革新的汚染土壌改質手法の創出に向けた超臨界流体中における 非定常熱物質輸送の高時空間分解能計測と溶解速度のモデル化 High spatio-temporal resolution measurement for transient heat and mass transport in supercritical fluid and dissolution rate modeling for innovative contaminated soil remediation method

研究代表者 東北大学流体科学研究所 助教 神田雄貴

Yuki Kanda

This study focused on the measurement of transient heat and mass transport phenomena in supercritical fluid and numerical modeling for innovative contaminated soil remediation method. Supercritical carbon dioxide has various potentials for engineering applications, such as material processing, abstraction, and pollutant remediation. However, it has not been fully revealed that heat and mass transport phenomena under supercritical condition. Hence, this study is focused on the evaluation of heat and mass transport phenomena in supercritical carbon dioxide using a laser interferometry. As a result, transient heat transfer in supercritical carbon dioxide was successfully visualized using the high-speed phase-shift interferometer and evaluated by numerical simulations. Additionally, mass transfer of acetone, which was simulant pollutant in this study in carbon dioxide under high pressure conditions was discussed.

要旨

超臨界流体は、気体と液体の中間の輸送特性を併 せ持つ流体であり、臨界点近傍では密度に依存する 溶解度などの物性が温度や圧力の微小変化で大きく 変化する.これらの特性は、物質の抽出や分離に応用 され、土壌中の汚染物質分離への適用も期待されて いる.しかしながら、超臨界流体中での熱物質輸送現 象は未だ明らかでなく、超臨界流体中での輸送現象 を定量評価することが必要不可欠である.

そこで本研究では、超臨界二酸化炭素中の熱物質 輸送現象を明らかにすることを目的とし、独自の高 速位相シフト干渉計を用いることで、超臨界二酸化 炭素中における非定常熱輸送現象の定量評価、およ びアセトンを模擬汚染物質とした二酸化炭素中での 非定常物質輸送現象を評価した.

1. まえがき

1960年代の高度経済成長期を発端に我が国は 産業的および経済的に発展してきた.一方で,排気ガ スや土壌汚染をはじめとする「環境汚染問題」が露 わになってきたのも事実である.これに対し,近年, 二酸化炭素をはじめとする超臨界流体を用いること で,既存の汚染物質の隔離や物理的改質等の改質手 法に比べ環境負荷が小さい,大規模汚染土壌改質手 法が提案されている⁽¹⁾. 超臨界流体を用いた汚染物質改質手法は、その特 異な性質である高拡散性や高溶解性を汚染物質の吸 収・分離に応用することを想定している.しかし、実 用化に向けた超臨界流体中での熱物質輸送現象、お よび物質の溶解特性に関する知見は不足している. その背景として、温度や圧力の変化で急激に熱物性 が変化する超臨界流体の制御や、高拡散性による熱 物質輸送の高時空間分解能な計測が必要という実験 的検証の課題がある⁽²⁾.

そこで本研究では,超臨界流体を用いた汚染土壌 改質手法の確立を最終目標とし,超臨界二酸化炭素 中における非定常熱物質輸送現象の定量計測,およ び超臨界条件下における溶解速度モデルを構築する ことを目的として研究を進めてきた.

本報告においては、超臨界二酸化炭素の発生装置 の開発,および独自の光学干渉計である高速位相シ フト干渉計⁽³⁾⁽⁴⁾を用いた超臨界二酸化炭素中におけ る非定常熱輸送現象の評価を第2章において述べる. 第3章では本研究の目的である超臨界条件下におけ る溶解速度モデルを構築することを目標とし、非定 常物質輸送現象の実験的評価およびモデル化につい て、結果および現状の課題を述べる.第4節では本研 究の結論を述べる.

2. 非定常熱輸送現象の評価

2.1 実験装置と手法

2.1.1 超臨界二酸化炭素発生装置

本研究で構築した超臨界二酸化炭素発生装置を図 1に示す.本装置はステンレス製のバッファータン ク, ラバーヒーター, 真空ポンプ, 電子天秤で構成さ れており, 液体 CO₂ ボンベから凝縮器を通してタンク 内に液体 CO₂を導入できる.タンクには可視化窓を設 置し内部の CO₂の状態が可視化できる.タンク内部の 温度は, シリコンラバーヒーターおよびコントロー ラー (DG2P, 八光電機株式会社) で制御した.また温 度は, T型熱電対(SCHS1-0, CHINO Co.)で計測し, タ ンク内における CO₂の圧力は, ブルドン管圧力計で計 測した.

