УДК 536.223

# Аддитивность коэффициентов теплопроводности в бинарных растворах некоторых жидкостей. Эксперимент

С.Б. Бобошина\*, А.В. Климов, С.Ю. Побережский, В.В. Черепанов, Е.К. Широкова

Московский авиационный институт (национальный исследовательский университет), Москва, 125993, Россия

\* e-mail: volga11@rambler.ru

Поступила в редакцию 23.04.2019 После доработки 26.04.2019 Принята к публикации 28.04.2019

Представлены результаты экспериментального исследования при комнатной температуре коэффициента теплопроводности растворов ряда органических жидкостей с учетом классификации Эвелла. В экспериментах использовалось оригинальное измерительное устройство, совмещающее в себе функции передатчика (источника разогревающего импульса) и приемника теплового сигнала, несущего полезную информацию об исследуемом образце. Для всех рассмотренных смесей экспериментальные значения с учетом погрешности измерений (до 2%) совпали со значениями, рассчитанными на основании предположения об аддитивном характере теплопроводности. Этот результат важен с практической точки зрения, поскольку он существенно упрощает расчет теплопроводности подобных растворов, используемых в технике жидкостей.

**Ключевые слова:** органические жидкости, растворы, коэффициент теплопроводности, измерительный датчик, аддитивность, концентрация.

## Введение

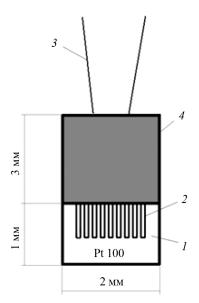
Значительное число явлений в природе (биология, живые организмы), подавляющее большинство технологических процессов в химической, нефтяной, пищевой и других отраслях промышленности полностью или частично протекают в жидком состоянии. Поэтому изучение свойств жидкостей представляет собой важную область физических исследований. Также важно отметить сложность теплофизических процессов, происходящих в жидких растворах, механизм и динамику течения которых можно исследовать, в частности, на основании того, как ведут себя коэффициенты теплопроводности и как они связаны с другими коэффициентами переноса.

Среди технических органических жидкостей важное место принадлежит компонентам топлива для авиационных и ракетных двигателей, теплоносителям и/или хладагентам в теплообменниках различных устройств. Если для чис-

тых жидкостей теплофизические свойства достаточно хорошо изучены [1-5], то для растворов двух или более жидкостей такие параметры как коэффициенты теплопроводности, температуропроводности, теплопередачи исследованы недостаточно [5-7]. Также плохо изученной остается связь теплопроводности раствора в целом с теплопроводностью образующих его чистых компонент. Поэтому важно установить, можно ли аппроксимировать такую связь простыми соотношениями и, в частности, установить степень нарушения аддитивных свойств в растворах при определении их теплопроводности. Результаты такого исследования для ряда растворов органических жидкостей представлены в данной работе.

## Методика измерений

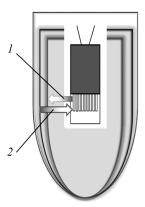
Теплофизические измерения осуществлялись по варианту экспресс-метода [7–9], позволяющего уменьшить необходимый объем исследуе-



**Рис. 1.** Сенсор меандровый Pt-100: I — подложка, 2 — резистивный элемент, 3 — токосъемники, 4 — корпус датчика

мого вещества и сократить время проведения измерений.

Как правило, особенности такого типа метода регистрации определяются конструктивными отличиями основных элементов измерительных устройств (датчиков) - сенсоров и типом компенсационных схем. В данной работе применялись резистивные тонкопленочные сенсоры с платиновым напылением в форме меандра (рис. 1). В этих устройствах в качестве подложки обычно используется ситалл или стеклотекстолит, причем напыление металлической пленки на подложку существенно упрощает процедуру изготовления сенсора. На подложке, как правило, располагается несколько резистивных дорожек [10], на концах которых напыляются также контактные площадки (медь, серебро), к которым припаиваются токосъемники.



