

アンモニア水溶液へのアンモニア蒸気の吸収量の推定

門 出 政 則^{*1} Hatem MUSTAFA ^{*2}

Prediction of Mass Absorption of Ammonia Vapor into Ammonia Water Solution

Masanori MONDE ^{*3} and Hatem MUSTAFA

Saga University, Institute of Ocean Energy
(1 Honjo, Saga, Saga 840-8502) ^{*3}

Mass absorption rate of ammonia vapor into ammonia water solution is investigated experimentally, by feeding a superheated ammonia vapor into a test cell to be absorbed into stagnant pool of ammonia water solution with an initial mass concentration of $C_i = 0.0$ to 0.63 kg/kg. The flowing of the ammonia vapor is due to a pressure difference of $\Delta P = 50$ to 300 kPa between the ammonia vapor cylinder and the pressure of the test cell. The main objectives are, to investigate the effect of initial pressure difference on the absorption rate of ammonia vapor and to develop an equation which predicts the total absorbed mass of ammonia with initial pressure difference, initial concentration and time. The experiment shows that the total absorbed mass of ammonia linearly increases with increasing initial pressure difference. A correlation can be proposed to yield the total absorbed mass of ammonia measured in the experiment. In addition, the absorbed mass at no pressure difference, namely free absorption, could be estimated from the absorbed mass at initial pressure difference

Key Words: Absorption Phenomenon, Ammonia Vapor Absorption, Ammonia Water Solution, Absorption mass rate, Absorption Refrigerator, Natural refrigerant

1. 結 言

アンモニア蒸気のアンモニア水溶液への吸収過程における熱拡散と物質拡散に関する研究⁽¹⁾やその物質拡散係数の測定に関する研究⁽²⁾は、広く行われている。一方、吸収中のアンモニアの吸収量の変化を直接測定するという研究は、従来殆ど行われていなかった。最近、門出ら⁽³⁾は、供給されるアンモニア蒸気とアンモニア水溶液の圧力差が $\Delta P = 50$ kPa の場合について、アンモニア蒸気がアンモニア水溶液に吸収される時、その吸収量を推定する方法として3つの異なる推定方法

1. 蒸気の質量変化に伴う圧力降下法
 2. 蒸気の吸収反応熱に伴う熱量法
 3. 水溶液の密度変化に伴う光干渉法
- を提案し、測定方法1と3がほぼ同じ吸収量の推

定結果を与えること及び測定方法2は方法1、3よりも小さい推定量となることを報告している。更に、門出ら⁽³⁾は圧力差 $\Delta P = 50$ kPa で測定されたアンモニアの吸収量を推定する式(1)を提案している。

$$m_a(t) = \left(\sum_{j=0}^N a_{0j} t^{j/2} \right) + \left(\sum_{i=0}^N a_{1i} t^{i/2} \right) e^{-C_i/k} \quad [\text{g/m}^2]$$

N = 2 \quad (1)

なお、 $k = 0.24 - 0.26$ を推奨している。

また、測定方法2の値が測定方法1、3と比較して小さくなる原因として、反応熱からの推定では、発生熱の一部が溶液中以外に拡散されるためであることを報告⁽³⁾している。

本研究では、測定方法1から推定されたアンモニアの吸収量に及ぼす供給アンモニア蒸気圧差 ΔP やアンモニア水溶液の濃度 C_i の影響について検討し、その吸収量に初期圧力差の影響を評価できる式を提案する。また、アンモニア蒸気と水溶液に圧力差がない時の吸収過程、すなわち分子拡

*原稿受付 2007年 2月 日
*佐賀大学海洋エネルギー研究センター
佐賀大学大学院エネルギー物質科学専攻

散過程での吸収量についても検討した結果を報告する。

主要記号

a_{0j}	: 式の係数	
a_{1j}	: 式の係数	
C	: アンモニア質量濃度	[kg/kg]
$m_a(t)$: アンモニアの吸収質量	[g/m ²]
P	: 圧力	[kPa]
S	: 界面表面積	[m ²]
T	: 温度	[°C]
t	: 時間	[sec]
z	: 深さ	[mm]

