

二酸化炭素의 放射線分解 (第 1 報).  
알코올類 및 알데히드類 添加의 影響

晋俊夏<sup>†</sup> · 崔相峯 · 邊衡直\* · 崔載鎔\*

서강대학교 이공대학 화학과

\*한국에너지연구소

(1982. 2. 11 접수)

Gamma-Radiolysis of Carbon Dioxide (I).  
Effect of Addition of Alcohols and Aldehydes

Joon Ha Jin<sup>†</sup>, Sang Up Choi, Hyung Chick Pyun\* and Jae Ho Choi\*

Department of Chemistry, Sogang University, Seoul 121, Korea

\*Korea Advanced Energy Research Institute, Seoul 130-02, Korea

(Received Feb. 11, 1982)

**요 약.** 일산화탄소를 생성시키기 위한 이산화탄소의 감마선분해반응(총흡수선량 6.7 Mrad)에서 몇 가지 유기물의 첨가효과를 연구하였다. 순수한 이산화탄소를 조사할 때는 일산화탄소가 생성되지 않았으나 첨가제를 가한 경우 상당량의 일산화탄소가 생성되어 0.5%의 메탄올 및 0.25%의 에탄올의 첨가에 의해 각각 4.1 및 4.6의 최대 G(CO)값을 얻었다. 또 1%의 포름알데히드 첨가에 의해서는 가장 높은 수율인 8.4의 G(CO)값을 보였고, 1% 아세트알데히드의 경우는 6.3의 G(CO)값을 보였으며 40 Mrad에서 최대일산화탄소농도 0.65%를 얻었다.

**ABSTRACT.** The gamma radiolysis of CO<sub>2</sub>, in the presence of organic additives, was studied at the total absorbed dose of 6.7 Mrad. Considerable quantity of CO was produced by adding these additives to CO<sub>2</sub>, though no CO was found without them. The maximum G(CO) values of 4.1 and 4.6 were obtained by addition of 0.5% methanol and 0.25% ethanol, respectively. The G(CO) values of 6.3 and 8.4 were noted by the addition of 1% acetaldehyde and 1% formaldehyde, respectively. The maximum CO concentration of 0.65% was obtained by the addition of 1% acetaldehyde at the dose of 40 Mrad.

1. 서 론

이산화탄소의 방사선분해반응에 대한 첫연구는 Cameron과 Ramsay<sup>1</sup>가 라돈을 방사선원으로 수온존재하에서 이산화탄소를 조사하여 일산화탄소와 산소를 얻은 것이었다. 그 후 Wourtz<sup>2</sup>이나 Lind<sup>3</sup> 등에 의해서도 비슷한 실험이 있었으나 순수한 이산화탄소의 방사선분해는 1955년 Harteck<sup>4</sup> 등에 의해 처음 보고되었다. 한편 Corney<sup>5</sup>, Steinberg<sup>6</sup>, Anderson<sup>7</sup> 등은  $5 \times 10^{19}$

$\text{eVg}^{-1} \text{sec}^{-1}$  이하의 저선량율에서 순수한 이산화탄소는 방사선에 거의 안정하여 G(CO)값이 0.1 이하임을 보고하였고, Meaburn<sup>8</sup> 등은  $5 \times 10^{24}$   $\text{eVg}^{-1} \text{sec}^{-1}$ , Willis<sup>9</sup> 등은  $2 \times 10^{27}$   $\text{eVg}^{-1} \text{sec}^{-1}$  정도의 펄스조사로 각각 6.0 및 7.8의 G(CO)값을 얻었다. 또 Anderson<sup>10</sup> 등은 중간정도의 선량율인  $10^{20}$   $\text{eVg}^{-1} \text{sec}^{-1}$  전후의 양성자조사로서 G(CO)값 4.25를 얻었다.

