

불활성 가스계 혼합소화약제의 n-Heptane 불꽃소화농도 및 배가스 조성

Flame Extinguishing Concentrations and Flue Gas Compositions of n-Heptane by Mixed Inert Gas Agents

김재덕[†] · 김영래 · 홍승태 · 이성철*

Jae-Duck Kim[†] · Young-Lae Kim · Seung-Tae Hong · Sung-Chul Yi*

한국과학기술연구원, CFC대체연구센터

*한양대학교 화학공학과

(2002. 8. 12. 접수/2002. 9. 11. 채택)

요 약

질소, 아르곤, 이산화탄소와 같은 불활성가스 및 이들의 혼합물을 소화약제로 하여 n-Heptane을 연료로 한 cup-burner test 장치에서 불꽃소화농도와 연소시 배가스의 조성을 측정하였다. 이성분 불활성가스계 혼합소화약제의 소화농도는 혼합물의 구성비를 이용한 모델에 의해 잘 예측됨을 알 수 있었다. 불활성 가스계 혼합 소화약제에 의한 소화작용에 있어서 혼합가스의 평균비중이 클수록 소화 성능이 우수하였다. 또한 밀폐된 공간의 구조가 소화에 영향을 미칠 수 있음을 확인하였다. 연소시 배가스 중 이산화탄소 조성은 사용하는 소화약제의 양이 증가할수록 감소하였다. 일산화질소 발생은 소화약제의 질소 함량과는 상관이 없으며 공기유량을 크게 하여 불꽃을 크게 했을 때 검출되었다.

ABSTRACT

We measured flame extinguishing concentration and flue gas composition in the n-heptane fuel cup-burner system using inert gas agents such as nitrogen, argon, carbon dioxide and their mixtures. The flame extinguishing concentration of binary gaseous mixture was well predicted by model which contains the flame extinguishing concentration and composition of pure components. The higher average specific gravity of the mixed inert gas agents, the more excellent flame extinguishing performance. And the structure of enclosed space also affects the fire extinguishing. The composition of carbon dioxide in the flue gas was decreased with increasing extinguishing agent used. Nitrogen monoxide production is not related with increasing nitrogen, but increased at rapid mass flow rate of air in the cup-burner.

Keywords : Flame extinguishing concentration, Inert gas agent, Cup burner, Flue gas

1. 서 론

지구의 오존층 파괴물질에 관한 몬트리올 의정서¹⁾에 의해 가스계 청정소화약제인 할론은 미국, 유럽, 일본 등 선진국에서는 1994년부터 생산이 중단되었고 이 의정서에 개발도상국 조항으로 가입한 우리나라도 2010년에는 완전히 생산을 중단할 예정으로 있다. 따라서

할론 소화약제를 대체하기 위하여 HFC-23, HFC-227ea, HFC-236fa, HCFC-Blend A 등과 같은 할로겐화합물계 소화약제 뿐만 아니라 IG-541, IG-55, IG-01 등과 같은 불활성가스계 소화약제가 개발되어 사용되고 있다.

불활성가스계 소화약제는 주로 공기중 산소농도를 희석시켜 소화시키기 때문에 소화성능은 할로겐화합물계 소화약제에 비해 떨어지지만 약제 구성성분이 대기에 존재하는 물질이어서 지구환경에 전혀 해가 없고 자체독성이 없으며 소화후 HF, HCl과 같은 독성이 높은 분해물질을 생성하지 않는다.

이윤용 박사 정년퇴임 기념논문

[†]E-mail: jdkim@kist.re.kr

할론대체 가스계 소화약제는 우수한 소화성능은 물론 오존파괴지수(ODP, Ozone depletion potential)와 지구온난화지수(GWP, Global warming potential)와 같이 환경에 미치는 악영향이 적으며, 인체에 미치는 급성 및 만성독성이 낮아야 하고, 약제의 자체압력으로 방사될 수 있도록 증기압이 일정수준이상 되어야 하는 등 많은 조건을 충족해야 한다. 그러나 아직까지 이 조건에 완벽하게 적합한 가스계 소화약제는 아직 개발되지 않고 있으며 앞으로 개발될 전망도 밝지 않은 실정이다. 특히 단일물질로 구성된 소화약제로는 위의 조건을 충족시키기가 사실상 불가능에 가깝기 때문에 이 조건을 가능한 맞추어주기 위하여 혼합소화약제의 사용이 합리적일 수 있다. 즉 혼합소화약제를 사용할 경우 순수성분에 비해 혼합비, 혼합성분의 조정에 의해 물성, ODP, GWP, 독성, 소화성능, 방사성능 등을 임의로 조절할 수 있을 뿐만 아니라 서로 다른 성분들의 상승효과에 의해 예측치보다 높은 소화성능을 낼 수 있는 장점이 있다. 혼합소화약제는 많은 조합이 있을 수 있으나 주로 HCFC, HFC, 불활성가스계 물질을 기초로 한 혼합물이 개발되어 있으며, 앞으로도 아무 제한 없이 많은 연구가 진행될 것으로 판단된다.

