

## 저품위 무연탄의 처리에 관한 연구

이재장 · 전호석\* · 최우진\*\*

강원대학교 자원공학과, \*한국자원연구소, \*\*수원대학교

### Beneficiation of Low Grade Anthracites

Jae-Jang Lee, Ho-Seok Jeon\* and Woo-Jin Choi\*\*

Kangwon National Univ. Resources Eng.,

\*Korea Institute of Geol. Min. & Materials

\*\*Suwon Univ. Environmental Eng.

#### 요 약

국내산 무연탄의 경우 약 0.3~7% 정도의 황을 포함하고 있어 인소시 대기오염은 물론 산성비의 원인이 되는 SO<sub>x</sub> 및 NO<sub>x</sub> 등을 배출한다. 환경오염 문제에 대처하기 위한 화력발전소의 SO<sub>x</sub> 방출 허용기준치는 우리나라의 경우 1995년 500 ppm이지만 1999년에는 270 ppm으로 강화될 전망이다. 본 연구에서는 고구베 자선기를 이용하여 습식 자력선탄과 오일 응집에 의한 탈황의 가능성을 조사하였다. 자력선별법에서는 입도의 크기, matrix 종류, 팽액의 농도, 급광속도, 정선횟수 그리고 탄종변화 등을 실험한 결과 최적 실험조건에서 강릉지역산 시료의 석탄회수율은 82.1%, 황분제거율은 60.8% 이었다. 오일 응집 시험에서는 pH 변화, 응집제의 종류 및 첨가량, 팽액의 농도, 정선 그리고 탄화도등에 관하여 실험한 결과 마로산 시료의 석탄회수율 98.0%이었으며, 회 및 황의 제거율은 각각 70.9%와 95.7% 이었다.

#### ABSTRACT

Domestic coal contains approximately 0.3 to 7 percentage of sulfur. When the sulfur in coal is burned, exhaust gas may be the cause of air pollution problems as well as acid rain. The government decided to strengthen the environmental protection policy at the 270 ppm of SO<sub>x</sub> for the coal-fired plants and to start in Jan. 1, 1999. This study was carried out to remove the sulfur and mineral matters in the samples using wet magnetic separator and oil agglomeration apparatus. The results for the wet magnetic separation showed that the total sulfur removal from Kangnung coal sample was 60.8% with 82.6% combustible recovery. For the results of oil agglomeration tests, combustible recovery, ash and sulfur removal from Maro coal sample were 98.0, 70.9 and 95.7 percent, respectively.

#### 1. 서 론

석탄은 사용의 편의성, 환경에 미치는 영향, 경제적 측면 등과 함께 효율적인 선탄방법에 적합한 채탄방식의 선정 및 고질 정탄의 활용방법 등을 고려한 공급의 안정성을 가지고 앞으로 다가올 에너지 위기에 대처해야 한다. 이와 더불어 국내에서 생산되는 무연탄을 최적의 선탄공정으로 저회분, 저황분의 고질정탄을 생산하고, 이것을 대단위 또는 중단위 보일러의 연료로 사용할 수 있도록 기술적인 제고

가 필요하다.

우리나라 무연탄의 경우 석탄입자 내에 점토광물이나 황 철석 등의 여러가지 불순물들이 미립상태로 포함되어 있으므로 양질의 정탄을 생산하기 위해서는 미립으로 분쇄하여 선탄처리를 해야 한다.

본 연구에서는 국내산 무연탄의 탈황 및 탈회에 대하여 고구베 습식 자력선별법과 기름 응집법을 적용할 경우 영향을 미치는 여러가지 실험변수에 대하여 실험조사하였다. 고구베 자력선별기는 석탄으로부터 무기황분이나 약자성체

Table 1. Proximate analysis of coal samples

Sample	Ash, %	Volatile Matters %	Fixed Carbon %	Sulfur, %
Kangnung	71.3	6.9	21.0	1.3
Samchok 1	52.9	4.5	42.6	2.3
China	33.5	15.6	50.6	3.1
Maro	29.0	1.2	67.4	0.2
Samchok 2	41.5	1.3	53.0	1.1

인 회분을 제거하는데 경제적이며 효과적이다. 순수한 석탄은 약  $-0.5 \times 10^{-6}$  emu/gm의 값을 갖는 반자성체이지만 석탄 내 불순물인 황철석 및 무기물은 약자성을 띠므로 자력선별법에 의하여 제거할 수 있다. Trindade는 순수한 황철석의 경우 약자성체이므로 자력선별법으로 제거하기가 쉽지 않기 때문에, 예비 처리과정을 거쳐 자황철석으로 바꾸면 효과적으로 분리할 수 있다고 보고 하였다. Kester는 황철석을 전처리없이도 Frantz-Isodynamic 자력선별기를 이용하여 황함량이 2.34%인 석탄으로부터 0.37%까지 제거가 가능함을 발표하였으며, Ergun과 Bean은 6.24%에서 2.45%까지 황분을 제거하였다.

