Taylor 法による気体の相互拡散係数の測定*

(第5報, CO₂-空気系, CO₂-N₂系, CO₂-O₂系, CH₄-空気系, CH₄-N₂系,
CH₄-O₂系, N₂O-空気系, N₂O-N₂系および N₂O-O₂系の測定)

松永直樹^{*1}, 堀守雄^{*1}, 長島昭^{*2}

Measurements of the Mutual Diffusion Coefficients of Gases by the Taylor Method

(5th Report, Measurements on the CO₂-air, CO₂-N₂, CO₂-O₂, CH₄-air,
CH₄-N₂, CH₄-O₂, N₂O-air, N₂O-N₂ and N₂O-O₂ Systems)

Naoki MATSUNAGA, Morio HORI and Akira NAGASHIMA

The mutual diffusion coefficients of three global warming gases (CO₂, CH₄ and N₂O) into air and its component gases (N₂ and O₂) have been measured in the temperature range 0~180°C and at atmospheric pressure by the use of the Taylor dispersion method. The mutual diffusion coefficients do not vary in practice on substituting pure N₂ or O₂ for air. The mutual diffusion coefficients for CO₂ and N₂O, which have almost the same molecular weight, agree with each other within the experimental uncertainty (±2%) and are smaller than that for CH₄. The present results can be reproduced well by the functional form $D=AT^B$, where D is the mutual diffusion coefficient at 1 atm (101 325 Pa) in m²/s and T is the absolute temperature in K. The constants A and B are as follows: CO₂-(air, N₂, O₂), $A=5.75\times10^{-10}$, $B=1.81$; CH₄-(air, N₂, O₂), $A=7.04\times10^{-10}$, $B=1.83$; N₂O-(air, N₂, O₂), $A=5.34\times10^{-10}$, $B=1.82$.

Key Words: Thermophysical Property, Diffusion, Taylor Dispersion, Global Warming Gas, CO₂, CH₄, N₂O, Air, N₂, O₂

1. はじめに

大気中の CO₂ および他の赤外線吸収ガスの濃度増加による地球温暖化は, 現在の最も重大な環境問題の一つである。地球温暖化ガスの拡散係数の信頼できるデータは, 温室効果の大きさを推定するために必要と考えられる。

本研究では, Taylor 分散法を用いて, 3 種類の地球温暖化ガス, すなわち CO₂, CH₄ および N₂O の, 乾燥空気とその成分ガス (N₂ および O₂) に対する相互拡散係数を温度範囲 0~180°C, 大気圧下で測定した。測定結果から相互拡散係数と温度の相関式を作成し, 測定結果と過去の測定例の比較も行った。

おもな記号

D : 相互拡散係数

T : 絶対温度

θ : セルシウス温度

2. 測定方法および測定装置

Taylor 分散法による相互拡散係数の測定方法と測定装置の詳細についてはすでに報告している⁽¹⁾⁽²⁾。したがって, ここではその概要を述べるにとどめる。

測定装置は, ヤナコ G-2800-T-TCD 形ガスクロマトグラフの改造形を中心に構成されている。通常のガスクロマトグラフのカラムの代わりに取付けられたステンレス製の中空円管(拡散管)の中に, 測定気体の一方をキャリアガスとして一定流速の層流状態で流しておく。ここへ他方の測定気体(トレーサ)を微量注入する。トレーサはキャリアガスの半径方向の速度分布とキャリアガス・トレーサ間の分子拡散によって管軸方向へ分散する(これを Taylor 分散という)。トレーサ濃度の時間的变化は, 熱伝導率式濃度検出器(TCD)によって拡散管出口で測定され, これからキャリアガス・トレーサ間の相互拡散係数が求められる。

79.4 vol% の N₂ と 20.6 vol% の O₂ の混合ガスを乾燥空気として用いた。N₂, O₂, CO₂ および N₂O の純度は 99.9% 以上である。CH₄ の純度は 99.0% で, 0.8% の CO₂ を含んでいる。CH₄ の測定では, 空気とその成分ガス (N₂ または O₂) をキャリアガスとして用いた。CO₂ および N₂O の測定では, 空気とその成分ガスをキ

