

## 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> · 崔相業 · 邊衡直\* · 崔載鎬\*

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 메탄을 및 0.25%의 에탄을의 첨가에 의해 각각 4.1 및 4.6의 최대  $G(CO)$ 값을 얻었다. 또 1%의 포름알데히드 첨가에 의해 서는 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  $CO_2$ , 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  $CO_2$ , 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 수은존재하에서 이산화탄소를 조사하여 일산화탄소와 산소를 얻은 것이었다. 그 후 Wourtzel<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  $5 \times 10^{19}$

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

이러한 실험결과들로부터  $G(CO)$ 값이 선량을 감소에 따라 감소되며 선량에 따라 대략 그

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

여러 연구자들은 감마선조사와 같은 저선량에서 일산화탄소의 높은 수율을 얻기 위해 역반응을 억제시키는 여러 가지 첨가제의 효과를 연구하였다. 즉 Steinberg<sup>6</sup>, Anderson<sup>7</sup> 등은 감마선조사시 이산화질소를 첨가하여 3.5~4.5의  $G(\text{CO})$ 값을 얻었고, Sato<sup>13</sup> 등은 0.55%의 프로판을 첨가하여 4.5의  $G(\text{CO})$ 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 폐기핵연료등으로부터 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 방사선분해 반응에 대한 효과적인 첨가제를 찾기 위해 역반응을 일으키는 산소라디칼이나 음이온포획제로서의 작용이 기대되는 알데히드류 2종 및 알코올류 2종등의 첨가효과를 검토하여 보았다.

## 2. 실험

**시약.** 이산화탄소와 프로판은 공업용 이산화탄소 및 공업용 프로판을 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 제 분석용) 및 에탄올(Merck 제 분석용)도 진공조작장치내에서 정제하였다. 포름알데히드는 포르말린(일본 Wako 제 1급시

약) 시약병에 침전된 파라포름알데히드를 진공 진조한후 가열 발생시켜 사용하였다.

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

**방사선조사.** 방사선조사에는 한국에너지연구소가 보유하고 있는 약 5,000 Ci의 코발트-60 감마선조사장치를 사용하여 선원중심으로부터 10 cm 거리에서 조사하여 선량율을  $3 \times 10^5 \text{ rad/hr}$ 로 하였고, 흡수선량이 6.7 Mrad가 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 기체시료 주입기(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.

**$G(\text{CO})$ 값의 계산.** 이산화탄소의 방사선흡수선량( $D_{\text{CO}_2}$ )은 Fricke 선량계에 의해 측정된 선량( $D_F$ )을 물과 이산화탄소의 전자밀도의 비로 환산하여 구했다.

$$D_{\text{CO}_2} = D_F \times \frac{A_{\text{CO}_2}/M_{\text{CO}_2}}{A_{\text{H}_2\text{O}}/M_{\text{H}_2\text{O}}} = 0.9 \times D_F$$

(A : 원자번호의 합, M : 분자량)

$G(\text{CO})$ 값은 흡수방사선에너지 100 eV 당 생성된 생성물의 갯수이므로 이산화탄소가  $D_{\text{CO}_2}$  Mrad의 방사선에너지를 흡수하여 전체이산화탄소 중

$x\%$  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 이산화탄소만을 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 메탄을 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 0.5정도 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

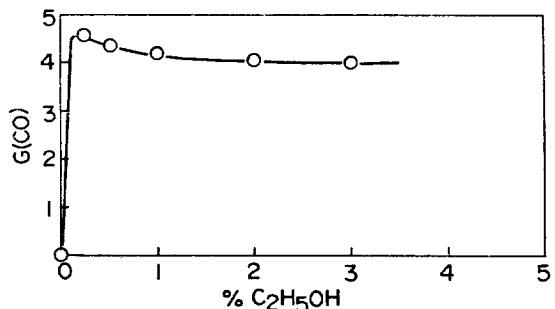


Fig. 2. Effect of ethanol addition on  $G(\text{CO})$ .

