

2. 解 説

金属水素化物とその利用

金属材料技術研究所 佐々木 靖 男

まえがき

2次エネルギーとして水素を用いる水素エネルギーシステムにおいて、多量の水素ガスを貯蔵・輸送するのに金属水素化物を利用する方法が提案されている。

水素エネルギーシステムにおける金属水素化物の役割の詳細や全体像については、すでに多くの解説や紹介がなされている¹⁾。本講では金属水素化物の機能特性及びそれを利用したシステム並びに金属水素化物に関する新しい話題などについて記述する。

1. 金属水素化物の多機能性

水素ガスの貯蔵・輸送のために用いられる金属水素化物は、表1に示されるように単位体積 (1cm^3) 中に 10^{22} 個の水素原子を含み、気体水素のその約1,000倍である。水素を金属水素化物として貯蔵すると、1,000気圧の高圧水素ガスの密度と匹敵する高密度で貯蔵したことになる。貯蔵された水素は必要に応じて金属水素化物から放出させられて利用される。したがって金属水素化物から水素が放出されると、金属水素化物は元の水素貯蔵用合金にもどることになり、化学反応式的に表示すると次のようになる。

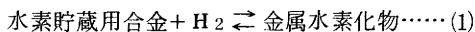


表1 水素原子数密度の比較例

気体水素	5.4×10^{19} 原子/ cm^3	LaNi ₅ H _{6.7}	7.6×10^{22} 原子/ cm^3
-253℃の液体水素	4.2×10^{22}	ZrH ₂	7.3×10^{22}
TiH ₂	9×10^{22}	FeTiH ₂	6.3×10^{22}

水素貯蔵用合金は大別するとLaNi₅のような希土類系合金、FeTiのようなチタン系合金及びMg₂Niのようなマグネシウム系合金の3系列になる。

(1)式の化学反応式において、一般の水素貯蔵用合金の場合右辺への反応時には発熱し、左辺への逆反応時には吸熱する。この反応は常温近傍で進行し、この発熱・吸熱反応を利用すれば低温熱の蓄積やヒートポンプにおける熱変換媒体としての役割を金属水素化物に担わせることができる。

この他、図1に示されるように金属水素化物は多くの機能性²⁾をもっている。これらの機能性を利用したシステムについて次章で述べる。

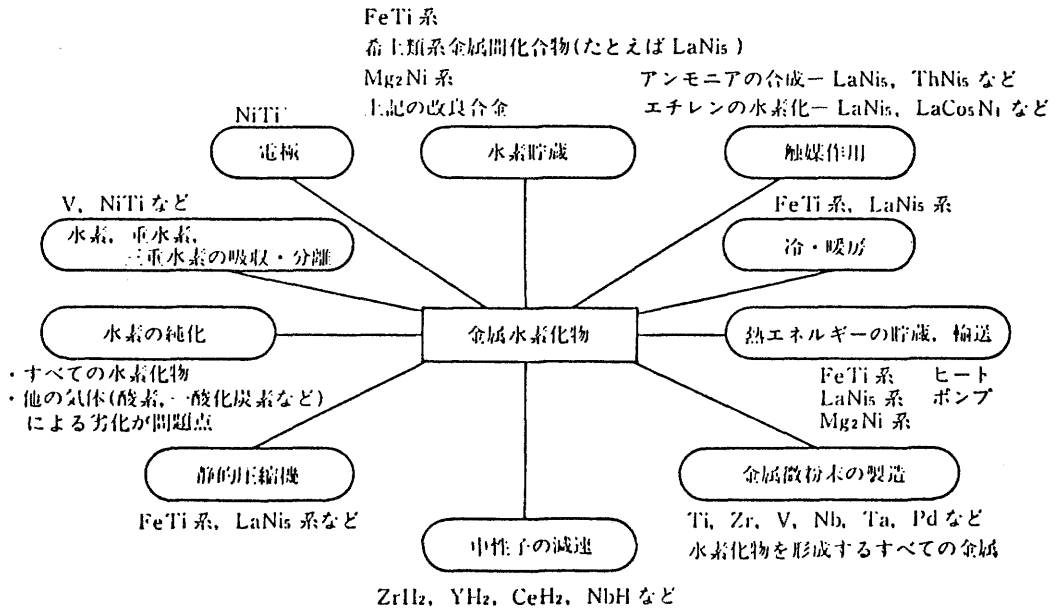


図1 金属水素化物の多機能性²⁾

2. 金属水素化物の利用システム

すでにまえがきに述べたように、金属水素化物は水素ガスを効率よく貯蔵・輸送するために開発が進められた。図1に示された多くの機能性のうち順を追ってこれら諸機能及び実用システムを記述する。

