LNGの冷熱を利用した炭酸ガスの固化に関する基礎研究*

(第2報, ガス吹込みノズル周辺におけるCO₂固化特性)

竹内 善幸^{*1}, 広中正吾^{*2}
島田 裕^{*3}, 徳政賢治^{*4}

Study on Solidification of Carbon Dioxide by Using Cold Energy of LNG (2nd Report, Solidification Characteristics of CO₂ around Gas Feed Nozzle)

Yoshiyuki TAKEUCHI, Shogo HIRONAKA,
Yutaka SHIMADA and Kenji TOKUMASA

The present paper deals with solidification characteristics of carbon dioxide around gas feed nozzle of the flue gas from thermal energy power plant. The present experiment was carried out under condition of dioxide content for 3~50 volume percents. The results obtained indicated that the solidification fraction of carbon dioxide increased with a decrease in cooling temperature. The solidification fraction of carbon dioxide was expressed as the function of non-dimensional temperature and concentration of carbon dioxide.

Key Words: Cold Thermal Energy, Solidification, Freezing, LNG, Dry Ice, Heat Transfer

1. 緒 言

著者らは、低温(約-160℃)の液化天然ガス(LNG)をガス燃料として利用する発電所において、未利用のまま放出されているLNGが保有する冷熱を用いて、LNGコンバインドサイクルの燃焼排ガス(以下排ガスと呼ぶ)中の炭酸ガスを低温の冷却ガスと直接混合させることにより、ドライアイスとして固化・回収するプロセスについて技術開発を進めている。

本プロセスの開発では、以下の研究課題が挙げられる。

- (1) 低温下における低濃度の凝縮性ガス(CO₂/H₂O)の固化特性把握
 - ア) CO₂/H₂O混合ガスの固化条件
ガス組成, 冷却温度, ガス流速等の影響
 - イ) 固化物の特性把握
粒径, 低温壁面への凝固性等
- (2) 低温下での固化物の伝熱特性把握

前報⁽¹⁾では、LNG焼きコンバインドサイクルにおける燃焼排ガスと冷却用低温ガスとを直接混合した

場合について、排ガスを模擬した混合ガス(CO₂, H₂O, N₂の混合ガス)を使用し、炭酸ガスの固化率に及ぼす固化温度およびH₂Oの影響を実験的に解明した。

すなわち、炭酸ガスは分圧が 1×10^5 Paの場合に-78.5℃で固化し、さらに分圧(炭酸ガス濃度)の低下に伴って、固化温度は低下する(図1参照⁽²⁾)。

Fig. 1 Correlation of CO₂ concentration to solidification temperature

本研究の対象とするLNG焼きコンバインドサイクルの排ガス中の炭酸ガス濃度は、約3 mol%であり非常にガス分圧が低い。この排ガス状態では、理論上図1に示すように-114℃以下で炭酸ガスが固化することになる。しかしながら、著者らの実施した実験結果

* 原稿受付 1997年9月10日。

^{*1} 正員, 三菱重工業(株)広島研究所(☎ 733-8553 広島市西区観音新町4-6-22)。

^{*2} 三菱重工業(株)長崎造船所(☎ 850-8610 長崎市飽の浦町1-1)。

^{*3} 中国電力(株)火力部(☎ 730-0041 広島市中区小町4-33)。

^{*4} 中国電力(株)技術研究センター(☎ 739-0046 東広島市鏡山3丁目9-1)。

では、炭酸ガスの固化率が90%になるドライアイスクリスタライザー(以下クリスタライザーと呼ぶ)入口温度は-135℃となった。この原因として、下記のことが考えられる。

①クリスタライザーの排ガス供給ノズル部の形状に起因する低温の冷却ガスと排ガスの混合特性、すなわち混合が不十分な場合には、排ガス中の炭酸ガスが固化温度まで冷却されないまま、クリスタライザーを吹抜けるため、一部の炭酸ガスが固化せず、固化率が低下することになる。

②排ガス中のCO₂/H₂O混合ガスの固化熱に起因する理論固化温度からのずれ

さらに、固化率に影響を及ぼす因子として、固化速度に起因するクリスタライザー内へのガス滞留時間等が推察される。

そこで、これらのことを踏まえて、クリスタライザーの排ガス供給ノズル部の形状についてガス流動解析を実施し、その結果に基づいてガスの混合性が適正と考えられる単一ノズルの実験装置を製作し、炭酸ガスの固化率に及ぼす炭酸ガス組成の影響を実験的に解明した。本報告では、その実験結果を報告する。

