

熱物性データの測定, 収集, 評価と その工学的意義

長 島 昭*

Measurement, Compilation and Evaluation of Thermophysical Property Data – Their Role in Technological Developments

Akira Nagashima

In the newly developed technologies, various new materials and working fluids are used or proposed. Moreover, the ranges of temperature and pressure for conventional substances have been extended. One of the key informations for new technologies is that of thermophysical properties for these substances. The situation around the thermophysical property research has changed mainly due to new demands and also innovations in measuring technique. These innovations include applications of new sensors, computers and laser.

Recent aspects of thermophysical property research have briefly been reviewed.

1. はじめに

最近の, 新エネルギー, 宇宙開発, エレクトロニクス, バイオ産業などの先端技術の発展にともなう, 多くの新しい素材や作動流体が開発されている。その利用にあたっては, 熱伝導率や比熱容量, 蒸気圧, あるいは粘性率などの熱物性値がわかっていないと, これらの物質を広く応用することができない。従来から使われている材料についても, その使用条件が苛酷になり, 高温や高圧あるいは高磁界内で用いられ, 従来にデータのない条件で用いられる場合が増えている。このため熱物性値に対するニーズは一昔前では考えられないほど大きくなった。

先端技術開発のひとつのネックとして意識されるようになる, 熱物性値情報の価値が増して, データ検索が商業ベースにのるようになった。特殊な物質のデータなどは機密扱いを受ける状況もあり得る。いずれは, 特定の物質のデータの情報をめぐって, 貿易摩擦ならぬ国際的なデータ摩擦も予測されないことではない。

この稿では, 熱物性データに対する視点の転換について工学的意義を念頭において考えてみたい。もちろん, 熱物性を従来と同様に, 理学的興味を中心に扱う研究もあってよいわけで, 本稿で述べる考え方とは, 互いに車の両輪をなすものであるといえよう。

2. 熱物性データの“常識”

さて, その熱物性データについては, 一般に信じられている“常識”がある。例えば熱物性データは足りないといわれる。これは正しいであろうか? 例えば, Fig. 1 の水蒸気の粘性率の偏差を見ればわかるように, 物質によっては探せば沢山のデータが見付かりすぎて, この中から正しいデータをどうやって選べばよいかわからないほどの場合がある。従って我々のこれからの研究努力は本当にデータの足りないものに集中することと, 沢山あるデータから正しいものを選び出す研究とに向けられねばならない。別の例を考えてみる。熱物性データはどんな物質や性質についても, 正しい値はひとつであり, これは永久不変であると信じられている。しかし現実には, 真の値は神のみぞ知るであるから, 正しいと考えられた値も時代と共にどんどん書きかえられている。一例を Fig. 2 に示す。これは窒素ガスの粘性率の温度依存性を示すもので, 特に高温域では少し以前の値とごく最近の値との間に, はっきりとした系統的な差が認められる。多くのガスの粘性率については, 現在発行されている大部分のハンドブックや便覧類には古い方の値が記載されている。このように, 熱物性データは生きものである, 年々変化している。挙げていくときりがながい, これらの“常識”が特に最近になって次々と見直されるようになったきっかけには, 第一には社会的なニーズ(要求)の変化, そして第二には測定技術の飛躍的な進歩がある。