또한 선택 응집법을 국내산 무연탄에 적용할 경우 슬라임 상태로 버려지는 미립탄을 회수할 수 있어 선탄효율을 높일 뿐만 아니라(회수율 : 90%이상) 미립탄의 방류에 의한 수질오염을 막을 수 있으며 또한 양질의 정탄도 생산할 수 있다. 기름 응집법은 석탄 미립자의 처리에 효과적이므로 분화되기 쉬운 국내산 무연탄에 적용할 경우 효과적인 선탄방법이 될 수 있다. 오일에 의해 응집된 정탄은 응집물 속에 오일을 함유하고 있어 자연적으로 탈수가 이루어지며 운반이나 저장 중에 비산이 방지되고, 취급이 간편하다. 또한 흡습의 문제도 해결할 수 있다.

2. 시 료

영동 화력발전소에 공급되는 석탄의 공업분석 결과는 Table 1과 같다. 강릉탄전의 시료는 회분과 휘발분의 함량이 각각 71.3%와 6.9%이고 고정탄소는 21.0%이며, 황분은 1.3%인 재급탄이다. 삼척 1 시료는 황분의 제거효과를 알아보기 위하여 비교적 황함량이 많은 시료를 채택하였다.

중국산 시료는 휘발분과 황의 함량이 각각 15.6%, 3.1%로 다소 높으나 회분의 함량은 작은 것이 특징이다. 충북 보은군 소재 마로탄광의 흑연질 무연탄은 회분의 함량이

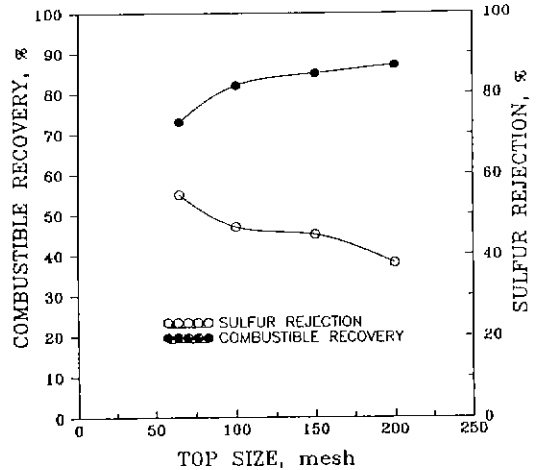


Fig. 1. The effect of feed size on combustible recovery and sulfur rejection by the wet magnetic separation.

29.0%이며 고정탄소는 67.4%로 비교적 원탄의 품위가 높으며, 황의 함량은 0.2%로 가장 적다. 삼척 2 시료는 정암 광업소에서 생산되는 일반탄이며, 회분과 황분의 함량이 각각 41.5%와 1.1%이며, 고정탄소는 53.0%로 품위는 낮고 황분의 함량이 높다.

3. 실험방법

자력선별 실험용 시료는 강릉탄전, 삼척 1 및 중국산이며, 오일 응집실험의 시료는 마로 및 삼척 2 시료이다.

습식 자력선별에 사용한 장치는 Eriez사의 Model L-4이다. 습식자력선별은 소정의 입도와 농도가 되도록 한 후, 자력선별기의 하단 밸브를 잠그고 상단의 광액탱크에 옮긴다. 광액은 일정한 속도로 교반하여 침전을 방지한다. 자력의 세기를 조절한 후 matrix의 하단의 밸브를 열어 일정 양의 광액이 matrix를 통과하게 한다. matrix를 모두 통과한 산물과 전원을 차단한 후 세척수로 matrix에 부착된 산물을 회수하여 분석하였다.

오일 응집실험에 사용한 시료는 attritor로 33.3%의 고체 농도에서 20분간 분쇄하였으며 이 때의 평균 입자 크기는 4.75 μm, 50% 통과크기는 4.13 μm, 90% 통과입도는 9.56 μm이었다.

