

PhD Research Article / Doktora Çalışması Araştırma Makalesi
**VITRIFICATION OF THE NUCLEAR 'SIMULATED' CESIUM WASTE BY
USING BASALT GLASS**

Gül AKDAĞ SEZEN*¹, Metin SUBAŞI²

¹Yıldız Teknik Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Fizik Anabilim dalı, Yıldız-İSTANBUL
²Yıldız Teknik Üniversitesi, Fen-Edebiyat Fakültesi, Fizik Bölümü, Esenler-İSTANBUL

Received/Geliş: 11.11.2010 Accepted/Kabul: 25.02.2011

ABSTRACT

In this study, a stable waste was simulated with a composite glass made of Cs- klinoptilolit and granulated volcanic basalt. The mixtures (samples) were prepared at the ratios of %70, %75 and %80 and kept at 1250 °C for 2 hours to obtain basalt glasses. Chemical contents of the Cs-klinoptilolit, the basalt glass and the simulated waste samples were determined by an ICP-MS device. Chemical strengths of the samples were also specified by ICP-MS depositing them in distilled water at 25±2°C for seven days. The crystalline phases and the changes in the micro structure occurred during heating processes were studied by using a Scanning Electron Microscope (SEM-EDS) and an X-ray diffraction (XRD). The leach test of %70 and % 75 wastes uploaded glass gave values consistent with the values given in the literature within the given uncertainties. In addition, durability of the composite was decreased when the waste content was increased in the structure.

Keywords: Basalt, radioactive waste, composite material, sintering, glass, klinoptilolite.

PACS numbers/numaraları: 27.60.J, 28.41.Kw, 61.43.Fs ,Gt, 68.37.Hk, 81.05.Kf, Rm, Pj, 81.20.Ev, 82.75.Z, 81.40.Wx, 81.65.Ps, 81.70.Bt, 82.33.Jx, 28.00.00

**BAZALT CAM KULLANILARAK BİR NÜKLEER 'SİMULE' SEZYUM ATIĞININ
CAMLASTIRILMASI**

ÖZET

Bu çalışmada, radyoaktif atıkların uzun süre kararlı yapıda tutulmasını sağlamak amacıyla, bağlayıcı olarak kullanılan öğütülmüş volkanik bazalt cama, sezyumlu klinoptilolitin yüklenerek elde edilen simule atığın özellikleri araştırılmıştır. Bazalt cam atık kompozit örnekleri, kütlece %70, %75 ve %80 oranında 1250 °C de 2°C/dak adımla 2 saat ısıtım işlemi uygulanarak üretilmiştir. Örneklerin kimyasal dayanımı (direnci), 25±2°C deki distile su içinde 7 günlük liç testi ile belirlenmiştir. Bazalt cam, Cs-klinoptilolit ve bazalt kompozit atık camın kimyasal bileşimi induktif eşleşmiş plazma kütle spektrometri (ICP-MS) ile belirlenmiş, ısıtım işlemi uygulamasının meydana getirdiği mikro yapıdaki değişimler ve oluşan kristal fazlar taramalı elektron mikroskobu (SEM-EDS) ve X-ışını kırınımı (XRD) yöntemleriyle incelenmiştir. Kimyasal dayanıklılık testinde %70 ve % 75 atık yüklü örneklerle elde edilen 'liç' değerleri, literatürdeki referans değerlerle karşılaştırıldığında, belirsizlik sınırları içinde uyumlu bulunmuştur. Ayrıca, numunelerde atık yüklem oranı arttıkça, 'liç' dirençlerinin azaldığı gözlenmiştir.

Anahtar Sözcükler: Bazalt, radyoaktif atık, kompozit malzeme, sinterleme, cam, klinoptilolit.