* 慶応義塾大学理工学部: 横浜市港北区日吉 3-14-1
〒223

Department of Mechanical Engineering,
Keio University, Hiyoshi, Yokohama, 223

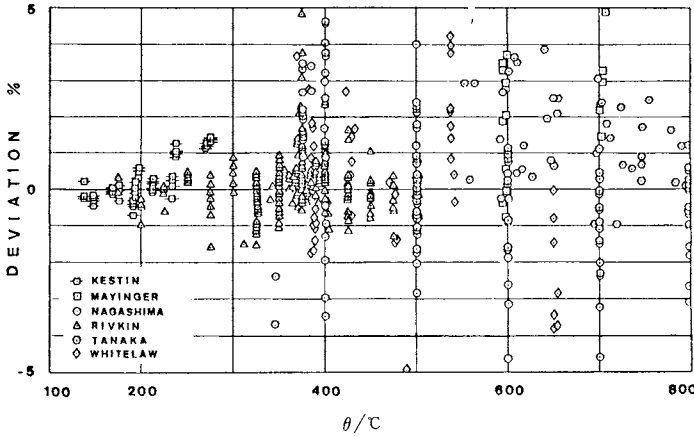


Fig. 1 Deviations of the experimental viscosity of steam

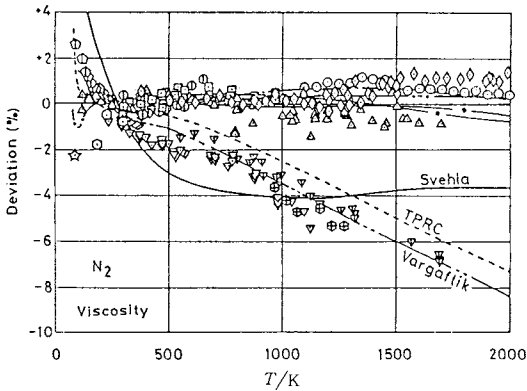


Fig. 2 Deviation of the experimental viscosity of nitrogen at atmospheric pressure

3. 熱物性データの役割の変化

熱物性データは最初は科学的興味の対象や、機械や装置の設計データとして用いられるのが目的であった。例えば管路の流動抵抗を予測するために、液体の粘性率を用いるといったたぐいである。この段階では必要とされる精度は、非常に大きっぱなものでよかった。機械などの設計では計算結果に大きな安全率をかけるのが常識であり、要するに、熱物性データなどはほとんど信用されていなかったということである。しかしながら、最近では先端技術

開発の基礎情報として、広範囲のデータが必要とされるようになってきた。例えば、物質の種類だけに注目しても Table 1 に見られるように、新しい物質系が次々と加わっている。宇宙開発では、ロケットの推進剤の性質や構造の強度データばかりでなく、スペースシャトルの断熱タイルの熱伝導率の値などが重要となってくる。タイルの厚さが設計計算の値では足りなかったとすると、再突入の際に内部の機器は高熱に曝されるし、安全率を見過ぎて厚くなり過ぎると、重くて飛べなくなる。断熱あるいは除熱ということでは、最近の集積回路の高度化の成否が、一つには発生した熱をどうするかにかかっていることなども例として挙げることができる。

このような先端技術の成否に熱物性データが必要とされるようになると、データ情報が商品価値をもつようになる。物性値文献を検索する Retrieval Guide¹⁾ や Chemical Abstracts 誌のほか、最近ではコンピューターによる文献検索が電話回線を通じて大規模に行なわれている。このためのデータベースの整備はアメリカが早く

Table 1 Examples of substances used in new technologies

Applications	Substances
Space & aeronautics	Liquid and solid fuels, insulators, composite materials
Energy	LNG, geothermal fluids, COM. organic working fluids
Electronics	Liquid crystals, semi-conductors, superconducting materials,
Ocean technology	Sea water and brines
Medical engineering	Biotic fluids, materials for artificial organs
Living	Foods, fabrics, insulation materials
Others	Ceramics, industrial disposals

から手がけた。また、熱物性データそのものを提供するソフトは英国なども熱心で、日本の企業への売込みが行なわれている。

先端技術の死命を制するようなデータは、当然その流通に制約を加える事態になることが予測され、ソ連その他の国が熱物性データの測定や蓄積に特に熱心なのは、宇宙や軍事技術で対抗していくことを強く意識してのことかと想像される。

それでは、ニーズの変遷に対して、熱物性データの研究はどう対応していけばよいだろうか。従来やもすると多かったのは研究者の興味を中心とした研究、あるいは手持の装置で測れるものだけを測るといった研究であるが、今後はニーズオリエンテッドな研究、すなわち、必要とされる物性値はいかなる方法によってでもその数値を求めるといった進め方が重要であろう。もちろん、他人から要求された物質をただ測るといった下請け的な作業をいうのではなく、先端技術が5年後10年後に必要とするであろうデータを一足早く研究するということがある。この意味では、熱物性値や材料の研究者は、開発技術者以上に先端技術の動向に敏感でなくてはならない。

4. 測定技術の進歩

熱物性値の測定に関しては、特に輸送物性の測定技術が飛躍的に進歩して、測定されたデータの範囲、測定精度ともに大幅に改良された。測定技術の進歩のうちには従来の計測器の精度が向上したこともあるが、何といても大きく寄与しているのは、第1にコンピューターの進歩と普及、第2に新しいセンサー類の登場、第3にレーザーとそれに伴う光学技術の発展が大きい。これらによって可能となった大きな変化を述べてみる。

