

フロン系冷媒 R 12 (CCl_2F_2) の状態式の比較検討

小 口 幸 成, 谷 下 市 松

Evaluation and Comparison of Available Equations of State for Fluorocarbon Refrigerant R 12 (CCl_2F_2)

Kosei OGUCHI and Ichimatsu TANISHITA

Abstract

The available equations of state for fluorocarbon refrigerant R 12 (CCl_2F_2) were critically evaluated and compared with the experimental data of *PVT* properties in the ranges of temperatures up to 200°C and pressures up to 85 bar approximately. And also, the isobaric specific heat capacity was calculated using those equations of state and compared with the experimental data previously reported. Moreover, the isochoric specific heat capacity and the acoustic velocity were also calculated and compared.

As a result of above comparison, the equations of state correlated by Perelshtein (1971) and by Kondo et al. were evaluated best of all available equations of state.

1. ま え が き

冷凍および空気調和工業において技術革新がいちじるしいが、それにともなって冷凍機などの動作流体である各種冷媒の精確な熱物性値が強く要求されるようになってきた。

1930 年に Midgley と Henne¹⁾は炭化水素化合物の水素をフッ素と置換すると沸点が下がり毒性も少なくなり引火性が極めて弱くなることを報告した。その後、従来使用されていたアンモニアやメチルクロライドに代って、フロン系冷媒 R 12 [dichlorodifluoromethane, CCl_2F_2] (以後 R 12 と略す) を使用することによって安全性と機械の小型化を実現することができた。今日ではフロン系冷媒の種類も非常に多くなっているが、R 12 はその中にあって最も長い歴史をもち、最も多く使用されている冷媒の 1 つである。

R 12 の熱物性値に関する研究は、1931 年に Buffington ら²⁾⁻⁶⁾によって系統的に行われて以来多くの研究報告がなされ、熱物性値集も⁷⁾⁻¹⁵⁾各種出版されている。しかし、それらの熱物性値集の中には完全に評価された選定値集にはなっていないようなものもある。

本報告では熱物性のなかで最も基礎的な性質である圧力、比容積および温度の間の関係 (*PVT* 性質と略す)

について、従来報告された実測値と、それらを表示するように作成された熱力学的状態式 (状態式と略す) とを収集し、両者の間の関係を比較検討した。つぎに熱力学一般関係式を使って、収集した全状態式から定圧比熱を誘導し、定圧比熱の実測値と比較した。また同様に定容比熱および音速を誘導し状態式間の比較検討を行った。以上のように状態式およびその誘導状態量について比較検討することによって、広い温度および圧力範囲にわたって熱力学的に一貫性がとれているかどうかについて各状態式を評価した。

記号および単位

- a : 音速 (m/s)
- c_p : 定圧比熱 ($\text{kJ}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$)
- c_v : 定容比熱 ($\text{kJ}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$)
- P : 絶対圧力 ($\text{bar}=10^5 \text{ Pa}$)
- R : ガス定数
- s : 比エントロピー
- T : 絶対温度 (K)
- t : セ氏温度 ($^\circ\text{C}$) $= T - 273.15$
- V : モル容積 ($\text{m}^3\cdot\text{kmol}^{-1}$)
- v : 比容積 ($\text{cm}^3\cdot\text{g}^{-1}=10^{-3} \text{ m}^3\cdot\text{kg}^{-1}$)
- ρ : 密度 $= 1/v$

添 字

0: 理想気体状態

s: 飽和状態

eq: 近藤状態式による計算結果

1 kcal=4,1840 kJ で単位換算を行った。

2. 従来の PVT 性質に関する実験的研究

R12 の PVT 性質に関する実験的研究は、渡部ら¹⁶⁾が一部収集しているが、表1のように6例ほど報告されている。同表の各実験範囲を圧力、温度線図 (P-T 線図) に図示すると図1のようになる。

表1の各研究例の中では、Buffington ら²⁾の実験結果は実験精度の点でおとり、また McHarness ら¹⁷⁾は最も広い温度および圧力範囲で行っているが、その結果は比較的ばらつきが大きい。それに対し、Michels ら¹⁹⁾は臨界点近傍にも注目しながら多くの実測値を報告し、実測値間のまとまりは最もすぐれている。Kubota ら²¹⁾は Burnett 法によって実験を行い第2および第3ピリアル係数を求め、主要な圧力に対して圧縮係数を計算によって求めて報告している。したがって測定点数の欄には参考までに計算値の点数を示した。また、実験に使用した試料の成分や実験精度を記述した報告例が少なく、実測値の信頼性を判断しにくくしている。

