

# ジオポリマー結晶相中の主成分 Na-P 型ゼオライトの生成反応に関する理論的解析

Theoretical Analysis of Formation Reaction of Main Component Na-P type Zeolite

in Geopolymer Crystalline Phase

\*岡田夕佳里<sup>1</sup>、関根伸行<sup>1</sup>、見上寿<sup>1</sup>、姜天龍<sup>1</sup>

<sup>1</sup>富士電機

ジオポリマーは放射性廃棄物処理の固化材として期待されているが、長期的な安全性や反応メカニズムには未解明な点が多い。本研究では、量子化学計算を用いた理論的解析を行い、特にジオポリマー中に形成される結晶相 Na-P 型ゼオライトの生成反応に関する分子構造の解析結果と反応メカニズムについて報告する。

**キーワード：**ジオポリマー、量子化学計算、ゼオライト、廃棄物処理、平衡定数

## 1. 緒言

ジオポリマーはアルミノケイ酸塩とアルカリ溶液との反応により形成された無機系縮合体で、環境負荷が低いセメントの代替材として近年注目されている無機材料である。ジオポリマーはセメントに比べ物理的・化学的に安定で耐久性に優れ、また放射性核種や重金属などの封じ込め性が高いという特長から、放射性廃棄物処理への適用が期待されている。一方で、ジオポリマーの長期的な安全性や外部因子との化学的な反応メカニズムに関しては未知な部分が多く、放射性廃棄物処理への適用懸念が残る。そこで本研究では、量子化学計算による解析の結果、ジオポリマー中に劣化とともに観測される結晶相である Na-P 型ゼオライトの構造解析結果及び推定される反応メカニズムについて報告する。

## 2. 手法

量子化学計算は Gaussian16 を使い、ジオポリマーの自由エネルギーを計算することで分子構造の安定性を解析した。計算モデルには Na-P 型ゼオライトが取りうる複数の分子構造を適用した。また、量子化学計算には 200°C(473.15K)の海水 (NaCl 溶液) を模擬した溶媒モデルを用いた。計算から得られたジオポリマーの自由エネルギー  $\Delta G$  及び平衡定数  $K$  を基に理論的解析を行った。

## 3. 結果・考察

ジオポリマー結晶相中に生成する Na-P 型ゼオライトの推定構造に対して量子化学計算を実施した結果、計算から得られた代表的な分子構造を図 1 に示す。ジオポリマーの初期構造として直鎖構造 (図 1 中左) を取ると推測し、その後 Na を介して環化する過程を経て Na を含む環状構造 (Na-P 型ゼオライト) へと変化していく様子を再現できた。これによって、ジオポリマー中に生成する結晶相と地下水との反応性、またジオポリマーの寿命予測に必要な反応の 1 つを理解できることが示唆された。

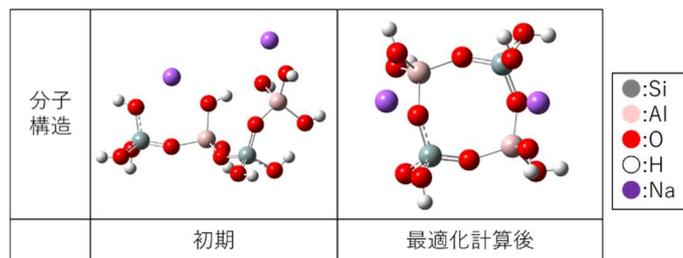


図 1. 量子化学計算から得られた Na-P 型ゼオライト分子構造

\*Yukari Okada<sup>1</sup>, Nobuyuki Sekine<sup>1</sup>, Hisashi Mikami<sup>1</sup>, and Tianlong Jiang<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Fuji Electric.