添字

i	: 初期状態
int	: 界面
L	: 液体
ref	: 基準
V	: 蒸気

2. 実験装置と実験方法

2.1 実験装置 実験装置全体図は、前報⁽³⁾にて詳細に説明されているので、試験部のみを図1に示す。また、これらは、文献 [3] と全く同一であるので、ここでは簡単に説明する。5本の熱電対（シース径 1 mm）が図に示される間隔で挿入され、上部の3本は、蒸気の温度、 T_{1V} , T_{2V} , T_{3V} を測定するためのもので、下部の2本は、液温、 T_{1L} , T_{2L} を測定するためのものである。

アンモニア蒸気が、試験容器に供給されるとき、その流れが一樣になるように、20 μ m のステンレス鋼のメッシュが容器上部に取り付けられている。試験容器には、直径 30 mm の観察窓が取り付けられており、内部の状態を可視化できるようになっている。

内容積 1350 cm³ の主容器が、試験容器 180 cm³ (12 x 10 x 1.5 cm) に過熱アンモニア蒸気を供給するために使用されている。所定の初期濃度 C_i の水溶液を作るために混合容器が使用されている。

2.2 実験方法と温度および圧力測定 吸収過程に影響を及ぼす不凝縮気体を取り除くために、混合容器に接続された全ての部分(試験容器と接続管含む)を先ず始めに真空にした。アンモニア

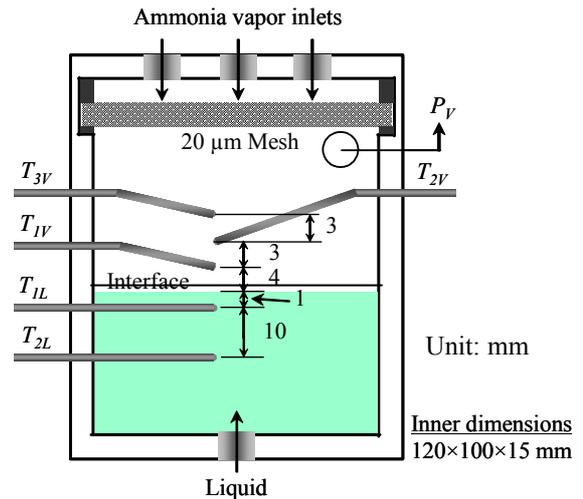


Fig.1 Schematic of main part of experimental apparatus.

水溶液を所定の量だけ混合容器から試験容器に供給する。初期温度 T_i を設定し、その後試験容器内の水溶液の初期飽和蒸気圧 P_{li} が平衡状態になるまで待つ。一方、主容器の圧力 P_{2i} と試験容器の圧力 P_{1i} の初期差圧を所定の圧力差 ΔP ($= P_{2i} - P_{1i}$) に設定後、アンモニア蒸気を供給することによって実験を開始する。なお、試験容器と主容器は、断熱されており、両者の初期温度は 1°C 以内に設定されている。また、アンモニア蒸気は、状態 (P_{2i} , T_i) で過熱蒸気となっている。

アンモニア蒸気供給中の温度変化および圧力変化が自動的に計測されている。温度と圧力データのサンプリングは 1 Hz で測定されている。温度の測定精度は、1% で、液温については、時間遅れ 0.24 sec で、周波数応答は約 4 Hz である。蒸気温度については、それよりも応答が多少遅れる。一方、圧力変換器の感度は、600 Pa \pm 0.5%、周波数応答 2.5 kHz \pm 10% で、その精度は、0.5% である。

実験は、表 1 に示される 4 つの異なる初期濃度に対して行われた。恒温室の中で吸収反応は一定温度で生じるように温度設定 (反応熱のため、実験毎に多少変動している) されている。なお、初期設定温度は、実験毎に $T_i = 21 \sim 25^\circ\text{C}$ の範囲で変動している。初期濃度は、NH₃ と H₂O の水素結合の飽和状態⁽³⁾が 65.4% となることから 60% を基準に初期濃度を選定した。初期濃度の値は、平衡状態での温度と圧力を基に PROPATH ソフト⁽⁴⁾から計算された。

Table 1 Experimental conditions

C_i [kg _{NH3} /kg _{H2O}]	ΔP_i [kPa]	T_i [°C]
0.0, 0.27, 0.46, 0.63	50, 100, 150, 200, 250, 300	21~25

2.3 初期平衡圧力の推定 異なる圧力のアンモニアの過熱蒸気と湿り蒸気（水溶液）を突然連通したときの平衡圧力 P_{ref} は、当然両者の初期圧力とも異なることからこの平衡圧力をまず定めておく必要がある。そこで、この平衡圧力は、以下の手順で求めた。