가스계 청정소화약제의 불꽃소화농도는 cup-burner test장치에 의해 측정되며 1961년 Creitz가 발표한 NBS장치,²⁾ Hirst와 Booth가 발표한 ICI장치,³⁾ Moore 등이 발표한 NMERI장치⁴⁾ 등이 있다. 그러나 이 장치들에 의해 같은 연료와 같은 소화약제를 사용하여 측정된 불꽃소화농도는 연료의 종류나 액위 흔들림, 연료나 주위환경의 온도, 주입되는 공기와 소화약제의 혼합정도 등에 큰 영향을 받기 때문에 발표자에 따라 많은 차이가 있었다.

본 연구에서는 n-heptane을 연료로 한 cup-burner test장치를 설치하고 질소, 아르곤, 이산화탄소의 단일 성분, 이성분계 및 삼성분계 혼합물을 소화약제로 사용할 때의 불꽃소화농도와 연소후 배가스 조성을 측정하였으며, 혼합소화약제로 불활성가스계 물질의 개발 가능성을 검토하고자 하였다.

2. 실험

2.1 실험장치

소화 농도 및 연소후 배가스 농도 측정 실험장치는 Hirst³⁾가 발표한 장치를 일부 수정하여 설치하였으며

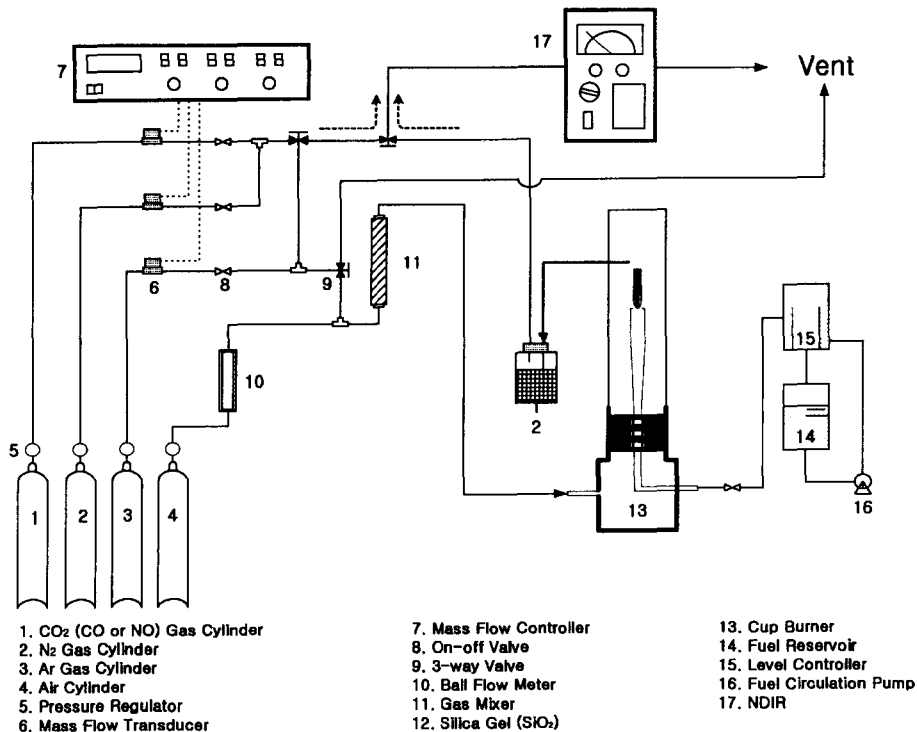


Fig. 1. Cup-burner apparatus for measurement of flame extinguishing concentration of gaseous agent mixture.

그 개요도를 Fig. 1에 나타내었다.