例えば、気体の粘性率の精密測定には振動円板法が一つの有効な測定法であるが、昔は経験的な簡略式によるかあるいは相対測定法として用いられていた。Kestin-Newell²⁾のような厳密ではあっても非常に複雑な、しかも陰関数の級数解が用いられるようになったのはコンピューターの進歩による。解析解の求まっていない系でも、数値解を適用して測定に使えるようになった。また測定結果のリアルタイム処理が可能になったために、非定常測定法が広く用いられるようになった。固体の熱伝導率測定フラッシュ加熱やステップ加熱による方法³⁾、また液体の熱伝導率測定非定常細線法の精密化⁴⁾などはこの恩恵を受けている。

第2に、新しいセンサー類の登場は温度、圧力、濃度、時間などのほかに電気的、磁気的量の測定あるいは制御において革新的効果をもたらした。センサーの小型化は測定セルの小型化につながり、高圧など特殊条件下での装

置設計を楽にした。また応答性が向上したために、高速の非定常測定が可能になった。例えば、薄膜温度センサーが作り易くなったため、高温の燃焼生成物の衝撃波管による測定⁵⁾のように、ミリ秒程度の時間内、つまり乱れ発生以前に測定を終えることができる。

第3に、レーザーの利用は熱物性測定でも大きな変化をもたらした。光学的な非接触測定は熱的な場と流れの場を乱す度合いが小さいので、熱伝導率などの測定には有利である。流体内の非定常温度場を光の干渉によって観測して熱伝導率を求める方法⁶⁾と回析光の減衰による方法⁷⁾などの例がある。また、レーザー光を用いて scanning によって濃度などのパターンの変動の測定を行ない、拡散係数を求める方法なども、レーザー以前には精度的に不可能であった。

上で述べたような測定技術の革新で、長年正統とされてきた測定法とそれらによるデータが過去のものとなってしまった例は、1970年以降の熱量的諸性質の研究に見られる。

5. 熱物性データの収集と評価

熱物性データについて既存のデータの収集は最初に気がつくことであり、いわゆるデータバンクやデータセンターが幾つか作られている。それらの中には、広い範囲の物質や性質を扱う CINDAS⁸⁾のようなものから、特定の物質だけを扱う溶融塩データセンター⁹⁾のようなものもある。これらのデータはコンピューターにより整理され即時に検索可能になっているが、利用者の悩みは、物質などによっては、Fig. 1 に示したようにあまりに沢山の、しかも互いに一致しないデータが検索されてくることである。また、仮に一例だけしかデータが見付からなくても、これが唯一のデータかどうか確信がもてないこと、そしてデータの信頼度がわからないことである。

従って、現在最も重要な問題は、収集されたデータの信頼度を評価鑑定することである。しかし、評価の基準について広い分野の人々のコンセンサスが得られていないので、なされるべきことは、第1に評価方法の研究を行ない、基準を定めること、第2にそれによって標準値、それもなるべくなら国際的に統一された標準値を定めること、そして第3に、それらの標準値をだれでも使える形で普及させることである。

まず評価の方法の研究であるが、普遍性をもったデータ評価基準をいかにして定めるかは案外難しい。データの信頼度の評価方法の研究も案外少ない。国際的な例としては、IUPACのThermodynamic Tables Project Centre (現在は Imperial College Thermophysical Properties Data Centre と改称)において、Dr. S.

Angus を中心に長年, 普遍的な基準をどう定めるかについて検討がなされてきた¹⁰⁾。また, 国内では1972年より1981年まで高圧力データセンター内に流体熱物性値の評価委員会が設けられ, 標準データを定める前段階として評価基準そのものの研究が続けられた¹¹⁾。

