

研究論文

化学反応を利用した太陽熱エネルギー技術に関する研究

— 2プロパノール分解反応過程の解析 —

Study on solar thermal energy system with chemical reactions

— Analysis of 2-Propanol dehydrogenation process —

土 井 卓 也*

Takuya DOI

田 中 忠 良*

Tadayoshi TANAKA

池 田 長 康**

Nagayasu IKEDA

堀 米 孝***

Takashi HORIGOME

Abstract

It is difficult to constantly get high-level thermal energy from the sun due to poor solar condition such as in Japan. However, it is easy to get low-level thermal energy. In this paper, a new solar system utilizing chemical heat pump was proposed for upgrading low-level thermal energy from the sun. The chemical reaction we adopted was 2-propanol/aceton/hydrogen system. The solar chemical system is composed of solar collector, rectification tower and total condenser. The heat from the solar collector under 80°C is absorbed by endothermic dehydrogenation of 2-propanol in liquid phase, and the heat of about 200°C is obtained by exothermic hydrogenation of acetone in gas phase. For the basic research of this system, we analyzed the dehydrogenation of 2-propanol, using an analytical model. It is found that the amount of chemical products of acetone and hydrogen depends on the reaction temperature and the amount of catalyst.

Key words : solar energy, chemical heat pump

1. 緒言

エネルギー危機が叫ばれて久しくなるが、原油の価格・供給量の安定、天然ガスの利用、そして原子力発電の著しい伸びにより、エネルギーの消費は確実に増え続け、エネルギーに対する危機感は薄らいだように見えた。ところが、1986年の切尔ノブイリ原発事故以来、原子力発電所の安全性や放射性廃棄物の処理の問題があらためて考えられるようになってきた。また近年、炭酸ガス等による地球の温暖化やフロンガスによるオゾン層の破壊など、地球規模での環境保全も重要な問題となっている。このような状況の中、再び注目されたのが、本質的にクリーンな自然エネルギー、特に太陽エネルギーの利用である。

わが国では、1973年の第1次オイルショック以来、サンシャイン計画において、石油に替わる無公害なエネルギー資源の開発が行われてきた。その一つとして、太陽エネルギー利用の研究開発が進められてき

たが、エネルギー密度が小さいこと、季節や天候により入射エネルギーが変動することから、太陽エネルギーは使い難い資源となっている。特にわが国は日射条件が良くないため、太陽から絶えず高温の熱を得ることは困難である。しかしながら、日射条件の悪いわが国でも低温の熱は得易い。そこで、本稿では低温の太陽熱を化学反応によって昇温し、多目的に利用する方法について述べ、その代表的な例としてNi触媒を用いた2-プロパノールの分解反応過程の解析を行ったので報告する。

* 電子技術総合研究所エネルギー部

Energy Division, Electrotechnical Laboratory.

** 富山大学工学部、教授

Faculty of Engineering, Toyama University

*** 東京農工大学工学部、教授

Faculty of Engineering, Tokyo University of Agriculture and Technology.

主な記号

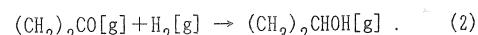
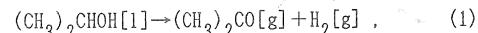
- A : コレクタ面積[m²]
 D : 塔頂留出液量[mol/h]
 F : 供給液量[mol/h]
 L : 塔内下降液量[mol/h]
 m : 触媒量[g]
 Q_o : コレクタで得られる熱量[kJ/h]
 Q_c : 凝縮器で奪われる熱量[kJ/h]
 Q_r : 反応に使われる熱量[kJ/h]
 Q_v : 蒸発に使われる熱量[kJ/h]
 q_o : 日射量[kJ/m²h]
 q_A : アセトン蒸発熱[kJ/mol]
 q_B : 2-プロパノール蒸発熱[kJ/mol]
 q_r : 反応熱[kJ/mol]
 T : 反応槽の温度[°C]
 u : 反応速度[mol/hg]
 V : 塔内上昇蒸気量[mol/h]
 V_w : 蒸発による蒸気量[mol/h]
 X' : y' と気液平衡にある液相アセトンモル分率
 X_D : 塔頂留出液のアセトンモル分率
 X_F : 供給液のアセトンモル分率
 X_n : 反応槽へ向かう下降液のアセトンモル分率
 X_w : 反応槽内の液相アセトンモル分率
 y : 凝縮器へ向かう蒸気のアセトンモル分率
 y' : 蒸留塔へ向かう蒸気のアセトンモル分率
 y_w : 反応槽内の気相アセトンモル分率
 η : コレクタ効率