공기와 소화약제는 고압 가스 용기에서 two-stage pressure regulator에 의해 대기압으로 감압된 후, mass flow transducer(질소 Matheson model 8272-0453, 아르곤 Matheson model 8272-0413, 이산화탄소 Matheson model 8272-0451)를 통해 신호를 받는 mass flow controller(Matheson model 8274)에 의해 유량이 조절되어 가스 혼합기에서 혼합된 후, cup-burner의 하부로 공급된다. 이 때 공급되는 가스 유량의 측정 오차 범위는 ±1%이었다.

Cup은 상부의 내경이 28 mm, 하부의 내경이 10 mm 인 방사형이며 Pyrex 유리로 제작하였다. 내부에는 연료로 사용되는 n-heptane이 채워져 있다. Cup-burner의 하부는 stainless steel-316으로 제작하였으며, 상부 chimney는 Pyrex 유리로 제작하였으며 내경이 84 mm 이고 높이가 450 mm이다. Chimney 하부에는 직경 3 mm인 glass bead를 80 mm 높이로 충전하고 그 위에 wire mesh screen을 설치하였다. Cup-burner의 연료로 사용되는 n-heptane은 fuel reservoir에 저장되었다가 fuel circulation pump에 의해 level controller에 보내진 후 일부는 cup-burner로 보내지고 나머지는 fuel reservoir로 재순환되도록 설치하였다. 그리고 실험시 발생하는 배가스 성분조성은 배가스중 일부시료를 on-line으로 채취하여 ND-IR(HORIBA Model ENDA-800 series)을 이용하여 측정하였다.

이 실험은 배기팬이 있는 hood 안에서 실시하여 소화시 발생한 유독한 분해 생성물들을 계외로 배출시켰다.

2.2 실험방법

본 시험에 사용된 공기와 소화 가스들의 종류, 제조 회사 및 순도를 Table 1에 나타내었다.

실험순서는 먼저 fuel circulation pump를 가동하여 연료로 사용되는 n-heptane(95%)을 cup-burner에 공급하고 level controller로 높이를 조절하여 cup 내 n-heptane의 액위를 원하는 높이에 고정시킨다. 다음에

Table 1. Manufacturer and purity of fire extinguishing agent and air

Common name	Chemical formula	Manufacturer	Purity (Vol. %)
Nitrogen	N ₂	Shinyang Sanso Inc.	99.9
Argon	Ar	Shinyang Sanso Inc.	99.9
Carbon dioxide	CO ₂	Shinyang Sanso Inc.	99.5
Air	N ₂ +O ₂	Shinyang Sanso Inc.	

공기를 일정 유량으로 흘려주고 연료를 점화하여 연소 반응이 정상상태에 유지될 수 있도록 3분간 불꽃을 유지시킨 후, 질소, 아르곤, 이산화탄소를 단일성분 또는 혼합가스를 소화약제로 하여 cup-burner에 주입하였으며, 소화약제의 각 가스 성분비, 공기와 소화약제의 비 그리고 총 유량을 조절하였다. 이 때 발생하는 배가스 중 일부시료를 silica gel trap과 filter를 통과시켜 수분과 그을음을 제거한 후 ND-IR(HORIBA Model ENDA-800 Series)을 이용하여 이산화탄소, 산소 및 일산화질소의 조성을 측정하였다. 눈으로 불꽃의 소화 여부를 관찰하여 5분 이내에 불꽃이 꺼지면 소화농도로 간주하였다. 측정 후 cup-burner 시험장비는 다시 실온으로 냉각한 후 소화약제의 유량을 바꾸어 주면서 가스 농도 변화 및 불꽃소화 여부를 관찰하였다. 불꽃소화 농도는 다음의 식에 의해서 구하였다.

$$C = 100y/(x+y) \tag{1}$$

여기서 C는 불꽃 소화 농도, y는 소화약제의 몰수, x는 공기의 몰수이다.