시료에 소정량의 응집제 첨가량, 농도, 액성 등으로 변화시켜 응집한 후 65메시 체를 이용하여 석탄응집물을 맥석과 현탁액으로 분리하고 세척하여 석탄의 회수율과 회분 및 황분의 제거율을 구하였다.

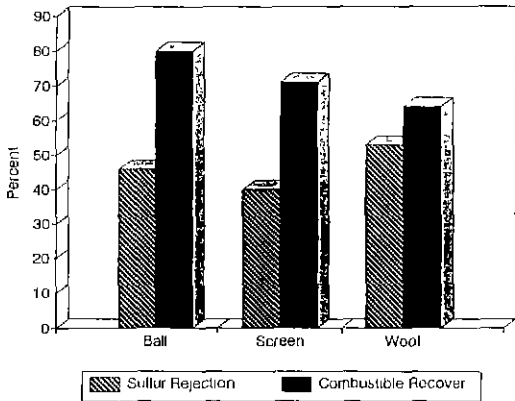


Fig. 2. The effect of Matrix types on combustibile recovery and sulfur rejection in the wet magnetic separation.

4. 실험결과 및 고찰

Fig. 1은 습식자력선별 실험에서 강릉탄전 시료의 입도변화에 따른 석탄회수율과 황분 제거율의 관계를 나타낸 것이다. 자기장의 세기가 2.0 tesla일 때 황분 제거율은 급광입도 65메시 이하일 때 54.4%로 가장 높으며, 이보다 입도가 작아지면 점차 감소되어 200메시 이하 입단에서는 37.6%로 65메시 이하 입단에 비해 16.8% 정도 낮게 나타났다. 석탄회수율은 65메시 이하에서 72.5%이며, 입도가 작아질수록 증가되어 200메시 이하에서는 87.3%로 높게 나타남을 알 수 있다.

이러한 현상은 시료 입자의 크기, 단체분리도와 matrix의 종류 및 자력의 세기가 다르기 때문이다. 또한 단체분리된 입자라도 미립화 정도에 따라 광액유동속도의 영향으로 matrix 즉, 자극에 부착되지 못하는 때도 있다. 실험결과 65메시 이하의 입도에서 황분제거율이 가장 크므로 황 제거만을 목적으로 하면 65메시 이하의 입도가 효과적임을 알 수 있다. 석탄회수율을 고려하면 100메시 이하 입도에서 황 제거율은 다소 낮지만(47.5%) 산출율은 82.5%로 높다. 또 100메시 이하 입단의 실제 응집산물의 황 함량은 0.7% 이고, 산출율은 82.5%로 크므로 100메시로 마광하는 것이 효과적일 것으로 사료된다.

Fig. 2는 matrix 종류에 따른 석탄회수율과 황제거율의 관계를 나타낸 것이다. 강릉탄전 시료를 2.0 T(tesla)에서 불을 matrix로 사용하였을 때 석탄회수율과 황제거율은 각각 82.1%와 47.2%를, 망을 사용했을 때는 72.0%와 41.6%를 그리고 강섬유는 각각 64.2%와 53.6%를 나타내었다. 석탄회수율은 불을 사용하였을 때 가장 높고, 황제거율은 강섬유를

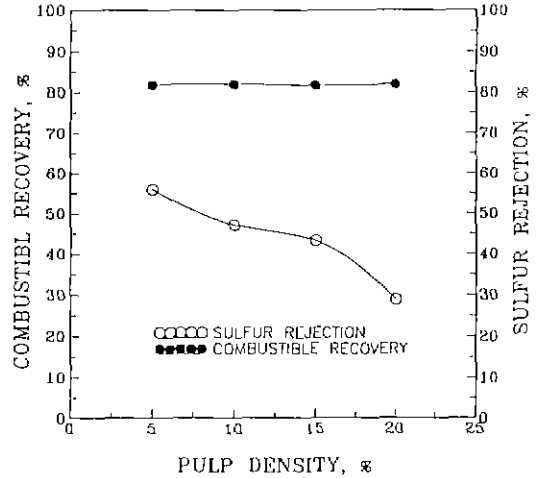


Fig. 3. The effect of pulp density on combustibile recovery and sulfur rejection in the wet magnetic separation.