**Рис. 2.** Температурные воздействия на датчик при исследовании жидкости: I – нагрев жидкости датчиком, 2 – тепловой поток на датчик со стороны более медленно остывающей жидкости (отклик)

Необходимо отметить, что конструктивно сенсоры указанного типа обычно имеют малые габариты, массу и, соответственно, низкую теплоемкость. Время их температурной релаксации существенно ниже, чем у исследуемой жидкости. Датчики с такими сенсорами позволяют проводить измерения с высокой точностью, что существенно повышает достоверность и качество получаемых результатов. Они могут совмещать в себе одновременно функции передатчика (источника разогревающего теплового импульса) и приемника теплового сигнала, несущего полезную информацию об исследуемом образце (рис. 2), позволяют проводить экспериментальные исследования с очень малыми объемами исследуемых веществ и не разрушают их структуру. Перечисленным условиям можно удовлетворить, используя иррегулярный тепловой режим, образованный последовательностью тепловых импульсов, подаваемых на сенсор. Уменьшение длительности измерений до  $\sim 10^{-4} - 10^{-2} \, c$  приводит к уменьшению характеристического размера области, в которой создается температурное поле, до  $10^{-4}$ – $10^{-3}$  м. Абсолютная величина возмущения теплового поля исследуемой жидкости при этом, как правило, не превышает 0.5 °C. Коэффициенты переноса изменяются в ходе измерения очень незначительно, поэтому начальную температуру жидкости в эксперименте можно считать равной температуре отнесения.

Чем тоньше напыление дорожек, тем больше сопротивление сенсора, что уменьшает его инерционные свойства и повышает тепловую мощность резистивных элементов. Соответственно, быстрее происходит прогрев прилегающих тонких слоев исследуемой жидкости и ее зондирование. Поверхностное сопротивление напыления сенсоров при комнатной температуре обычно составляет  $\gamma = 5-50$  Ом. У применяемых в исследовании сенсоров Pt-100 оно равняется 100 Ом, толщина напыления резистивной дорожки 0.14 мкм, ширина - 35 мкм. Это существенно сокращает время проведения эксперимента и увеличивает скорость обработки полученных данных. Кроме того, примененная методика позволяет, проведя всего одно измерение, получить сразу целый комплекс теплофизических величин [7–9].

Измерения проводились с помощью датчика, электрическую компенсационную мостовую схему которого (рис. 3) можно было применять

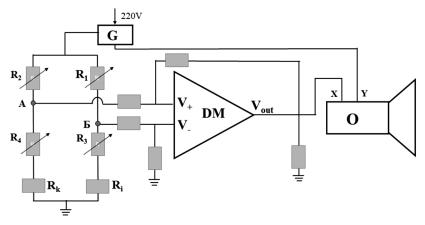
в комбинации с различными сенсорами. Мостовая схема при измерениях в иррегулярном тепловом режиме была ранее использована определения ДЛЯ теплопроводности и тепловой активности жидкостей Предварительно принципиальная работоспособность схемы проверялась на классическом сенсоре в виде участка платиновой нити диаметром 5 мкм. Зависимость ее электрического сопротивления от температуры показана на рис. 4. Затем в схему включались меандровые сенсоры, работа которых в схеме так-

ры, раоота которых в схеме также предварительно проверялась на эталонной жидкости (толуол). Полученные при этом результаты позволяют в виде компактных соотношений пересчитывать характеристики эталона и его настроек в значения, соответствующие исследуемой жидкости.

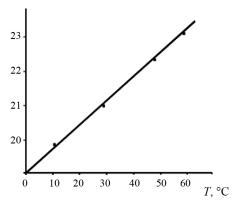
Измерения проводились в варианте «нульметода» [7–9]. Для этого в плечи моста были встроены по одному сенсору с близкими характеристиками. Один сенсор (компенсационный) находился в машинном масле, температура которого поддерживалась равной 0 °С с помощью сосуда Дьюара, второй (измерительный) — в исследуемой жидкости. В ходе эксперимента температура основной части объема исследуемой жидкости оставалась равной 20 °С — температуре отнесения. На мост с генератора G с интервалами 1 с подавались короткие  $\Pi$ -образные импульсы напряжения длительностью 38 мс и амплитудой 24 В.

