1 解説

螢石型立方晶酸化物中の成分イオンの拡散特性

(九州大学工学部) 安藤 健, 大石 行理

螢石型立方晶の拡散特性はその副格子構造と密接な関係がある。単純立方格子を構成する陰イオンの方が、面心立方格子を構成する陽イオンに比べて大きな拡散係数を有し、活性化エネルギーは小さい。本稿では、アクチノイド酸化物を中心として、螢石型および逆螢石型立方晶の成分イオンの拡散特性を述べる。

I. ま え が き

UO₂は軽水炉用燃料として、PuO₂-UO₂固溶体は軽水炉および高速炉用燃料として使用され、ThO₂-UO₂固溶体は将来の高温ガス炉用燃料として期待されている。UO₂, ThO₂, PuO₂の結晶構造はいずれも螢石型立方晶である。螢石(CaF₂)型構造では、陽イオンは、第1図(a)に示すように面心立方格子を構成し、陽イオンの四面体の中心を陰イオンが占め、単位格子の中心には大きな隙間が存在する。この大きな隙間を、陰イオンに着目して示すと第1図(b)となる。陰イオンは単純立方格子を形成し、単位立方格子の中心が陽イオンで占められるものと、空位のままのものが交互に配列している。

(a) 陽イオンの面心立方格子 (b) 陰イオンの単純立方格子
第1図 螢石型立方晶

酸化物燃料の製造と炉内での燃焼に関連して、焼結、固相反応、粒成長、クリープ、核分裂生成物の挙動、酸化・還元、酸素の再分布、燃料-被覆管の相互作用などの拡散律速現象の問題を解明するためには、成分元素の拡散の動力学的の詳細を知っておく必要がある*。螢石型酸化物の自己拡散の特徴は、酸素イオンの自己拡散係数 $D_{O_{2y}}$ が陽イオン(M^{4+})の自己拡散係数 D_M に比

べて著しく大きいことである。第2の特徴は、UO₂, PuO₂ またはその固溶体は不定比組成になり易く、 $D_{O_{2y}}$, D_M いずれも不定比度に敏感であることである。このため、 $D_{O_{2y}}$, D_M の測定には困難が伴い、測定値の評価については注意を要する。

螢石型構造内での陰・陽両イオンの自己拡散は、その副格子構造と密接な関係がある。陽イオンと陰イオンの格子が逆転した逆螢石型の Li₂O の中でも、陰イオンと陽イオンの拡散係数の大きさが逆転する⁽¹⁾⁽²⁾。(ちなみに Li₂O は核融合炉ブランケット材料として検討されている。)

II. 自己拡散係数の測定法

自己拡散係数の測定法は、原理的に次の2つに大別される。

- (1) 拡散焼鈍後の試料についてトレーサーの濃度を距離と時間の関数 $C(x, t)$ として測定する。
- (2) 拡散焼鈍後の試料についてトレーサーの全拡散量を時間の関数 $M(t)$ として測定する。

1. 酸素イオンの自己拡散係数

酸素にはトレーサーとしての適当な放射性同位元素がないので、安定同位元素 ¹⁸O (または ¹⁷O) を用いる。所定温度で所定時間、薄膜法、拡散対法または同位体交換法による拡散焼鈍を行なったのち酸素同位体比を測定し、これから所定の境界条件に対して拡散係数を計算する。酸素同位体比測定法には、質量分析法⁽³⁾⁻⁽⁵⁾のほかに ¹⁸O(p, α)¹⁵N⁽³⁾, ¹⁸O(p, γ)¹⁹F⁽⁶⁾, ¹⁸O(p, n)¹⁸F⁽⁷⁾ お

Diffusion Characteristics of Component Ions in Fluorite Cubic Oxides, Ken ANDO, Yasumichi OISHI.

