U.D.C. 661.183.2：546.15.027]．001.5
621.039.58

活性炭フィルタの放射性ヨウ素除去性能

Removal Efficiency of Charcoal Filter for Radioactive Iodine

村田寿典* 神谷九二男**
Toshifumi Murata Kunio Kamiya

要　旨

軽水形原子炉の非常用ガス処理系に設置される活性炭フィルタの性能評価を行なうため2段階にわたる実験を行なった。事故時を模擬した条件下における活性炭フィルタの性能を明らかにするため，最初の実験では小形活性炭フィルタに通気するふん囲気ガスの温度，相対湿度および通気線速度などを変えて活性炭フィルタのヨウ素およびヨウ化メチルの除去効率を測定し，これらの因子の影響について系統的な検討を行なった。ついで活性炭フィルタのスケールアップの効果を確かめるため，実用規模の活性炭フィルタを試作し，これの性能確定実験を行なった。これらの結果，活性炭フィルタのヨウ素およびヨウ化メチルの除去性能はじゅうぶんに大きく，しかもスケールアップによる性能低下のないことが明らかとなった。また活性炭フィルタのヨウ素とヨウ化メチルの総合除去効率は両者の吸着定数から算出できることがわかった。

1. 緒　　言

軽水冷却形原子炉においては，冷却材喪失事故の発生を仮定し，これにじゅうぶん対処できる種々の安全設備を設け万全を図っている。非常用ガス処理系もその一つであって，放射性ヨウ素の大気放出を押えるためのヨウ素除去用の活性炭フィルタが設置されている。これに用いられる活性炭フィルタの性能ならびに信頼度は，原子炉の安全性を評価する際の重要な因子の一つとされており，ここ十数年来アメリカ，イギリス両国を中心として数多くの開発研究が行なわれている。これらの研究により，活性炭フィルタのヨウ素除去効率は99％以上ときわめて高いことが実証されている。最近，原子炉から放出される放射性ヨウ素の一部はヨウ化メチルを主成分とする有機化合物として存在し，これが活性炭フィルタの性能を低下させる原因となっていることが明らかにされ[6]~[8]，研究の焦点がヨウ化メチルを除去することに絞られてきた[9]~[11]。

本研究は放射性ヨウ素除去用活性炭フィルタの性能評価，およびこれの製作に必要な資料を得ることを目的としたもので，2段階にわたる実験を行なった。最初の実験では小形装置を用いて原子炉事故を模擬したふん囲気ガス条件下における活性炭フィルタの除去効率をふん囲気ガスの温度，相対湿度，ヨウ素およびヨウ化メチル濃度および通気線速度を変えて系統的に測定した。ついで，粗および密フィルタと活性炭フィルタとを組み合わせた実規模フィルタユニットを試作し，これの除去効率についての確性試験を行なった。

2. 実　　験

2.1 小 形 装 置

装置のフローダイヤグラムを図1に示す。装置は空気供給部，ヨウ素およびヨウ化メチル発生部およびフィルタ部によって構成されている。ガラス製のヨウ素およびヨウ化メチル発生部を除いて装置はすべてステンレス鋼によって製作されている。空気はフィルタによって浄化されたのち，流量計および電気炉を通りフィルタ部に通気される。もう一方の空気は流量計を通り，温度一定の水蒸気発生器に通気され，湿り空気とされる。フィルタ部に通気される空気の相対湿度は空気と湿り空気の混合比を変えることによって任意の値に調整される。

放射性ヨウ素I^{131}によってラベルされたヨウ素，あるいはヨウ化メチルは試験用フィルタ部の前で通気空気中に一定速度にて導入される。ヨウ素の導入は発生器中にある一定温度のヨウ素結晶上に乾燥窒素ガスを一定速度で通気させることによって行なわれる。またフィルタ部に通気するガス中のヨウ素濃度は発生器に通ずる窒素ガス流量を変えることによって調整される。ヨウ化メチルは一定温度の毛細管を通じて空気中に拡散することにより供給され，これの供給速度は毛細管の直径と温度を変えることによって調整される。これらの方法によるヨウ素およびヨウ化メチルの発生量は，あらかじめ予備実験で確かめられた。

フィルタ部は一つの試験用フィルタと，これのうしろ5cmの位置に設置される三つの捕集用フィルタとによって構成されている。この三つの捕集用フィルタは，試験用フィルタを通過したヨウ素あるいはヨウ化メチルを捕集し，試験用フィルタの除去効率を求める

