

高速重イオン照射した CeO₂ の構造・物性変化 ー放射光 XPS, XAFS による評価ー

大阪府立大学工学研究科 岩瀬彰宏

はじめに

環境負荷の少ないエネルギー源として近年、原子力発電の有用性が再認識されている。その効率的運用のための手段として、核燃料の高燃焼度化があるが、それに伴い燃料が従来の想定よりも大量の放射線を照射されることによる影響を調べておく必要がある。本研究では、UO₂ の模擬物質として同じ蛍石構造を持ち重元素酸化物である CeO₂(セリア)を試料として用い、高エネルギー核分裂生成片による照射効果を高エネルギー加速器による重イオン照射で模擬することにより、CeO₂ 試料の高エネルギー重イオン照射による構造変化を放射光 XPS 測定、EXAFS 測定により評価した。

実験方法

XPS 測定に用いた試料は CeO₂ 焼結体 (直径 8 mm、厚さ 1 mm 程度) である。試料を原子力機構東海研究所のタンデム加速器で 200 MeV Xe イオンを照射し、KEK 放射光施設の 27A ビームラインにおいて Ce 3d 電子に伴うスペクトルを測定した。EXAFS 測定に用いた試料は、RF スパッタ法によってアルミナ単結晶上に作成した CeO₂ 薄膜である。この試料を 200 MeV Xe イオンで照射した後、SPring-8 14B1 ビームラインにおいて Ce K 吸収端近傍での EXAFS スペクトルを測定した。

実験結果と考察

XPS 測定の実験結果を図 1 に示す。一番上のスペクトルは Ce⁴⁺ の 3d 電子に対するスペクトル、一番下は Ce³⁺ の 3d 電子に対するスペクトルである。Xe イオン照射に伴い、Ce の価数が 4+ から 3+ に移っていく様子がわかる。表面付近の再酸化の影響を除くため、XPS 測定チャンバー中で試料表面を少しスパッタした場合でも同じ傾向が見られる。Ce³⁺ の量を Xe イオン照射量でプロットしたものが図 2 である。一方、図 3 は、Ce K 吸収端近傍での EXAFS スペクトルが Xe イオン照射により変化する様子を示す。Ce-O 対に相当するピークが減少し、ブロードになっていく。これは、Ce 周辺の O 原子の配位数の減少とデバイワラー因子の増加に伴うものである。O 原子の正規の格子位置からの変位は、O 原子が試料中に留まっても Ce の価数を 4+ から 3+ へ減少させることが第一原理計算により確かめられており、これらの結果は XPS 測定の結果と一致するものである。さて、これらの Xe イオン照射による CeO₂ の構造変化は極めて少ない照射量から観測されており、弾性的相互作用による O 原子のはじき出しだけでは説明できない。200 MeV Xe イオンによる試料中での高密度電子励起が O 原子の移動をもたらしたものと考えられ

る。また、Xe イオン照射による電気伝導度の大きな増大も最近みいだしている。本研究結果は、高燃焼度化に伴う核燃料の構造変化の評価に対する基礎的知見を与えるばかりでなく、イオン照射を用いた CeO₂ の高制御構造・物性改質という観点からも興味深い結果であると考えられる。