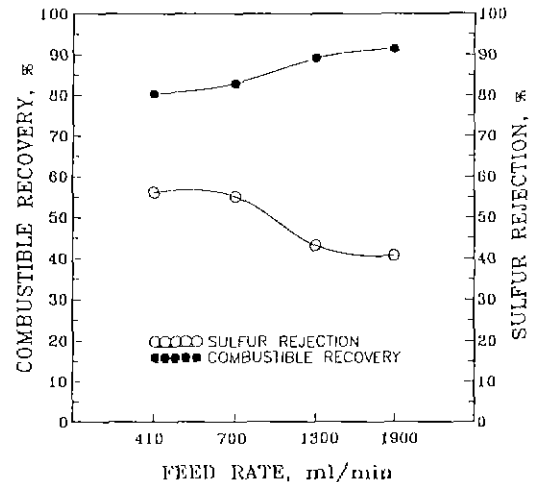


Fig. 4. The effect of feed rate on combustibile recovery and sulfur rejection in the wet magnetic separation.

사용한 경우가 가장 높게 나타났다. 불과 망의 결과를 비교하면 불을 사용한 때가 석탄회수율 및 황제거율에 있어서 각각 10.1%와 5.6% 가량 더 높아 불이 망보다 matrix로서는 효과적임을 알 수 있다. 또한 불과 강섬유의 비교에서는 황제거율은 강섬유가 6.4% 정도 높지만 석탄회수율은 16.9% 낮으므로 산출율을 고려하면 불이 82.1%로 64.2%인 강섬유보다 효과적임을 알 수 있다.

Fig. 3은 100메시 이하의 강릉탄전 시료에 대하여 광액의 농도를 5~20% 변화시켜 실험하였을 때 광액 농도 변화가 석탄의 회수율과 황의 제거율에 미치는 영향을 나타낸 결

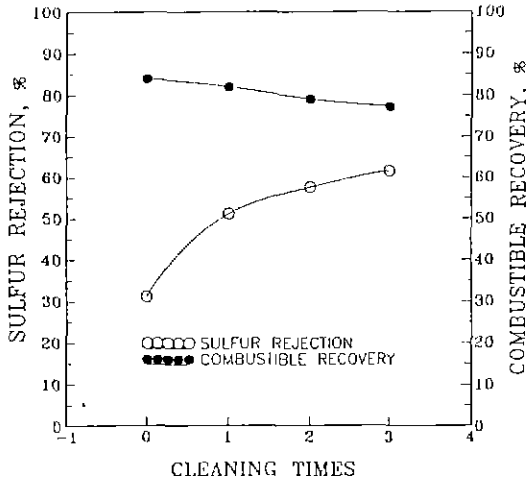


Fig. 5. The effect of cleaning times on combustible recovery and sulfur rejection in the wet magnetic separation.

파이다. 광액농도 5%에서 20%까지는 석탄회수율이 81.9%에서 82.0%로 큰 변화가 없으나, 황분제거율은 56.0%에서 28.01%로 27.2% 감소한다. 특히, 15%에서 20%사이의 황제거율의 감소폭이 큼을 알 수 있다.

일반적으로 분산제에서 고체의 농도가 15% 이하일 때는 자유침강상태가 지배적이므로 그 이상의 농도에서는 간섭침강효과 때문에 입자와 유체의 상대적 유동속도가 증가하여 불에 자성산물들이 부착하지 못하고 석탄입자들과 함께 거동하기 때문으로 보인다.

Fig. 4는 광액의 공급속도가 석탄 회수율과 황분 제거율에 미치는 영향을 조사하기 위하여 공급속도를 410 ml/min에서 1900 ml/min까지 변화시켜 100 mesh 이하의 입단에 대하여 5%의 광액농도에서 실험한 결과이다. 광액의 공급속도에 따른 석탄회수율은 410 ml/min에서 80.6%, 1900 ml/min에서는 91.5%로 전자의 경우보다 약 10.9% 증가하였다. 황제거율은 700 ml/min까지는 뚜렷한 변화를 보이지 않으나 이보다 공급속도가 큰 1900 ml/min에서는 40.8%로 700 ml/min일 때의 55.2% 보다 약 10.4% 감소함을 알 수 있다.

