

방사성 폐기물 처분시스템에서의 핵종 이동에 관한 이론적 연구

최희주·이한수·한필수·한경원·박헌휘

한국에너지연구소 방사성폐기물관리부
(1987년 11월 16일 접수, 1988년 1월 28일 채택)

A Theoretical Study on the Migration of Radionuclides in a Radwaste Disposal System

Heui-Joo Choi, Han-Soo Lee, Pil-Soo Hahn, Kyong-Won Han and Hun-Hwee Park

Radwaste Management Division, Korea Advanced Energy Research Institute, Choong-Nam 300-31, Korea
(Received 16 November 1987; accepted 28 January 1988)

요 약

중·저준위 방사성 폐기물 처분시스템에서 방사성 핵종의 암반내를 통하여 이동하는 현상을 암반 균열과 암반 결정내에서 각각 모델을 세워 해석하였다. Sr-90의 이동과 관련된 각 변수들에 대한 예민도 분석을 수행한 결과 균열의 크기 및 지하수 이동속도가 암반내에서의 핵종의 이동에 가장 민감한 것으로 나타났다.

Abstract—Migration performance of radioactive nuclides in the disposal system of low and intermediate level radwaste was investigated. The migration of Sr-90 through fractures and rock matrix were modeled herein and a sensitivity analysis for the approach was performed. The results show that the fracture width and groundwater velocity are the dominant parameters to the release of radionuclides from a radwaste repository.

1. 서 론

현재 국내에서 가동중이거나 건설중인 원자력발전소는 11호기에 달하고 있다. 원자력발전소로 가동으로 말미암아 원자력발전소로 부터는 해마다 수백 드럼의 중·저준위 방사성 폐기물이 각 원자력발전소를 부터 발생하고 있다. 원자력발전소로 부터 발생하는 중·저준위 방사성 폐기물은 발전소의 1차 냉각계통으로 부터의 폐이온 교환수지, 폐필터, 농축 폐액 등이 시멘트와 섞여 고화되어 200리터 탄소강 드럼에 담겨있는 형태이다. 이러한 방사성 폐기물은 현재 각 발전소내에 임시 저장되고 있으나 발생량이 증가함에 따라 이를 중합, 영구

관리하는 영구 처분장의 건설이 고려중이다.

방사성 폐기물의 영구 처분 방식으로는 크게 해양 투기와 육지 처분 방식이 있으나 1972년 런던 조약 이후 각국에서는 육지 처분 방식을 고려하고 있다. 본 연구에서는 우리나라의 자연환경 등을 고려하여 가능성 있는 처분 방식인 암반내 인공동굴내에 방사성 폐기물을 처분하였을 경우 이러한 처분 시스템 내에서의 핵종의 이동을 예측하기 위한 모델을 설정하였으며 이에 따른 주요한 파라미터의 예민도를 분석하였다. 폐기물 고화체내의 핵종의 처분 시스템내에서의 이동을 모사하기 위해서는 크게 3단계로 나누어 해석을 한다. 즉 지하수에 의한 핵종의 침출을 계산하기 위한 침출 모델, 핵종

의 암반에서의 이동을 모사하기 위한 모델과 환경에서의 이동 모델이다. 본 연구에서는 이들 중 침출 모델과 암반에서의 핵종 이동 모델에 대해 수식을 세워 해를 구하였으며 이들 모델의 예민도 분석을 수행해 보았다.

2. 이 론

2-1. 침출 모델

폐기물 고화체로 부터 침출되는 핵종의 양을 모사하기 위해서 널리 이용되는 모델로는 확산모델이 있다 [1]. 이 확산모델은 폐기물 고화체가 지하수 속에 이상적으로 잠겨있는 경우 명확한 경계조건을 갖게되어 해가 구해지게 된다. 폐기물 고화체에 대한 침출 실험 등의 결과[2]를 살펴 보면 30일 정도의 시간이 흐르면 침출 속도가 정상상태에 도달하고 있어, 처분 시스템 내에서 핵종 이동에 관심을 갖는 기간이 수십년에서 수백년에 이르고 있음을 감안하여 핵종 침출은 흡착 평형상태로 가정하였다. 또한 처분장내에 고화체는 동일한 매질로 균일하게 분포되어 있으며, 처분장에서 누출되는 핵종량은 처분장내의 전체 핵종량에 비해 매우 작으므로 처분장내의 핵종 농도는 항상 평형상태로 일정하게 유지된다고 가정하였다.

