

2001 춘계 학술발표회 논문집
한국원자력학회

$Cs^{(134+137)}$, Am^{241} , $Eu^{(154+155)}$ 및 Ce^{144} 핵종으로 오염된 재료 표면의
벤토나이트 제염제에 의한 제염 특성

Decontamination Characteristics of Inorganic Surface Contaminated with
 $Cs^{(134+137)}$, Am^{241} , $Eu^{(154+155)}$ and Ce^{144} Radionuclides Using Bentonite
Decontamination Agent

안병길, 이병직, 유재형,
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

황택성
충남대학교
대전광역시 유성구 궁동 220

요 약

벤토나이트 분산상에 의한 도시지역 표면을 제염하기 위한 연구이다. 벤토나이트를 기본 물질로 한 제염제는 환경 위해성이 없으며 가격이 싸고 자원이 충분하며 비파괴적인 방법이며 적용이 간편하다는 장점이 있다. 벤토나이트의 양이온 치환 조건은 분산상의 팽윤성과 응집 실험에 의해 결정되었다. 제염 실험에 사용된 시편은 체르노빌 원자력 발전소 사고지역 토양에서 추출된 방사성 용액으로 오염시켜 제조하였다. 연구 결과 벤토나이트 분산상에 의한 도시 표면의 제염은 좋은 효과를 나타내었다.

Abstract

The decontamination of the urban building surfaces, based on the covering of bentonite suspensions, has been studied. A bentonite suspension as a decontaminant has a lot of merits; chemically unharmed substance, low price, prevalence of raw material, nondestructive, applicable to large area, and simplicity of preparation and application. The cation converting conditions of bentonite suspensions were determined by the experiments of swelling and stability of suspension. Contaminated samples for test purpose were prepared by application of radioactive solution which was extracted from the soil of the Chernobyl Nuclear Power Plant. The results of this study showed that bentonite suspension technology is effective for decontamination of urban environment.

1. 서 론

체르노빌 원전 핵사고 오염지역 중에 도시지역의 제염[1~3]에 주로 사용된 방법으로 물 또는 화학용액을 대단위로 분사하여 세척에 의해 오염원을 제거하는 습식 방법이었다 [4, 5]. 그 결과, 제염 후 세척용액은 방사성 액체 폐기물이 되어 주변 지역 및 하수 계통

을 심각하게 오염시켰다. 또한 고분자 용액에 의한 제염 방법(strippable coating)[6, 7]은 제염 후 고분자 건조막 제거의 어려움, 제염제가 가연성이므로 화재로 인한 방사능 물질의 비산 위험성과 고가의 고분자물을 쓰므로 비용이 많이 든다는 단점이 있다.

본 연구에서는 도시지역 제염에 있어서 주거 환경과 가장 밀접한 건물 표면의 제염에 관점을 두었다. NH_4^+ 이온은 Cs^+ 이온과 치환력이 크기 때문에 Cs^+ 이온 제거에 효과적이라는 여러 연구 결과[8]들이 보고되었다. 벤토나이트 분산용액의 용이한 제염공정에 NH_4^+ 의 이온 교환 특성을 활용 할 수 있는 벤토나이트 분산용액을 활용한다면 매우 큰 제염 효과를 기대할 수 있다. 따라서 본 연구에서는 벤토나이트에 존재하는 교환성 이온인 Ca^{2+} 또는 Na^+ 이온을 NH_4^+ 이온으로 치환시킨 NH_4 -치환 벤토나이트 분산용액을 제조하고자 하였다. 이러한 NH_4 -치환 벤토나이트 분산용액의 제조 조건을 도출하기 위하여 팽윤성, 분산 안정성, 시편 표면에 적용하여 자연 건조 후 건조 벤토나이트 박막의 박리 특성 등을 실험하여 최적의 조건을 도출하였다. 그리고 이 NH_4 -치환 벤토나이트 분산용액을 이용하여 제염실험을 실시하였다. 제염실험에 사용된 오염시편은 체르노빌 원자력 발전소 사고지역의 토양으로부터 채취된 방사성 용액으로 3종의 도시표면 재료(silicate brick, red brick 및 slate)를 오염시켜 얻었다. 제염실험은 벤토나이트 분산용액을 3회 적용하여 적용 횟수별/핵종별 제염특성을 살펴보았다. 제염 전·후의 핵종별 농도는 고순도 Ge-detector를 사용한 MCA(multi-channel analyzer)로서 분석하였다.