이러한 실험결과들로부터 G(CO)값이 선량율 감소에 따라 감소되며 선량율에 따라 대략 그

선량율의 평방근에 비례하는 일정한 일산화탄소 농도<sup>11</sup>의 정류상태(steady-state)를 가진다는 것을 알았다. 이는 저선량율조사시에는 생성된 일산화탄소가 산소와 재결합하는 역반응이 많이 일어나기 때문인 것으로 알려져 있다.<sup>12</sup>

여러 연구자들은 감마선조사와 같은 저선량율에서도 일산화탄소의 높은 수율을 얻기 위해 역반응을 억제시키는 여러가지 첨가제의 효과를 연구하였다. 즉 Steinberg<sup>6</sup>, Anderson<sup>7</sup> 등은 감마선조사시 이산화질소를 첨가하여 3.5~4.5의 G(CO)값을 얻었고, Sato<sup>13</sup> 등은 0.55%의 프로판올을 첨가하여 4.5의 G(CO)값을 얻었다. 그외 수소<sup>3</sup>, 메탄<sup>14</sup>, 에탄<sup>15</sup>, 이산화황<sup>7</sup> 등을 첨가한 실험에서도 첨가제의 종류와 반응조건에 따라 차이가 있으나 상당한 수율을 얻을 수 있었다.

이산화탄소의 방사선분해에 관한 연구는 초기에 방사선화학의 기초연구 및 원자로의 부식문제<sup>16</sup> 등에 관련되어 연구되었으나 최근에는 폐기 핵연료등으로부터 방출되는 방사선에너지를 화학에너지로 변환시켜 회수하는 것을 목적으로 하여 "방사선을 이용한 수소제법"<sup>17</sup>의 중요한 공정으로서 많이 연구되었으며 미국<sup>18</sup> 및 독일<sup>19</sup> 등에서는 이미 역반응을 억제시키는 첨가제와 공정에 관한 특허가 등록된 바 있다.

본 실험에서는 코발트-60 감마선을 이용한 이산화탄소 방사선분해반응에 대한 효과적인 첨가제를 찾기위해 역반응을 일으키는 산소라디칼이나 음이온포획제로서의 작용이 기대되는 알데히드류 2종 및 알코올류 2종등의 첨가효과를 검토하여 보았다.

## 2. 실험

시 약. 이산화탄소와 프로판올 공업용 이산화탄소 및 공업용 프로판올 진공조작장치 내에서 액체질소를 사용하여 응축시키고 비응축성분은 제거한 다음 다시 녹이면서 초기에 방출되는 기체를 제거하는 방법을 반복하여 정제하였다. 아세트알데히드(Eastman Organic Chemicals 사 제품), 메탄올(Merck 계 분석용) 및 에탄올(Merck 계 분석용)도 진공조작장치내에서 정제하였다. 포름알데히드는 포르말린(일본 Wako 제 1 급시

약) 시약병에 침전된 파라포름알데히드를 진공 건조한후 가열 발생시켜 사용하였다.

시료의 제조. 유리용기(내경 16 mm 의 Pyrex 유리, 용량 20 cc)를 진공조작장치에 연결, 가열 탈기(degassing)한 다음 포름알데히드, 아세트알데히드, 메탄올, 에탄올, 프로판올이 일정량 혼합된 이산화탄소를 액체질소를 사용하여 용기에 응축시킨 후 진공상태에서 화염으로 밀봉하였다. 이때 용기내 모든 시료기체의 압력은 분석에 적합한 3기압이 되도록 하였다.

방사선조사. 방사선조사에는 한국에너지연구소가 보유하고 있는 약 5,000 Ci 의 코발트-60 감마선조사장치를 사용하여 선원중심으로부터 10 cm 거리에서 조사하여 선량율을  $3 \times 10^5$  rad/hr 로 하였고, 흡수선량이 6.7 Mrad 가 되게 하였다. 선량측정에는 Fricke 선량계<sup>20</sup>를 사용하였다.