図1から明らかなように、液体域には実測例が皆無であり、30°C 以下の蒸気の低温域にも実測値が存在しない。したがって冷凍機で発生する低温域や過冷却の状態 (液体域のことであって、湿り蒸気域内の過冷却現象のことではない) における PVT 性質の実測は行われていない。また実測値の存在する最高温度は約 210°C であり最高圧力は約 136 bar にのぼっているが、約 85 bar 以上では McHarness ら¹⁷⁾による実測値しか存在しないし、その実測値のばらつきも大きく信頼性におとると考

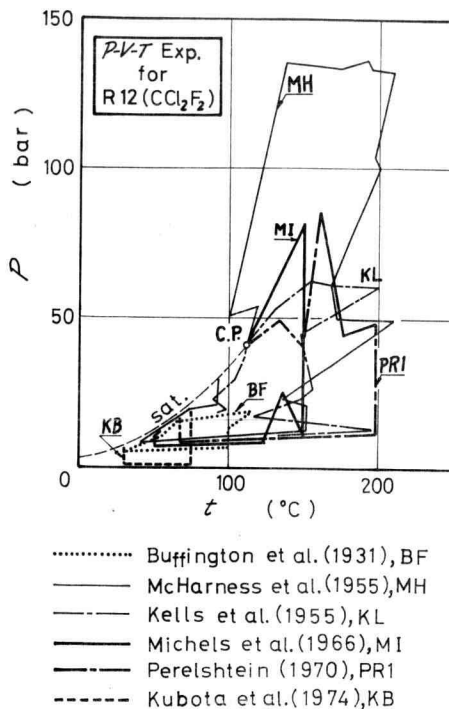


図1 Experimental Study of P-V-T Properties for R12 (CCl₂F₂)

えられる。

3. 従来の R12 の状態式作成に関する研究

R12 の状態式作成に関する研究は表2に示したように11例ほど報告されているが、Downing²⁸⁾によるものは McHarness ら¹⁷⁾により作成された状態式 (以後このような表わし方を McHarness 状態式と略記する) を引

表1 Experimental Values of P-V-T Properties for R12 (CCl₂F₂)

Investigator	Year	Temperature		Pressure		Specific Volume		Purity	No. of Data	Ref.
		Range	Accuracy	Range	Accuracy	Range	Accuracy			
		K		bar		cm ³ /g		%		
Buffington et al.	1931	303-399	1.0	5.5-18.9	0.03	11.8-44.6	0.3-1%	—	29	2
McHarness et al.	1955	310-483	0.01	8.4-136.5	0.3%	1.0-21.6	0.1	—	135	17
Kells et al.	1955	326-474	0.1	8.5-64.2	—	2.1-22.8	—	—	73	18
Michels et al.	1966	323-423	—	7.2-81.7	—	1.4-27.5	—	99.95	186	19
Perelshtein	1970	340-471	—	8.1-85.0	—	1.6-25.7	—	—	71	20
Kubota et al.	1974	303-348	—	-18.0	—	—	—	99.99	40	21

表 2 Equation of State for R12 (CCl_2F_2)

Investigator	Year	Source of P - V - T Data		Effective Range			Ref.
		Ref.	No. of Data	Temperature	Pressure	Sp. Vol.	
				K	bar	cm^3/g	
Buffington et al.	1931	2	29	303-399	5.5- 18.9	11.8-44.6	2
McHarness et al.	1955	2, 17	163	303-483	5.5-136.5	1.0-44.6	17
Kells et al.	1955	18	73	326-473	8.5- 64.2	2.1-22.8	18
Baehr et al.	1965	2, 17, 18	72	303-468	5.5- 27.5	7.7-34.6	22
Rombusch et al.	1966	2, 17, 18	243	303-483	5.5-136.5	1.0-44.6	23
Zagolchenko	1969	17, 18, 19	—	triple point —	—	0.9-	24
Morsy	1970	2, 17, 18, 19	429	303-473	5.5-136.5	1.0-44.6	25
Perelshtein	1970	18, 20	144	326-473	8.1-85.0	1.6-25.7	20
Perelshtein	1971	2, 17, 18, 19	429	-473	—	1.4-	26
Kondo et al.	1973	18, 19	259	323-473	7.2- 82.0	1.4-27.0	27
Downing	1974	2, 17	163	303-483	5.5-136.5	1.0-44.6	28

用したものであるから結局 10 例ということになる。McHarness 状態式は ASHRAE (American Society of Heating, Refrigerating and Air-Conditioning Engineers の略) 発行の *Thermodynamic Properties of Refrigerants* (1969)⁶⁾ の基礎式であり, Perelshtein 状態式 (1971) は NEL (National Engineering Laboratory の略) 発行の *Thermophysical Properties of Refrigerant R 12* (1975)¹¹⁾ の基礎式である。表 2 には各状態式作成に使用した基礎データとその状態式の適用範囲も示した。