2. 化学反応利用ソーラシステム

太陽熱の利用を考えるとき、日射の変動という問題があり、これはエネルギー変換上不利である。この変動を吸収するためには、太陽からのエネルギーを一時的に何らかの形で蓄え、必要に応じて必要な形で取り出すという方法を取らねばならない。また、太陽エネルギーに限らず、自然エネルギーは一般にエネルギー密度が小さいという問題もあり、この希薄なエネルギーを集積する必要がある。このような問題に対し、ソーラコレクタとケミカルヒートポンプを組み合わせることにより、太陽熱の昇温が可能となり、また、反応に使われる化学物質を貯蔵することにより、日射の変動を吸収することも可能である。さらに、貯蔵及び輸送

を熱の形で行わないため、長時間の貯蔵や長距離の輸送にも十分耐え得るシステムであると考えられる。

本提案のソーラシステムは、反応器としての機能を持つ集熱器と、化学反応熱を利用するケミカルヒートポンプを組み合わせたシステムである。ケミカルヒートポンプは、次式で示される斎藤ら¹⁾の提案した2-プロパノール/アセトン/水素系である。



本ソーラシステムの概念図を図1に示す。低温側の反応槽では、微粉金属ニッケル触媒の存在下、式(1)に示される液相脱水素反応により、2-プロパノールがアセトンと水素に分解され、それぞれ貯蔵槽に一旦蓄えられる。この脱水素反応は約60～80°Cで進行する吸熱反応($\Delta H^\circ = 100.4\text{ kJ/mol}$)であり、反応に必要な熱はソーラコレクタより供給される。一方、貯蔵されたアセトン及び水素は、必要に応じて高温側反応槽に送られ、活性炭または多孔性アルミナにニッケル超微粒子を担持した触媒を用い、式(2)に示される気相水素化反応により、2-プロパノールが生成される。この水素化反応は発熱反応($\Delta H^\circ = -55.0\text{ kJ/mol}$)であり、約200°Cの反応熱が得られる。生成された2-プロパノールは、貯蔵槽に蓄えられた後、低温側反応槽へ戻される。

このような、ケミカルヒートポンプを利用したソーラシステムにより、低温の太陽熱を約200°Cまで昇温することが可能となり、この熱を発電、産業用等多目的に利用することができる。

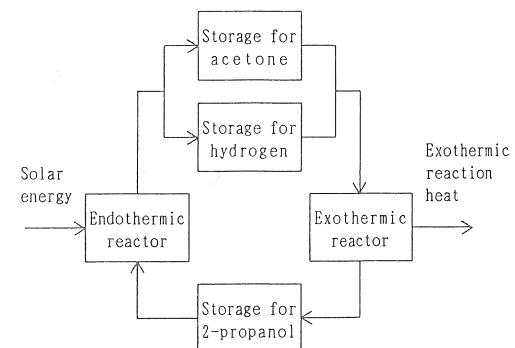


図1 概念図

3. 解析モデルと計算方法

2-プロパノール分解反応過程の解析に用いるモデルを図2に示す。この化学反応を利用したソーラシステムは、2-プロパノール分解反応を行うコレクタ部、2-プロパノール蒸気を回収する精留塔及びアセトン蒸気の凝縮を行う凝縮器から構成されている。コレクタ部は分解反応を行う反応槽であるとともに、精留塔のリボイラでもある。図2において、Vは塔内上昇蒸気量、Lは塔内下降液量、Dは塔頂留出液量、Fは供給液量である。 x_n 、 x_w 及び x_F は液相アセトンモル分率、y及び y' は気相アセトンモル分率である。また、 x_w は反応槽内の液相アセトンモル分率である。

原料の2-プロパノールは、コレクタで得られる熱量 Q_0 で加熱され、触媒の作用により、アセトンと水素に分解される。反応槽内の液相には、原料の2-プロパノールの他に還流液及び供給液のアセトンも含まれる。反応槽内の気相には、2-プロパノールの分解により生成されるアセトン及び水素、そして、液相の蒸発によるアセトン及び2-プロパノールが存在する。気相の水素は、このモデルで扱う温度領域では凝縮しないため、気液平衡には関与しないとする（仮定I）。反応槽内の液相は、飽和液であるとする（仮定II）。反応槽内の気相における蒸発によるアセトン及び2-プロパノールは、液相と気液平衡にあるとする（仮定III）。このとき、槽内の温度とアセトンモル分率の関係は、定圧温度組成関係（ $T - x, y$ 線図）により与えられる。反応槽を出た蒸気Vは精留塔内を上昇し、塔頂部から凝縮器を通り、ここで全凝縮し、塔頂留出液Dと還流液Lに分けられる。このとき、凝縮器は塔頂蒸気の潜熱 Q_c だけを奪い、それ以上は冷却しないものとする（仮定IV）。還流液は塔内に戻され、塔を下降する間に上昇蒸気と十分接触し、熱交換及び物質移動が行われ、液相の低沸成分は気相へ、気相の高沸成分は液相へ移る。原料は、飽和液で供給するものとする（仮定V）。系は定常状態であるとする（仮定VI）。蒸留の理論における等モル流の原理²⁾が成り立つとする（仮定VII）。

