

Ortho-para 수소변환장치의 설계 및 성능평가

백종훈, 강병하

KIST, 열유동제어연구센터

Design and performance evaluation of ortho-para H₂ conversion equipment

J. H. Baik and B. H. Kang

Thermal/Flow Control Research Center, KIST

Abstract

The ortho-para H₂ catalytic conversion equipment has been developed to reduce the evaporation loss from stored liquid hydrogen. The ortho-para H₂ conversion heat is evaluated at liquid nitrogen temperature. This problem is of particular interest in the design of the ortho-para H₂ converter in a hydrogen liquefaction system. The ortho-para H₂ conversion equipment consists of a catalytic converter, a precooler, and a liquid nitrogen bath. 30-90 cc of Fe(OH)₃ are employed as a catalyst in the present converter. The conversion heat and conversion effectiveness are evaluated when mass flow rate of hydrogen is in the range of 0.05-1.6 g/min. It is found that the ortho-para conversion heat is increased while conversion effectiveness is decreased as the mass flow rate of hydrogen is increased. Both the ortho-para conversion heat and conversion effectiveness are increased with an increase in the amount of the catalyst.

1. 서론

수소를 액화하여 장기간 저장함으로써, 연료로 이용시 부피를 최소화하고 저장용기의 무게를 포함한 단위질량당 저장에너지를 극대화하려는 노력이 국내외에서 진행되고 있다. 극저온공학의 한 응용분야로 분류될 수 있는 수소액화 및 저장기술은 다른 극저온 냉매의 액화 및 저장기술이 공히 적용될 수 있으나, 특이할 만한 수소의 열역학적 성질로 인하여 좀 더 복잡한 형태의 액화 및 저장기술이 요구된다. 수소는 이원자분자로 원자의 회전방향에 따라 두 가지 형태인 ortho-수소와 para-수소가 존재한다. Fig. 1 과 같이 ortho-수소는 두 원자의 회전방향이 서로 같고, para-수소는 서로 반대방향을 갖고 있으며, ortho-수소와 para-수소가 같은 온도와 압력하에 존재할 경우 para-수소가 더 작은 에너지를 갖는다.

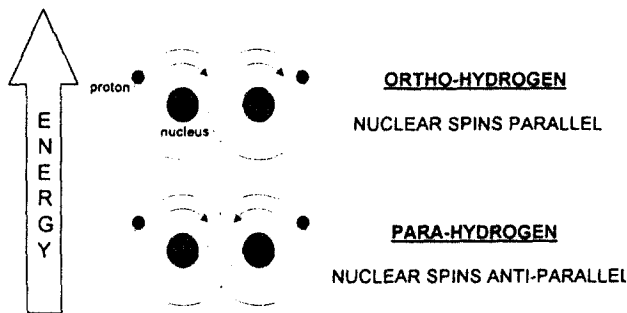


Fig. 1 Ortho-H₂ and para-H₂

이 두 종류의 수소는 상온(300K)에서는 ortho-수소와 para-수소의 비율이 질량비로 각각 75 : 25의 비(normal-수소)로 평형을 이루고 있으나, 액체수소의 비등점인 20K에서는 약 0.2 : 99.8의 비로 평형을 이루고 있어, 액화온도에서 대부분의 수소는 para-수소상태로 평형을 이룬다¹⁾. 이러한 이유로 수소액화시 상온으로부터 온도가 감소함에

따라 ortho-수소는 para-수소로 평형을 이루기 위하여 자발적으로 매우 느리게 변환되며, 동시에 ortho-수소와 para-수소의 에너지차이에 상당하는 변환열(conversion heat)이 발생된다. 이때 발생하는 변환열은 액체수소의 증발잠열(448 J/g @ 20 K)보다 크므로 액체상태로 저장되어 있는 수소를 증발시키게 된다¹⁾. 따라서 수소액화과정에서는 온도가 감소함에 따라 감소된 온도의 평형조성상태로 ortho-수소를 급속히 para-수소로 변환시키는 소위 ortho-para 수소변환장치가 추가적으로 필요하게 되며, 이러한 장치를 통하여 최종적으로 액화된 수소는 대부분의 조성이 para-수소의 형태를 갖게 된다. ortho-수소를 para-수소로 변환시키는 데는 촉매를 사용하는 것이 일반적이며, 현재까지 알려진 촉매 중 Fe(OH)₃가 가장 변환효과가 우수한 것으로 알려져 있다¹⁾.

