'2001 추계학술발표회 논문집
한국원자력학회

PFC 계면활성 용액에서 입자성 오염물의 제염성능

Decontamination Performances for Particulate Contaminants in PFC Surfactant Solutions

최 왕규*, 이 근우, 오 원진

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

오염표면으로부터 입자성 오염물을 제거하는 제염공정에서 제염용액과 오염표면 사이의 상호 작용을 이해하기 위하여 제염용액으로써 perfluorocarbon (PFC) 및 PFC 계면활성제가 오염입자와 오염표면 사이의 작용력에 미치는 영향을 Si_3N_4 cantilever와 실리콘웨이퍼 사이에 작용하는 힘을 측정하는 atomic force microscopy (AFM)을 사용하여 평가하였다. 이 결과 PFC 용액 내에 PFC계 계면활성제로 perfluoro-1-butanesulfonyl fluoride (Krytox)가 0.1% 정도만 포함되더라도 우수한 계면활성도를 나타내었다. 이를 기초로 하여 입자성 물질로 오염되는 모의 오염시편을 대상으로 PFC 용액을 사용하는 제염기술을 적용하고 제염공정의 성능을 평가하였다. 입자성 오염시편에 대한 제염방법으로 PFC 용액을 매체로 한 초음파 제염실험 결과 순수한 PFC 용액 내에서의 제염에 비해 PFC 계면활성제가 포함된 PFC 용액에서의 제염효과가 훨씬 우수하였으며, 입자성 오염을 효과적으로 제거할 수 있었다.

Abstract

The effect of perfluorocarbon (PFC) and PFC surfactant on the interactive forces between particulate and solid surface measured by atomic force microscopy (AFM) with Si_3N_4 cantilever and silicon wafer was evaluated to understand the role of PFC solution as a decontamination medium in decontamination process for removing radioactive particulates from the substrates. It was obtained that the PFC solution containing perfluoro-1-butanesulfonyl fluoride (Krytox) as a PFC surfactants even in the concentration as low as 0.1 wt% displays a good surface active effect. On the bases of these results, the decontamination technique using PFC solutions was applied to the simulated specimen contaminated with particulates and the decontamination performance was evaluated. As the results of ultrasonic decontamination using PFC medium, decontamination performances in PFC solution containing PFC surfactant was far better than those in pure PFC solution and the particulate contaminants could be removed quite effectively.

1. 서론

전통적인 오염입자의 제거 공정에서 사용되는 제염제의 하나로 프레온 (CFC-113)이 주로 사용되어 왔다. 프레온 제염공정은 다양한 폐기물 및 제염 대상물에 적용될 수 있을 정도로 기술 개발의 역사가 길며, 기본 장치로부터 원격으로 대형 면적을 제염할 수 있는 장치까지 개발되어 현재 기술이 상용화되어 있고, 기계장치 면에서 분사, 진동세정 및 초음파가 조합된 공정장치를 사용하고 있다. 그러나 프레온은 오존층을 파괴하는 주요 물질인 염소를 포함하여 환경친화적이 아닌 단점이 있어 대체물질로 PFC가 개발되었다.

일반적으로 PFC는 비중이 크고, 표면장력이 작으며, 전기절연성이 우수한 물리적 특성이 있을 뿐 아니라 화학적으로 반응성이 낮아 열에 안정하며 독성이 작다. 이러한 물리적, 화학적 특성으로 인하여 PFC는 방수, 방오, 청정, 계면활성, 윤활, 냉동, 세척, 농약, 의약 등에 많이 사용되고 있다.

탄소체인 길이가 충분히 긴 PFC계 화합물에 $-SO_3H$, $-COOH$, $-NH_2$, $-CONH_2$ 등의 친수성 작용기를 화학적으로 결합시키면 PFC계 계면활성제가 된다. PFC계 계면활성제는 PFC계 화합물의 물리화학적 특성과 화학적으로 결합된 작용기의 친수성 특성이 복합되어 있으므로 우수한 계면활성력을 갖는 것으로 알려져 있다. 즉 포화 탄화수소계 계면활성제와 비교하면, 같은 탄소수의 포화탄화수소 계면활성제 보다 계면활성도가 훨씬 커서 물의 표면장력을 더 크게 감소시킬 수 있을 뿐만 아니라 유기용매의 표면장력도 감소시키는 효과가 있다.