2.1.2 可視化セル

可視化セルの装置写真と概略図を図2に示す.可 視化セルはステンレス製であり,内部に可視化領域 (6 mm×6 mm×12 mm)を設けた.可視化セルの温度は, セル壁面に設置した銅性の水冷板によって制御した. セル内の圧力は,圧力トランスデューサー(KM31,長 野計器株式会社)で計測した.セル内部の温度は可視 化セル上部に設置したPt100(Class A, R003-3, CHIN0 Co.)によって計測した.

また可視化セル側壁の一つに銅柱を埋め込み,銅 柱をペルチェ素子で加熱することにより,可視化領 域に温度差を生じさせる機構を設けた.銅柱内部の 温度は,Pt100 (Class A, R003-3, CHINO Co.) によっ て計測した.



本研究では超臨界二酸化炭素中での輸送現象を評価するために、図3に示す高速速位相シフト干渉計⁽³⁾ (4)を用いた.本干渉計では試験領域に生じる密度分布による屈折率分布を干渉縞として二次元的に可視化できる.本研究では取得した干渉縞画像を位相シフト技術という画像処理⁽⁵⁾を用いて8ビット情報量を持つ位相シフト画像に変換した.本研究では3ステップ法⁽⁵⁾を用いて、3つの異なる偏光情報を持つ干渉縞画像から位相シフト画像を算出した.異なる偏光情報を持つ干渉縞画像の取得にはアルバプリズム⁽⁶⁾を用いた.取得した位相シフト画像から位相分布すなわち密度分布を取得した.撮影機器は高速度カメラ(MEMRECAM HX-3, nac Image Technology Inc.)を用いた.

2.1.4 実験手法

二酸化炭素の相平衡図を図4に示す.実験ではま ず,バッファータンク内を真空ポンプで脱気した後, 液体二酸化炭素を導入した.ここで二酸化炭素の注 入量は目標とする超臨界状態の温度圧力条件に応じ て任意に調整し,電子天秤で計測をした.次にラバー ヒーターでタンクを目標温度まで加熱することで二 酸化炭素を超臨界状態とした.本実験ではタンク内 の目標温度は318 K とし,その時のタンク内圧力はお よそ10 MPa であった.次に可視化窓を備えた可視化 セル(図2)に超臨界二酸化炭素を導入し,超臨界二 酸化炭素中での密度分布を高速位相シフト干渉計に よって計測した.超臨界二酸化炭素中での非定常熱 輸送現象を評価する際は,セル壁面に設置した銅柱 をペルチェ素子で加熱することで温度差を与えた.



図1 超臨界二酸化炭素発生装置 (図左上は8 MPa, 40°Cにおける超臨界状態の二酸化炭素を示す)



(a)



(b)

図2 (a) 可視化セルの装置写真と(b) 概略図



図3 高速位相シフト干渉計 (4)



2.2 非定常熱輸送現象の可視化

2.2.1 密度場の可視化

図5に8 MPa, 318 K の条件における可視化セル内 の超臨界二酸化炭素の観察結果を示す.ここで観察 領域内の超臨界二酸化炭素中の温度は、時間変化に 対し、およそ0.1 K以下で一定に制御した. 超臨界流 体中に密度勾配が存在しない場合、ミラーなどの光 学機器(図3)を用いて光路長差を調整することで、 無限干渉縞(干渉縞のない状態、すなわち密度勾配 が存在しない状態)を作成できる.しかし本条件下 では,光学機器を調整しても無限干渉縞を作成でき ず,多数の干渉縞すなわち密度勾配が生じているこ とが確認できた.これは、超臨界状態では温度変化に よる超臨界二酸化炭素の密度変化率が大きい,つま り屈折率変化が大きいことが原因であり,本実験で は時間変化に対し、可視化セル内の温度はおよそ0.1 K以下で一定であったが、密度変化率が大きさから、 このような干渉縞が観測できたといえる.