생성물의 분석. 분석에는 가스크로마토그래프를 사용하였다. 헬륨을 운반기체(carrier gas)로 사용하였고 TCD 검출기로 측정하였다. 크로마토그래프분리관(column)은 이산화탄소의 분리를 위한 길이 75 cm(안지름 3 mm)의 실리카겔관과 산소, 질소, 일산화탄소, 메탄등의 분리를 위한 길이 150 cm(안지름 3 mm)의 Molecular Sieve 5 X 관을 사용하였다. 기체의 유로는 기체시료주입기(gas sampler)→실리카겔 관→검출기 I→Molecular Sieve 5 X 관→검출기 II의 순으로 유로를 형성하여 1회의 시료주입으로 이산화탄소와 일산화탄소등이 동시에 검출되도록 하였다. 시료의 주입에는 2 cc 기체시료주입기를 사용하였다.

G(CO)값의 계산. 이산화탄소의 방사선흡수선량( $D_{CO_2}$ )은 Fricke 선량계에 의해 측정된 선량( $D_F$ )을 물과 이산화탄소의 전자밀도의 비로 환산하여 구했다.

$$D_{CO_2} = D_F \times \frac{A_{CO_2}/M_{CO_2}}{A_{H_2O}/M_{H_2O}} = 0.9 \times D_F$$

(A : 원자번호의 합, M : 분자량)

G(CO)값은 흡수방사선에너지 100 eV 당 생성된 생성물의 갯수이므로 이산화탄소가  $D_{CO_2}$  Mrad 의 방사선에너지를 흡수하여 전체이산화탄소중

$x$  % 가 일산화탄소로 변환되었다면  $G(\text{CO})$  값은 다음과 같다.

$$G(\text{CO}) = \frac{6.023 \times 10^{23} \left( \frac{1}{\text{mole}} \right) \times \frac{x}{100} \times \frac{1(\text{mole})}{44(\text{g})}}{D_{\text{CO}_2} \times 10^6 (\text{rad}) \times \frac{100(\text{erg} \cdot \text{g}^{-1})}{1(\text{rad})} \times \frac{6.25 \times 10^{11} (\text{eV})}{1(\text{erg})} \times \frac{1}{100(\text{eV})}} = 219 \times \frac{x(\%)}{D_{\text{CO}_2} (\text{Mrad})}$$

3. 결 과

순수한 일산화탄소만을 주입하고 감마선을 조사한 경우, 본 실험의 분석방법에 의해서는 일산화탄소가 검출되지 않았다. 그러나 다음과 같이 첨가제를 가한 경우 상당한 일산화탄소수율을 얻을 수 있었다.

**알코올류의 첨가효과.** 0.25~3 %의 메탄올 및 에탄올의 첨가에 따른  $G(\text{CO})$  값의 변화는 각각 Fig. 1 및 2와 같다. 메탄올의 경우 0.5 %에서  $G(\text{CO})$  값이 최대치 4.1을 보였고 에탄올은  $G(\text{CO})$  값이 좀더 빨리 증가하여 0.25 %에서 최대치 4.6을 나타낸 다음 알코올의 농도가 증가됨에 따라 약 0.5 정도 감소하여 2 % 이상에서는 거의 일정한  $G(\text{CO})$  값을 보였다.

**알데히드류의 첨가효과.** 0.1~5 %의 포름알데히드 및 아세트알데히드 첨가에 따른  $G(\text{CO})$  값과  $G(\text{CH}_4)$  값의 변화는 각각 Fig. 3 및 4와 같다. 1 %의 포름알데히드 첨가시에는 8.4의  $G(\text{CO})$  값을 보였고 1 %의 아세트알데히드 첨가시는 6.3의  $G(\text{CO})$  값을 보였다. 포름알데히드의 경우 1 % 이하에서는  $G(\text{CO})$  값이 급격히 증가하였으나 1 % 이상에서는  $G(\text{CO})$  값이 완만히 증가하여 2 %에서 9.0의 값을 보인 후 그 이상에서는 거의 일정한 값을 보이는 반면, 아세

트알데히드는 저농도에서 급격히 증가한 후 0.5 % 이상에서는 완만한 증가가 5 %까지도 계속되었다. 아세트알데히드 첨가시는 상당량의 메탄이 생성되었는데, 그  $G(\text{CH}_4)$  값은 첨가량에 비례하여 Fig. 4에서 보는 바와 같이 첨가농도와 직선관계를 보였다.

