々な実験結果と併せて、雲母様鉱物は土壌中で図 3 のような構造形態を取っていると考えられている[17]。このうち、(a)平面サイト(planar site)と(b)エッジサイト(edge site)は「標準交換サイト(regular exchange site)」と呼ばれ、これらの部分に放射性セシウムが吸着しても、イオン交換によって容易に取り除く事が可能である。これらの粘土鉱物の表面に存在する標準交換サイト以外にも、(c)水の入った層間サイト(hydrated interlayer site)には水和したイオンが入り込む事が出来る。また、以下で詳しく説明するが、(d)ほつれたエッジサイト(frayed edge site)は、放射性セシウムイオンを取り込む事によって放射性セシウムを挟み込んだ(e)層間サイトに変化すると考えられている。雲母様鉱物は、このように複雑かつ豊かな構造を、土壌中にて有していると考えられており、この構造のバラエティこそが放射性セシウムの吸着速度に差をもたらしていると考えられている[17]。まとめると、まず、早い吸着が標準交換サイト(図 3 の(a)、(b))で起こり、そして、遅い吸着は、ほつれたエッジサイト(図 3 の(d))で起こっていると考えられている[17]。このうち、前者での吸着は可逆的、つまり、標準交換サイトに吸着した Cs はイオン交換などの方法で取り出す事が可能であることが分かっている[17]一方、ほつれたエッジサイトは、Cs イオンを選択的に取り込み構造の変化を伴うことから不可逆的で、イオン交換などの方法では吸着された Cs を取り出す事が困難であると考えられている[17]。実際、文献 19, 20 では、約 7 割が交換可能、約 3 割が交換不可能とされている。

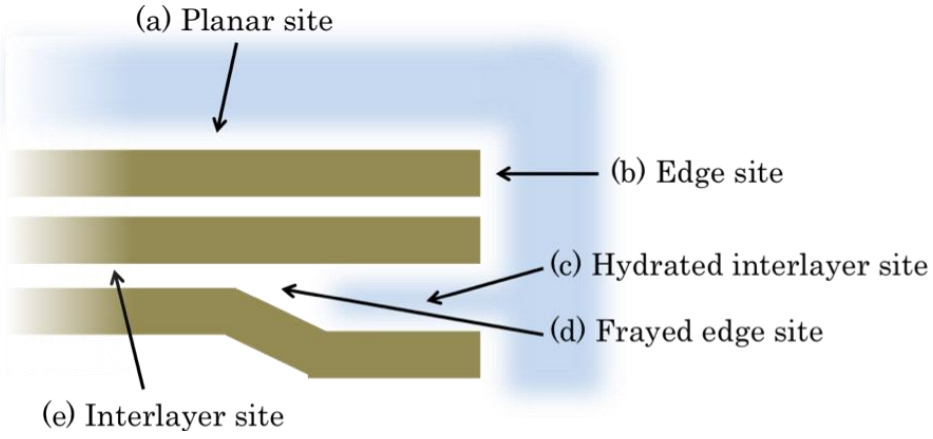


図 3. 雲母様鉱物の吸着サイト

では、ほつれたエッジサイトはどのように Cs を取り込み、それを交換不可能にするのであろうか。ほつれたエッジサイトとは、風化作用によって 2 つの層をつなぎ止めていた陽イオン(図 2 の K)がはぎ取られ、水和した 2 価の陽イオン(Mg^{2+}や Ca^{2+}など)と置き換わってしまい、珪酸塩層が開いてしまった層の根元の部分をさす(図 4 参照)。ここに水和 Cs イオンがやってきて、水から脱離してマイナスに帯電した部分に付着し、層が閉じてしまい、構造が安定化してしまうために Cs が取り出せなくなる、というシナリオが定説となっている(図 5)[17]。こうした雲母様鉱物の特徴的吸着様態は、様々な実験結果から予想され、十分に妥当な仮定であると考えられているが、ほ

つれたエッジサイトによる不可逆的な吸着機構の正当性については今も議論が続いている。特に、湖底における ^{137}Cs の再流動化現象 [21, 22, 23]の発現機構は、今も解決を見ていない [24]。この現象は、季節ごとに湖底の ^{137}Cs 濃度が振動する現象であり、その原因は、湖底の雲母様鉱物に吸着された ^{137}Cs が高濃度 NH_4^+によって溶出されたと考えられている [22,23]。しかし、その後の実験では NH_4^+の濃度が高すぎるとほつれたエッジサイトが閉じてしまい、^{137}Cs の溶出が抑制されると考えられる結果が得られており [24]、湖底のような NH_4^+の濃度が高くなる場所で ^{137}Cs の溶出が起こるか否かは、議論が続いている [24]。このように、ほつれたエッジサイトにおけるセシウムの吸脱着反応の詳細は未だ明確な理解に至っていない。