이상과 같은 가정으로 부터 다음과 같은 흡착 평형식을 구할 수 있다.

$$Kd_r = \frac{Q(1-y)/Vo\rho_w}{Qy/Vo\varepsilon_r} \quad (1)$$

여기서 분자는 처분장 내 고화체에 흡착되어 있는 핵종의 총량, 분모는 지하수에 녹아 있는 핵종의 총량을 나타내며 y 는 지하수에 녹아있는 핵종의 총 핵종량에 대한 분율을 나타낸다. 또한 $Vo\rho_w$ 는 고화체의 질량, $Vo\varepsilon_r$ 은 지하수의 총 부피를 나타낸다. 위의 식과 지하수 내의 핵종의 농도는 $Co = Qy/Vo\varepsilon_r$ 로 주어짐을 고려하면 아래와 같이 지하수내의 핵종의 농도 Co 를 Kd_r 값을 이용하여 쉽게 구할 수 있다.

$$Co = \frac{Q}{Vo(Kd_r \cdot \rho_w + \varepsilon_r)} \quad (2)$$

2-2. 암반에서의 핵종 이동 모델

암반내 인공 동굴을 건설하여 방사성 폐기물 처분을 할 경우, 폐기물 고화체로 부터 침출된 핵종은 처분장을 둘러싸고 있는 암반을 통하여 이동된다. 암반을 통한 핵종 이동현상은 암반을 균일한 다공성 매질로 가정

하여 핵종 이동이 해석되어 왔으나 실제 암반의 균열(fracture)로 인한 불균일성 영향을 고려하기 위하여 균열/다공성 매질에서의 핵종 이동 모델이 1980년 Neretnieks[3]에 의해 제시되었다.

암반과 같은 균열성 매질의 경우 핵종의 이동은 암반 내의 기공을 통하여 이루어지며, 전체 공극률은 flow 공극률, 확산 공극률과 잔여(residual) 공극률도 이루어진다[4]. 즉 전체 공극률은 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$\phi_t = \phi_f + \phi_d + \phi_r \quad (3)$$

암반내에서의 지하수의 이동은 flow 기공을 통하여 대부분이 이루어지고 있으며 이는 균열로 형성되어 있다. 즉 암반의 투수성(permeability)은 균열 폭 및 균열사이의 간격에 의해 결정된다[5]. 따라서 핵종 이동은 이 flow 기공을 통하여 지하수의 이동 즉 convection과 농도차에 의한 확산에 의해 이루어진다. 확산기공은 지하수의 흐름은 없으나 flow 기공과 연결되어 있어 핵종의 이동에 확산 영향을 미치고 있는 기공이다. 이들 flow 공극률과 확산 공극률의 부피는 전체 공극률의 10% 미만에 불과하며, 실제로는 지하수의 영향이나 핵종의 이동에는 아무런 영향을 미치지 않는 잔여 공극률이 전체 공극률의 90% 이상을 차지하고 있다[4].

Flow 기공을 이루고 있는 암반내의 균열이 폭 $2b$ 를 가진 무한 평면이라고 가정하면, Fig. 1에 나타나 있는 바와 같이 균열내에서의 지하수의 이동방향은 1차원이 되며 균열과 확산기공에 대한 물질 수지식은 아래와 같이 나타낼 수 있다.

균열에서의 방사성 핵종의 물질 수지식은 다음과 같다.

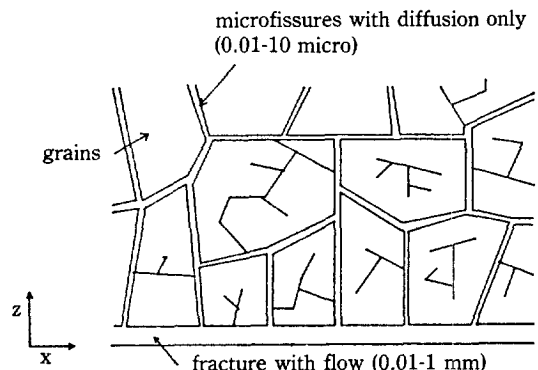


Fig. 1. Conceptual picture of a porous matrix of crystalline rock.