(1981年 10月 6日 受理)

*UO₂系については古屋廣高氏の総説(原子力誌, 21 [10], 782 (1979))がある。

よび $^{17}\text{O}(d, n)^{18}\text{F}^{(7)}$ などの核反応を利用するものがある。

薄膜法と拡散対法は ^{18}O を濃縮した酸化物と天然存在比のままの酸化物を接合してサンドイッチあるいは拡散対を作り、これを拡散焼鈍したのち $C(x, t)$ を測定する方法である。この方法では同位体交換法におけるような界面交換係数の問題を考慮する必要がないという利点がある。

気相・固相同位体交換法においては、 ^{18}O を濃縮した O_2 , CO_2 あるいは CO ガス中で試料を拡散焼鈍する。この方法においては一般に $M(t)$ を測定するが、この場合は、次の2つの問題に注意を要する。

(1) 試料の比表面積：測定すべき拡散係数が小さく、拡散侵入深さが浅い場合には、拡散係数の絶対値の計算には、試料の真の表面積を必要とする。

(2) 界面同位体交換係数：拡散焼鈍は(1)式で表わされる気相(g)と固相(s)の間の同位体交換反応と、固相内の ^{18}O と ^{16}O との相互拡散とからなる。

(1)式の反応が、固相の拡散に比べて充分には速くない場合には、拡散量から拡散係数を計算する際に(1)式の反応に対する界面交換係数を計算に入れる必要がある。界面交換係数の(拡散係数に対する)相対的大きさと境界条件が、拡散係数の計算精度にどう関係するかについては難波⁽⁸⁾の研究がある。

測定すべき拡散係数が充分に大きい場合の ^{18}O 拡散量は、気相の同位体比の測定から求めることができる(気相分析法)⁽⁹⁾。拡散係数が小さくて気相分析が困難な場合には固相の酸素同位体比を測定する(固相分析法)⁽⁶⁾。その場合には(2)式に従って、試料中の酸素を CO ガスとして取り出し、これをさらに(3)式に従って CO_2 に転化したのち、質量分析計で $\text{CO}_2(46)$ と $\text{CO}_2(44)$ の比を測定する。

2. 陽イオンの自己拡散係数

D_{H} の測定においてトレーサー濃度を測定する方法には、①表面放射能減少法、②α線スペクトル鈍化法、③切削法などがある。核燃料酸化物中の D_{H} に関する報告はかなりの多いが⁽¹⁰⁾、測定者によって差が見られることが多い。その原因の1つは、陽イオンの拡散が粒界および転位で促進される上に、 D_{H} が小さくトレーサーの拡散侵入深さが浅いため、多結晶試料では測定値が試料の微構造に支配されることにある。陽イオンの

自己拡散係数について、特に単結晶による測定が望まれる理由はここにある。

Ⅲ. 格子欠陥と自己拡散係数

自己拡散係数の実測値の温度依存性は、一般に(4)式で表わされる。

$$D = D_0 \exp(-Q/RT) \quad (4)$$

ここで、 D_0 ：頻度因子、 R ：ガス定数

T ：絶対温度

Q ：拡散の活性化エネルギー

Q と D_0 の物理的意味は、拡散機構によって違ってくるので注意を要する。

拡散を媒介する格子欠陥が熱力学的なもので、その濃度が温度に依存する場合には、

$$D_0 = Ar^2 \nu \exp\{((\Delta S_f/n) + \Delta S_m)/R\} \quad (5)$$

$$Q = (\Delta H_f/n) + \Delta H_m \quad (6)$$

格子欠陥が外因的なもので、その濃度が温度に依存しない場合には、

$$D_0 = Ar^2 \nu N \exp(\Delta S_m/R) \quad (7)$$

$$Q = \Delta H_m \quad (8)$$

ここで、 A ：物質と拡散機構により決まる定数

r ：イオンの飛跳距離

ν ：格子振動数

$\Delta S_f, \Delta H_f$ ：それぞれ格子欠陥生成のエントロピーとエンタルピー

$\Delta S_m, \Delta H_m$ ：イオンの移動に要するエントロピーとエンタルピー

N ：外因的に定まる格子欠陥濃度

(例えば固溶成分の濃度)

n ：化合物の組成に固有な定数

で表わされる。

ΔH_f の大きさは拡散を支配する格子欠陥の型によって違いがある。 UO_2 については、陰・陽両イオンが、それぞれ Frenkel 型欠陥、Schottky 型欠陥を生成するに要するエネルギーの理論計算が行われている⁽¹¹⁾⁽¹²⁾。その結果、 O^{2-} イオンについては Frenkel 型が、 U^{4+} イオンについては Schottky 型が支配的であることが明らかである。