아세트알데히드 1 %를 첨가하여 6.7~100 Mrad의 방사선을 조사시킨 시료들의 총흡수선량에 따른  $G(\text{CO})$  값의 변화 및 생성된 일산화

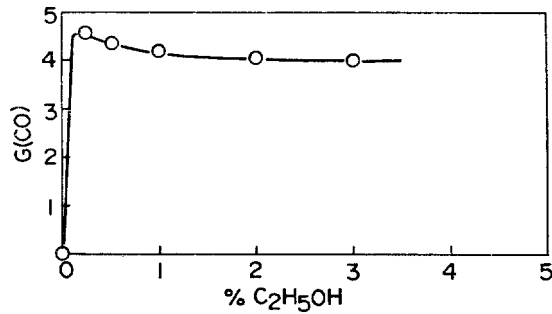


Fig. 2. Effect of ethanol addition on  $G(\text{CO})$ .

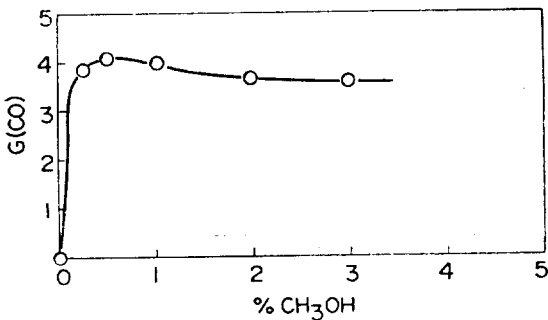


Fig. 1. Effect of methanol addition on  $G(\text{CO})$ .

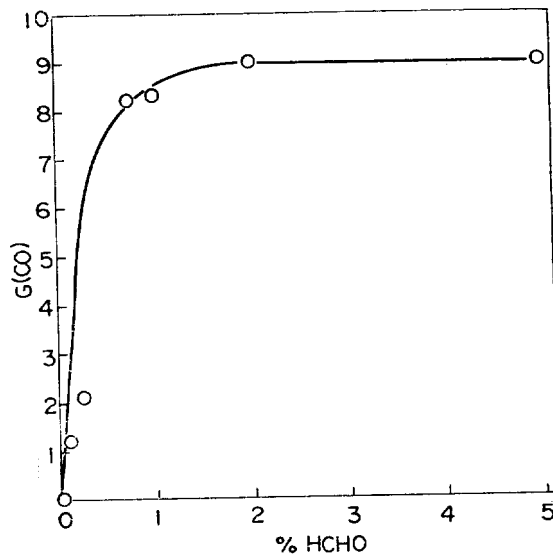


Fig. 3. Effect of formaldehyde addition on  $G(\text{CO})$ .

탄소의 량(백분율)의 변화는 Fig. 5와 같다. G(CO)값은 초기의 6.7 Mrad에서는 6.2였으나 총선량의 증가됨에 따라 점점 감소하여 100 Mrad

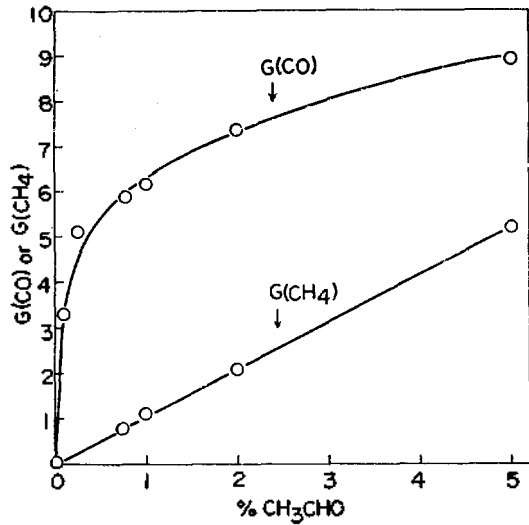


Fig. 4. Effect of acetaldehyde addition on G(CO).