PFC 제염기술은 기존의 프레온제염보다 고체 표면에서 작은 입자를 더욱 효과적으로 제거할 수 있는 프레온 대체 건식 제염공정으로 개발되고 있으며, 주로 금속장비 및 구조물 표면이나 전자 장비표면에 오염된 입자성, 비고착성 오염물의 제거에 적용성이 우수한 공정으로 평가되고 있다. PFC 건식 제염공정은 비활성의 PFC 용액에 저농도의 고분자량을 갖는 PFC계 유기 계면활성제를 첨가한 용액을 순환시킴으로써 오염부를 세척하는 공정으로 제염 공정에 의해서 오염 표면에서 용액 중으로 입자가 떨어져 나와 분산된 현탁 입자들은 정밀여과막이나 한외여과막과 같은 분리 공정을 통하여 세척 용액으로부터 분리하고, 최종으로 발생된 PFC 용매는 증발 및 응축 공정으로 회수함으로써 재사용하는 개념을 채택하고 있다.

이에 본 연구에서는 우선적으로 상업적으로 알려진 PFC 및 PFC계 계면활성제 용액과 고체표면과의 상호 작용을 조사하여 PFC유체가 입자성 오염물의 건식제염 공정을 이해하는데 기여하고자 하였으며, 입자성 물질로 오염되는 모의 오염시편을 대상으로 PFC 유체를 사용하는 건식제염기술을 적용하여 제염공정의 성능을 평가하였다.

2. 실험

가. 고체 표면에서의 PFC 용액의 계면활성작용 조사

제염대상 고체표면과 PFC 및 PFC 계면활성제간의 상호작용을 평가하기 위하여 모델 고체표면으로 깨끗한 실리콘웨이퍼 표면을 선택하여 이 표면에서의 PFC 용액의 계면 활성도를 조사하였다. 이를 위해 AFM을 사용하여 Si_3N_4 cantilever와 실리콘웨이퍼 사이에 작용하는 힘을 측정 분석하였다.

나. 초음파 제염 성능 평가 실험

(1) 오염시편의 준비

PFC유체를 매개체로 하는 초음파 제염공정의 성능 평가 실험을 위한 입자성 모의 오염 시편을 제조하기 위해서 우선적으로 시편에 오염시킬 오염입자를 제조하였다. 오염입자로는 평균 입경이 1㎛인 Al_2O_3 및 2.4㎛인 UO_2의 두 종류를 선정하였으며, 각각의 입자 5 g에 대하여 에탄올 20 cc와 5㎌/cc의 Cs-137 용액 5 cc를 넣고 잘 혼합한 후 알코올을 완전히 증발시킨 건조 상태의 입자를 제조하였다.

오염시편으로는 표면상태가 서로 다른 스테인레스강 (2B 및 polishing), 탄소강, 에폭시 도포 시편, 전자기판, 일회용 PP 가운 등을 선정하였고, 이중 스테인레스강 및 탄소강 시편은 입자로 오염시키기 전에 아세톤으로 세척하였다.

기초적인 실험을 위해서 Cs-137로 오염된 Al_2O_3 입자 ('입자 A')를 사용하여 오염시편을 제조 한 경우에는 준비한 시편에 건조된 오염입자를 브러시를 사용하여 충분히 도포한 후 입자는 털어 내는 방법을 사용하였고, UO_2 입자 ('입자 U')를 사용한 경우에는 건조된 입자가 담겨있는 용기 속에 동일한 종류의 시편을 전부 집어넣은 후 약 30초간 손으로 흔들어서 오염시킨 다음 표면에 붙어있는 과잉의 입자는 브러시로 털어 내는 방법으로 오염시편을 제조하였다.

(2) 제염 용액

본 연구에서 사용한 PFC 제염 용액으로는 3M 사에서 개발한 PFC계 세정제인 PF-5070 (perfluoroheptane)이며, 여기에 PFC계 계면활성제의 영향을 조사하기 위하여 ZONYL® FS-62 (DuPont)를 0.1 vol%가 되도록 첨가한 용액 ('제염용액 F') 또는 Krytox K157FS(M) (perfluoro-1-butanesulfonyl fluoride, DuPont)를 일정 농도가 되도록 첨가한 용액 ('제염용액 K')을 제조하였다.