2・1 水素貯蔵・輸送

水素エネルギーシステム確立のためには、水素製造技術の確立に加えて、安全で且つ効率の良い貯蔵・輸送技術の確立が不可欠である。

既存の輸送技術としては、水素ガスのパイプラインによる輸送、圧力容器による輸送及び液体水素による輸送がある。

パイプライン輸送は、すでに西独のHuls社によって総延長208kmのパイプライン網³⁾が実用化されており、将来の大量輸送の中心になるものと考えられている。しかしパイプ材料の水素脆性、パイプライン構造物の耐震性や構造機器からの水素漏洩など多くの問題点が残されている。

液体水素による輸送においては、低温用貯蔵タンクが必要となり、数パーセントの蒸発損失もまぬがれない。また気体水素を液体するためには1kg当り10~14KWhの電力を必要としエネルギー効率の観点からも問題がある。

金属水素化物を利用した水素貯蔵・輸送システムは、米国のBillings社、MPDテクノ

ロジー社, Brookhaven 国立研や西独のKFA, Julich GMBHなどで設計製作され, 国内では工業技術院・化技研, 大工試や松下電産, 川崎重工, 岩谷産業, 日本重化などの諸企業において設計製作されている。これらシステムにはFeTi系の水素貯蔵用合金が利用されたものが多く, 重量がかなり大きくいずれも定置型システムとして設計されたものが多い。

定置型システムと対照的に金属水素化物を運搬する必要のあるシステム, 例えば運輸機器用には軽量金属水素化物が求められている。しかしながら現在までには, 軽量で常温近傍で水素ガスを解離放出する金属水素化物がなく, 以下のような工夫がなされている。

軽量の金属水素化物としてMg系合金があるが, 水素放出温度は600 K近く, 低温で水素を放出するFeTi系合金とのハイブリッド方式が提案されている。すなわちエンジン始動時にはFeTi系合金から放出された水素ガスをエンジンに供給する。このエンジン排気ガスでMg系合金を加熱して水素を発生させ, その水素でエンジンの運転を継続する。⁴⁾ 始動用燃料としてプロパンを用いるユニットも試作されている。

自動車などの運輸機器に金属水素化物を用いた実例を表2に示す。⁵⁾ これらに組込まれた合金は200Kg以下の場合が多く, それ以上の場合には運輸機器の自重増大のため走行距離の低下がみられる。

表2 運輸機器用水素源として利用された水素貯蔵用合金⁵⁾

システム名称	合金の種類	合金重量 (kg)	水素供給量 (kg)
運輸機器			
D. BENZ 低温型	FeTi	200	4.0
BEC OMNI	FeTi	156	2.5
BEC FORKLIFT	FeTi	91	1.5
BEC BUS	FeMnTi	90	1.57
BEC JEEP	FeMnTi	65	0.68
BEC TRACTOR	FeMnTi	48	0.77
HES FORKLIFT	LaNi ₅	270	3.4
HES DODGE	FeMnTi	318	5.0
D. BENZ COMBO	FeTi	246	5.5
D. BENZ 高温型	Mg ₂ Ni	55	1.7
BEC PONTIAC	FeTi	198	1.8
BEC BUS	FeTi	508	6.3
D. BENZ COMBO	Mg ₂ Ni&FeTi	246	5.5

2・2 水素の精製・純化

水素貯蔵用合金に吸収される水素ガス中の不純物であるCO, CO₂, H₂O, O₂, N₂, SO₂, C₁₂, などは, 合金の活性表面を汚染し, 水素吸収速度を低下させ水素貯蔵量の減少を起す。