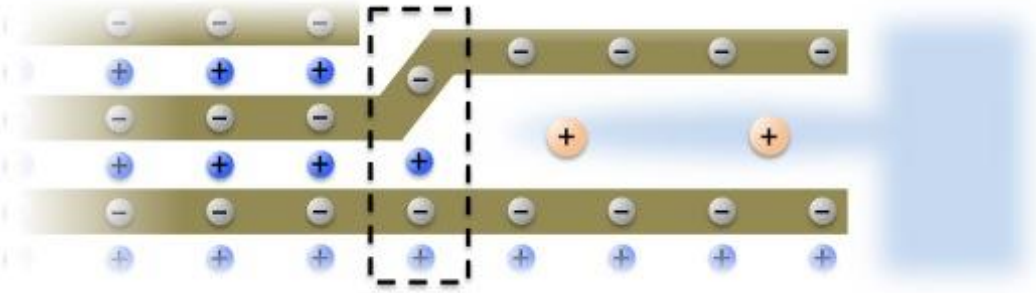


図 4. ほつれたエッジサイト

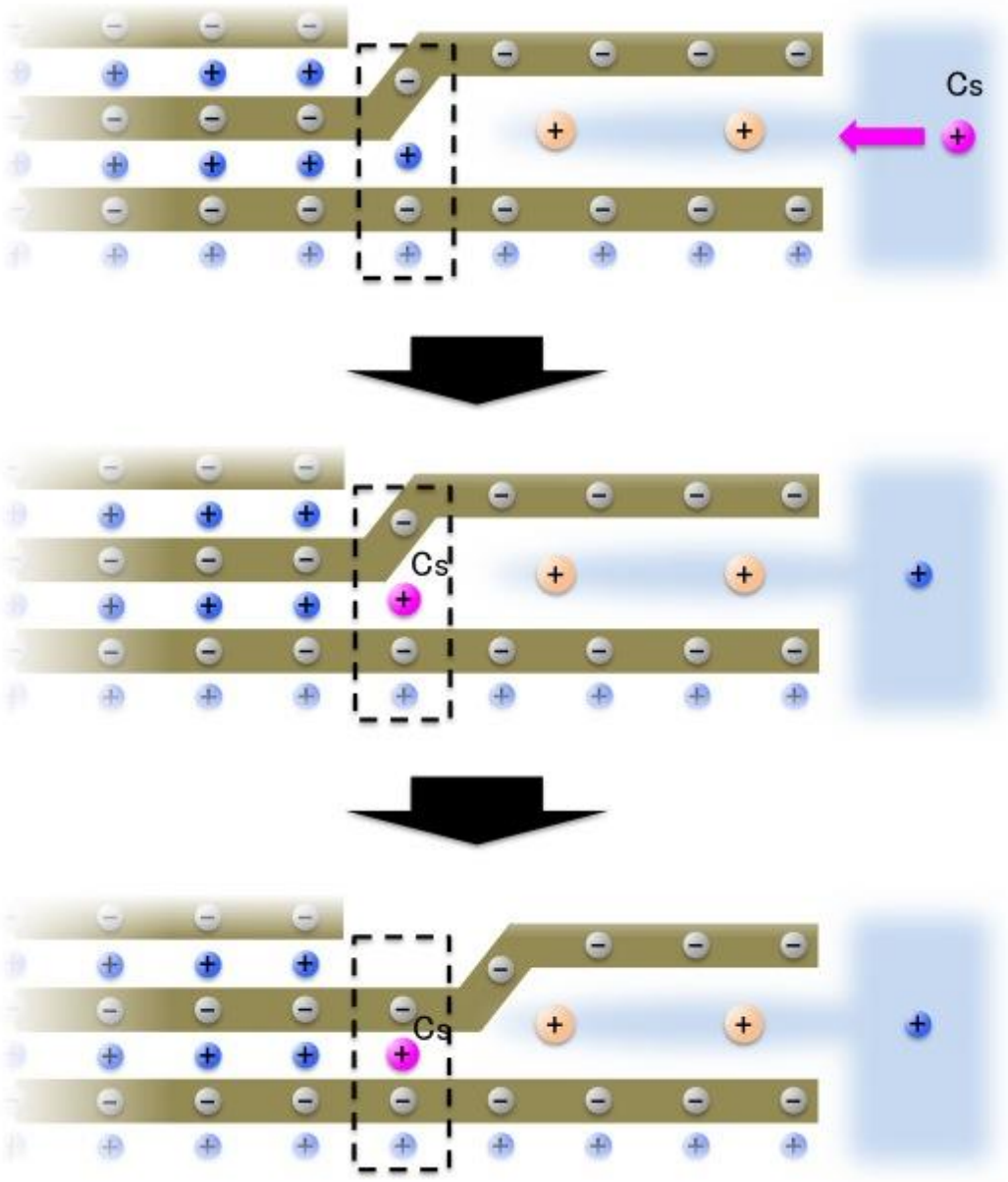


図 5. ほつれたエッジサイトにおける予想吸着過程

2.数値シミュレーション

このように、汚染土壌から ^{137}Cs を取り去るために必須な物理的・化学的理解はまだ十分とは言えないが、それは、前節にて記したように、^{137}Cs の土壌への吸着機構が原子・分子レベルではっきりと明らかとなっていないからである。特に、ほつれたエッジサイトでのそのレベルでの吸着安定性を定量的に知る事が必要であると考えられるが、実験結果だけからそれを明らかにする事は容易ではない。そこで、実験結果を補う情報が必要となるが、近年発達の著しい数値シミュレーションを用いれば、実験結果だけでは不足する、原子・分子レベルの情報を得る事ができると期待される。