(3) 실험장치 및 조건

두 가지 종류의 제염 용액 내에서 입자성 오염 시편에 대한 초음파 제염 실험을 수행하였다. 첫 번째 종류의 제염실험은 순수한 PF-5070 용액 내에서 수행하였으며, 다른 하나는 계면활성제로 FS-62가 0.1 vol% 포함된 '제염용액 F' 또는 Krytox K157FS(M)가 포함된 '제염용액 K' 내에서 수행하였다.

본 실험에서는 주파수가 40 kHz이고 출력이 180 W인 초음파 제염장비 (Cole Parmer Ultrasonic Cleaner Model 8845-44)를 사용하였다. 본 초음파 제염장비의 초음파 교반 성능은 순수 내에 알루미늄 포일 시험편을 넣고 1분 동안 초음파를 가해 시험편의 상태를 육안으로 관찰함으로써 파악하였다. 1분 동안의 초음파 교반을 통해 알루미늄 포일 시험편은 매우 심하게 침식되었으며, 다양한 크기의 많은 구멍이 생성되었고, 이 현상으로부터 본 초음파 장비를 사용함으로써 입자성 오염물의 제염이 가능한 것으로 판단하였다.

(4) 실험절차

아무런 용액도 채워져 있지 않은 100 cc 용량의 유리 비이커 내부 바닥에 오염 시편을 수직으로 세울 수 있는 폴리프로필렌 랙을 설치한 후 방사능이 계측된 오염 시편을 설치

하였다. 오염 시편 상단에서 최소 1 cm 이상의 액위가 되도록 시편이 설치된 용기 내로 제염용액 F 또는 제염용액 K를 채우고 실험 조건에 따라 일정시간 동안 정치해 놓은 다음 초음파를 가해 제염을 수행하였다. 제염용액 F의 경우는 거기에 포함된 계면활성제의 용해도를 고려하여 용액을 60 ℃로 예열한 후 비이커에 가한 다음 초음파 제염을 수행하였다. 초음파 제염 후 핀셋을 사용하여 시편을 꺼내되 시편에 묻은 용액이 비이커로 다시 흘러 내려가도록 하였다. 꺼낸 시편은 순수한 PF-5070 용액 내에서 세척한 후 꺼내어 건조시킨 다음 비닐백에 넣어 방사능을 계측하였다. 제염 전 및 제염 후의 오염 시편은 비닐백에 넣어 단채널 방사능 분석기 (Scaler Rate Meter, SR-7, Nuclear Enterprise, Ltd.)에 의해 60초 동안 감마 방사선을 측정하여 그 결과로부터 시편의 초기 오염상태를 파악하고 제염공정의 성능평가를 위한 제염계수를 산정하였다.

3. 결과 및 고찰

가. 고체 표면에서 PFC 용액의 계면활성작용

오염표면으로부터 입자성 오염물을 제거하는 제염공정에서 제염용액과 고체표면 사이의 상호 작용을 이해하기 위하여 제염용액으로써 PFC 및 PFC 계면활성제가 오염입자와 오염표면 사이의 작용력에 미치는 영향을 Si_3N_4 cantilever와 실리콘웨이퍼 사이에 작용하는 힘을 측정 분석하는 AFM을 사용하여 평가하였다.

AFM 장비의 Si_3N_4 cantilever를 고체 표면에 접근시키면 초기에는 cantilever와 실리콘웨이퍼 표면 사이에 인력이 작용하고 조금 더 접근시키면 척력이 작용하는 완전한 접촉 상태가 된다. 접촉 상태에 있는 cantilever를 후퇴시키면 척력, 인력이 차례로 작용하다가 서로 떨어지는 비접촉 상태가 된다. 이 과정에서 나타나는 인력은 일반적으로 부착력(adhesive force)를 나타낸다. 이 부착력은 cantilever와 고체 표면사이에 존재하는 것으로 주로 electrostatic forces, magnetic forces, Van der Waals forces, capillary forces 등에 의해 기인한다고 알려져 있다.