合金の被毒効果は換言すれば、合金表面が水素中の不純物によって被覆され安定な化合物を形成したためであり、水素貯蔵用合金から再放出される水素ガス中の不純物レベルは低下することが期待される。すなわち水素の精製・純化が行われたことになる。

TiFe, TiFe_{0.85}Mn_{0.15} 及び LaNi₅ 水素貯蔵用合金が H₂O, O₂ 及び CO を不純物として各 = 300 ppm 含有する水素中で繰り返し吸収・放出試験を行ったときの水素変換量（放出量／貯蔵量）が図 2 に示される。⁶⁾

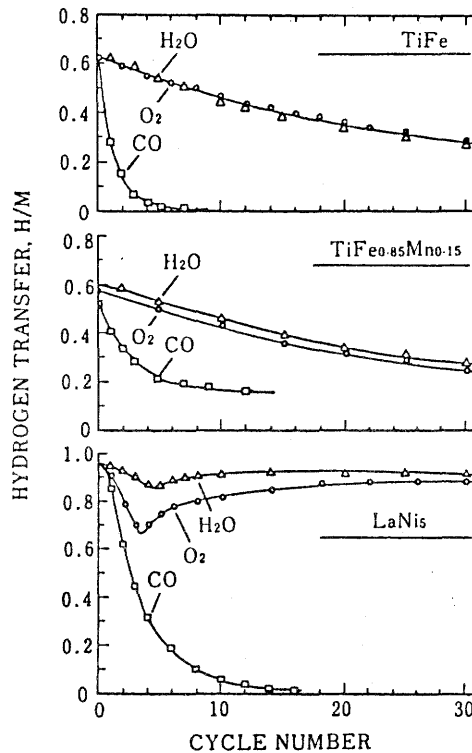


図 2 TiFe, TiFe_{0.85}Mn_{0.15} 及び LaNi₅ の水素吸収・放出繰返し回数と水素変換量⁶⁾

被毒された合金の貯蔵特性は、高純度水素ガスによってフラッシング (flushing) するか、あるいは適温に加熱することによって回復させることが可能な場合がある。図 3 には図 2 に示されたような被毒効果によって水素変換量が低下した合金を、フラッシングの繰返しによって特性を回復させた一例が示される。⁶⁾

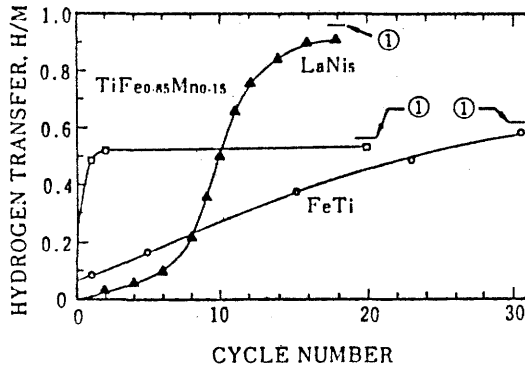


図3 100 ppm CO を含有する水素で被毒された合金の高純度水素による繰返しフラッシング試験結果⁶⁾ 横軸：フラッシング回数，縦軸：水素交換量，①被毒前のレベル

水素中に含有される重水素や三重水素の分離に関しても金属水素化物は有効な場合がある。ダイムラー・ペンツ社ではTi-Ni合金を用いた重水素濃縮化試験が行われた。⁷⁾ 図4に示

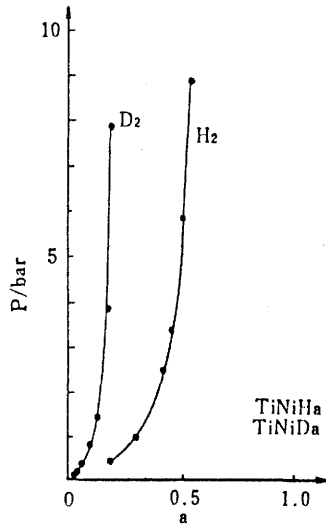


図4 TiNi-H₂ 及び TiNi-D₂ 系の476 Kにおける等温平衡曲線，横軸はTiNiH_a 及び TiNiD_a における α 値を表示し，縦軸は平衡圧を示す。

