

Numerical Heat Transfer Analysis of the Electrowinning Cell in the Pyroprocessing

파이로프로세스 전해제련장치의 열전달 해석

Dalseong Yoon*¹⁾, Seungwoo Paek, Si-Hyung Kim, Kwang-Rag Kim and Do-Hee Ahn

Korea Atomic Energy Research Institute, Daedeokdaero 1045, Yuseong-gu, Daejeon

*University of Science and Technology, Eoeun-dong 52, Youseong-gu Daejeon

윤달성*¹⁾, 백승우, 김시형, 김광락, 안도희

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

*과학기술연합대학원대학교, 대전광역시 유성구 과학로 어은동 52

(Received July 07, 2009 / Revised August 21, 2009 / Approved October 01, 2009)

Abstract

Electrowinning process recovers uranium with actinide elements from spent fuels and is a key step in the Pyroprocessing because of proliferation resistance. An analysis of heat transfer of the Electrowinning cell was conducted to develop basic tool for designing engineering-scale Electrowinner. For the calculation of the heat transfer, ANSYS CFX commercial code was adapted. As a result of the calculation, the vertical Heating Zone length had great effect upon temperature of LiCl-KCl eutectic salt. To maintain constant temperature in the salt, the Heating Zone length should be three times longer than the height of the salt. However, the argon and salt temperatures were barely affected by the Cooling Zone length. The temperature under the Cell cover was mainly influenced by the number of the cooling plates. When the cooling plates were installed more than the number of 5, temperature under the cover was maintained below 250 °C. These temperature properties had similar tendency toward the temperature of the Cell which was measured from experiments. Simulated heat transfer information from this study could be used to design engineering-scale Electrowinner.

Key words : Pyroprocessing, Electrowinning, Heat transfer, LiCl-KCl eutectic salt,

요약

전해제련 공정은 악티늄족 원소를 동시에 회수하는 공정으로써, Pyroprocessing의 핵확산 저항성을 보장하는 중요한 공정이다. 공학규모의 전해제련 장치를 설계하기 위한 기본 도구를 개발하기 위해서 실험실 규모의 장치에 대한 열전달 해석을 수행하였다. 열전달 해석을 수치 해석적으로 계산하기 위해 ANSYS CFX 상용 코드를 사용하였다. 열전달 해석 결과, 가열부의 길이가 수직으로 용융염의 높이보다 약 3배 이상이 되었을 때, 용융염의 온도를 일정하게 유지할 수 있었으며, 냉각부의 길이는 그 영향이 미비하였다. 전해조 덮개

1) Corresponding Author. E-mail : yds0127@kaeri.re.kr

아래의 아르곤 가스의 온도는 냉각 판의 개수에 따라 감소하였으며, 5개 이상 설치 할 경우 250 °C 이하로 유지할 수 있음을 보였다. 이러한 계산 결과는 실제 실험 장치에서 측정된 장치 내부 온도 분포와 경향성이 일치하는 것을 볼 수 있었다. 본 연구에서 해석된 전해제련 장치의 열 분포 특성은 공학규모 장치의 설계를 위해 중요한 자료로 사용 될 수 있을 것이다.

중심단어 : Pyroprocessing, 전해제련, 열전달, LiCl-KCl 용융염

I. 서론

원자력발전량이 증가함에 따라 누적되고 있는 사용후핵연료의 처리, 처분 문제가 현안으로 등장하고 있으며, 처분 부하를 감소시킬 목적으로 Pyroprocessing 공정이 개발되었다. 이러한 공정 중 전해제련 공정에서는 순수한 우라늄을 회수한 후 용융염 내의 TRU원소 및 악티나이드계 원소를 동시에 회수하기 때문에 핵 확산 저항성의 관점에서 중요한 공정으로 인식되고 있다[1-4]. 전해제련 공정은 글러브박스의 아르곤 가스 분위기에서, 500 °C의 LiCl-KCl 용융염을 전해질로 이용하여 진행된다. 액체 카드뮴을 음극(LCC : Liquid Cadmium Cathode)으로 사용하고 이 액체 카드뮴 음극 내부로 우라늄과 TRU 원소를 동시에 회수한다[5-7].