記 号

D : ノズル部外筒の内径	mm
d_1 : 冷却ガス吹込み部内径	mm
d_2 : 排ガス吹込みノズル部内径	mm
d_3 : 固化物の短軸径	μm
d_4 : 固化物の長軸径	μm
f : 累積質量分布	mass%
m_i : 質量比	—
M_i : 分子量	—
ρ : ガス密度	kg/m ³
μ : ガス粘度	Pa·s
P : 圧力	Pa
R : 気体定数, 8.5005×10^{-3}	J/K
Re : レイノルズ数	—
S : 炭酸ガス固化率	%
$S1$: 固化率90%未満の炭酸ガス固化率	%
$S2$: 固化率90%以上の炭酸ガス固化率	%
T : 温度	℃
T_{i1} : 排ガスの入口温度	℃
T_{i2} : 冷却ガスの入口温度	℃
T_r : 炭酸ガスの全圧が 1×10^5 Paの場合の固化温度	℃
T_o : 無次元温度, $(T - T_r)/T$	—
u_1 : 排ガス吹込空塔速度	m/s
u_2 : 冷却ガス吹込空塔速度	m/s

θ : ガス吹込みノズル部外筒の円錐部壁面角度 度

2. ガス流動解析

2.1 ガス流動に係わる基礎式

クリスタライザーのガス吹込みノズルの出口近傍においては、排ガス(炭酸ガスと水蒸気を含むガス)と冷却ガス(N₂とO₂を主成分とする)が混合され、冷却された排ガス中の炭酸ガスと水蒸気の固化現象が起っており、この現象にはクリスタライザーの壁面形状が影響するものと推察される。ところが、この固化発生源所を実験的に特定することは困難である。そこで、この系内ガスの流動・拡散状態を推算し、適正な形状について実験的に解明するために、ノズル出口近傍のガス状態の定常解析を行った。

シミュレーションは、クリスタライザー内のノズル出口近傍の混合ガスの流動、及び炭酸ガス及び水蒸気の拡散について次に示す保存式を積分方程式形で解析する有限体積法で行った。

$$\frac{1}{\sqrt{g}} \frac{\partial}{\partial t} (\sqrt{g} \rho) + \frac{\partial}{\partial x_j} (\rho \tilde{u}_j) = s_m \quad \dots\dots\dots (1)$$

$$\frac{1}{\sqrt{g}} \frac{\partial}{\partial t} (\sqrt{g} \rho u_i) + \frac{\partial}{\partial x_j} (\rho \tilde{u}_j u_i - \tau_{ij}) = -\frac{\partial p}{\partial x_i} + s_i \quad \dots\dots\dots (2)$$

ただし、

x_i : 直交座標 ($i = 1, 2$)

u_i : x_i 方向の流体の絶対速度成分

$\tilde{u}_j$: 速度 u_{cj} で移動する局所(移動)座標系に対する流体の相対速度 $u_j - u_{cj}$

p : ピエゾ圧力 $= p_s - \rho_0 g_m x_m$. ここで p_s は静圧, ρ_0 は参照密度, g_m は重力場成分, および x_m は ρ_0 が定義される基準座標

τ_{ij} : 応力テンソル成分

s_m : 質量ソース

s_i : 運動量ソース成分

$\sqrt{g}$: メトリック・テンソルの行列式

流体はN₂, CO₂, H₂Oから構成される混合ガスからなる理想気体とし、次に示すように密度は構成分子の質量分率及び温度の関数とした。

$$\rho = \frac{P}{RT \sum_i \frac{m_i}{M_i}} \quad \dots\dots\dots (3)$$

ノズル出口近傍の Re 数は 4.1×10^5 で臨界 Re 数以上の乱流状態にあることより、高 Re 数形式の $k-\epsilon$ モデルを導入した。解析モデルは、ガス吹込みノズルの形状の軸対称性を考慮して、定常二次元軸対称モデルとした。数値解析は、上記定常二次元方程式を陰的解法