されるように TiNi-H₂ の平衡圧-成分曲線は D₂ と H₂ とで大きく異っている。したがって混合ガスを TiNi に吸収させると，ガス相に D₂ が富化されることになる。この富化反応を数回繰り返すことによって H₂-D₂ の分離が可能となる。

我が国において市販されている高純度水素精製装置の性能仕様の一例を表3に示す。

表3 TiMn_{1.5} 水素化物を用いた高純度水素精製装置の性能⁸⁾

項 目	仕 様
精 製 方 法	金属水素化物法
金属水素化物	TiMn _{1.5} (0.88Kg×2)
精 製 能 力	5ℓ/分 (連続)
精 製 純 度	99.9999%以上
精製ガス圧力	0~10Kg/cm ²
原料ガス	市販ボンベ水素ガス(99.9%)
消費電力	50VA
寸 法	600(W)×500(D)×700(H)

この他、高圧ガス工業KKやKK鈴木商館などにおいても小型軽量で持ち運びのできる超高純度水素発生装置の市販を行っている。これらの発生装置は金属水素化物から水素を放出させると、吸熱反応のため温度が低下し、放出圧力が低下する。一定圧力を保持するようにヒーターで加熱される機構になっている。得られた超高純度水素ガスは、化学分析用標準ガス、有機合成用やエレクトロニクスなどの研究用として広く利用できると思われる。

2・3 静的圧縮機

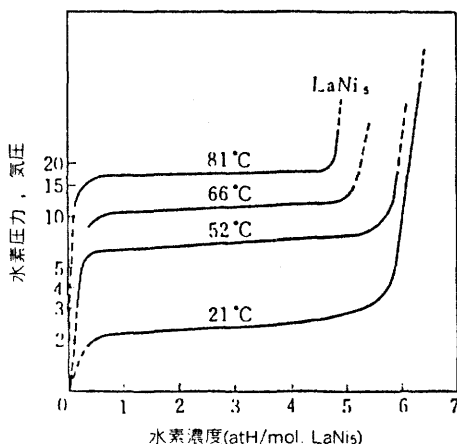


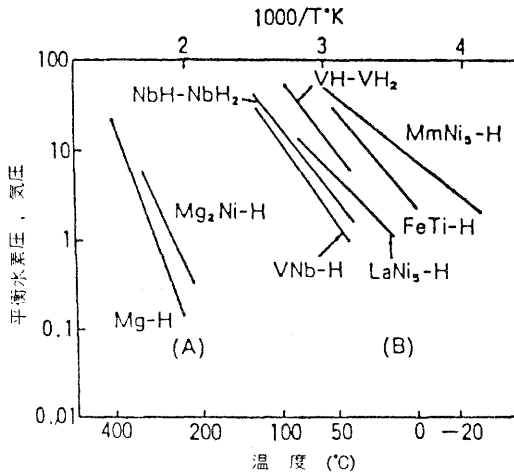
図5 LaNi₅-H₂ 平衡等温曲線⁹⁾

図5にLaNi₅-H₂系平衡等温曲線を示した。⁹⁾ 21℃においてLaNi₅は、水素ガスと平衡し、ガス圧の上昇に伴ってLaNi₅H₆近傍まで水素を貯蔵する。平衡圧が一定になる部分をプラトーと呼ぶが、このプラトー圧が一定になっている部分に対応するLaNi₅H₃水素化物を可及的速やかに81℃まで加温すると、平衡水素ガス圧は20気圧近傍まで上昇する。

このように機械力を用いずに、温度変化による平衡水素圧の急変を利用して高圧ガスを製造できる。

このような高圧水素ガスの製法を金属水素化物化学圧縮 (Hydride Chemical Compression) または静的圧縮 (Static Compression) と呼んでいる。

平衡水素圧と温度との間には van't Hoff の関係式が成立し、種々の水素貯蔵用合金の平衡水素圧の温度依存性⁴⁾ は図6のようになる。



Mm: ミツシュメタル (Laとしての混合体で微量のFeを含む)