일반적으로 ortho-para 수소변환을 수행하여 변환효율 및 변환된 para-수소의 질량분율(mass fraction)을 계산하는 방법에는 크게 단열변환방법과 등온변환방법이 있다. 여기서 변환효율(conversion effectiveness)이란 주어진 온도와 압력에서 이론적으로 변환가능한 최대변환량에 대한 실제 변환량이며, 이 변환량은 변환전, 후의 온도변화량, 변환열 등 실험방법에 따라 각각 기준이 다르다. 단열변환을 통한 para-수소의 질량분율을 계산하는 방법은 촉매를 이용하여 ortho-para 수소변환을 단열된 상태로 진행시킨 후, 변환 전의 수소온도와 변환 후의 수소온도를 측정하여 온도차로부터 질량분율을 환산하는 방법이다. 최근 Clausen 등²⁾은 액체질소 용기내에서 normal-수소와 para-수소의 단열변환과정을 수행하여 변환과정 전과 후의 수소온도를 측정함으로써 para-수소의 질량분율을 계산한 연구결과를 발표하였다. 반면 등온변환을 통한 para-수소의 질량분율을 계산하는 방법은 등온상태

를 유지하면서 촉매를 이용하여 ortho-para 수소변환을 진행시킨 후, 변환시 발생하는 변환열을 측정하고 이를 통하여 열역학적인 물성들과 관계식을 이용하여 para-수소의 질량분율을 계산하는 방법이다^{1),3)}. 이때 등온상태를 유지하기 위해서는 간단히 액체질소를 채운 용기 내에 변환장치를 담그면 되므로, 실제로 단일변환과정을 실현하는 것보다 훨씬 간단하다. 본 연구에서는 등온촉매 변환과정을 통하여 ortho-para 수소변환을 수행하고, 실제 발생하는 변환열을 측정하여 이론적인 변환열과 비교함으로써, 변환효율 및 para-수소의 질량분율을 측정하는 방법을 사용하였다.

본 연구에서는 Fe(OH)₃를 ortho-para 수소 변환용 촉매로 사용하고, 기존의 ortho-para 수소변환장치를 보완하여 변환열을 보다 정밀한 측정이 가능하도록 설계, 제작하여 para-수소의 질량분율을 정확히 계산하고자 하였다. 저온환경 중에서 비교적 구현하기 쉬운 액체질소온도에서 등온촉매변환을 수행하여 ortho-para 수소변환성능을 평가하고 normal-수소의 유량과 촉매사용량이 변환성능에 미치는 영향을 고찰함으로써, 수소 액화 및 저장시 필요한 ortho-para 수소변환장치의 설계자료를 도출하고자 하였다.

2. Ortho-para 변환후의 para-수소의 질량분율 해석

등온촉매변환과정을 통하여 정밀히 측정된 ortho-para 수소변환열은 열역학 관계식을 이용하여 변환효율 및 para-수소의 질량분율로 환산된다^{1),3)}. 일반적인 수소는 ortho-수소와 para-수소가 para-수소의 질량분율, x_n 와 ortho-수소의 질량분율, $1-x_n$ 의 비로 혼합되어 있는 혼합물이라 볼 수 있다. 따라서 이렇게 혼합된 수소의 열역학적 물성(내

부에너지, 엔탈피, 엔트로피 등)은 'Dalton의 분압법칙'으로 간단히 계산될 수 있다. 즉, 혼합물의 열역학적 물성은 각각의 성분이 혼합물내에서 존재할 때의 질량분율(또는 몰분율)만큼 전체압력을 나눠갖는 것으로 생각할 수 있으며, 이것이 분압(partial pressure)의 개념이다. 분압의 개념을 통하여 ortho-para 수소가 혼합되어 있는 경우의 물성은 혼합물의 온도와 분압으로부터 계산할 수 있으며, 본 실험에서 많이 사용되는 열역학적 물성인 엔탈피(enthalpy)의 경우는 다음과 같다.