$$R_f \frac{\partial C_f}{\partial t} = D_f \frac{\partial^2 C_f}{\partial x^2} - V_f \frac{\partial C_f}{\partial x} - \lambda R_f C_f + \frac{\phi_a D_p}{b} \frac{\partial C_p}{\partial z} \Big|_{z=b} \quad (4)$$

여기서 λ 는 방사성 핵종의 붕괴상수, V_f 는 지하수 이동속도, D_f 는 균열에서의 분산계수를 나타내며, 지연 계수 R_f 는 균열에서의 경우 다음과 같이 주어진다[6].

$$R_f = 1 + \frac{K_a}{b} \quad (5)$$

K_a 는 암반의 단위 표면적에 대한 흡착능을 나타내는 표면 분배계수로서 지하수내에 용해되어 있는 핵종의 농도가 매우 작으므로 흡착평형이 선형으로 이루어진다고 가정하면 다음과 같다.

$$q/A = K_a \cdot C \quad (6)$$

여기서 q 는 흡착량, A 는 암반의 표면적, C 는 핵종 농도를 나타낸다. 또한 확산기공에서의 방사성 핵종의 물질 수지식은 다음과 같다.

$$R_p \frac{\partial C_p}{\partial t} = D_p \frac{\partial^2 C_p}{\partial z^2} - \lambda R_p C_p \quad (7)$$

여기서 R_p 는 지연계수로서 확산기공 내에서의 경우 다음과 같이 주어진다[6].

$$R_p = 1 + \frac{K_d \cdot \rho_r}{\phi_a} \quad (8)$$

여기서 K_d 는 분배계수로서 흡착평형이 선형으로 이루어진다고 가정하면 다음과 같다.

$$q/w = K_d \cdot C \quad (9)$$

여기서 w 는 암반의 질량을 나타낸다.

식 (4)와 (7)은 서로 연계되어 있는 2차 편미분 방정식으로서 이에 대한 해석에는 Neretnieks[3]와 Hadermann과 Roesel[7]에 의해 (4)식의 분산항이 없는 경우에 대해 각각 구해졌으며, 또한 분산항이 있는 경우에 대해서는 Tang 등[8]에 의해 해석해가 구해졌다. Tang 등이 이용한 초기 및 경계조건은 아래와 같으며 $z=0$ 일 때의 핵종 농도가 일정하다고 가정하였다.

$$C_f(x, 0) = 0 \quad (10)$$

$$C_f(0, t) = C_0 \quad (11)$$

$$C_f(\infty, t) = 0 \quad (12)$$

$$C_p(x, z, 0) = 0 \quad (13)$$

$$C_p(x, b, t) = C_f(x, t) \quad (14)$$

$$C_p(x, \infty, t) = 0 \quad (15)$$

여기서 C_0 는 침출된 핵종의 초기농도를 나타내게 된다.

그러나 실제 처분장에서의 방사성 핵종 농도 즉 $z=0$ 에서의 핵종 농도는 방사성 붕괴에 의해 시간에 따라 감소하게 된다. 따라서 본 연구에서는 실제 처분장에서의 방사성 핵종의 붕괴를 고려하기 위하여 아래와 같은 경계조건을 이용하였다.

$$C_f(0, t) = C_0 \exp(-\lambda t) \quad (16)$$

상기의 경계조건을 이용하여 연계된 편미분 방정식 (4)와 (7)의 해석해를 구하기 위해 식 (16a)와 (16b)와 같이 치환한 후 Laplace 변환을 통해 연계된 2개의 상미분 방정식 (17), (18)로 변환시켰다.

$$C'_f(x, t) = C_f(x, t) \exp(\lambda t) \quad (16a)$$

$$C'_p(x, z, t) = C_p(x, z, t) \exp(\lambda t) \quad (16b)$$

$$\frac{d^2 \bar{C}_f}{dx^2} - \frac{V_f}{D_f} \frac{d\bar{C}_f}{dx} - \left(\frac{\phi_a D_p}{D_f b} \eta \sqrt{S} + \frac{R_f}{D_f} S \right) \bar{C}_f = 0 \quad (17)$$

$$\frac{D_p}{R_p} \frac{d^2 \bar{C}_p}{dz^2} - S \bar{C}_p = 0 \quad (18)$$

여기서 $\eta^2 = \frac{R_p}{D_p}$ 이며, \bar{C}_f 및 \bar{C}_p 는 C'_f 및 C'_p 를

Laplace 변환한 변수이다.