2. 실험

가. Na 및 NH_4 치환 벤토나이트 제염제 제조

실험에 사용된 벤토나이트는 국내 벤토나이트 광산중 대체로 몬몰리노나이트 함량이 높은 경북 영일에서 생산되는 천연 벤토나이트와 우크라이나의 Cherkassy 지역에서 생산되는 것을 기본 원료로 사용하였다. 이들 천연 벤토나이트는 Ca-형으로 팽윤성과 분산성이 낮다. Ca 형 천연 벤토나이트를 Na 형으로 치환하기 위하여 탄산나트륨 용액을 사용하였다. Na^+ 이온과 치환된 Ca^+ 이온은 탄산이온과 반응하여 침점물인 탄산칼슘으로 되어 벤토나이트 입자상 내에 존재하게 된다. 형성된 탄산칼슘은 벤토나이트 양에 비해서 극히 미량이므로 벤토나이트에 존재하는 불순물과 같은 거동을 보이게 된다. 치환에 필요한 적정 Na^+ 및 NH_4^+ 이온의 당량은 벤토나이트의 양이온 교환 용량(CEC, cation exchange capacity)을 기준으로 계산에 의해 대략적으로 구할 수 있으나 천연 벤토나이트에 존재하는 불순물로 인하여 영향을 받게 되므로 조성비 변화에 따른 실험에 의해 적정 조성비를 구하였다. 팽윤성이 우수하고 분산상의 안정성이 큰 벤토나이트 제염제의 적정 제조 조성 선정에 위하여 응집(flocculation series) 실험[9]을 수행하였다. 각각의 조성비로 제조된 벤토나이트 용액을 시험관에 넣어 진동이 없는 상태로 실온에서 방치하여 시간별 유리수(free standing water) 발생량을 조사하였다. 벤토나이트와 증류수의 비를 일정하게 한 후에 발생하는 유리수발생 여부는 벤토나이트의 팽윤성과 콜로이드성 용액의 안정성을 나타내는 지표로 사용할 수 있다. 15 일 후에도 침전상이 없이 안정된 분산상을 나타내는 제조 조성을 적정 제조 조성으로 선정하였다.

Na 치환 벤토나이트(Na-type)의 경우 벤토나이트/ $\text{Na}_2\text{CO}_3(0.05 \text{ mole})$ / 증류수의 비가 1g/ 0.4 ml/ 6.6ml 의 적정 제조 조건을 선정할수 있었으며, 이 경우 초기 도포된 벤토

토나이트 용액 전체가 건조되어 생긴 박막이 작은 크기로 조각남이 없이 탄력있는 박막으로 남게되며, 15일 경과 후에도 상분리 현상이 없었다.

NH₄ 치환 벤토나이트 분산용액의 경우는 건조 벤토나이트/ Na₂CO₃ (0.05M)/ NH₄NO₃ (1.25M)/ H₂O 의 비가 1g/ 0.4ml/ 0.14ml/ 7.47 ml 인 적정 제조 조건을 선정할 수 있었으며, 이 조성에서 암모늄이온의 함량은 17.5 meq/(100g 벤토나이트)로서 그 이상의 암모늄이온이 첨가되면 벤토나이트 입자가 침전되기 시작하며 암모늄 이온량이 증가할수록 더 큰 침전 입자를 형성하였다. 따라서 국내산 벤토나이트의 임계 응집량은 17.5 meq/(100 벤토나이트) 임을 알 수 있다. 그러나 우크라이나 산 벤토나이트의 경우 동일 조건으로 암모늄이온을 첨가시 팽윤이 되지 않고 유리수의 발생이 많았다. 이러한 현상은 국내산 벤토나이트가 우크라이나산 보다는 불순물 함량이 많아서 미량 성분들의 거동에 의한 영향으로 판단된다.