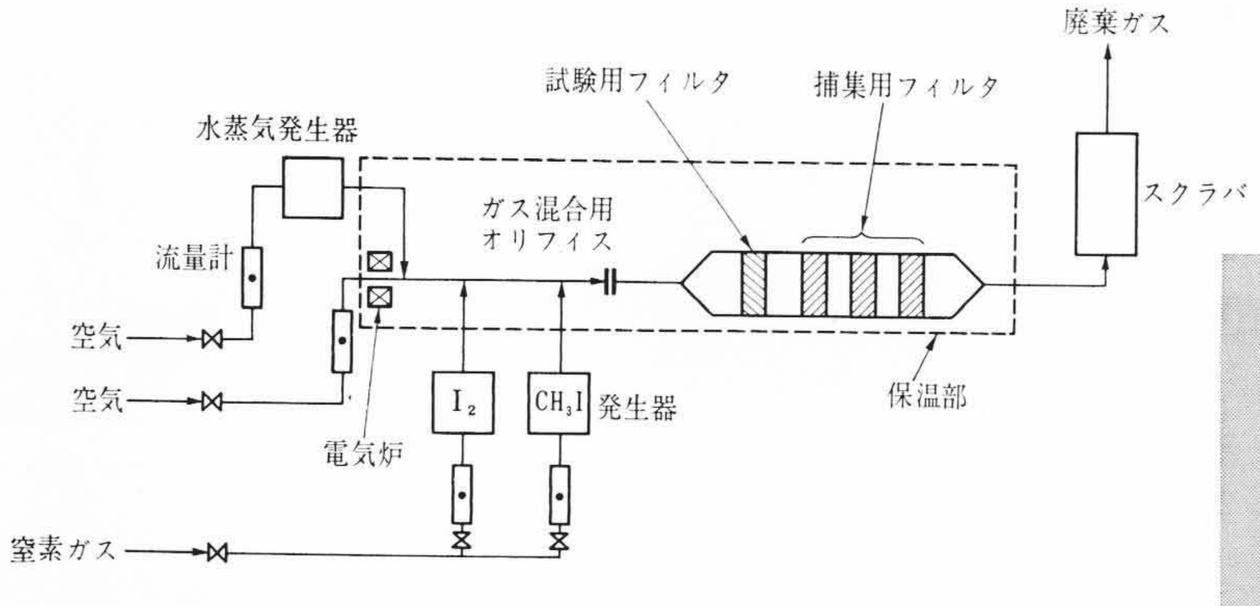

図1　小形実験装置フローシート

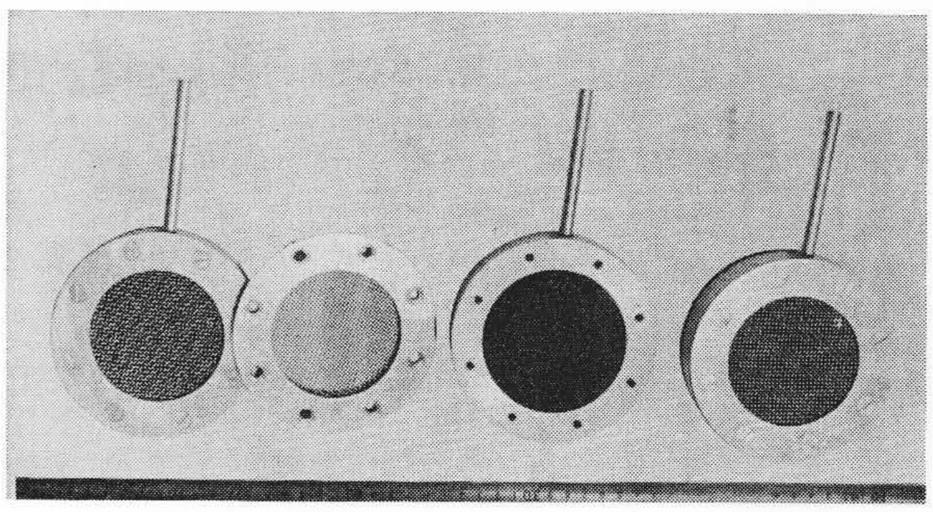

図2　試験用活性炭フィルタ(小形)