또한 경계조건에 대해서 Laplace 변환을 취하면 다음의 경계조건을 얻게 된다.

$$\bar{C}_f(x, 0) = 0 \quad (19)$$

$$\bar{C}_f(0, s) = \frac{C_0}{S} \quad (20)$$

$$\bar{C}_f(\infty, s) = 0 \quad (21)$$

$$\bar{C}_p(x, z, 0) = 0 \quad (22)$$

$$\bar{C}_p(x, b, s) = \bar{C}_f(x, s) \quad (23)$$

$$\bar{C}_p(x, \infty, s) = 0 \quad (24)$$

상미분방정식 (18)의 해는 쉽게 구해지며, 상기의 초기 및 경계조건으로 부터 식 (16)의 해 C_f 는 다음과 같이 구해진다.

$$\bar{C}_f(x, s) = \frac{C_0}{S} \exp\left(\frac{V_f x}{2D_f}\right) \exp\left[-\frac{V_f x}{2D_f} \left\{1 + \frac{4D_f^2}{V_f^2}\right\}\right]$$

$$\left(\frac{\phi_a D_p}{D_r b} \eta \sqrt{S} + \frac{R_f}{D_r} S \right)^{\frac{1}{2}} \quad (25)$$

식 (25)에 대한 역 Laplace 변환은 아래의 관계식을 통해 구해진다[9].

$$\int_0^\infty \exp(-\xi^2 - \frac{\chi^2}{\xi^2}) d\xi = \frac{\pi^{1/2}}{2} \exp(-2\chi) \quad (26)$$

$$L^{-1}[\exp(-ps)f(s)] = F(t-p)U(t-p) \quad (27)$$

여기서 $L^{-1}[f(s)] = F(t)$ 이며 $U(t)$ 는 계단함수를 나타낸다.

상기의 관계식과 식 (16a)를 이용하여 (25)식에 대한 역 Laplace 변환의 결과는 다음과 같이 얻어진다.

$$C_f(x, t) = \frac{2C_0}{\sqrt{\pi}} \exp\left(\frac{V_f x}{2D_f} - \lambda t\right) \int_{\frac{x}{2} - \frac{R_f x}{D_f}}^{\infty} \exp\left[-\xi^2 - \left(\frac{V_f x}{4\xi D_f}\right)^2\right] \operatorname{erfc}\left[\frac{x^2 \phi_a D_p \eta}{8\xi^2 D_r b \left(t - \frac{R_f x^2}{4\xi^2 D_f}\right)^{\frac{1}{2}}}\right] d\xi \quad (28)$$

식 (28)은 균열, 즉 flow pore 내에서의 방사성 핵종의 거동을 나타내는 식이 된다.

3. 결과 및 검토

3-1. 침출 모델

침출 모델의 결과를 검토하기 위해 중·저준위 방사성 폐기물 처분시 중요하다고 간주하는 방사성 핵종을 7개 선택하였으며, 이들의 초기 농도는 Macbeth 등[10]이 사용한 값을, 분배계수 값은 Fields 등[11]에 의해 인용된 값을 이용하여 침출 핵종 농도를 구하였으며, 이를 Table 1에 나타내었다. 방사성 폐기물을 200t 드럼 50만 드럼을 처분한다고 가정할 때, 처분장 부피는 적재효율이 50%일 때, 처분장 부피는 $2 \times 10^5 \text{ m}^3$ 이며, 폐기물 고화체와 처분장 사이의 공간은 콘크리트로 충

Table 1. Leach concentrations for 7 nuclides.

Nuclides	Q(Ci)	Kd(cc/g)	Co(Ci/m ³)
H-3	1.08×10^4	0.01	1.29×10^{-1}
Co-60	2.06×10^6	55.0	9.33×10^{-2}
Ni-63	2.38×10^4	150.0	3.96×10^{-4}
Sr-90	4.29×10^2	27.0	4.52×10^{-5}
Cs-137	1.30×10^6	1100.0	2.95×10^{-3}
Th-232	7.62×10^{-2}	60000.0	3.17×10^{-12}
U-238	6.35×10^0	45.0	3.51×10^{-7}

진하였다고 가정하면, 공극률은 0.4, 폐기물 고화체 밀도는 2.0g/cc가 된다.