* 原稿受付 1997 年 6 月 17 日。

*1 正員, 拓殖大学工学部 (☎ 193-8585 八王子市館町 815-1)。

*2 正員, 慶応義塾大学理工学部 (☎ 223-8522 横浜市港北区日吉 3-14-1)。

Table 1 Measured mutual diffusion coefficients

θ °C	D m ² /s								
	CO ₂ -air	CO ₂ -N ₂	CO ₂ -O ₂	CH ₄ -air	CH ₄ -N ₂	CH ₄ -O ₂	N ₂ O-air	N ₂ O-N ₂	N ₂ O-O ₂
0	$\times 10^{-4}$ 0.147	$\times 10^{-4}$ 0.148	$\times 10^{-4}$ 0.148	$\times 10^{-4}$ 0.201	$\times 10^{-4}$ 0.205	$\times 10^{-4}$ 0.203	$\times 10^{-4}$ 0.144	$\times 10^{-4}$ 0.144	$\times 10^{-4}$ 0.145
	0.146	0.146	0.150	0.202	0.206	0.206	0.144	0.144	0.146
30	0.180	0.177	0.180	0.242	0.242	0.245	0.175	0.173	0.175
	0.178	0.179	0.179	0.249	0.247	0.246	0.173	0.175	0.177
60				0.245	0.243			0.178	
				0.241	0.243				
90	0.213	0.214	0.214	0.287	0.287	0.295	0.206	0.210	0.208
	0.214	0.212	0.214	0.292	0.292	0.296	0.210	0.210	0.211
120				0.290	0.289	0.290		0.210	
				0.291	0.289				
150	0.246	0.243	0.251	0.347	0.342	0.343	0.244	0.244	0.244
	0.246	0.253	0.252	0.342	0.338	0.342	0.246	0.245	0.246
180		0.248		0.342					
120	0.285	0.286	0.292	0.391	0.397	0.400	0.284	0.284	0.284
	0.289	0.292	0.291	0.394	0.394	0.397	0.283	0.285	0.281
150						0.389			0.282
180	0.321	0.323	0.330	0.445	0.447	0.451	0.319	0.321	0.325
	0.328	0.323	0.330	0.448	0.446	0.450	0.324	0.323	0.323
180	0.361	0.363	0.373	0.509	0.516	0.512	0.359	0.367	0.360
	0.365	0.377	0.370	0.514	0.516	0.509	0.362	0.370	0.366

キャリアガスとして用いるとトレーサ濃度信号にひずみが見られ、妥当と考えられる測定結果はCO₂およびN₂Oをキャリアガスとして用いた場合にしか得られなかった。気体の相互拡散係数の濃度依存性は一般に非常に弱いので、キャリアガスとトレーサを入れ替えても測定される相互拡散係数の値は事実上変化しないと考えられる⁽³⁾⁽⁴⁾。

なお、トレーサ濃度信号にひずみの生じる現象は、HFC 134-空気系⁽⁵⁾およびHFC 32-空気系⁽⁶⁾の相互拡散係数の測定においても見られた。本研究で用いたサーミスタ形TCDの場合よりタングステン形TCDの場合のほうがひずみが大きいこと、N₂を多く含むキャリアガスにおいてひずみが顕著であることなどが判明しているが、ひずみの原因そのものは不明である。

測定された相互拡散係数の値の不確かさは約±2%と推定される⁽²⁾。高精度の測定データが蓄積されている希ガス-希ガス系(Ne-Ar系)の相互拡散係数の測定によって、測定装置の信頼度を確認してある⁽²⁾。

3. 測定結果および考察

測定結果を表1および図1~3に示す。これらの表1および図1~3から明らかなように、本研究で測定したCO₂、CH₄およびN₂Oの3種類の地球温暖化ガスについては、空気をN₂またはO₂で置き換えることによる相互拡散係数の値の変化は事実上見られない。

