XRD 解析による人形石の結晶構造評価

Evaluation on the crystal structure of ningyoite using XRD analysis

*鈴木知史，中桐 俊男

日本原子力研究開発機構

人形峠地域の主要なウラン鉱物である人形石の結晶構造の解明のため XRD を詳細に解析したところ、複数に分離して解析する必要があるピークがあることが分かった。

キーワード：人形石，XRD

1. 緒言

人形峠環境技術センターでは、ウラン廃棄物の処理処分技術を確立することを目標にした環境研究を実施している。浅い地中に埋設処分されたウラン廃棄物中のウランの長期移行挙動評価を行うためには、生成される化合物の予測と安定性評価が重要である。長期的に生成が予測される化合物として人形峠の主要なウラン鉱物である人形石があるが、生成メカニズムや結晶構造が明確でない。そのため、過去の粉末 XRD データ[1]を基にした国際回折データセンター(ICDD)のデータにより、結晶構造の検討を進めてきた。今回は系のポテンシャルエネルギーを考慮した XRD 解析コードにより詳細な解析を行ったので、結果を報告する。

2. 解析手法

人形石の組成は 1-2 個の結晶水を含む $CaU(PO_4)_2$･1-2H_2O であり、既報の格子定数と XRD データ[1]から単位胞の構成は$[CaU(PO_4)_2$･1-2$H_2O]_3$ と報告されている[1]が、原子配置の詳細は明らかではない.。一方、これまでに報告された結果から、結晶水の存在は XRD パターンへの影響が小さい[2]と考えられる。そこで、モデル構造の単位胞の構成として$[CaU(PO_4)_2]_3$を用いて、ポテンシャルエネルギーを考慮した XRD 解析コード Endeavour により[3]、ICDD のデータを基に解析を行い、結晶構造評価を進めた。

3. 結果と考察

人形石の ICDD のデータによる回折パターンと本研究で実施した XRD の解析結果を図 1 に示す。図 1 に示すように、主要なピークの位置はほぼ一致した。しかしながら、29°と 42°付近のピークで強度が著しく異なった。一方、粉末 XRD データを報告した過去の文献[1]では、これらのピークが理論的には複数のピークの重ね合わせである可能性が示唆されている。29°と 42°付近のピークについて、過去の文献における XRD のピーク位置の測定値及び理論値と(*hkl*)、今回の解析結果による XRD のピーク位置を表 1 に示す。表 1 より解析結果は過去の文献の理論値に対応していることから、ICDD データと著しく異なる強度のピークは、複数のピークの重ね合わせで形成されていることが推定された。

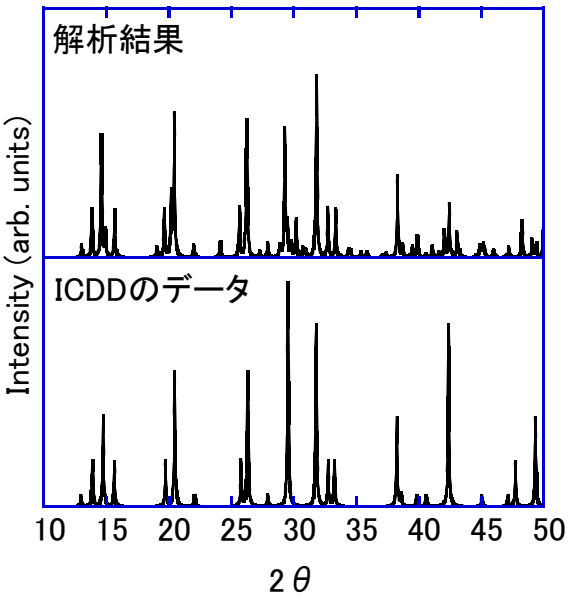

図 1 人形石の XRD の解析結果と ICDD データ

表 1 ピーク位置の解析結果と既報の測定値と理論値

測定値	理論値 (*hkl*)	解析結果
29.555	29.258 (131)	29.299
	29.555 (040)	29.505
	29.757 (201)	29.821
	30.168 (220)	30.196
42.402	41.988 (151)	42.064
	42.401 (241)	42.448
	42.401 (003)	42.472
	43.037 (311)	43.080

参考文献

[1] Muto *et al*., Am. Mineral. 44 (1959) 633.

[2] 鈴木他，日本原子力学会 2019 年秋の大会，富山.

[3] Putz *et al*., J. Appl. Cryst. 32 (1999) 864.

* Chikashi Suzuki and Toshio Nakagiri

Japan Atomic Energy Agency