3-2. 암반에서의 핵종 이동 모델

본 연구에서 고려한 핵종 이동 모델식 (4)와 (7)에 대한 변수들의 민감도를 분석해 봄으로써 암반내에서의 핵종 이동에 영향을 미치는 중요한 인자들에 대해 검토하였다.

Fig. 2는 방사성 붕괴효과를 잘 나타내고 있는 핵종 Sr-90 농도를 암반내의 거리에 따라 100년 간격으로 500년까지 도시한 것이다. 이 그림에서 보면 핵종의 농도구배는 시간이 흐름에 따라 진행하고 있으나 출구에서의 핵종의 농도는 식 (4), (7) 및 (16)식에서 나타나는, 방사성붕괴에 의하여 최대값을 가짐을 알 수 있다. 즉 40m 거리에서 400년까지는 농도가 증가하고 있으나 500년에는 다시 감소하고 있다.

식 (4)와 (7)의 주요 변수들인 지하수 이동속도, 지연계수, 분산계수, 암반내 균열 폭 및 tortuosity에 대해 예민도 분석을 수행하여 보기 위해 기본적인 결과를 다음의 값들을 이용하여 산출하였다. 즉, 방사성 핵종은 다른 핵종들에 비해 방사성 붕괴 효과를 잘 나타내고 있는 Sr-90을 선택하였으며, 암반내에서의 지하수 이동속도는 Darcy's law에 의하면 투수계수(hydraulic conductivity)와 수리구배(hydraulic gradient)

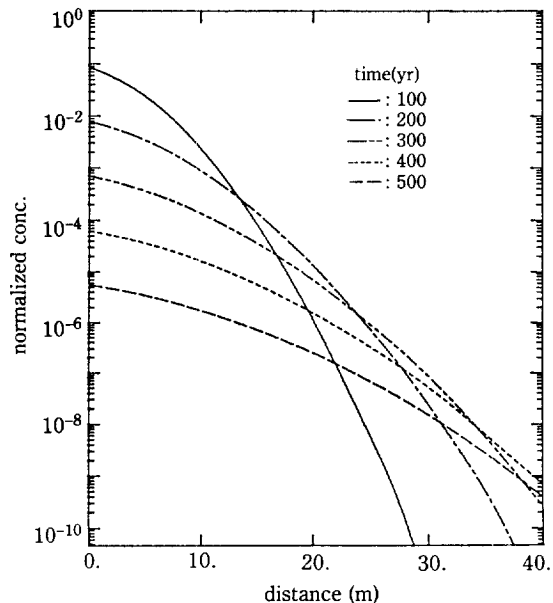


Fig. 2. Effects of radioactive decay and time on the breakthrough.

에 의해 결정되며 이들은 지역적 특성 및 암반의 상태에 따라 크게 좌우된다. 화강암의 경우 투수계수는 10^{-8} m/s 정도이며, 수리구배가 10^{-2} 일 때 지하수 이동속도는 10m/yr가 된다[6]. Sr-90의 암반에 선형분배계수는 암반의 경우 1.7 cc/g로 토양의 경우보다 약 10배 적은 것으로 나타났으며[12], 균열에서의 분산계수와 암반결정에서의 유효확산계수는 다음 관계식에서 얻어진다[8, 13].

$$D_f = \alpha \cdot v + D^* \quad (29)$$

$$D_p = \tau D^* \quad (30)$$

여기서 α 는 dispersion length, v 는 지하수 이동속도, τ 는 tortuosity factor, D^* 는 순수확산계수이다. 이 식으로 부터 분산계수는 지하수 이동속도에 비례하고 있음을 알 수 있으며, 이때의 비례상수로서 α 는 0.1m로 가정하였다. 암반의 밀도는 화강암의 경우 실험실 측정에 의하여 2.4 g/cm^3 를 얻어졌으며, 공극률은 0.05를 인용하였다[5]. 암반에서의 균열 폭은 문헌에 의하면 10^{-5} - 10^{-3} m의 범위를 가지고 있으나 보수적인 값인 0.001m를 사용하였다. Tortuosity factor는 0.1로서 많이 사용되고 있는 값을 취했으며[8] 순수확산계수는 Wilke-Chang 식[15]을 이용해 $0.05 \text{ m}^2/\text{yr}$ 의 값을 얻었다.