Matzke は MO_2 および MO_{2+x} において x が大きい場合、単純な熱力学的関係を仮定して Q の物理的意味を与えている⁽¹³⁾。その結果を第1表に示す。ここでは陽イオンについては $\text{MO}_2 \sim \text{MO}_{2+x}$ の組成に対して空孔機構を、 MO_{2-x} の組成については空孔機構と格子間機構を仮定している。酸素イオンに対しては、 MO_{2+x} において準格子間機構を、 $\text{MO}_2 \sim \text{MO}_{2-x}$ においては

空孔機構を仮定している。

第1表 陰イオンと陽イオンの拡散の
活性化エネルギーの内容

酸素イオン	陽イオン
MO_{2+x} $\Delta H_{m, O_i}$ (9)	$\Delta H_S - 2\Delta H_{FO} + \Delta H_{m, M_i}$ (12)
MO_2 $(\frac{1}{2})\Delta H_{FO}$	$\Delta H_S - \Delta H_{FO} + \Delta H_{m, M_i}$ (13)
	$+ \Delta H_{m, O_i}$ (10)
MO_{2-x} $\Delta H_{m, O_i}$ (11)	$\Delta H_S + \Delta H_{m, M_i}$ (14)
	$\Delta H_{FM} - \Delta H_S + \Delta H_{m, M_i}$ (15)

ΔH_{FO} と ΔH_S はそれぞれ酸素イオンの Frenkel 欠陥および Schottky 欠陥の生成エネルギー。 $\Delta H_{m, O_i}$, $\Delta H_{m, O_v}$, $\Delta H_{m, M_i}$ および $\Delta H_{m, M_v}$ はそれぞれ格子間酸素イオン、酸素イオン空孔、陽イオン空孔および格子間陽イオンの移動のエネルギー

1. 酸素イオン

(1) 定比組成 MO_2 における拡散

U と Pu の酸化物は不定比組成を取り易いので、定比組成に対する拡散特性を知るには、 ThO_2 について検討するのが適当である。 ThO_2 中の $D_{O_{2y}}$ は多結晶⁽¹⁴⁾と単結晶⁽⁹⁾について測定されている。単結晶中の $D_{O_{2y}}$ を第2図に示す。○印は大気中酸素分圧下の測定値である。温度依存性は2つの領域に分かれ、高温領域は(16)式で表わされる。

$$D = 5.73 \times 10^{-2} \exp(-49,900/RT) \quad (\text{cm}^2/\text{s}) \quad (16)$$

低温領域は(17)式で表わされる。

$$D = 1.00 \times 10^{-8} \exp(-17,600/RT) \quad (\text{cm}^2/\text{s}) \quad (17)$$

図中の●印は酸素分圧 3×10^{-4} atm における測定である⁽¹⁵⁾。これから判断して、 ThO_2 中の $D_{O_{2y}}$ に対する酸素分圧の影響は小さいようである。第3図に比較されるように、定比組成についての比較では、 ThO_2 , UO_2 ⁽¹⁶⁾ および PuO_2 ⁽¹⁷⁾ 中の酸素イオンは類似した拡散挙動を示す。

ThO_2 の高温領域、 UO_2 および PuO_2^* 中の酸素イオンの自己拡散係数の温度依存性より得られた頻度因子 D_0 と活性化エネルギー Q の値を第2表に示す。

第2表 螢石型酸化物(ThO_2 , UO_2 , PuO_2)の酸素イオンのイントリンシック自己拡散のパラメータ

物質	温度範囲(°C)	$D_0(\text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1})$	$Q(\text{kcal/mol})$	著者
ThO_2	900~1,500	4.4	65.8	Edwardsら ⁽¹⁴⁾
"	1,100~1,646	5.73×10^{-2}	49.9	安藤ら ⁽⁹⁾
UO_2	550~780	1.2×10^3	65.3	Auskern-Belle ⁽¹⁶⁾
"	600~1,500	1.15	56.7	Belle ⁽¹⁸⁾
"	780~1,250	0.26	59.3	Marin-Contamin ⁽³⁾
PuO_2	720~1,020	1.30×10^{-2}	48.2	Deaton-Wiedenheft ⁽¹⁷⁾

第2図 単結晶酸化トリウム中の酸素イオンの自己拡散係数

D_0 と Q の大きさから判断して、これらの $D_{O_{2y}}$ は intrinsic diffusion に対応するものと解釈される。この解釈に従えば、表中の活性化エネルギー 50~60 kcal/mol は酸素イオンの Frenkel 欠陥の生成エネルギーと空孔の移動のエネルギーとを含む。