한국원자력연구원에서는 전해제련 실험실 규모 실험을 진행하고 있으며, 공학규모의 장치를 설계중이다. 실험실 규모의 실험 경험을 바탕으로, 전해 제련 장치를 설계하기 위해서는 몇 가지 고려해야할 사항들이 있다. 첫째는 전해조의 덮개 바로 아래 부분의 아르곤 온도가 250 °C 이하로 유지되어야 한다. 전해조 상부를 통하여 전극과 교반기 등이 장입되며, 이들의 장입과 고정을 위한 부품의 설계온도는 대부분 250 °C 이하이기 때문이다. 둘째는 용융염 내부의 온도가 일정하게 유지되어야 한다. 전해 실험을 수행하는 동안 용융염의 온도가 일정하게 유지되어야 정확한 전기 화학적 결과를 얻을 수 있다. 따라서 본 연구에서는 공학규모 전해제련 장치의 설계를 위한 해석 도구를 갖추기 위해 기존 실험실 규모의 장치를 기준 모델로 열전달 해석을 수치 해석적으로 수행하였다. 장치의 크기와 구조를 실제와 같이 하여 그 경향성을 파악하고, 이를 바탕으로 구조를 변화시켜 가며 장치 내부의 온도 분포를 조사하였다. 가열부와 냉각부의 수직적인 길이를 조절하면서 장치 내부의 아르곤 온도와 용융염 온도를 해석하였으며, 냉각 판의 수를 조절하면서 덮개 아래 부분의 아르곤 온도를 계산하였다.

II. 전해제련 장치 구조의 모델

본 연구의 해석 모델로 이용한 전해제련 장치는 실제 실험에 이용되고 있는 실험실 규모의 전해제련 장치이며 Fig.1에 그 개략도를 나타내었다. 내경이 21 cm인 원통형 모양의 장치 외부에 바닥 면과 30 cm 높이가 가열부가 설정되고, 가열부 상부에 5 cm 길이로 냉각부가 설정되었다. 냉각부 내부에는 내경이 19 cm인 스테인리스강 재료의 냉각 판이 5개 설치되었다. 용융염을 담는 용기는 스테인리스강으로 만들었다. 용기의 열전도율은 매우 높기 때문에 용기의 두께는 생략하여 용융염의 열전도만을 고려한다. 용융염의 내경은 15cm, 높이 10cm로 설정하였다. 용융염과 외부 구조(바닥, 옆면)와의 거리는 3cm이고 다른 복잡한 구조물들은 생략하거나 단순화하였다.

III. 모델링에 사용된 식 및 해석방법

가열부에서부터 아르곤 가스 그리고 용융염 내부로 열전달 현상을 수치 해석적으로 분석하기 위하여 유체의 난류 움직임을 고려하였다. 유체와 벽면의 경계에서의 열전달을 계산하기 위해서는 B. A. Kader [8]의 thermal law-of-the-wall function 모델을 적용하였다. 따라서 벽에서의 열전달 식은 다음과 같이 나타낸다.

$$q_w = \frac{\rho C_p u^*}{T^*} (T_w - T_f) \dots\dots\dots (1)$$

여기서 T_w 는 벽면의 온도, T_f 는 벽 주변의 유체의 온도, C_p 는 유체의 정압비열, u^* 는 마찰 속도, q_w 는 벽면으로 전해지는 단위면적당 열전달률을 나타낸다. T^* 는 무차원의 온도로서 다음과 같이 정의 된다.

$$T^* = P_r y^+ e^{(-\beta)} + [2.12 \ln(y^+) + \beta] e^{(-\beta/\gamma)} \dots\dots\dots (2)$$

여기서 y^+ 는 무차원의 벽의 좌표를 나타낸다. $y^+ = yu^*/\nu$, y 는 벽면의 좌표, ν 는 동점도를 나타낸다. β 와 γ 는 다음과