圧力の異なる2つの閉じた系の気体が断熱的に連絡されたときの平衡圧力を求めた。一方、連結バルブを開いた瞬間の圧力を実測した。推定圧力と測定圧力を比較したところ、測定圧力の方が推定値より4~5%程度小さい値となっていることが確認された。ここでは、測定圧力 P_{ref} を平衡圧力として採用することにした。また、アンモニア供給圧力 P_{2i} との比 P_{ref}/P_{2i} の値は、 C_i の値が0.0 kg/kg から0.82 kg/kg の範囲で、 $P_{ref}/P_{2i} = 0.9$ から0.98まで変化することが確認⁽³⁾されている。

2.4 吸収量の推定方法 圧力降下からアンモニア蒸気の吸収量の推定は、蒸気体積部分の状態式を用いて次式で与えられる。

$$m_a(t) = (m_{ref} - m_v(t)) / S \quad [\text{g/m}^2] \quad (2)$$

ここで、 m_{ref} は、アンモニアを供給開始時の容器内の全蒸気質量で、 $S = 1.5 \times 10^{-3} \text{ m}^2$ は界面の表面積で、 $m_v(t)$ は、容器内の蒸気質量である。 m_{ref} と $m_v(t)$ は、容器内が瞬間瞬間熱平衡状態（容器内の状態が平衡状態を保ちながら準静的過程で変化した時の状態）にあると仮定をすることによって状態方程式から容易に求めることが出来る。アンモニア蒸気の状態方程式として、Tillner-Roth and Friend⁽⁴⁾ の式を用いた。質量の計算に必要な量は、温度、圧力と体積である。なお、アンモニア蒸気の吸収中、アンモニアの温度は供給温度 T_i のままで、ほぼ一定に保たれていることが確認された。これは、試験容器に比べて主容器の体積が十分大きいからである。また、試験部の蒸気温度は、吸収過程で数°C上昇するが、蒸気の絶対温度と比較して1%以下の変化であるので、その変化を無視した。従って、アンモニアの温度はアンモニアの供給温度 T_i とした。この結果、吸収量の推定は圧力変化の測

定値（例えば、図3参照）のみから推定することが可能となる。

なお、体積は、 $V = 1.57 \times 10^{-3} \text{ m}^3$ で一定で、主容器、試験部と配管容積とからなる。全体積はアンモニア蒸気の吸収で液量が多少増加し、蒸気部の体積が減少するが、全蒸気体積と比較して無視できるほどの減少であることから一定とした。

3. 実験結果と検討

3.1 試験容器内の温度変化 図2は、一例として、 $C_i = 0.27 \text{ kg/kg}$ のアンモニア水溶液に圧力差 $\Delta P = 100 \text{ kPa}$ でアンモニア蒸気を供給した場合のアンモニア吸収過程での液温 T_{1L} , T_{2L} の変化を示す。界面に近い位置 ($z_{1L} = 1.74 \text{ mm}$) の液温 T_{1L} は、アン

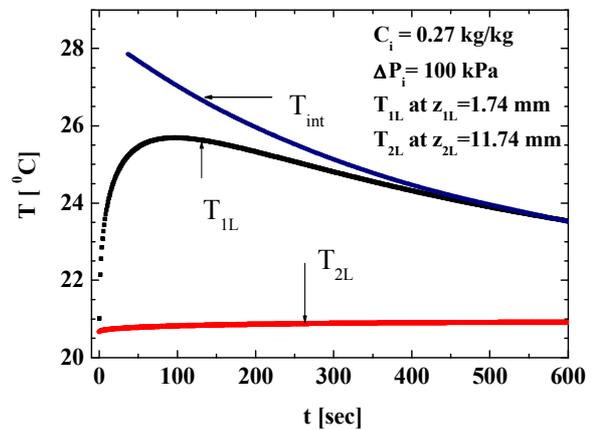


Fig. 2 Temperature change of ammonia solution during ammonia absorption for $C_i = 0.27 \text{ kg/kg}$ and $\Delta P = 100 \text{ kPa}$

モニア蒸気の供給直後から急激に温度上昇し、その後徐々に降下している。一方、界面から遠い位置 ($z_{2L} = 11.74 \text{ mm}$) の液温 T_{2L} は、非常に緩やかな温度上昇となっている。なお、界面での温度変化が $z_{2L} = 11.74 \text{ mm}$ の位置まで到達する時間は、60.3 sec である。