(2) MO_{2+x} 中の拡散

UO_{2+x} 中の酸素イオンの自己拡散係数は、定比組成の UO_2 中に比べて、特に低温において、第3図に示すように急激に大きくなる。図中実線で示す Contaminら⁽¹⁹⁾による $x \approx 0.006, 0.020, 0.10, 0.12, 0.16$ に対する値と、○印で示す Murchら⁽²⁰⁾による $x \approx 0.08$ に対する値とはよく一致しており、 x の大きさにかかわら

* DeatonとWiedenheftは $D = 1.19 \times 10^{-8} \exp(-42,200/RT)$ (cm^2/s)としているが、彼らの図中の実験値を用いて拡散係数の温度依存性を求めると、 $D = 1.30 \times 10^{-2} \exp(-48,200/RT)$ (cm^2/s)となる。

第 3 図 $\text{MO}_2, \text{MO}_{2+x}$ 螢石型酸化物中の陽イオンと酸素イオンの自己拡散係数

ず活性化エネルギーは 21~23 kcal/mol である。

この領域での酸素イオンの拡散機構は議論が分かれている。Murch と Thorn⁽²⁰⁾ は準格子間機構を、Breitung⁽²¹⁾ は格子間機構を仮定し、欠陥の間に相互作用のない自由な点欠陥理論に従って酸素イオンの自己拡散係数の温度依存性を理論的に求めている。これに対して Murch ら⁽²⁰⁾ は、 UO_{2+x} に対して Willis クラスターの関与する協同的拡散機構を提案し、酸素イオンの自己拡散係数の x 依存性を求めている。

(3) MO_{2-x} 中の拡散

MO_{2-x} 組成のアクチノイド酸化物中の酸素イオンの自己拡散係数に関しては、Kim と Olander⁽²²⁾ が

UO_{2-x} について予備実験の結果を報告しているだけである。その値を第 3 図に大きな ● 印で示す。この値は明らかに UO_2 中のそれより大きい。

アクチノイド酸化物以外で MO_{2-x} の組成について、酸素イオンの自己拡散係数が測定されている酸化物に CeO_{2-x} と $(\text{Ce}, \text{Y})\text{O}_{2-x}$ および CaO を固溶して安定化させた ZrO_2 がある。これらの酸化物について測定された活性化エネルギーは、しばしば酸素イオン空孔の移動のエネルギーと呼ばれるが、その解釈については注意を要する。第 3 表に示すように、 CeO_{2-x} においては x が大きくなるにつれて活性化エネルギーが小さくなるが、 $(\text{Ce}, \text{Y})\text{O}_{2-x}$ の場合には x の大きさにか

第3表 MO_{2-x} 螢石型立方晶酸化物中の酸素イオンの自己拡散の活性化エネルギー

物質	酸素イオン 空孔濃度(%)	活性化エネルギー (kcal/mol)	著者
CeO ₂ (s) ($p_{O_2}=0.21$ atm)	$<10^{-2}$	24.8	Floyd ⁽²³⁾
CeO ₂ (p) ($p_{O_2}=0.21$ atm)	$<10^{-2}$	21.3	
CeO ₂ (s) ($p_{O_2}=0.02$ atm)	$<10^{-2}$	17.4	
CeO _{1.98} (s)	4	11.9	
CeO _{1.8} (s)	10	3.6	
Ce _{0.9} Y _{0.1} O _{1.95} (p)	2.5	19.2	Kingeryら ⁽²⁴⁾ Simpson-Carter ⁽²⁵⁾ 大石ら ⁽²⁶⁾ 大石ら ⁽²⁶⁾
Ce _{0.8} Y _{0.2} O _{1.90} (p)	5	18.3	
Ce _{0.6} Y _{0.4} O _{1.8} (p)	10	21.3	
Zr _{0.95} Ca _{0.15} O _{1.85} (p)	7.5	30.4	
Zr _{0.858} Ca _{0.142} O _{1.858} (p, s)	7.1	31.2	
Zr _{0.85} Ca _{0.15} O _{1.85} (p)	7.5	19.4	大石ら ⁽²⁶⁾
Zr _{0.88} Mg _{0.12} O _{1.88} (p)	6	15.0	
ThO ₂ (in extrinsic region)		17.6	安藤ら ⁽⁹⁾