Fig. 3과 Fig. 4는 각각 암반의 균열 폭과 지하수 속

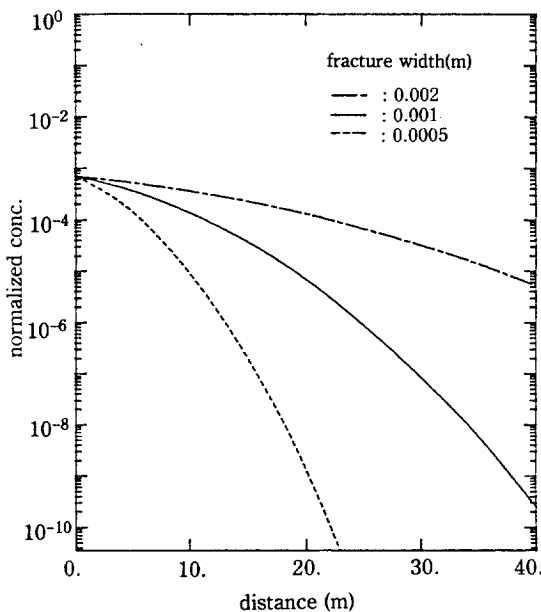


Fig. 3. Effects of fracture width on the breakthrough at 300 years by the factor of two.

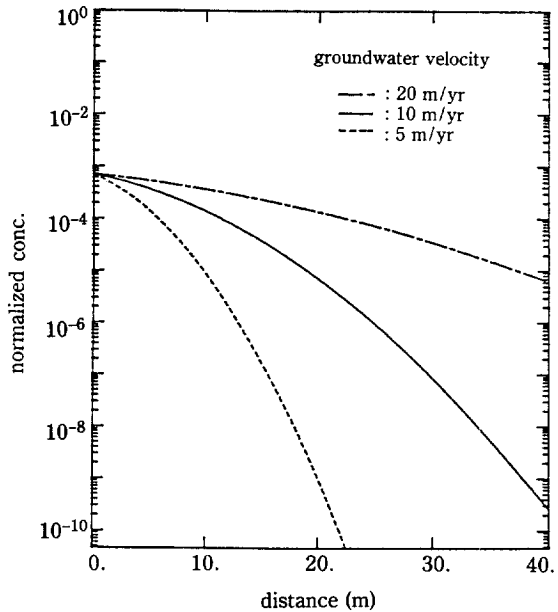


Fig. 4. Effects of groundwater velocity on the breakthrough at 300 years by the factor of two.

도가 2배와 0.5배로 변할 때의 결과를 나타낸 것인데 균열 폭이 클수록, 지하수 속도가 클수록 핵종이 빨리 진행한다는 것을 알 수 있다.

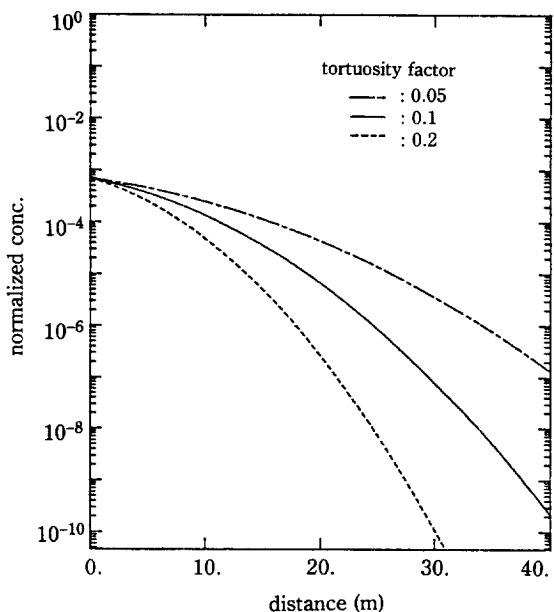


Fig. 5. Effects of tortuosity factor on the breakthrough at 300 years by the factor of two.