評価で問題となることを幾つか挙げてみよう。まず, 幾つかのデータを比較して, それらが一致しない場合, その違いの原因を推定しなければならない。原因として疑われることは一般には, (a)測定方法の違い, (b)測定者の個人差, (c)測定年代の違い, (d)計算理論の違い, 等々多くの原因が挙げられる。例えば測定者の問題だけをとりても, 個人のくせや誤りもあれば, 測定者自身の故意の抑制による場合もあり得る。Fig. 3は20°C, 1atmでの水の粘性率の時代変遷を示すが¹²⁾, 1950年ごろまでは高目の値が続いていたにもかかわらず, 1952年のSwindellsらの測定以後は, 高い値はひとつもなく, Swindellsらの値に近いデータばかりが発表されている。この例に限らないが, 権威ある大先生や世評の高い研究者のデータが発表されると, 以後当分の間, それと異なるデータを得た測定者のうちには, 発表を控える人もあったのではないかと想像される。測定年代による違いについては, その理由として測定機器の進歩や計量標準の

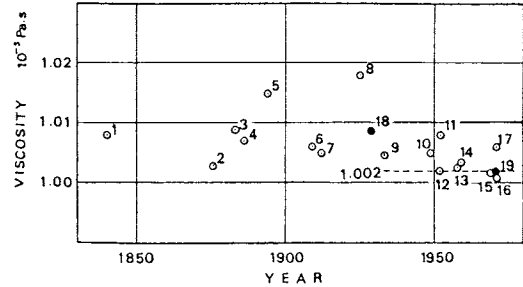


Fig. 3 Chronological variation of the experimental viscosity at 20°C and atmospheric pressure

- 1 Poiseuille
- 2 Sprung
- 3 Slotte
- 4 Noak
- 5 Thorpe and Rodger
- 6 Hosking
- 7 Bingham and White
- 8 Leroux
- 9 Geddes
- 10 Hardy and Cottington
- 11 Hoeppler
- 12 Swindells et al.
- 13 Roscoe and Bainbridge
- 14 Malyarov
- 15 Kawata et al.
- 16 Penn and Kearsley
- 17 White and Kearsley
- 18 International Critical Tables
- 19 IAPS recommendation

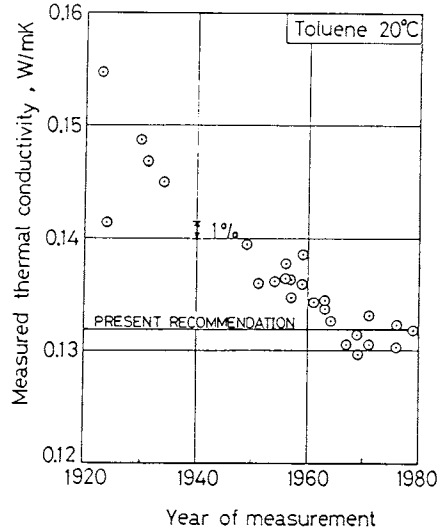


Fig. 4 Chronological variation of the experimental thermal conductivity of toluene at 20°C and atmospheric pressure

改訂などのほか, 新しい誤差要因が見つかったためのものもある。Fig. 4はトルエンの熱伝導率の多くの測定者のデータを発表年代順に並べたものであるが¹³⁾, 明らかに新しいものほど低い値となっている。これは年々測定機器や計算法が進歩して, 従来見逃されていた損失熱量を段々詳しく補正できるようになってきたためである。損失熱量の最大のもは対流によるものである。従来見逃されていた損失熱量が的確に推定できるようになると, 純粋に伝導のみによるはずの熱量は少なく計算されるようになるから, 最終的に求める熱伝導率値はそれだけ低くなっていくわけである。この傾向は多くの流体について同様に見出されるが, 中には年代順に並べても, ほぼ一定の値を示す物質もある。これは動粘性率の大きい物質の場合には, 対流の発生が遅れる為かと推定される。

次に, このようにデータの誤差やくい違いの原因を調べても, どうしても互いに一致しないデータ群が残る場合が多い。どれが正しいとも言えない場合に, 最も確からしい値をどうやって決めればよいか, 定まった方法があるわけではないが, 経験的に幾つかの点が明らかになっている。ある範囲にバラついたデータがあると, 最も普通にとられる方法は, これらの平均をとる方法である。しかし, 平均値には問題が多い。第1にFig. 4の液体の熱伝導率のような場合は, 集まったデータの平均値を使うことは明らかに適当でなく, 最も年代の新しいデータから選ぶべきである。第2に, Fig. 5のようにある測定者は比較的多数のデータを発表している, ある測定者は1点だけのデータしか発表していない場合も単純に平均