같이 정의되며,

$$\beta = (3.85Pr^{1/3} - 1.3)^2 + 2.12\ln(Pr) \dots\dots\dots (3)$$

$$\Gamma = \frac{0.01(Pr \gamma^+)^4}{1 + 5Pr \gamma^+} \dots\dots\dots (4)$$

여기서 Pr은 Prandtl 무차원수로 다음과 같다.

$$Pr = \frac{\rho c_p \mu}{\lambda} \dots\dots\dots (5)$$

장치의 모델은 유한개의 격자로 나누어 계산을 하며, 격자 간의 온도의 변화율은 다음의 3가지 물리적 절차에 의해 결정된다 [9]: 대류에 의한 열전달, 잠열에 의한 열전달 (물질전달) 그리고 복사에 의한 열전달.

대류에 의한 열전달률 Q_c 는 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$Q_c = \pi d_p \lambda N_u (T_G - T) \dots\dots\dots (6)$$

여기서 λ 는 열전도도, d_p 는 격자의 직경, T_G 와 T 는 유체와 격자의 온도, N_u 는 Nusselt 무차원수로 다음과 같다.

$$N_u = 2 + 0.6Re^{0.5} (\frac{c_p \mu}{\lambda})^{1/4} \dots\dots\dots (7)$$

여기서 c_p 는 유체의 정압비열, μ 는 유체의 점도이다.

물질전달에 의한 열전달 Q_M 은 다음 식으로 주어지며,

$$Q_M = \sum \frac{dm_c}{dt} V \dots\dots\dots (8)$$

여기서 V 는 증발잠열로 온도에 의존적이다.

복사에 의한 열전달 Q_R 은 다음 식으로 나타낸다.

$$Q_R = \frac{1}{4} \pi d_p^2 \epsilon_p (I - \sigma T_p^4) \dots\dots\dots (9)$$

여기서 T_p 는 격자의 온도, ϵ_p 는 격자의 방사량을 나타낸다. I 는 복사열의 세기를 나타내며 n 은 유체의 반사지수, σ 는 Stefan-Boltzmann 상수를 나타낸다.

이들 모두를 고려하여 격자의 온도 변화 정도를 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$\sum m_c C_p \frac{dT}{dt} = Q_c + Q_M + Q_R \dots\dots\dots (10)$$

식 (8) 에 나타난 증발열 Q_M 은 1기압 500 ℃에서 LiCl-KCl 용융염의 증발량이 미비하여 무시할 수 있었다[10~12]. H.C. Eun et al [11]에서 900-1100 ℃에서 LiCl-KCl의 증발량을 외삽하여 500 ℃ 1기압에서 계산해 본 결과 1.04×10^{-10} [g/cm² s] 이 되었다[14]. 이는 직경이 15cm인 도가니에 500 ℃로 10시

간 가열하였을 경우 용융염의 증발량은 6.59×10^{-4} g이 된다. 따라서 본 열전달 해석에서는 용융염의 증발에 의한 온도변화는 고려하지 않았다. 즉, 식 (10)에서 증발열 Q_M 을 무시한 값과 같다.

본 연구에서는 ANSYS CFX 유동해석용 코드를 이용하여 시뮬레이션을 수행하였다. 해석을 수행하기 위해, 전해제련 장치 모델을 유한개의 격자들로 나누었으며, 각각의 격자들은 (1)-(10)의 식에 의해 계산되었다. Meshing은 ANSYS workbench를 이용하여 수행하였으며, Fig.2에 나타난 바와 같이 사면체, 피라미드, 프리즘 모양의 격자들로 분리되었다. 각각의 격자는 424,781개 이며, 정확한 계산 값을 얻기 위하여 아르곤과 용융염의 경계면에는 1 mm 이하의 더욱 정교한 격자가 사용되었다. 열전달 해석은 정상상태 모드로 해석되었으며, 초기조건은 상온 상압으로 설정되며 가열부의 온도는 650 ℃, 냉각부는 10 ℃로 설정되었다. 시뮬레이션에 사용되는 아르곤과 용융염의 물성치는 Table 1에 나타내었다.