Ortho-수소와 para-수소가 혼합되어 있는 경우의 엔탈피는 분압법칙을 이용하여 식(1)과 같이 쓸 수 있다.

$$h(P, T) = x h_p(P_x, T) + (1-x) h_o(P_{1-x}, T)$$

$$\text{where, } \begin{cases} x \equiv \frac{m_{para-H_2}}{m_{H_2}} \\ P_x \equiv xP \\ P_{1-x} \equiv (1-x)P \\ P : \text{total pressure} \end{cases} \dots \dots (1)$$

이때, x 는 임의의 para-수소의 질량분율이며 하첨자 o, p 는 각각 ortho-수소와 para-수소를 나타낸다. 상온에서의 평형상태에 도달한 normal-수소의 para-수소의 질량분율은 25%이다. 따라서 normal-수소의 엔탈피는 식(2)와 같이 구할 수 있다.

$$h_n(P, T) = x_n h_p(P_{x_n}, T) + (1-x_n) h_o(P_{1-x_n}, T)$$

$$\text{where, } \begin{cases} x_n \equiv \frac{1}{4} & (25\%) \\ 1-x_n \equiv \frac{3}{4} & (75\%) \end{cases} \dots \dots (2)$$

또한 임의의 para-수소 질량분율, x ,를 갖는 수소의 엔탈피는 식(3)과 같이 쓸 수 있다.

$$h_x(P, T) = x h_p(P_x, T) + (1-x) h_o(P_{1-x}, T) \dots \dots (3)$$

그러나 현재 보유하고 있는 전산화된 물성 계산프로그램⁴⁾은 ortho-수소의 물성을 계산할 수 없으므로 이러한 문제를 해결하기 위하여 엔탈피가 압력(분압)에 거의 영향을 받지 않는 점에 착안하여 normal-수소와 ortho-수소의 엔탈피를 같다고 가정하면 식(4)와 같이 쓸 수 있다.

$$h_o(P_{1-x}, T) \approx h_o(P_{1-x_n}, T) \dots \dots (4)$$

식(4)는 실제로 적절한 압력과 온도를 대입하여 계산한 결과 0.1 % 이내의 오차를 갖는 것으로 확인되었다. 그러나 엔트로피(entropy)의 경우는 분압의 영향이 작지 않기 때문에 혼합물의 엔트로피 계산은 엔탈피의 경우보다 복잡하다.

임의의 para-수소 질량분율을 갖는 수소의 엔탈피를 전산화된 물성프로그램으로 계산하기 위하여 식(2)를 식(5)와 같이 표현한 다음, 식(4)를 이용하여 식(3)에 대입하여 ortho-수소항을 소거하면, 일반적인 수소의 엔탈피를 전산화된 물성프로그램으로 계산할 수 있는 식(6)을 얻을 수 있다.

$$h_o(P_{1-x_n}) = \frac{h_n(P) - x_n h_p(P_{x_n})}{1 - x_n} \dots \dots (5)$$

$$h_x(P) = x h_p(P_x) + \frac{1-x}{1-x_n} [h_n(P) - x_n h_p(P_{x_n})] \dots \dots (6)$$

또한 측정된 변환열과 수소의 질량유량 및 온도, 압력 등의 열역학적인 물성을 통하여 임의의 para-수소 질량분율을 갖는 수소의 엔탈피를 알고 있으면, 그때의 para-수소 질량분율, x ,를 식(7)로부터 계산할 수 있다.

$$x = \frac{h_x(P) - \frac{h_n(P) - x_n h_p(P_{x_n})}{1 - x_n}}{h_p(P_x) - \frac{h_n(P) - x_n h_p(P_{x_n})}{1 - x_n}}$$

where, $h_x(P) = h_n(P) - \frac{Q_{\text{conversion heat}}}{m_{H_2}}$ \dots \dots (7)

이러한 방법을 통하여 본 연구에서 측정된 결과들은 모두 식(1)-식(7)을 이용하여 변환열, 변환효율, para-수소의 질량분율로 각각 계산되었다.

3. Ortho-para 수소변환 실험장치

단열축매변환에 의한 ortho-para 수소변환 방법은 최근 외국에서 수행된 연구결과²⁾가 발표되었으나, 실제로 이상적인 단열상태를 구현하기 어렵고, 정밀한 para-수소의 질량분율을 측정하기 위해서는 수소유량이 적은 범위에 한정된다는 단점이 있다. 반면 등온축매변환과정을 이용한 ortho-para 수소변환방법은 액체질소내에 변환장치를 담근 후, 변환장치의 온도가 정상상태에 도달한 뒤에 실험을 시작하며, 실험 중에도 등온상태를 유지할 수 있는 장점이 있고, 단열변환방법에 비하여 많은 수소유량범위에서도 실험이 가능하다.