나. 오염시편 제조 및 방사능 농도 분석

(1) 오염시편 제조

Na 및 NH₄ 치환 벤토나이트 제염체의 제염특성을 실험하기 위해서 사용된 시편은 도시지역의 환경 복원을 목적으로 도시 건물을 구성하는 재료 중에서 실리케이트 벽돌, 붉은 벽돌 및 슬레이트를 선정하였다. 이들 시편들은 재료 자체의 표면 및 내부구조를 변화시키지 않기 위해서 특별한 전처리 없이 다이아몬드 절단기로 가로 세로 각 5 cm, 두께를 약 1 cm가 되게 절단하였으며 초음파로 세척하여 표면에 존재하는 절단 분쇄물을 제거하였다. 실험 오차를 줄이기 위하여 각각의 실험에 대하여 동일한 시편을 3 개씩 준비하였다. 오염 시편을 제조하기 위한 방사성 동위원소는 핵사고가 발생하였던 체르노빌 원자력 발전소 4 호기로부터 시계방향으로 260 ° 방향, 2km 떨어진 지역의 심하게 오염된 지역의 토양 표면 상부층 0 - 2 cm에 존재하는 토양을 채취하였다. 채취된 토양을 건조시킨 후 8 M HNO₃와 과산화수소수를 9 : 1의 비율로 혼합한 용액에 채취 토양을 첨가하여 2시간씩 3회 추출하여 방사성 동위원소 용액을 얻었다. 핵사고에 의해 오염된 재료와 유사한 시편을 제조하기 위하여 시편 주위에 제염 표면으로부터 높이 4 mm의 폴리에틸렌 필름을 부착하였으며 상기 방사성 용액을 1.48 x 10⁴ Bq(becquerel)/ml로 희석하여 각 시편 당 2.5 ml 씩 제염 표면에 주입하여 시편 당 3.7 Bq의 방사능 농도로 하였다.

(2) 오염 시편의 방사능 농도

체르노빌 핵사고 현장의 오염 토양으로부터 얻은 방사성 용액의 핵종별 농도와 오염 시편의 제염 전·후의 핵종별 표면 방사능 농도를 EG & G ORTEC사의 MCA와 EG & G ORTEC OMNIGAM code를 사용하였으며 주사 범위는 50.23 - 3749.25 KeV로 하여 측정하였다. 그리고 분석의 정확도를 높이기 위해서 시편 면적(25 cm²) 전체를 측정할 수 있는 직경 7 cm의 고순도 게르마늄 디텍터(high purity Ge-detector) 을 사용하였다. 오염 시편의 핵종별 표면 방사능 농도를 표 1 에 나타내었다. 3 종류의 초기 핵종별 오염 농도를 나타낸 표 1을 보면, 총 방사능 농도는 2.3x10⁴ ~ 2.4x10⁴ Bq이며, 시편에 따른 핵종별 및 총 표면 방사능 농도는 큰 차이가 없으며 방사성 용액의 농도와 비교하여도 큰 차이는 없음을 알 수 있다. 이러한 오염 시편의 표면 방사능 농도 측정 자료

로부터 갈라진 틈 또는 물리적인 결점이 없는 시편임을 확인 할 수 있다. 따라서 오염 핵종 뿐만 아니라 균일한 오염 상태로부터 핵사고 오염 현장을 잘 모사 할 수 있는 시편으로 적절하다도 판단된다. 방사성 동위원소인 Eu^{155} 와 Eu^{154} , Cs^{134} 와 Cs^{137} 은 화학·물리적 특성이 동일하기 때문에 각각의 동위 원소 농도를 합산하여 제염 실험 결과를 제시하였다.

Table 1. Radioactivity of contaminated specimen.