測定結果は次の相関式で再現することができる。

$$D = AT^B \quad \dots\dots\dots (1)$$

Fig. 1 Present experimental values for the mutual diffusion coefficients of the CO₂-air, CO₂-N₂ and CO₂-O₂ systems at 1 atm

ここで、 D は1 atm(101 325 Pa)における相互拡散係数(m²/s)、 T は絶対温度(K)である。式(1)の係数 A および B の値を表2に、本研究の相互拡散係数の測定値の式(1)からの偏差を図4~6にそれぞれ示す。また、式(1)から計算した相互拡散係数の値は図1~3にも示してある。

図1~6から明らかなように、CO₂およびN₂Oの相

Fig. 2 Present experimental values for the mutual diffusion coefficients of the CH_4 -air, CH_4 - N_2 and CH_4 - O_2 systems at 1 atm

Fig. 3 Present experimental values for the mutual diffusion coefficients of the N_2O -air, N_2O - N_2 and N_2O - O_2 systems at 1 atm

互拡散係数は測定の不確かさ($\pm 2\%$)内で一致しており, CH_4 のそれよりかなり小さい。一般的な傾向として, 分子量の小さいガスほど相互拡散係数が大きくなる傾向がある。 CO_2 , CH_4 および N_2O の分子量の値(それぞれ約44, 約16および約44)と本研究の測定結果の間にもそのような傾向が読取れる。また, 空気,

Table 2 Constants for Eq. (1)

System	A	B
CO_2 -(air, N_2 , O_2)	5.75×10^{-10}	1.81
CH_4 -(air, N_2 , O_2)	7.04	1.83
N_2O -(air, N_2 , O_2)	5.34	1.82

Fig. 4 Comparison of the present experimental values for the mutual diffusion coefficients of the CO_2 -air, CO_2 - N_2 and CO_2 - O_2 systems with those calculated from Eq. (1)

Fig. 5 Comparison of the present experimental values for the mutual diffusion coefficients of the CH_4 -air, CH_4 - N_2 and CH_4 - O_2 systems with those calculated from Eq. (1)

Fig. 6 Comparison of the present experimental values for the mutual diffusion coefficients of the N_2O -air, N_2O - N_2 and N_2O - O_2 systems with those calculated from Eq. (1)

N_2 および O_2 の分子量の差が大きい(分子量はそれぞれ約29, 約28および約32)ことから, 空気を N_2 または O_2 で置き換えることによって相互拡散係数がほとんど変化しないことも一応説明可能である。

$\text{N}_2\text{O}-\text{O}_2$ 系以外の本研究で測定した系には、過去の相互拡散係数の測定値および粘性係数からの推算値が存在する。以下、図7~14にそれぞれの系について本研究の測定値と過去に報告された値を比較した。また、Marrero-Mason⁽³⁾は、 CO_2 -空気、 CO_2-N_2 、 CO_2-O_2 、 CH_4 -空気、 CH_4-N_2 および CH_4-O_2 の六つの系について、1970年以前の測定値に基づいて相互拡散係数と温度の相関式を作成しているが、それらの相関式も図7~14に比較してある。なお、データ間の差を拡大するために、図7~14には式(1)からの偏差を示してある。

比較したデータの測定法あるいは推算法は、図7~14中には表3に示す略号で示してある。測定法については、多孔質流路を用いた diffusion bridge 法 (DBP) と多孔質流路を用いた two-bulb 法 (TBP) のみが相対測定法であり、あとはすべて絶対測定法である。測定値または粘性係数からの推算値の不確かさについては個々に述べる余裕がないが、不確かさの記述がない報告が多く、記述のあるものについては $\pm 1 \sim \pm 3\%$ 程度の数値が示されている場合が多い。しかし、Marrero-Mason⁽³⁾は、測定者の主張する不確かさにかかわらず、 $\pm 2\%$ より精度のよい測定値はほとんど存在しないと述べている。なお、彼ら自身の相関式の不確かさは $\pm 2 \sim \pm 3\%$ と推定されている⁽³⁾。