따라서 본 연구에서는 등온축매변환과정을 이용한 ortho-para 수소변환장치에 대한 평가를 하기 위하여 Fig. 2와 같은 실험장치를

구성하였다. 실험장치는 수소저장탱크, 예냉기, ortho-para 수소변환장치, 진공조 및 온도와 질량유량 측정장비로 구성된다. 외부와 단열되어 있는 용기 내에 액체질소를 채운 후, 용기 내에 ortho-para 수소변환장치를 설치한 다음, 상온의 수소를 액체질소온도(약 78 K)로 유지되고 있는 예냉기를 통과시킨 후 단열용기내로 유입시키면, 이 용기 내에 채워진 액체질소는 ortho-para 수소변환시 발생하는 변환열에 의하여 증발하게 된다. 실제 실험에 사용된 단열용기는 외부와 단열이 상당히 잘 되어있는 액체헬륨 저장용기를 사용하였으나 완벽한 단열효과를 기대하기는 어려우므로 단열용기에 내재되어 있는 미량의 열유입에 의한 액체질소의 증발량을 측정하여 실험시 측정되는 전체 증발량에서 빼주어야 ortho-para 수소변환열로 인한 액체질소의 증발량만을 정밀히 측정할 수 있다. 이렇게 측정된 ortho-para 수소변환열에 의한 액체질소의 증발량을 전산화된 물성계산프로그램을 이용하여 변환열로 환산한다. 환산된 변환열을 변환 전, 후의 수소와 액체질소의 열역학적 상태량들을 측정하여 이론적으로 얻을 수 있는 변환열과 비교하여, 실험에 사용된 촉매량과 normal-수소량에 따른 ortho-para 수소변환장치의 변환효율 및 ortho-para 수소변환 후의 para-수소의 질량분율을 계산할 수 있다. 본 실험에서는 normal-수소(para-수소의 질량분율 25%)가 액체질소온도 부근에서의 평형조성(para-수소의 질량분율 약 50%)으로 변환되는 동안 발생하는 변환열을 측정하였다. 촉매변환열을 보다 정밀하게 측정하기 위하여 액체질소온도로 유지되는 예냉기를 ortho-para 변환장치와 최대한 근접하게 설치하므로써 등온조건을 최대한 유지하고자 하였으며, 고성능의 질량유량계를 사용하여 유량측정의 정밀도를 높이고자 하였다.