図5 超臨界二酸化炭素中の密度分布(8 MPa, 318 K)

また干渉縞が時間方向に揺らぐ様子も確認できた. この結果は、観察領域で移流の影響があったことを 示唆している.ここで本研究ではレイリー数に着目 して移流を検証した.レイリー数 (Ra) は式1に示す 無次元数であり、gは重力加速度 m/s²、 β は体積膨張 率1/K、 ΔT は物体表面すなわちセル壁面の温度と流 体温度との温度差 K、Lは代表長さ m、 ν は動粘度 m²/s、 aは熱拡散率 m²/s である.レイリー数は熱拡散と浮 力の比率を表しており、レイリー数が大きくなると 自然対流の影響が強く生じる.また式1からレイリ 一数は代表長さに大きく依存することがわかる.

$$Ra = \frac{g\beta\Delta TL^3}{\nu\alpha} \tag{1}$$

そこで本研究では、代表長さを z軸方向の可視化 部高さ(図2)と仮定し、図6に示す観察スリットを 図2の可視化セルに挿入し、可視化領域を変更(4.5 mm×0.5 mm×12 mm) して実験を行った.



図6 観察スリット

可視化結果を図7に示す.図7(a)の結果から干渉 縞の時間方向への揺らぎが減少する傾向が確認でき た. すなわち観察領域の代表長さを変更することで 移流の影響を小さくできたといえる.

図7(b)には図7(a)と同様の実験系で温度圧力条 件を変化させた 8.2 MPa, 307 K(臨界点近傍, 図4) における可視化結果を示す. 臨界点近傍の条件では、 臨界点付近での比熱や粘度などの熱物性値の急激な 変化のため、図7(a)と同様な代表長さの条件にもか かわらず、時間方向への揺らぎが確認されるととも に、温度に対する密度変化率が大きいことから密集 した干渉縞が確認できた.



布 ((a) 8.0 MPa, 318 K (b) 8.2 MPa, 307 K)

2.2.2 非定常熱輸送現象の定量評価

本研究では超臨界二酸化炭素中での非定常熱輸送 現象の評価を行った.図8に示すようにセル壁面温 度をペルチェ素子によって変化させ、超臨界二酸化 炭素中での非定常温度変化を評価した.本研究では 2.2.1款の結果を考慮し、干渉縞の時間的揺らぎ が少なく,無限干渉縞を作成することができた7.5 MPa, 320 K の条件において実験を行った.実験の計 測時間はおよそ80秒であり、この間に壁面温度を約 1.7 K 上昇させ, 超臨界二酸化炭素中に生じる非定常 熱輸送現象を干渉計で計測した.



壁面加熱時における干渉縞変化を図9に示す.こ こで位相シフト画像の空間分解能は 8 µm/ pixel で あり,可視化領域は幅約4.5 mm,高さ0.5 mm であっ た.また本実験ではペルチェ素子の加熱と高速度カ メラの撮影を同期しており,図9の時間0秒はカメ ラへのトリガー入力時間である.なお加熱壁面は図 9中の右側面である. 高速度カメラのフレームレー トとシャッタースピードは、それぞれ 60 fps および 1/10000 s であった.

計測の結果,壁面から徐々に干渉縞が発生する,つ まり温度勾配が形成することが観測できた.また図 9に示すように、加熱の時間経過とともに自然対流 による上方向(z軸方向)の温度分布の発達が生じ ることが定性的に確認できた.



壁面加熱時における干渉縞変化 (7.5 MPa, 320 K)

本研究では有限要素法を用いて,実験における非 定常熱輸送現象を数値的に評価した.数値シミュレ ーションは三次元の非定常計算であり,超臨界流体 中の熱拡散現象および対流を連成計算した.超臨界 二酸化炭素の熱物性値は NIST REFPROP⁽⁶⁾を参照し た.数値計算で得られた温度分布を図10に示す.図 9と図10の結果を比較すると,空間的および時間 的に温度分布は良い一致を示した.



図10 数値計算により推定した壁面加熱時における超臨界二酸 化炭素中での温度分布

ここで図10の中心軸に沿った熱拡散率の空間平 均は、10⁸ m²/s のオーダーであった.したがって本実 験において、熱拡散率が10⁸ m²/s のオーダーの超臨 界二酸化炭素中での非定常熱輸送現象を十分に計測 可能であることを示した.