このとき、精留塔及び凝縮器まわりにおける物質収支とそのアセトン成分は次のようになる（ただし、水素は含まない）。

$$V = L + D \quad (3)$$

$$V y' = L x_n + D x_D \quad (4)$$

ここで、Vは反応槽から精留塔への上昇蒸気量[mol/h]、

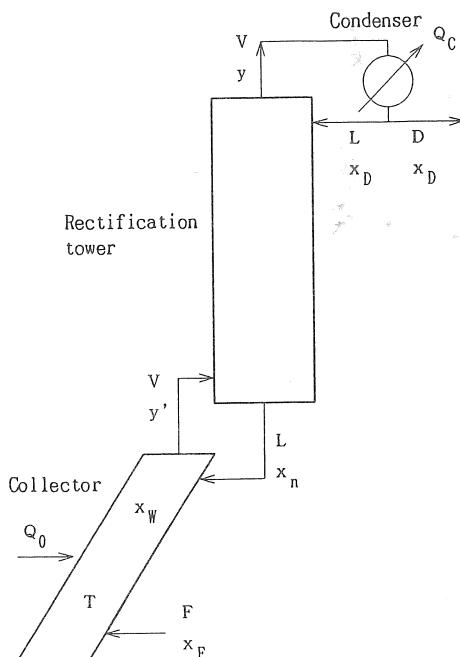


図2 解析モデル

Lは精留塔から反応槽への下降液量[mol/h]、Dは塔頂留出液量[mol/h]、 y' は上昇蒸気のアセトンモル分率、 x_n は下降液のアセトンモル分率、 x_D は塔頂留出液のアセトンモル分率である。上昇蒸気Vは、反応によるアセトンと蒸発によるアセトン及び2-プロパノールからなるので、蒸発による蒸気量を V_w 、液相(x_w)と気液平衡にある気相のアセトンモル分率を y_w 、触媒量を $m[g]$ 、反応速度を $u [mol/hg]$ とすれば、V、 y' は次のように書ける。

$$V = V_w + mu \quad (5)$$

$$y' = \frac{V_w y_w + mu}{V_w + mu} \quad (6)$$

従って、式(3)及び式(4)は次のようになる。

$$V_w + mu = L + D \quad (7)$$

$$V_w y_w + mu = L x_n + D x_D \quad (8)$$

また、全体のエネルギー収支は、コレクタで得られる熱量（ $Q_0 = \eta A q_0$ ）は、反応に使われる熱量（ Q_r ）と蒸発に使われる熱量（ Q_v ）及び凝縮器で奪われる熱量（ Q_c ）の和であると考え、

$$\eta A q_0 = q_r m u + V_W \{q_A y_W + q_B (1 - y_W)\} + (L + D) \{q_A x_D + q_B (1 - x_D)\} \quad (9)$$

で与えられる。ここで、 η はコレクタ効率、A はコレクタ面積 [m^2]、 q_r は日射量 [$kJ/m^2 h$]、 q_r は反応熱 ($= 100.4$) [kJ/mol]、 q_A はアセトン蒸発熱 ($= 29.1$) [kJ/mol]、 q_B は 2-プロパノール蒸発熱 ($= 39.8$) [kJ/mol] である。式(7)～式(9)がこのモデルの基礎式であり、 V_W 、 L 及び D について解くと以下のようになる。

$$V_W = \frac{\eta A q_0 - m u (q_r + q_A x_D + q_B (1 - x_D))}{q_A y_W + q_B (1 - y_W) + q_A x_D + q_B (1 - x_D)}, \quad (10)$$