状態式は, 作成するときその基礎データとしてどの研究者の実測値を採用したか, どの実測値を重視したか, 状態式の成立する温度および圧力範囲をどこに採ったか, またどのような条件を考慮して作成したかなどによって影響されるので, 実験的研究と状態式作成の研究との関連性を知ることは有意義なことであろう。したがって, 表 3 に各研究例を年代順に列挙した。

4. PVT 性質の実測値と状態式の比較

PVT 性質の実測値と状態式の比較を行うためには, 基準とすべき状態式を選定し, その状態式からの偏差を比較することによって各状態式および各実測値の比較検討を行うのが良い。基準とする状態式は, 広い温度および圧力範囲にわたって成立し, しかも実測値を最も良く表示していることが望ましい。表 2 の状態式の中では, McHarness 状態式, Rombusch 状態式, Zagolchenko 状態式および Morsy 状態式が最も成立範囲は広い。しかし約 85 bar 以上では McHarness ら¹⁷⁾による実測値しか存在せず, しかも比較的ばらつきが大きいため, この範

表 3 Explanation of Symbols

Investigator	Year	Explanation of Symbols			Ref.
		Exp. Data	Eq. of State	Abbr.	
<i>P-V-T Properties</i>					
Buffington et al.	1931	◇	B F	2
McHarness et al.	1955	△	————	MH	17
Kells et al.	1955	●	— — —	KL	18
Baehr et al.	1965		-----	BR	22
Rombusch et al.	1966		— — — —	RM	23
Michels et al.	1966	○	————	MI	19
Zagolchenko	1969		-----	Z G	24
Morsy	1970		-----	MS	25
Perelshtein	1970	◐	— — —	PR 1	20
Perelshtein	1971		————	PR 2	26
Kondo et al.	1973		base	KD	27
Kubota et al.	1974	□		KB	21
<i>Isobaric Specific Heat Capacity, c_p</i>					
Ernst	1967	●		ER	29

囲も表示するように作成された状態式は臨界点近傍も含めそのばらつきの影響をうけている。冷凍機などの応用面を考慮すると 85 bar 以上の領域を使用することが少ないので, 基準式として近藤状態式を使用し可能なかぎりその適用範囲外にも延長し高圧域においても比較した。

図 2 にその比較結果を示した。蒸気域における比較で



Buffington 状態式²⁾は Buffington らの実測値²⁾をよく表示しており、彼らの実測値しかなかった当時としては良い状態式と言えるが、その後報告された実測値を十分には表示していない。実験精度も考慮すると Buffington