数値シミュレーションは、計算機の性能やアルゴリズムの発達などにより、その適用範囲が急速に拡大している。

しかし、化学結合形態を理解する上で最も基本となる電子の量子効果を正確に取り入れた計算（密度汎関数法など）を用いた場合は、今でも取り扱い可能な原子数は多くはない。そのため、精密且つ現実的な数値シミュレーションを行うのは、現在の超並列スーパーコンピューターを持ってしても容易ではないという事態に至ってしまう。こうして、雲母様鉱物における放射性セシウムの吸着・脱離については、粘土鉱物の存在形態を簡略化したモデルから始め、知見を蓄積させた後、より現実に近いモデルの解析へと研究を進めることで現実の理解に到達できると考えられる。このような研究過程を経ることによって、現在の数値シミュレーションの限界を探りつつ、何が吸着・脱離過程に本質的に重要な働きをするのかを探索する。

そこで、本研究では、現実の複雑さを簡略化するが、本質を有するモデルとして、ほつれたエッジサイトのミニマムモデルを構築してイオン交換の数値シミュレーションを行い、イオン交換過程における未解明且つ最も基礎的な知見を得る事を目的とする [25,26]。つまり、本シミュレーションでは、実際に、雲母様鉱物のエッジで起こっている風化、即ち、ほつれを単純に層間の開きとしてモデル化し、開き具合とイオンの吸着・脱離過程を簡略化して、既存の元素であるカリウムとセシウムを交換してそのエネルギー差を評価する。水和したセシウムが脱水和し、カリウムを追い出した上で吸着して安定化するというダイナミクスを直接追跡することは不可能だが、始まりと終わりの状態のエネルギーを比較することで自然に進行する反応か進行しない反応かを見極めることとする。

以上の事情を踏まえ、本研究では、雲母様鉱物における Cs の原子レベルの存在様態を精密に調べるために、第一原理計算（密度汎関数法）を用いて数値シミュレーションを行う。第一原理計算手法は、静的な構造の解析に最も威力を発揮するため、動的な吸着過程は扱わないが、Cs 雲母様鉱物に吸着する前後の原子レベルでのエネルギーの安定性に焦点が当てられる。

Ⅲ. 評価方法

1.計算手法とパラメータ

本研究では、雲母類におけるイオン交換の可能性を評価するために、密度汎関数法（density functional theory, DFT）の商用パッケージである Vienna ab initio simulation package (VASP) [27,28]を用いて、様々なイオン間のイオン交換における組み合わせについて、交換前後のエネルギー差を計算する。計算に際しては、projector augmented-wave (PAW) [29,30] 法と一般化された密度勾配近似（generalized gradient approximation, GGA）[31]を用い、電子の波動関数の平面波展開のカットオフは 1,600 eV に設定した。ブリルアンゾーンのサンプリングは、これも計算の収束状況を見て、構造最適化においては、3×1×1 k 点グリッドを用いた。全ての計算において、全ての力が 0.01 eV/Åよりも小さくなるまで構造最適化を行った [25,26]。

2. ほつれたエッジのモデリング

本研究におけるほつれたエッジサイトモデルの構成方法を次に示す [25,26]（図 6 参照、VESTA[32]により描画）。

(A) 白雲母バルク結晶を用意し、一部分を切り取る。

(B) 切り取った一部分に対し、電気的に中性にするため、表面やエッジ部分については置換を行ったり酸素原子を添加したりする。

(C) 片方のエッジ部分のケイ素とアルミを固定し、逆側のエッジにある層間に一番近いシリコンを徐々に開いていく。ここで、元の層間距離を d_0、そこから開いた距離を Δd と表す。