また、温度変化が、水溶液の底部まで到達する時間は、約 1000 sec である。

図2中の温度 T_{int} は、界面の温度で、測定温度 T_{1L} , T_{2L} から門出ら⁽⁶⁾の逆問題解を用いて推定された温度である。

これらの温度変化は、アンモニアの吸収反応によって生成された熱による温度上昇である。吸収開始直後の急激な温度上昇は、吸収反応が活発であったことを示す。一方、温度 T_{1L} が、緩やかに

降下し始める時刻以降は、反応熱の生成よりも液層内を熱伝導で輸送される熱量が大きくなったことを示している。この時刻以降では、吸収反応が緩やかに生じるようになっている。

3.2 アンモニア蒸気の圧力変化 図3は、アンモニア水溶液の初期濃度を一定に保って、異なる圧力でアンモニア蒸気を供給したときの吸収反応中の試験容器内のアンモニア蒸気圧力の変化を示す。なお、図3の縦軸は、アンモニア蒸気の供給直後の平衡圧力 P_{ref} とアンモニアの蒸気圧との差 ($P_{ref} - P_v(t)$) となっている。この差は、アンモニア蒸気が水溶液に吸収されることによって生じている。

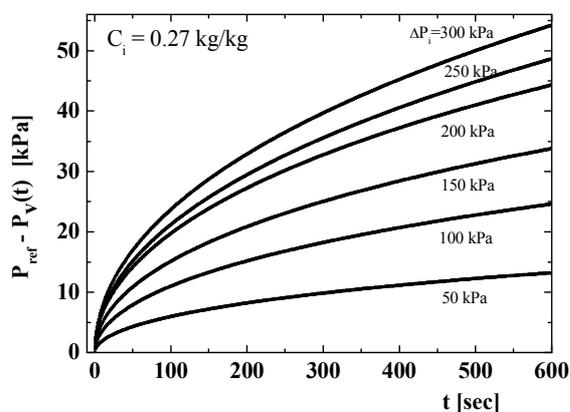


Fig. 3 Pressure change of ammonia vapor for $C_i = 0.27$ kg/kg during absorption for $\Delta P = 50$ to 300 kPa

図3から、 $(P_{ref} - P_v(t))$ の値の増加は、 $P_v(t)$ の減少なので、蒸気圧力は吸収開始後かなり急速に降下しているが、その後緩やかな降下となっている。また、圧力差が大きいほど圧力降下もより大きくなっている。この圧力降下は、アンモニア蒸気が水溶液に吸収されることによって生ずるものであるから、圧力差が大きいほどアンモニア蒸気の吸収が促進されていることになる。

図4は、一例として初期圧力差を一定 ($\Delta P = 300$ kPa) に保って、水溶液の初期濃度を変化させたときのアンモニア蒸気の圧力変化を示す。なお、図4の縦軸は、初期濃度が異なると平衡圧 P_{ref} が変化するので、平衡圧力と初期圧力との差 ($P_{ref} - P_{ii}$) を基準に系圧力と初期圧力の差 ($P_v(t) - P_{ii}$) との比となっている。縦軸の値が1に近いということは、初期平衡圧力近くで吸収現象が生じていないことを意味している。

図4から、初期濃度はアンモニア蒸気の吸収に非常に大きく影響を及ぼしていることが分かる。例えば、 $C_i = 0.0$ kg/kg では、約 600 sec で $[P_v(t) - P_{ii}] / [P_{ref} - P_{ii}] = 0.45$ まで降下しているが、 $C_i =$

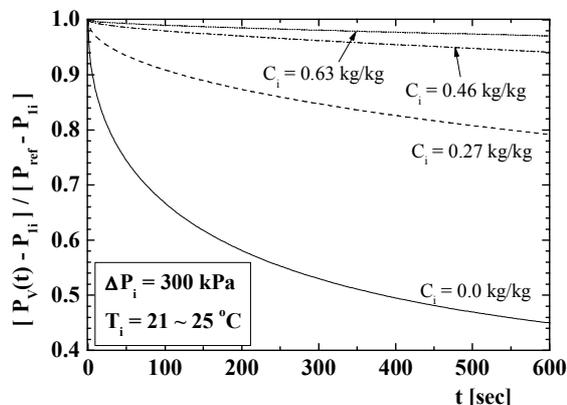


Fig.4 Pressure drop during ammonia absorption for different initial mass fraction at $\Delta P = 300$ kPa