При этом резистивный элемент измерительного сенсора кратковременно нагревался. Сигнал разбалансировки плеч моста усиливался и контролировался осциллографом DPO 3014 фирмы Tektronix. Подбором баластных переменных сопротивлений  $R_1$ — $R_4$  обеспечивался такой режим токов в ветвях моста, при котором напряжение (сигнал на осциллографе) на диагонали АБ моста оставалось равным нулю. Тогда теплопроводность исследуемой жидкости можно, согласно [8], определить из соотношения

$$\lambda = \left[\lambda_{(3T)} + \lambda_0\right] \left[\frac{R_{l(3T)}}{R_l}\right]^3 - \lambda_0, \qquad (1)$$



**Рис. 3.** Электрическая схема измерительного устройства: G – генератор импульсов; DM – дифференциальный усилитель;  $V_+$ ,  $V_-$ ,  $V_{\text{out}}$  – инвертирующий, неинвертирующий входы и выход DM; O – осциллограф;  $R_n$ , n=1-4, — переменные сопротивления компенсационного моста;  $R_k$   $R_i$  – компенсационный и измерительный сенсоры



**Рис. 4.** Зависимость электрического сопротивления платинового резистивного элемента сенсора от температуры

в котором  $\lambda_0$  — теплопроводность подложки или в общем случае той среды, которая граничит с исследуемым жидким раствором;  $\lambda_{(9T)}$  — теплопроводность эталонной жидкости (толуола);  $R_{1(9T)}$  — сопротивление измерительного сенсора, находящегося в эталонной жидкости на этапе предварительной настройки измерительной шкалы установки;  $R_1$  — сопротивление измерительного плеча моста для исследуемой жидкости.

Соотношение (1) определяет теплопроводность исследуемой жидкости при условии, что ее температура не отличается существенно от температуры эталона. Это требование можно выполнить в компенсационной схеме достаточно легко. В принципе, описанная методика позволяет проводить эксперименты в диапазоне температур, в котором исследуемое вещество сохраняет жидкое агрегатное состояние. Заранее подготовив жидкости, смешанные в необходимых пропорциях, можно приблизительно за 15 минут обработать 6–8 вариантов состава

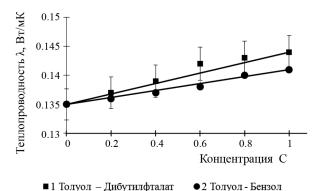
(основное время уходит на балансировку сопротивлений).

Относительная погрешность такого экспериментального метода определения теплопроводности, согласно оценке [8], составляет

$$\frac{\delta\lambda}{\lambda} = \varepsilon \frac{\lambda_0 + \lambda}{\lambda} \frac{\delta R_1}{R_1} \simeq (1 - 3) \cdot 10^{-2}, \quad (2)$$

где  $\delta R_1$  — неопределенность компенсации мостовой схемы в выбранном временном интервале;  $\varepsilon = \sqrt{\rho C \lambda}$  — тепловая активность исследуемой смеси. Погрешность имеет два источника происхождения — аппаратурные искажения и несовершенство используемой при интерпретации данных идеализированной математической модели.