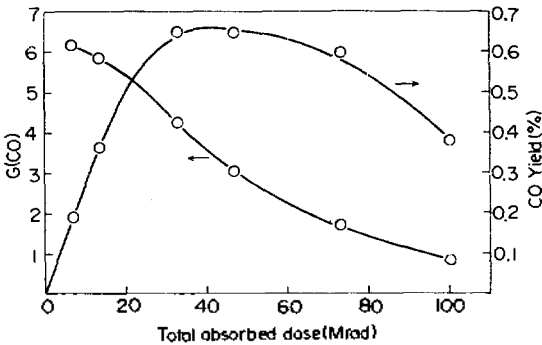


Fig. 5. Dose dependence of G(CO) and CO yield from CO<sub>2</sub> with 1% acetaldehyde added.

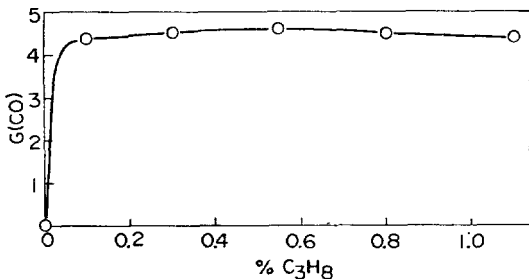


Fig. 6. Effect of propane addition on G(CO).

에서는 1.0 이하로 낮아졌다. 생성된 일산화탄소의 최대농도는 0.65%까지 얻을 수 있었으며, 이 때의 총선량은 40 Mrad이었다. 40 Mrad 이후에는 일산화탄소의 농도가 오히려 감소하여 100 Mrad에서는 0.4% 이하가 되었다.

프로판의 첨가효과. 0.1~1.1%의 프로판 첨가에 따른 G(CO)값의 변화는 Fig. 6과 같다. 이 농도범위에서는 대개 비슷한 G(CO)값을 보였으나 그 최대값은 4.6으로 프로판농도가 약 0.5% 부근인 것으로 보인다.

#### 4. 고 찰

이산화탄소의 감마선분해반응에서 메탄을 등 유기물질 첨가의 영향을 조사한 실험결과를 종합하면 Table 1과 같다. 이중 프로판이외의 첨가제는 본 실험에서 처음 시도하여본 것으로서 모두 4이상의 G(CO)값을 나타내는 좋은 결과를 얻었다. 이들중 알데히드류가 가장 효과가 좋아 모두 6이상의 G(CO)값을 보였으며, 특히 포름알데히드는 G(CO)값 8.4(1% 첨가시)~9.0(2% 이상 첨가시)을 나타내어 본 실험의 다른 첨가물이나 타연구자들이 선택한 어떤 첨가물보다도 월등히 높은 G(CO)값을 보였다.

아세트알데히드 첨가의 경우(Fig. 4)는 다른 첨가제에서의 곡선형태와 달리 5%까지도 G(CO)가 계속 증가됨을 알 수 있다. 또한 분석시 상당량의 메탄이 검출되었는데 그 이유는 첨가된 아세트알데히드가 분해되어 일산화탄소와 메탄이 생성되기 때문으로 생각된다. Dohmaru<sup>21</sup> 등은 순수한 아세트알데히드증기의 감마선분해 실험(조사온도 26°C)에서 주된 생성물은 메탄

Table 1. G(CO) values from gamma-irradiated carbon dioxide with additives. (absorbed dose : 6.7 Mrad)

Additives	Optimum concentration	G(CO) value
Methanol	0.5%	4.1
Ethanol	0.25%	4.6
Formaldehyde	2.0%	9.0
Acetaldehyde	1.0%	6.3
Propane	0.55%	4.6

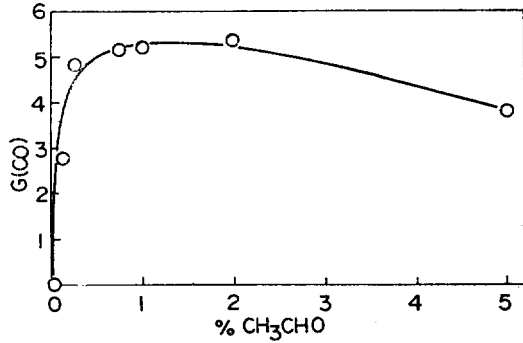
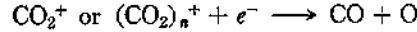


Fig. 7. Effect of acetaldehyde addition on net G(CO) value from CO<sub>2</sub>.