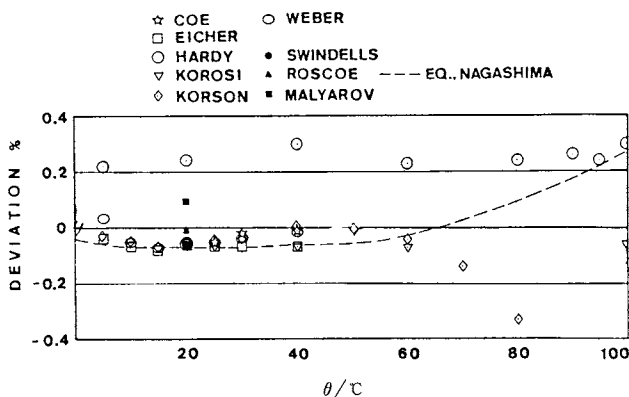


Fig. 5 Deviations of experimental viscosity data (water, atmospheric pressure)

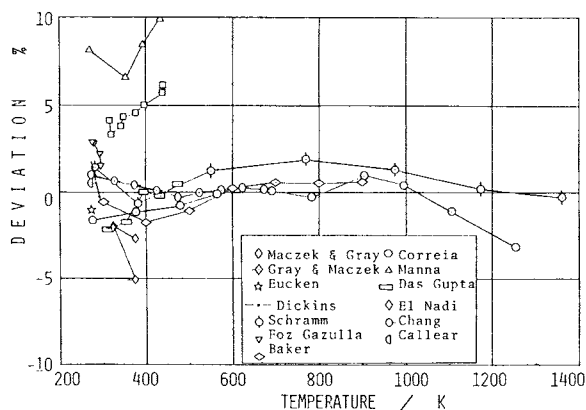


Fig. 6 Thermal conductivity of SO₂ (comparison with a correlation)

するのは必ずしも望ましくない。なぜならば、平均値は多数の点を発表した研究者の値だけを代表するものとなり、測定点数は少なくとも信頼度の高い研究者のデータが事実上無視されてしまうからである。第3に、Fig. 6に示すような場合も、平均値(またはその曲線)を求めるときに注意を要する例である。これはSO₂(気相)の熱伝導率の実測データをある相関式からの偏差として表わしたものであるが、一見奇妙なことに、常温付近のデータが大きくバラついて、測定が困難なはずの高温域はよい一致を示している。これは常温では沢山のデータがあるが、高温では2~3例しか実測値がないことによる。もしも常温から高温まで同じウエイトで平均的な相関式を定めるなら、常温付近の値は、高温データと最も滑らかにつながる値が選ばれてしまう。つまり高温もあわせて測定している研究が特に重んじられることになる。むしろ常温だけ測る人の方が、装置も確実に未知の誤差も少ない。このような問題は、大気圧のデータと高圧データと

の整合性をどう考えるか、といった場合にも同様である。

6. 熱物性データの国際標準値

前節で述べたように、数多くのデータが発表され、その評価や出版がまちまちに行なわれるために、世界各国で混乱があり、産業界からはそれらの整理と、推奨標準値に対する要求が強い。最も早い時期にこの要求が現われたのは水蒸気による動力プラントに関する問題である。水力発電、火力発電はもとより、現在は原子力発電も蒸気動力によっており、水および水蒸気の重要性は極めて大きい。高温高圧の水蒸気を用いる大規模な発電プラントの国際取引において、輸出国と輸入国で別々の熱物性値表を用いると、例えば、プラントの効率、ひいては経済性の計算に大きな食い違いが生じてしまう。水蒸気の熱物性値の国際推奨値表は1929年に発足した国際蒸気表会議、すなわちその後の国際蒸気性質協会(IAPS)が活動を続けている。これまでに国際的に合意に達している推奨値の温度、圧力範囲はTable 2のようになっている^{14~17}。

IUPACの活動の一環としては、平衡性質に関して国際的な評価活動とその結果の出版が行なわれていることは既に触れた。輸送性質については、IUPACに輸送性質のSubcommitteeも設けられた。各種物質の実測データを収集、評価し、各国委員からなる委員会で評価活動を行なっている。過去に、IUPACでは液体の熱伝導率の標準値を決める¹⁸⁾などの活動も行なっている。溶融塩に関しては、米国のMolten Salts Data Centerを中心に、国際的な協力のもとに推奨値を求める努力がなされている。溶融塩は測定が困難な物質なので、推奨値の年々の改訂もかなり大幅である。Fig. 7はNaClの粘性率の推奨値を示す¹⁹⁾。1960年代の推奨値(点線)と1970年代の推奨値(実線)の間には、40%にもものぼる大差がある。