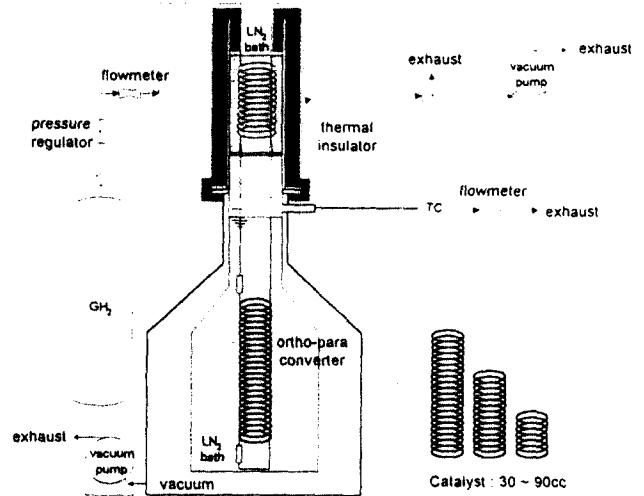


Fig. 2 Schematic diagram of the ortho-para conversion rate evaluation system

Ortho-para 수소변환장치는 1/4인치 동관 내에 촉매인 $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 를 채운 후, 촉매제조 회사(IONEX Co.)의 지침서에 따라 압력 1.36 atm, 온도 140 °C를 유지하며 16시간 이상 약 1.2 l/min의 normal-수소를 통과시켜 촉매내에 잔재하는 수분을 제거함으로써 충분히 활성화하여 사용하였다³⁾. 사용하는 촉매의 양을 30-90 cc로 변화시키고, 수소의 유량은 0.5-3 N l/min으로 변화시키면서 실험하여 사용하는 촉매량의 변화에 따른 변환열의 변화를 측정하였으며, 활성화된 촉매가 장착된 ortho-para 수소변환장치는 액체질소가 채워진 단열용기내에 충분히 잠기도록 설치하여 ortho-para 수소변환으로 인하여 발생하는 변환열이 모두 액체질소를 증발시키는데 사용될 수 있도록 하였다. 단열용기는 상용화되어 있는 액체헬륨 저장용기를 사용함으로써 단열용기 자체에 내재된 열손실량을 최소화하였다. 변환장치내로 유입되는 수소를 액체질소온도로 예냉하기 위한 예냉기는 SUS304를 이용하여 직경 70 mm, 높이 30 cm, 두께 1 mm의 원통

형으로 제작하고, 내부에 1/8인치 동관을 10 m 설치하여 변환장치내로 유입되기 전에 액체질소 온도에 충분히 도달할 수 있도록 하였다. 예냉기에는 실험 중 증발되는 액체질소를 지속적으로 보충하였으며, 액체질소의 사용량을 감소시키기 위하여 단열재를 이용하여 외부로부터의 열유입을 최대한 차단하였다. 유입되는 수소기체 및 증발되는 질소의 질량유량을 정밀히 측정하기 위하여 질량유량계(mass flow meter)를 사용하였으며, 질소의 유량측정시에는 질량유량계의 파손을 막기 위하여 상온까지 재가열한 후, 유량을 측정하였다. 유량이 측정된 기체는 대기로 배출하였다. 실험 전, 유로 내에 잔류하는 수소이외의 잔류기체들을 제거하기 위하여 고압의 고순도 수소기체로 가압하고 진공펌프로 배출시키는 퍼지(purge)과정을 2-3회 반복한 후 실험하였다. 실험이 진행되면 각각 수소와 질소의 압력 및 온도, 질량유량, 상온 등이 기록되며, 이를 전산화된 물성과 열역학 관계식을 이용하여 변환열, 변환효율, para-수소의 질량분율로 환산하였다.

4. 실험결과 및 토의

등온 촉매변환과정을 이용한 ortho-para 수소변환장치를 제작하여 성능평가를 수행함으로써 얻어질 수 있는 결과는 다음과 같다. 첫째, 촉매량의 변화에 따른 ortho-para 수소변환열을 수소유량을 변화시키면서 측정함으로써 액체질소온도에서 평형상태로 변환시킬 수 있는 최대 한계 수소유량을 얻을 수 있다. 이는 수소액화시스템 설계시 공간의 제약으로 촉매의 사용량이 제한된 경우 적절히 이용할 수 있는 설계자료가 될 수 있다. 둘째, 위의 경우와는 반대로, 작동유체인 수소의 유량이 결정되어있는 경우

충분히 ortho-para 수소변환을 시킬 수 있는 촉매의 사용량을 결정할 수 있다. 셋째, 위의 결과로부터 얻어진 변환열의 크기를 예측함으로써 수소액화시스템에서 요구되는 냉동용량을 결정하는데 중요한 설계자료를 제시할 수 있다. 이러한 설계결과의 도출을 목적으로 수 회의 기본실험을 수행한 결과, 이론적인 변환효율을 얻을 수 있는 범위를 경험적으로 얻어내었으며 활성화된 촉매 $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 30-90 cc를 사용하는 것이 적절한 것으로 판단되었다. 이에 따라 본 실험에서는 ortho-para 수소변환장치내에 촉매를 각각 30, 60, 90 cc를 장착하여 각 경우에 대하여 normal-수소의 유량을 변화시키면서 액체질소의 증발량을 측정하였다. 수행된 수소유량의 범위는 보다 정밀한 질량유량의 측정을 위하여 소유량범위에서 수행하였으며, 이때 체적유량은 0.5-3 Nℓ/min, 이에 밀도를 곱한 질량유량은 약 0.05-1.6 g/min로 측정되었다. 결과를 도시한 Fig. 3 - Fig. 5는 체적유량과 압력의 영향이 모두 포함된 보다 물리적인 의미가 있는 질량유량의 함수로 나타내었다.