Nuclides	Activity (Bq)		
	Silicate Brick	Slate	Red Brick
Am^{241}	2.8743E+02	2.6103E+02	2.8756E+02
Eu^{155}	4.9813E+02	4.9300E+02	5.0349E+02
Eu^{154}	6.7669E+02	7.2250E+02	6.9519E+02
Ce^{144}	1.2994E+03	1.2878E+03	1.2695E+03
Cs^{134}	1.0540E+03	1.0656E+03	1.0549E+03
Cs^{137}	1.9593E+04	2.0175E+04	1.9933E+04
Rh^{106}	1.18E+02	2.09E+02	9.46E+01
Total	2.3478E+04	2.4070E+04	2.3827E+04

다. 제염 실험

제조된 벤토나이트 용액이 충분히 팽윤 및 반응하도록 2 일 동안 숙성시킨 후 제염 실험을 실시하였다. 이온성 오염시편은 충분히 건조시킨 후 폴리에틸렌 필름을 제거하고 시편에 존재하는 핵종별 초기 농도를 분석하였다. 분석이 끝난 시편에 대하여 시편당 벤토나이트용액 4 ml(= 0.16 ml/cm²)를 표면에 균일한 두께가 되도록 도포하였다. 그 후 실온에서 약 70시간 건조시켜 충분하게 건조되도록 하였고 벤토나이트 박막의 박리가 일어나도록 하였다. 그 후 표면에 존재하는 건조 벤토나이트 박막은 테이프를 써서 형태가 흐트러지지 않게 떼어내고 테이프에 붙은 벤토나이트 표면을 얇은 셀로판으로 덮어서 벤토나이트 입자가 흩어지지 않게 하였다. 그리고 테이프에 붙어있는 벤토나이트 박막의 방사능 농도를 측정하였다. 한편으로 벤토나이트 박막을 분리하여 제염을 실시한 시편의 표면이 갖는 방사능 농도도 측정하였다. 제염 횟수에 따른 제염효과를 실험하기 위하여 1차 제염된 시편에 다시 동일한 벤토나이트 용액을 적용하여 상기 방법으로 실험을 하였으며 3차에 이르기까지 제염실험을 실시하였다.

3. 결과 및 고찰

가. 슬레이트의 제염 결과

국내산 Na 및 NH₄ 치환 벤토나이트 제염제는 K-Na 및 K-NH₄ 로, Na 치환 우크라이나 제염제는 U-Na로 각각 표기하였다. 슬레이트에 대한 핵종별 제염 결과를 그림

1 의 (1) 에 나타내었다. 제염 효과는 초기 오염농도에 대한 제염후 농도비로서 나타내었다. 이 그림에서 전체적인 핵종별 제염 특성은 Cs이 가장 잘 제거되었으나 Ce이 제염은 안되었다. 또한 제염 횟수에 따른 제염효과를 나타낼 때 얻어진 기울기가 거의 선형으로 감소되므로 3회 제염 이후의 제염공정에 의해서도 제염효과가 있을 것으로 판단된다. Cs의 경우 K-NH₄ 제염제가 가장 제염 성능이 좋았으며, 첫 제염 후에 약 60%가 제거되었으며, 2 회 제염 후에는 80% 그리고 3회 제염 결과로 약 86 %가 제거됨을 나타내었다. 이것은 암모늄 이온이 세슘이온에 대한 이온교환 효과가 높음을 단적으로 보여준다. 미량의 핵종에 대한 제염 효과는 Ce < Eu < Am의 순서로 제염이 잘 되었다. 이러한 현상은 제염제의 pH가 약 9를 나타내므로 제염제를 도포하였을때 제염제 내의 용액이 침투하면서 시편 내부의 이들 핵종을 수화물 상태의 불용성 입자의 물질로 변화시키기 때문으로 생각된다. 따라서 이들 핵종들은 제염액에 의해 형성된 액체 유로에 용해되어 확산되기보다는 시편 매트릭스 내에 고착되게 되므로 제염 효과가 낮아지는 것으로 판단된다. Am은 3회 제염으로 U-Na에 의해 약 40 %가 제거되었으며 K-Na에 의해 약 33 %가 제거되었다. Ce의 경우는 U-Na 및 K-Na 에 의해 36% 및 16 %가 제거되었다. 대체로 U-Na 가 K-Na 보다 좋은 제염 성능을 나타냈다. 이러한 이유는 벤토나이트를 구성하고 있는 몬몰리노나이트 함량과 불순물에 의한 영향으로 판단된다.