0.63 kg/kg では、 $[P_v(t) - P_{ii}] / [P_{ref} - P_{ii}] = 0.97$ しか降下していない。このことは、 $C_i = 0.0$ kg/kg の場合では界面には水の分子のみ存在していることからアンモニア分子と水分子の水和反応が急速に進行するが、 $C_i = 0.63$ kg/kg の場合、水の自由分子が界面近くにほんの僅かしか存在していないために、水和反応が殆ど進まなくなっていることが判る。ところで、本実験は、等温（吸収反応などで多少の温度変化は生じている）系で行われているにもかかわらず、 $C_i = 0.63$ kg/kg においても図4に示されるように僅かな圧力降下が生じている。この圧力降下は、主にアンモニア蒸気（アンモニア蒸気の濃度高く、系圧に対して過飽和状態となっている）が凝縮した結果によるものと考えられる。なお、 $C_i = 0.63$ kg/kg でもアンモニアの蒸気温度がアンモニア水溶液よりも高い場合には、凝縮によって圧力の降下が当然起きる。 $C_i = 0.63$ kg/kg での圧力降下は、アンモニアと水の水和反応の飽和状態が理論上 $C_i = 0.654$ kg/kg であることを考慮すると過飽和状態のアンモニア蒸気が非常にゆっくりと濃度差によって吸収され、それが水溶液中を拡散しているものと考えられる。

4. アンモニアの吸収量

4.1 アンモニア吸収量の変化

図5は、 $C_i = 0.0 \text{ kg/kg}$ に対するアンモニア蒸気の吸収量を圧力の変化を基に式(2)から算定した結果を示す。

図5からいずれの圧力差においても吸収過程は $t = 20 \text{ sec}$ までは急速に起こっているが、その後緩やかな吸収過程となっていることが分かる。また、吸収量は、圧力差が大きい程増大していることが分かる。 $t > 20 \text{ sec}$ で緩やかな吸収過程となるのは、アンモニアの拡散係数が小さいために、水の自由分子が界面近くに存在し難くなるためである。

図6は、圧力差 $\Delta P = 200 \text{ kPa}$ で初期濃度が変化したときのアンモニアの吸収量の変化を示す。

図6から、 $C_i = 0.0 \text{ kg/kg}$ (純水) の場合、吸収量は、アンモニア蒸気と接触開始後急激に増大し、その後緩やかな増加へと変化している。一方、濃度の最も大きい $C_i = 0.63 \text{ kg/kg}$ では、ほんの僅かな吸収量となっている。これは、 $C_i = 0.63 \text{ kg/kg}$ では、アンモニア水溶液中の水素結合 (水和反応) は、ほぼ飽和状態となっており、界面でのアンモニア蒸気の凝縮によってアンモニア液の濃度差によってアンモニア蒸気の水溶液への吸収 (厳密には、水和反応を殆ど伴わなくなることから、濃度差に伴う凝縮) となっている。初期濃度の増加に伴って、吸収量が減少するのは水素結合していない水の割合が減少するためと考えられる。

4.2 アンモニア吸収量に及ぼす圧力差の影響

図7は、 $C_i = 0.0$ と 0.27 kg/kg に対するアンモニアの吸収量を圧力差 ΔP で整理した結果を示す。

図7から、いずれの場合も吸収量は圧力差 ΔP に比例して直線的に増加するという興味ある結果が得られた。この結果、この直線的な関係を $\Delta P = 0$

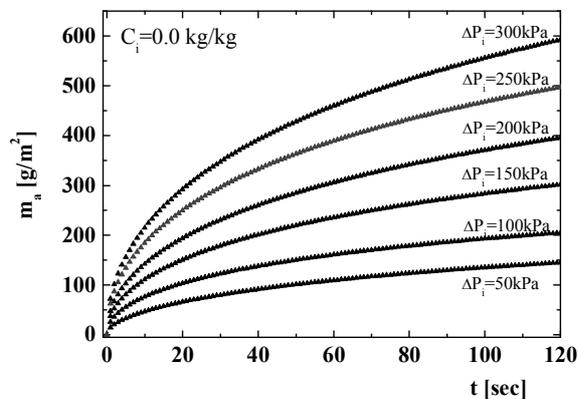


Fig. 5 Change in absorbed mass at different initial pressure for $C_i = 0.0 \text{ kg/kg}$ with time

kPa まで外挿することによって、圧力差のない時の吸収量を推定することが可能となる。ところで、圧力差も温度差もない条件下での吸収過程は、純粋な分子拡散によって生ずる吸収現象となると考えられる。