이러한 현상은 공급속도와 함께 입자의 유동속도가 크게 되어 약자성 광물들이 matrix에 부착되기 어려워 또한 부착된다 할지라도 쉽게 탈착된다. 공급속도의 변화실험 결과 산출율이 높고 황분제거의 효과가 큰 공급속도는 700 ml/min이 효과적임을 알 수 있다.

Fig. 5는 정선회수의 변화가 산출율과 황제거율에 미치는 영향을 나타낸 것이다. 조선의 경우 석탄회수율은 84.1%이

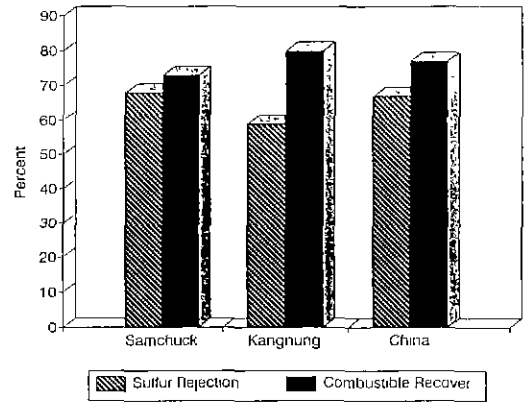


Fig. 6. Results of wet magnetic separation tests using different coal samples.

지만 정선회수가 3회일 때는 77.3%까지 완만하게 감소하였음을 알 수 있다. 정선회수의 증가에 따른 황제거율은 그 변화의 폭이 크다. 조선만 하였을 때는 황제거율은 31.2%로 비교적 낮지만 정선회수가 증가하면 황제거율도 점차 증가하여 정선회수 3회에서는 61.6%로 약 30.4%가 증가하였다. 이때 가장 큰 황제거율은 1회 정선했을 때이며, 조선의 경우와 황분제거율 차이의 폭은 약 19.0%이었다. 정선회수가 2회 이상일 때 산출율은 80.2%이고, 황제거율은 57.3%로서 산출율과 황제거율이 비교적 높으므로 2회 정선이 적당함을 알 수 있다.

Fig. 6은 광액의 농도; 5% solids, 광액 공급속도; 700 ml/min, 입도; 100 mesh 이하, 정선; 2회 그리고 matrix로 ball을 사용한 경우 삼척탄좌, 강릉탄전 그리고 중국산 시료에 대하여 자력선별 실험을 하였을 때 산지에 따른 산출율과 황제거율의 변화를 나타낸 것이다. 삼탄시료는 황제거율 69.3% 석탄회수율 74.6%를 얻었으며, 강릉탄전 시료는 황분제거율 60.8%, 석탄회수율 82.1% 그리고 중국시료의 황분제거율 67.3%, 석탄회수율 78.7%로서 산지에 따라 상당한 차이가 있음을 알 수 있다. 황분 제거율은 삼탄 시료가 가장 크며, 강릉탄전 시료가 최저값을 나타내지만, 석탄회수율은 강릉탄전 시료가 가장 높고, 삼탄시료가 가장 낮은 수치를 나타낸다. 이와같이 산지별 석탄시료가 황분제거율이나 석탄회수율에 영향을 미치는 것은 시료를 구성하고 있는 황화물의 종류에 따라 자성 차이와 각 시료의 단체분리도의 차이 때문인 것으로 사료된다.

Fig. 7은 pH 변화에 따른 kerosene 미립 방울의 표면전위 값에 미치는 영향을 나타낸 것이다. kerosene의 등전위점은 3.2로서 kerosene 표면은 pH3.2 아래에서 양으로 하전되며,

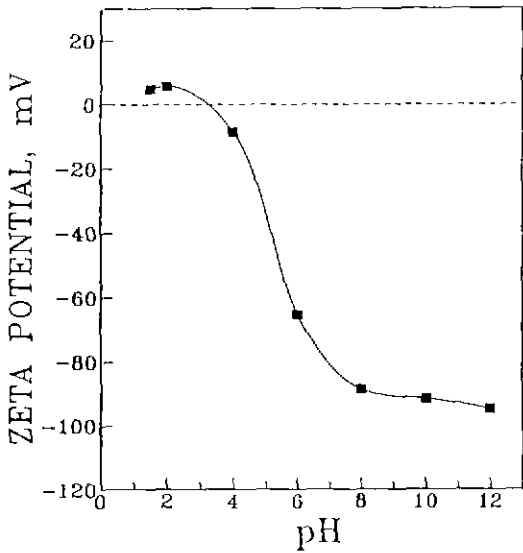


Fig. 7. Zeta potential of Kerosene as a function of pH.