나. 실리케이트 벽돌의 제염 결과

실리케이트 벽돌에 대한 핵종별 제염특성을 그림 1의 (2)에 나타내었다. 이 그림에서 전체적인 핵종별 제염 특성은 슬레이트의 경우보다 제염이 어려웠지만 횟수별 제염 거동은 유사한 경향을 보였다. Cs의 경우 3 회의 제염으로 K-NH₄ 제염제에 의해서 60 %가 제거되어 다른 제염제보다 제염성능이 좋았다. K-Na와 U-Na는 거의 동일하게 약 54 %의 Cs을 제거할 수 있었다. 미량 핵종들은 10 ~ 20 % 만이 제거되어 제염이 어려움을 보여 주었는데 그 중에서 반감기가 긴 Am²⁴¹(반감기 432.2년)의 경우 약 20 %가 제거되어 다른 핵종들 보다는 제염이 잘 되었다.

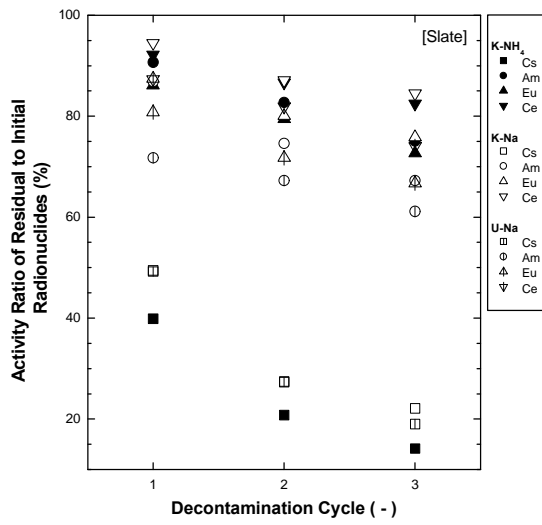
다. 붉은 벽돌의 제염 결과

붉은 벽돌에 대한 핵종별 제염특성을 그림 1의 (3)에 나타내었다. 이 그림에서 Cs의 경우 U-Na < K-Na < K-NH₄ 순서로 제염성능이 좋았다. U-Na의 경우 횟수별 제염 효과가 완만하게 감소하므로 3 이후 제염 효과를 기대하기 어려운 반면에 K-Na와 K-NH₄의 경우는 3회 이후에도 제거될 가능성을 보인다. Cs의 경우 U-Na, K-Na 및 K-NH₄에 의해서 24, 36 및 43 %가 각각 제거되었다. 미량 핵종들은 실리케이트 벽돌보다 더욱 더 제염이 안되며 약 5~10 %만이 제거되었다.

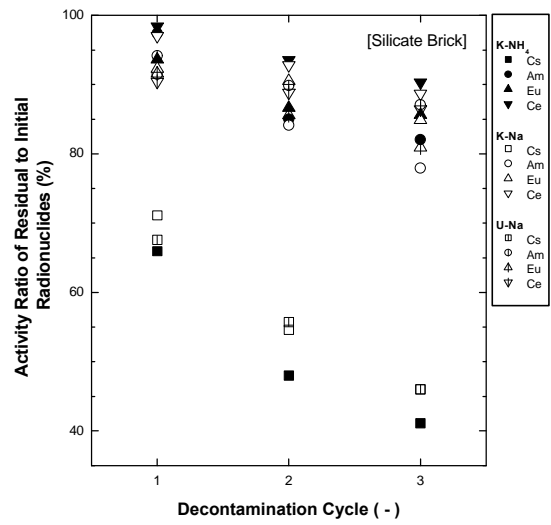
라. 시편 및 제염제 박막에서 핵종의 분포 경향

시편에서 제거되어 제염제 박막에 회수된 핵종별 거동을 보기 위해서 제염 후에 시편과 제염제 박막의 핵종별 농도를 분석하였다.