Высокая точность измерения электрических сопротивлений снижает аппаратурную погрешность компенсации напряжений плеч мостовой схемы в ходе измерений. Поскольку эта величина определяет, по существу, разрешение значений теплопроводности λ (минимальное изменение теплопроводности, на которое измерительное устройство способно отреагировать), основной вклад в общую погрешность метода вносит применение линейной модели с точечным источником для процесса теплопроводности [8, 11]. Реальный процесс теплообмена в жидкостях имеет, конечно, комбинированный радиационно-кондуктивный нелинейный характер. Зонды-сенсоры вносят в результат измерений искажения собственной теплоемкостью, размерами источника тепловых импульсов, непостоянством теплового потока, радиационным излучением, отклонением от линейной температурной зависимости резистивных



**Рис. 5.** Зависимость теплопроводности растворов толуола от концентрации второй компоненты смеси, маркеры — измерения, сплошная линия — расчет, расхождения экспериментальных и расчетных значений не превышают 1%. Погрешности измерений показаны для раствора 1

элементов. Уменьшить влияние неточности модели можно снижением длительности импульсов до  $\sim 10^{-4} - 10^{-6}$  с или меньше, что также приводит к уменьшению размеров области тепловых возмущений, в которой и проводятся измерения. Последнее обстоятельство уменьшает вклад в погрешность метода нелинейности механизмов теплообмена [12].

## Результаты экспериментов

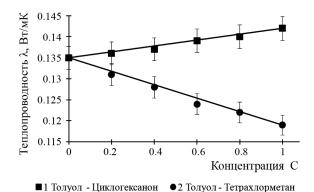
В ходе исследования требуемый бинарный раствор составлялся из ассортимента имеющихся в наличии чистых жидкостей, при этом объемная концентрация составляющих раствора варьировалась. Отметим, что смешивание растворов осуществлялось в соответствии с классификацией Эвелла для чистых жидкостей [2]. Для того чтобы обеспечить репрезентативность результатов исследования, смешивались жидкости как из одной группы, так и из совершенно разных групп классификации. Все представленные ниже результаты измерений теплопроводности соответствуют температуре отнесения 20 °C. Для проверки аддитивного свойства теплопроводности смеси результаты измерений сравнивались со значениями, полученными по формуле

$$\lambda_{\rm CM} = \lambda_1 (1 - C) + \lambda_2 C \,, \tag{3}$$

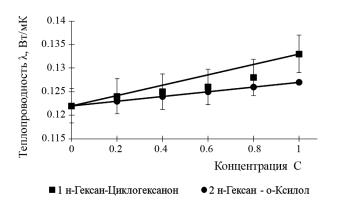
где  $\lambda_k$  – теплопроводность k-й компоненты; C – относительная концентрация второй компоненты. На рис. 5–9 приводятся некоторые результаты, полученные в ходе исследования. Измеренные значения теплопроводности показаны маркерами, суммарные значения  $\lambda_{\text{см}}$ , рассчитанные по формуле (3), — сплошными линиями.

#### Обсуждение результатов

Как видим, визуальное сравнение показывает достаточно хорошее совпадение экспериментальных и аддитивных расчетных значений. Для всех перечисленных смесей погрешность нарушения аддитивного свойства теплопроводностей не превысила 2%, что находится в пределах погрешности измерений. Таким образом, аддитивное свойство коэффициентов теплопроводности компонент достаточно точно подтверждается для всех исследованных растворов. Подчеркнем, что хорошее совпадение наблюдается для растворов, составленных из жидкостей,



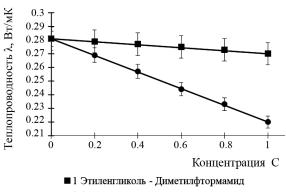
**Рис. 6.** Зависимость теплопроводности растворов толуола от концентрации второй компоненты смеси, маркеры — измерения, сплошная линия — расчет, расхождения экспериментальных и расчетных значений не превышают 1%



**Рис. 7.** Зависимость теплопроводности смесей н-гексана от концентрации второй компоненты смеси, маркеры — измерения, сплошная линия — расчет, расхождения экспериментальных и расчетных значений не превышают 2%. Погрешности измерений показаны для раствора 1

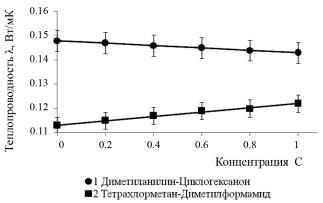
относящихся как к одному, так и к различнымклассам Эвелла. В этой классификации главная роль отводится наличию (1 группа) или отсутствию (5 группа) у молекул водородной связи, наличию или отсутствию в составе молекул активного водорода и доноров электронов. Погрешности свойства аддитивности во всех случаях оказались достаточно близкими.