*Corresponding Author/Sorumlu Yazar: e-mail/e-ileti: gulakdag@gmail.com, tel: (532) 675 91 12

1. GİRİŞ

Fisyon reaktörlerinde yakıt döngüsü sonucunda ortaya çıkan radyoaktif atıkların yönetimi 21. yüzyılda da dünyanın en önemli sorunlarından biri olmayı sürdürmektedir. Bilindiği üzere, kullanılmış yakıtlardaki yüksek ve uzun ömürlü radyoaktivitenin kaynağı bazı fisyon ürünleri (Pu, Th, vd.) ve aktinidlerdir (Cs, Sr, vd.,). İnsanoğlunu bu zararlı ışınlardan korumak için halen günümüzde uygulanmakta olan çözüm ise, nükleer atıkların çevreye ve yer altı sularına yayılmayacak şekilde güvenli ortamlarda (yerin yüzlerce metre altında stabil kayalar arasına yerleştirmek gibi) depolanmasıdır. Bu süreçte, radyoaktif atıklar, uzun süreli saklama ortamlarına konulmadan önce reçine, beton, seramik ya da cam içinde hapsedilmektedir [1-3]. Son yıllarda, özellikle, atıkların camlaştırılması ile ilgili olarak dünyanın birçok yerinde yoğun ve stratejik çalışmalar yapılmaktadır [4-7]. Literatürde pek yaygın olmamakla birlikte, düşük ve orta düzeyli atıkların duraylı forma getirilmesinde, belli oranlarda cam yapıcı ajanların da katkılarıyla, bazaltlardan da yararlanıldığı görülmektedir [8].

Camlaştırma sürecinde, genel olarak, radyoaktif malzeme iyon değişimi yoluyla bir kristalize bileşiğe dönüştürülmekte, daha sonra da, seçilen cam yapı ile yüksek sıcaklıklarda bütünlüştürülmektedir. Böylece, radyoaktif malzemenin iki bariyerli bir koruma zırhı içinde kalması sağlanmaktadır. Bu çalışmada da, ülkemizde Nemrut kraterinin çeşitli bölgelerinden alınan bazaltların sezyum içerikli radyoaktif (Cs^{134} ve Sc^{137}) atıkların camlaştırılarak duraylı hale getirilmesinde ne kadar etkin olabileceği araştırılmıştır. Bu amaçla, toz halindeki saf CsCl, bir zeolit türü olan klinoptilolit [9] içine iyon değişimi yoluyla değişik oranlarda hapsedilerek simüle Cs-atık örnekleri oluşturulmuş, daha sonra da bunlar farklı içerikteki Nemrut bazaltlarıyla karıştırılarak camlaştırma süreci gerçekleştirilmiştir. Böylece, yüksek atık yükleme kapasitesine sahip bazalt cam matrisli atık peletlerinin üretilmesi amaçlanmıştır.

2. MATERYAL VE METOD

Simüle atık Cs-kli-no, sezyum ile klinoptilolit arasındaki iyon değişim yöntemi kullanılarak hazırlanmıştır. Klinopolit Gönen yöresinden alınmış, 10 gr ı iyon-değişimi yapmak için 0,6 Mol CsCl ile karıştırılıp 72 saat bekletilerek Cs ile klinoptilolit arasında iyon değişimi sağlanmıştır. Daha sonra, sulu çözelti süzülüş ve 110 °C de 24 saat kurutulmuştur. Cs-kli-no tozu, SHIMADZU(XRD-6000) X-ışını difraktometresi ile 20-80° tarama aralığında, 1 °/dak hız 2θ adımıyla Cu X-ışını ($\lambda=1,5405\text{Å}$) radyasyonunda analiz edilmiştir. Cs-Kli-no tane boyutu Malvern Mastersizer parça boyut analizörü kullanılarak tespit edilmiştir.

Sezyumun Cs-Kli-no'daki konsantrasyonu, C_{cs}

$$C_{cs} = CEC \times A.M.U \quad (2.1)$$

olarak verilir. Burada CEC, klinoptilolit'in iyon değişim kapasitesini, A.M.U ise, atomik kütle birimini göstermektedir. C_{cs} miktarı algılama sınırı 0.002 µg/L ola ICP-MS plazma kütle spektrometresi kullanılarak belirlenmiştir. Böylece, klinoptilolit'in iyon değişim kapasitesi, CEC, (2.1) ifadesinden hesaplanmış ve bulunan değerler (çizelge 2.1)'de verilmiştir.