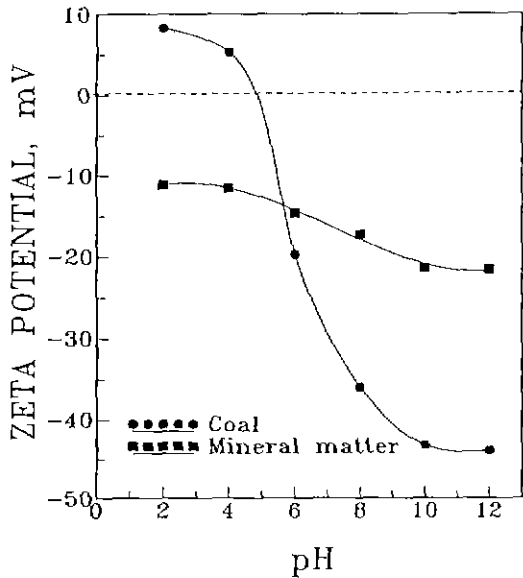


Fig. 8. Zeta potential of Maro coal and mineral matters as a function of pH.

pH3.2보다 큰 영역에서는 음으로 하전된다. pH2.0에서의 표면전위값은 5.6 mV를 보이나 pH 값이 증가함에 따라 그 값은 급격히 감소하며, pH 8.0에서는 -89.2 mV를 나타낼 수 있다. 응집제의 표면전위의 부호나 크기는 입자와의 전기적 상호작용에 의한 응집 및 분산에 밀접한 관계가 있다.

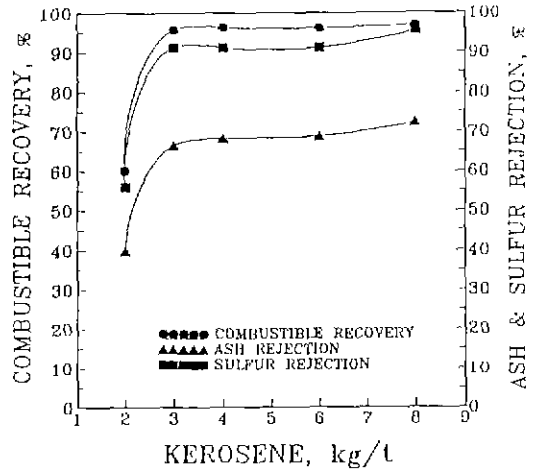


Fig. 9. The effect of kerosene dosage on combustible recovery, ash and sulfur rejection percent in the oil agglomeration of MarO anthracite.

Fig. 8은 마로산 시료를 구성하는 석탄과 광물질의 표면 전위를 측정 한 결과이다. 석탄 입자의 표면은 등전위점인 pH4.8 미만에서는 양으로 하전되고, 4.8보다 큰 pH 영역에서는 음으로 하전되며, pH12에서는 -43 mV에 도달함을 알 수 있다. 광물질의 표면전위는 시료를 이루는 점토질 물질이 각 pH 값에서 이들이 종합적으로 나타내는 표면전위값이다. 이들 광물질의 표면은 전구역에 걸쳐 음으로 하전되며 pH 2에서 -12.8 mV를 나타내고, pH 값의 증가함에 따라 하전량도 점차 증가하여 pH12에서는 -29.0 mV에 달한다. 특히 석탄입자 표면의 하전의 변화폭이 광물질 표면의 경우보다 크며, pH6.23에서는 -17.6 mV로 같은 값을 나타낼 수 있다. 석탄과 광물질을 분리하기 위해서는 동부호이며 표면전위값의 차이가 클 수록 상호분리에 효과적일 것으로 생각된다 그러나 응집은 주로 친유성 입자와 kerosene의 부착력에 의하며, 이 등전위점 이상의 영역에서는 석탄입자와 광물질의 표면전위의 부호가 반대이므로 상호분리에 효과적이지 못하다.