3. 非定常物質輸送現象の評価

3.1 超臨界流体中での物質輸送モデル化の検討

2章では、超臨界二酸化炭素中での非定常熱輸送 現象に着目し、密度場および移流の影響を評価した. とくに臨界点近傍では、比熱や粘度などの熱物性値 が急激に変化し、微小な温度変化においても移流が 生じることが明らかとなった.

本研究の最終目標は超臨界流体を用いた汚染土壌 改質手法の確立である.そこで本研究では,超臨界二 酸化炭素中での非定常物質輸送現象を明らかにする ことを目的とし,前章において明らかとなった移流 の影響も含め,物質輸送現象について実験的および 数値的に検証する.

ここで対流の効果を含む物質輸送は一般に式(2) のようになる.

$$j = k(\rho_0 - \rho_\infty) \tag{2}$$

ここで j は物質流束 kg/(m²-s), kは物質伝達率 m²/s, ρ_0 は表面濃度 kg/m³, ρ_o は遠方の濃度 kg/m³で ある.

ここで物質伝達率はシャーウッド数(*Sh*)を用い て式(3)のように記述できる.

$$k = \frac{Sh \cdot D}{L} \tag{2}$$

Dは拡散係数m²/s, Lは代表長さmである.したがっ て, 超臨界流体中においてもこれらの式が適用でき ると仮定すると, 非定常物質輸送現象を明らかにす るためには, 物質伝達率が重要なパラメータであり, 物質流束や拡散係数を明らかにする必要があること がわかる.

3.2 アセトンの高圧二酸化炭素中での拡散現象

前節の結果から,本研究では超臨界二酸化炭素中 の物質輸送現象における物質流束や拡散係数の評価 に着目する.本研究では超臨界二酸化炭素中での物 質輸送現象の評価に先立ち,高圧条件下における二 酸化炭素中での非定常物質輸送現象を評価した.本 研究では模擬汚染物質としてアセトンを選定した.

3.2.1 実験装置

実験はアルミニウム製の可視化セル⁽³⁾を用いて行った.可視化セルは石英ガラス製の窓を備えており 内部を観察できる.セル内の模式図を図11に示す.



図11 物質輸送実験の観察セル内部模式図

セル内部にはアセトンを保持するためのチャネル (6 mm×1 mm×14 mm)を備えたアルミニウム ブロッ クを設置し,物質拡散領域は,幅 20 mm,高さ 10 mm, 奥行き 15 mm とした.可視化セルにはアセトン注入 管(直径:1.6 mm)を取り付け,シリンジポンプを用 いてアセトンをチャネル内に注入できる. セル内部 の圧力は圧力トランスデューサー(KM31,長野計器 株式会社)で計測した.

3.2.2 実験手法と条件

実験条件を表 1 示す.実験は室内温度を約 295.65 K に保ち実施した.実験は二酸化炭素でセル 内部を充填後,シリンジポンプを用いてアセトンを 注入し,直後の蒸発現象を位相シフト干渉計によっ て可視化した.アセトンの注入容量は各実験条件で 約80μLであった.

本実験で用いた位相シフト干渉計では、2.1.3 款同様に3ステップ法を用いて位相シフト画像を取 得した.本実験では異なる偏光情報を持つ干渉縞画 像の取得には回転偏光子⁽⁵⁾を用いた.位相シフト干 渉計で取得した画像の空間分解能は 61 µm/pixel であり、可視化領域は幅約 19.6 mm、高さ 14.7 mm で あった.

表1 アセトン物質輸送実験の実験条件

Pressure, MPa	Temperature, K
0.5	295.65
1.2	295.65

3.2.3 実験結果

二酸化炭素中のアセトン蒸発における位相シフト 画像を図12および図13に示す.ここで,図中の0 sはアセトン注入の直前の時間を意味する.

可視化結果から、アセトン注入直後に干渉縞が発生する様子が確認できた. 圧力条件が0.5 MPa の場合、 干渉縞は、セル下部からセル上部へ時間経過ととも に移動していく様子が確認できた.1.2MPa の場合に おいても同様の傾向が確認できた.

次に干渉縞が明確に検出された10秒以降で位相 シフト画像を比較すると、1.2 MPaの条件でより密な 干渉縞が観察できた.また干渉縞は二酸化炭素中に おけるアセトンの見かけの濃度勾配を示しており, 気液界面近くでより急勾配になっていることがわか った.したがって,二酸化炭素中におけるアセトンの 拡散係数は高圧条件下で小さくなると推定できる.