Nemrut Kraterinden alınan bazalt camın içeriği, volkanik aktiviteler sonucunda doğal olarak firtilenmiş olan bazaltın %85'i volkan camı ve %15'i plajioklas türü feldspat olarak saptanmıştır. Öğütülüp toz haline getirilip tane boyutu analizi yapılan bazalt cama ait veriler (çizelge 2.2)'de verilmektedir.

Çizelge 2.1 Cs-kli no karakteristikleri

Analiz	Sonuç
ICP-MS(ağırlıkça,%)	Cs-27,0
XRD	Kalsiyum, Potasyum, Sodyum Aluminosilikat
Ortalama parçacık boyutu(mm)	0.501
Yüzey alanı(BET)	11.377 m ² /g
Yoğunluk(g/cm ³)	1.900±0.21
Kimyasal Formül	(Ca,K ₂ ,Na ₂ ,Mg) ₄ Al ₈ Si ₄₀ O ₉₆ .24H ₂ O

Çizelge 2.2 Bazalt cam element analizi

Oksit (% ağırlık)	Bazalt cam
SiO ₂	50,15
Cr ₂ O ₃	0,3
Al ₂ O ₃	15,19
Fe ₂ O ₃ *	11,3
TiO ₂	1,01
CaO	8,03
MgO	7,2
Na ₂ O	3,2
K ₂ O	1,1
Li ₂ O	0,2
MnO	0,3
Diğerleri	<%1-2
Tg (° C)	1029
Yoğunluk (g/Cm ³)	2,124±0.12
Yüzey Alanı (BET) (m ² /g)	0,555

* Toplam demir miktarı olarak Fe₂O₃ alınmıştır

Sinterleme işlemi için, hem bazalt cam hem de Cs-Kli no öğütülerek elekten geçirilmiş, tane boyutları 75µm den küçük toz haline getirilmiştir.(Çizelge 2.3) de verilen oranlarda elde edilen karışımlar, 13mm yarıçaplı paslanmaz çelikten yapılmış kalıplarda, tek yönde 78,3MPa'lık basınç uygulanarak sıkıştırılmıştır. Karşılaştırma amacıyla, sadece Bazalt cam ve sadece Cs-Kli no içeren tabletler de hazırlanmıştır. Sıkıştırma işleminden sonra bütün tabletler, ısıtma ve soğutma hızı 2 °C/dak'ya ayarlanan fırında 750 °C ve 1250 °C de 2 saat sinterlenmiştir [9-11].

Çizelge 2.3 Bazalt cam ve Atık oranları

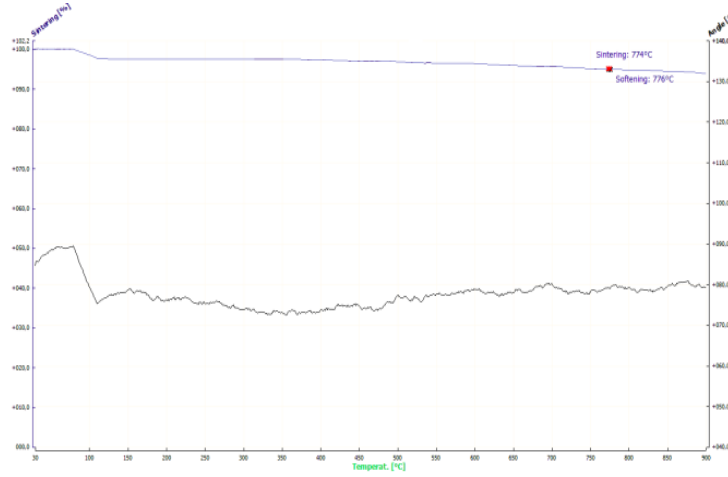
Cam /Cs-klino Hacim oranları	F _{cam}	F _{Cs/klino}	f _{Cs}
Sadece cam	1.00	0	0
1:1	0.30	0.70	0.189
1:2	0.25	0.75	0.2025
1:3	0.20	0.80	0.216
Sadece Cs-klino	0	1,00	0.27