고체표면에서 PFC 및 PFC 계면활성제의 영향을 조사하기 위하여 모델 고체 표면으로 선택한 실리콘웨이퍼의 극소 부분 (1㎛×1㎛ 범위)의 AFM 화상을 Fig. 1에 수록하였다. Fig. 3의 AFM 화상 범위 내에서 위치를 바꾸어가며 실리콘 웨이퍼표면에 아무 것도 놓여지지 않은 상태로 공기 중에서 측정한 Si_3N_4 cantilever와 실리콘웨이퍼 사이의 force vs. distance curve를 Fig. 2에 수록하였다.

또한 실리콘 웨이퍼 표면에 PF-5070 PFC 용액만을 올린 경우와 PF-5070 용액에 0.1 wt% Krytox를 혼합한 용액을 올린 후 측정한 force vs. distance curve를 각각 Fig. 3 및 Fig. 4에 수록하였다.

Fig. 4의 결과로부터 Si_3N_4 cantilever와 아무 것도 올려져 있지 않은 공기중의 실리콘웨이퍼 표면사이에는 아주 큰 부착력이 존재함을 알 수 있다. 또한 실리콘웨이퍼 표면에 3M 사에서 개발한 PFC계 세정제인 PF-5070을 올려놓을 경우의 측정결과 (Fig. 3)로부터 부착력은 오히려 아무 것도 올려져 있지 않은 공기중의 실리콘웨이퍼 표면에서 측정한 값보다 훨씬 큼을 알 수 있다.

이와는 달리 실리콘웨이퍼 표면에 계면활성제로 0.1 wt% Krytox가 포함된 PF-5070 용액을 올림으로써 부착력이 완전히 제거되었음을 알 수 있다(Fig. 4).

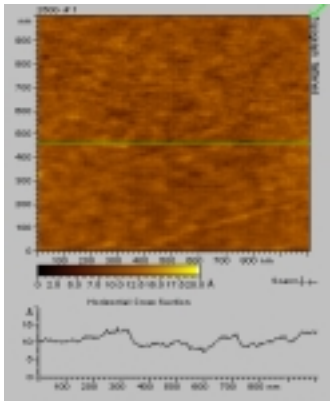

Fig. 1. 1㎛ x 1㎛ AFM image of Si(100) in the air.

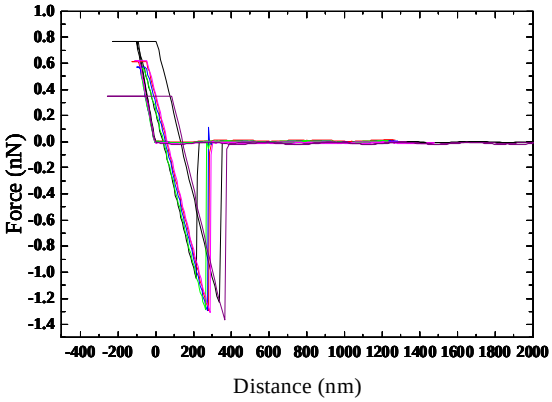

Fig. 2. Force-Distance curve in bare Si(100).

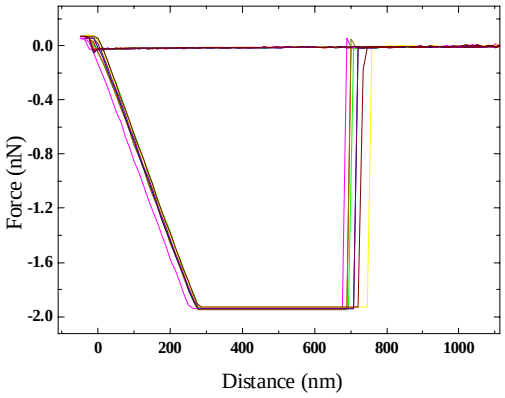

Fig. 3. Force-Distance curve measured on Si(100) wetted with PF-5070.