과 일산화탄소이며 G(CO)와 G(CH<sub>4</sub>)값이 모두 15.6으로 같은 값을 보고하였다. 아세트알데히드가 이산화탄소와 공존하는 본 실험의 경우 Dohmaru 등의 실험결과와 차이가 있을 것으로도 생각되나 그렇다 하더라도 메탄과 일산화탄소의 생성비율은 대략 1:1이 될 것이라고 생각된다. 따라서 Fig. 4의 윗 꼭선값에서 아래 꼭선값을 뺀 값은 이산화탄소로부터 생성된 일산화탄소에 대한 G(CO)값을 의미하게 될 것이다. 이렇게 하여 구한 Fig. 7은 다른 첨가제의 경우와 비슷한 형태의 꼭선을 보였다.

Fig. 1, 2, 3 및 7을 보면 미량의 첨가제가 존재하여도 G(CO)값이 상당히 증가됨을 알 수 있는데, 이는 이들 첨가제들이 효과적으로 역반응을 억제시키기 때문으로 생각된다. 역반응을 일으키는 물질의 종류나 그 반응기구는 아직 확실하게 알려져 있지 않으나 O, O<sub>3</sub>, O<sup>+</sup>, O<sub>2</sub><sup>+</sup>, O<sup>-</sup>, O<sub>2</sub><sup>-</sup>, CO<sub>3</sub><sup>-</sup>, CO<sub>4</sub><sup>-</sup> 등이 일산화탄소와 반응하는 것으로 알려져 있다<sup>22</sup>. 적당한 첨가제를 가하면 이러한 물질들은 일산화탄소와 반응하는 대신 첨가제와 더 빨리 반응하므로 역반응이 억제되는 것으로 생각된다.

Kummler<sup>12</sup> 등은 이산화탄소 방사선분해반응의 중간생성물인 CO<sub>2</sub><sup>+</sup> 이온(G(CO<sub>2</sub><sup>+</sup>) 값 2.83<sup>23</sup>) 또는 이것의 뭉치화합물(cluster)이 전자와 중화반응을 일으키면 일산화탄소를 생성하나, 음이온(A<sup>-</sup>)과의 중화반응으로는 일산화탄소가 생성되지 않는다고 하였다.



저선량용인 감마선을 사용한 본 실험에서는 열전자의 농도가 고선량용에서처럼 높지 못할 것으로 생각된다. 따라서 이 경우 CO<sub>2</sub><sup>+</sup> 이온은 주로 음이온과 반응하리라고 생각된다. 본 실험에서 메탄올, 에탄올, 아세트알데히드 첨가의 경우 Steinberg<sup>6</sup>나 Sato<sup>13</sup> 등이 이산화질소 및 프로판 첨가실험에서 얻은 것과 비슷한 4~5 정도의 G(CO)값을 보였는데 이것도 위와 같은 이유로 인하여 고선량인 경우의 G(CO)값<sup>9</sup> (7.8)보다 G(CO<sub>2</sub><sup>+</sup>)값(2.83)만큼 감소하였기 때문인 것으로 생각할 수도 있다.