ここで一次元拡散を仮定し,図12および図13 の三角形で示した干渉縞位置の移動距離と経過時間 (=10 s)を考慮して,見かけの拡散係数を推定した. 見かけの拡散係数は、0.5 MPa で 6.8×10^{-7} m²/s、1.2 MPa で 3.5×10^{-7} m²/s と推定された. 気体中の拡散係 数における理論モデル⁽⁷⁾ では、拡散係数は圧力に反 比例することが明らかとなっており、本研究でも同様の傾向が定性的に確認できたといえる.







図13 二酸化炭素中のアセトン蒸発 (1.2 MPa, 295.65 K)

4. まとめ

本研究は, 超臨界流体を用いた汚染土壌改質手法 の確立を最終目標とし, 超臨界二酸化炭素中におけ る非定常熱物質輸送の定量計測, および超臨界条件 下における溶解速度モデルを構築することを目的と した研究である.本研究で得られた結果は以下のと おりである.

- 高速位相シフト干渉計を用いて,超臨界二酸化 炭素中における密度分布を可視化することに成 功した.
- 2. 臨界点近傍では、比熱や粘度などの熱物性値が 急激に変化し、微小な温度変化においても移流 が生じることが明らかとなった.
- 3. 高速位相シフト干渉計によって計測した超臨界 二酸化炭素中における非定常熱輸送現象は,数 値シミュレーション結果と良い一致を示し,熱 拡散率10⁸ m²/s 程度の非定常熱輸送現象を定量 計測可能であることを示した.
- 異なる圧力条件下での二酸化炭素中におけるア セトンの物質輸送現象を位相シフト干渉計により評価し、アセトン拡散係数が高圧条件下で小 さくなることを定性的に示した.

本研究では超臨界二酸化炭素中の非定常熱輸送現 象を,高速位相シフト干渉計を用いることで定量的 に評価した.物質輸送現象については,見かけの拡散 係数を推定できた一方で,本研究で推定した拡散係 数には,対流や熱輸送の影響が含まれる.対流の影響 が大きくなると予想されるより高圧な条件,すなわ ち超臨界条件においては,数値計算等を援用した熱 輸送,対流,物質輸送の分離評価が必要であるという 課題も明らかとなった.

発表論文

- Y. Kanda, H. Ito, L. Chen, and A. Komiya, "Optical visualization of heat transfer in supercritical carbon dioxide under near-critical, liquid-like, and gas-like conditions", Physics of Fluids (査読中).
- [2] Y. Kanda, R. Mukai, Y. Hu, L. Chen, and A. Komiya, "Accurate measurement for transient heat and mass transfer in the vicinity of gas-liquid interface during acetone vaporization utilizing the phase-shifting interferometer", Proceedings of the 17th International Heat Transfer Conference, IHTC-17 (査読中).
- [3] R. Mukai, <u>Y. Kanda</u>, Y. Hu, L. Chen, and A. Komiya, "Visualization of Acetone Diffusion in Highly Pressurized

CO₂ using Phase-shifting Interferometer" Proceedings of 19th International Conference on Flow Dynamics (ICFD2022), (2022/11)p. 800-801.

- [4] Y. Kanda, L. Chen, and A. Komiya, "Optical Visualization of Heat Transfer in Supercritical Carbon Dioxide under Conditions of Near and Far from The Critical Point", 1st World Conference on Multiphase Transportation, Conversion & Utilization of Energy (MTCUE-2022) Abstract Proceeding, (2022/7)p. 150-151.
- [5] <u>神田雄貴</u>,伊藤春輝,陳林,小宮敦樹, "光干渉計を用いた 超臨界二酸化炭素中の非定常熱輸送現象の可視化と熱拡散率 の評価",第59回日本伝熱シンポジウム講演論文集, (2022/5)B321.
- [6] H. Ito, <u>Y. Kanda</u>, L. Chen, and A. Komiya, "Experimental Visualization of Transient Heat Transfer under Supercritical Conditions Near and Far from Critical Point on p-T diagram", Proceedings of 18th International Conference on Flow Dynamics (ICFD2021), (2021/10)p. 660-661.
- [7] Y. Kanda, H. Ito, L. Chen, and A. Komiya, "Accurate visualization of carbon dioxide heat transfer under supercritical condition using high-speed phase-shifting interferometer", Proceedings of the Second Asian Conference on Thermal Sciences (2nd ACTS), (2021/10)20514.