7. 理論と実験の最適組合せ

理学と異なり、工学技術の分野では、設計や技術開発のために必要とする熱物性値は、いかなる手段によっても必ずこれを数値として求めなくてはならない。その手段は、実験的手法によっても、理論的手法によっても、あるいはコンピューター実験のような手法によってもいわけであるが、精度、時間、経費の制約から、それら

Table 2 Internationally agreed values of thermophysical properties of H₂O and D₂O (Ranges of temperature and pressure)

	Properties	Temperature range/°C	Maximum pressure
			MPa
H ₂ O	Specific volume	0-800	100
	Specific enthalpy	0-800	100
	Vapor pressure	0-374 (<i>t_c</i>)	—
	Viscosity	0-800	100
	Thermal conductivity	0-800	100
	Critical constants	373.99	22.064
	Surface tension	0-374	—
	Static dielectric constant	0-550	500
	Ion product	1-1000	1000
	Refractive index	0-500	100
D ₂ O	Specific volume	3.8-600	100
	Vapor pressure	3.8-370 (<i>t_c</i>)	—
	Viscosity	3.8-500	100
	Thermal conductivity	3.8-550	100
	Critical constants	370.74	21.671
	Surface tension	3.8-370	—

の手法の最適な組合せによって広い範囲をカバーすることが望ましい。すなわち、どの物質のどのような状態におけるどの物性値は実測が容易かつ高精度であって、どのような範囲は理論計算にまかせた方が有利かを常に知っておかなくてはならない。もちろん、この境界は時代と共に変動し、また物性値の用途や許容精度によっても変わる²⁰⁾。

実測にたよるのは、なるべく単純な系、例えば純物質、常温常圧付近の系、基本的な分子構造の物質に限定し、あとは理論的手法で推算できると便利である。従って、理論的推算法を研究すべき方向として、次のような進め方が考えられる。

- (a) 純物質から混合物へ
- (b) 常温域から高温域、極低温域へ
- (c) 常圧から高圧(高密度)域へ
- (d) 同位元素系へ
- (e) 同系の複雑な構造の物質へ(炭化水素など)

ここでは(a)の混合物の場合を例に取り上げて考えてみる。まず、熱力学性質であるが、なかでも、高圧下の混合系の気液平衡データは、最近の高圧分離技術の発展とともに要求が高まり、発展している。

混合気体についての最近の要求は、例えば環境問題などのように、微量の不純物が混じったときにどこまで純物質(またはもとの物質)の性質だけで近似計算できるか、という場合と、ヒートポンプ作動媒体の開発のように、混合によって望ましい性質の物質を推定する物性制御を行ないたい場合とがある。多様な混合物をすべて実験することはできないので、後にも触れるように混合則の研

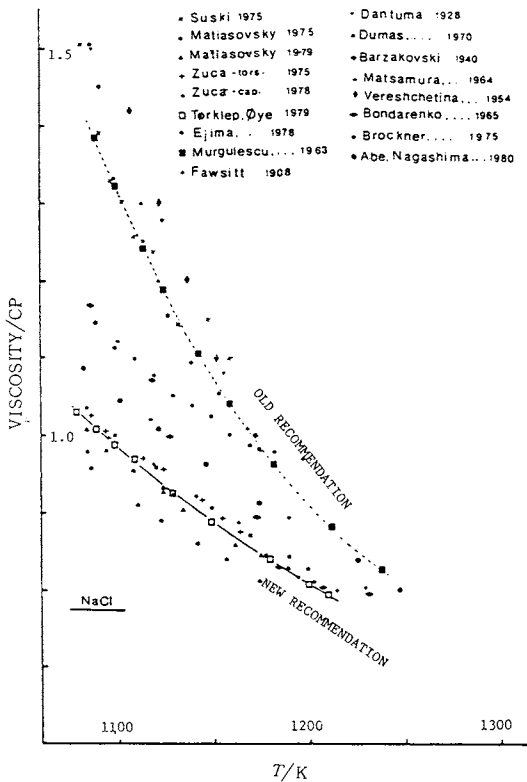


Fig. 7 The old and the new recommendations of the viscosity of NaCl (by Janz¹⁹⁾)