Cs'un ve diğer elementlerin bazalt cam matriksteki dağılımları (bazalt cam atığın mikro yapısı) SEM (JEOL JXM-840A) de, geri saçılma elektronları (BEİ) ve EDS kullanılarak görüntülenmiştir. Bazalt cam tozun ve Cs-klino'nun ve her birinin sinterlendikten sonra yapılarında oluşan fazlar, ayrı ayrı XRD analizleriyle belirlenmiştir. XRD analizi, tarama aralığı 20°-80° ve 1°/dak 2θ adımıyla bakırın K α ışınları kullanılarak yapılmış ve ICDD kartları kullanılarak klinoptilolit-Ca [39-1383], quartz, anorthite, pyroxene, hematite, olivine, ilmenite, wolastonit [76-1846] ve sezyum alüminyum silikat [41-569] fazları görülmüştür [12,13]. Bazalt camın ICP de ölçülen içerikleri (Çizelge 2.4)'de verilmiştir.

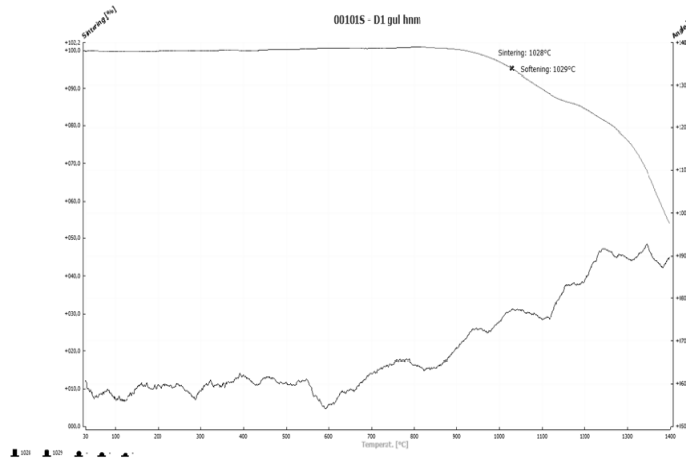
Çizelge 2.4 Bazalt cam ICP analizi

1mg/L <=	Al 4.0	Fe 4.0	Na 2.5	Si 7.7		
	B 10	Ba 8.9	Ca 65	Cu 46	Er 40	K 730
	Mg 27	Mn 34	Nb 24	Pt 74	Ru 56	S 120
	Sc 4.2	Th 530	Ti 40	Tm 40	U 200	Yb 2.3
	Zn 15					
	Ag < 17	As < 33	Au < 8.3	Be < 0.25	Bi < 28	Cd < 3.7
	Ce < 66	Co < 20	Cr < 16	Cs < 13000	Dy < 8.5	Eu < 2.9
	Ga < 40	Gd < 13	Ge < 27	Hf < 63	Hg < 2.8	Ho < 12
	I < 32	In < 180	Ir < 120	La < 15	Li < 2.3	Lu < 3.5
	Mo < 31	Nd < 42	Ni < 37	Os < 64	P < 49	Pb < 30
	Pd < 70	Pr < 49	Rb < 16000	Re < 28	Rh < 77	Sb < 23
	Se < 33	Sm < 35	Sn < 85	Sr < 0.64	Ta < 51	Tb < 24
	Te < 48	Tl < 73	V < 5.8	W < 75	Y < 2.2	Zr < 4.8

Bazalt cam ve doğal klinoptilolitin dilatometrik termal analiz ölçümleri (Şekil 2.1) ve (Şekil 2.2)'de verilmiştir.