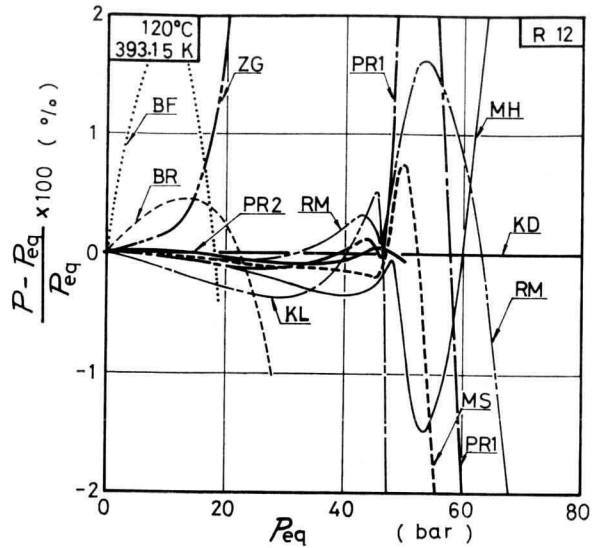


図 2-5

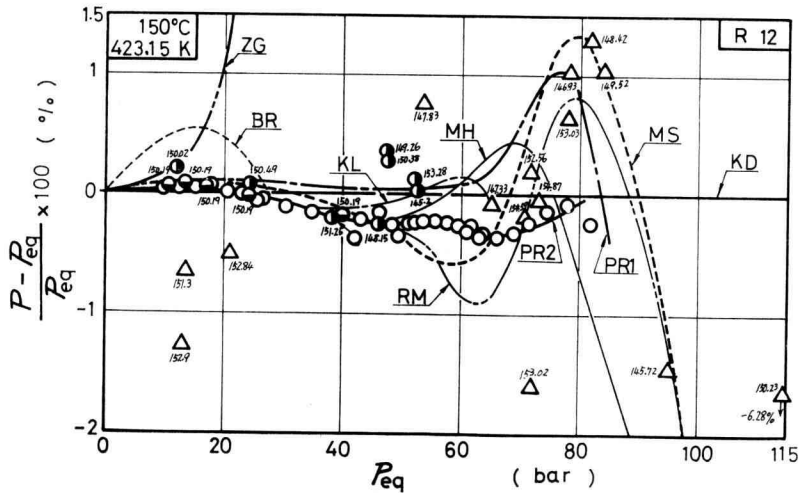
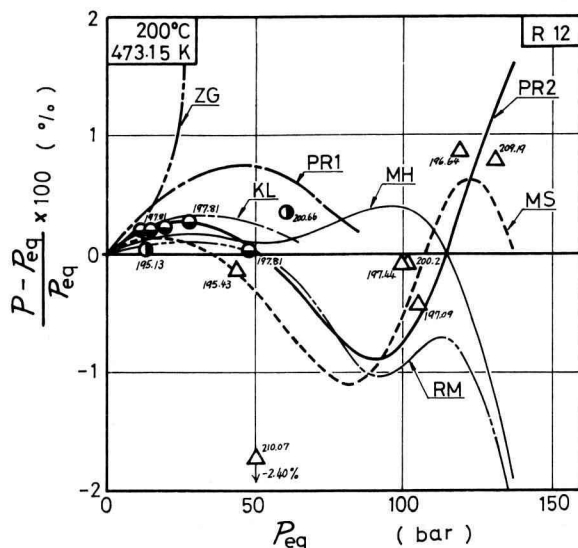


図 2-6

らの実測値は信頼性におとり、Buffington 状態式も現在の技術目的には不適當であろう。

McHarness らの実測値¹⁷⁾は 40 bar 以下において他の実測値より圧力が低めに測定されており、全測定範囲にわたってばらつきが大きい。しかし、McHarness 状態式¹⁷⁾は 40 bar 以下の実測値を無理に表示しようとせず、他の状態式に比較していくぶん圧力が低めではあるが、Buffington らおよび McHarness らによる実測値しか報

告されていなかった当時としてはその後の実測値に比較的合致した良い状態式であった。したがって、臨界温度(約 112°C)以下で 50 bar 以下の蒸気域においては、約 0.5% 以内の信頼性をもって今日でも使用することができよう。しかし、図 2 の 120°C、150°C および 200°C の等温線に沿った比較から、彼らの実測値がばらつきが大きいとは言え、その傾向を十分に表示していないことがわからう。



Kells らの実測値¹⁸⁾は, Michels 人や Perelshtein の実測値とよく一致した比較的精度の良い実測値と考えられる。しかし, 図2からわかるように, Kells らの状態式¹⁸⁾は彼らの実測値を十分に表示することができず, 120°C 以下では低めの圧力を与えている。

Baehr らの状態式²²⁾は Buffington らの実測値を考慮しているため低圧域で高めの圧力を与え、McHarness らの実測値の影響で圧力が高くなるにつれ低めの圧力を与えるように作成されている。したがって、図 2 から判断すると、Kells らの実測値の傾向を重視しなかったように考えられ、Michels らや Perelshtein の実測値とも異なった傾向を与える結果となり、信頼性にやや欠けると思われる。

Rombusch らの状態式²³⁾は, Baehr らと同じ基礎データを使用して作成されているが, 100°C の 25 bar 以上, 150°C の 50~70 bar および 200°C の 50 bar 以上の領域を除くと実測値をよく表示している。

Michels らの実測値¹⁹⁾は, Kells らおよび Perelshtein の実測値と傾向がよく合致し, 実測値間のまとまりも良い。臨界点近傍では, 他に実測値がないので精度は不確かであるが, 150°C の 70 bar 以上では McHarness らと 1% 近くの相違があることを考えると, 高温および高压域にも実測値があればさらに良い精度で状態式を作成することができよう。

Zagolchenko 状態式²⁴⁾は、次節の定圧比熱の比較で良い結果を与えているので、文献²⁴⁾中の定数のうち、符号

か値に誤植があると思われる。文献²⁴⁾中には広範囲にわたって精度の良い状態式であると述べられている。

Morsy 状態式²⁵⁾は Michels らの実測値も考慮して作成されたものであり、臨界点近傍を除いて Rombusch 状態式よりもさらに良く実測値を表示している。しかし広範囲にわたって成立するように作成されているため、McHarness らの実測値の影響を強く受けているので高温域において信頼性にやや欠けるところがある。

Perelshtein の実測値²⁰⁾は Michels らの実測値と きわめてよい一致を示している。さらに高圧域に実測値のないことが惜まれる。

Perelshtein 状態式 (1970)²⁰⁾は Perelshtein の実測値と Kells の実測値を考慮しているため、150°C においては Kells の実測値の影響を強く受けていることがわかる。しかし、Perelshtein 状態式 (1971)²⁶⁾は Michels らの実測値も考慮して作成されており、高圧域では McHarness らの実測値の傾向も考慮しているので、図2の比較結果としてはその適用範囲内で最も良く各実測値を表示していると言える。