図1 CeO₂ の XPS スペクトルにおける 200 MeV Xe イオン照射の効果

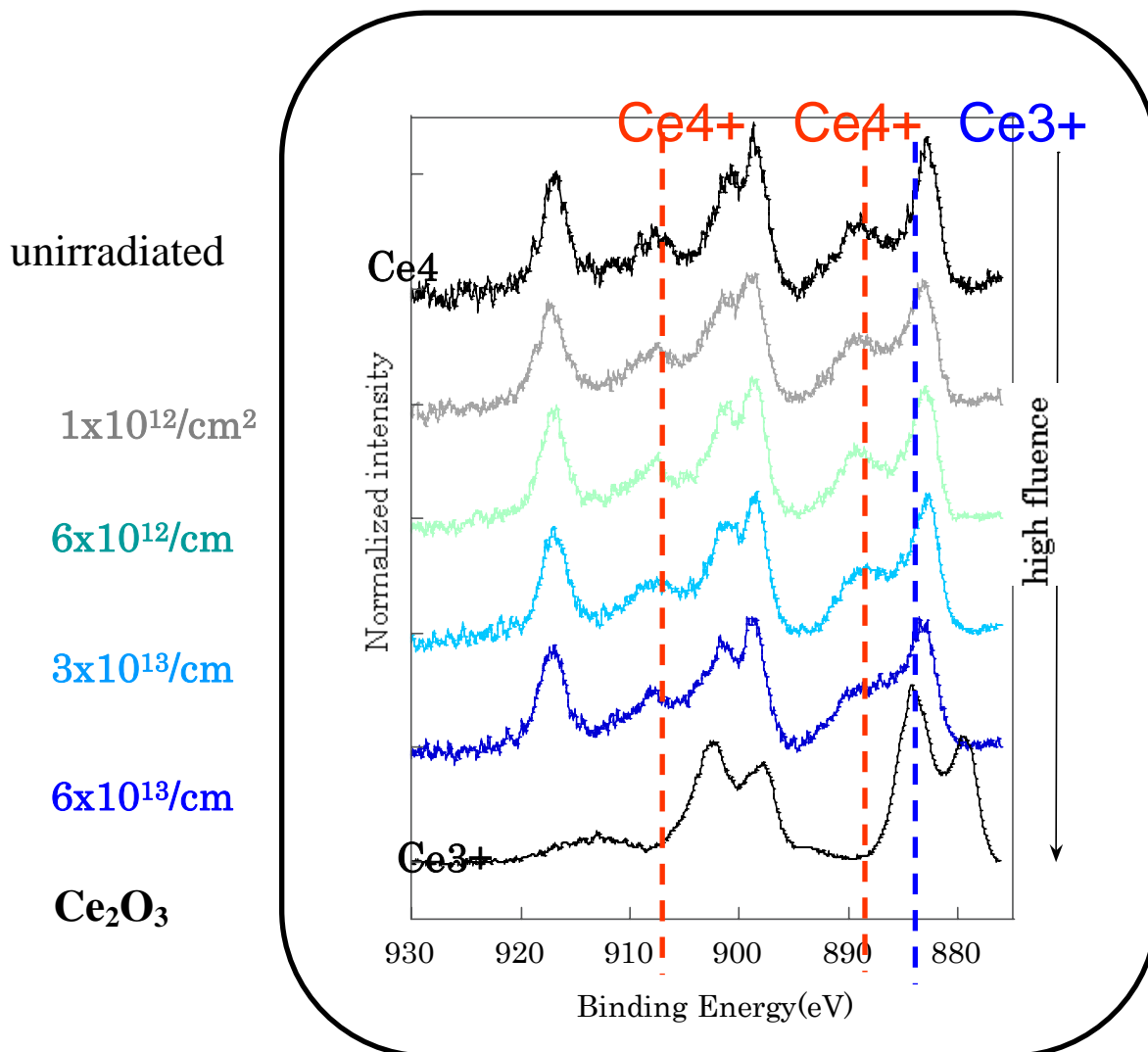


図2 Ce³⁺量のイオン照射量依存性。○は表面スパッタ前。●は表面スパッタ後。

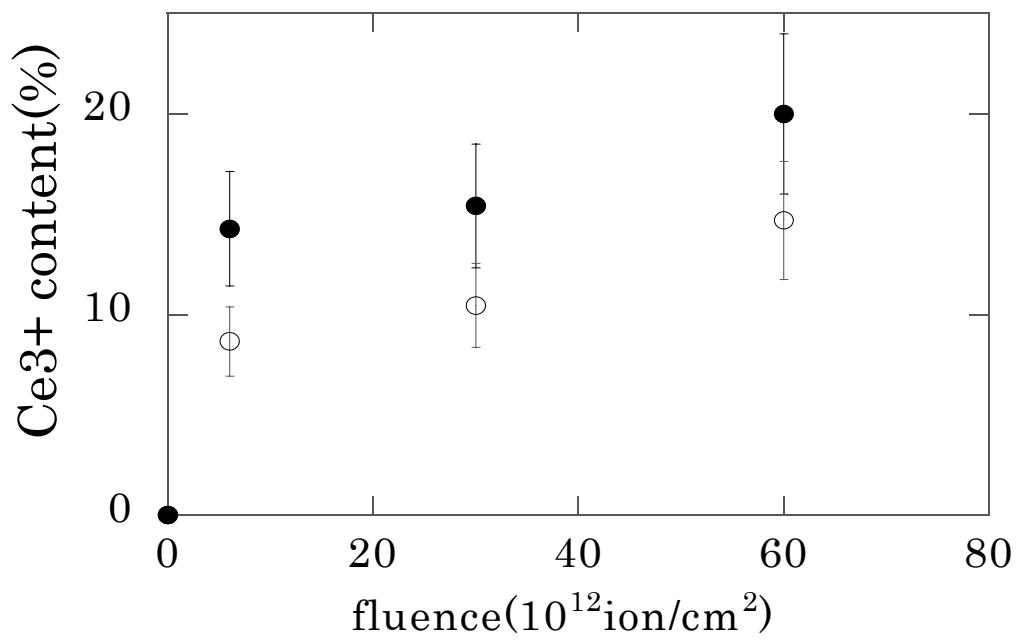


図3 Ce K吸収端近傍の EXAFS スペクトルの Xe イオン照射量依存性