図7には CO_2 -空気系の相互拡散係数の測定値^{(7)~(15)}の式(1)による値からの偏差を示す。この系には1870年代にさかのぼる測定値が存在するが、1930年代前半までの測定値は省いた。Klibanova ら⁽⁸⁾(100°Cにおける値)、Andrew⁽⁹⁾および Raw-Raw⁽¹³⁾による測定値は本研究の測定値とよく一致しているが、その他の測定値は4~9%小さい。Marrero-Mason⁽³⁾の相

Table 3 Abbreviations for measuring and predicting methods

Abbreviation	Method
AGC	arrested-flow gas chromatography
CL	capillary leak
DB	diffusion bridge
DBP	diffusion bridge, porous septum
DE	Dufour effect
GD	Graham diffusion
L	Loschmidt
MS	modified Stefan
RGC	reversed-flow gas chromatography
PMV	prediction from mixture viscosity
PS	point source
S	Stefan
TB	two-bulb
TBP	two-bulb, porous septum
TD	Taylor dispersion

関式による値は本研究の測定値より2~6%小さいが、その差は温度の上昇とともに小さくなる。

図8には CO_2-N_2 系の相互拡散係数の測定値および粘性係数からの推算値^{(10)(16)~(34)}の式(1)による値からの偏差を示す。この系については測定例が非常に多いので、1950年代前半までの測定値は省いた。Walker ら^{(16)~(19)}、Schneider-Schäfer⁽²⁷⁾および

Fig. 7 Comparison of the experimental values for the mutual diffusion coefficients of the CO_2 -air system with those calculated from Eq. (1)

Fig. 8 Comparison of the experimental and predicted values for the mutual diffusion coefficients of the CO_2-N_2 system with those calculated from Eq. (1)

Takahashi⁽³⁰⁾ の測定値は本研究の測定値とかなりよく一致しているが、その他のほとんどの測定値および粘性係数からの推算値は本研究の結果より小さく、差は10%に達する。しかし、Ivakin-Suetin⁽²²⁾ および Lannus-Grossman⁽²⁸⁾ の測定値は75°C以上では本研究の結果と比較的よく一致している。一方、Nagata-Hasegawa⁽²⁹⁾ および Li-Evans⁽³⁴⁾ の測定値は系統的に高い。Nagata-Hasegawa の測定値は Taylor 法による絶対測定によるものであるが、拡散管の長さ(1 m ないし 3 m)が短すぎると考えられる。Li-Evans の測定値は相対測定によるものであるが、検定に用いた拡散係数の標準値が不正確である疑いがある。Marrero-Mason⁽³⁾ の相関式による値と本研究の測定値の差は CO₂-空気系の場合と同じような傾向を示す。

図9には CO₂-O₂系の相互拡散係数の測定値および粘性係数からの推算値^{(10)(31)(33)(35)~(38)} の式(1)による値からの偏差を示す。この系には19世紀に得られた測定値がいくつかあるが、すべて省いた。Kosov-Zhargasov⁽³⁷⁾ の24°Cにおける測定値は本研究の測定値とよく一致しているが、その他の測定値および粘性係数からの推算値は3~10%小さい。Marrero-Mason⁽³⁾ の相関式による値は本研究の測定値よりほぼ5%小さい。

図10には CH₄-空気系の相互拡散係数の測定値⁽⁷⁾⁽¹⁵⁾⁽³⁹⁾ の式(1)による値からの偏差を示す。Cowie-Watts⁽³⁹⁾ の測定値は本研究の結果より約9%小さいが、他の測定値はだいたい一致している。Marrero-Mason⁽³⁾ の相関式は Cowie-Watts の測定値に合っており、本研究の測定値より9~12%程度低い値を与える。