図6 種々の水素貯蔵用合金の平衡水素圧の温度依存性⁴⁾

LaNi₅ が多量の水素ガスを急速に吸収・放出し、プラトー域の広いことに着目した van Marle は、上述の原理に基づいて 1974 年に静的圧縮機¹⁰⁾を、1978 年には 4 気圧の水素を 45 気圧に昇圧させることに成功した。¹¹⁾ また得られた高圧水素ガスは、断熱膨張によるジュールトムソン効果によって冷却され、液体水素の製造に利用された。

静的圧縮機的设计製作は、MPD テクノロジー社、昭和電工KK、工業技術院・化技研や大工試などで実施され、すでに 1982 年開催された金属水素化物に関する国際シンポジウム (鳥羽) において実証装置の展示がなされた。

2・4 触媒

遷移金属である Ni, Fe, Co などの水素添加触媒としての役割は良く知られているが、金属水素化物の触媒機能については比較的近年話題となってきた。

2・4・1 オレフィン・ジエン類の水素化反応

水素貯蔵用合金中の水素は原子状であるので、この水素を水素化反応に利用する。

LaNi₅H_n や SmCo₅H_n などを触媒としたエチレンやブタジエンの気相水素反応¹²⁾ や スチレンやアクリルニトリルの液相水素化反応¹³⁾ がある。いずれの反応においても高い

活性が認められ、水素貯蔵用合金中の水素濃度に比例して収率が增大したと報告されている。¹²⁾ 水素濃度に比例して合金の格子常数が増大し、合金表面へのエチレンの吸着、水素の解離吸着が促進され触媒活性が向上すると理解されている。

2・4・2 一酸化炭素の水素化反応

金属水素化物を触媒とすると200℃以上でCOのメタン化反応が好収率で進行する。^{14~15)}

上述した触媒作用以外にも希土類系水素貯蔵用合金のアンモニア合成触媒,¹⁶⁾ LaNi₅やLaNi₄Mnを用いるエタンの水素化反応¹⁵⁾や骨格異性化反応¹⁷⁾に寄与する触媒がある。

2・5 熱エネルギーの貯蔵と輸送

前章で述べたように水素貯蔵用合金(=M)は水素ガスと反応して金属化物(=MHn)を形成し、その際熱(=Q)を発生する。

化学反応式の様式で表示すれば

$$M + \frac{n}{2} H_2 \rightleftharpoons MHn + Q$$
となる。したがって右辺に外部から熱を与えると反応は左辺に進行して金属水素化物(=MHn)は水素貯蔵用合金(=M)と水素ガス(=H₂)に分解する。換言すれば外部熱は化学反応によってMとH₂とに姿をかえて蓄熱されたことになる。しかもこの蓄熱エネルギーは、反応生成物のMとH₂とが経時ロスを起こさないかぎり、長期間の貯蔵が容易である。

上述の化学反応は可逆性に優れ、反応速度も大きいので蓄熱に用いられる。蓄熱された外部熱は、必要に応じて上記の反応式を左辺から右辺に進めて発熱させ、再び熱エネルギーとして外部に供給することができる。

蓄熱される外部熱としては、太陽熱や工場排熱のような200℃以下の低質熱が金属水素化物による蓄熱過程や熱回収に際には熱源として考えられている。換言すれば金属水素化物を利用した排熱回収は、現在工場排熱のうち低温で再利用が不可能だと考えられている200℃以下のものにも有効であって、環境熱汚染の防止に役立つものと予測されている。

蓄熱される熱エネルギー総量は、前述の化学式からも明かなように金属水素化物の総量に比例する。したがって蓄熱容量の大型化は金属水素化物の多量使用を導き、水素貯蔵用合金の低コスト化が切に望まれる。

一方金属水素化物の発熱及び逆反応時の吸熱を組合せて、これらの反応を連続(サイクル)化すれば、熱を金属水素化物を媒体として輸送することが可能で、ケミカルヒートポンプの一種といえることができる。金属水素化物を利用したヒートポンプは吸収式冷凍機と同類で、熱源駆動式で冷房サイクルと暖房サイクルの運転が可能で、その作動原理を図7によって説明する。なお本図の直線AD及びBCは金属水素化物M₁H及びM₂Hの平衡水素圧-温度(絶対温度の逆数)関係線である。