(p): 外結晶, (s): 単結晶

かわらずほぼ一定である⁽²³⁾。Floydはこの原因を、CeO_{2-x}の場合には x が増大すると規則化したマイクロドメインが生成するためであるとしている。ZrO₂-CaO系については、第3表に示すKingeryら⁽²⁴⁾とSimpsonとCarter⁽²⁵⁾の値が報告されており、約30 kcal/molの活性化エネルギーは酸素イオン空孔の移動に要するエネルギーであると解釈された。しかし、測定をさらに高温領域にまで拡張した結果によれば⁽²⁶⁾、第3表および第3図に示すように、1,400°C以上で、19.4 kcal/molの活性化エネルギーで表わされる領域があり、この大きさが自由な酸素イオン空孔の移動に要するエネルギーであると解釈される。ZrO₂-MgO系固溶体についても15 kcal/molの活性化エネルギーの温度領域がある⁽²⁶⁾。

前述のThO₂の低温領域の活性化エネルギー17.6 kcal/molは、上述のMO_{2-x}中の酸素イオンの拡散の活性化エネルギーに近い値である。しかし、このThO₂に対する値は、試料中に導入された転位を通るパイプ拡散に対するものであると解釈されている。いま仮に、この値が $\Delta H_m, v_0$ に近いと仮定して、この値と(16)式の高温領域の活性化エネルギーより、第1表中の(10)式を通して酸素イオンのFrenkel欠陥の生成エネルギーを計算すると、

$$\Delta H_{Fo} \approx 65 \text{ kcal/mol}$$

となる。

2. 陽イオン

アクチノイド酸化物中の陽イオンの自己拡散については、Matzkeによる総説がある²⁰⁾。ここでは要点のみ

について述べる。

(1) 定比組成MO₂中の拡散

King⁽²⁷⁾により測定された D_{Th} は次式で表わされる。

$$D_{Th} = 0.35 \exp(-149,500/RT) \quad (\text{cm}^2/\text{s}) \quad (18)$$

Matzke⁽²⁸⁾は²²⁸Thと²³²UをトレーサーとしてThO₂単結晶中の D_M を測定している。その温度依存性は次式で表わされる。

$$D_M = 0.5 \exp(-150,000/RT) \quad (\text{cm}^2/\text{s}) \quad (19)$$

定比組成のUO₂単結晶中の D_U はReimannとLundy⁽²⁹⁾により測定され、次式で表わされる。

$$D_U = 6.8 \times 10^{-5} \exp(-98,300/RT) \quad (\text{cm}^2/\text{s}) \quad (20)$$

UO₂中の D_U については、Matzke⁽³⁰⁾は新しく(21)式の結果を得ている。

$$D_U = 0.65 \exp(-129,000/RT) \quad (\text{cm}^2/\text{s}) \quad (21)$$

以上の陽イオンの自己拡散係数を、第3図に酸素イオンの自己拡散係数とともに示す。

(2) 不定比組成中の拡散

UO_{2+x}中の D_U はほぼ x^2 に比例して増大する⁽¹³⁾。同様な x^2 依存性が第4図に示す(U_{0.8}Pu_{0.2})O_{2+x}中の D_M ⁽³⁰⁾にも見られる。第4図で興味あることは、 x が低下して(U_{0.8}Pu_{0.2})O_{2-x}の組成になると再び D_M が増大することである。 D_M が極小値を示す組成は(この温度においては)O/M=1.98である。この組成を境界にして、O/M $\geq$ 1.98の領域では空孔機構が、O/M $\leq$ 1.98では格子間機構が支配的で、さらにO/Mが小さくなり1.95以下になると、クラスター機構が支配的になると解釈されている。

このようにアクチノイド酸化物において、 D_M がO/M比に強く依存し、O/M $<$ 2に極小値が存在することは、燃料に関する種々の拡散律速現象を理解する上に心得ておくべきことである。

IV. 螢石型構造中のイオンの拡散特性

螢石型構造からなる結晶中の陰イオンと陽イオンの拡散特性はその副格子構造と密接な関係がある。すなわち、単純立方格子を構成する陰イオンの方が、面心立方格子を構成する陽イオンに比べて大きな拡散係数