図2の比較の基準とした近藤状態式²⁷⁾は、その適用範囲にわたって良く実測値を表示しているが、適用範囲外の高圧域に延長することは避ける必要があろう。

Kubota らの実測値²¹⁾は Burnett 法により求めたものであるが、低圧域の実測値をどの程度重視するか、また装置定数をいかに定めるかなどによって Burnett 法による圧縮係数の結果は異なってくることが多く、Michels ら

の実測値および Perelshtein の実測値とは異なった傾向を示している。

以上をまとめると、Michels らおよび Perelshtein の実測値はよく一致し、Kells らの実測値はそれらより圧力が高めに測定されているが、これら 3 者の実測値に高い評価を与えることができよう。また状態式については、85 bar 以下の圧力範囲で考えると、Perelshtein 状態式 (1971)、近藤状態式および Morsy 状態式が比較的良く、ついで Rombusch 状態式および McHarness 状態式なども使用目的によっては利用できよう。

なお、図 2 の 120°C 等温線については、実測値が密集しているので状態式の比較だけを別図として示した。

5. 定圧比熱および定容比熱の比較

状態式は単に PVT 性質を計算するためばかりではなく、エンタルピあるいはエントロピなど熱量的状態量を

求めるための基礎式である。したがって状態式の良否は熱量的状態量についても比較しなければ判断できないであろう。そこで定圧比熱および定容比熱について比較を行った。

状態式が $P=P(v, T)$ の形で与えられたとき、定容比熱および定圧比熱はそれぞれ

$$c_v = c_{p0} - R + T \int_{\infty}^v \left(\frac{\partial^2 P}{\partial T^2} \right) dv \quad (1)$$

および

$$c_p = c_v - T \frac{\left(\frac{\partial P}{\partial T} \right)^2}{\left(\frac{\partial P}{\partial v} \right)_T} \quad (2)$$