Так, для раствора Этиленгликоль (1 группа) — Диметилформамид (3 группа) расхождение результатов расчета и экспериментальных данных не превышало 0.3%; для раствора Этиленгликоль (1 группа) — Тетрахлорметан (4 группа) — 0.3%; для раствора Диметиланилин (2 группа) — Циклогексанон (3 группа) — 0.1%; Тетрахлорметан (4 группа) — Диметилформамид (3 группа) — 0.5%; Толуол (5 группа) — Бензол (2 группа) — бензол (2 группа)



• 2 Этигенгликоль - тетрахлорметан

**Рис. 8**. Зависимость теплопроводности растворов этиленгликоля от концентрации второй компоненты смеси, маркеры — измерения, сплошная линия — расчет, расхождения экспериментальных и расчетных значений не превышают 0.3%



**Рис. 9.** Зависимость теплопроводности растворов диметиланилина и тетрахлорметана от концентрации второй компоненты смеси, маркеры — измерения, сплошная линия — расчет, расхождения экспериментальных и расчетных значений не пре-

na) — 0.5%; н-Гексан (5 группа) — о-Ксилол (3 группа) — 0.1%.

вышают 0.5%

Напомним, что к третьей группе относятся жидкости, молекулы которых не содержат активного водорода, молекулы четвертой группы, напротив, активный водород содержат. Так что с этой точки зрения какой-либо закономерности результатов не просматривается.

Самые большие отклонения экспериментальных и рассчитанных значений наблюдались у растворов, в которые входили жидкости из 5 группы по классификации Эвелла (без водородных связей):

Толуол (5 группа) — Дибутилфталат (3 группа) — 1%:

Толуол (5 группа) — Тетрахлорметан (4 групna) — 1%; H- $\Gamma$ ексан (5 группа) — Циклогексанон (3 группа) — 2%.

Здесь наибольшие расхождения наблюдались при близких концентрациях компонент раствора.

Хорошо известно, что в газах и жидкостях основным механизмом процесса теплопроводности являются взаимодействия между молекулами [13]. В жидкостях энергия передается при столкновениях молекул, колеблющихся около своих положений равновесия. Амплитуда таких колебаний увеличивается с ростом температуры, а сами положения равновесия имеют возможность перемещаться по жидкости. Аддитивность коэффициента теплопроводности по сути означает, что энергообмен при взаимодействии молекул разных жидкостей достаточно слаб, так что основной эффект достигается при взаимодействиях частиц одного типа. Этот результат достаточно надежно подтверждают исследования, проведенные при разных объемных долях смешиваемых чистых жидкостей. Заметим также, что он является весьма нетривиальным и может достигаться благодаря целому комплексу причин – существенному отличию сечений столкновений частиц одного и различных типов, малой долей энергии, передаваемой при столкновениях различных частиц, и др. Однако установление конкретной причины такого поведения теплопроводности требует проведения отдельного фундаментального исследования, которое выходит за рамки данной работы. Кроме того, обсуждение погрешности результатов относится только к экспериментальным данным и применяемой модели процесса теплообмена. Поэтому в дальнейшем целесообразно также проведение дополнительного исследования уровня статистической достоверности гипотезы об аддитивности теплопроводности растворов. Для определения ее точности и подтверждения адекватности требуется обработка экспериментальных данных методами регрессионного анализа.