* 日立製作所日立研究所 理学博士
** 日立製作所日立研究所

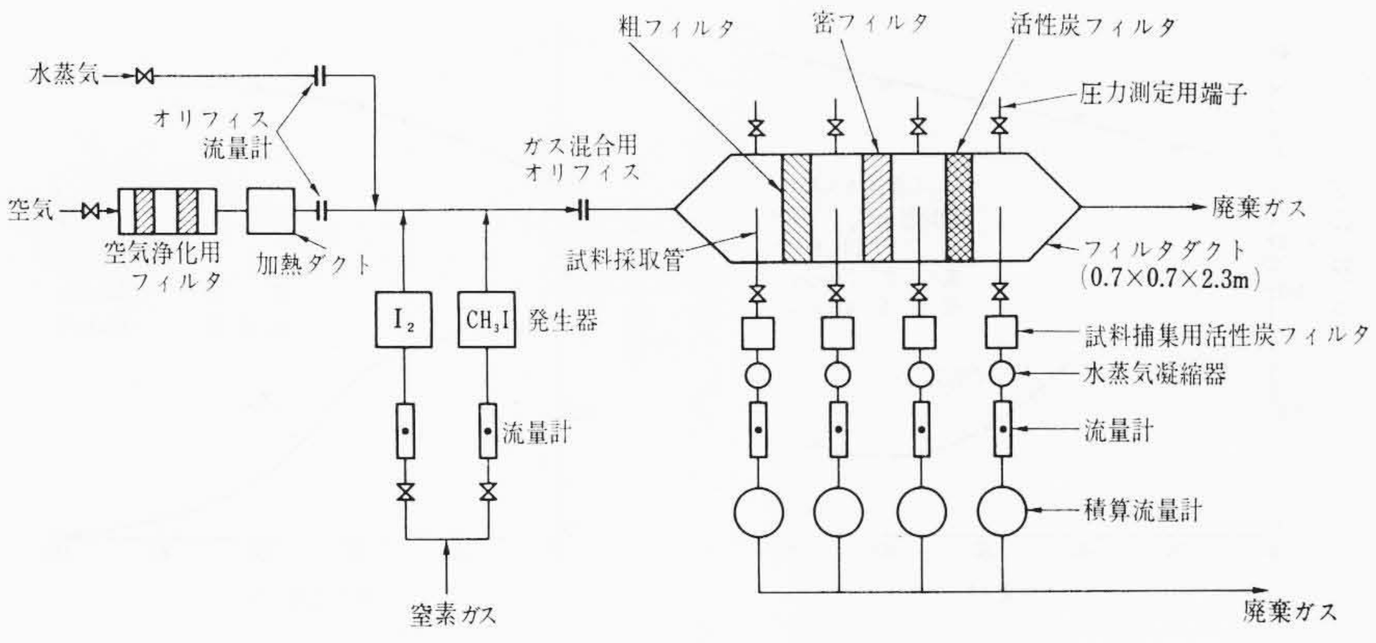

図3　実規模実験装置フローシート

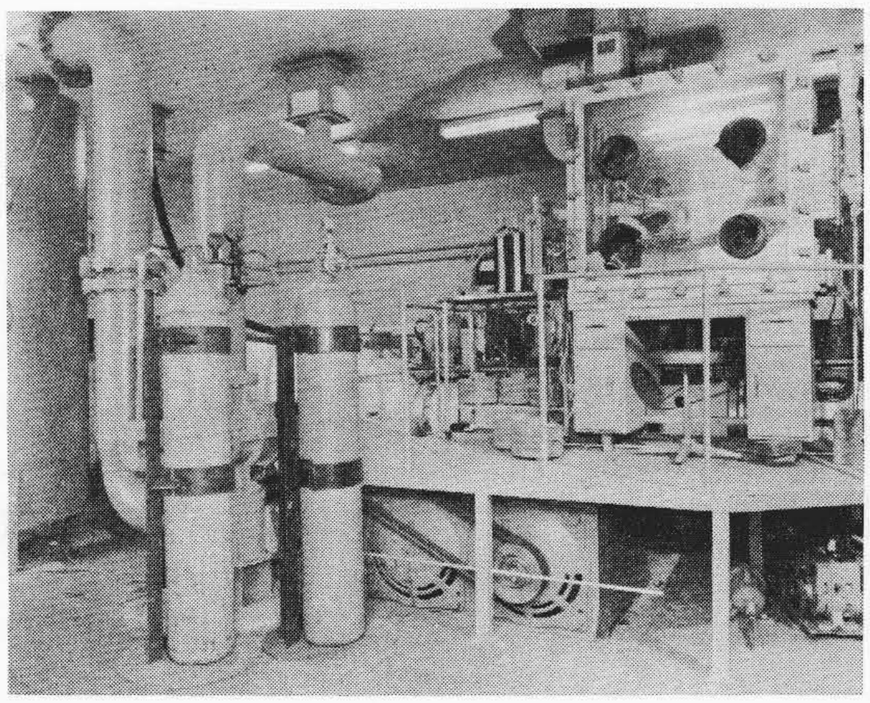

図4　実規模実験装置

ためのものである。本実験ではフィルタに充てんする活性炭として6～10メッシュの粒状活性炭が用いられた。各フィルタの直径は8cmで，これの厚さは実験条件によって0.5～9.0cmに変えられた。**図2**は試験用フィルタの外観写真である。ふん囲気ガスが2時間通気されたのち，フィルタ部から各フィルタが取りはずされ，おのおののフィルタに吸着されたヨウ素あるいはヨウ化メチルの量はI^{131}のγ線測定によって求められる。試験用フィルタの除去効率はフィルタ部に通気されたヨウ素あるいはヨウ化メチルの全量と試験フィルタに捕集された量との比によって算出された。

2.2　実規模装置

図3は実験装置のフローダイヤグラムを，また**図4**はヨウ素およびヨウ化メチル発生部の側から見た装置の外観写真を示したものである。湿り空気が接触する部分はすべてステンレス鋼で製作されている。装置への供給空気は2枚の粒子除去用フィルタによって浄化されたのち，加熱ダクトに導入される。空気の導入はフィルタ部後方に設置された最大容量25 m^3/minのブロワによって行なわれる。水蒸気は加熱ダクトの後部の個所から空気中に加えられる。空気の流量と相対湿度の調整はブロワ回転数と，水蒸気と空気との混合比を変えることによって行なわれた。ヨウ素およびヨウ化メチルの空気への導入は前項で記述した方法によって行なわれた。ヨウ素およびヨウ化メチル導入位置の後部にガス混合用のオリフィスが設けられており，これを通過した空気とヨウ素との混合状態が良好であることが実験開始前に確かめられた。

フィルタダクトは縦，横それぞれ70cm，長さ230cmの長方形の箱で，この中に粗フィルタ，密フィルタおよび厚さ3cmの活性炭フィルタが約50cmの間隔で組み込まれている。粗フィルタには直径200μのガラスファイバが充てんされている。密フィルタは粗フィルタと同一大きさであり，薄いセパレータとセルロースファイバによって構成されている。活性炭フィルタには，A社製国産活性炭が0.52 g/cm^2の密度で充てんされている。各フィルタはシリコンゴムパッキンを介してフィルタダクトに設置されており，これは試験の都度取り替えられる。通気ガスの温度，および各フィルタの圧力損失を測定するため，おのおの4本の熱電対と圧力測定用端子がフィルタダクトに設置されている。また，各フィルタの除去効率を測定するため各フィルタの前後に試料採取管が設けられており，これらを通じて通気ガスの一部を連続して採取し，ヨウ素およびヨウ化メチルを捕集用フィルタに通気できるようになっている。流量計は試料採取速度を一定にするために，また積算流量計は試料ガス全量を測定するために使用された。実験中に試料捕集用活性炭フィルタに捕集されたヨウ素およびヨウ化メチル量はシンチレーションデテクタにより連続的に測定された。実験終了後，各試料採取管に取り付けられている捕集用フィルタは取りはずされ，おのおののフィルタの放射能強度が測定された。各フィルタの除去効率はフィルタの入口と出口のヨウ素あるいはヨウ化メチルの濃度の測定値から算出される。

2.3　放射性ヨウ素およびヨウ化メチルの調整

ヨウ素はヨウ化ナトリウムを過酸化水素で酸化することによって結晶として調整された。ヨウ化ナトリウムと適量の放射性ヨウ化ナトリウム(NaI^{131})を含む水溶液に数mlの過酸化水素水(30%)と数滴の濃硫酸を加え，かくはんしたのち，さらに数滴の濃硫酸を加えた。溶液中に析出したヨウ素結晶をガラスフィルタ上に集め，蒸留水で洗浄したのち，これをU字管内に移した。ヨウ素結晶を冷却したのち，乾燥窒素を約5時間通気してこれの乾燥を行なった。

ヨウ化メチルはヨウ化ナトリウム水溶液にジメチル硫酸を加える方法によって調製された。適量のヨウ化ナトリウムおよび放射性ヨウ化ナトリウム(NaI^{131})を含む水溶液約1ml中に数mlのジメチル硫酸を加え，pH調整剤として約1gの炭酸カルシウムを加えた後，溶液の温度を約50℃とし，生成したヨウ化メチルを蒸発させた。蒸発したヨウ化メチルを乾燥ヘリウムガスをキャリヤとして−20℃のトラップに通し，ガス中に含まれる水分を除去したのち，ヨウ化メチルを−78℃のトラップ中に結晶として捕集した。

3.　結果と検討

3.1　ヨウ素およびヨウ化メチルの吸着分布

活性炭フィルタに吸着されるヨウ素およびヨウ化メチル量が不可逆吸着量に比べて小さいとき，フィルタ単位厚さあたりに吸着されるヨウ素あるいはヨウ化メチルの量はこれらの濃度に比例し，この場合次の関係式が成立する。

$$C_0/C=DF=e^{\alpha x} \quad \cdots\cdots(1)$$

$$C_0'/C'=DF'=e^{\beta x} \quad \cdots\cdots(2)$$

ここに，C_0とCは厚さ$x$cmのフィルタの入口および出口の空気中のヨウ素濃度である。同様にC_0'およびC'はヨウ化メチルの濃度を表わす。α(1/cm)とβ(1/cm)は与えられた条件下におけるヨウ素およびヨウ化メチルの吸着速度に関した比例定数であり，吸着定数と定義できる。DFとDF'はヨウ素およびヨウ化メチルの除染係数である。

図5は小形装置を用いて測定したヨウ素およびヨウ化メチルの除染係数をフィルタ厚さに対してプロットしたもので，これらの結果は(1)(2)式の成立することを示すものである。しかし別途に行な