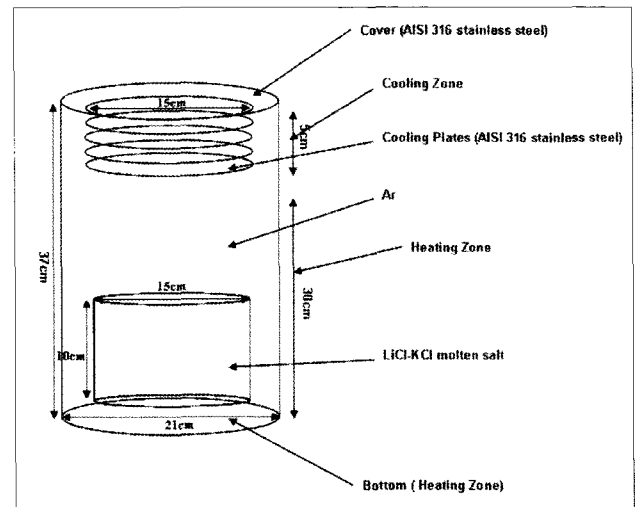


Fig. 1. A geometry of the Electrowinning Cell. Complicated devices were omitted for simplifying the cell and simulations.

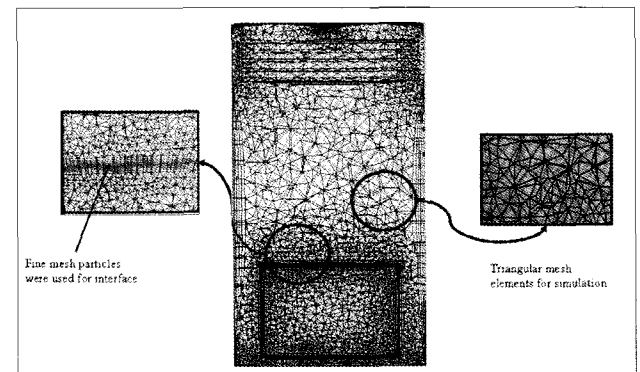


Fig. 2. Decomposed geometry of the Electrowinning Cell into finite meshes of triangular elements for the simulations.

VI. 결과 및 논의

실제 실험실 규모 전해제련 장치에서는 공정에서 650 ℃로 가열부를 5시간 가열 할 경우 용융염의 온도는 약 500 ℃에 도달하고, 이후 10시간 동안 10 ℃ 이내로 온도가 아주 천천히 상승하고, 전해조 덮개 아래 부분의 아르곤 온도는 약 200 ℃ 정도로 유지된다. 본 시뮬레이션은 실제 공정의 조건과 같이 가열부의 온도를 650 ℃로 설정(SET4)해서 계산한 결과 Table 2와 같이 나타났으며 전체적인 열 분포 상태를 Fig.3에 나타내었다. 용융염과 아르곤 영역의 온도가 일정하며, 전해조 덮개 아래 부분의 온도도 아르곤 영역에 비해 낮게 유지되고 있음을 볼 수 있었다. 실제 공정에서는 5시간 내외로 가열 후 온도를 측정하였지만, 열전달 해석에서는 정상상태 모드로 수행하였기 때문에 실제 공정의 온도보다 조금씩 높게 나왔지만 장치 내부의 온도 분포의 경향성이 일치하는 것을 볼 수 있었다. 전해제련 장치의 구조를 변화시켜가면서 내부 열전달 현상을 파악하기 위하여 Table 3에 운전 조건을 SET1에서 SET10까지 설정하여 각 모델의 계산을 수행하였다. SET1-4는 냉각판의 수를 변화시켰으며, SET5-8은 냉각부의 길이를 변화시켜 그 영향을 알아보았다. 또한 SET2, 6, 9, 10은 가열부의 길이에 따른 장치 내부의 온도 영향을 보기 위한 것이다.

Table 1. Argon and LiCl-KCl eutectic salt parameters used for numerical analysis.