$$L = \frac{(V_W + m u) x_D - (V_W y_W + m u)}{x_D - x_n}, \quad (11)$$

$$D = \frac{V_W y_W + m u - (V_W + m u) x_n}{x_D - x_n}. \quad (12)$$

一方、反応槽まわりの物質収支及びそのアセトン成 分は、

$$L + F = V, \quad (13)$$

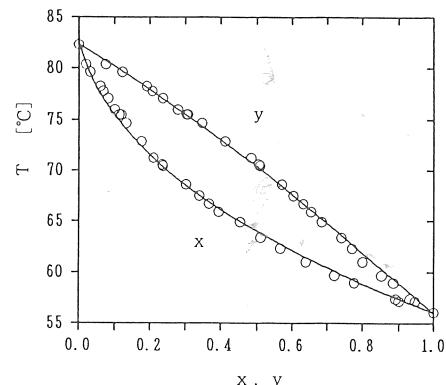
$$L x_n + F x_F = V_W y_W, \quad (14)$$

となる。ここで、F は供給液量 [mol/h]、 x_F は供給液 のアセトンモル分率である。式(3)及び式(13)より、 $F = D$ であり、これは定常状態の仮定と矛盾しない。式(14)より、供給液のアセトンモル分率は、

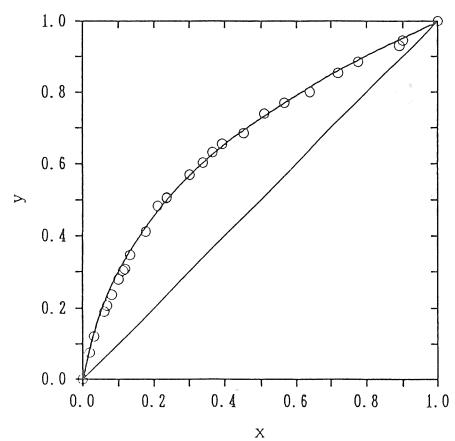
$$x_F = \frac{V_W y_W - L x_n}{D} \quad (15)$$

で与えられる。

計算は、コレクタ面積 $A = 1 [m^2]$ 、日射量 $q_r = 1800$ [$kJ/m^2 h$]、塔頂留出液のアセトンモル分率 $x_D = 0.95$ とし、反応槽の温度 T [$^\circ C$] と触媒量 m [g] を与え、式(10)～式(12)を解いて、 V_W 、 L 、 D を求めた。ただし、 x_W 及び y_W は、図 3-(a) に示す温度・組成関係を利用して求めた。気相モル分率 y' と気液平衡にある液相のアセトンモル分率 x' を、図 3-(b) に示す気液平衡関係から求め、 $x_n = (y' + x') / 2$ とした。これは、精留塔の還流比 (L/D) を最小還流比の 2 倍とすることに相当する。図 3-(a), (b) は、文献³⁾ に記されたデータを 3 次の最小自乗法で近似した曲線で



(a) 温度・組成関係



(b) 気液平衡関係

図 3 アセトン/2-プロパノール 2 成分系

ある。また、反応速度 u [mol/hg] は斎藤らの実験値²⁾ から、

$$u = 1/(650 x_W + 9.2) \quad (16)$$

で与え、コレクタ効率 η は、コレクタ内部の温度を反応槽の温度 T [$^\circ C$] とし、コレクタ周囲の温度を $25^\circ C$ としたとき、現在わが国で市販されている種々の平板コレクタの性能の平均的な値を与える次の関係式を用いた。

$$\eta = -3.938(T-25)/428.6 + 0.83 \quad (17)$$

4. 計算結果及び考察

触媒量 m は、 $50, 100, 150, 200, 250, 300$ [g] の場合について、反応槽温度 T を $60^\circ C$ から $0.01^\circ C$ 刻みで 2-プロ

ールの沸点である82.3°Cまで計算する。ただし、塔頂の温度が高くなると、供給液のアセトンモル分率が負になると、その温度以上の計算は行わないとした。これは式(15)及び式(8)から分かるよ、塔頂から出て行くアセトンは反応によるアセト酸でまかなわれるため、アセトンを反応槽へ供給が必要がなくなったためである。またこのとき、反応槽の液相が飽和液であるのに必要なアセトンは、塔頂精留塔間を循環していることになる。

図4-(a), (b), (c)に、それぞれ、蒸発蒸気量 V_w 、還流量 L 、塔頂留出液量 D と反応槽の温度 T との関係です。これらの図から、反応槽の温度が高くなるに伴い、 V_w , L , D ともに減少すること、また、触媒量 m が増すと、 V_w , L の変化は著しいが、 D の変化はわずかであることなどが分かる。さらに、触媒量が増すと、 $x_F=0$ となる温度 (T_{CR} とする) は低くなることが分かる。これは、反応槽の温度が高いほど、また量を増すほど、分解反応によるアセトン蒸気量が増加し、従って、蒸発蒸気量が減少するためと考えられる(図5-(b)参照)。