流状態となり、冷却ガスと十分に混合されて3.7~7.5 m/sの流速となる。

2・3・2 ガスの温度分布

代表的数値シミュレーション結果を以下に示す。

(1) 壁面角度 $\theta=30^\circ$ における一般ガス組成の場合

図5に $\theta=30^\circ$ の場合の温度分布を示す。排ガスの温度は、外筒の壁面に到達する前に円錐形部で目標温度 -140°C 以下となる。炭酸ガスは、 -140°C の領域においてドライアイスとして固化することになる。

図4の結果と比較すると、固化物が生成する -140°C 以下の領域では高流速が確保され、固化物の壁面への凝結は防止されるものと推察される。

(2) 壁面角度 $\theta=45^\circ$ における一般ガス組成の場合

図6に $\theta=45^\circ$ の場合の温度分布を示す。温度分布は、 θ の増加により横軸方向に膨らむが、図5の傾向とほとんど同一で、円錐形部で目標温度 -140°C 以下となる。

(3) 高炭酸ガス濃度の場合

図7に、高炭素ガス濃度($\text{CO}_2=64.0$, $\text{H}_2\text{O}=1.7$, $\text{N}_2=34.3\text{mol}\%$)の場合を想定し、 $\theta=30^\circ$ の条件で計算した温度分布を示す。

この場合には、高濃度のため CO_2 の固化に必要な熱量が増加するため、 CO_2 の固化温度領域(-140°C 以下)は図6に比較して上方側へ移動するが、大きな変化傾向は認められない。

2・3・3 ガス吹込みノズル部の形状選定

実用機では、装置のコンパクト化のために、多量の排ガス(例えば、発電規模118Mwの場合 $1.36 \times 10^6 \text{Nm}^3/\text{h}$)の大型のドライアイスクリスタライザー内に均一分散して吹込み、冷却ガスと短時間に均一混合する必要がある。ところが、一般に使用される自由噴流のノズルでは、例えば30m/s以上の高流速にする必要があり高圧損となるため、前述の新形状のノズルを考察してガス流動解析による温度分布から判断すると、ガス吹込みノズルの出口近傍において高効率で炭酸ガスの固化が完了するものと推察された。従って、シミュレーション結果を確認するために、下記のノズル仕様について実験により性能評価を行うこととした。

①下部を円錐形にする。

②外筒底部壁面の角度 θ

30度と45度の場合、性能上の差はほとんど認められないが、装置の設置面積を小さくする観点から、30度を採用する。

③排ガス吹込み部の形状は、数値シミュレーションで使用したものを採用する。

Fig. 4 Gas velocity magnitude

Fig. 5 Temperature distribution($\theta=30^\circ$ 度, $\text{CO}_2=3\%$)

Fig. 6 Temperature distribution($\theta=45^\circ$ 度, $\text{CO}_2=3\%$)

Fig. 7 Temperature distribution($\theta=30^\circ$ 度, $\text{CO}_2=64\%$)

3. 実験装置及び実験方法

前述のガス流動解析の結果に基づいて、実機における炭酸ガスの固化特性を推定するために、実機仕様の単一ノズルを製作して実験することとした。なお、以降の実験では、単一ノズルの本体をドライアイスクリスタライザーと呼ぶ。

実験装置の詳細及び実験方法を以下に述べる。

図8に実験装置の概略を示す。炭酸ガスを含む排ガスに相当する模擬混合ガス(プロセスガス)として、窒素ガスと炭酸ガスを配管内で混合して所定濃度に調整したものを使用した。ガス流量は、サーマル式流量計⑤⑥で計測し、その測定精度は、 $\pm 0.1(\ell/h)$ 以内である。模擬混合ガスは、加湿槽⑨内の所定温度に設定した水中に吹き込んで冷却し、その凝縮水分を分離した。さらに飽和湿度に水分濃度を調整した後、ドライアイスクリスタライザー⑩に供給した。水分濃度は、予備実験において、加湿後の混合ガスを液体窒素で冷却したトラップ中に流通し、トラップ内に凝固した水分の質量を精密天秤で測定(測定精度 $\pm 0.1\%$ 以内)して求めた。

一方、冷却ガスとして、液体窒素を蒸発器で蒸発させ、予冷却器⑧で温度調節した。その後冷却ガスはドライアイスクリスタライザーが設置してある極低温恒温槽⑫内のコイル部⑬を経て予冷却した後、ドライアイスクリスタライザーに供給した。そのコイル部は、長さ10mの銅管(内径20mm)を直径200mmに巻いたもので、冷却用ガスを流通させることにより、低温恒温槽内の設定温度、すなわちドライアイスクリスタライザーの壁面温度と同一温度に再調整するために設けた。