	Thermal conductivity, λ [W/mK] [13]	Dynamic viscosity, μ [Ns/m ²]	Heat capacity of Ar,Cv [J/gK]
Argon	0.018	2.39×10^{-5}	0.52
LiCl-KCl eutectic salt	0.69	2.23×10^{-3}	1.24

Table 2. The comparison of the temperatures between the computed results and measured values of the Electrowinning cell.

	Setting temp. at heating zone (°C)	Average temp. of LiCl-KCl eutectic salt (°C)	Ar temperature under the cover (°C)
Measured values of the electrowinning cell	650	500	200
Computed values in the simulation	650	515	240

Table 3. Experimental conditions from SET1 to SET10 for the heat transfer simulations. SET4 has equal conditions with the real electrowinning cell.

	Heating Zone length (mm)	Cooling Zone length (mm)	The Number of Cooling Plate
SET1	300	50	0
SET2	300	50	1
SET3	300	50	3
SET4	300	50	5
SET5	200	0	1
SET6	200	50	1
SET7	200	100	1
SET8	200	150	1
SET9	100	50	1
SET10	0	50	1

Fig.4에 가열부에서 650 ℃로 가열 하였을 경우 용융염의 표면과 냉각판 사이의 아르곤 가스의 온도 분포를 나타내었다. 아르곤의 평균 온도는 각 지점에서의 수평 온도를 평균한 값이다. SET1에서는 냉각판을 설치하지 않았으며, SET2에서는 냉각판을 한 개 설치하여, 냉각판에 의해 용융염 위쪽의 아르곤 온도가 어떻게 영향을 받는지 알아보았다. SET1의 경우, 용융염으로부터 멀어질수록 조금씩 아르곤 온도가 낮아지는 것을 알 수 있고 가열부를 벗어나면서 온도가 떨어진다. 반면에, SET2의 경우 용융염으로부터의 거리와 상관없이 아르곤 온도가 일정하고, 아르곤 온도가 더 높게 유지되는 것을 볼 수 있었다. 이는 냉각판을 설치함으로써 냉각부와 가열부 아르곤의 대류에 의한 열전달을 줄여주는 것으로 사료된다. SET7의 경우 가열부의 길이를 축소(200 mm)설정 하여 가열부의 높이에 따른 아르곤의 온도분포를

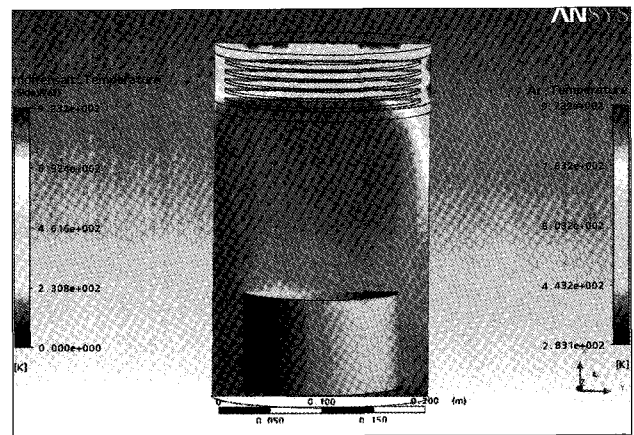


Fig. 3. Distribution of argon and LiCl-KCl salt temperature as a result of the simulation. This simulation is based on the lab-scale Electrowinner.