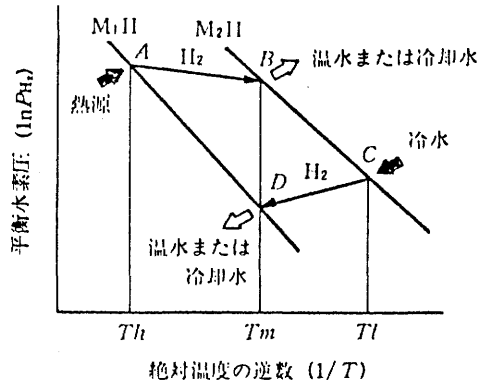


図7 金属水素化物対によるヒートポンプ冷房サイクル原理図

金属水素化物ヒートポンプは、平衡水素圧が異なる二種の金属水素化物 M_1H と M_2H とで構成される。図7に示されるように M_1H を T_m から T_h に外部熱源によって加熱すると、 M_1H より水素が放出される（点A）。放出された水素は T_m に保持されている M_2H に吸収させ、発生した熱は冷却水また冷気（大気）中に廃棄する（点B）。次に M_1H を T_m に、 M_2H を T_l にすると、 M_2H の平衡水素圧は M_1H より高いので、 M_2H は吸収していた水素を放出して冷却される（C点）。一方 M_2H から放出された水素は M_1H に吸収される（D点）。

以上のようなサイクルで水素は $A \rightarrow B \rightarrow C \rightarrow D \rightarrow A$ と移動して、 T_h の熱源によって温度 T_l の冷熱を取得することができる。

上述のサイクルでは冷熱を非連続に取り出すことはできたが、連続化させるためには2組以上の金属水素化物対を用いてヒートポンプを構成させ、各組のサイクルをずらして運転す

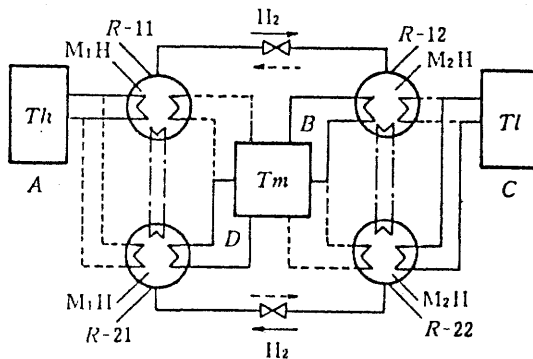


図8 2組の金属水素化物対による連続化ヒートポンプ原理図

ればよい。図8に2組の金属水素化物対で構成されたヒートポンプの概念図を示した。熱交

換器R-11とR-21には金属水素化物 M_1H が、R-12とR-22には M_2H が封入され、図7に示された作動原理にしたがって駆動される。

ヒートポンプの熱的効率¹⁸⁾などについては、すでに多くの報告がなされており、作動温度の設計範囲が従来型のヒートポンプよりも広く期待されている。¹⁹⁾

2・6 電 極

酸素-水素燃料電池など水素を活性物質として用いる電池には多種多様あるが、水素(陰極活性物質)を還元剤として作用させることになる。水素貯蔵用合金を電池へ利用するときの役割で特徴あるものは、合金それ自身を水素電極として使用してその表面で電極反応を進行させる場合である。単に燃料電池に供給する水素源として水素貯蔵用合金を用いる場合の技術開発は2・1や2・2で記述されたものと異なることはない。

水素を陰極活性物質として用いる燃料電池では多孔性のガス拡散電極を使用する。電極に触媒を付与し、細孔を有する電極表面の固相、液相及び気相共存領域で電極反応が進行する。この多孔性電極の性能劣化は、細孔中が電解液や極反応生成物である水によって濡れた場合に起り、3相共存活性点の減少に基づくと考えられている。したがって電極自身に水素貯蔵用合金を利用すれば従来の多孔性電極と異なった特性をもつ電池を構成できることになる。