で求められる。この計算を行うためには理想気体状態における定圧比熱 c_{p0} の表示式が必要であるが、本研究では次式を使用した³⁰⁾。

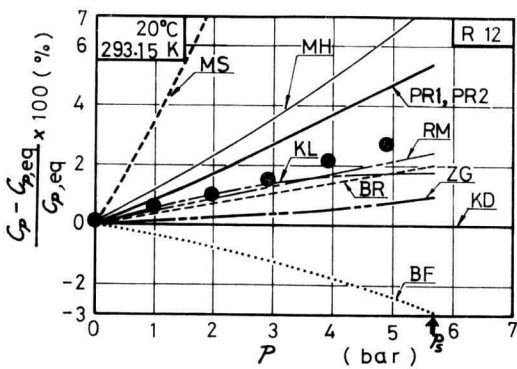


図 3-1

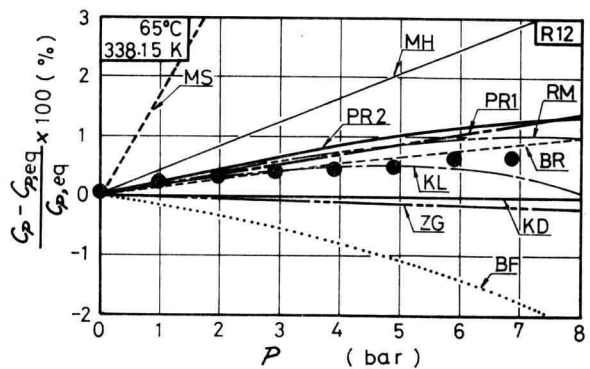


図 3-3

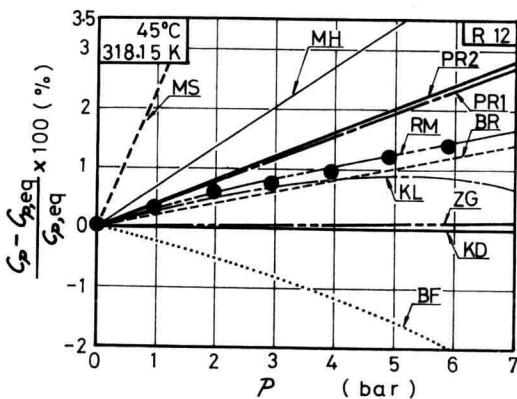


図 3-2

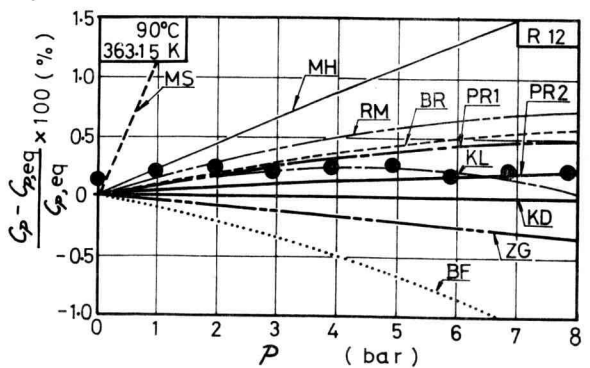


図 3-4

図 3 Comparison of Experimental c_p Data and Derived Equations

すなわち

$$c_{p0} = 0.11666163 + 2.3799428 \times 10^{-3}T \\ - 2.9478748 \times 10^{-6}T^2 + 1.3728206 \times 10^{-9}T^3 \quad (3)$$

であり, $\text{kJ} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ で求められる。

定圧比熱の実測値は, 広い温度および圧力範囲にわたって Ernst²⁹⁾によって求められているが, 圧力 8 bar 以下で温度 20~90°C の範囲であり, それ以外の範囲では実験精度の良い実測値を入手していない。したがって, 表 2 に示した全状態式に対し, 式 (1)~(3) を使用して, Ernst の実測値と比較し図 3 に示した。同図の基準は図 2 と同様, 近藤状態式から求めた定圧比熱の値である。

図 3 の比較では, 65°C 以下では Rombusch 状態式, Baehr 状態式および Kells 状態式が実測値とよく一致している。また PVT 性質の比較で比較的良好な結果を示していた Perelshtein 状態式と近藤状態式は実測値と 1~2% 相違し, Perelshtein 状態式は実測値より大きな定圧比熱を与え, 近藤状態式は小さな値を与えている。

したがって, PVT 性質の比較結果を考慮すると, 定圧比熱は 1~2% 程度の精度であるが Perelshtein 状態式あるいは近藤状態式を使用するのが好ましい。

次に図 4 に 120°C における定容比熱の計算結果を示した。定容比熱の精度の良い実測値は皆無であり, 状態式の良否を判断する資料としては十分ではないが他の等温線についてもほぼ同様の傾向を示している。120°C の等温線では極大値をもつようになるが, 他の物質に対する同様の傾向から判断して, Rombusch 状態式よりも Perelshtein 状態式 (1971) の傾向の方が正しいと考えら

れる。約 45~50 bar 以下の範囲では Perelshtein 状態式 (1971) と近藤状態式とは 2% 程度の偏差があり, それ以上の圧力では偏差は極めて大きくなる。したがって, 高圧域における定容比熱を正しく求められる状態式を作成するためには, まず精度の良い実測値を求める必要がある。

表 2 の状態式を使用して定容比熱を 2% 程度の精度で求めるためには, 約 45~50 bar 以下の圧力範囲にとどめなければならない。ただし臨界点近傍においては, さらに大きな偏差が生ずるので除外して考えなければならない。

6. 音速の比較

状態式から音速を求めるには,

$$a = \sqrt{\left(\frac{\partial P}{\partial \rho}\right)_s} = \sqrt{\frac{c_p}{c_v} \left(\frac{\partial P}{\partial \rho}\right)_T} \\ = \sqrt{-\frac{c_p}{c_v} v^2 \left(\frac{\partial P}{\partial v}\right)_T} \quad (4)$$

を使用するが, このとき圧力の単位を十分考えなければならない。

表 2 の状態式から求めた音速について, 定圧比熱の偏差と対応して比較するために, 図 3 と同様の範囲で求めると図 5 のようになる。同図によると, 定圧比熱では Rombusch 状態式, Baehr 状態式および Kells 状態式が比較的良好に一致していたが, 音速ではそれらの状態式は相互にまったく異なり, 定圧比熱と音速の相違が明らかである。しかし Perelshtein 状態式, 近藤状態式および