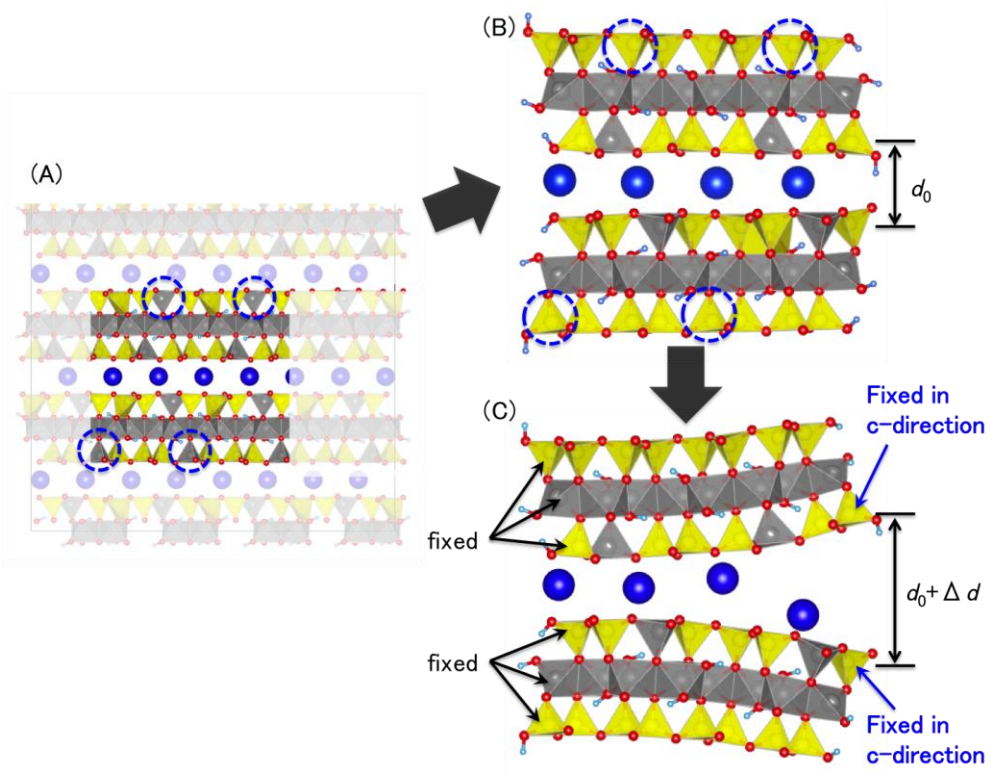


図 6. ほつれたエッジサイトのモデリング過程

3. ほつれたエッジでのイオン交換エネルギー評価

上記の手順に沿って構築されたほつれたエッジサイトの陽イオン層の 1 番右側の陽イオンが K^+の場合（muscovite(K)と表記）と Cs^+の場合（muscovite(Cs)と表記）について、それぞれ基底エネルギー$E(K{:}\Delta d)$と$E(Cs{:}\Delta d)$を各々、Δdの関数として密度汎関数法によって計算する。そして、以下のような水和したイオン（K^+_{aq} 、Cs^+_{aq}と表記）との交換

$$\text{muscovite(K)} + Cs^+_{aq} \rightarrow \text{muscovite(Cs)} + K^+_{aq}$$

を想定して、交換エネルギー$E(K, Cs^+_{aq}{:}\Delta d) = E(K{:}\Delta d)+E(Cs^+_{aq})$と $E(Cs, K^+_{aq}{:}\Delta d)= E(Cs{:}\Delta d)+ E(K^+_{aq})$を求める[25,26]。ここで、$E(A^+_{aq})$ (A = K/Cs)は、各イオンの水和ギプス自由エネルギーであるが、本研究では実験値（T = 298K にて、$E(K^+_{aq})$= -283.3 kJ/mol、$E(Cs^+_{aq})$= -292.0 kJ/mol と報告されている）を用いた[33,34]。得られた $E(K, Cs^+_{aq}{:}\Delta d)$と $E(Cs, K^+_{aq}{:}\Delta d)$を図 7 に示す。ただし、それらの値は $E(K, Cs^+_{aq}{:}\Delta d = 0)$を基準とした。

まず、図 7 において、$\Delta d = 0$～1Åの場合に注目する。すると、$E(K, Cs^+_{aq}{:}\Delta d = 0) < E(Cs, K^+_{aq}{:}\Delta d = 0)$であり、層間がある程度閉じた状態では、白雲母のカリウムと水和したセシウムの交換は起こりにくいことを示してい

る。これは、バルクの白雲母結晶内のカリウムをセシウムと交換した後のエネルギーが上昇することを示した結果[33]と整合する。これらの結果から、白雲母のセシウム吸着は自明な現象でなく、セシウム吸着のためには、閉じた層間構造から、何らかの構造上の変化が生じる必要があることを示唆している。

次に、Δdを増やしていくと、$\Delta d \geqq 1$ Åでエネルギーが逆転する(E(K, Cs^+_{aq}:Δd) > E(Cs, K^+_{aq}:Δd))ことが分かる(図 7)。これは、白雲母にほつれたエッジサイトができた場合に、白雲母内に存在するカリウムと水和セシウムイオンとのイオン交換、すなわち、セシウムの吸着が起こりやすくなることを示している。