口頭発表、受賞等

- [1] 神田雄貴,陳琳,小宮敦樹,"位相シフト干渉計を用いた超 臨界二酸化炭素中の非定常熱輸送現象の定量評価",第60 回日本伝熱シンポジウム,(2023)(発表予定).
- [2] Y. Kanda, R. Mukai, Y. Hu, L. Chen, and A. Komiya, "Accurate measurement for transient heat and mass transfer in the vicinity of gas-liquid interface during acetone vaporization utilizing the phase-shifting interferometer", 17th International Heat Transfer Conference (IHTC-17), (2023) (発表予定).
- [3] R. Mukai, <u>Y. Kanda</u>, Y. Hu, L. Chen, and A. Komiya,
 "Visualization of Acetone Diffusion in Highly Pressurized
 CO₂ using Phase-shifting Interferometer", 19th
 International Conference on Flow Dynamics (ICFD2022),
 (2022/11).
- [4] Y. Kanda, L. Chen, and A. Komiya, "Optical Visualization of Heat Transfer in Supercritical Carbon Dioxide under

Conditions of Near and Far from The Critical Point", 1st World Conference on Multiphase Transportation, Conversion & Utilization of Energy (MTCUE-2022), (2022/7).

- [5] 神田雄貴,伊藤春輝,陳林,小宮敦樹, "光干渉計を用いた 超臨界二酸化炭素中の非定常熱輸送現象の可視化と熱拡散率 の評価",第59回日本伝熱シンポジウム,(2022/5).
- [6] H. Ito, <u>Y. Kanda</u>, L. Chen, and A. Komiya, "Experimental Visualization of Transient Heat Transfer under Supercritical Conditions Near and Far from Critical Point on p-T diagram", 18th International Conference on Flow Dynamics (ICFD2021), (2021/10).
- [7] <u>Y. Kanda</u>, H. Ito, L. Chen, and A. Komiya, "Accurate visualization of carbon dioxide heat transfer under supercritical condition using high-speed phase-shifting interferometer", Second Asian Conference on Thermal Sciences (2nd ACTS), (2021/10).
- [8] 神田雄貴, "汚染土壌改質・浄化に向けた超臨界二酸化炭素中の熱物質移動現象の可視化技術",超臨界流体部会第20回サマースクール「シミュレーション技術の最前線と物性情報に立脚した材料・プロセス設計」,(2021/9).

参考文献

- L. Chen, Handbook of research on advancements in supercritical fluids applications for sustainable energy systems (IGI Global, USA, 2021).
- (2) B.L. Deng, Y. Kanda, L. Chen, J. Okajima, and A. Komiya, S. Maruyama, "Visualization Study of Supercritical Fluid Convection and Heat Transfer in Weightlessness by Interferometry: A Brief Review", Micrograv. Sci. Technol. 29(4), (2017) p. 275-295.
- (3) Y. Kanda, E. Shoji, L. Chen, J. Okajima, A. Komiya, and S. Maruyama, "Measurement of transient heat transfer in vicinity of gas-liquid interface using high-speed phase-shifting interferometer," Int. Commun. Heat Mass Transf. 89, (2017) p. 57-63.
- (4) Y. Kanda, H. Komatsu, J. Okajima, S. Maruyama, and A. Komiya, "Evaluation of rate-determining step of methane hydrate decomposition by measurement of transient heat and mass transfer near solid-gas interface," Int. J. Heat Mass Transf. 149, (2020) 119191.
- (5) J.F. Torres, A. Komiya, E. Shoji, J. Okajima and S.

Maruyama, "Development of phase-shifting interferometry for measurement of isothermal diffusion coefficients in binary solutions", Optics and Lasers in Engineering, Vol. 50(9), (2012)p. 1287-1296.

- (6) E. Shoji, A. Komiya, J. Okajima, H. Kawamura, and S. Maruyama, "High-speed phase-shifting interferometry using triangular prism for time-resolved temperature measurement," Appl. Optics 54(20), (2015) p. 6297-6304.
- (7) NIST Standard Reference Database-REFPROP, Version 9.1, (2013).
- (8) R. Taylor, H.A. Kooijman, Distillation, (2014) p. 97-143.