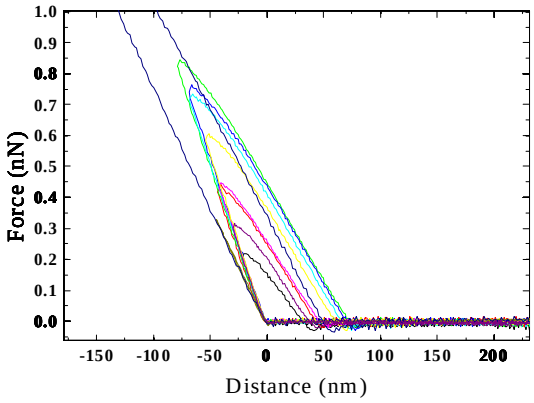

Fig. 4. Force-Distance curve, measured on Si(100) wetted with PF-5070 solution containing 0.1 wt% Krytox as a PFC surfactant.

나. 초음파 제염 성능 평가 시험

모의 오염 입자가 부착된 금속표면, 도막 표면, 전자기판 및 일회용 PP gown에 대하여 초음파 제염장치를 이용하여 여러 가지 실험 조건하에서 PFC 건식제염 실험을 수행하여 그 결과를 기술하였다.

순수한 PFC 용액 내에서 '입자 A'로 오염시킨 오염 시편의 제염 거동을 초음파 적용 시간을 달리해가며 조사하여 그 결과를 Fig. 5에 수록하였으며, 이로부터 시편의 종류에 따라 약간의 차이는 있으나 제염계수는 약 1.3에서 2.3으로 오염 제거율로는 약 25%에서 55%까지의 값을 얻을 수 있었다.

'입자 A'로 오염된 시편을 PFC 용액 내에 설치하고 초음파를 가했을 때 곧바로 시편 표면으로부터 용액 중으로 입자가 떨어져 나오면서 용액이 혼탁해지는 현상을 보였다. 육안으로 관찰 시에는 상당량의 입자가 떨어져 나옴으로써 비교적 제염이 잘 되는 것으로 보였으나 제염 초기에 떨어져 나오는 입자는 비교적 입경이 커서 느슨하게 표면에 부착된 것으로 이것만의 제염에 의해서는 매우 작은 제염계수가 얻어지는 결과를 보였다.

또한 본 결과는 순수한 PFC 용액 내에서 초음파 적용시간의 증가에 따라 제염계수가 약간 증진됨을 보여주고 있다.

PFC 만에 의해서는 효과적으로 입자성 오염물질을 제거할 수 없음에 따라 제염 효율을 증진시킬 수 있는 새로운 방법으로 PFC 용액 내에 기질 표면과 입자사이의 부착력에 영향을 미칠 수 있는 계면활성제를 첨가하여, 계면활성제가 제염에 미치는 영향을 조사하였다. 이와 관련해서는 이미 언급하였지만 고체표면과 입자와의 상호작용력을 AFM 방법으로 측정한 결과로부터 계면활성제가 올려진 고체표면의 부착력이 거의 없어지고 있으며, 이는 계면활성제를 포함하는 PFC 용액에 의한 제염이 PFC 용액에서의 제염에 비해 월등히 우수하리라는 예측을 가능하게 한다.

PFC계 계면활성제가 제염 효과에 미치는 영향을 살펴보기 위해서 순수한 PFC 용액 내에 0.1 vol%가 되도록 FS-62 계면활성제를 혼합한 60℃의 '제염용액 F' 내에서 '입자 A'로 오염된 여러 가지 시편을 대상으로 20분간 초음파 제염을 수행하였으며, 그 결과를 순수한 PFC 용액 내에서의 제염 결과와 비교하여 Fig. 6에 수록하였다.

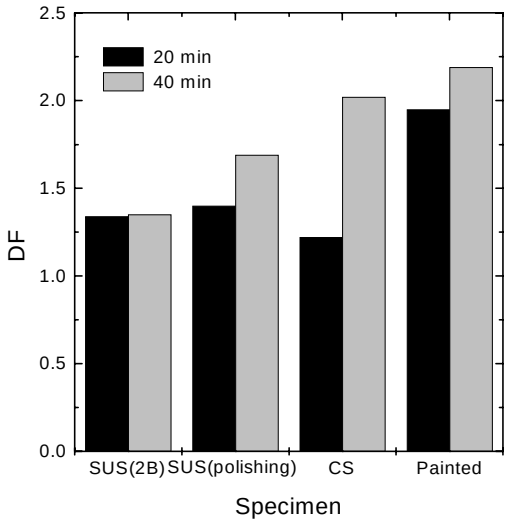

Fig. 5. Decontamination factor (DF) for various specimen contaminated with 'Particle A' in pure PFC fluid.