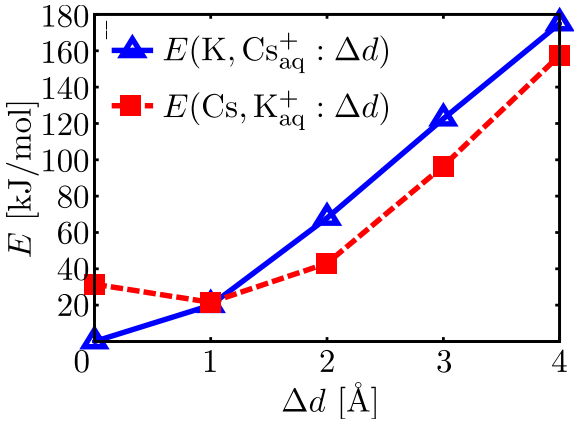


図 7. ほつれたエッジサイトにおける交換エネルギーE

4. ほつれたエッジサイトのセシウム吸着機構

本節では、ほつれたエッジサイトでのセシウム吸着機構について考察する[25,26]。まず、ほつれたエッジサイトに存在する陽イオン(K^+もしくは Cs^+)を図 6 の紙面に垂直な面上を移動させて、エネルギー表面 E($\boldsymbol{r}$:A,B^+_{aq}:Δd)=E($\boldsymbol{r}$:A:Δd)+E(B^+_{aq}) (A/B は K/Cs か Cs/K)を r の関数として求める。ここでは、$\Delta d = 0$ の場合と、$\Delta d > 0$ においてエネルギー差が最大になる Δd = 3 Åの場合を比較する。結果を図 8(a)、(c)、(e)、(g)に示す。ただし、エネルギーの基準を E(K,Cs^+_{aq}:Δd = 0)とした。図 8(a)と(c)を見ると、Δd = 0 では、E($\boldsymbol{r}$:K,Cs^+_{aq}:Δd)は E($\boldsymbol{r}$:Cs,K^+_{aq}:Δd)に比べてエネルギー極小値が低く、中央付近に向かって急速に値が減少している。一方、Δd = 3 Åの場合、E($\boldsymbol{r}$:K,Cs^+_{aq}:Δd)は E($\boldsymbol{r}$:Cs,K^+_{aq}:Δd)に比べてエネルギー極小値が高くなっている(図 8(e), (g))。これは、次のように理解できる。図 8(b), (d)に示したように、負に帯電した上下の 2:1 層からのポテンシャルの重ね合わせを考えると、層間距離が近い時には K^+も Cs^+も層の中間に極小点ができる。しかし、$\Delta d = 0$ の場合は、K^+にとって最適な層間距離であるため(図 8(b))、イオン半径の大きな Cs^+はポテンシャルの重ね合わせが不整合な状況になってしまう(図 8(d))。その一方、層間距離が開いた場合(Δd = 3 Å)は、イオン半径の小さな K^+に対するポテンシャルが、不整合となり、複数の極小点ができてしまうが(図 8(f))、イオン半径の大きな Cs^+は、上下の 2:1 層からのポテンシャルを重ね合わせても、極小点は一つであると考えられる(図 8(h))。つまり、Cs^+のイオン半径が K^+のそれよりも大きいことが、ほつれたエッジサイトにおけるセシウム吸着の本質的な原因であると言える。なお、図 8(e)のエネルギーの極小点は、実際の計算結果では 1 つであるが、こ

れは、開くと同時に隣の K^+が比較的上部にシフトするため(図 6(c))、その K^+からの遮蔽により上部の層由来の極小点が実効的に見えなくなったためであると考えられる。

以上の考察を簡単にまとめて、吸着機構を模式的に示したものが図 9 であり、K^+と Cs^+のイオン半径の違いがほつれたエッジサイトにおいて Cs^+が選択的に吸着する主要因である事が分かる。なお、本報告の詳細な内容は文献 25, 26 を参照されたい。