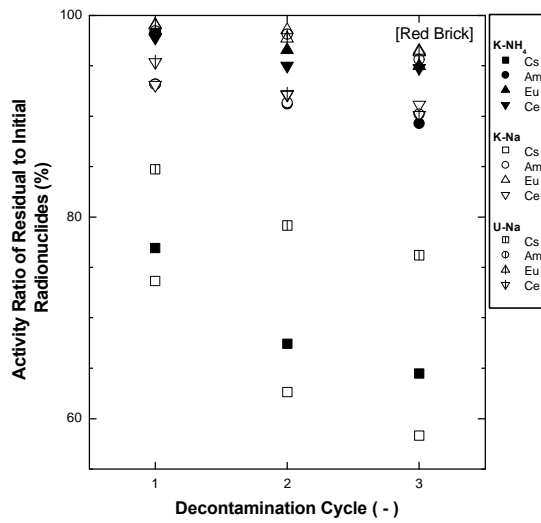
Am²⁴¹ 방사성 핵종에 대한 3 회 제염후 시편에서 제거된 양과 박막에 회수된 양을 백분율로 그림 2의 (1) 에 나타내었다. 이 그림에서는 오염시편에서 제거된 양과 제염제 박



(1)

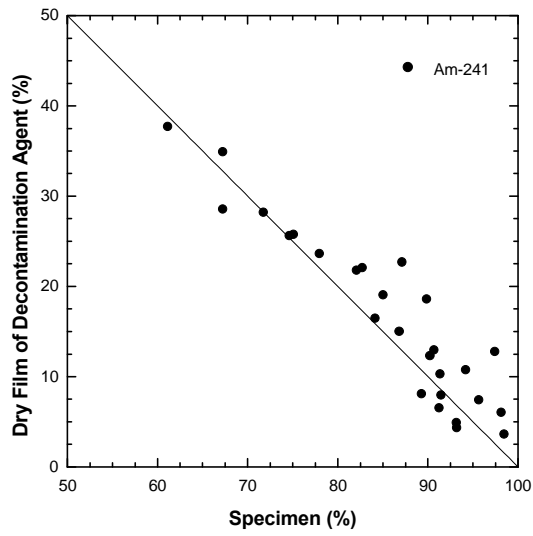


(2)

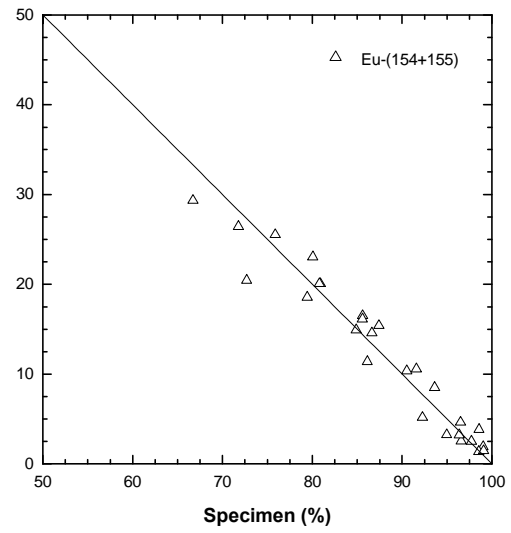


(3)

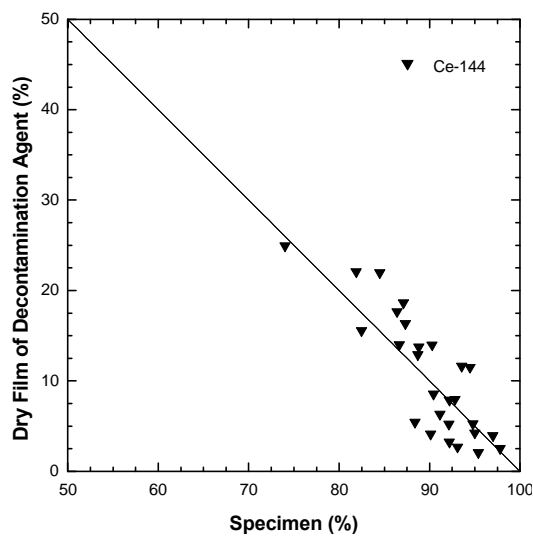
Fig. 1. Activity ratio of residual to initial radionuclides as a function of decontamination cycle for slate (1) and silicate brick (2) specimen and red brick (3) with Na or NH₄ exchanged bentonite agent.



