

# Ce-Nd 二元系酸化物の Ce 及び Nd の K 端 EXAFS

K-edge EXAFS of Ce and Nd in Ce-Nd binary oxides

阪大・工

山之内雅也

小薄孝裕

祐谷将人

YAMANOUCHI Masaya

OSUKI Takahiro

YUYA Masato

中川貴

山本孝夫

\*江村修一

\*阪大・産研

NAKAGAWA Takashi

YAMAMOTO Takao

EMURA Shuichi

CeO<sub>2</sub>-Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の EXAFS(Extended X-ray Absorption Fine Structure)解析より、それぞれの元素周辺の局所構造を考察した。

**キーワード** : K 端 XAFS、EXAFS、CeO<sub>2</sub>、Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、原子間距離

**【緒言】** FP として多量に生成する希土類の核燃料中での化学状態に関する研究は、安全性の評価の点から重要である。しかし、核燃料中には多種の元素が多様な化学状態で存在し、各々の元素の状態を評価する手段が限定される。EXAFS は、注目する元素の近傍の局所構造を知ることが可能である。以前に同様の二元系希土類酸化物である CeO<sub>2</sub>-Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> について EXAFS 解析結果を発表した<sup>(1)</sup>。今回は希土類の中でも特に FP として収量の多い Ce と Nd の二元系酸化物の EXAFS 解析について報告する。

**【実験】** (1)CeO<sub>2</sub> と Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (いずれも純度は 99.99%) を所定比で混合して、ペレットに成型し、1450 で 12 時間焼成後、粉碎してペレットに再成型し、また焼成するという作業を 3 回繰り返した。(2)XRD で、固溶領域の調査を行った。(3)Spring-8 の BL01B1 を用いて室温透過法で Ce と Nd のそれぞれの K 端 EXAFS 測定を行った。

**【結果と考察】** XRD の結果は、Ce 比  $x(=Ce/Ce+Nd)$  の増加とともに、A 型構造、2 相領域 (A 型構造 + C 型構造)、C 型構造、2 相領域 (C 型構造 + 蛍石型構造)、蛍石型構造をとることがわかった。このうち、蛍石型構造の単相が得られる  $0.6 \leq x \leq 1$  の範囲において、次のような手順で EXAFS 解析を行い、二元系酸化物中の Ce-O、Nd-O のそれぞれの原子間距離  $R_{Ce-O}$ 、 $R_{Nd-O}$  を求めた。生スペクトルからバックグラウンドと孤立原子の吸収を取り除いて抽出した EXAFS 振動  $\chi(k)$  をフーリエ変換し、動径分布関数を求めた。最近接の酸素によるピークを逆抽出し、FEFF 7.02 code より求めた理論 EXAFS 関数とのフィッティングを行った。このようにして得られた各 Ce 比  $x$  での  $R_{Ce-O}$  と  $R_{Nd-O}$  を右図に、それぞれ  $x$  で重みをかけて線形結合した値

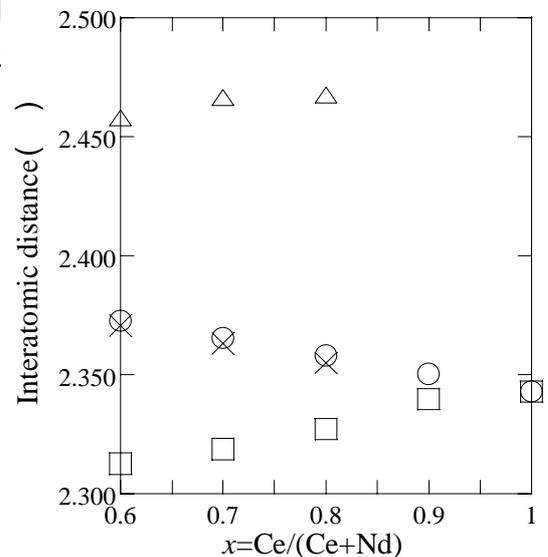


図 XRD と EXFAS より求めた希土類 - 酸素間距離の比較。○ : XRD より求めた希土類 - 酸素間距離、□ :  $R_{Ce-O}$ 、× :  $R_{Nd-O}$ 、× :  $\{xR_{Ce-O}+(1-x)R_{Nd-O}\}$

$\{xR_{Ce-O}+(1-x)R_{Nd-O}\}$  は XRD との結果とほぼ一致し、この EXAFS 解析の妥当性がわかる。また、 $R_{Ce-O}$  と  $R_{Nd-O}$  は  $x$  の増加とともに増加しているが、XRD の結果はこれとは逆の傾向を示している。このことから、格子定数の増加が必ずしも各原子間の結合距離の増大を伴っているわけではないことがわかる。

## 【参考文献】

(1) 小薄 他、本学会 2000 秋の大会(K10)