しかし電極に用いられる水素貯蔵用合金には、2・1や2・2で記述した水素ガスの貯蔵・輸送を目的とする場合よりは一段と厳しい次のような性能が求められることになる。

(a) 電解液中における化学的安定性

水素貯蔵量が大きいことは必要であるが、電解液中で長時間安定であること。

(b) 反応過程において機械的安定性

水素貯蔵・放出の繰り返し後、貯蔵量が低下せず、広い温度領域において放電容量が変化しないこと。

(c) 電極反応過電圧が小さい。

分極を少なくするため触媒を付与するが、電極自身の抵抗分極を小さくすること。

表4にTi-Ni系合金を電極とした場合の電気化学的放電容量の一例を示す。

表4 電極合金成分と放電容量²⁰⁾

電極合金成分	理論値 (mAh/g)	実験値 (mAh/g)
Ti ₂ NiH _{0.5}	85	} 170(max)
Ti ₂ NiH	170	
Ti ₂ NiH ₂	340	
Ti ₂ NiH _{2.5}	430	
TiNiH	250	210~250

上述の他に水素透過電極としての用途なども多いが、いずれも材料の水電解質溶液に対しての安定性向上が求められている。

2・7 その他の用途

図1に示された金属水素化物の用途の大半については既述された。中性子減速への応用には原子力関係文献²¹⁾を参照し、また微粉末の製造については古くからの技術で真空管用ゲッター-金属粉末の製造法として良く知られているので割愛したい。

3. 将来展望

水素エネルギー時代の到来を予測して、水素エネルギー、水素システム機器及び水素貯蔵用合金（金属水素化物）に関する研究集会が近年盛んに開催されている。1984/85年には表5のような関連国際研究集会が実施または計画されている。これらの研究集会の度に、新しい水素貯蔵用合金が提案されている。例えば1984年4月イスラエルで開催された第Ⅳ回“金属水素化物の物性と応用に関するシンポジウム”において発表された新しいタイプの合金や金属水素化物には次のようなものがある。

α -ZrO_{0.4}, α -TiO_{0.4}, TiNi₂, Pd₇Ce, Ta, YH_{0.15}, Pd₃P_{1-x}, Hf₂Fe, LaCo₅, ZrV₂, PrCo₅, Ti₄Fe₂, Ca_xEu_{1-x}Ni₅, ZrMn₂, Mg₂Co, ZrMn₂D₃, Y₆Mn₂₃, VD_{0.71~0.78}, Mg₂Fe, Zr₃Ru, EuFe₂, HfV₂, Ca₂RuH₆, ANiAl (A=Zr, Y, U), MmNi_{4.15}Fe_{0.85},
今後とも国際研究集会の度ごとに新しいタイプの合金が提案されるであろう。

表5 1984/85の関連国際研究集会開催日程

- (1) Int. Symp, on the Properties and Applications of Metal Hydrides IV, Prof. D. Shaltiel, Racah Inst. of Phys., Hebrew Univ., Jerusalem, Israel 91904 9/13 Apr. 1984.
- (2) Fifth World Hydrogen Energy Conf., Conf. Services, Nat. Res. Council of Canada, Ottawa, Canada K1A0R6 15/20 July 1984.
- (3) Nineteenth Intersociety Energy Conv. Eng. Conf. Dr. Glen Graves, M/S 102, Los Alamos Scientific Lab., P. O. Box 1663, Los Alamos, NM 87545 U.S.A. 19/24 Aug. 1984.
- (4) Int. Symp. on Hydrogen in Metals, Dr.F.A.Lewis, Chem. Dept., David Keir Building, The Queen's Univ. of Belfast, Belfast BT95AG, Northern Ireland 26/29 Mar. 1985.
- (5) Twentieth Intersociety Energy Conf., Mr. F. A. Wyczalek, GM Corp. GM Technical Center, Eng. Staff Div., Warren MI 48090 U. S. A. 18/23 Aug. 1985.