3. 결과 및 고찰

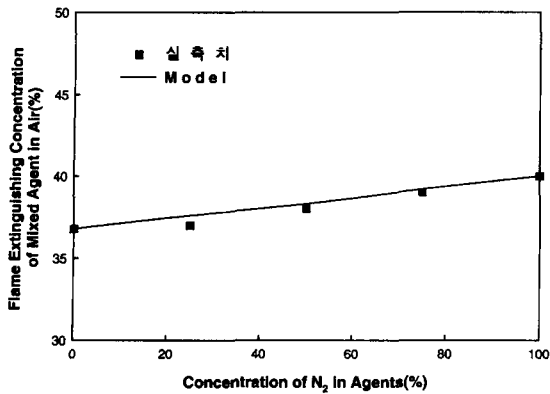
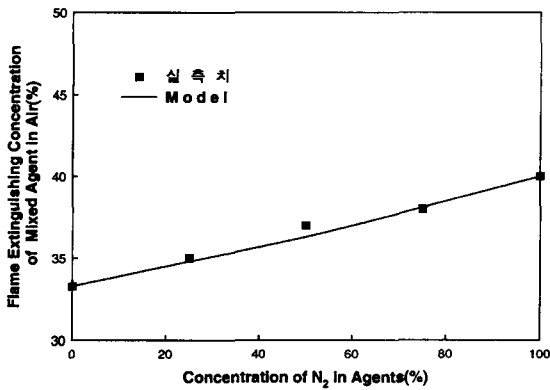
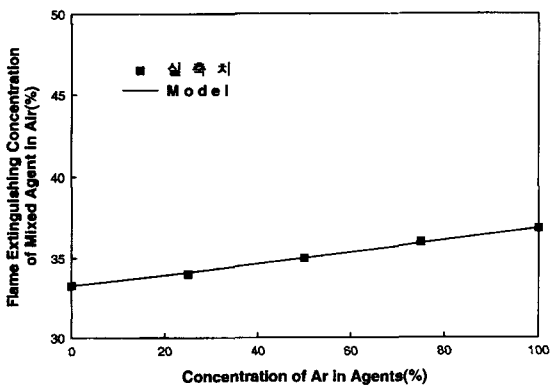
3.1 불꽃소화농도

불활성가스계 혼합소화약제를 구성하는 각 가스 성분들의 소화 성능을 알아보기 위하여 각각의 순수한 가스에 대한 불꽃소화농도를 측정하였으며 그 결과를 가스의 비중과 함께 Table 2에 나타내었다. 불꽃 소화농도는 소화약제 주입 후 5분 이내에 소화되는 경우로 정의하였다.

본 장치에서 측정된 순수한 성분의 불꽃소화농도는 질소 40%, 아르곤 36.8%, 이산화탄소 33.3%로 불꽃소화농도가 낮을수록 소화성능이 우수하므로 이산화탄소, 아르곤, 질소 순으로 소화 성능이 우수하였다. Table 2를 보면 소화 가스의 비중이 증가할수록 소화 성능이 우수함을 알 수 있다. 공기 중의 산소 농도 저하에 의한 질식 소화에 있어서 소화 가스의 비중이 큰 물질일수록 chimney 내에 더 오랫동안 체류하여 소화

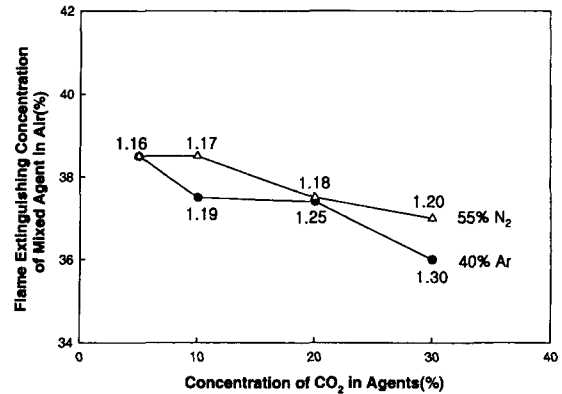
Table 2. Flame extinguishing concentration of pure agents

Agents	Specific gravity (Air=1)	Flame extinguishing concentration (Vol. %)
N ₂	0.97	40.0
Ar	1.38	36.8
CO ₂	1.53	33.3

Fig. 2. Flame extinguishing concentration of N₂/Ar mixture.Fig. 3. Flame extinguishing concentration of N₂/CO₂ mixture.Fig. 4. Flame extinguishing concentration of Ar/CO₂ mixture.

가 빨리 진행된 것으로 볼 수 있다.

질소, 아르곤, 이산화탄소 중 두 가지를 혼합한 가스

Fig. 5. Flame extinguishing concentration of N₂/Ar/CO₂ mixture. Number near the points means average density.

의 소화농도는 Fig. 2~4에 나타내었다. 이 그림에서 나타났듯이 이성분계 혼합소화약제의 소화농도는 순수 성분의 소화농도 사이의 값을 나타내고 있으며 혼합소화약제의 소화농도를 예측하는 식 (2)⁹⁾와 비교적 잘 일치함을 알 수 있다.

$$1/C_M = \sum_{j=1}^n X_j/C_j \quad (2)$$

여기서 C_j , C_M 은 순수 j 성분 및 혼합물의 불꽃소화농도이며 X_j 는 약제내 성분 j 의 조성을 나타낸다.