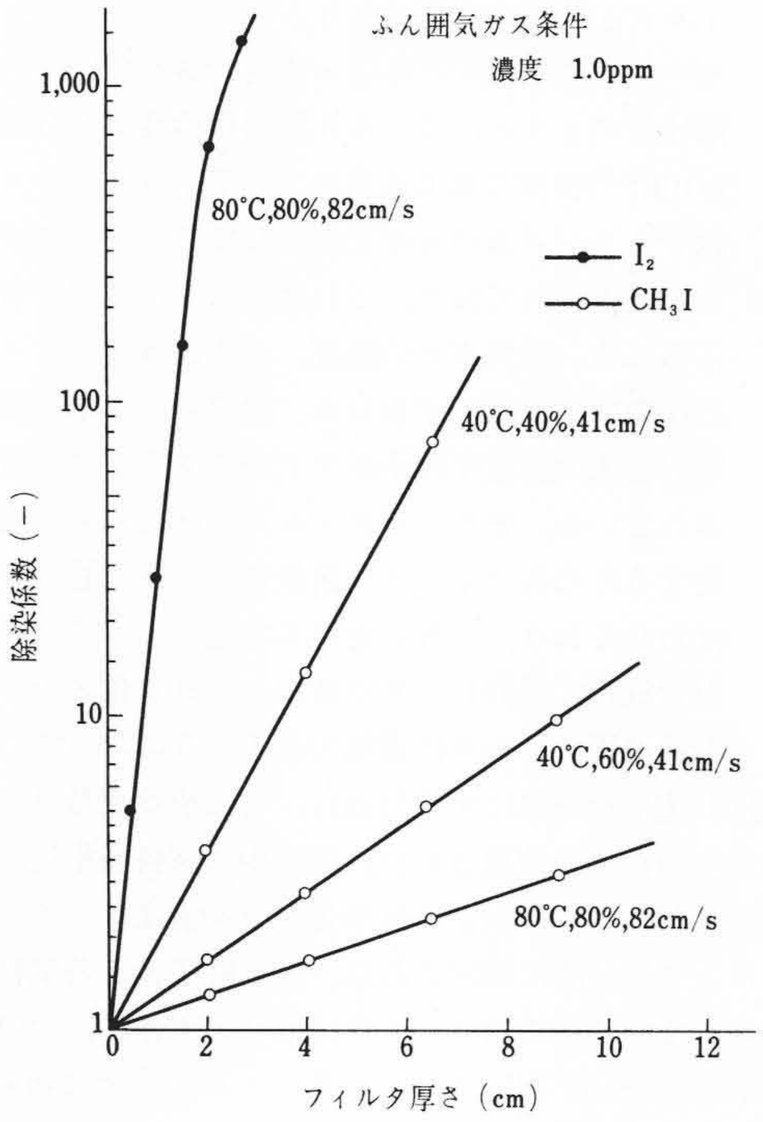

図5　フィルタ厚さと除染係数の関係

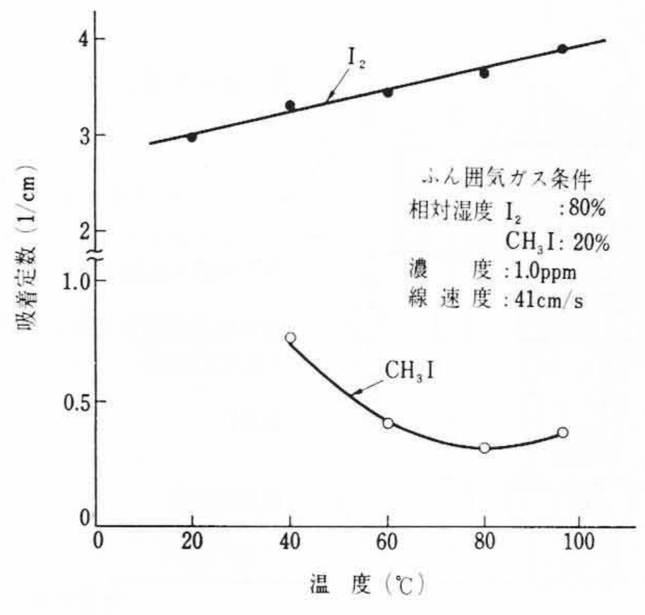

図6　温度の影響

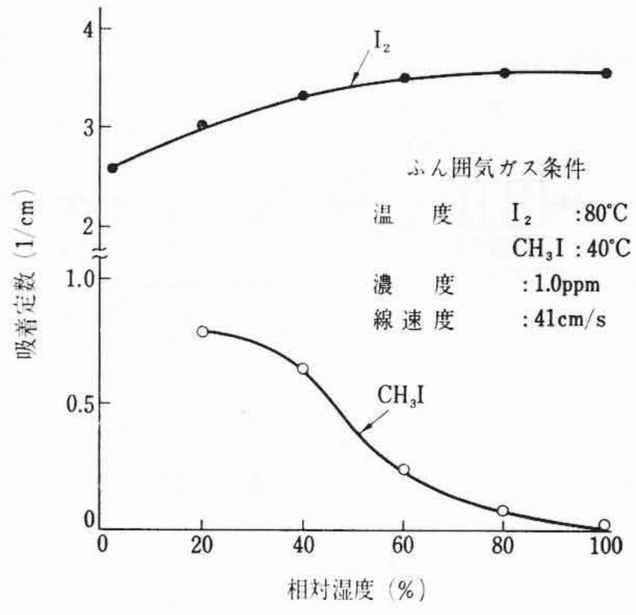

図7　相対湿度の影響

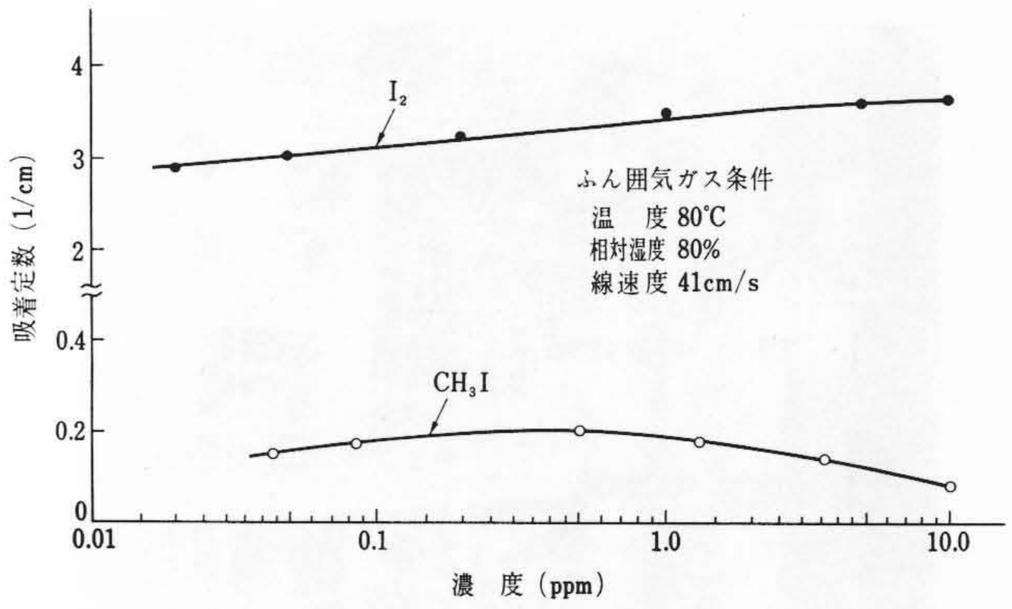

図8　濃度の影響

った高湿度ふん囲気ガスの実験では，ヨウ化メチルの除染率は必ずしも(2)式で表わされないことが明らかとなった。このようなヨウ化メチルの変則的な挙動は，水分の活性炭への吸着量が増大するに伴い，活性炭のヨウ化メチル吸着容量が減少することによるものと考えられる。ヨウ化メチルの吸着定数は同一条件下におけるヨウ素のそれに比べて小さい。これは活性炭へのヨウ化メチルの吸着速度がヨウ素のそれに比べて小さいためと考えられる。