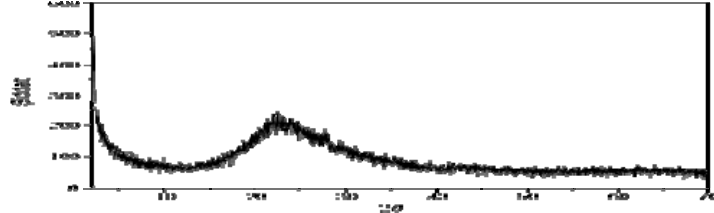


Şekil 2.1 Doğal klinoptilolitin dilatometrik termal analizi

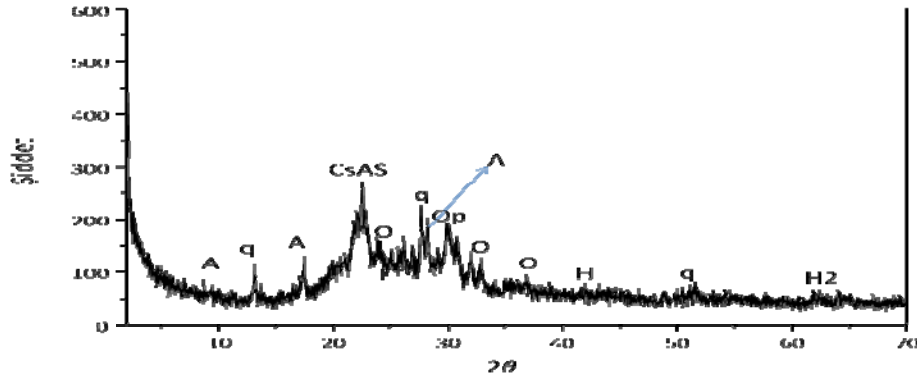


Şekil 2.2 Bazalt cam dilatometrik termal analizi

Tubitak Malzeme bölümünde yapılan bu çalışmada NETZSCH Dilatometer DIL 402C/3/F model dilatometre kullanılmıştır. Cihazın sıcaklık aralığı: -150°C ile $+1550^{\circ}\text{C}$, ısıtma hızı: 0,1- 50 K/min ve ölçüm hızı: $500\mu\text{m}/5000\mu\text{m}$ olarak ayarlanmıştır. Bazalt camın ve klinoptilolitin termal analiz sonuçları, sırası ile, Şekil 2.1 ve 2.2 'de verilmiştir. Bazalt cam atık kompozit örneğinin analizinden, 0°C 'den 900°C ye kadar yapıda hiçbir değişim olmadığı, 900°C 'den itibaren kütle kaybı görülmeye başlandığı, 1028°C 'de ise %5 oranında kayıp olduğu gözlenmiştir. Üç basamakta gerçekleşen kütle kaybı, yapıda farklı fazların olduğu şeklinde yorumlanmıştır. Bazalt cam atık kompozitlerine ısıl işlem uygulamasıyla elde edilen kristalin fazların özellikleri, X-ışını difraktometresi ve taramalı elektron mikroskobu ile incelenmiştir. XRD analizinden yapıda pyroxene, anorthite, olivine ve ilmenite gibi temel kristalin fazlar tespit edilmiştir [13-15]. Bazalt camın karakteristik amorf XRD görüntüsü (Şekil 2.3)'de, 1250°C 'de sinterlendikten sonra malzeme yapısında meydana gelen faz değişimlerini içeren XRD görüntüsü ise (Şekil 2.4)'de verilmiştir.



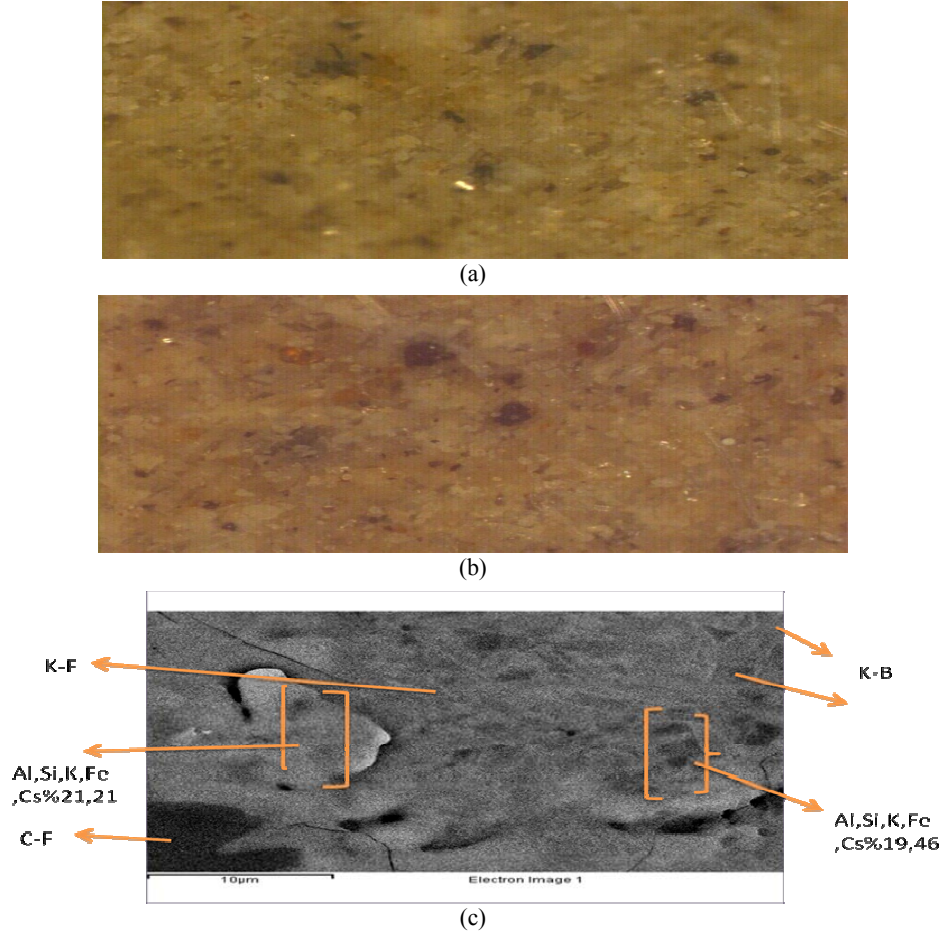
Şekil 2.3 Bazalt cam karakteristik amorf XRD görüntüsü