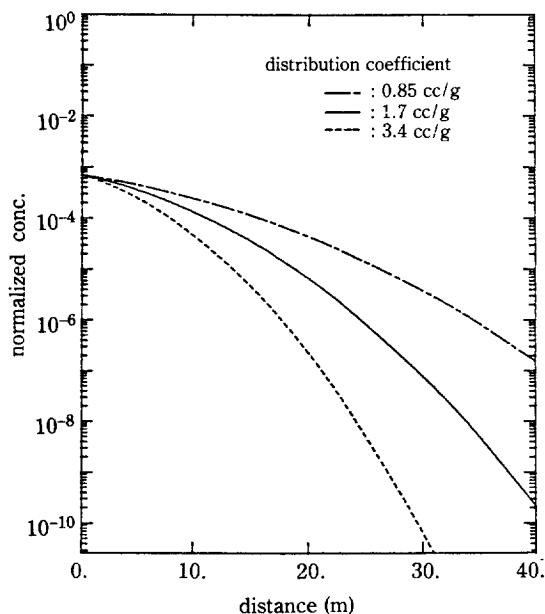


Fig. 6. Effects of distribution coefficient on the breakthrough at 300 years by the factor of two.

Fig. 5와 Fig. 6은 각각 암반 내부의 확산기공과 관계되는 tortuosity factor와 핵종과 암반 물질사이의 분배계수의 영향을 2배와 0.5배로 변화시켰을 때, 핵종의 농도 구배를 나타낸 것인데 tortuosity factor가 작을수록 분배계수가 작을수록 핵종이 빨리 이동한다는 것을 알 수 있다.

Fig. 7은 암반의 균열에서의 dispersion length를 10배와 0.1배로 변화시켰을 때, 핵종의 농도 구배를 나타낸 것인데 0.1배로 변했을 경우는 식 (29)에서의 순수 확산항의 영향을 받고 있음을 알 수 있었다.

Fig. 8은 각 변수들의 예민도를 비교해 보기 위해서 상기의 결과중 기준 결과보다 핵종 이동이 잘 되는 경우를 도시한 것인데 지하수 이동속도와 fracture width를 변화시켰을 때의 결과가 가장 크게 변하였고 분배계수 및 tortuosity factor를 변화시켰을 때의 결과가 중간, dispersion length를 변화시켰을 때가 가장 적게 나타났다. 이는 암반에서의 핵종 이동에 영향을 가장 크게 미치는 변수는 지하수 이동속도 및 균열 폭이며, dispersion length에 의한 영향은 적다는 것을 의미한다. 그러나 실제 분배계수는 같은 암반의 경우일지라도 지역 특성, 즉 암반구성성분 혹은 지하수 조건에 따라 1-1000배 정도로 변할 수 있으며, 이에 비

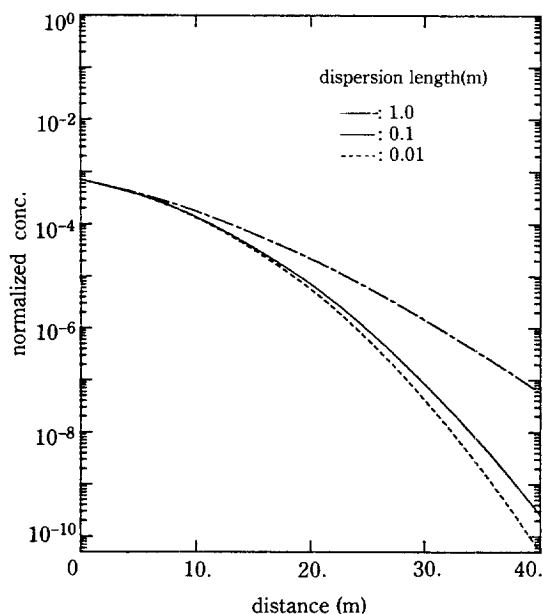


Fig. 7. Effects of dispersion length on the breakthrough at 300 years by the factor of ten.