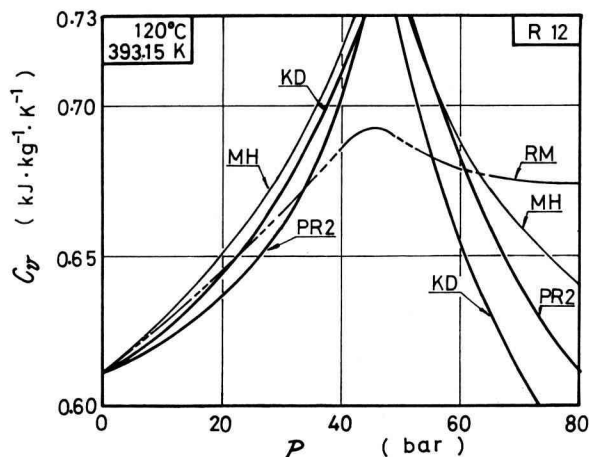


図 4 Comparison of Derived c_v Values

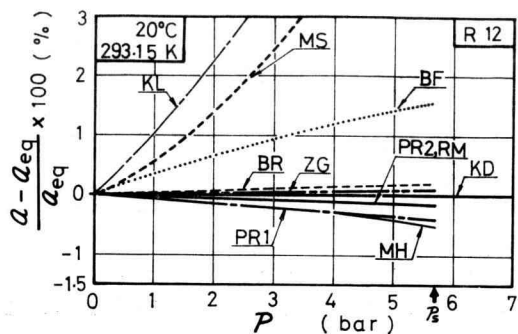


図 5-1

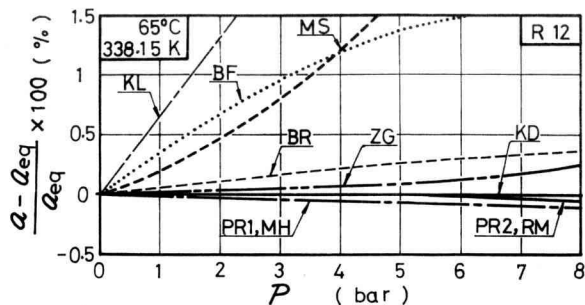


図 5-3

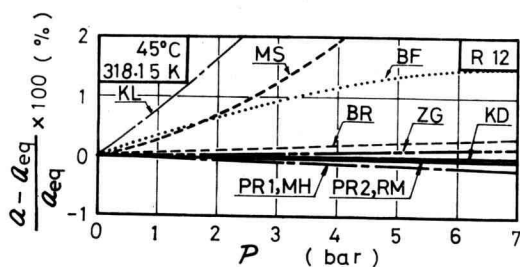


図 5-2

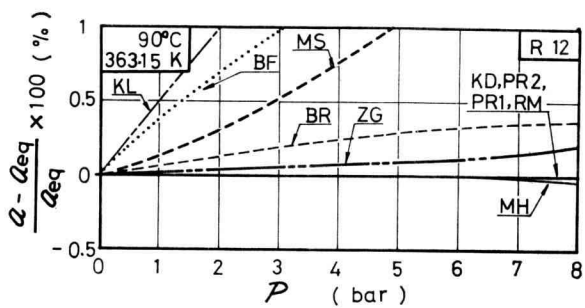


図 5-4

図 5 Comparison of Derived Acoustic Velocity

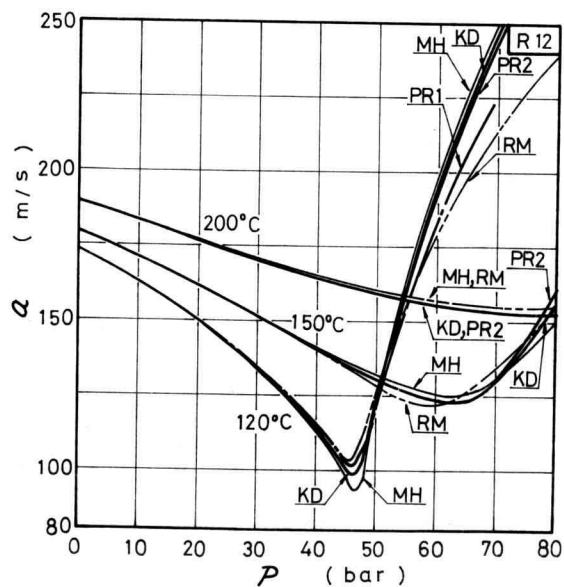


図 6 Acoustic Velocity

Rombusch 状態式は, 定圧比熱は相違していたが音速はほとんど一致した値を与えている。しかし, 高圧域においては図6に示したようにそれらの状態式相互間に大きな相違が見られる。図6には, 120°C , 150°C および 200°C の音速を示したが, 120°C の高圧域においてその相違はいちじるしく, 定容比熱ともよく対応している。

以上より, 低圧域における音速は良く一致しているが, 約 45 bar 以上の高圧域においては状態式相互間に大きな相違が見られ, その領域には音速の実測値が皆無であるため, 高圧域において信頼性ある状態式を決定することが困難である。

7. あとがき

結論として, 表2の状態式の中で, 温度 200°C 以下, 圧力 85 bar 以下および比容積約 $1.8\text{ cm}^3/\text{g}$ (ほぼ臨界比容積) 以上の蒸気域においては, 臨界点近傍を除いて, Perelshtein 状態式あるいは近藤状態式を高く評価することができよう。また熱量的状態量の実験的研究例がきわめて少なく, 臨界点近傍における定容比熱の実測をはじめ, 多くの実験的研究が望まれる。同時に高圧域および液体域の PVT 性質についても実験的研究が望まれる。