그러나 포름알데히드의 경우는 8.4~9.0 정도의 높은 G(CO)값을 보여 다른 첨가제와는 다른 일산화탄소 생성반응이 있을 것으로 추측된다. 그 반응이 어떤 반응인지는 확실치 않으나 아세트알데히드의 경우와 같이 포름알데히드가 직접 분해되어 일산화탄소와 수소를 생성하는 반응이나 CO<sub>2</sub><sup>+</sup> 이온 또는 이것의 뭉치화합물이 포름알데히드와 반응하여 전자와의 중화반응에서처럼 일산화탄소를 생성시키는 반응 등이 가능하리라고 생각된다. 포름알데히드는 극미량의 수분이 존재하여도 파라포름알데히드로 중합하려는 성질이 강해 2% 이상의 첨가시에는 유리용기의 기벽에서 파라포름알데히드를 육안으로도 관찰할 수 있었다. 따라서 2% 이상의 첨가시에는 반응계중 포름알데히드의 농도는 거의 같고 파라포름알데히드의 량만 증가된 것으로 볼 수 있다. Fig. 3의 2% 이상에서 G(CO)값의 변화가 없는 것은 파라포름알데히드로부터는 일산화탄소가 거의 생성되지 않는다는 것을 의미하는 것으로도 생각된다.

Fig. 1, 2 및 7을 보면 1% 이하의 저농도에서 최대 G(CO)값을 보인 후 농도의 증가에 따라 감소하였다. 이것은 각첨가제가 역반응억제제로 작용할 뿐만 아니라 다른 어떤 종류의 일산화탄소 생성반응도 억제하는 작용을 하기 때문인 것으로 보인다. Ikezoe<sup>24</sup> 등은 프로판첨가 실험에서 이러한 감소현상은 CO<sub>2</sub><sup>+</sup> 이온이 프로판과 반응하므로써 이 이온으로부터 생성될 일

산화탄소가 생성되지 못하기 때문이라고 설명하였다. 그러나  $\text{CO}_2^+$  이온에 의한 일산화탄소의 생성이 제외되고 있는 저선량율인점과 특히 알코올류에서  $G(\text{CO})$  값의 감소(약 0.5 정도)가  $G(\text{CO}_2^+)$  값에 비해 아주 작다는 점 등을 감안하면 알코올류 첨가의 경우 다른 종류의 양이온, 즉  $\text{C}^+$  이온( $G(\text{C}^+)$  값<sup>23</sup> 0.07) 또는  $\text{CO}^+$  이온( $G(\text{CO}^+)$  값<sup>23</sup> 0.51) 등이 첨가제와 반응할 가능성이 더 클 것으로 추측된다. 포름알데히드의 경우 이러한 감소현상이 없는 것은 앞서 언급한 바와 같이 농도를 2% 이상 높이지 못했기 때문인지 아니면 이러한 정반응역계작용이 없기 때문인지는 확실치 않다.

Fig. 5에 1%의 아세트알데히드를 첨가한 시료에 대해 흡수선량에 따른 일산화탄소의 농도 및  $G(\text{CO})$  값을 보였는데, 이것은 프로판 1%를 첨가하여 100 Mrad에서 최대일산화탄소농도 0.8%를 보인 Sato<sup>13</sup> 등이 얻은 곡선과 비슷한 형태를 보였다. 다만 아세트알데히드의 경우에는 40 Mrad에서 최대일산화탄소농도 0.65%를 보여 Sato 등이 1 Mrad 당 0.008%의 일산화탄소를 얻은 것에 비해 아세트알데히드의 경우는 그 2배인 0.016%의 일산화탄소를 얻을 수 있었다. 40 Mrad 이상에서 일산화탄소의 농도가 감소되는 것은 40 Mrad 이전까지의 방사선조사에 의해 역반응을 저지시키는 첨가제가 거의 분해해버렸기 때문에 역반응이 일어나기 때문으로 추측된다.

프로판첨가실험은 타 실험과의 비교에 의해 본 실험의 신뢰도를 측정하기 위해 실시하였던바, 프로판농도 0.55%에서 4.6의  $G(\text{CO})$  값을 얻어 같은 농도에서 4.5를 얻은 Sato<sup>13</sup> 등의 결과와 좋은 일치를 보였다.