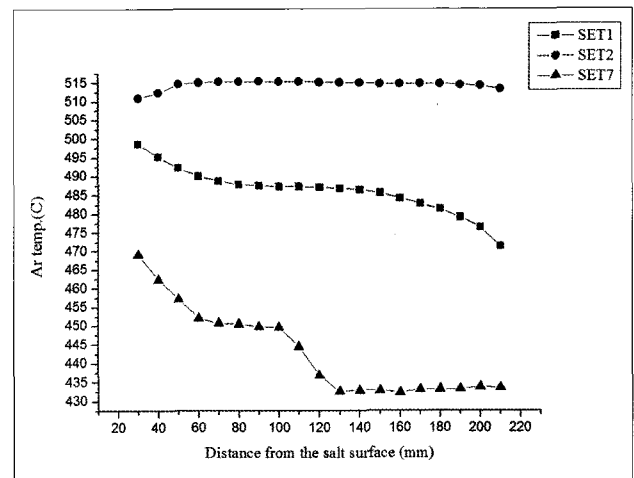


Fig. 4. Calculated argon temperature over the salt surface. SET1 (Heating Zone : 300 mm, Cooling Zone : 50 mm, no plate), SET2 (Heating Zone : 300 mm, Cooling Zone : 50 mm, 1 plate), SET7 (Heating Zone : 200 mm, Cooling Zone : 50 mm, 1 plate).

알아보았다. 가열부의 200 mm 높이를 경계로 온도가 급격하게 감소하는 것을 볼 수 있었고, 냉각부 영역에서 냉각된 아르곤 가스의 영향으로 전체적인 아르곤 온도가 낮게 형성되는 것을 알 수 있다. 이는 용융염 표면의 온도에 영향을 줄 것으로 사료된다. 따라서 장치 설계 시 가열부를 일정 높이 이상으로 설정하여야 냉각부의 영향을 적게 받는 조건에서 용융염의 표면의 온도를 일정하게 유지시킬 수 있을 것으로 생각된다.

Table 4의 SET1에서 SET10까지의 계산 결과 값을 나타내었다. SET2, 6, 9, 10로부터 가열부의 길이를 변화시켜 온도 분포를 계산하였으며, 그 결과 값을 Fig.5에 나타내었다. 전해조의 덮개 아래 부분의 온도는 가열부의 길이가 길어짐에 따라 눈에 띄게 증가하였으며, 용융염의 평균온도증가는 10 ℃ 미만으로 거의 일정하게 나타났다. 그러나 Fig.6의 냉각부를 변수로 설정한 SET5, 6, 7, 8의 경우 냉각부 길이를 변화시켜도 전해조 덮개 아래 부분의 아르곤 온도와 용융염 온도의 변화가 거의 없는 것을 볼 수 있었다. 장치내부의 열전달 거동은 냉각부의 길이보다는 가열부의 길이에 큰 영향을 받는 것으로 생각된다.

용융염 내부의 온도 분포 또한 전해실험에서 중요한 요소

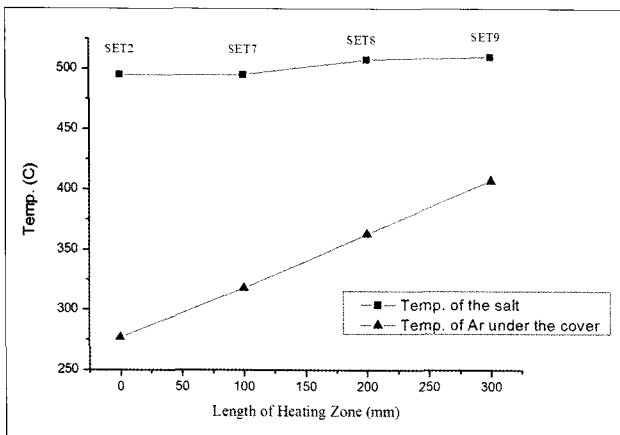


Fig. 5. Temperature behavior in the simulation referring to the Heating Zone length. These values are from SET2, 6, 9, 10.

Table 4. Numerical values of calculated temperature in the heat transfer simulations.

SET	Ar temp. under the cover(°C)	Average temp. of the salt(°C)	Temperature transition in the salt (°C)
SET1	441	508	< 3
SET2	407	510	< 3
SET3	316	513	< 3
SET4	240	515	< 3
SET5	319	508	< 10
SET6	330	508	< 12
SET7	327	508	< 15
SET8	330	508	< 13
SET9	318	495	< 16
SET10	277	495	< 20