Fig. 3은 ortho-para 수소변환장치내에 촉매를 30-90 cc로 변화시켰을 때, 수소의 질량유량 변화에 따른 ortho-para 수소변환열을 나타낸 것이다. 3가지 경우 모두 주어진 촉매사용량에 대하여, 수소의 질량유량이 증가함에 따라 ortho-para 수소변환열은 증가함을 알 수 있다.

또한 주어진 수소의 질량유량에 대하여 촉매의 사용량이 증가함에 따라 변환열은 증가한다. 이러한 경향은 normal-수소가 충분히 평형상태에 도달하지 못할 경우에 발생될 수 있는 결과이다. 즉 평형상태에 도달할 만큼 충분한 촉매가 사용되었다면 동일한 수소의 질량유량에 대하여 모두 동일한 변환열이 발생되어야 하기 때문이다.

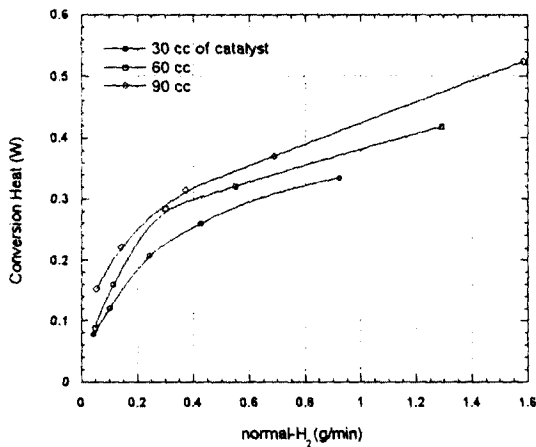


Fig. 3 Effects of mass flow rate of normal-H₂ on the ortho-para conversion heat for various amounts of catalyst

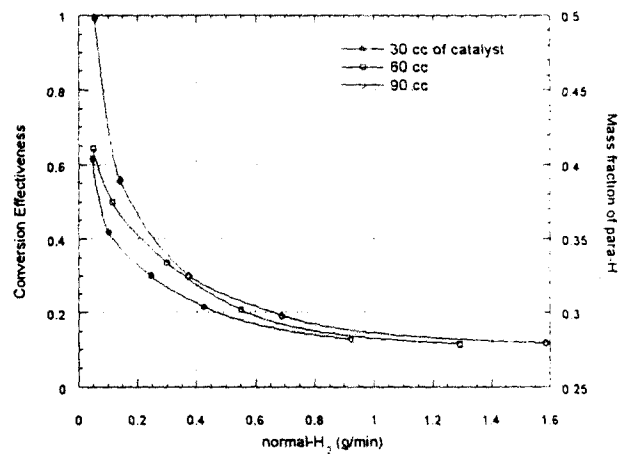


Fig. 4 Effects of mass flow rate of normal-H₂ on the conversion effectiveness and mass fraction of para-H₂

측정된 ortho-para 수소변환열의 경향으로 보아 대부분의 경우 평형상태에 도달하지 못하였다면, 과연 이상적인 변환과정을 수행하여 평형에 도달했을 때의 변환열과 비교할 때 어느 정도의 변환이 수행되었는가를 알아보기 위하여, 동일한 온도와 압력조건에서 평형에 도달했을 때의 열역학적 물성들을 이용하여 이론적인 변환열을 계산하여 비교한 결과를 Fig. 4에 나타내었다. 좌측 값은 수소의 질량유량 변화에 따른 변환효율(conversion effectiveness : 이론적인 변환열에 대한 실제 변환열의 비)이며, 우측 값은 식(7)로부터 얻어진 para-수소의 질량분율이다. 90 cc의 촉매가 사용된 경우, 수소의 질량유량이 0.055 g/min일 때 변환효율은 99.5 %를 얻었으며, 이때의 para-수소의 질량분율은 실험시 측정된 액체질소온도 (78.2 K)에서의 평형조성(para-수소 질량분율 49.88 %)보다 약간 작은 약 49.76 %를 얻었다.

촉매사용량 30, 60, 90 cc의 경우 모두 수소의 질량유량이 증가함에 따라 변환효율은 감소하는 경향을 보이고 있으며, 촉매의 사용량이 증가함에 따라 이론적인 변환열과의 차이는 감소함을 보이고 있다. 우측의 para-수소의 질량분율 계산은 식(7)에서와 같이 변환열로부터 이루어지므로 좌측의 변환효율과 동일한 스케일로 보여지고 있다.