図5-(a), (b) は、それぞれ、アセトンの塔底下降液 x_n 、アセトンの塔頂留出液量 D と反応槽の温度 T の関係である。図5-(b)には、参考のため分解反応より発生するアセトン蒸気量 m_u (これは水素の量に等しい) も示してある。これらの図から、反応槽の温度 T が高くなると、 L , x_n , D , x_D ともに減少することが分かる。アセトンの発生量は、温度が低い方が大きいが、このほとんどは蒸発によるものであり、ケミカルヒートポンプとして利用する場合、その発生量も重要であり、アセトンと水素が等モルの方が効率がよい。即ち、図5-(b)において、 m_u の曲線と m_u の曲線の交点で反応を行う方がよいこの温度は先の T_{CR} と一致することが分かる。

図6-(a), (b) にコレクタで得られる熱量 Q_r 、反応槽内にコレクタで得られる熱量 Q_c 、蒸発に使われる熱量 Q_v 、凝縮器で奪取される熱量 Q_s と反応槽の温度 T との関係を、触媒量 m が50[g] 及び 300[g] の場合について示す。コレクタで得られる熱量 Q_r は、反応槽の温度上昇に伴いコレクタ率が低下するため、図のように減少する。反応槽の温度が高くなると、反応速度が大きくなるため、反応槽に使われる熱量 Q_c は大きくなる。一方、蒸発に使われる熱量 Q_v 及び凝縮器で奪取される熱量 Q_s は Q_r の減少により図のように減少する。 $m=50[g]$ の場合に比べ、 $m=300[g]$ の場合の方が、コレクタで得られる熱量 Q_r に対する反応槽に使われる熱量 Q_c の割合が大きいことが分かる。また、触媒量が増加すると、

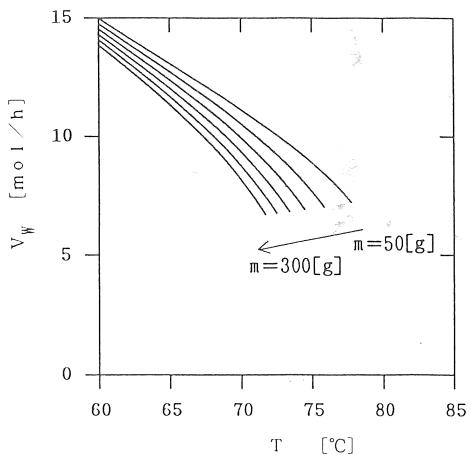


図4-(a) 蒸発蒸気量と反応槽温度の関係

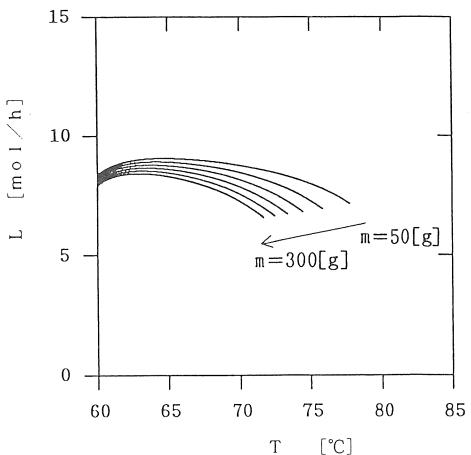


図4-(b) 還流液量と反応槽温度の関係

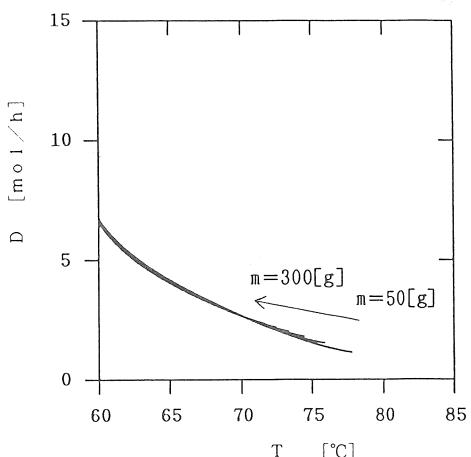


図4-(c) 塔頂留出液量と反応槽温度の関係

$$\eta A q_0 = q_r m u + V_W \{q_A y_W + q_B (1 - y_W)\} + (L + D) \{q_A x_D + q_B (1 - x_D)\} \quad (9)$$

