

— 分子モデル作成から —

○河村 雄行¹、石森 有²¹岡山大学環境生命科学研究所(〒700-8530 岡山市北区津島中3-1-1)²日本原子力研究開発機構(〒708-0698 岡山県苫田郡鏡野町上齋原 1550)

【緒言】

ラドン(Rn)はラジウム(Ra)のアルファ崩壊により生成する。天然にはアクチニウム系列の²¹⁹Rn ($T_{1/2}=4.0s$)、トリウム系列の²²⁰Rn ($T_{1/2}=56s$)、ウラン系列の²²²Rn ($T_{1/2}=3.8d$)がある。ウラン鉱山跡地の放射線量評価でもっとも重要な核種は²²²Rnである。短い半減期と微量のため精密な挙動はわかっていない。岩石や土壌を構成している鉱物中で、RaからRnが生成し、鉱物、水などの媒体を経て地表から大気に散逸されて、放射線計測されるが、その移行過程を精密に取り扱い、線量評価の根拠を形成するために、分子シミュレーション法によりRn(とRa)の各種物質中での挙動予測を行っている。

【方法】

古典分子動力学法(MD)とメトロポリス・モンテ・カルロ法(MC)を用い、RnとRaの分子モデルを作成すると同時に、Rn単体の物性、Raの鉱物中での構造を調べた。Rnの状態方程式、融点、沸点、臨界点、熱容量、各種自己拡散係数などである。他の希ガス元素、Ar、Xe等との比較を行った。計算は、孤立2原子分子系による原子間相互作用モデル(文献と比較)、単体結晶と液体のMD計算、希ガス水ドレートの構造、固-液2相平衡系による融点(MD)、気-液平衡系による1成分相図と臨界点(グランドカノニカルMC)、Rn化合物と鉱物結晶中のRnなどについて行った。

原子間相互作用モデルは、希ガス原子については双極子-誘起双極子(r^{-6})項と近接反発項からなり、水分子はこれに加えて、静電相互作用項と動径と角度の共有結合項を用いた。

計算には河村が作成してきたMXDORTO/MXDTRICLとMCORTOを用いた。

【結果】

Rnの1成分固-液2相系のMD計算の構造のスナップショットと全系の温度、圧力内部エネルギー、密度、単位構造の辺長(a, b, c)の時間変化を図1に示す。204 Kにおいて固-液平衡状態にあることがわかる。これにより求めた融解温度をXeと比較して次に示す。

	MD 計算	文献値
Rn	204.0 K	201.15 K
Xe	174.5 K	161.4 K

単体固体と液体の熱膨張係数、圧縮率、相変化、1成分状態図などを求め、XeやArおよびそれらの文献値と比較した。またXe水ドレート結晶の構造を計算し、水中での疎水性水和構造と比較し、さらに自己拡散係数を求めた。

今後鉱物中でのRaの壊変時からの各プロセスを分子シミュレーションで調べてゆく。

参考文献

Relativistic pseudopotential calculations on Xe₂, RnXe, and Rn₂: The van der Waals properties of Radon. Nino Runeberg, Pekka Pyykkoe International Journal of Quantum Chemistry, Vol.66, 131-140 (1998)