第4図 $(U_{0.8}Pu_{0.2})O_{2\pm x}$ 中のPuの自己拡散係数のO/M比依存性

を有し、活性化エネルギーは小さい。この解釈が正しいならば、逆螢石型構造(螢石型構造から陰イオンと陽イオンの格子が逆転した構造)の中では、陰イオンと陽イオンの拡散特性が逆転するはずである。この予想は逆螢石型構造の Li_2O について実験的に確かめられている。第5図に示すように、 $D_{Li^{(1)}}$ の方が $D_{O_{xy}^{(2)}}$ より

第5図 逆螢石型立方晶 Li_2O 中のLiと酸素イオンの自己拡散係数

活性化エネルギーが小さく、絶対値が大きい。

螢石型結晶中の拡散特性をそれぞれの物質の融点で整理した結果⁽²⁰⁾を第6図に示す。横軸は融点 T_m で規準化された温度を示す。直線の勾配は $Q/T_m R$ を与える。面心立方格子上の遅い方のイオンについては、 Li_2O 中の $D_{O_{xy}}$ を含めてすべて狭い範囲におさまる、その外挿値が $T_m/T=1$ すなわち融点において、 $10^{-8} \sim 10^{-9} \text{ cm}^2/\text{s}$ の値に収束する(純金属の場合にも同様な傾向が認められている⁽²¹⁾)。 Q/T_m の大きさ $40 \sim 50 \text{ cal/mol} \cdot \text{K}$ は、螢石型構造および逆螢石型構造中の面心立方格子上的イオンの拡散に固有な値と考えられる。

第6図 螢石型および逆螢石型立方晶の自己拡散係数
 T_m : 融点

単純立方格子上的速い方のイオンについては、 T_m への外挿値が $\approx 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{s}$ に収束する傾向が見られる。この値は液体の自己拡散係数のほぼ上限に相当する。すなわち、速い方のイオンは融点よりかなり下の温度ですでに液体的挙動をしていることは明らかで、これが螢石型立方晶物質の高いイオン導電性の原因である。固体としての剛性は遅い方のイオンにより保持され、その中で速い方のイオンが高い自由度をもって移動しているのが螢石型立方晶の特徴といえよう。

V. あとがき

定比組成の螢石型立方晶酸化物については陰・陽両イオンの拡散特性はかなり解明されている。しかし、不定比組成の MO_{2+x} 中の拡散機構やこれに関連する陽イオン点欠陥濃度の熱力学の理論的問題の解明には、今後の実験研究にまつとが多い。この目的のためにも、また燃料に関する実際問題に対しても、(U, Pu) O_{2-x} および (U, Th) O_{2+x} についての拡散の研究は重要である。

本稿では成分イオンの自己拡散について述べたが、燃料に関する実際問題には、酸化・還元、酸素の再分布、陽イオンの相互拡散など化学拡散の問題がある。また、螢石型多結晶体では、陽イオンの拡散は粒界で促進される(酸素イオンの拡散は抑制される可能性がある)ので、格子拡散係数と粒界拡散係数を分離測定する必要がある。