3.2　吸着定数に及ぼす各種因子の影響

ヨウ素およびヨウ化メチルの吸着定数は通気する空気の温度，相対湿度，それぞれの濃度および通気線速度などの条件によって変化するため，それぞれの吸着定数を種々の条件下において系統的に測定した。**図6**はヨウ素およびヨウ化メチルの吸着定数に及ぼす温度の影響を示したものである。この結果によるとヨウ素の吸着定数は温度の上昇に伴って増大しているが，ヨウ化メチルのそれは温度が40℃から60℃に上昇したとき著しく減少し，60℃以上ではほとんど温度に影響されていない。

ヨウ素およびヨウ化メチルの吸着定数は相対湿度に影響される。**図7**は相対湿度を変えて測定したそれぞれの吸着定数を示したもので，相対湿度のヨウ素の吸着定数に対する影響は，ヨウ化メチルが相対湿度の増大によって著しく減少することに比べて小さい。ヨウ化メチルの吸着定数が，相対湿度40～60%の範囲で急激に変化するのは，活性炭の細孔内に水が凝縮する，いわゆる水の毛細管凝縮に関係づけられるものと考えられる[8]。活性炭へのヨウ素およびヨウ化メチルの吸着機構から考察すると吸着定数はこれらの濃度に無関係に一定となるはずである。これらの実験の結果，吸着定数の濃度依存性はきわめて小さいことが明らかとなった。**図8**はヨウ素およびヨウ化メチルの吸着定数をそれぞれの濃度0.5～10 ppmの範囲にて測定した結果である。ヨウ素の吸着定数が低濃度域にて若干小さくなっているのは，一部のヨウ素が単体ヨウ素以外の形態になっていることによるものと考えられる。**図9**は温度80℃，相対湿度80%の条件下における線速度と吸着定数との関係を示したものである。ヨウ素およびヨウ化メチルの吸着定数はいずれも線速度の増大によって減少している。これらの吸着定数の線速度が増大すると小さくなることは吸着速度の減少によるものであろう[12]。Collins氏[9]によれば，除去効率はフィルタ厚さを線速度によって除して得られる滞留時間の関数として表わされることを報告している。しかしながら，この関係は線速度80 cm/s以下では成立しないことが**図10**の結果から明らかである。同一滞留時間の条件下で，低流速域における除染係数が高流速域のそれに比べて小さいことは，吸着律速が異なるためと考えられる。

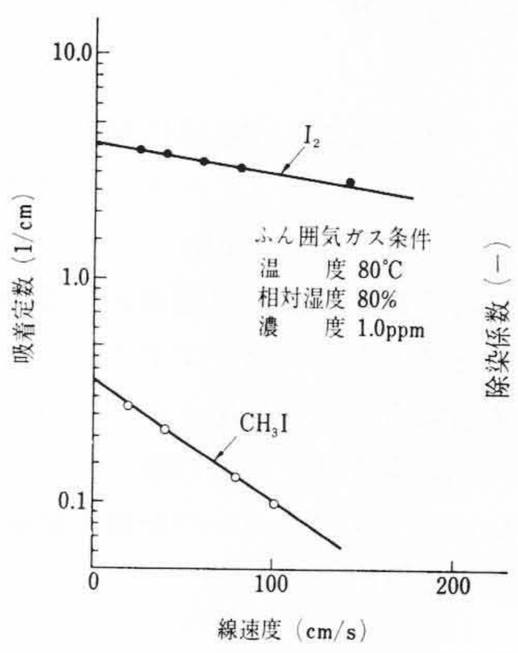

図9　線速度の影響

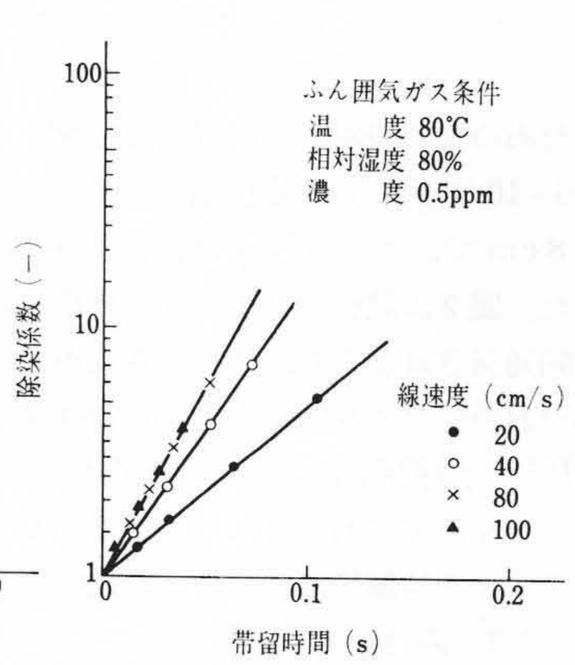

図10　ガス滞留時間と除染係数の関係

通気ガスの対相湿度が大きくなると，活性炭のヨウ化メチルの除去性能は著しく低下するが，活性炭に少量のヨウ素化合物またはピリヂンなどの有機化合物を添加すると(いわゆる添着炭)，除去性能は著しく改善される。**図11**は温度40℃における吸着定数と相対湿度の関係を示したもので，白三角印で示した活性炭の吸着定数は相対湿度が約50%以上となると急激に低下するが，これに反して黒三角印で示した添着炭のそれは相対湿度に関係なくほぼ一定の値を示