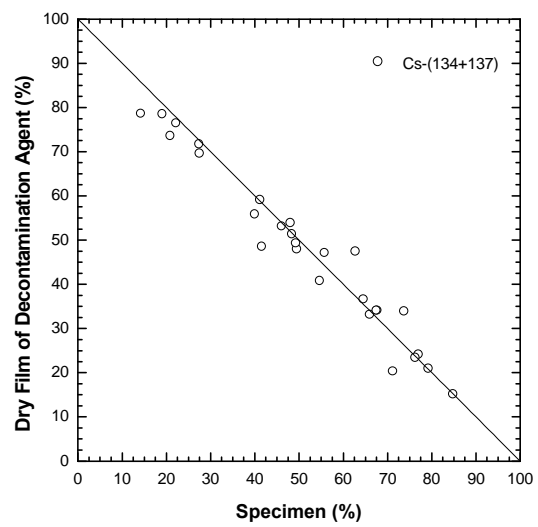
(1)



(2)



(3)



(4)

Fig. 2. Am^{241} (1), $\text{Eu}^{(154+155)}$ (2), Ce^{144} (3) and $\text{Cs}^{(134+137)}$ (4) distribution between specimen and dry decontamination film with Na or NH_4 exchanged bentonite agent.

막에 회수된 양의 합이 100%인 점들을 사선으로 나타내었다. Am²⁴¹의 경우 많은 부분이 사선 윗 쪽에 존재함을 알 수 있고, 이것은 Am²⁴¹이 시편 표면 쪽으로 이동되어 나타난 현상으로 보인다. 시편에 존재하는 농도는 60 ~ 97 %로서 다소 넓은 분포를 보이므로 제염제에 따라 영향을 받으며 제염이 어려운 핵종임을 알 수 있다.

Eu⁽¹⁵⁴⁺¹⁵⁵⁾에 대한 시편과 제염제 박막에 대한 거동을 그림 2의 (2) 에 나타내었다. Am과는 다르게 사선에서 크게 벗어나지 않으며 시편에 존재하는 농도는 63 ~ 98%로서 다소 넓은 분포를 보이므로 제염제에 따라 영향을 받으며 제염이 어려운 핵종임을 알 수 있다.

Ce¹⁴⁴에 대한 시편과 제염제 박막에 대한 거동을 그림 2의 (3) 에 나타내었다. 핵종 분포가 사선에서 상. 하로 크게 벗어나며 시편에 존재하는 농도는 80 ~ 98%로서 좁은 분포를 보이므로 제염제에 따라 크게 영향을 받지 않으며 제염이 매우 어려운 핵종임을 알 수 있다.

Cs⁽¹³⁴⁺¹³⁷⁾에 대한 시편과 제염제 박막에 대한 거동을 그림 2의 (4) 에 나타내었다. 다른 핵종들과는 다르게 사선에서 크게 벗어나지 않으며 시편에 존재하는 농도는 13 ~ 85 %로서 매우 넓은 분포를 보이므로 제염제에 따라 크게 영향을 받는 핵종임을 알 수 있으며, 벤토나이트를 기본 물질로 한 제염제에 의해 제거가 잘되는 핵종임을 알 수 있다.

이러한 결과들로부터 Cs은 시편에 최대 10 %까지 존재하며 넓은 분포에 걸쳐서 존재하며, 미량 핵종들은 70 % 이상이 편중되어 시편에 존재함을 알 수 있다.