## 5. 결 론

이산화탄소에 선량율  $3 \times 10^6 \text{ rad/hr}$ 인 코발트-60 감마선을 6.7 Mrad 조사시켜 일산화탄소를 생성시키는 반응에서 몇가지 유기물의 첨가효과를 연구한 본 실험의 결과는 다음과 같다.

1. 첨가제 없이 순수한 이산화탄소만을 조사한 경우에는 일산화탄소가 거의 생성되지 않았

다.

2. 0.5%의 메탄올 또는 0.25%의 에탄올 첨가에 의해 각각 4.1 및 4.6의  $G(\text{CO})$  값을 얻었다.

3. 1%의 아세트알데히드 또는 포름알데히드 첨가에 의해 각각 6.3 및 8.4의 높은  $G(\text{CO})$  값을 얻었다.

4. 0.55%의 프로판 첨가에 의해 4.6의  $G(\text{CO})$  값을 얻었다.

5. 1%의 아세트알데히드 첨가시 40 Mrad 조사에 의해 최고일산화탄소농도 0.65%를 얻었다.

본 연구는 문교부의 1980년도 정책연구과제 학술연구조성비에 의해 이루어진 것으로 문교부 당국에 감사사를 드린다.

## 인 용 문 헌

1. A. T. Cameron and Sir W. Ramsay, *J. Chem. Soc.*, **93**, 967 (1908).
2. E. Wourtsel, *Le Radium*, **11**, 332 (1919).
3. S. C. Lind and D. C. Bardwell, *J. Amer. Chem. Soc.*, **47**, 2675 (1925).
4. P. Harteck and S. Dondes, *J. Chem. Phys.*, **23**, 902 (1955).
5. N. S. Corney and T. B. Copestake, *Nature*, **191**, 1192 (1961).
6. M. Steinberg, Brookhaven National Lab. Report B.N.L. 665 (1961).
7. A. R. Anderson, J. V. Best and D. A. Dominey, *J. Chem. Soc.*, 3498 (1962).
8. G. M. Meaburn, D. Perner, J. LeCalvé and M. Bourène, *J. Phys. Chem.*, **72**, 3920 (1968).
9. C. Willis, A. W. Boyd and P. E. Bindner, *Can. J. Chem.*, **48**, 1951 (1970).
10. A. R. Anderson and J. V. Best, *Trans. Faraday Soc.*, **62**, 610 (1966).
11. A. R. Anderson and D. A. Dominey, *Radiat. Res. Rev.*, **1**, 289 (1968).
12. R. Kummler, C. Leffert, K. Im, R. Piccirelli and L. Kevan, *J. Phys. Chem.*, **81**(25), 2451 (1977).
13. S. Sato, Y. Ikezoe, S. Shimizu and H. Nakajima,

- JAERI-M 8490 (1979).
14. J. A. Hearne and R. W. Hummel, U. K. At. Energy Authority Report, AERE-R 6040 (1969).
  15. J. F. Riley and H. H. Carmichael, Oak Ridge National Lab. Report, O.R.N.L. 3994, 48 (1966).
  16. A. J. Wickham *et al.*, *Radiat. Phys. Chem.*, **10**(2), 107 (1977).
  17. A. Danno, *Chemical Economy & Engineering Review*, **6**(6), 7 (1974).
  18. J. G. Lewis *et al.*, *U.S. Patens Document* 4, 175, 016/A (1979).
  19. H. J. Gomberg, *German Pat.* 2, 953 (1975).
  20. W. H. Niels and J. B. Roger, "Manual on Radiation Dosimetry," Marcel Dekker Inc., N. Y., 1970.
  21. T. Dohmaru and S. Taniguchi, *Annu. Rep. Radiat. Center Osaka Prefect.*, **12**, 86 (1971).
  22. Y. Iezoe and S. Sato, *Bull. Chem. Soc. Japan*, **51**(1), 33 (1978).
  23. C. Willis and A. W. Boyd, *Int. J. Radiat. Phys. Chem.*, **8**, 71 (1976).
  24. Y. Iezoe and S. Sato, *J. Nucl. Sci. Technol.*, **13**(9), 503 (1976).