이와 같이 이성분계 소화약제의 소화농도가 위 모델식에 의해 잘 예측되는 것은 가스계 소화약제가 불을 소화할 때 공기중 산소농도의 희석과 같은 물리적 소화성능만을 지니고 있고 각 물질의 열용량이 유사하여 불꽃의 온도를 낮추는 영향이 큰 차이가 없으며 화염에 존재하는 radical을 제거하는 화학적 소화성능은 지니고 있지 않기 때문으로 판단된다.

질소, 아르곤, 이산화탄소를 모두 함유한 삼성분계 소화약제의 소화농도 측정결과를 Fig. 5에 나타내었다. 혼합가스의 평균 비중이 클수록 산소 농도 감소에 의한 질식 소화 성능이 우수함을 알 수 있다.

3.2 연소 배가스 조성

공기 흐름 하에 연료 점화 후 연소 반응이 정상상태에 유지될 수 있도록 3분간 불꽃을 유지시킨 후 소화약제의 비를 20%(총유량 1000 ml/min)로 하여 chimney 내부로 흘러주었다. 연소 배가스 조성은 소화약제 투입 후 5분이 경과한 시점에 측정하였다.

공기에 대한 단일성분의 각 가스 소화약제의 비를 변화시켜 가며 chimney 내의 산소 농도 변화를 측정

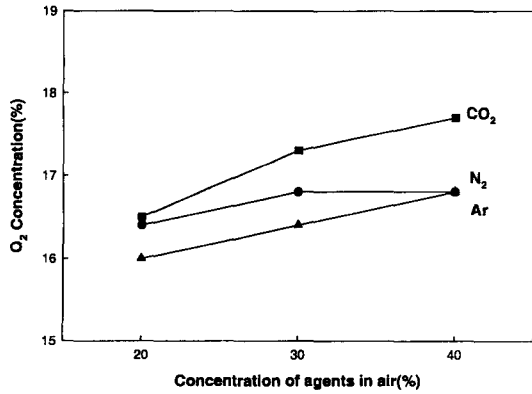


Fig. 6. O₂ concentration in chimney for increase of pure gas agents.

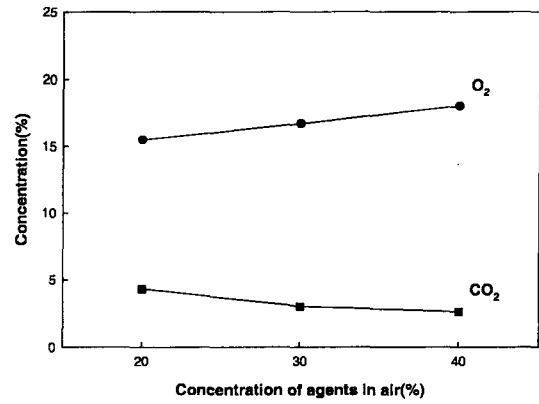


Fig. 8. O₂ and CO₂ concentration in chimney for increase of mixed gas agents.

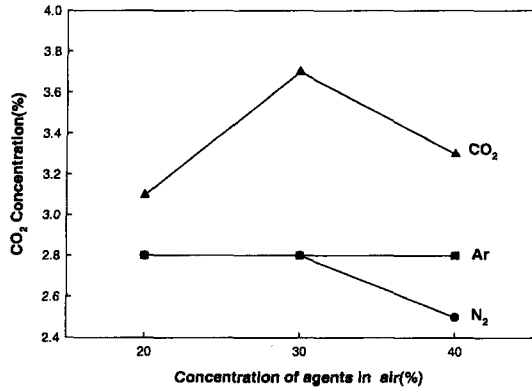


Fig. 7. CO₂ concentration in chimney for increase of pure gas agents.