Fig. 9 Comparison of the experimental and predicted values for the mutual diffusion coefficients of the CO₂-O₂ system with those calculated from Eq. (1)

図11には CH₄-N₂系の相互拡散係数の測定値^{(34)(40)~(49)} の式(1)による値からの偏差を示す。新井ら⁽⁴²⁾, Wakeham-Slater⁽⁴⁴⁾(ただし、40°C付近の測定値を除く)および Zhavrin ら⁽⁴⁸⁾ の測定値は本研究の結果と比較的よく一致している。Li-Evans⁽³⁴⁾ の測定値は CO₂-N₂系の場合と同様に過大である。また、Katsanos-Karaiskakis⁽⁴⁹⁾ の測定値も過大であるが、

Fig. 10 Comparison of the experimental values for the mutual diffusion coefficients of the CH₄-air system with those calculated from Eq. (1)

Fig. 11 Comparison of the experimental values for the mutual diffusion coefficients of the CH₄-N₂ system with those calculated from Eq. (1)

測定者自ら実験結果の解析が近似計算によるため測定値が不正確である可能性を認めている。一方, Marrero-Mason⁽³⁾の相関式は Mueller-Cahill⁽⁴¹⁾, Engel-Knapp⁽⁴⁵⁾ および Hsieh-Cheh⁽⁴⁷⁾ の測定値に合っており, 本研究の測定値より 10~13%程度低い値を与える。

図 12 には $\text{CH}_4\text{-O}_2$ 系の相互拡散係数の測定値⁽³⁶⁾の式(1)による値からの偏差を示す。Walker-Westenberg⁽³⁶⁾の測定値は本研究の結果よりやや小さいが, 20°C付近の1点を除くと差は大きくない。Marrero-Mason⁽³⁾の相関式は本研究の測定値より 5%程度低い値を与える。

図 13 には N_2O -空気系の相互拡散係数の測定値⁽¹²⁾⁽¹⁴⁾の式(1)による値からの偏差を示す。Pritchard-Currie⁽¹⁴⁾の測定値は本研究の結果とよく一致している。一方, Barr-Watts⁽¹²⁾の測定値は本研究の結果より約18%小さい。この系については, Marrero-Mason⁽³⁾の相関式は存在しない。

図 14 には N_2O - N_2 系の相互拡散係数の測定値と粘性係数からの推算値⁽⁵⁰⁾⁽⁵¹⁾の式(1)による値からの偏差を示す。Saplitsa-Timofeev⁽⁵¹⁾の測定値は, ばらつ

きは大きい。本研究の測定値とだいたい一致している。一方, Kestin-Ro⁽⁵⁰⁾の粘性係数からの推算値は本研究の測定結果より 7~8%小さい。この系についても Marrero-Mason⁽³⁾の相関式は存在しない。

以上述べたように, 本研究で測定された系の相互拡散係数については, 報告されている値の間に大きな差があり, しばしば研究者が主張する測定値などの不確かさの幅を大きく超える不一致が見られることがわかった。前述した, 測定の不確かさが測定者の主張より大きいことが多いという Marrero-Mason⁽³⁾の指摘が確認されたことになる。これらの測定値の中では, 本研究の測定結果は, 前にも述べたように希ガス-希ガス系の相互拡散係数の測定によって信頼度確かめた測定装置で得られている点, および図 1~6に見られるように測定値の間に一貫性(consistency)がある点から, 比較的信頼できるものと判断している。

従来, Marrero-Mason⁽³⁾の相関式による値は気体の相互拡散係数の標準値のように考えられてきた。しかし, 一貫性のあると考えられる本研究の測定値からの偏差が系によって 2~13%と大きく異なっており, 彼らの相関式の一貫性には問題があるのではないかと考えられる。

4. 結 論

地球温暖化ガス CO_2 , CH_4 および N_2O の空気およびその成分ガス(N_2 および O_2)に対する相互拡散係数を, Taylor 法を用いて大気圧下, 温度範囲 0~180°C において測定し, 以下の結論を得た。