で与えられる。ここで、 η はコレクタ効率、A はコレクタ面積 [m^2]、 q_r は日射量 [$kJ/m^2 h$]、 q_r は反応熱 ($= 100.4$) [kJ/mol]、 q_A はアセトン蒸発熱 ($= 29.1$) [kJ/mol]、 q_B は 2-プロパノール蒸発熱 ($= 39.8$) [kJ/mol] である。式(7)～式(9)がこのモデルの基礎式であり、 V_w , L 及び D について解くと以下のようになる。

$$V_w = \frac{\eta A q_0 - m u \{q_r + q_A x_D + q_B (1 - x_D)\}}{q_A y_W + q_B (1 - y_W) + q_A x_D + q_B (1 - x_D)}, \quad (10)$$

$$L = \frac{(V_w + m u) x_D - (V_w y_W + m u)}{x_D - x_n}, \quad (11)$$

$$D = \frac{V_w y_W + m u - (V_w + m u) x_n}{x_D - x_n}. \quad (12)$$

一方、反応槽まわりの物質収支及びそのアセトン成分は、

$$L + F = V, \quad (13)$$

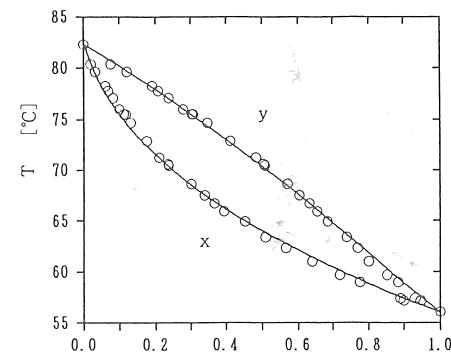
$$L x_n + F x_F = V_w y_W, \quad (14)$$

となる。ここで、F は供給液量 [mol/h]、 x_F は供給液のアセトンモル分率である。式(3)及び式(13)より、 $F = D$ であり、これは定常状態の仮定と矛盾しない。式(14)より、供給液のアセトンモル分率は、

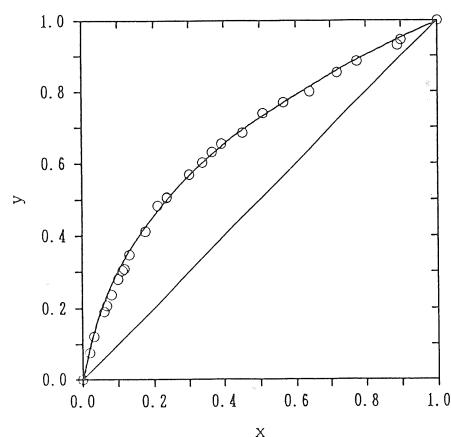
$$x_F = \frac{V_w y_W - L x_n}{D} \quad (15)$$

で与えられる。

計算は、コレクタ面積 $A = 1 [m^2]$ 、日射量 $q_r = 1800$ [$kJ/m^2 h$]、塔頂留出液のアセトンモル分率 $x_D = 0.95$ とし、反応槽の温度 $T [^\circ C]$ と触媒量 $m [g]$ を与え、式(10)～式(12)を解いて、 V_w , L , D を求めた。ただし、 x_w 及び y_w は、図3-(a)に示す温度・組成関係を利用して求めた。気相モル分率 y' と気液平衡にある液相のアセトンモル分率 x' を、図3-(b)に示す気液平衡関係から求め、 $x_n = (y' + x') / 2$ とした。これは、精留塔の還流比 (L/D) を最小還流比の 2 倍とすることに相当する。図3-(a), (b) は、文献³⁾に記されたデータを 3 次の最小自乗法で近似した曲線で



(a) 温度・組成関係



(b) 気液平衡関係

図3 アセトン/2-プロパノール2成分系

ある。また、反応速度 $u [mol/hg]$ は斎藤らの実験値²⁾から、

$$u = 1/(650 x_W + 9.2) \quad (16)$$

で与え、コレクタ効率 η は、コレクタ内部の温度を反応槽の温度 $T [^\circ C]$ とし、コレクタ周囲の温度を $25^\circ C$ としたとき、現在わが国で市販されている種々の平板コレクタの性能の平均的な値を与える次の関係式を用いた。

$$\eta = -3.938(T-25)/428.6 + 0.83 \quad (17)$$

4. 計算結果及び考察

触媒量 m は、50, 100, 150, 200, 250, 300 [g] の場合について、反応槽温度 T を $60^\circ C$ から $0.01^\circ C$ 刻みで 2-プロ

パノールの沸点である82.3°Cまで計算する。ただし、反応槽の温度が高くなると、供給液のアセトンモル分率 x_f が負になるため、その温度以上の計算は行わないことにした。これは式(15)及び式(8)から分かるように、塔頂から出て行くアセトンは反応によるアセトンで全てまかなわれるため、アセトンを反応槽へ供給する必要がなくなったためである。またこのとき、反応槽内の液相が飽和液であるのに必要なアセトンは、反応槽-精留塔間を循環していることになる。