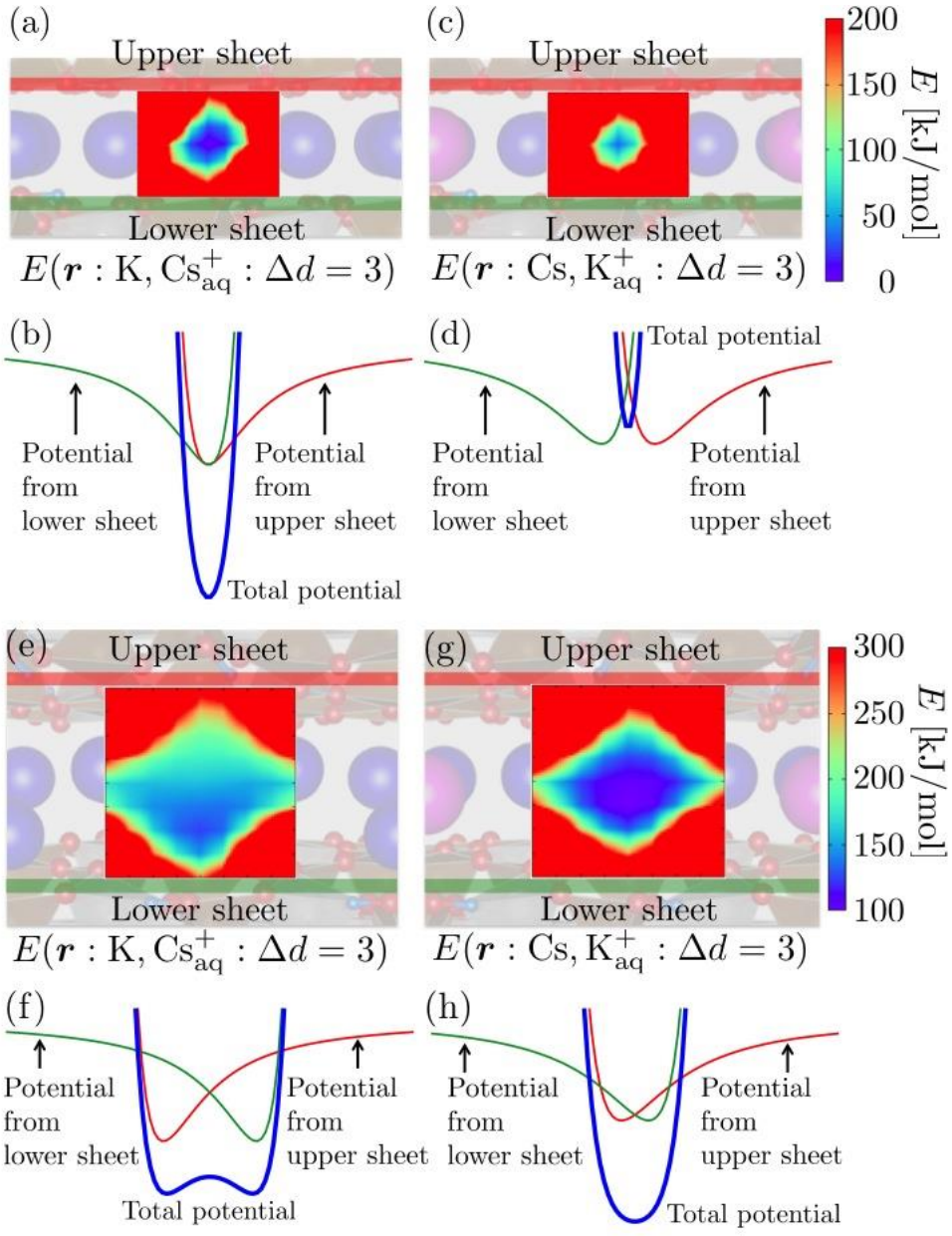


図 8. ほつれたエッジサイトにおけるエネルギー等曲面とポテンシャルによる解釈

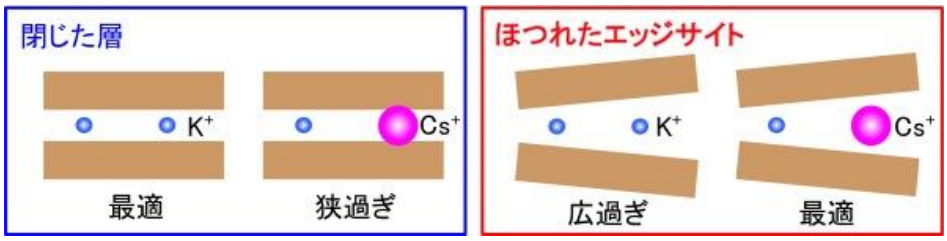


図 9. ほつれたエッジサイトにおけるセシウム吸着機構の模式図

Ⅳ. まとめ

本研究では、土壌中の鉱物の中で Cs の吸着・保持能力が最も高い雲母様鉱物におけるほつれたエッジサイトにおける Cs 吸着と脱離について、イオン交換におけるエネルギー変化を第一原理計算（密度汎関数法）によって評価した。その結果、以下の結論が得られた [25,26]。

A) ほつれたエッジサイトの開きがある一定値を超えるとカリウムよりセシウムが吸着した方がエネルギー的に安定となり、カリウム⇔セシウムのイオン交換が進行すると考えられる。

B) ほつれたエッジサイトでは、層間距離がセシウムイオンのイオン半径に適切な距離まで開く事によって、セシウムの吸着が起こる事が分かった。つまり、原子レベルの“ほつれ”が吸着の核心である事がわかった。

ただし、本研究で得られた結果は、ほつれたエッジサイトの簡略化された模型についての計算結果であり、本来は、真の表面やほつれたエッジの構造（原子・分子レベル）を観測した上で、その構造においてイオン交換を直接評価すべきであることを注意する。しかし、ほつれが開くにつれセシウムが安定化する等、説明が困難と考えられてきた実験結果を説明する事に成功しており、粘土鉱物における実際の吸着・脱離過程の本質を捉える事に成功していると考えられる。