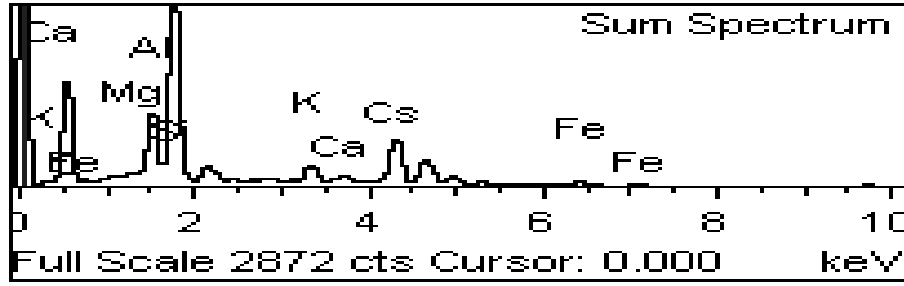
Şekil 2.4 Bazalt camın 1250°C 'de sinterlendikten sonraki XRD görüntüsü.

XRD görüntülerinde, bazalt cam atık kompozitin 1250°C'da iki saat ısıtılma tabii tutulmasından sonra oluşan fazlar; W-wollastonit, A-anorthit, P-piroksen, K-klinoptilolit, q-kuvars, CsAS-Sezyum alüminyum silikat, D-diopsit, H-hematit, O-olivin, İ-ilmenit fazları tesbit edilmiştir.

Isıl işlem uygulamasıyla elde edilen kristalin fazların mikroyapısı ve fazlara ait EDS spektrumları, sırası ile (Şekil 2,5) ve (Şekil 2,6)'da verilmiştir. (Şekil 2,5-(a))' da 750°C sinterlenmiş ve % 70 atık yüklenmiş numune görüntüsünden anlaşılacağı üzere, bazalt camın erime sıcaklığı sinterleme sıcaklığından yüksek olduğu için 750°C sinterlemede temel matriks, cam yapıyı oluşturmamış ve yapı kristalleşmiştir. Kompozitteki Cs-kli-no erimeden kristalin fazla çevrelenmiş durumda olduğu gözlenmiştir. Aynı şekilde (Şekil 2,5-(b)) görüntüsünde 'de, 750°C de sinterlenmiş ve % 75 atık yüklenmiş örneğin mikro yapı analizinde cam fazın oluşmadığı ve Cs-kli-no atığının kristal fazın içinde erimeden tutulduğu tespit edilmiştir. (Şekil 2,5-(c)) deki % 80 atık yüklü bazalt cam kompozitinin 1250 °C de sinterlenmiş mikro yapı analiz görüntüsünden, yapıda cam ve kristal fazların birbirlerinden belirgin sınırlarla ayrılmamakla birlikte yapıda oluştuğu belirlenmiştir.