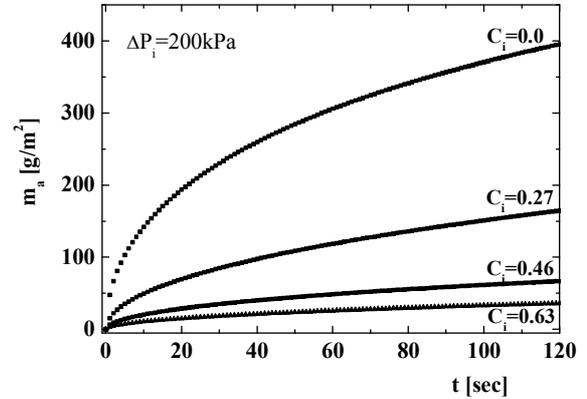


Fig. 6 Change in absorbed mass for different concentrations at $\Delta P = 200 \text{ kPa}$ with time

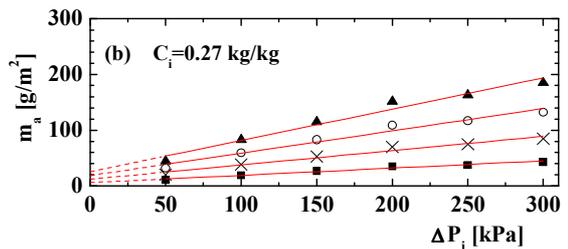
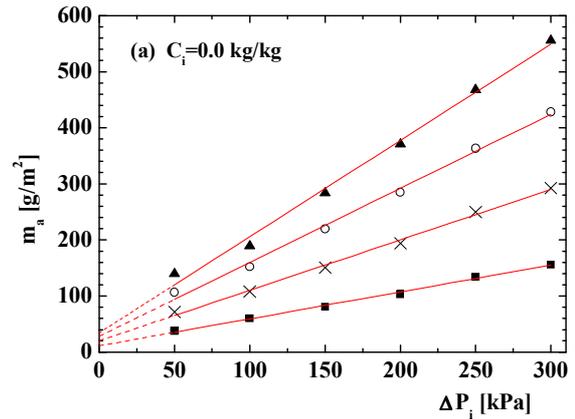


Fig. 7 Total absorbed mass vs. initial pressure difference at different time

(a) $C_i = 0.0 \text{ kg/kg}$ (b) $C_i = 0.27 \text{ kg/kg}$
 ▲ 100 sec, ○ 50 sec, × 20 sec, ■ 5 sec

4.3 分子拡散による吸収量の推定

図8は、図7に示される直線関係を $\Delta P = 0 \text{ kPa}$ まで延長したときの吸収量、すなわち分子拡散のみによる吸収量の変化を整理した結果を示す。

図8から、 $\Delta P=0.0$ kPaにおける吸収量の変化も圧力差があるときの吸収量の変化とほぼ同様な傾向、すなわち吸収量は時間の平方根にほぼ比例して増加していることがわかる。

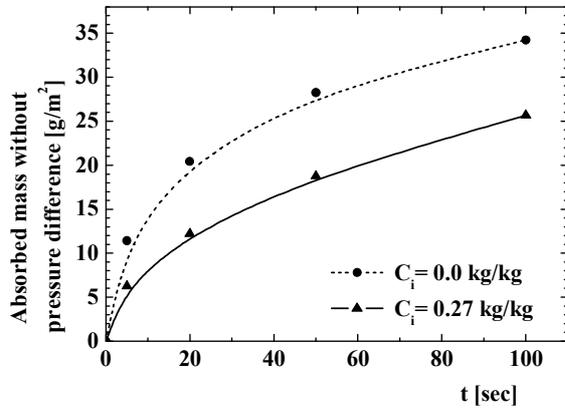


Fig.8 Change of absorbed mass with time

5. アンモニア吸収量の予測式の提案

5.1 圧力差を考慮した式の提案

式(1)の導出にあたっては、圧力差 $\Delta P=50$ kPaのみのデータであったために、その影響を評価することが出来なかった。ここでは、式(1)を参考にしながらその影響について検討する。