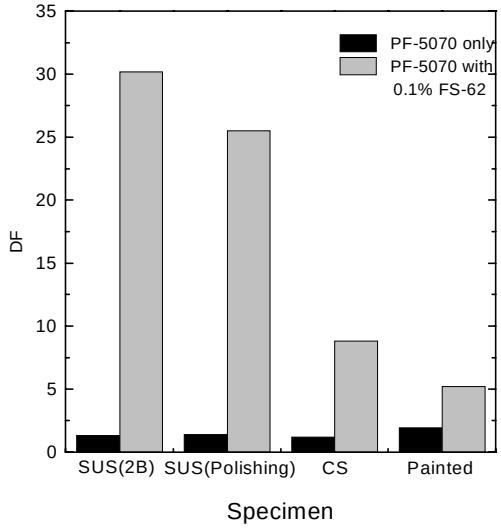

Fig. 6. Comparison of DF for various specimen contaminated with 'Particle A' in pure PFC fluid and 'Decon. solution F'.

PFC 계면활성제가 함유된 '제염용액 F' 내에서 제염계수는 페인트 도장 시편에 있어서는 약 5, 탄소강의 경우 약 10, 그리고 스테인레스강 시편에서는 약 25~30의 범위로 오염 제거율로는 시편에 따라 80~97%에 해당된다. 이 결과를 통해 순수한 PFC 용액 내에서의 제염에 비해 PFC 계면활성제가 포함된 '제염용액 F' 내에서의 제염효과가 매우 우수하다는 것을 알 수 있으며, 시편의 표면 상태에 따른 제염 효과를 고찰하면 비교적 표면이 매끈하고 표면 거칠기가 작은 스테인레스강 시편이 그렇지 못한 탄소강 시편이나 페인트 도장 시편에 비해 훨씬 우수함을 알 수 있었다.

PFC계 계면활성제의 제염 효과와 관련하여 PFC 계면활성제의 농도가 제염효과에 미치는 영향을 조사하였다. 이때 오염시편으로는 Cs-137 함유 UO_2 입자인 'Particle U'로

오염시킨 시편을 사용하였고, 제염용액으로는 PFC 계면활성제로 Krytox K157FS(M)가 포함된 PFC 용액인 '제염용액 K'를 사용하였다. 이때 제염용액의 초기 온도는 약 32℃가 되도록 조절하였다.

'제염용액 K'에서 Krytox K157FS(M)의 농도를 0.5 wt%에서 2 wt%까지 변화시켜가며 PFC 계면활성제의 농도변화에 따른 제염 효과를 Fig. 7에 수록하였다.

각각의 시편에 대한 제염 효과는 계면활성제의 농도에는 별로 영향을 받지 않는 것으로 나타났으며, 이는 미량의 입자를 분산시킬 수 있는 충분한 량의 계면활성제가 PFC 용액 내에 존재하기만 하면 효과적으로 제염을 할 수 있음을 의미하는 것으로 해석될 수 있다.

한편, 본 실험 결과는 'Particle A'로 오염시킨 시편의 제염결과인 Fig. 6과는 사뭇 다름을 알 수 있다. 즉, Fig. 6에서 보면 표면이 매끄러운 시편일수록 동일한 제염조건에서 제염계수가 큰 것으로 나타나 있으나, 'Particle U'로 오염시킨 시편을 사용한 본 실험 결과는 오히려 그 반대의 경향을 보여주는 것처럼 나타나고 있다. 이와 같이 실험결과가 서로 차이가 나고 있는 것은 시편의 제조 방법에 크게 기인하는 것으로 생각된다. 그러나 궁극적으로는 PFC 용액 내에 PFC 계면활성제를 첨가함으로써 입자성 오염물의 제염 성능이 크게 향상될 수 있음은 공통적으로 나타나고 있다.