#### Заключение

С помощью оригинальной установки измерены коэффициенты теплопроводности растворов ряда органических жидкостей. Рассматривались жидкости, которые используются в качестве компонент ракетного топлива авиационных и ракетных двигателей или хладагентов в тепло-

обменниках различных технических устройств. Для исследованных растворов жидкостей проверено выполнение свойства аддитивности теплопроводностей отдельных компонент раствора. Установлено, что аддитивность теплопроволности при комнатной температуре сохраняется в пределах погрешностей измерений при различных относительных концентрациях смешиваемых веществ. Это свойство имеет важное практическое применение при расчете теплопроводности используемых в технике жидкостей. Однако установить взаимосвязь аддитивности теплопроводности с наличием или отсутствием у молекул водородных связей не удалось. Определение конкретных причин полученного эффекта аддитивности, уровня статистической достоверности соответствующего предположения требует проведения дополнительных исследований.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Варгафтик Н.Б. Справочник по теплофизическим свойствам газов и жидкостей. М.: Физматгиз, 1963.
   721 с.
- Филиппов Л.П. Исследование теплопроводности жидкостей. М.: МГУ, 1970. 241 с.
- 3. **Глушко В.П.** Свойства индивидуальных веществ. Справочное пособие в четырех томах. М.: Наука, 1978–1982.
- 4. Варгафтик Н.Б., Филиппов Л.П., Тарзиманов А.А., Тоцкий Е.Е. Справочник по теплопроводности жидкостей и газов. М.: Энергоатомиздат, 1990. 352 с.
- Спирин Г.Г. Исследование молекулярной теплопроводности органических жидкостей // ИФЖ. 1980. Т. 38.
  № 4. С. 656–661.
- 6. **Дульнев Г.Н. Заричняк Ю.П.** Теплопроводность смесей и композиционных материалов. Л.: Энергия, 1974. 264 с.
- Побережский С.Ю. Теплопроводность бинарных растворов органических жидкостей по группам классификации Эвелла // Современные проблемы науки и образования. 2014. № 4. Электронный ресурс: http://www.scienceeducation.ru/118-13977.
- Спирин Г.Г. Методические особенности кратковременных измерений в стадии иррегулярного теплового режима // ИФЖ. 1980. Т. 38. № 3. С. 403–410.
- 9. **Кравчун С.Н.** Исследование теплофизических свойств жидкостей методом периодического нагрева. Дис. ... канд. физ.-мат. наук. М., 1983. 201 с.
- 10. **Сенсор** Pt 100. Сайт компании Heraeus Group, Germany: https://www.heraeus.com
- 11. **Лыков А.В.** Теория теплопроводности. М.: Высшая школа, 1967. 600 с.
- Лебедев-Степанов П.В., Спирин Г.Г. Измерение тепловой активности диэлектрических жидкостей с точностью ~10<sup>-4</sup> // Инженерно-физический журнал. 1999. Т. 72. № 3. С. 402–408.
- 13. **Гиршфельдер Дж., Кертисс Ч., Берд Р.** Молекулярная теория газов и жидкостей. М.: ИЛ, 1961. 930 с.

# An additivity of thermal conductivity coefficients in binary solutions of some liquids. Experiment

# S.B. Boboshina, A.V. Klimov, S.Yu. Poberezhsky, V.V. Cherepanov, E.K. Shirokova

Moscow Aviation Institute (National Research University), Moscow, 125993, Russia e-mail: volga11@rambler.ru

The article presents the experimental study results at room temperature of the thermal conductivity coefficient of a number of organic liquids solutions taken in different volume shares. Liquids that can used as refrigerants/ heat carries in heat exchangers or other technical devices had been selected for the study. The studied solutions mixing were carried out taking into account the Evell's classification. Measurements were carried. Out by the Express diagnostics based on the heated thread method allowing to operate with small volumes of substances. In the experiments, there were used the original measuring device which combines the functions of a transmitter (a source of a heating pulse) and a receiver of a thermal signal carrying useful information about the studied sample. The device contains the original bridge compensation scheme, the branches of which the measuring and compensation sensors are included. The implemented technique reduces the determination of the thermal conductivity coefficient to the measurement of the electrical resistance of the sensors and the bridge branches. For all the mixtures considered, while at different concentrations of their initial components in the solution, the experimental values, taking into account the measurement error (up to 2%), coincided with the values calculated on the basis of the assumption of the additive nature of the thermal conductivity. This result is important from a practical point of view, because it greatly simplifies the thermal conductivity calculation of such solutions used in technique. Determining the degree of statistical reliability of the conclusion about the thermal conductivity additivity and the determination of the specific physical reasons for the effect obtained requires additional research. In particular, it was not possible to establish the relationship between the thermal conductivity additivity and the presence or absence of hydrogen bonds in molecules.