실제로 수소액화 및 저장시스템을 운용할 시에는 무한히 많은 촉매사용량과 수소질량유량과의 조합이 있을 수 있으므로, 본 실험의 결과를 적절한 설계자료로 이용하기 위해서는 Fig. 5와 같은 등변환효율곡선(iso-effectiveness line)이 사용하기에 용이하다. Fig. 5는 이론적인 변환성능에 가까운 결과를 얻을 수 있는 몇 가지의 수소질량유량 범위와 본 실험에 사용된 촉매량을 조합하여 동일한 변환효율을 얻을 수 있는 조건들을 연결한 것이다. 전체적으로 수소의 유량이 감소함에 따라, 사용되는 촉매의 양이 증가함에 따라 이론적인 변환효율인 1에 가

까워지는 것을 알 수 있다. 그러므로 이론적인 변환효율을 얻기 위해서는 촉매의 양이 주어진 경우, 가능한 소유향의 수소를 사용하여야 하며, 수소의 질량유량이 주어진 경우에는 충분한 양의 촉매를 사용하여야 함을 알 수 있다.

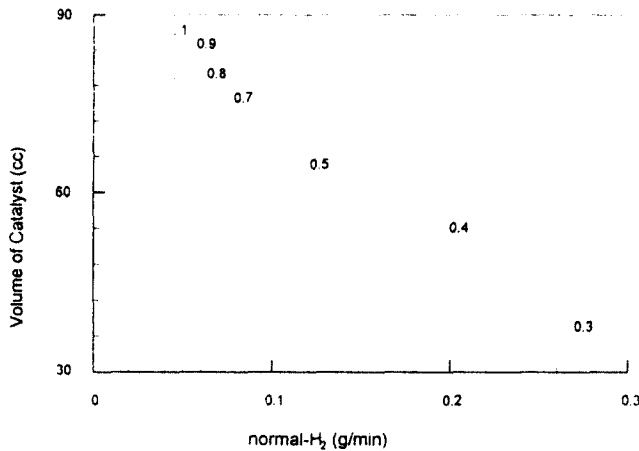


Fig. 5 Iso-effectiveness line in the region of low mass flow rate

5. 결론

본 연구에서는 액화된 수소의 증발손실을 감소시키기 위하여 Fe(OH)₃를 ortho-para 수소변환용 촉매로 사용하는 등 온촉매변환장치를 설계, 제작하고 성능평가를 수행하였다. Ortho-para 수소변환용 촉매의 양이 각각 30, 60, 90 cc인 경우에 대하여, Normal-수소의 질량유량을 0.05-1.6 g/min로 변화시키면서 ortho-para 수소변환 과정에서 발생하는 변환열을 측정하였다. 측정된 변환열을 열역학 관계식을 이용하여 변환효율 및 para-수소의 질량분율로 환산하였다. 실험 결과, 수소의 질량유량이 증가함에 따라 변환열은 증가하였으나 변환효율은 감소하였다. 촉매의 사용량이 증가함에

따라 변환열, 변환효율 및 para-수소의 질량분율은 증가하였다. 90 cc의 촉매를 사용한 경우 99.5 %의 변환효율과 49.76 %의 para-수소 질량분율을 얻었다. 본 연구결과를 적절히 이용하면 장기간의 액체수소 저장을 위한 para-수소의 질량분율과 필요한 촉매사용량을 결정할 수 있다.

후 기

본 연구는 산업자원부 대체에너지 개발사업의 일환으로 수행된 결과이며, 상기 기관의 사업비 지원에 감사드립니다.

참고문헌

- 1) K. D. Timmerhaus and T. M. Flynn, *Cryogenic Process Engineering*, Plenum Press, New York and London, U.S.A.(1989).
- 2) J. Clausen, A. Hofmann, M. Wanner, "Novel method for measurement of the para-content of a hydrogen stream," ICEC/CEC-1995 Proceedings, Columbus, OH, U.S.A(1995).
- 3) 노승탁 역, *공업열역학*, 회중당, pp 424-434(1989)
- 4) D. G. Friend, "NIST Thermophysical Properties of Pure Fluids," Version 3.0, NIST Standard Reference Database 12, U. S. Dep. of Commerce, NIST, U.S.A.(1992).
- 5) IONEX Research Corporation, Technical Report : Fe(OH)₃, U.S.A.(1997).