排ガスと冷却ガスは、縦置きに設置されたクリスタライザー入口のノズルから各々供給し、クリスタライザー入口の円錐形部で混合されながらクリスタライザー本体内に流入させた。排ガスの吹込みノズル部に接続されている配管は二重管構造になっており、冷却ガスにより配管が冷却されて配管内部で排ガス中の水分が凝結しないようにするために、加熱乾燥空気を二重管の外管側に流通させ、排ガス温度を 0°C に保持した。

排ガスは、冷却ガスのモル比で約 $1/8$ の流量であり、冷却ガスの冷熱で冷却される。そこで、混合ガス中の炭酸ガスは固化温度に達すると、ドライアイスの微粒子を生成する。この微粒子は、さらに混合ガスによりサイクロン⑪に搬送し、ここでガスと分離してサイクロンの下部に捕集した。

図9のドライアイスクリスタライザーとサイクロン

は、放熱を防止し、冷却温度を一定に保持するために、低温恒温槽内に設置した。恒温槽内の温度は、液体窒素を恒温槽内にノズルから直接噴霧して $-70\sim-160^\circ\text{C}$ の所定温度に設定した。恒温槽内には、温度分布をなくするために、ファン⑬⑭を2個所に設置し、温度指示調節計により制御した(温度の制御精度 $\pm 0.1^\circ\text{C}$ 以内)。

ドライアイスクリスタライザー内には、素線直径 0.1mm のT形熱電対を3本設置し、温度分布を計測し、24点打点式高速記録計⑰で記録した。各熱電対は、目盛り刻み 0.05°C の標準温度計により校正した。測定温度の精度は、 $\pm 0.1^\circ\text{C}$ 以内と推定される。

炭酸ガスの固化率は、クリスタライザーの入口と出口のガス組成をガスクロマトグラフで分析し、組成変化量から算出した。ガスクロの炭酸ガス検出濃度は、標準ガスにより検量し、検出限界は 10ppm である。

主要機器の仕様を以下に示す。

(1) ドライアイスクリスタライザー(図8中の⑩、

Fig. 8 Schematic diagram of test apparatus

Fig. 9 Detail of Dry Ice Crystallizer

図9参照)

材質: パイレックスガラス

寸法: 内径84×長さ600×厚さ9 (mm)

外筒底部壁面の角度 $\theta=30$ 度

温度計: T形熱電対3本(素線直径0.1mm)

低温恒温槽内に竖置き

(2) 低温恒温槽(図8中の⑫参照)

寸法: 幅750×奥行1,000×高さ1,950 (mm)

最低保持温度: -180°C

温度計: T形熱電対(素線直径0.1mm)

その他: 覗き窓 200° (mm)×2個

温度計: T形熱電対6本(素線直径0.1mm)

(3) 液体窒素蒸発器

発生ガス量: $10\text{Nm}^3/\text{h}$

(4) 低温ガス供給ユニット(図8中の⑧参照)

寸法: 幅750×長さ1,400×高さ750 (mm)

供給ガス: N_2

冷却ガス量: 最大6 (Nm^3/h)

ガス温度: クリスタライザー入口 $-100\sim-160^{\circ}\text{C}$

(5) 加湿槽(図8中の⑨参照)

寸法: 幅750×長さ1,400×高さ750 (mm)

加湿温度: 室温 $\sim 80^{\circ}\text{C}$

加湿用内筒: 内径150×高さ150 (mm)

恒温槽: 内径230×高さ250 (mm)

温度計: T形熱電対(素線直径0.1mm)

4. 実験結果および考察

4.1 固化率に影響を及ぼす要因

炭酸ガスの固化率に影響を及ぼす要因として、以下のものが考えられる。

(1) クリスタライザー及びノズルの形状

ガスの流動特性、混合特性等に影響する

(2) 操作条件

ガス流速、冷却温度等の影響を受ける

(3) 炭酸ガス濃度(図1参照)