초음파 제염 시간이 제염 효과에 미치는 영향을 살펴보기 위하여 초음파 적용 시간을 변화시켜가며 '제염용액 K'내에서 '입자 U'로 오염된 시편을 사용하여 제염 실험을 수행하였으며, 그 결과는 Fig.8에 수록하였다. 모든 시편의 경우 대부분 10분 정도의 초음파 적용 이후에는 적용 시간을 증가시키더라도 제염효과는 크게 변화가 없음을 알 수 있었다. 따라서 본 실험 결과들로부터 대부분의 입자성 오염 시편에 대해에서 약 20분간의 초음파 적용으로 비교적 제거가 어려운 미세한 분말까지 효과적으로 제거할 수 있음을 알 수 있었다.

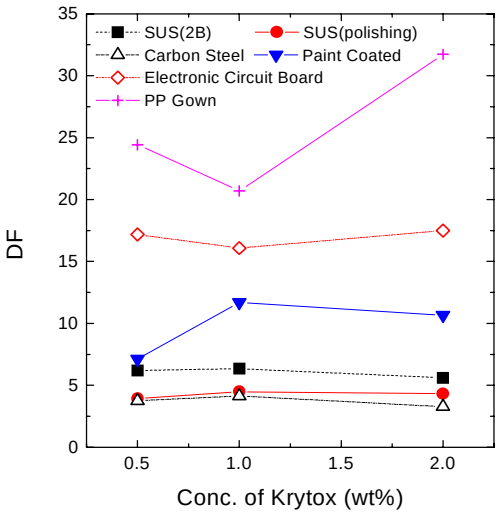

Fig. 7. DF for various specimen contaminated with 'Particle U' in 'Decon. solution K' according to the concentration of PFC surfactant, Krytox K157FS(M).

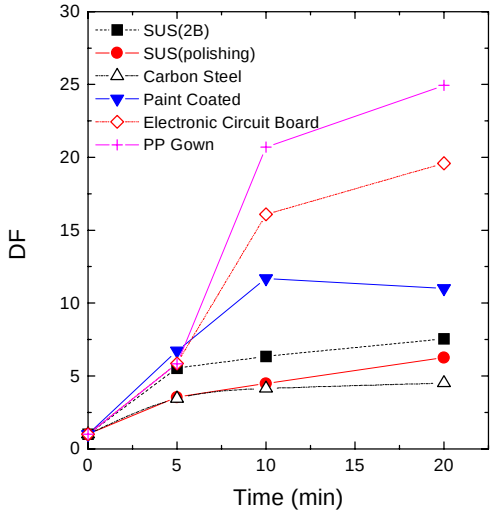

Fig. 8. DF for various specimen contaminated with 'Particle U' in 'Decon. solution K (1 wt% Krytox)' according to applied ultrasonic time.

20분간의 초음파 제염을 한번 적용시킴으로써 얻어진 최대 제염계수는 스테인레스강 시편의 경우 7~30, 탄소강 시편의 경우 5~8, 페인트 도장 시편의 경우 6~10, 전자기판 20, 그리고 PP gown에 대해서는 약 25 정도를 얻을 수 있었다. 그러나 제염 대상물에 따라 저준위 폐기물화 또는 자체처분을 위해서는 더욱 증진된 제염계수가 요구되며, 이 목적을 위해서 제염 시 용액 중으로 탈리 된 입자의 재 침적에 의한 재 오염 문제 등을 고려하여 제염 횟수를 여러 번 적용하면서 제염용액을 교체하는 방법으로 제염을 수행하였다. 이를 위해서 일회의 제염 시간을 10분으로 단축하고 3회까지의 초음파 제염을 적용하는 실험을 '입자 A'로 오염된 시편을 대상으로 '제염용액 F' 내에서 수행하였으며, 그 결과는 Fig. 9에 수록하였다. 마찬가지로 '입자 U'로 오염된 시편을 대상으로 '제염용액 K' 내에서 일회의 제염 시간을 10분으로 해서 4회까지의 초음파 제염을 적용하는 실험을 수행하였으며, 그 결과는 Fig. 10에 수록하였다.

본 실험 결과들을 통하여 일회의 제염에 있어서는 적용시간을 아무리 길게 하더라도 제염 표면으로 오염입자가 재 오염됨으로 인해 원하는 제염 성능을 얻을 수 없지만 비교적 짧은 시간의 초음파 적용 횟수를 새로 교체되는 용액 중에서 수행하면 탈리 입자의 재 오염 문제를 해결함으로써 저준위화 또는 자체처분이 가능한 수준으로 매우 좋은 제염성능 결과를 얻을 수 있음을 알 수 있었다.