Şekil 2.5 Bazalt cam atık kompozitin (a) 750°C de sinterlenmiş %70 atık yüklenmiş örnek, (b) 750°C de sinterlenmiş %75 atık yüklenmiş örnek, (c) 1250°C de sinterlenmiş %80 atık yüklenmiş örnek için SEM görüntüleri.



Şekil 2.6 1250°C de sinterlenmiş %80 atık yüklenmiş bazalt cam atık kompozite ait SEM spektrumu

Baskın Cs-Klino ve hematit fazlarının yanı sıra; wollastonit, anorthit, piroksen, kuvars, diopsit, olivin, ilmenit fazları da tespit edilmiştir. Bazalt cam seramiklerin % 75 atık yüklü 1250°C de 2 saat sinterlenmiş örneklerinin mikro yapılarında, siyah faz içinde ~1,8µ boyunda, ~ 3,1µ genişliğinde gri renkli kristaller siyah cam faz ile çevrelenmiş şekilde bir yapı oluşturduğu gözlemlenmiştir. (Şekil 2,5-(c)) görüntüsünde, C-F; cam faz, K-B; kristal boyu ve K-F; kristal faz olmak üzere kısaltmalar kullanılmıştır.

Statik yığın liç testleri 25 ± 2 °C de distile su ile ASTM C1220-98, TCP standartları kullanılarak 7 gün süresince, ağızları sıkıca kapalı örnek destekli kaplar kullanılarak yapılmıştır. Bu testler, örnek yüzey alanının liçantın hacmine oranı her bir test için (S/V) 20/m alınarak yapılmıştır. Burada kullanılan liç çözücünün hacmi 30 mL ve her bir örneğin yüzey alanına bağlı olarak Liç eriyiğinde çözünen Cs iyon konsantrasyonu ICP kullanılarak tespit edilmiştir. Normalize liç hızı NR ile gösterilmek üzere

$$NRCs = A \cdot V / (fCs \cdot SA) \cdot t \quad (2.2)$$

bağıntısı kullanılarak hesaplanmış, burada; A→Cs'un statik testten sonra liç solüsyonundaki (g/L) konsantrasyonu, V →liç solüsyonunun hacmi, fCs→ Cs nin liç solüsyonundaki kütle oranı, SA→ numune yüzey alanı, cm², t→ test zamanı, gün, olarak tanımlanmıştır. Bazalt cam atık kompozit malzemeler için Cs'un normalize liç oranı atık yükleme oranlarına bağlı olarak değişmektedir. En yüksek liç oranı $2,041 \times 10^{-4}$ g/cm².gün olarak % 80 atık yüklü örneklerde, en düşük liç oranı ise, $2,45 \times 10^{-8}$ g/cm².gün olarak % 70 atık yüklü örneklerde gerçekleşmiştir.

Çizelge 2.5 Bazalt cam normalize liç değerleri

Bazalt cam atık numunesinin normalize liç değerleri						
Cam/Atık (%)	A(g/L)	V(L)	SA,cm ²	t, gün	fCs	NRCs (g/cm ² .gün)
30/70	$0,011 \cdot 10^{-3}$	$30 \cdot 10^{-3}$	10.1736	7	0,189	$2,451 \cdot 10^{-8}$
25/75	$0,101 \cdot 10^{-3}$	$30 \cdot 10^{-3}$	10.1736	7	0,2025	$2,101 \cdot 10^{-7}$
20/80	$105 \cdot 10^{-3}$	$30 \cdot 10^{-3}$	10.1736	7	0,216	$2,0477 \cdot 10^{-4}$