過飽和比(蒸気圧/平衡蒸気圧)が均一核生成速度に影響する^{(3)~(5)}

(4) 異物の混入

H_2O を含む排ガスの場合、不均一核生成が起こり易くなる

上記要因の中で、(1)項については、本数値シミュレーションの結果から、相似則により十分実機における推定が可能である。(4)項については、前報⁽²⁾で概要を報告した。(2)項のうちガス流速については、実機における Re 数を本数値計算でシミュレートする手法に

より評価が可能である(前報⁽²⁾参照)。

本報では(2)項の温度の影響及び(3)項について実験により解明した結果を報告する。

4.2 固化率に及ぼす温度の影響

排ガスについて、固化率と冷却温度の相関を実験的に解明した。図10は、実験データをプロットしたものである。なお、図中の実線は実測値を結んだものである。本実験結果から以下の特性が明確になった。

(1) 低濃度の炭酸ガスを含む排ガスは、冷却温度を下げるにより、固化させることができることが図10の結果より明らかである。

(2) LNGコンバインドサイクルの燃焼排ガスのように炭酸ガス濃度が3mol%と小さい場合、過飽和比($113/78.5=1.4$)が小さくなる。その結果、均一核生成速度は小さくなり、過冷却状態⁽⁶⁾になり易くなり、 $S>90\%$ となる CO_2 固化率を達成するためには、理論冷却温度以下である -135°C 以下⁽¹⁾に冷却する必要があるものと推察される。

(3) 炭酸ガス濃度が高濃度になるに従って、固化開始温度は理論冷却温度の -114°C に近づくことになる。

Fig.10 Variation of the solidification fraction of CO_2 with temperature

4.3 固化率の無次元温度整理式

炭酸ガス固化率 S に影響を及ぼす諸因子として、炭酸ガスの全圧が $1 \times 10^5 \text{Pa}$ の場合の固化温度 T_r 、冷却温度 T 、炭酸ガス濃度 C がある。

そこで、次式(3)に示す無次元温度を定義する。

$$\text{無次元温度 } T_0 = (T - T_r) / T \quad \dots\dots\dots (5)$$

一方、図10に示すように、炭酸ガス固化率と冷却温度の相関性に以下の特徴が認められる。

1) 炭酸ガス固化率が約90%以下の場合には、固化率と冷却温度の相関に直線性が認められ、冷却温度の影響度が大きい。

2) 炭酸ガス固化率が約90%以上になると、温度の影響度が小さくなる。

従って、固化率 S が90%前後で2式に分割して実験式を導いた。

誘導した実験式(4)及び(5)式を以下に示す。

① $S \leq 90\%$ の場合

$$S1 = 1480 \times T_0 + 0.0147 \times C^2 + 0.728 \times C + 734 \quad \cdots \cdots (6)$$

② $S > 90\%$ の場合

$$S2 = -94.0 \times T_0 + 0.00170 \times C^2 + 0.0127 \times C + 131 \quad \cdots \cdots (7)$$

ここで、

$S1, S2$: 炭酸ガスの固化率 (%)

C : 炭酸ガス濃度 (mol%)

図11は、実験式(4)及び(5)の実験整理式(図中実線)と実測値を比較して示したものである。固化率が約90%までは、無次元温度 T_0 の減少に伴って固化率 $S1$ が大きく増加する。固化率が約90%以上では、無次元温度 T_0 の減少に伴って固化率 $S2$ が穏やかに増加する。いずれも、固化率 S は無次元温度 T_0 に対して直線性が認められ、本実験の範囲内で実測データと計算値は、以下の最大偏差値以内でよく一致する。

① 固化率 $S1 < 90\%$ において最大偏差 $\pm 1\%$

② 固化率 $S2 > 90\%$ において最大偏差 $\pm 2\%$

以上の無次元整理式を使用して、炭酸ガス濃度 C と冷却温度 T を与えることにより、固化率 $S1$ 又は $S2$ を算出することができる。

Fig. 11 Variation of the solidification fraction of CO_2 with non-dimensional temperature

4・4 固化率に及ぼす炭酸ガス濃度の影響

炭酸ガス固化率を縦軸、炭酸ガス濃度を横軸で整理した実験結果を図12に示す。

同一温度でも、高炭酸ガス濃度ほど固化率が高くなる傾向が確認される。

LNGコンバインドサイクルから発生する燃焼排ガス中の炭酸ガス濃度は約3 mol%程度であるため、約 -140°C 程度まで冷却しないと、炭酸ガス固化率を90%以上にはすることができないことが確認できる。