하여 Fig. 6에 나타내었으며, 이산화탄소의 농도 변화를 Fig. 7에 나타내었다. Fig. 6을 보면 공기에 대한 소화약제의 비가 증가할수록 산소 농도가 증가하였는데, 이것은 소화약제의 증가로 인해 연소가 억제되므로 연소에 의한 산소 소모가 줄어들었기 때문이다. 불꽃의 세기가 커져서 산소의 소모가 많아지면 n-heptane의 연소생성물인 이산화탄소의 농도는 증가하게 되며, 소화약제의 주입으로 인해 불꽃이 약해질수록 산소의 소모가 줄어들고 생성되는 이산화탄소의 농도는 감소하게 된다. Fig. 7에서 질소와 아르곤의 경우 소화가 진행됨에 따라 이산화탄소의 농도가 약간 감소하는 경향을 나타내고 있지만, 이산화탄소를 소화약제로 주입했을 경우에는 다른 경향을 보이고 있다. 즉 농도를 20%에서 30%로 증가시켰을 때에는 chimney 내로 주입되는 이산화탄소 양의 증가로 인해 농도가 증가하였

지만 40%로 증가시켰을 때는 주입되는 이산화탄소의 양이 증가했음에도 불구하고 불꽃이 약해져서 이산화탄소 농도가 감소하는 경향을 보였다. Fig. 6과 7의 결과로부터 소화약제의 농도가 증가하여 연소 반응이 억제될 때, 산소와 이산화탄소의 농도 변화는 반비례 관계를 나타냄을 알 수 있었다.

혼합가스(질소 55%, 아르곤 40%, 이산화탄소 5%)를 소화약제로 주입했을 때, 발생하는 가스 성분들의 농도 변화를 공기에 대한 소화약제의 비에 대하여 Fig. 8에 나타내었다. 소화약제의 비가 증가할수록 연소가 억제되어 산소 소모가 줄어들고 이산화탄소 발생이 감소함을 다시 한번 확인할 수 있었다.

Data의 신뢰도를 높이기 위해서 같은 실험에 대해서 최소 5~10번 반복 수행하였다. 초기 불꽃의 크기를 똑같이 맞추는 데에는 한계가 있기 때문에 불꽃 크기에 따라 농도 측정치에 약간 차이가 생기기는 하지만 불꽃의 크기에 대한 농도 변화 경향은 항상 일치하였다.

3.3 연소 반응 생성물에 대한 질소의 영향

혼합 가스 소화약제에서 질소의 비율이 소화에 미치는 영향을 알아보기 위하여 소화약제의 이산화탄소 농도를 5%로 고정시키고 N₂와 Ar의 비를 변화시켰다. 이 때 공기에 대한 소화약제의 비율은 20%(총유량 1000/ml/min)로 하였으며, chimney 내의 산소와 이산화탄소 농도를 측정하여 Fig. 9에 나타내었다.

Fig. 9에 의하면 질소가 25%이고 아르곤이 70%일 때, 산소 소모 및 이산화탄소의 생성이 가장 적었으므로 소화가 가장 잘 되었음을 알 수 있다. 즉 질소의 비율이 작아지고 아르곤의 비율이 커질수록 소화가 잘 됨을 알 수 있다. 산소 농도 감소에 의한 질식소화에

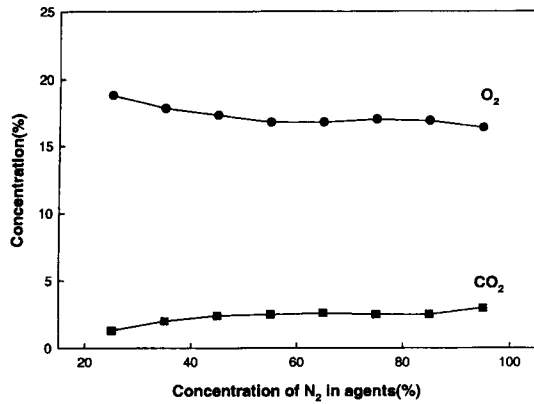


Fig. 9. O₂ and CO₂ concentration in chimney for increase of N₂ ratio in mixed gas agents.(5% CO₂).

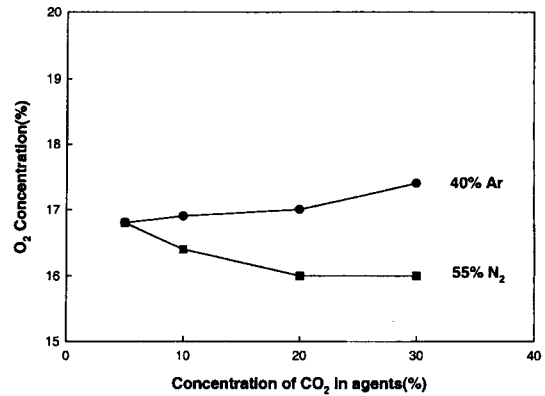


Fig. 11. O₂ concentration in chimney for increase of CO₂ ratio in mixed gas agents.