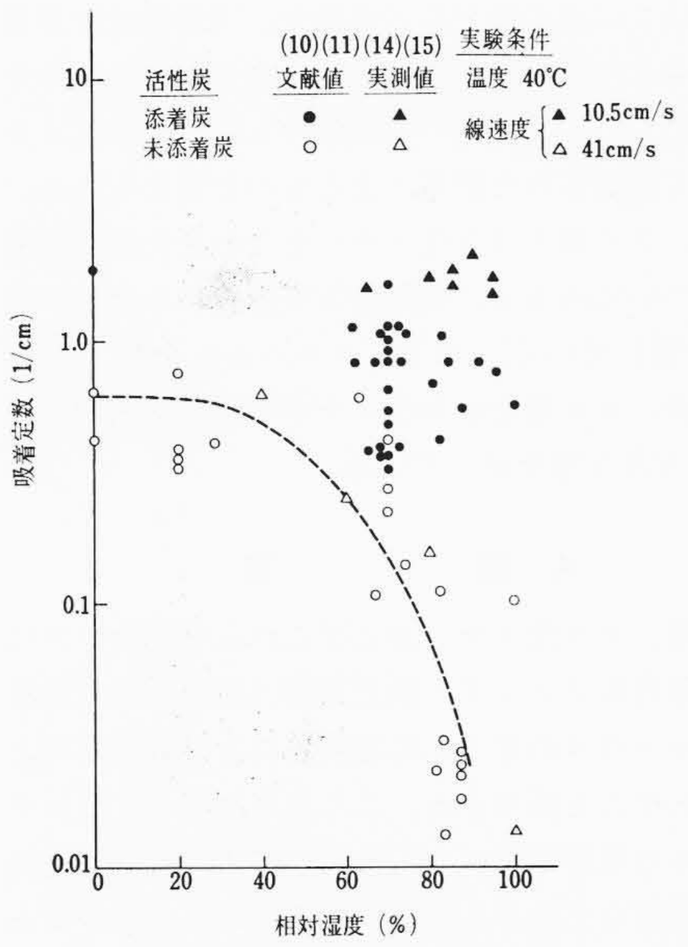

図 11　ヨウ化メチルの吸着定数

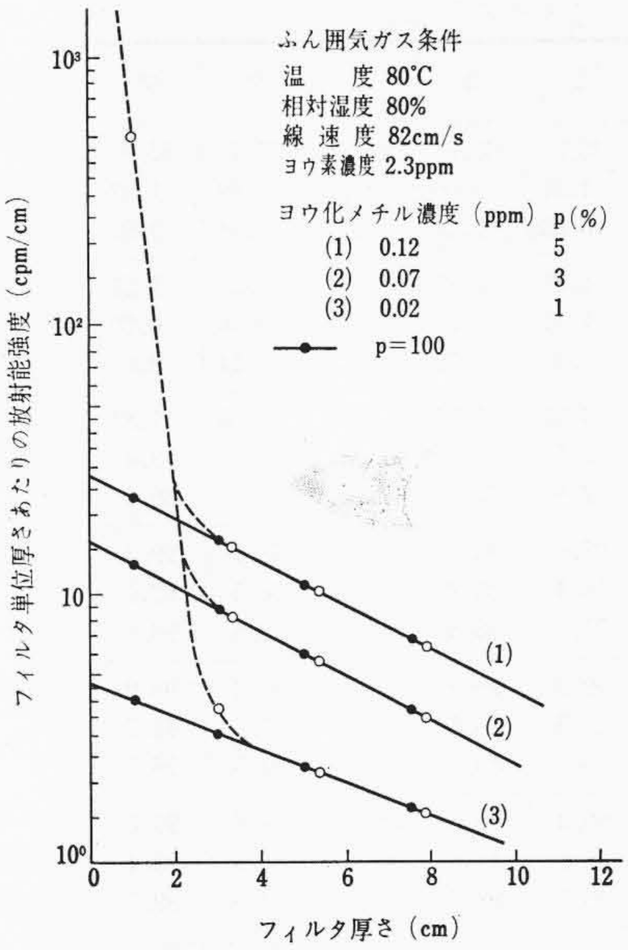

図 12　ヨウ素およびヨウ化メチルの吸着分布

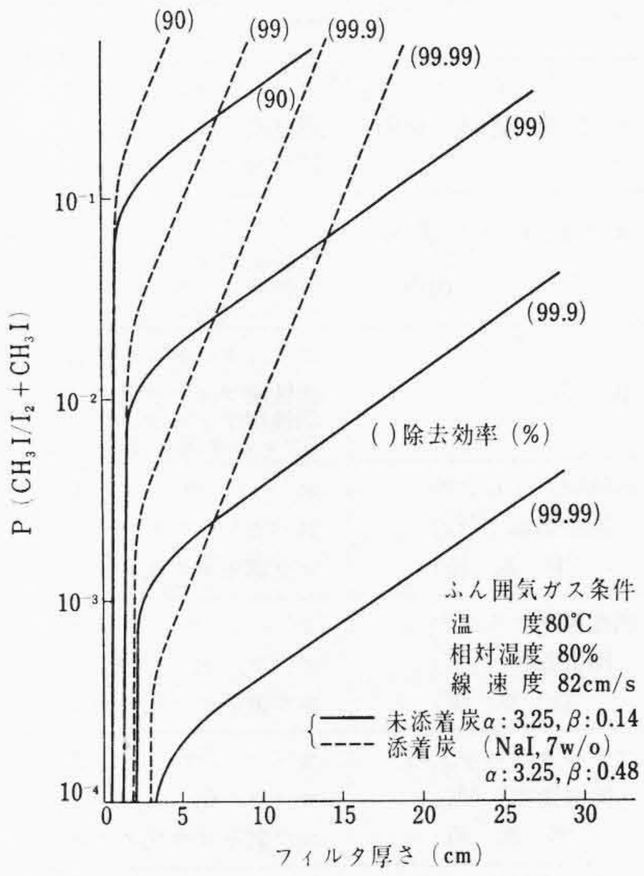

図 13　フィルタ厚さと除去効率の関係

している。参考のためにほかの実験者のデータから吸着定数を求めてプロットすると丸印で示すように，活性炭と添着炭の吸着定数は明らかな相違が認められる。これらの値は同一条件下において測定されたものでなく，したがって厳重な意味での両者の比較はできないが，相対湿度 80% における添着炭の吸着定数 (0.4～2.0) は活性炭 (0.015～0.15) よりもはるかに大きいといえる。