(1) 空気を N_2 または O_2 で置き換えても, CO_2 , CH_4 および N_2O に対する相互拡散係数は事実上変化しない。

(2) CO_2 および N_2O の空気, N_2 および O_2 に対する相互拡散係数はほぼ等しく, CH_4 のそれらのガスに

Fig. 12 Comparison of the experimental values for the mutual diffusion coefficients of the $\text{CH}_4\text{-O}_2$ system with those calculated from Eq. (1)

Fig. 13 Comparison of the experimental values for the mutual diffusion coefficients of the N_2O -air system with those calculated from Eq. (1)

Fig. 14 Comparison of the experimental and predicted values for the mutual diffusion coefficients of the N_2O - N_2 system with those calculated from Eq. (1)

対する相互拡散係数より小さい。

(3) CO_2 , CH_4 および N_2O の空気, N_2 および O_2 に対する相互拡散係数の測定値や粘性係数からの推算値は数多く報告されているが, それらの間には大きな差がある。

実験に協力された大石直彦, 藤波直也, 粕谷幸生, 佐藤仁, 中村正義の諸氏(当時: 拓殖大学工学部学生), および旧ソ連などの入手困難な海外文献の取り寄せにご尽力いただいた拓殖大学図書館に謝意を表す。

文 献

- (1) 松永直樹・堀守雄・長島昭, 機論, **57**-535, B(1991), 1091-1096.
- (2) Matsunaga, N., Hori, M. and Nagashima, A., *High-Temp. High-Press.*, **25**(1993), 185-192.
- (3) Marrero, T. R. and Mason, E. A., *J. Phys. Chem. Ref. Data*, **1**(1972), 3-118.
- (4) 松永直樹・堀守雄・長島昭, 機論, **59**-557, B(1993), 225-227.
- (5) 松永直樹・堀守雄・長島昭, 機論, **60**-570, B(1994), 504-507.
- (6) 松永直樹・堀守雄・長島昭, 機講論, No. 967-1(1996-3), 229-230.
- (7) Coward, H. F. and Georgeson, E. H. M., *J. Chem. Soc.*, (1937), 1085-1087.
- (8) Klibanova, Ts. M., Pomerantsev, V. V. and Frank-Kamenetskii, D. A., *Zh. Tekh. Fiz.*, **42**(1942), 14 [文献(3)より] .
- (9) Andrew, S. P. S., *Chem. Eng. Sci.*, **4**(1955), 269-272.
- (10) Suetin, P. E. and Ivakin, B. A., *Zh. Tekh. Fiz.*, **31**(1961), 499-501.
- (11) Holsen, J. N. and Strunk, M. R., *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, **3**(1964), 143-146.
- (12) Barr, R. F. and Watts, H., *J. Chem. Eng. Data*, **17**(1972), 45-46.
- (13) Raw, C. J. G. and Raw, T. T., *Chem. Phys. Lett.*, **44**(1976), 255-256.
- (14) Pritchard, D. T. and Currie, J. A., *J. Soil Sci.*, **33**(1982), 175-184.
- (15) Ilyasov, L. V. and Negretov, Yu. B., *Zavod. Lab.*, **51**(1985), 32-34.
- (16) Westenberg, A. A. and Walker, R. E., *J. Chem. Phys.*, **26**(1957), 1753-1754.
- (17) Walker, R. E., Ph. D. Thesis, University of Maryland, (1958) [文献(3)より] .
- (18) Walker, R. E. and Westenberg, A. A., *J. Chem. Phys.*, **29**(1958), 1139-1146.
- (19) Walker, R. E., DeHaas, N. and Westenberg, A. A., *J. Chem. Phys.*, **32**(1960), 1314-1316.
- (20) Bohemen, J. and Purnell, J. H., *J. Chem. Soc.*, (1961), 360-367.
- (21) Giddings, J. C. and Seager, S. L., *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, **1**(1962), 277-283.
- (22) Ivakin, B. A. and Suetin, P. E., *Zh. Tekh. Fiz.*, **34**(1964), 1115-1123.