Fig. 9은 9.56 μm 미만의 입자가 90% 이상인 마로 시료에 대하여 kerosene의 첨가량을 2 kg/t에서 8 kg/t까지 변화시켰을 때 가연물의 회수율과 황의 제거율을 나타낸 것이다. kerosene의 첨가량을 3 kg/t으로 증가시키면 산출율, 회 및 황제거율은 각각 96.4%, 68.3% 및 91.3%에 달하며, 3 kg/t 이상에서는 석탄회수율과 회 및 황제거율의 변화가 크지 않음을 알 수 있다. 3 kg/t의 kerosene 첨가량은 변곡점으로 볼 수 있으므로 응집물의 안정을 위해서는 kerosene의 첨가량을 4 kg/t으로 하는 것이 바람직하다. 시료를 구성하고 있는

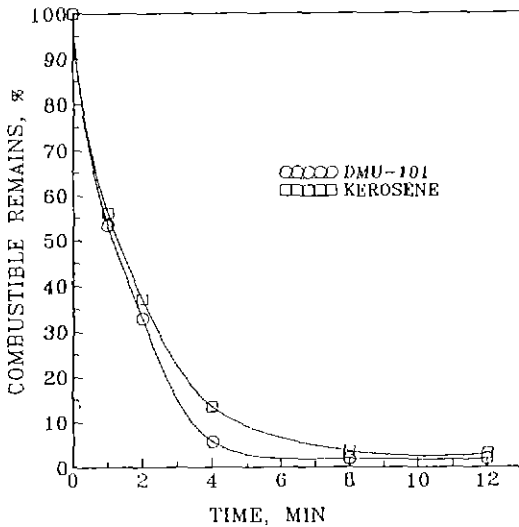


Fig. 10. Relationship between agglomeration time and combustible remains in the cell for Maro anthracite.

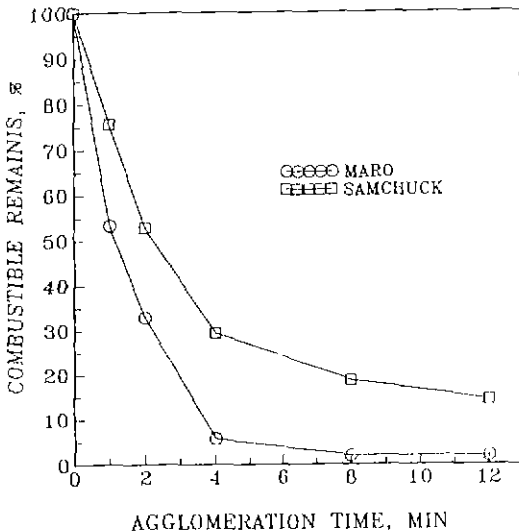


Fig. 11. Relationship between agglomeration time and combustible remains in the cell for Maro and Samchok 2 anthracite.

물결들과 응집제 사이의 소수성의 크기와 표면전위의 차이에 기인한 부착력이 큰 물질은 응집물을 형성하고, 부착력이 작은 입자들이 응집물 사이에 끼기도 하는데 이러한 약 소수성이나 친수성 입자는 탈리작업에서 제거된다.

Fig. 10은 응집물의 형성에 필요한 최소한의 시간을 알아

보고자 마로 탄에 대하여 응집시간만을 변화시켜 실험한 결과이다. 광액의 농도가 3.3%이고, kerosene의 첨가량은 4 kg/t으로 하였다. 응집실험의 시작 후 약 4분까지는 86% 정도가 응집되고, 응집시간 8분 후에는 약 96%가 응집되어 소수성의 탄질물은 거의 모두가 응집물을 형성하였음을 알 수 있다. 응집시간은 광액의 농도, 시료입자의 크기 및 표면의 성질, 응집제의 종류 및 첨가량, 교반속도 등에 영향을 받는다.

Fig. 11는 삼척탄좌에서 생산되는 일반탄인 삼척 2 시료와 탄화도가 높은 마로 시료에 대하여 응집물의 형성에 필요한 최소시간을 구하기 위하여 실험한 결과이다. 그래프의 유형은 비슷하나 마로시료가 삼탄시료보다 전반적으로 응집속도가 빠른 것을 알 수 있다. 마로탄의 경우 응집시간이 4분일 때 시료의 90% 정도가 응집되어 최대에 달하지만 삼탄 2는 응집시간이 8분일 때 약 80%가 응집물을 형성한다. 응집속도는 cell 안의 농도변화를 시간의 함수로 표현한 다음과 같은 식을 이용하였다.