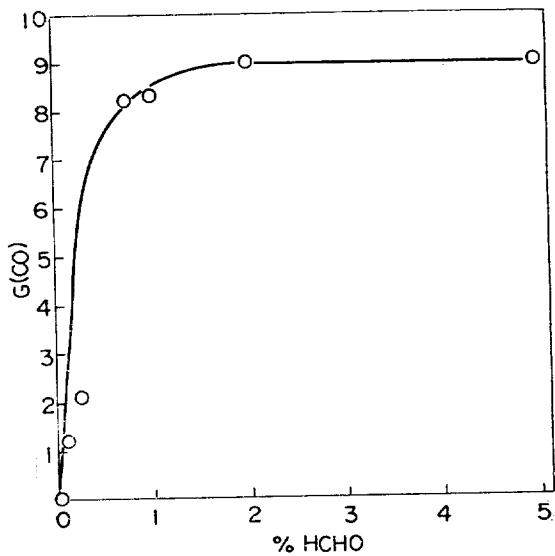


Fig. 3. Effect of formaldehyde addition on  $G(\text{CO})$ .

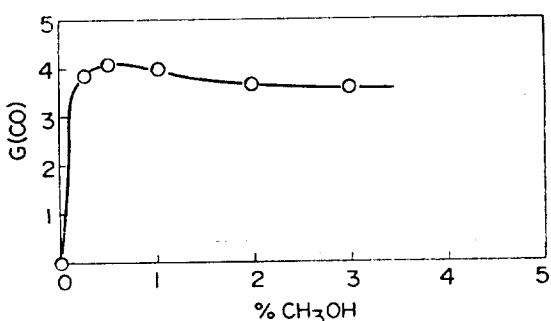


Fig. 1. Effect of methanol addition on  $G(\text{CO})$ .

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

에서는 1.0이하로 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

이 산화탄소의 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%이상첨가시)을 나타내어 본 실험의 다른 첨가물이나 타연구자들이 선택한 어떤 첨가물보다 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

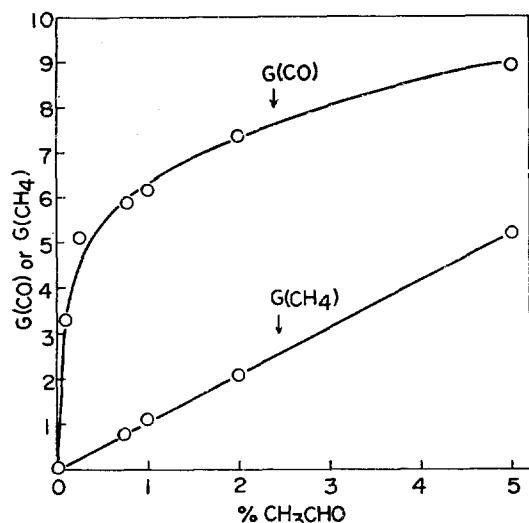


Fig. 4. Effect of acetaldehyde addition on  $G(CO)$ .

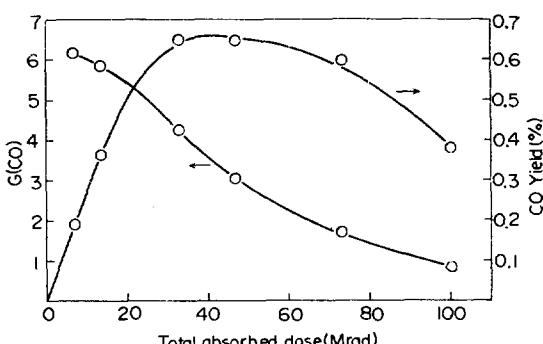


Fig. 5. Dose dependence of  $G(CO)$  and CO yield from  $CO_2$  with 1% acetaldehyde added.

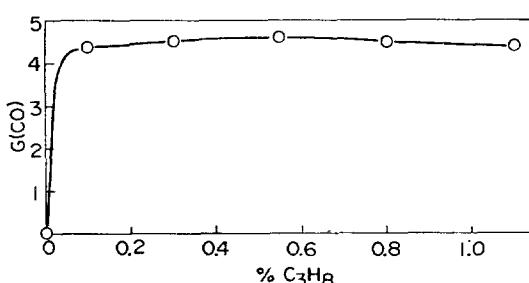


Fig. 6. Effect of propane addition on  $G(CO)$ .

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

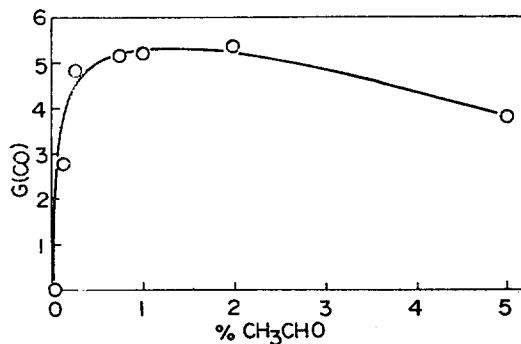
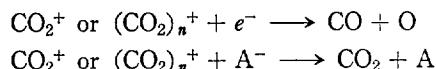


Fig. 7. Effect of acetaldehyde addition on net  $G(\text{CO})$  value from  $\text{CO}_2$ .

