

リートベルト解析による人形石の結晶構造評価

Evaluation on the crystal structure of ningyoite using Rietveld analysis

*鈴木 知史, 逢坂 正彦, 中桐 俊男

日本原子力研究開発機構

XRD 解析と DFT 計算から得られた人形石の結晶構造についてリートベルト解析を適用して、人形石の原子配置の検討を行った。これにより、ピーク位置が測定結果に近い XRD を示す原子配置が得られた。

キーワード: 人形石, リートベルト解析, 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確立することを目指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、これまで過去の粉末 XRD データを基に、結晶構造解析コードと DFT 計算を用いて結晶構造の妥当性評価を進めてきた。本件では、これらの評価結果を基に、単位胞中の原子配置の検討のためリートベルト解析を行った結果を報告する。

2. 解析手法

人形石の組成は 1-2 個の結晶水を含む $\text{CaU}(\text{PO}_4)_2 \cdot 1-2\text{H}_2\text{O}$ であり、既往の格子定数と XRD の測定結果[1]から単位胞の構成は $[\text{CaU}(\text{PO}_4)_2 \cdot 1-2\text{H}_2\text{O}]_3$ 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、前回の発表より、人形石の XRD の最大ピークである 30° 付近のピーク再現する原子配置は示されたが、他のピークの位置と強度はあまり再現されていない[2]。そこで、前回の発表における結果[2]に加え、Ca や U や P の配置を入れ替えたモデル構造について XRD 解析コード等による構造評価を実施して原子配置を絞り込み、絞り込んだモデル構造について RIETAN-FP [3]を用いてリートベルト解析を行った。なお、結晶水の存在は XRD パターンへの影響が小さい[2]ため、モデル構造の単位胞の構成として $[\text{CaU}(\text{PO}_4)_2]_3$ を用いた。

3. 結果と考察

複数のモデル構造について検討を行ったが、その中で Ca や U や P に関し同一元素が近い位置にある構造について、RIETAN-FP [3]を用いてリートベルト解析を行ったところ、主要なピークの位置はほぼ一致した。したがって、この解析により概ね適切な Ca や U や P の配置が得られたと考えられる。人形石の XRD の測定データ[1]による回折パターンとこのリートベルト解析による XRD の解析結果を図 1 に示す。しかしながら、強度は必ずしも一致していないため、さらに解析を精緻化し O を含めて原子配置を検討する必要がある。それ以外の強度の不一致の要因としては、結晶水の影響を無視したことが考えられる。

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] 泉他, セラミックス 43 (2008) 902.

*Chikashi Suzuki, Toshio Nakagiri and Masahiko Osaka
Japan Atomic Energy Agency

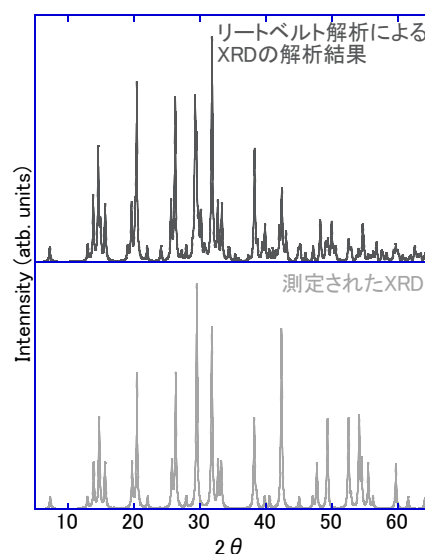


図 1 人形石の XRD の解析結果と既報の測定結果