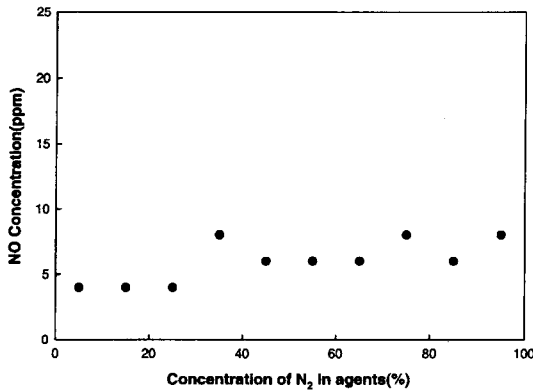


Fig. 10. NO concentration in chimney for increase of N₂ ratio in mixed gas agents (5% CO₂).

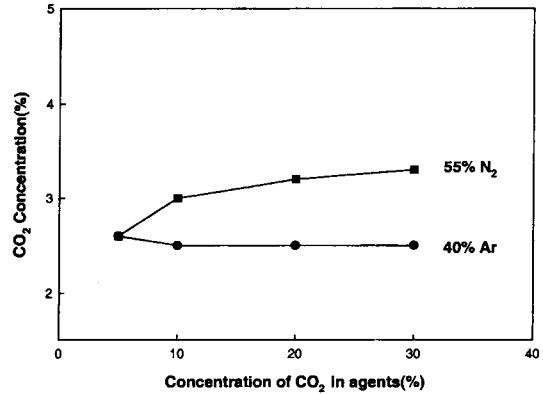


Fig. 12. CO₂ concentration in chimney for increase of CO₂ ratio in mixed gas agents.

있어서 비중이 큰 아르곤 가스의 비율이 클수록 소화가 잘 됨을 알 수 있다.

Cup-burner로 주입되는 공기와 소화약제의 총유량을 1000 ml/min으로 하였을 때는 일산화질소가 검출되지 않았지만, 2000 ml/min(20% 소화약제)으로 유량을 증가시켰을 때에는 약 4~8 ppm 정도의 일산화질소가 검출되었는데, 그 결과를 Fig. 10에 나타내었다. Fig. 10에 의하면 소화약제의 질소 비가 증가하더라도 생성되는 일산화질소의 농도변화는 크지 않으며 서로 연관성이 없음을 알 수 있다.

소화약제의 질소 비가 증가하더라도 생성되는 일산화질소의 양에 변화가 없다는 것은 소화약제의 질소가 산소와 반응하여 일산화질소를 생성하지는 않는다는 의미이다. Thermal NO_x는 1300°C 이상의 온도에서 질소와 산소의 반응에 의해 생성된다고 알려져 있는

데,⁶⁾ 연소시 불꽃의 변화에 대해 chimney 내부 온도는 400~450°C 범위로 측정되었으므로 위의 사실을 뒷받침해준다. 공기 유량의 증가로 불꽃을 크게 하였을 때, 일산화질소가 검출되는 것으로 보아 연료 n-heptane에 불순물로 포함된 질소가 연소시 산소와 반응하여 일산화질소를 생성한다고 판단되며, 실제로 N-C 결합은 질소분자의 N-N 결합보다 매우 약하므로 이를 뒷받침하고 있다.

3.4 연소 반응 생성물에 대한 이산화탄소의 영향

삼성분계 혼합가스 소화약제에서 이산화탄소의 영향을 알아보기 위해서 이산화탄소의 비를 변화시켜 가며 연소 반응이 일어나는 chimney 내의 산소와 이산화탄소의 농도를 측정하였다. 질소와 아르곤의 영향을 구별하기 위하여 질소를 55%로 고정시켰을 때와 아르곤