水素エネルギー時代の到来を予測して既述のようにシステム機器の開発や金属水素化物の研究が進められていることは有意義であることは当然であるが、水素ガスの製造やコストの未来予測はどのような状況であろうか？

水素の新製造法として、所謂熱化学法、本多-藤島効果を利用した光化学法や藻類を利用した新しい技術開発などが推進されている。一方我が国においては以下に述べるような既存技術によって水素ガスの供給が大巾に増大することが予測されている。

現在我が国の水素生産総量は約180億Nm³/年といわれ、その大部分は石油精製工場や化学工場内の自家生産・自家消費であり、外販水素は約1億Nm³/年といわれている。製鉄業界が近い将来水素生産者としての役割をはたすようになると予測されている。現在製鉄工場の一部廃棄されているコークス炉ガス(=Cガス)、高炉ガス(=Bガス)や転炉ガス(=LDガス)から水素を分離精製して外販する見通しにある。製鉄ガス総合利用委員会(通産省諮問機関)の中間報告書によれば、58年度に発生したCガス(主成分H₂ 56%, CH₄ 28%)のみでも116億Nm³に達し単純計算された水素量は85億Nm³/年となり、現在外販されている水素量の85倍に達する。

これらの水素が、いますぐ外販されるわけではないが、水素ガスの大量精製分離技術の確立が求められており、近い将来水素ガスの価格は低落傾向になるであろう。このような状況を想定すると水素エネルギーシステムまたは金属水素化物を利用したシステムの飛躍的進歩が期待できる気運にあることは否定できない。

金属水素化物を利用したシステムの実用化のため越えるべき幾多の難題があるが、これらの解決のため、機械、電気、化学、金属などの広い範囲にわたっての研究者や技術者の一層の協力が強く要請されている。

文 献

- 1) 例えば、太田時男：“水素エネルギー”，講談社新書(1975)
小野修一郎，大角泰章：セラミックス，14，P.339(1979)
須田精二郎：化学工学協会誌，46，P.358(1982)
佐々木靖男，平田俊也：材料，32，P.1069(1984)
- 2) 天野宗幸：ガストピア，16，8，P.62(1982)
- 3) C. Isting：Experience with a Hydrogen Pipeline Network, Chem. Werke Huls AG.(CWH), FRG., (1974)
- 4) P. Jonville, H. Stöhr, R. Fink and M. Kornmann：Hydrogen Energy Plenum Press (1975), P. 765
- 5) P.P. Turillon：Hydrogen Energy Progress, Pergamon Press (1982), Vol 3,

P. 1289

- 6) G.D. Sandroock and P.D. Goode11 : J. Less-Common Metals, **73** (1980) 161
- 7) H. Buchner : Int. J. Hydrogen Energy, **3** (1978) 385
- 8) 蒲生, 森脇, 柳原, 岩城 : Nat. Tech. Repts., **29** (1983) ㉞1, PP 78~92
- 9) ユゴ・アントン・クリスチャン 他3名 : 日本特許49-34315
- 10) H.H. Van Mal : Proc. THEME., S4-2(1974)
- 11) H.H. Van Mal and A.R. Miedema : Proc. Int. Symp. Hydride for Energy Storage, (1978) 251
- 12) 曾我 and 雄, 今村速夫, 池田 次 : 日化, (1977) 1304
- 13) K. Soga, H. Imamura and S. Ikeda : Chem. Letters, (1978) 1387;
J. Phys. Chem., **81** (1977) 1762
- 14) V.T. Coon, T. Takeshita, W.E. Wallace and R.S. Craig : J. Phys. Chem., **80**
(1976) 1878
- 15) J. Barrault, D. Duprez, A. Percheron - Guegan and J.C. Archard : J. Less -
Common Metals, **89** (1983) 537
- 16) T. Takeshita, W.E. Wallace and R.S. Craig : J. Catal., **44** (1977) 236
- 17) H. Imamura, Y. Kato, K. Fukuda and S. Tsuchiya : J. Less - Common
Metals, **94** (1983) 111
- 18) D.M. Gruen, M.H. Mendelsohn and I. Sheat : Sol. Energy, **21** (1978) 153
- 19) 日本冷凍協会 : 吸収冷凍機とその応用 (昭和47年) PP. 26~40
- 20) M. A. Gutjahr, H. Buchner, K. D. Beccu and H. Saufferer : Int. Power Sources
Conf., Brighton Paper ㉞6 (1972)
- 21) 例えば, トリチウムの化学, 研究専門委員会編; 日本原子力学会刊 (1982)