図5-8に示されるように、アンモニア蒸気の吸収量は、初期圧力差やアンモニア水溶液の初期濃度の影響を強く受けていることから、当然初期圧力差と初期濃度の関数、すなわち次式となる。

$$m_a = f(\Delta P_i, C_i, t) \quad (2)$$

式(2)の吸収量の変化は、式(3)となる。

$$dm_a = \left(\frac{\partial m_a}{\partial \Delta P_i} \right)_{t, C_i} d\Delta P_i + \left(\frac{\partial m_a}{\partial t} \right)_{\Delta P_i, C_i} dt + \left(\frac{\partial m_a}{\partial C_i} \right)_{\Delta P_i, t} dC_i \quad (3)$$

式(3)は、濃度一定の条件下では次式となる。

$$dm_a = \left(\frac{\partial m_a}{\partial \Delta P_i} \right)_{t, C_i} d\Delta P_i + \left(\frac{\partial m_a}{\partial t} \right)_{\Delta P_i, C_i} dt \quad (4)$$

図7の結果及び式(1)を考慮すると、式(3)、(4)は更に次式の関係になると推定される。

$$\frac{m_a(\Delta P_i, C_i, t)}{m_0(\Delta P_i, t)} = e^{-C_i/k} \quad (5)$$

$$m_0 = a_0(t) + a_1(t)\Delta P_i \quad (6)$$

ここで、 m_0 は $C_i=0.0$ kg/kgに対する吸収量で、 a_0, a_1 は係数である。係数は、濃度の拡散現象であること、及び式(1)の関数形を考慮すると式(6)も時間の半値関数で近似することが最適と考えられる。

$$m_0 = \left(\sum_{i=0}^N a_{0i} t^{i/2} \right) + \left(\sum_{i=0}^N a_{1i} t^{i/2} \right) \Delta P_i \quad (7)$$

なお、近似式の次数は、 $N=2$ で十分であることが前報⁽³⁾で報告されている。

まず、式(7)の係数を $C_i=0.0$ kg/kgの測定値を用いて最小自乗法で決定した値を表2に示す。

次に、 $C_i=0.0$ kg/kg以外の濃度で圧力差 $\Delta P=50 \sim 300$ kPaの範囲に対して測定された吸収量を式(5)に従って整理した結果を図9に示す。

図9から、吸収量の比 m_a/m_0 は圧力差が異なっているにもかかわらず、初期濃度のみで整理されることが分かる。そこで、式(5)の係数を最小自乗法で求めると $k=0.25$ となった。この結果、式(5)は最終的に式(8)となる。

$$m_a = \left[\left(\sum_{i=0}^N a_{0i} t^{i/2} \right) + \left(\sum_{i=0}^N a_{1i} t^{i/2} \right) \Delta P \right] \times e^{-4C_i} \quad (8)$$

式(8)による吸収量の推定精度は、 $t < 120$ secの全測定範囲に亘って、相対標準偏差 σ は $C_i=0.0$ kg/kgでは $\sigma=4.0\%$ 、一方 $C_i=0.27 \sim 0.62$ kg/kgでは $\sigma=6.0 \sim 13.5\%$ 、と大きくなっている。これは、初期濃度が高くなると吸収量自身が相対的に小さくなるために、測定の精度が悪くなるためである。

Table 2 Coefficients of Eq. (7)