図4-(a), (b), (c)に、それぞれ、蒸発蒸気量 V_w 、還流液量 L 、塔頂留出液量 D と反応槽の温度 T との関係を示す。これらの図から、反応槽の温度が高くなるに従い、 V_w 、 L 、 D ともに減少すること、また、触媒量を増すと、 V_w 、 L の変化は著しいが、 D の変化はわずかであることなどが分かる。さらに、触媒量が増すに従い、 $x_f=0$ となる温度(T_{CR} とする)は低くなることが分かる。これは、反応槽の温度が高いほど、また触媒量を増すほど、分解反応によるアセトン蒸気量 m_u が増加し、従って、蒸発蒸気量が減少するためであると考えられる(図5-(b)参照)。

図5-(a), (b)は、それぞれ、アセトンの塔底下降液量 L_{X_u} 、アセトンの塔頂留出液量 D_{X_u} と反応槽の温度 T の関係である。図5-(b)には、参考のため分解反応により発生するアセトン蒸気量 m_u (これは水素の発生量に等しい)も示してある。これらの図から、反応槽の温度 T が高くなると、 L_{X_u} 、 D_{X_u} ともに減少することが分かる。アセトンの発生量は、温度が低いところの方が大きいが、このほとんどは蒸発によるものであり、ケミカルヒートポンプとして利用する場合、水素の発生量も重要であり、アセトンと水素が等モルできた方が効率がよい。即ち、図5-(b)において、 D_{X_u} の曲線と m_u の曲線の交点で反応を行う方がよく、この温度は先の T_{CR} と一致することが分かる。

図6-(a), (b)にコレクタで得られる熱量 Q_o 、反応に使われる熱量 Q_r 、蒸発に使われる熱量 Q_v 、凝縮器で奪われる熱量 Q_c と反応槽の温度 T との関係を、触媒量 $m=50[g]$ 及び $m=300[g]$ の場合について示す。コレクタで得られる熱量 Q_o は、反応槽の温度上昇に伴いコレクタ効率が低下するため、図のように減少する。反応槽の温度が高くなると、反応速度が大きくなるため、反応に使われる熱量 Q_r は大きくなる。一方、蒸発に使われる熱量 Q_v 及び凝縮器で奪われる熱量 Q_c は Q_o の減少及び Q_r 增加により図のように減少する。 $m=50[g]$ の場合に比べ、 $m=300[g]$ の場合の方が、コレクタで得られる熱量 Q_o に対する反応に使われる熱量 Q_r の割合が大きいことが分かる。また、触媒量が増加すると、