—参考文献—

- (1) OISHI, Y., KAMEI, Y., AKIYAMA, M., YANAGI, T.: *J. Nucl. Mat.*, **87**, 341 (1979).
- (2) ANDO, K., AKIYAMA, M., OISHI, Y.: *ibid.*, **95**, 259 (1980).
- (3) MARIN, J.F., CONTAMIN, P.: *ibid.*, **30**, 16 (1969).
- (4) OISHI, Y., KINGERY, W.D.: *J. Chem. Phys.*, **33**, 480 (1960).
- (5) REED, D.J., WUENSCH, B.J.: *J. Am. Ceram. Soc.*, **63**, 88 (1980).
- (6) HADARI, Z., KROUPP, M.: *J. Appl. Phys.*, **42**, 534 (1971).
- (7) MURCH, G.E., BRADHURST, D.H., DEBRUIN, H.J.: *Phil. Mag.*, **32**, 1141 (1975).
- (8) NANBA, M., OISHI, Y., ANDO, K.: *J. Chem. Phys.*, **75**, 913 (1981).
- (9) ANDO, K., OISHI, Y., HIDAKA, Y.: *ibid.*, **65**, 2751 (1976).
- (10) MATZKE, H.J.: "Plutonium and Other Actinides", (Eds. Blank, H., Lindner, R.), p801 (1976), North-Holland Publ. Amsterdam.
- (11) CATLOW, C.R.A.: *Proc. R. Soc. (London)*, **A353**, 533 (1977).
- (12) SUGISAKI, M.: *J. Nucl. Mat.*, **79**, 338 (1979).
- (13) MATZKE, H.J.: *J. Phys.*, C9, **34**, 317 (1973).
- (14) EDWARDS, H.S., ROSENBERG, A.F., BITTEL, J.T.: Aeronautical Systems Division, Wright-Patterson Air Force Base, OH, *ASD-TDR-63-635*, (1963).
- (15) ANDO, K., OISHI, Y.: *J. Nucl. Sci. Technol.*, **16**[3], 214 (1979).
- (16) AUSKERN, A.B., BELLE, J.: *J. Nucl. Mat.*, **3**, 267 (1961).
- (17) DEATON, R.L., WIEDENHEFT, C.J.: *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **35**, 649 (1973).
- (18) BELLE, J.: *J. Nucl. Mat.*, **30**, 3 (1969).
- (19) CONTAMIN, P., BACMANN, J.J., MARIN, J.F.: *ibid.*, **42**, 54 (1972).
- (20) MURCH, G.E., THORN, R.J.: *ibid.*, **71**, 219 (1978).
- (21) BREITUNG, W.: *ibid.*, **74**, 10 (1978).
- (22) KIM, K., OLANDER, D.R.: Materials and Molecular Res. Div., *Annu. Rep. 1979*, p 222, Lawrence Berkeley Lab., Univ. of Calif., Berkeley, Calif.
- (23) FLOYD, J.M.: *Ind. J. Technol.*, **11**, 589 (1973).
- (24) KINGERY, W.D., PAPPIS, J., DOTY, M.E., HILL, D.C.: *J. Am. Ceram. Soc.*, **42**, 393 (1959).
- (25) SIMPSON, L.A., CARTER, R.E.: *ibid.*, **49**, 139 (1966).
- (26) 大石行理, 安藤 健, 秋山雅夫: 日 化, 1445 (1981).
- (27) KING, D.A.: *J. Nucl. Mat.*, **38**, 347 (1971).
- (28) MATZKE, H.J.: *J. Phys.*, C7, **37**, 452 (1976).
- (29) REIMANN, D.K., LUNDY, T.S.: *J. Am. Ceram. Soc.*, **52**, 511 (1969).
- (30) MATZKE, H.J.: *Proc. Int. Conf. Fast Breeder Reactor Fuel Performance*, p202 (1979), ANS.
- (31) SHEWMON, P.G.: "Diffusion in Solids", (1963), McGraw-Hill.

○IAEA・保障措置の最近の進歩○

国際シンポジウム

Int. Symp. on Recent Advances
in Nuclear Material Safeguards

1982年11月8～12日(ウィーン)

Topics

- A. Safeguards for Existing Nuclear Facilities
 - ① Approaches and Experience
 - ② Effectiveness Assessment
- B. Materials Accountancy (Conventional and Near-Real-Time)
 - ① Concept and Applications
 - ② In-Process Physical Inventory Measurements
 - ③ Evaluation of Sequential Material Balance Data
- C. Use of Process Instrumentation in IAEA Safeguards
- D. Containment-Surveillance in IAEA Safeguards
 - ① Optical Surveillance in IAEA Safeguards

- ② Extended C-S Concepts and Applications
- ③ Hardware Development for Extended C-S Systems
- ④ C-S Instrumentation (Poster session)

E. Destructive and Non-Destructive Measurement and Verification Techniques

- ① Measurement or Verification of Spent LWR Fuel
- ② Installed Measurement Instrumentation
- ③ Field Test Instrumentation
- ④ Destructive and NDA Measurement and Verification Techniques (Poster Session)

F. Verification in International Safeguards

- (1) 参加申込および論文提出申込

(各英文1部, コピー4部)

3月23日

- (2) 論文サマリー(英文(800語以内)1部, コピー10部) 同上

- (3) 本論文の提出は、IAEA事務局から論文サマリーによる選考結果の通知があった後、入選者から直接1982年10月4日までに6部 Science Secretary に送付する。

問合せ・提出先 (〒100)千代田区霞ヶ関2-2-1

科学技術庁原子力局調査国際協力課

(Tel. 03-581-5271)