**Keywords:** organic liquid, solution, thermal conductivity coefficient, measuring sensor, additivity, concentration.

#### **REFERENCES**

- 1. Vargaftik N.B. Handbook of Physical Properties of Liquids and Gases. Germany: Springer, 1975. 758 p.
- Filippov L.P. Issledovanie teploprovodnosti jidkostey [Study of thermal conductivity of liquids]. Moscow: Moscow University Press, 1970. 241 p. In Russ.
- 3. **Glushko V.P.**, ed. *Svojstva individual'nykh veshhestv. Spravochnoe posobie v chetyrekh tomakh*. [Properties of individual substances. Reference manual in four volumes]. Moscow: Nauka, 1978–1982. In Russ.
- Vargaftik N.B., Filippov L.P., Tarzimanov A.A., Totsky E.E. Spravochnik po teploprovodnosti zhidkostej i gazov [Reference book on thermal conductivity of liquids and gases]. Moscow: Energoatomizdat, 1990. 352 p. In Russ.
- 5. **Spirin G.G.** Molecular thermal conductivity of organic liquids. *Journal of Engineering Physics and Termophysycs*, 1980, vol. 38, no. 4, pp. 390–394.
- Dulnev G.N. Zarichnyak Yu.P. Teploprovodnost' smesej i kompozitsionnykh materialov [Thermal conductivity of mixtures and composite materials]. Leningrad: Energy, 1974. 264 p. In Russ.
- Poberezhskiy S.Y. Teploprovodnost' binarnykh rastvorov organicheskikh zhidkostej po gruppam klassifikatsii Evella [Thermal conductivity of binary solutions of organic liquids

- by Evell's classification groups]. Sovremennye problemy nauki i obrazovaniya Modern problems of science and education, 2014, no. 4. In Russ. http://www.science-education.ru/118-13977
- 8. **Spirin G.G.** Methodological peculiarities of short measurements at the stage of irregular thermal regime. *Journal of Engineering Physics and Termophysycs*, 1980, vol. 38, no. 3, pp. 227–232.
- Kravchun S.N. Issledovanie teplofizicheskikh svojstv zhidkostej metodom periodicheskogo nagreva. Cand. diss. fiz.-mat. nauk [Study of thermophysical properties of liquids by periodic heating. Can. phys. and math. sci. diss.]. Moscow, 1983. 201 p. In Russ.
- Sensor Pt 100. Heraeus Group Company site, Germany: https://www.heraeus.com
- Lykov A.V. Teoriya teploprovodnosti [Theory of heat conductivity]. Moscow: Vysshaya shkola, 1967. 600 p. In Russ.
- 12. **Lebedev-Stepanov I.V., Spirin G.G.** Measurement of thermal activity of dielectric liquids with an accuracy of ~10<sup>-4</sup>. *Journal of Engineering Physics and Termophysycs*, 1999, vol. 72, no. 3, pp. 374–380.
- 13. Hirschfelder J.O., Curtiss Ch.F., Bird R.B. Molecular theory of gases and liquids. Wiley, New York, 1954. xxvi + 1219 p. (Russ. ed. Hirschfelder J.O., Curtiss Ch.F., Bird R.B. Molekulyarnaya teoriya gazov i zhidkostej. Moscow, Inostrannaya literature Publ., 1961, 930 p.)