3. SONUÇLAR VE TARTIŞMA

Bu çalışmada, Nemrut kraterinden alınmış bazalt cam kullanılarak Cs-klino simule atığı camlaştırılmıştır. Volkanik aktiviteler sonucunda doğal olarak firitlenmiş olan bazaltik camın %85'i volkan camı ve %15'i plajioklas türü feldspat olarak saptanmıştır. Uygulanan süreçler sonucunda, kullanılan simule klinopolit atık, düşük basınç, düşük sıcaklık ve sinterleme yöntemiyle monolitik bazalt cam kompozit atık formuna getirilerek duraylı yapıya dönüştürülmüştür. Bu yaklaşımla hareketli radyonüklidler bazalt camın ve klinoptilolit kristal fazının içeriğiyle çok bariyerli sistem tarafından korunmuştur. Bu suretle atık, aynı anda iki işlemle, hem klinoptilolit, hem de, bazalt cam matrisi ile daha güvenli şekilde uzun süre depolanabilecek dayanıklı ve duraylı Bazalt Cam Atık Kompozit malzeme haline getirilmiştir. Belirli oranlarda yapılan Cs-klino yüklemesinin, sinterleme sıcaklığının, sinterleme hızının ve sinterleme süresinin liç dayanımını önemli ölçüde etkiledikleri belirlenmiştir. Bazalt cam atık kompozit malzemeler için Cs'un normalize liç oranı $2,45 \cdot 10^{-8}$ g/cm².gün değerinin altında gerçekleşmiş olduğu ve sonuçların literatür değerleriyle uyumlu olduğu tespit edilmiştir.

Denemeler, bazalt camların radyoaktif atıkların camlaştırılmasında kullanılabilmesi için gerekli olan sıcaklığın 900°C ile 1050°C aralığında olmasının uygun olacağını göstermektedir. Zira, önerilen bu aralıkta kristallenmenin tam olarak gerçekleştiği ve bu aralığın açıldığı durumlarda

kristallenmenin kısmen ana matrikste camsı yapının etkin olduğu saptanmıştır. 900°C ile 1050°C aralığındaki sıcaklıklarda ve daha uzun süre sinterleme halinde daha iyi sonuçlar elde edileceği kanısı oluşmuştur.

Acknowledgments / Teşekkür

Bu çalışmanın gerçekleşmesi için sağladıkları laboratuvar olanakları için, YTÜ Merkez Laboratuvarı Müdürlüğüne, Türkiye Şişe Cam AŞ- Araştırma Bölümü Başkanlığına ve TUBİTAK MAM Malzeme enstitüsüne teşekkür ederiz.

Bu çalışma, Yıldız Teknik Üniversitesi Araştırma Fonu Proje Koordinatörlüğü tarafından desteklenmiştir.

REFERENCES / KAYNAKLAR

- [1] W.L. Gong, W. Lutze, A. Abdelouas, R.C. Ewing, *J. Nucl. Mater.* 265 (1999) 12.
- [2] Sheppard, R.A., Gude, A.J., 1969, Diagenesis of tuffs in the Barstow County, California. *US Geol. Surv. Prof.* pp. 634.
- [3] A. Dyer and D. Keir, *Zeolites* 4 (July) (1984), p. 215.
- [4] Beall G. H., Rittler, H. L., Process for Forming a Basaltic Glass-Ceramic Product, p. 557-575, United States Patent Office, 3 (1971),
- [5] Kovacs G., Lazau I., Menessy I., Kovacs K., *Key Engineering Materials*, Vols.132-136, 2135 (1997).
- [6] A.E. Osmanlioglu, *J. Hazard. Mater.* 137 (1) (2006), p. 332.
- [7] A.M. Bevilacqua, N.B.M.D. Bernasconi, D.O. Russo, M.A. Audero, M.E. Sterba and A.D. Heredia, *J. Nucl. Mater.* 229 (1996), p. 187.
- [8] M.I. Ojovan and W.E. Lee, *Glass Technol.* 44 (6) (2003), p. 218.
- [9] M. Sahimi, *Application of Percolation Theory*, Taylor & Francis Publisher, London (1994).
- [10] R.S. Baker and J.R. Berreth, *Ceram. Trans. (Nuclear Waste Management III)* 13–22 (1990), p.
- [11] W. Lutze, in: W. Lutze, R.C. Ewing (Eds.), *Radioactive Waste Form for the Future*, North-Holland, New York, 1988, pp. 1—161.
- [12] W. Lutze, W. Gong, A. Abdelouas, R.C. Ewing, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* 506 (1998) 223.
- [13] W.L. Gong, W. Lutze and R.C. Ewing, *J. Nucl. Mater.* 278 (2000), p. 73.
- [14] H.P. Klug, L.E. Alexander, *X-ray Diffraction Procedures for Polycrystalline and Amorphous Materials*, John Wiley & Sons, New York, 1974.