과 일산화탄소이며  $G(\text{CO})$ 와  $G(\text{CH}_4)$ 값이 모두 15.6으로 같은 값임을 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 웁곡선값에서 아래 곡선값을 뺀 값은 이산화탄소로부터 생성된 일산화탄소에 대한  $G(\text{CO})$ 값을 의미하게 될것이다. 이렇게 하여 구한 Fig. 7은 다른 첨가제의 경우와 비슷한 형태의 곡선을 보였다.

Fig. 1, 2, 3 및 7을 보면 미량의 첨가제가 존재하여도  $G(\text{CO})$ 값이 상당히 증가됨을 알 수 있는데, 이는 이들 첨가제들이 효과적으로 역반응을 억제시키기 때문으로 생각된다. 역반응을 일으키는 물질의 종류나 그 반응기구는 아직 확실히 알려져 있지 않으나  $\text{O}, \text{O}_3, \text{O}^+, \text{O}_2^+, \text{O}^-, \text{O}_2^-$ ,  $\text{CO}_3^-$ ,  $\text{CO}_4^-$  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.

Kummller<sup>12</sup> 등은 이산화탄소 방사선분해반응의 중간생성물인  $\text{CO}_2^+$ 이온( $G(\text{CO}_2^+)$  값 2.83<sup>23</sup>) 또는 이것의 뭉치화합물(cluster)이 전자와 중화반응을 일으키면 일산화탄소를 생성하나, 음이온( $\text{A}^-$ )과의 중화반응으로는 일산화탄소가 생성되지 않는다고 하였다.



저선량율인 감마선을 사용한 본 실험에서는 열전자의 농도가 고선량율에서처럼 높지 못할 것으로 생각된다. 따라서 이 경우  $\text{CO}_2^+$ 이온은 주로 음이온과 반응하리라고 생각된다. 본 실험에서 메탄올, 에탄올, 아세트알데히드 첨가의 경우 Steinberg<sup>6</sup>나 Sato<sup>13</sup>등이 이산화질소 및 프로판첨가실험에서 얻은 것과 비슷한 4~5정도의  $G(\text{CO})$ 값을 보였는데 이것도 위와 같은 이유로 인하여 고선량인 경우의  $G(\text{CO})$ 값<sup>9</sup> (7.8)보다  $G(\text{CO}_2^+)$ 값(2.83)만큼 감소하였기 때문인 것으로 생각할 수도 있다.

그러나 포름알데히드의 경우는 8.4~9.0정도의 높은  $G(\text{CO})$ 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  $\text{CO}_2^+$ 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  $G(\text{CO})$ 값의 변화가 없는 것은 파라포름알데히드로부터는 일산화탄소가 거의 생성되지 않는다는 것을 의미하는 것으로도 생각된다.

Fig. 1, 2 및 7을 보면 1% 이하의 저농도에서 최대  $G(\text{CO})$ 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 프로판첨가실험에서 이러한 감소현상은  $\text{CO}_2^+$ 이온이 프로판과 반응하므로써 이 이온으로부터 생성될 일

산화탄소가 생성되지 못하기 때문이라고 설명하였다. 그러나  $\text{CO}_2^+$  이온에 의한 일산화탄소의 생성이 제외되고 있는 저선량을 인점과 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 정반응억제작용이 없기 때문인지는 확실치 않다.

*Fig. 5*에 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 실시하였던 바, 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 선량을  $3 \times 10^5 \text{ rad/hr}$ 인 코발트-60 감마선을 6.7 Mrad 조사시켜 일산화탄소를 생성시키는 반응에서 몇 가지 유기물의 첨가효과를 연구한 본 실험의 결과는 다음과 같다.

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

다.

2. 0.5%의 메탄을 또는 0.25%의 에탄을 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 감사를 드린다.

## 인 용 문 현

1. A. T. Cameron and Sir W. Ramsay, *J. Chem. Soc.*, **93**, 967 (1908).
2. E. Wouretz, *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, *Tans. Faraday Soc.*, **62**, 610 (1966).
11. A. R. Anderson and D. A. Dominey, *Radiat. Res. Rev.*, **1**, 269 (1968).
12. R. Kummel, 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, "Mannual 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. Isezoe 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. Isezoe and S. Sato, *J. Nucl. Sci. Technol.*, **13**(9), 503 (1976).