4. 결론

분산액의 팽윤성이 작은 국내산 천연 Ca형 벤토나이트를 팽윤 및 안정성이 크고 NH₄⁺ 이온이 치환 및 과량 함유된 질상의 제염제에 의한 도시 구성재료의 오염 모사 시편을 이용하여 오염 핵종별 제염 거동을 연구한 결과 다음의 결론을 얻을 수 있었다.

체르노빌 핵사고 현장에서 채취한 방사성용액을 이용하여 핵사고 현장을 모사한 시편을 제조하여 방사성 오염물질을 제거하기 위한 실험으로부터 오염된 핵종중 Cs이 NH₄⁺ 이온과의 이온교환 효과에 의해 가장 잘 제거되었다. 그리고 Am, Eu 및 Ce은 실험조건(pH=9 이상)에서 제염 용액에 의해 수화물로되어 불용물의 형태로 시편 매질내에 존재함으로써 제염효과가 낮았다. 슬레이트의 제염에 있어서 Cs의 경우는 K-NH₄ 제염제에 의해 첫번째 제염으로 약 60 %가 제거되었으며, 두번째 제염으로 80% 그리고 세번째 제염의 결과로 약 86 %가 제거되었다.

따라서 Cs은 벤토나이트 제염제를 개발함으로써 충분히 제거가 가능한 핵종임을 알 수 있으며, 미량 핵종들은 대체로 제거에 어려움이 있다. 그러나 방사능 물질의 대단위 누출 사고시 가장 발생량이 많고 인체에 피폭 위험성이 큰 감마 방사체이며, 이온 형태로 존재함으로써 일반적인 방법으로는 제거가 어려운 점을 감안할 때 벤토나이트를 기본 물질로 한 제염제는 도시 지역의 환경 복원을 위해서 크게 기여할 것으로 판단된다.

참고문헌

1. Mamayev, L. A, Galkin, E.A. et al., "Radionuclide Localization in the Territory of

- the Chernobyl NPP", Reports of the First All-Union Scientific Tech. Meeting on Results of Liquidation of the After effects of the Cher. NPP Accident, *Chernobyl 88* (1988).
2. Mikeikin, S. V., Mamaev, L. A. Rybakov, K. A. and Alekseev, A. N., "Technology of Long Term Localization of Soil Contaminated with Radioactive and High Toxic Substances", Reports of the Second All-Union Scientific Tech. Meeting on Results of Liquidation of the After effects of the Chernobyl NPP Accident, *Chernobyl 90* (1990).
 3. De Witt, H., Goldammer, W., Brenk, H. D., Hille, R., Jacobs, H. and Frenkler, K., "Decontamination of Urban Areas after Nuclear Accident", *Proc. of Symp. on Recovery, Operations in the event of Nuclear Accident or Radiological Emergency*, IAEA, Vienna, 6-10 November (1989).
 4. International Atomic Energy Agency, "Cleanup of Large Area Contaminated as a Result of a Nuclear Accident", *Technical Report Series No. 300*, IAEA, Vienna (1989).
 5. Izrael, Yu. A., "Study of Radioactive Contamination of the Environment Caused by the Chernobyl Nuclear Power Plant Accident", *Proc. Int. Symp. on Environmental Contamination Following a Major Nuclear Accident*, IAEA, Vienna, SM-306/21 (1989).
 6. Samoilenko, Yu. N. and Chernouchenko, V. M., "Use of Polymeric Coatings to Improve Radiation Situation under Liquidation of Aftereffects of the Accident at the Chernobyl NPP", *Chernobyl 88*, **7**, 2, p. 152 (1989).
 7. Egorov, B. N. and Yurchenko, Yu. F., "The Experience of Dry Decontamination of Building Structures and Equipment", *Chernobyl-88*, **7**, 2, p. 141 (1989).
 8. Sandalls, F. J., "Removal of Radiocaesium from Urban Surfaces Contaminated as the Results of a Nuclear Accident," *AERE R 12355* (1987).
 9. van Olphen, H, "The Rheological Behavior of Clay-Water Systems," *American Perfumer*, **77**, April (1962).