$$\text{Agglomeration rate} = \frac{dC}{dt} = KCn$$

C : 현탁액 중 고체입자의 수량농도

t : 응집시간

K : 응집 속도상수

n : 상수

마로시료에 대한 응집속도 K는 2.14이고, 삼탄 2 시료는 1.44이므로 응집제 첨가량을 제외한 동일 조건에서는 마로 시료의 응집속도가 큼을 알 수 있다. Fig. 12에 나타난 바와 같이 최대 산출율은 마로시료의 경우는 8분이며 그 이상에서는 시험결과의 변화를 보이지 않지만 삼탄 시료는 10분까지도 큰 변화를 보이고 있다

### 5. 결 론

석탄은 비교적 저렴한 에너지 원이므로 고질 정탄의 생산에는 경제적인 선별법이 요구된다. 본 연구에서는 습식 자력선별 및 오일응집에 의한 선탄실험 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 강릉탄전 시료에 대한 고구배 습식 자력선별 실험에서 시료의 최적 입도는 100 mesh 이하 이었으며, 100 mesh 보다 입자가 커지면 제거율은 증가하나 석탄회수율이 감소하는 반면, 100 mesh 보다 입자가 작아지면 석탄회수율은 증가하나 황분제거율이 감소하였다.

2. matrix는 불이 효과적이었으며 감습유의 경우는 황제거

율이 볼보다 다소 높으나 석탄회수율이 낮았다. 광액의 농도는 5%에서 효과적이었고, 이보다 농도가 증가하면 석탄회수율에는 큰 영향을 미치지 않으나 황제거율이 감소하였다.

3. 강릉 시료를 5%의 광액으로 만든 뒤 자력선별기에 공급할 때 그 속도가 700 ml/min보다 증가하면 matrix의 주변을 통과하는 입자의 속도가 빨라 황제거율은 감소하며, 공급속도를 이보다 적게하면 석탄회수율과 황제거율은 거의 영향이 없다. 2회 정선하였을 때 석탄회수율 및 황제거율은 각각 82.1%와 60.8%이었다.

4. 응집제로 사용한 kerosene의 등전위점은 3.2이며, pH 3.2 아래에서는 양으로 하전되고, 그보다 높은 pH 영역에서는 음으로 하전되었다.

5. 마로 탄의 등전위점은 4.8이며, 이보다 큰 pH 영역에서는 음으로 하전되고, pH12에서 표면전위는 -12.0 mV이었다. 광물질의 표면전위는 구역 전체에서 음으로 하전되며, 알카리도가 강할 수록 하전량이 크다.

6 마로 시료의 응집속도상수는 2.14이고, 삼척 2 시료는 1.44로서 고정탄소 함유율과 탄화도가 높은 마로탄의 응집시간이 단축되었다. 평균입도가 4.75  $\mu\text{m}$ 이고, 광액의 농도가 3.3% 일때 마로산 시료의 석탄회수율은 98.0%이고, 회와 황제거율은 각각 70.9%, 95.7%이었다.

### 참고문헌

1. Warren, L. J., Ultrafine Particles in Flotation, The

Australasian Institute of Mining and Metallurgy, 185 (1985).

2. Capes, C. E. and Jonasson, K. A. Application of Oil-Water Wetting of Coals in Beneficiation, Interfacial Phenomenon Coal Technology, 32
3. Meadus, F. W., Paillard, G, Sirianni, A. F. and Puddington, L. E, Fractionation of Coking Coals by Spherical Agglomeration Methods, CIM.
4. Chia, Y. H and Somasundaran, P., A Theoretical Approach to Flocculation in Carrier Flotation for Beneficiation of Clay, Colloids Surfaces, 8, 187 (1983)
5. Fuerstenau, D. W., Li, c., and Hanson, J. S., Shear Flocculation and Carrier Flotation of Fine Hematite, Canada IMM, 329 (1988).
6. William G. Steedman and Santhana V., Krishnan oil phase agglomeration Process for the Treatment of Fine Coal Processing, 179-181 (1987).
7. C. E. Capes, Oil Agglomeration Process Principles and Commercial Application for Fine Coal Cleaning, Coal Preparation 5th edition, 1020-1041 (1991).
8. Kevin E. Redinger, Ralph D Daley, Coal/Water Fuel Production, Industrial Practice of Fine Coal Processing, 331-338 (1988).
9. Hutton and Gould, CLEANING UP COAL : A Study of Coal Cleaning and the Use of Cleaned Coal, 115-135 (1982).
10. N. Berkowitz, An Introduction to Coal Technology, Academic Press. 115-117(1979).