i	a_{0i}	a_{1i}
0	0.0	0.0
1	5.36	2.24×10^{-1}
2	-1.94	-5.27×10^{-3}

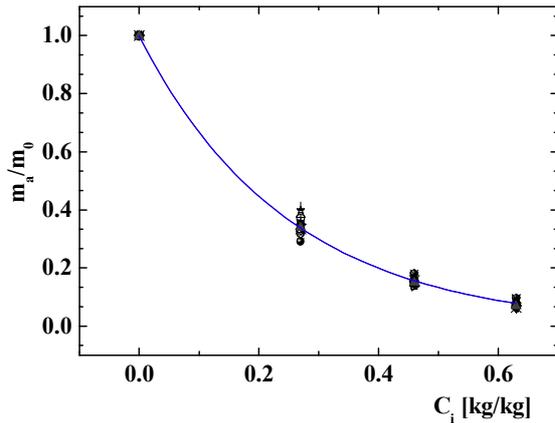


Fig. 9 Change of m_a/m_0 against C_i

表2の係数は、120秒までの吸収過程に対して、良い吸収量の推定与えるが、それ以上の吸収時間に対しては、表3のように係数を多少修正した方が良い。この係数を用いると、600秒までの吸収量を推定することができるようになる。この修正は、時間に関する項数を第2項までしか適用していないために、時間が大きくなると実際の吸収過程は減少しているにも係わらず、高次の時間項の影響が大きくなるためである。このことは、表2、3の係数を比較することによって理解できる。

Table 3 Coefficients of Eq. (7)

i	a_{0i}	a_{1i}
0	0.0	0.0
1	4.30	2.13×10^{-1}
2	-0.088	-4.13×10^{-3}

5.2 式(8)と式(1)の比較

式(1)は、圧力差 $\Delta P = 50$ kPa で $C_i = 0.0 \sim 0.82$ kg/kg での測定から求められた式であるが、初期濃度が吸収量に及ぼす影響を示す係数の k 値が式(8)とほぼ一致していることが確かめられる。この結果、吸収量に及ぼす初期濃度と圧力差は、互いに独立な影響因子となっていると考えられる。すなわち、式(5)に示される関数関係の妥当性が実験的に確認される。従って、圧力差の影響については、ある濃度例えば、 $C_i = 0.0$ kg/kg の場合についてのみ検討すれば良いことになる。すなわち、式(1)と式(8)の両式に $C_i = 0.0$ kg/kg を代入し、更に式(8)に $\Delta P = 50$ kPa して、両者の相違を検討した結果を図10に示す。

図10から、両式の前測値には多少のずれは見られるが、概ね一致した値となっていると言える。この結

果、式(8)は、 $\Delta P = 50$ kPa に対してのみ適用できた式(1)を圧力差 $\Delta P = 300$ kPa 以下の範囲で適用できる。

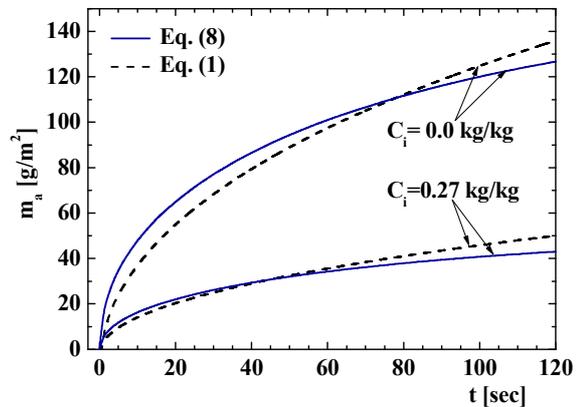


Fig. 10 Comparison of predictions of Eqs.(1) and (8)

6. まとめ

アンモニア水溶液へのアンモニア蒸気の吸収量を初期濃度 $C_i = 0 \sim 0.62$ kg/kg、初期圧力差 $\Delta P = 50 \sim 300$ kPa の広い範囲で測定し、吸収量の予測式(8)を提案した。また、初期濃度と圧力差は吸収量に対して互いに独立に作用することを明らかにした。

終わりに、本研究を行うに当たり、多くの助言を戴いた佐賀大学理工学部 光武雄一助教授と石田賢治講師に感謝する。また、実験装置の製作に協力頂いた佐賀大学理工学部技官 中島賢一氏に感謝する。本研究の一部は、「21世紀COE」の支援で行われている、ここに記して感謝する。

参考文献

- 1) Kang, Y. T., and Kashiwagi, T., , Int. J. Refrigeration, **25**, 780-788 (2002).
- 2) Kojima, M., and Kashiwagi, T., Proc. 19th Int. congress of refrigeration, **IVa**, 353-360, (1995).
- 3) 門出, Issa, M., Hustafa, H., 石田, 冷凍, 21 - 3, (2004), 235 - 245.
- 4) Tillner-Roth R and Friend DG, J Physical and Chemical Reference Data, 27 (1), 63-96 (1996) .
- 5) PROPATH Group, Version 11.1, PROPATH Group.
- 6) Monde, M., Int. J. Heat and Mass Transfer, **43**, 3965-3975 (2000).