이다. 일정하게 용융염의 온도를 유지하고 내부의 온도분포가 고를 때 정확한 실험 결과를 얻을 수 있기 때문이다. 이를 위해 표 4에 각 조건에 따라 용융염 내부의 온도 차이가 얼마나 되는지를 나타내었다. 용융염의 표면, 중앙, 옆, 하단에서의 온도를 각각 계산하였으며 SET1-4의 경우에는 가장 작은 온도 변화 폭을 보였지만, 바닥면만 가열하는 SET10의 경우 가장 큰 온도 차이를 나타냈다. 이는 주로 가열부의 길이에 따라 용융염 내부에 온도가 변화하며, SET1-4의 경우와 같이 용융염의 높이(100 mm)보다 약 3배 정도의 가열부의 길이를 설정하였을 경우 최대 ±3 ℃ 이내로 온도 편차를 줄일 수 있었다.

Fig.7은 냉각판의 수에 따라 전해조 덮개 아래의 아르곤 온도가 어떤 특성을 갖는지를 나타낸다. 냉각판의 개수를 증가시키수록 덮개 아래 부분의 아르곤 온도는 낮아졌으며, 냉각판 수가 5개 이상 일 때 목표하는 250 ℃ 이하의 아르곤 온

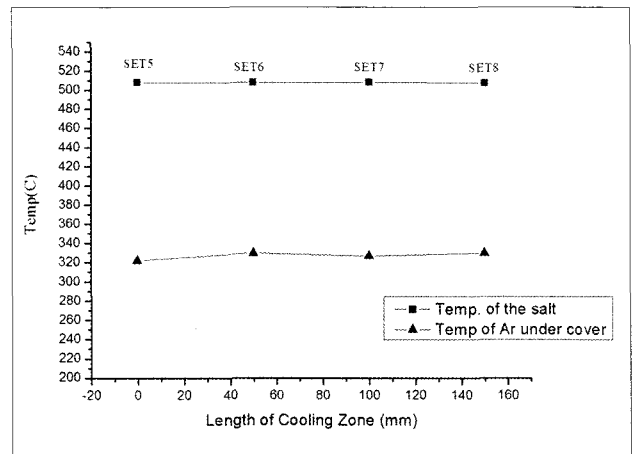


Fig. 6. Temperature behavior in the simulation referring to the Cooling Zone length. These values are from SET5, 6, 7, 8.

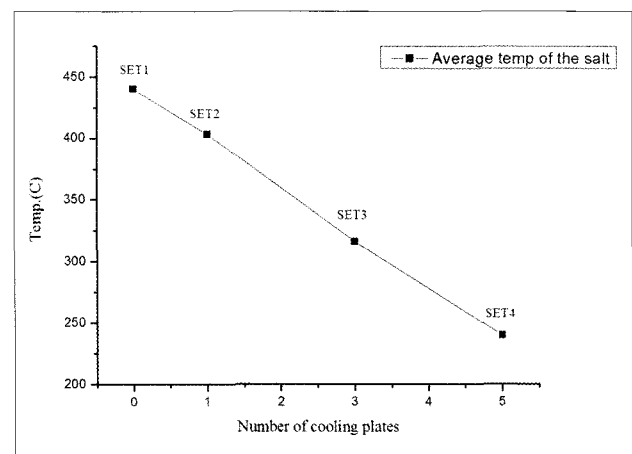


Fig. 7. Properties of argon temperature under the cover in regard to the number of cooling plates. Cooling plates were established on a basis of the end of Cooling Zone.

도를 유지할 수 있었다. 또한 냉각관은 냉각부의 하단에서부터 위쪽으로 위치하여 냉각된 아르곤 가스를 가두어 두는 역할을 하고 냉각관 아래쪽의 아르곤 온도를 높게 유지시켜 용융염의 온도를 일정하게 유지 하는데도 도움이 될 것으로 사료된다.