3.3　ヨウ素およびヨウ化メチル混合ガスの除去効率

もしヨウ素とヨウ化メチルとの間に相互干渉がないならば，これらの混合ガスに対する活性炭フィルタの総合除染率 DF_t は次の式から算出できる[13]。

$$DF_t = \frac{1}{(1-P)e^{-\alpha x}+Pe^{-\beta x}} \quad \cdots\cdots(3)$$

ここに P はフィルタに通気するヨウ素中のヨウ化メチル存在比，α および β は与えられた条件下におけるヨウ素およびヨウ化メチルの吸着定数である。この式の妥当性を確かめるため，ヨウ素とヨウ化メチルの混合ガスを含む空気を活性炭フィルタに通気し，活性炭フィルタ内におけるヨウ素およびヨウ化メチルの吸着分布を求めた。結果を**図 12** に示す。図中破線 (1)(2)(3) はヨウ素濃度を 2.3 ppm と一定にし，ヨウ化メチル濃度を 0.12，0.07 および 0.02 ppm として測定した結果である。黒丸印はヨウ化メチル単独の場合の結果である。フィルタ厚さゼロに外そうして得られる放射能強度はヨウ化メチル濃度に比例しており，さらに，ヨウ素に混入したヨウ化メチルと単独ヨウ化メチルとの間の活性炭フィルタ内における吸着分布の差異は認められない。したがって，ヨウ素とヨウ化メチルとの間の相互干渉は当実験を行なった条件範囲内ではないものといえる。

前述のように吸着定数 α および β はともに温度，湿度，通気速度などふん囲気ガス条件によってかなり異なっている。両者の定数をこれら因子の関数として一元的に表わすためには多大な数の測定値を必要とすることから，便宜上，事故時においてじゅうぶんにきびしいと考えられる条件下における α (3.25) および β (0.14) を求め，これを (3) 式に代入して，総合除去率 90，99，99.9 および 99.99% を得るに必要なフィルタ厚さを存在比 P に対して算出した。その結果を**図 13** の実線で示す。同じふん囲気ガス条件下において求めたヨウ化ナトリウム添着炭 (7 W/0) フィルタの α (3.25) と β (0.48) を代入して計算を行なうと，結果は**図 13** の点線で示すようになり，フィルタの総合除去効率は著しく大きくなる。

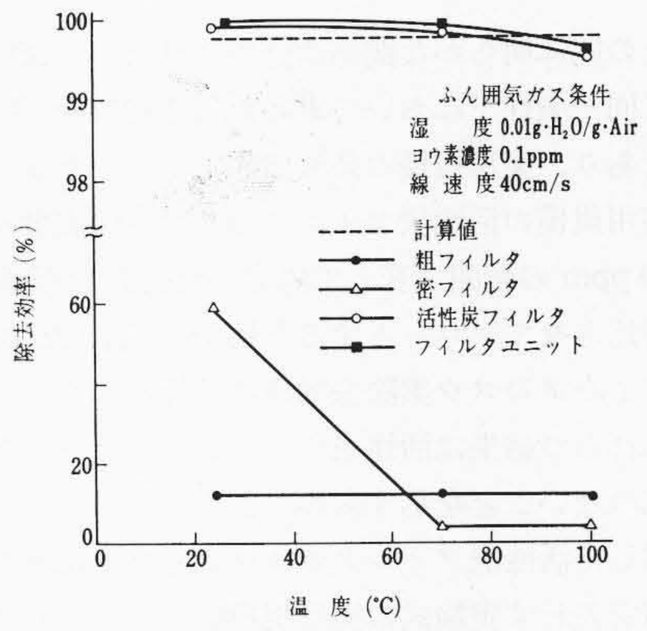

図 14　フィルタユニットと各フィルタのヨウ素除去効率

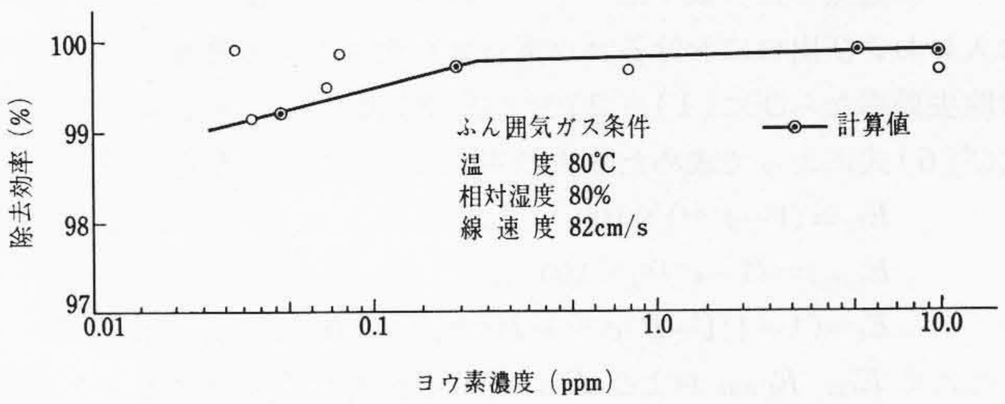

図 15　実規模活性炭フィルタのヨウ素除去効率

3.4　実規模装置による実験

大形活性炭フィルタの性能を評価するため，2 種類の粒子除去用フィルタと活性炭フィルタを組み合わせた実用規模のフィルタユニットを試作し，これのヨウ素の除去効率を測定し，得られた値を (1) 式を用いて算出した計算値と比較した。**図 14** は 0.1 ppm のヨウ素を含む湿り空気を 40 cm/s の線速度にて通気した場合の各フィルタとフィルタユニットのヨウ素除去効率を温度に対してプロットしたものである。粗フィルタおよび活性炭フィルタの除去効率はほとんど変化しない。これに対して，密フィルタの除去効率は温度によってかなり変化している。ヨウ素の相当量のものが粒子除去用フィルタに捕集されていることは，通気ガス中に水滴が微細な粒子として存在し，これにヨウ素が吸着された結果によるものと推察される。しかし，ふん囲気ガス条件と粒子除去用フィルタによって捕