謝　辞

本研究に際し、村松健、吉田善幸、大貫敏彦、河村雄行、山岸功、中尾淳、大西康夫各氏より多くのご教示をいただきました。ここに感謝致します。計算は全て原子力機構・システム計算科学センターの BX900 を用いて行いました。谷正之センター長を始めとする全てのスタッフの支援に感謝致します。また、計算に際し、（株）菱化システムの藤原敦志、森健人両氏より技術的支援をいただきました。両氏に感謝致します。最後に本研究は、原子力機構・福島技術本部による支援の下、行われました。技術本部の方々に感謝致します。また、廃棄土壌減容プロジェクトの支援に対して、リーダーの矢板毅氏を始めとするメンバー全員に感謝致します。

参考文献

1) 首相官邸, “原子力安全に関する IAEA 閣僚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 (2011).

2) M. Chino, H. Nakayama, H. Nagai *et al.*, H. Yamazawa, “Preliminary Estimation of Release Amounts of ^{131}I and ^{137}Cs Accidentally Discharged from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant into the Atmosphere”, *J. Nucl. Sci. Technol.*, **48**, 1129-1134 (2011).

3) A. Stohl, P. Seibert, G. Wotawa *et al.*, “Xenon-133 and caesium-137 releases into the atmosphere from the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant: determination of the source term, atmospheric dispersion, and deposition”, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, **11**, 28319-28394 (2011).

4) Y. Morino, T. Ohara, M. Nishizawa, “Atmospheric behavior, deposition, and budget of radioactive materials from the Fukushima Daiichi nuclear power plant in March 2011”, *Geophys. Res. Lett.*, **38**, L00G11 (2011).

5) T.J. Yasunari, A. Stohl, R.S. Hayano *et al.*, “Cesium-137 deposition and contamination of Japanese soils due to the Fukushima nuclear accident”, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, doi:10.1073/pnas.1112058108 (2011).

6) 文部科学省, 放射線量等分布マップ, http://ramap.jaea.go.jp/map/ (2011).

7) International Atomic Energy Agency, “Environmental consequences of the Chernobyl accident and their remediation: Twenty years of experience”, http://www-pub.iaea.org/mtcd/publications/pdf/pub1239_web.pdf (2006).

8) 環境省: “第 3 回環境回復検討会・資料 5”, http://www.env.go.jp/jishin/rmp/conf/03-mat2.pdf

9) S. Uchida, K. Tagami, N. Ishii, “Characteristics of radionuclide behavior in the soil environment”, *Journal of the Atomic Energy Society of Japan*, **53**[9] 623-627 (2011), [in Japanese].

10) N. Nogawa, K. Hashimoto, K. Tanoi *et al.*, “Extraction of ^{137}Cs, ^{134}Cs, and ^{131}I from radioactive soils in Fukushima”, *Radioisotopes* **60**, 311-315 (2011), [in Japanese].

11) 梅宮善章, 妹尾啓史, 松中照夫, 後藤逸男, 筒木潔, 犬伏和之, 安西徹郎, “土壌学概論”, 朝倉書店 (2001).

12) F.R. Livens, M.S. Baxter, “Particle size and radionuclide levels in some west Cumbrian soils”, *Sci. Total Environ.*, **70**, 1-17 (1988).

13) P. Spezzano, “Distribution of pre- and post-Chernobyl rasdiocaesium with particle size fractions

of soils", *J. Environ. Radioactiv.* **83**, 117-127 (2005).

14) H. Tsukada, A. Takeda, S. Hisamatsu, *et al.*, "Concentration and specific activity of fallout 137Cs in extracted and particle-size fractions of cultivated soils", *J. Environ. Radioactiv.* **99**, 875-881 (2008).

15) B.L. Sawhney, "Selective sorption and fixation of cations by clay minerals: a review", *Clays Clay Miner.*, **20**, 93-100 (1972).

16) R.M. Cornell, "Adsorption of cesium on minerals: a review", *J. Radioanal. Nuclear Chem.*, **171**, 483-500 (1993).

17) B. Delvaux, N. Kruyts, E. Maes, *et al.*, "Fate of Radiocesium in Soil and Rhizosphere", *Trace Elements in the Rhizosphere*, G.R. Gobran, W.W. Wenzel, E. Lombi, CRC Press, Florida, 61-91, (2001).

18) C.W. Francis, F.S. Brinkley, "Preferential adsorption of 137Cs to micaceous minerals in contaminated freshwater sediment", *Nature* **260**, 511-513 (1976).

19) R.N.J. Comans, M. Haller, P. De Preter, "Sorption of cesium on illite: Non-equilibrium behaviour and reversibility", *Geochim. Cosmochim. Acta* **55**, 433-440 (1991).

20) N.K. Ishikawa, S. Uchida, K. Tagami, "Radiocesium sorption behavior on illite, kaolinite, and their mixtures", *Radioprotection* **44**, 141-145 (2009).