V. 결 론

본 연구에서는 실험실 규모의 전해제련 장치와 같은 크기와 구조의 모델을 기준으로 장치 내부의 아르곤과 LiCl-KCl 용융염의 온도 분포를 수치해석적으로 분석해보고, 구조 변수를 변화 시켜가며 온도 분포의 특성을 분석해 보았다. 해석결과, 용융염의 온도를 일정하게 유지하기 위해서는 용융염의 높이의 3배 이상으로 가열부의 길이를 설정해야 한다. 하지만 가열부의 길이가 길어지면 전해조 덮개 아래 부분의 아르곤 가스의 온도가 급격히 올라간다. 따라서 냉각관의 수를 5개 이상으로 설치해야 하며, 냉각부 높이와 이에 상응하게 냉각관을 설치하여 아르곤 가스가 충분히 냉각부에 접촉될 수 있도록 해야 한다. 본 연구결과로 얻어진 전해제련 장치의 열전달 해석 자료는 공학규모의 전해제련 장치의 설계에 활용될 수 있을 것이다.

감사의 글

본 연구는 교육과학기술부가 주관하는 원자력중장기 연구의 일환으로 수행되었습니다.

참고문헌

- [1] J. J. Laidler, J. E. Battles, W. E. Miller, J. P. Ackerman, E. L. Carls, "Development of pyroprocessing technology", Progress in Nuclear Energy, 31, pp. 113-140 (1997).
- [2] J. J. Laidler, "Pyrochemical Recovery of Actinides Proceedings", American Power Conference, vol. 55, pp. 1074 (1991).
- [3] J. P. Ackerman, "Chemical basis for pyrochemical reprocessing of nuclear fuel", Industrial and Engineering Chemistry Research, 30, pp. 141-145 (1991).
- [4] 김시형, 윤달성, 유영재, 백승우, 심준보, 안도희, "액체 음극에서의 금속 수지상 역제를 위한 교반기 성능평가", 방사성폐기물학회지 7(2), pp. 125-131 (2009).
- [5] T. Koyama, R. Fusita, M. Iizuka, Y. Sumida, "Pyrometallurgical Reprocessing of Fast Reactor Metallic Fuel-Development of a new electrorefiner with a ceramic partition", Nuclear Technology, 110, pp. 357-368 (1995).
- [6] M. Iizuka, T. Koyama, N. Kondo, R. Fujita, H. Tanaka, "Actinides recovery from molten salt/liquid metal system by electrochemical methods", Journal of Nuclear Materials, 247, pp. 183-190 (1997).
- [7] 유재형, 이병직, 이한수, 김응호, "고온전해분리 기술의 개요 및 기존 핵연료주기 대체 기술로서의 적합성 검토", 방사성폐기물학회지, 5(4), pp.283-295 (2007).
- [8] B. A. Kader, "Temperature and concentration profiles in fully turbulent boundary layers", International Journal of Heat and Mass Transfer, 24, pp. 1541-1544 (1981).
- [9] ANSYS CFX-11.0 Solver 2008 (Cannonsburg: USA/ANSYS: www.ansys.com)
- [10] H. C. Eun, H. C. Yang, Y. J. Cho, H. S. Park, E. H. Kim, I. T. Kim, "Separation of pure LiCl-KCl eutectic salt from a mixture of LiCl-KCl eutectic salt and rare-earth", J. Nucl. Sci. Technol. 44, pp. 1295-1300 (2007).
- [11] H. C. Eun, H. C. Yang, Y. Z. Cho, H. S. Park, I. T. Kim, "Stabilization of rare earth nuclides in LiCl-KCl eutectic salt wastes", J. Radioanal. Nucl. Chem, 280, pp. 634-649 (2009).
- [12] J. H. Lee, Y. H. Kang, S. C. Hwang, J. B. Shim, B. G. Ahn, E. H. Kim, S.W. Park, "Electrodeposition characteristics of uranium in molten LiCl-KCl eutectic and its salt distillation behavior", J. Nucl. Sci. Technol, 43, pp. 263-269 (2006).
- [13] D. F. Williams, L. M. Toth, K. T. Clarno, "Assessment of Candidate Molten salt Coolants for the Advanced High-Temperature Reactor (AHTR), ORNL/TM-2006/12
- [14] C. L. Yaws, "Handbook of Vapor Pressure", Volume 4 Inorganic Compounds and Elements, Gulf Publishing, Houston, Texas, USA (1995).