おわりに, 田中岳秋君 (慶応義塾大学大学院生) には PVT 性質の大部分の実測値を電子計算機用にデータバンクしていただいた。ここに感謝の意を表する次第である。

文 献

- 1) Midgley, T., Jr. and Henne, A.L., *Ind. Eng. Chem.*, **22-5** (1930), 542.
- 2) Buffington, R.M. and Gilkey, W.K., *Ind. Eng. Chem.*, **23-3** (1931), 254.
- 3) Gilkey, W.K., Gerard, F.W. and Bixler, M.E., *Ind. Eng. Chem.*, **23-4** (1931), 364.
- 4) Bichowsky, F.R. and Gilkey, W.K., *Ind. Eng. Chem.*, **23-4** (1931), 366.
- 5) Buffington, R.M. and Fleischer, J., *Ind. Eng. Chem.*, **23-11** (1931), 1290.
- 6) Buffington, R.M. and Gilkey, W.K., *Ind. Eng. Chem.*, **23-11** (1931), 1292.
- 7) Plank, R., "*Handbuch der Kältetechnik*", **4**, Berlin, Springer-Verlag (1956).
- 8) "*ASHRAE Thermodynamic Properties of Refrigerants*", ASHRAE, New York (1969).
- 9) "*ASHRAE Handbook of Fundamentals*", ASHRAE, New York (1972).
- 10) ASHRAE-TPRC, "*Thermophysical Properties of Refrigerants*", ASHRAE, New York (1973).
- 11) "*Thermophysical Properties of Refrigerant R 12*", National Engineering Laboratory (1975).
- 12) Bogdanov, C.N., Ivanov, O.P. and Kupriyanova, A.V., "*Svoistva rabochikh veshchestv, teplonositelei i materialov, ispolizuemikh v kholodilnoi tekhnike*", Izd. Leningradskogo Univ. (1972).
- 13) Tomanovskaya, V.F. and Kolotova, B.E., "*Freony, svoistva i primeneniye*", Izd. Khimiya, Leningradskoe otделение (1970).
- 14) Ražnjević, K., "*Tables et Diagrammes Thermodynamiques*", Eyrolles, Paris (1970).
- 15) Dvořák, Z. and Petrák, J., "*Tepelné vlastnosti chladiva R 11, R 12, R 13, R 21, R 22, R 502*", ČVTS-Strojnická společnost, ČVUT-fakulta strojní, Praha (1975).
- 16) 渡部, 田中, 小口, 第17回高圧討論会講演要旨集, (1976-10), 1 C 03.
- 17) McHarness, R.C., Eiseman, B.J., Jr. and Martin, J.J., *Ref. Engng.*, **63-10** (1955), 31.
- 18) Kells, L.F., Orfeo, S.R. and Mears, W.H., *Ref. Engng.*, **63-10** (1955), 46.
- 19) Michels, A., Wassenaar, T., Wolkers, G.J., Prins, CHR. and Klundert, L.v.d., *J. Chem. Eng. Data*, **11-4** (1966), 449.
- 20) Perelshtein, I.I., "*Thermophysical Properties of Matter and Substances*", **2**, edited by V.A. Rabinovich, GSSSD (1970), 172.
- 21) Kubota, H., Tanaka, Y. and Makita, T., *Proc. 4th Intern. Conf. High Press.*, Kyoto (1974), 538.
- 22) Baehr, H.D. and Hicken, E., *Kältetechn.*, **17-5** (1965), 143.
- 23) Rombusch, U.K. and Giesen, H., *Kälte.-Klim.*, **18-2** (1966), 37.
- 24) Zagolchenko, V.A., *Kholod. Tekhn.*, **46-3** (1969) 34.
- 25) Morsy, T.E., *J. Chem. Eng. Data*, **15-2** (1970) 256.
- 26) Perelshtein, I.I., "*Thermophysical Properties of Matter and Substances*", **4**, GSSSD, Moscow (1971), 65.
- 27) 近藤, 渡部, 谷下, 日本機械学会論文集 (第2部), **39-326** (1973), 3124.
- 28) Kondo, H., Watanabe, K. and Tanishita, I., *Bull. Japan Soc. Mech. Engrs.*, **17-108** (1974), 783.
- 29) Downing, R.C., *ASHRAE Trans.*, **80** (Part II) (1974), 158.
- 30) Ernst, G., *Dissertation*, Universität Karlsruhe. (1967).
- 31) "*Thermophysical Properties of Matter (TPRC Data Series)*", Vol. 5 (Specific Heat, Nonmetallic Solids), edited by Touloukian, Y.S., (1970), 206.