Fig. 12 Variation of the solidification fraction of CO_2 with concentration of CO_2

4・5 クリスタライザーによる固化物の生成状況

図13に低温恒温槽の覗窓から撮影したクリスタライザーでの炭酸ガス生成状況を示す。図13の写真に示すように白色の固化物(ドライアイスと水の混合物)は、クリスタライザー下部のガス吹込みノズル近傍から生成を開始することを覗窓から確認した。倍率200倍のビデオマイクロスコープで撮影した固化物の映像コマ送り画像をビデオプリンターでプリントした写真の例を図14に示す。この写真から固化物215個について粒子径を計測し、計算した累積重量分布 f をRosin-Rammler線図にプロットして図15に示す。図中で d_3 は短軸径、 d_4 は長軸径を示す。この結果から、固化物の粒子径は非常に均一であり、50%粒子径は約 $d_{50} = 150 \mu\text{m}$ である。

Fig. 13 Products of CO_2 solidification

さらに、生成した固化物はクリスタライザー壁面への凝結性がなくさらっとしており、1m/sec程度の流速のガスにより容易に気流中に搬送されることを確認した。

以上のように流動解析の結果では、キャップ部吹出後に排ガスの温度が炭酸ガスの固化する温度まで冷却されるため、固化物は排ガスがキャップ部を通過した以降で生成される。また、生成された固化物は、流速1m/sec以上のガスに搬送される。従って、本形状の場合ガス吹込みノズル近傍における固化物の流動挙動への影響はほとんどないものと考えられる。

Fig. 14 Solid of CO_2 and H_2O at -140°C

Fig. 15 Diameter distribution of solids (Rosin-Rammler diagram)

5. 結 言

超低温の液化天然ガス(LNG)をガス燃料として

利用する際に、従来放出されていた冷熱の有効利用と、地球の温暖化に影響を及ぼす炭酸ガスの固化・回収を狙って進めているLNG冷熱有効利用システムの開発において、固化率に影響を及ぼす因子として、固化速度に起因するクリスタライザー内へのガス滞留時間等がある。

従って、本報告では、ドライアイスクリスタライザー内に複数設置されるガス吹込みノズルの1本について出口近傍におけるガス流動解析を実施し、その結果に基づいてほぼ実機仕様の単一ノズル実験装置を製作し、ノズル内での炭酸ガスの固化率に及ぼす炭酸ガス組成の影響を実験的に解明し、以下の結論を得た。

- (1)炭酸ガスの固化率と冷却温度の相関を定量的に明らかにした。
- (2)炭酸ガスの固化率が90%になるガス吹込みノズル部の混合ガス温度は、炭酸ガス濃度により変化するがほぼ -140°C 以下であれば十分である。
- (3)実験データに基づいて、ガス吹込みノズル部における炭酸ガスの固化率と冷却温度に関する無次元整理式を提案した。今回対象とした実機仕様の装置については、この式により炭酸ガス濃度 C と冷却温度 T を与えて固化率を算出することが可能となった。

本実験において製造した固化物は、平均粒径約 $150\mu\text{m}$ であり、非常に微細である。実用機においては、分離・回収した回収物を容器に入れて貯蔵場所に運搬する必要があり、固化物の密度が運搬コストに影響する。この対策として、固化物の粒径を成長させて見掛け密度の向上を図るか、圧縮成形することが考えられる。そこで、今後の検討課題として、以下の項目が挙げられる。

- ①固化物の生成速度に及ぼす要因の把握
- ②固化物の結晶性状に及ぼす H_2O の影響把握
- ③装置壁面への固化物の凝結防止対策の検討

文 献

- (1) 竹内、他3名、機論、63-606、B(1997)、298.
- (2) 小宮山、地球温暖化問題ハンドブック、(株)アイピーシー、(1990)
- (3) 荒川・他、粉体工学の基礎、日刊工業新聞社、(1992)、6.
- (4) 西永、結晶成長の基礎、培風館、(1997)、42.
- (5) 日本結晶成長学会、結晶成長ハンドブック、共立出版、(1995)、141.
- (6) 福迫・稲葉、低温環境下の伝熱現象とその応用、養賢堂、(1996) 97.