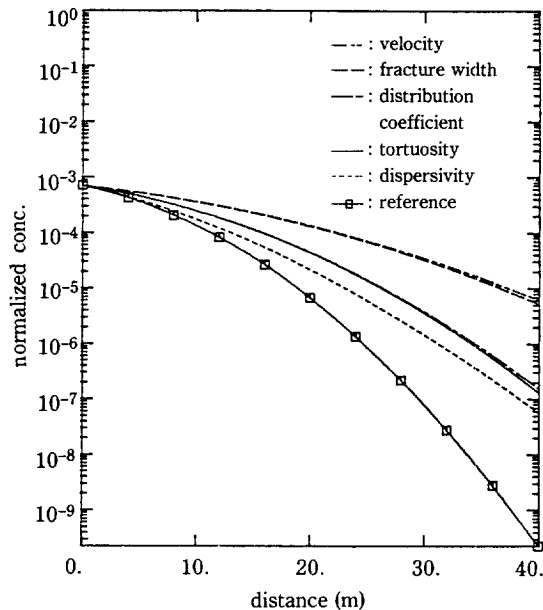


Fig. 8. Comparison of the effects of parameters at 300 year on breakthrough.

하여 지하수 이동속도는 지역 특성에 따라 1-10배 정도 변하므로 실제 정확한 핵종 거동을 알기 위해서는 지역 특성이 고려된 정확한 정보가 필요하다.

4. 결 론

중·저준위 방사성 폐기물을 처분함에 있어서 방사성 핵종의 암반내에서의 이동현상을 핵종 이동 모델을 설정하여 해를 구하고 예민도 분석을 통하여 검토하였다. 그 결과 암반내에서의 지하수 이동속도 및 fracture width가 가장 중요한 변수들로 나타났으며 이에 비하여 dispersion length는 상대적으로 핵종 이동현상에 영향을 적게 미치는 것으로 나타났다. 그러나 본 연구에서 고려된 변수들은 지역적 특성에 따라 크기가 많이 변하므로 실제 처분장에서의 핵종 거동을 규명함에 있어서 지역적 특성이 고려된 인자값을 결정하는 것이 중요하다.

NOMENCLATURE

A	: surface area of rock (m^2)
b	: half width of fracture (m)
C	: radionuclide concentration (Ci/m^3)
D	: dispersion coefficient (m^2/yr)
Ka	: distribution coefficient (m)
Kd	: distribution coefficient (cc/g)
Q	: total initial radioactivity in repository (Ci)
q	: adsorbed amount (Ci)
R	: retardation factor defined by equation (5) and (8)
Vo	: repository volume (m^3)
v	: groundwater velocity (m/yr)
w	: mass of rock (g)

Greek Letters

ρ	: density (g/cc)
ϵ	: porosity of wasteform
ϕ	: porosity of rock mass
λ	: decay constant ($1/yr$)

τ : tortuosity factor

Subscripts

f	: fracture
o	: initial state
p	: diffusion pore
r	: repository

REFERENCES

1. International Atomic Energy Agency, Atomic Energy Review, **9**(1), 195 (1971).
2. Colombo, P. and Nielson, Jr., R.M.: NUREG/CR-1126 (1979).
3. Neretnieks, I.: *J. Geophys. Res.*, **85**, 4379 (1980).
4. Norton, D. and Knapp, R.: *Amer. J. Sci.*, **277**, 913 (1977).
5. ONWI Technical Report, ONWI-458 (1983).
6. Freeze, R.A. and Cherry, J.A.: "Groundwater", Prentice-Hall (1979).
7. Hadermann, J. and Roesel, F.: EIR-Bericht Nr. 551 (1985).
8. Tang, D.H., Frind, E.O. and Sudicky, E.A.: *Water Resour. Res.*, **17**, 555 (1981).
9. Churchill, R.V.: "Operational Mathematics", 2nd Ed., McGraw-Hill (1958).
10. Macbeth, P., Wehmann, G., Thamer, B. and Card, D.: NUREG/CR-0680 (1979).
11. Fields, D.E., Emerson, C.J., Chester, R.O., Little, C.A. and Hiromoto, G.: ORNL-5970 (1986).
12. Isherwood, D.: NUREG/CR-0912 (1979).
13. Bear, J.: "Dynamics of fluids in porous media", American Elsevier (1972).
14. Neretnieks, I.: SKB/TR 84-18, J.A.T. Smellie Ed. (1984).
15. Reid, R.C., Prausnitz, J.M. and Sherwood, T.K.: "The Properties of Gases and Liquids", 3rd Ed., McGraw-Hill (1977).