表1　フィルタのヨウ素およびヨウ化メチル除去効果

	受験番号	1	2	3	4	5*	6*
ヨウ素濃度（ppb）	フィルタユニット入口	34.5	35.3	67.6	66.8	67.4	62.9
	活性炭フィルタ入口	2.54	1.31	5.86	5.12	2.99	1.92
	活性炭フィルタ出口	0.074	0.038	0.24	0.15	0.04	0.01
ヨウ化メチル濃度（ppb）	フィルタユニット入口	1.21	1.21	1.21	1.21	1.21	1.21
	活性炭フィルタ入口	0.97	1.01	1.06	0.66	0.50	0.20
	活性炭フィルタ（ンィルタユニット）出口	0.65	0.49	0.70	0.41	0.24	0.07
p（%）	フィルタユニット入口	3.39	3.31	1.76	1.78	1.76	1.89
	活性炭フィルタ入口	27.8	43.5	15.3	11.5	14.4	9.4
	活性炭フィルタ（フィルタユニット）出口	89.8	92.8	74.4	72.4	85.7	86.2
活性炭フィルタの除去効率（%）（実測値）	ヨウ素	97.1	97.0	95.8	96.8	98.6	99.3
	ヨウ化メチル	33.0	50.8	33.2	37.5	56.0	63.1
	ヨウ素＋ヨウ化メチル	79.3	77.0	86.3	90.1	92.5	96.0
活性炭フィルタの除去効率（%）（計算値）	ヨウ素	99.9	99.9	99.9	99.9	99.9	99.9
	ヨウ化メチル	29.5	29.5	29.5	29.5	61.7	61.7
	ヨウ素＋ヨウ化メチル	80.4	69.4	89.2	91.9	94.5	96.3
フィルタユニットの除去効率（%）（実測値）	ヨウ素	99.8	99.9	99.6	99.8	99.9	99.8
	ヨウ化メチル	45.9	58.8	41.6	65.5	81.6	93.4
	ヨウ素＋ヨウ化メチル	98.0	98.5	98.6	99.2	99.6	99.7

ふん囲気ガス条件
温度　70℃
相対湿度　80%
線速度　80 cm/s

* 添着炭（NaI，7 W/0）

集された量との間に明らかな関係は認められない。図中破線は小形装置によって同一条件下において求めた吸着定数を(1)式に入れて算出した値であり，実用規模の装置で測定した値とよく一致している。同様に実用規模の活性炭フィルタのヨウ素除去効率をヨウ素濃度を0.03～10 ppmの範囲で変えて測定した結果を吸着定数から算出した値と対比させてプロットすると**図15**に示したように，実用規模の活性炭フィルタのヨウ素除去効率は計算値によく一致することがわかる。これらの結果は活性炭フィルタのスケールアップに基づく性能の変化のないことを示すものである。

さきに提案した活性炭フィルタのヨウ素とヨウ化メチルを合わせた総合除染率を表わす実験式の実用規模活性炭フィルタにおける適用性を確かめるため，ヨウ化メチル存在率（p）*約3%のヨウ素ガスを温度70℃，相対湿度80%，線速度80 cm/sの条件下でフィルタユニットに通気した。**表1**はフィルタユニットおよび活性炭フィルタの入口および出口におけるヨウ素とヨウ化メチルの濃度，フィルタの除去効率ならびに(1)，(2)および(3)式から導いた(4)，(5)および(6)式によって求めた除去効率の計算値を示したものである。

$$E_{I_2}=(1-e^{-\alpha x})\times 100 \quad \cdots\cdots(4)$$

$$E_{CH_3I}=(1-e^{-\beta x})\times 100 \quad \cdots\cdots(5)$$

$$E_t=[1-\{(1-P)e^{-\alpha x}+Pe^{-\beta x}\}]\times 100 \quad \cdots\cdots(6)$$

ここにE_{I_2}，E_{CH_3I}およびE_tはそれぞれヨウ素，ヨウ化メチル除去効率および両者の総合除去効率を示したものである。なお計算には**表1**と同一条件下で求めた小形活性炭フィルタの値$\alpha=3.25$，$\beta=0.12$（添着炭0.32）を用いた。**表1**中の星印は活性炭に7 W/0のヨウ化ナトリウムを添着した活性炭フィルタについての値を示している。活性炭フィルタのヨウ素除去効率の計算値は99.9%と大きいが，いずれの場合も実測値はこれよりは小さい。しかしヨウ化メチルについては逆にほとんどの場合，実測値は計算値よりも大きくなっている。これはヨウ化メチルの分別定量においてヨウ素の一部分のものがヨウ化メチルとして測定された結果によるものと考えられる。しかし，ヨウ素とヨウ化メチルを合わせた総合除去効率についてみると，実測値と実算値がかなりの精度で一致している。フィルタユニット全体としてみた場合，ヨウ素とヨウ化メチルの総合除去効率は98%と大きな値を示している。

* $p=\dfrac{CH_3I}{I_2+CH_3I}\times 100=P\times 100$

4. 結　　言

ヨウ素，ヨウ化メチルおよびこれらの混合ガスに対する活性炭フィルタの除去効率は除染係数の対数とフィルタ厚さの比として定義される吸着定数によって表わすことができる。これらヨウ素およびヨウ化メチルの吸着定数はともに，温度，相対湿度，通気ガス線速度などのふん囲気ガス条件によって多少とも変化する。ヨウ素の吸着定数は大きく，ふん囲気ガス条件の変化に伴う変動は少ない。これに反し，ヨウ化メチルの吸着定数は小さく，ふん囲気ガスの条件，とくに相対湿度に著しく影響される。これらのことについて詳細な検討を行なった結果，少量のヨウ化メチルを含むヨウ素に対する活性炭フィルタの総合除去率は，与えられた条件下におけるヨウ素とヨウ化メチルの吸着定数を用いて算出できることを知った。したがって種々のふん囲気ガス条件下において求めた吸着定数の値は活性炭フィルタの設計および性能評価においてきわめて有効な数値であるといえる。

実用規模の活性炭フィルタを用いての確性試験の結果，フィルタのスケールアップに伴う除去効率の変化は認められない。また，ヨウ素およびヨウ素とヨウ化メチル混合ガスに対する除去効率は吸着定数を用いて算出した計算値に一致することが明らかとなった。

本研究は昭和41年および42年度原子力平和利用委託費によって行なわれたものである。関係者各位ならびにご指導いただいた日立製作所日立研究所河原誠二部長ならびに藤江秀夫主任研究員に感謝する。

参　考　文　献

(1) Morris, J. B., et al: J. Nucl. Eng., A/B, **16**, 437 (1962)
(2) Chamberlain, et al: ibid., A/B, **17**, 519 (1963)
(3) McCromach, J. P.: HW-81746 (1964)
(4) Prigge, G. H. et al: DP-778 (1962)
(5) Adams, R. E., et al: ORNL-3726 (1965)
(6) Davis, M. E., et al: ORNL-TM-1009 (1964)
(7) Eggleton, A. E. J.: Radiochimica Acta, **3**, 151 (1964)
(8) Adams, R. E., et al: ORNL-TM-1291 (1966)
(9) Collins, D. A., et al: CONF-650407, Vol. 2, 853 (1965)
(10) Ackley, R. E., et al: ORNL-3915 (1966)
(11) Adams, R. E., et al: ORNL-4040 (1967)
(12) Ackerman, F. J., et al: CONF-660902, Vol. 2, 230 (1966)
(13) Billard, F., et al: CONF-650407, Vol. 2, 814 (1965)
(14) Browning W. E.: ORNL-3776 (1965)
(15) Cottrell W. E.: ORNL-3843 (1965)