究が重要である。例えば、状態式に対する混合則には、(1)物性値そのものに混合則を適用して純物質の値から混合物の値を求める方法、(2)ビリアル係数や分子間ポテンシャルパラメータに混合則を適用する方法、(3)純物質の状態式の係数に混合則を適用する方法が考えられる。(1)は通常の方法である。(2)は同種の物質間、(3)は高密度域に適する方法と思われるが、これらの進歩により、実験の必要性を著しく軽減させることができると考えられる。

混合物の熱力学性質および相平衡が特に最近重要視されるようになったのは、カフェイン抽出などのような高圧分離技術の開発に伴う面が大きい。相平衡は、種々の形態の分類が詳細になされていても²¹⁾、定量的に理論計算で求めることはできない。もちろん、予め詳しい状態式が求まっていればこれから計算することはできる。また、例えば Redlich-Kwong 式のような簡単な状態式の成立つ物質は簡単な混合則で推算できることもある。これらの研究の現状は Schneider²²⁾ や Streett²³⁾ がまとめているが、要するに、理論計算ではまだ無理で実験研究の必要性が大きい。またランキンサイクル用の媒体として提案される媒体についても、混合冷媒などが有望である。例えば高石らの研究²⁴⁾ のように、状態式の係数について混合則を適用する研究は、実験の数を最小にする方法のひとつとして今後重要である。熱伝導率、粘性率、拡散係数などの輸送性質は伝熱計算などに重要であるにもかかわらず、データが不備で、特に混合物のデータは少ない。

高温ガスタービンやMHDの開発に際し、高温の燃焼生成物の熱物性値が必要である。測定は極端に難しいが、理論計算も難しい理由は、(1)複雑な混合物、(2)解離の影響、(3)非平衡状態、などである。混合物であることに対しては、混合則の研究が必要で、Matsunaga らによるもの²⁵⁾ もその試みのひとつである。Fig. 8は高温混合ガスの熱伝導率を純粋ガスの値から推算した場合の、混合則の違いによる偏差をくらべたものである。混合則も、組成が定まらないと適用できないので、特に高温では解離と非平衡状態の理論的研究が要望される。高密度域の値であっても、例えば粘性率については、常圧付近の値さえ求めれば、残余粘性率と密度との関係を用いて求められる²⁶⁾。

海水淡水化や海洋温度差発電、地熱発電などのために、海水、地熱水など水溶液のデータも必要とされている。その組成がまちまちであるので、実測は代表的成分の幾つかの組合せについてだけ行ない、あとは理論的に推算できるようにしなくてはならない。

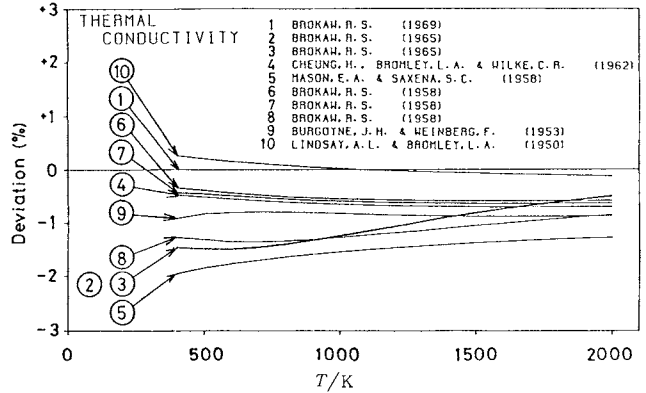


Fig. 8 Comparison of various mixing rules for the thermal conductivity of combustion product of kerosine

以上のほか、混合物として推算法の研究が必要なものは、熔融塩混合物(混合塩)やフロン系冷媒などである。いずれも動力発生用媒体や熱媒として重要で、その種類が多く、すべてを広い温度・圧力範囲にわたって測定するわけにはいかない。実験によらねばならない領域と理論計算で十分な領域は、その境目が時代と共にどんどん変わる。長期的には、実験は理論計算に座を少しずつ空け渡して、本当に実験でなければ求まらない問題に集中していかななくてはならない。