- (23) Weissman, S., *J. Chem. Phys.*, **40**(1964), 3397-3406.
- (24) Kestin, J., Kobayashi, Y. and Wood, R. T., *Physica*, **32**(1966), 1065-1089.
- (25) Pakurar, T. A. and Ferron, J. R., *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, **5**(1966), 553-557.
- (26) Ellis, C. S. and Holsen, J. N., *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, **8**(1969), 787-791.
- (27) Schneider, M. and Schäfer, K., *Ber. Bunsenges. Phys. Chem.*, **73**(1969), 702-706.
- (28) Lannus, A. and Grossmann, E. D., *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, **9**(1970), 655-657.
- (29) Nagata, I. and Hasegawa, T., *J. Chem. Eng. Jpn.*, **3**(1970), 143-145.
- (30) Takahashi, S., *J. Chem. Eng. Jpn.*, **10**(1977), 258-261.
- (31) Worth, H., Nüsse, W. and Piiper, J., *Respir. Physiol.*, **32**(1978), 15-26.
- (32) Pathak, B. K., Singh, V. N. and Singh, P. C., *Can. J. Chem. Eng.*, **59**(1981), 362-365.
- (33) Robjohns, H. L. and Dunlop, P. J., *Ber. Bunsenges. Phys. Chem.*, **88**(1984), 1239-1241.
- (34) Li, B. Q. and Evans, J. W., *Metall. Trans.*, B, **20**(1989), 141-148.
- (35) Waldmann, L., *Naturwiss.*, **32**(1944), 223-224.
- (36) Walker, R. E. and Westenberg, A. A., *J. Chem. Phys.*, **32**(1960), 436-442.
- (37) Kosov, N. D. and Zhalgasov, A., *Zh. Tekh. Fiz.*, **40**(1970), 1325-1327.
- (38) Kestin, J., Khalifa, H. E., Ro, S. T. and Wakeham, W. A., *Physica*, A, **88**(1977), 242-260.
- (39) Cowie, M. and Watts, H., *Can. J. Chem.*, **49**(1971), 74-77.
- (40) Berry, V. J., Jr. and Koeller, R. C., *AIChE J.*, **6**(1960), 274-280.
- (41) Mueller, C. R. and Cahill, R. W., *J. Chem. Phys.*, **40**(1964), 651-654.
- (42) 新井邦夫・斉藤正三郎・前田四郎, 化学工学, **31**(1967), 25-31.
- (43) Jacobs, T., Peeters, L. and Vermant, J., *Bull. Soc. Chim. Belges*, **79**(1970), 337-342.
- (44) Wakeham, W. A. and Slater, D. H., *J. Phys.*, B: *Atom. Molec. Phys.*, **6**(1973), 886-896.
- (45) Engel, J. and Knapp, H., *Wärme Stoffübertrag.*, **3**(1973), 146-152.
- (46) Zhavrin, Yu. I., Kosov, N. D. and Novosad, Z. I., *Zh. Fiz. Khim.*, **49**(1975), 706-709.
- (47) Hsieh, M. -W. and Cheh, H. Y., *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, **17**(1978), 210-213.
- (48) Zhavrin, Yu. I., Kosov, N. D. and Kul'zhanov, D. U., *Mol. Molyarnyi. Teplo-Massoperenos*, (1981), 79-85.
- (49) Katsanos, N. A. and Karaiskakis, G., *J. Chromatogr.*, **237**(1982), 1-14.
- (50) Kestin, J. and Ro, S. T., *Ber. Bunsenges. Phys. Chem.*, **86**(1982), 948-950.
- (51) Saplitza, V. V. and Timofeev, B. D., *Vestsi Akad. Navuk BSSR, Ser. Fiz. -Energ. Navuk*, No. 4(1984), 40-43.