21) J.J. Alberts, L.J. Tilly, T.J. Vigerstad, "Seasonal Cycling of Cesium-137 in a Reservoir", Science **203**, 649-651 (1979).

22) D.W. Evans, J.J. Alberts, R.A Clark Ⅲ, "Reversible ion-exchange fixation of cesium-137 leading to mobilization from reservoir sediments", *Geochim. Cosmochim. Acta.*, **47**, 1041-1049 (1983).

23) R.N.J. Comans, J.J. Middelburg, J. Zonderhuis, *et al.*, "Mobilization of radiocaesium in pore water of lake sediments", *Nature* **339**, 367-369 (1989).

24) De Koning, R.N.J. Comans, "Reversibility of radiocaesium sorption on illite", *Geochim. Cosmochim, Acta* **68**, 2815-2823 (2004).

25) M. Okumura, H. Nakamura, and M. Machida, "Mechanism of Strong Affinity of Clay Minerals to Radioactive Cesium: First-Principles Calculation Study for Adsorption of Cesium at Frayed Edge Sites in Muscovite", *J. Phys. Soc. Jpn.* **82**, 033802 (2013).

26) 奥村雅彦, 中村博樹, 町田昌彦, "粘土鉱物とゼオライトにおけるセシウムの吸着挙動:第一原理計算から見るその微視的機構", *表面科学* **34**, 135-142 (2013)

27) G. Kresse, J. Hafner, "Ab initio molecular dynamics for liquid metals", *Phys. Rev. B* **47**, 558-561 (1993).

28) G. Kresse, J. Furthmüller, "Efficient iterative schemes for ab initio total-energy calculations using a plane-wave basis set", *Phys. Rev. B* **54**, 11169-11189 (1996).

29) P.E. Blöchl, "Projector augmented-wave method", *Phys. Rev. B* **50**, 17953-17979 (1994).

30) G. Kresse, D. Joubert, "From ultrasoft pseudopotentials to the projector augmented-wave method", *Phys. Rev. B* **59**, 1758-1775 (1999).

31) J.P. Perdew, K. Burke, and M. Ernzerhof, "Generalized Gradient Approximation Made Simple", *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3865-3868 (1996).

32) K. Momma and F. Izumi, "VESTA 3 for three-dimensional visualization of crystal, volumetric and morphology data", *J. Appl. Crystallogr.*, **44**, 1272-1276 (2011).

33) K.M. Rosso, J.R. Rustad, and E.J. Bylaska, "The Cs/K exchange in muscovite interlayers: an *ab initio* treatment", *Clays Clay Miner.* **49**, 500-513 (2001).

34) D.R. Lide, and W.M. Haynes, *CRC Handbook of Chemistry and Physics 90th edition*, CRC Press, Florida, 5-66, (2009).

＜2013年度　年間行事予定＞

2013 年 5 月	・運営委員会
8 月	・SMiRT-22 企画セッション：2013/8/18～23
9 月	・運営委員会 ・原子力学会 2013 年秋の大会：2013/9/3～5、八戸工業大学 （第 13 回全体会議開催）
10 月	・SNA & MC 2013 : 2013/10/27～31, Paris, France https://www.sfen.fr/SNA-and-MC-2013
2014 年 1 月	・運営委員会
3 月	・運営委員会 ・原子力学会 2014 年春の年会：2014/3/26～28、東京都市大学世田谷キャンパス（第 14 回全体会議開催）

※　年間を通じての活動項目

- ◆ JAEA CCSE WS 等
- ◆ WEB サイト/ML を活用したタイムリーな情報発信
- ◆ ニュースレターの発行(年２回)
- ◆ H25 年度の部会賞の公募

＜編集後記＞

日本原子力学会　計算科学技術部会　ニュースレター　第 20 号
２０１３年５月

編集・発行責任：　計算科学技術部会　出版・編集小委員会
町田　昌彦　（委員長）
（原子力機構、machida.masahiko@jaea.go.jp）
石田　直行
（日立製作所、naoyuki.ishida.sx@hitachi.com）
田中　正暁
（原子力機構、tanaka.masaaki@jaea.go.jp）
村上　貴裕
（電中研、murakami@criepi.denken.or.jp）
三澤　丈治
（原子力機構、misawa.takeharu@jaea.go.jp）

ニュースレター第 20 号をお届けいたします。部会員各位には、原稿執筆、素材提供など多大なるご協力をいただきました。出版・編集小委員会メンバー一同、この場をお借りして心より御礼申し上げます。また、発行時期がいつもより遅れましたこと、お詫び申し上げます。

福島事故から２年が経過しましたが、環境修復にはまだまだ時間が必要です。本号の「一言一語」で投稿いただきましたように、我々が蓄積してきた計算科学技術が、１日でも早い環境修復に貢献できるものと信じております。

ニュースレターの内容や当部会の出版・編集一般に係わる活動について、部会員の皆さまのご意見、ご要望を常時歓迎いたしますので、どうぞよろしくお願い申し上げます。

（石田 直行）