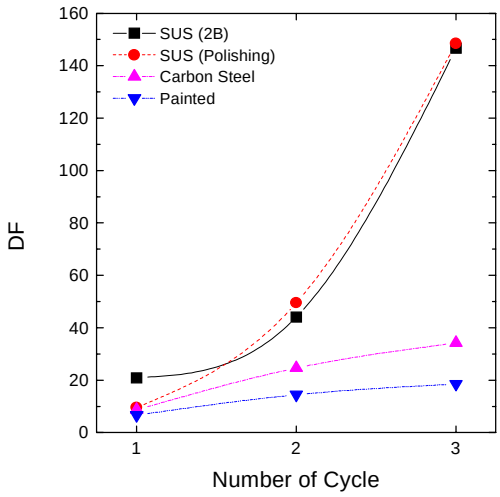

Fig. 9. DF for various specimen contaminated with 'Particle A' in 'Decon. solution F' according to applied number of ultrasonic cycle.

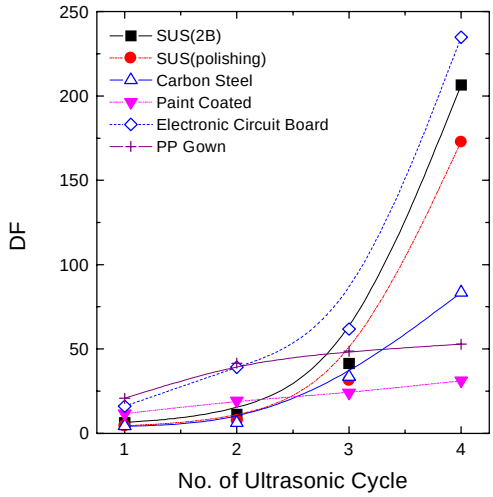

Fig. 10. DF for various specimen contaminated with 'Particle A' in the solution of 'Decon. solution F' according to applied number of ultrasonic cycle.

4. 결론

오염표면으로부터 입자성 오염물을 제거하는 초음파 제염공정에 있어 제염 매체로 사용하는 PFC 용액이 오염입자와 오염표면과의 상호작용에 미치는 영향의 조사 및 PFC 용액을 제염매체로 사용하는 초음파 제염실험 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

가. PFC 용액 내에 PFC계 계면활성제로 perfluoro-1-butanesulfonyl fluoride (Krytox)가

0.1% 정도만 포함되더라도 우수한 계면활성도를 나타냄으로써 오염입자와 기질표면과의 작용력을 약화시켜 오염표면으로부터 오염입자를 용이하게 제거하는 역할을 한다.

나. 순수한 PFC 용액 내에서의 제염에 비해 PFC 계면활성제가 포함된 PFC 용액에서의 제염효과가 훨씬 우수하였으며, 이 PFC 건식 제염으로 입자성 오염을 효과적으로 제거할 수 있다.

다. 장시간의 단 한차례 초음파 제염을 적용하는 것보다 초음파 적용시간을 짧게 해서 새로 교체된 제염 용액 내에서 반복적으로 제염을 수행함으로써 입자성 오염을 더욱 효과적으로 제거할 수 있다.

라. PFC계 계면활성제가 포함된 PFC 용액 내에서 초음파 제염에 의해 입자성 물질로 오염된 폐기물의 저준위화 및 자체처분 수준의 제염이 가능하였다.

참 고 문 헌

1. R. Kaiser, C. E. Benson, E. S. Meyers and V. C. A. Vaughen, ORNL/TM-12444 (1994).
2. R. Kaiser and C. S. Yam, Paper No. 42, Session 18, Waste Management '98 (1998).
3. K. L. Mittal, "Particles on surfaces : Detection, adhesion, and removal", Plenum Press, Vol. 1, 2, 3 (1991).
4. D. E. Fowler, INIS-mf-9524-Vols. 1,2 (1982).
5. L. D. Rozenberg, "Physical principles of ultrasonic technology", Vol. 1, Plenum Press (1973).