8. あとがき

熱物性データの技術情報としての価値が高くなるにつれて、その見方も変わってきた。現状では産業界などのニーズに十分には対応できておらず、大幅な研究の推進が必要である。このような基礎的情報を必要とするのは、技術開発でも最先端技術に限られるので、その意味では、日本が本当の先導的な国になった証拠として喜ばしい。熱物性データは生きものであり、刻々と書きかえられていくものである。従って、データの質の評価方法を研究し、標準データを確立して、これを普及させていくことをもっと組織的に行なわなくてはならない。また今後は、人的資源ならびに研究費の最も効率的な配分を考えて、重複した研究投資を避けたり、重要物質の集中的研究を進めていく必要がある。

文 献

- 1) Y. S. Touloukian, "Retrieval Guide to Thermophysical Properties Research Literature", McGraw-Hill (revised ed.), Plenum (1967). Also, Thermophysical Properties Research Literature Retrieval Guide, Supplement I, Plenum, (1973). 続巻も刊行中.
- 2) G. F. Newell, *Z. angew. Math. u. Phys.* **10**,

- 160 (1959).
- 3) 小林清志, 高野考義, 日本機械学会論文集 **48**, 2062 (昭57).
 - 4) 長坂雄次, 長島 昭, 日本機械学会論文集 **47**, 821 (昭56), および続報.
 - 5) 星野知彦, 三戸慶一, 大沢練太郎, 宮田昌彦, 長島 昭, 第21回日本伝熱シンポジウム講演論文集 262 (1984).
 - 6) S. E. Gustafsson, N. O. Halling, R. A. E. Kjellander, *Z. Naturforsch., A*, **23**, 682 (1968).
 - 7) 角谷核二郎, 畠山拓也, 長坂雄次, 長島 昭, 第22回日本伝熱シンポジウム講演論文集(1985)(予定).
 - 8) Center for Information and Numerical Data Analysis and Synthesis, Purdue Univ., Purdue University Research Park, 2595 Yeager Road, West Lafayette, Indiana 47906, USA.
 - 9) Molten Salts Data Center, Rensselaer Polytechnic Institute, Troy, New York 12181, USA.
 - 10) S. Angus, B. Armstrong, K. M. de Reuck, "International Thermodynamic Tables of the Fluid State", Pergamon, 物質別に刊行中.
 - 11) 物性データ調査研究報告, 流体特性データ第5巻, 科学技術庁振興局, 99 (昭56).
 - 12) A. Nagashima, *J. Phys. Chem. Ref. Data*, **6**, 1133 (1977).
 - 13) 長坂雄次, 長島 昭, 第1回日本熱物性シンポジウム講演論文集東京, 67 (1980). および, 長島 昭, 日本機械学会第524回講習会教材(1981).
 - 14) 谷下市松, 日本機械学会誌 **67**, 988 (昭39).
 - 15) 長島 昭, 日本機械学会誌 **79**, 1040 (昭51).
 - 16) 長島 昭, 日本機械学会誌 **86**, 1292 (昭58).
 - 17) 渡部康一, 蒔田 董, 日本機械学会誌 **87**, 1003 (昭59).
 - 18) Recommended Reference Materials for the Realization of Physicochemical Properties, Thermal Conductivity of Fluid Substances, IUPAC Phys. Chem. Div., Comm. on Physicochem. Meas. and Standards, (1977).
 - 19) G. J. Janz, Proc. 8th Symp. Thermophys. Prop., Vol. II, ASME, 256 (1982).
 - 20) 長島 昭, 日本機械学会論文集(昭60, 掲載予定).
 - 21) J. S. Rowlinson, F. L. Swinton, "Liquids and Liquid Mixtures", 3rd ed., Butterworth (1982).
 - 22) G. M. Schneider, Proc. 5th Japan Symp. Thermophys. Properties, Kobe 129 (1984).
 - 23) W. B. Streett, Proc. Japan-U.S. Joint Seminar on Thermophys. Prop., Tokyo, 47 (1983).
 - 24) 高石吉登, 香川 澄, 上松公彦, 渡部康一, 日本機械学会論文集 **49**, 2803 (昭58).
 - 25) N. Matsunaga, T. Hoshino, A. Nagashima, Proc. Int. Gas Turbine Congr., Tokyo (1983), (to be published).
 - 26) R. C. Reid, J. M. Prausnitz, T. K. Sherwood, "The Properties of Gases and Liquids", 3rd ed., McGraw-Hill (1977).