을 40%로 고정시켰을 때의 두 가지 경우에 대해서 실험하였으며, 이 때 공기에 대한 소화약제의 비를 20%로 하였다. Fig. 11과 12에 그 결과를 나타내었다. 아르곤의 비를 일정하게 하고 이산화탄소의 비를 증가시켰을 경우 소화가 잘 진행되었으나, 질소의 비를 일정하게 하고 이산화탄소를 증가시켰을 경우에는 상대적으로 소화가 잘 일어나지 않았다. 즉, 질소의 비를 줄이고 이산화탄소의 비를 증가시켰을 경우에는 소화가 잘 일어났으나 아르곤의 비가 줄어든 경우에는 이산화탄소의 비가 증가하더라도 소화가 잘 일어나지 않았다. 순수한 가스를 주입하였을 때는 비중이 상대적으로 큰 이산화탄소의 소화 성능이 가장 우수하였으나 혼합가스를 소화약제로 주입하였을 때는 아르곤이 이산화탄소보다 더 중요한 역할을 했음을 알 수 있다. 이 결과를 이해하기 위해서는 chimney 구조와 관련지어 설명할 수 있다. Chimney 내에서 불꽃은 중앙을 기준으로 해서 상층부에 위치한다. 가스 sampling은 불꽃의 끝부분(컵버너 윗부분)에서 펌프에 의한 흡입으로 이루어지므로 chimney 윗부분의 외부 공기도 일부 섞이게 된다. 그리고 혼합가스의 밀도 차이에 의해 질소는 상층부에서 외부 공기와 일부 섞이게 되고 아르곤은 중간층에 그리고 이산화탄소는 하부에 많은 비율로 존재하게 된다. 따라서 이산화탄소에 비해 아르곤이 불꽃의 위치인 중상층 부근의 산소 농도를 감소시키는 역할을 한 것으로 사료된다. 이와 같은 설명을 뒷받침하기 위해서 chimney의 윗부분과 아랫부분에 연기를 주입해본 결과, 윗부분에서 외부 공기가 컵버너 내부로 유입되는 사실과 밀도가 큰 이산화탄소가 아랫부분에 머물러 있음을 확인할 수 있었다.

Fig. 5의 불꽃 소화농도를 비교해보면 아르곤이 40%로 존재하면서 이산화탄소 비율이 증가할 때 소화 성능이 더 우수함을 알 수 있으며 혼합가스의 평균 비중이 클수록 산소 농도 감소에 의한 질식소화 성능이 우수함을 알 수 있다. 또한 불활성 가스에 의한 질식 소화작용에 있어서 비중 외에 밀폐된 공간의 구조가 중요한 영향을 미침을 Fig. 11, 12로부터 알 수 있다.

4. 결 론

불활성 가스계 혼합 소화약제에 의한 소화작용에 있어서 혼합가스의 평균비중이 중요한 역할을 하였다. 또한 밀폐된 공간의 구조가 소화에 영향을 미칠 수 있음

을 확인하였다. 소화약제로 사용된 질소에 의해 유해 성분인 일산화질소가 발생하지는 않았으며 다음과 같은 결론을 내릴 수 있었다.

1. Cup-burner test 장치에 순수한 불활성 가스를 소화약제로 주입하였을 때, 비중이 클수록 소화성능이 우수하였다.
2. 이성분계 혼합가스 소화약제의 소화농도 모델과 실험 결과가 잘 일치하였으며, 소화약제 성분비에 의해 소화농도의 예측이 가능하였다.
3. 삼성분계 혼합가스 소화약제의 소화작용에 있어서 평균비중이 클수록 소화성능이 우수하지만, cup-burner의 불꽃 위치 및 chimney의 구조와 관련하여 이산화탄소보다 비중이 작은 아르곤 가스가 더 중요한 역할을 하기도 하였다.
4. n-heptane의 연소 반응에서 소화약제에 의해 소화가 진행될수록 cup-burner test 장치내 이산화탄소 농도는 감소하였다. 일산화질소 발생은 소화약제의 질소 함량과는 상관이 없으며 공기유량을 크게 하여 불꽃을 크게 했을 때 검출되었다.

참고문헌

1. United Nation Environmental Program(UNEP), "Montreal Protocol on Substances that Deplete the Ozone Layer", (1987).
2. Creitz, E. C., "Inhibition of Diffusion Flames by Methyl Bromide and Trifluoromethyl Bromide Applied to the Fuel and Oxygen Sides of the Reaction Zones", J. of Res. NBS(US), 65A(4), 389 (1961).
3. Hirst R. and Booth K., "Measurement of Flame-Extinguishing Concentrations", Fire Tech. 13(4), 296(1977).
4. Moore, J. P., Moore, T. A., Salgado, D. and Tapscott, R. E., "Halon Alternatives Extinguishment Testing", Proc. of Int. Conf. of CFC & Halon Alternatives, 207, Washington D. C., Oct. 10-11(1991).
5. 김재덕, 임종성, 이윤우, 이윤용, "가스계 혼합소화약제의 불꽃소화농도", 한국화재·소방학회논문지, 25(1), 34 (2001).
6. Leslie, L. Sloss., "Nitrogen Oxides Control Technology Fact Book", Noyes Data Corp., U.S.A. pp.60-62(1992).