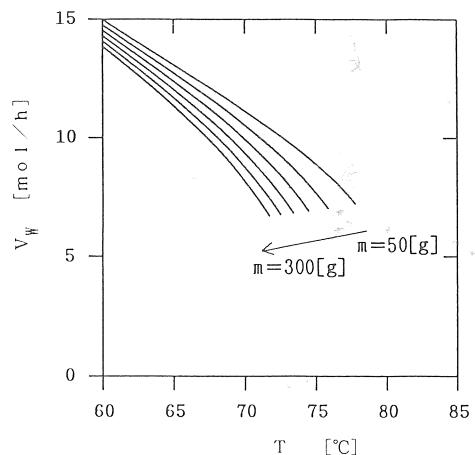


図4-(a) 蒸発蒸気量と反応槽温度の関係

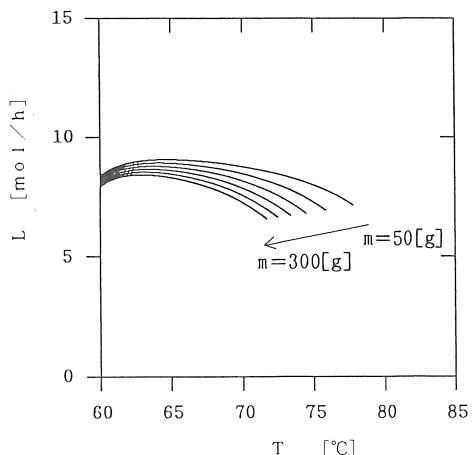


図4-(b) 還流液量と反応槽温度の関係

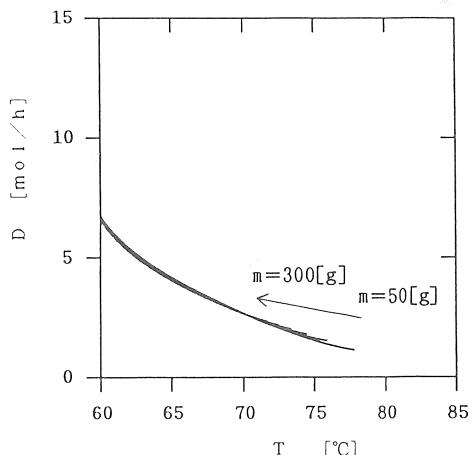


図4-(c) 塔頂留出液量と反応槽温度の関係

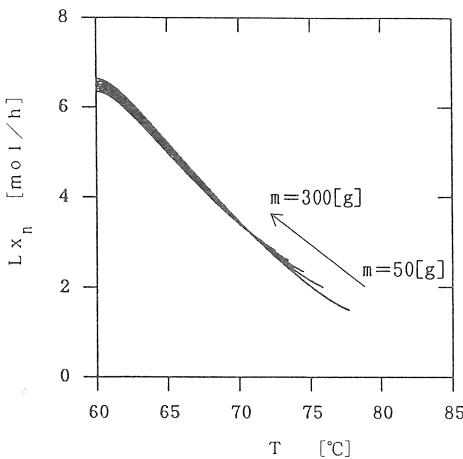


図5-(a) アセトン塔底下降液量と反応槽温度の関係

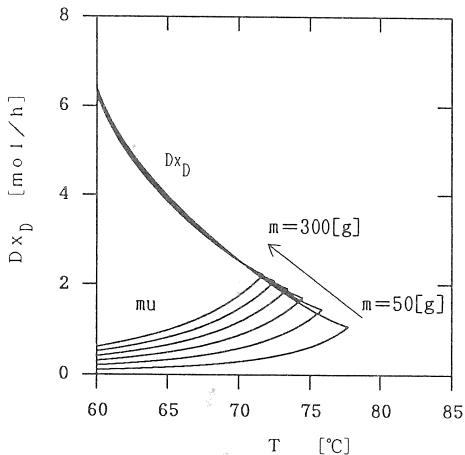
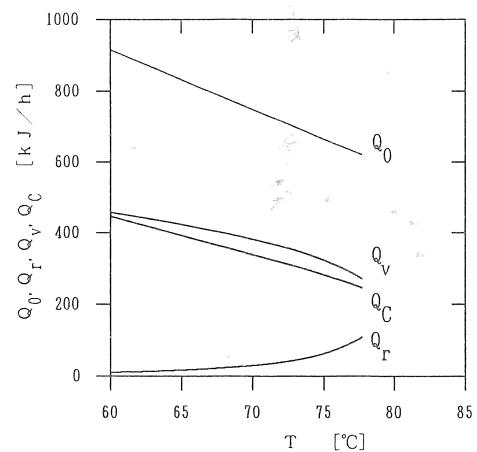
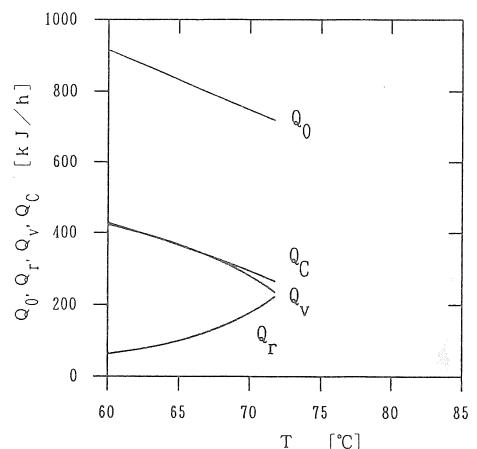


図5-(b) アセトン塔頂留出液量と反応槽温度の関係

式(10)～(12)から分かるように、蒸発による蒸気量 V_w 、凝縮器からの凝縮量 ($L + D$) が減少するため、図6-(b)の Q_r , Q_c は(a)の場合よりも小さくなる。

5. 結言

以上のようなモデルと計算により、反応槽の温度及び触媒量とアセトン及び水素の発生量の関係などを明らかにした。しかし、実際にシステムを作るには、原料の2-プロパノールの量と最適な触媒量の関係や、分解反応を有利に進行させる条件などを調べる必要がある。今後は、先の計算結果の確認を兼ね、システム

図6-(a) Q_o , Q_r , Q_v , Q_c と T の関係 ($m = 50[g]$)図6-(b) Q_o , Q_r , Q_v , Q_c と T の関係 ($m = 300[g]$)

の設計に必要なデータを収拾する基礎実験を行う予定である。

参考文献

- Y. Saito, H. Kameyama, and K. Yoshida; Int. J. Energy Research, Vol. 11, pp. 549-558 (1987)
- M. Noda, S. Shinoda, and Y. Saito; Bull. Chem. Soc. Jpn., No. 61, pp. 961-965 (1988)
- 平田光穂 訳、気液平衡データブック、講談社、pp. 616 (昭49)

(平成2年6月13日、原稿受理)