

琉球大学学術リポジトリ

食品廃棄物によるバイオガスの発生： 小規模メタン発酵システムの開発

メタデータ	<p>言語:</p> <p>出版者: 琉球大学教育学部</p> <p>公開日: 2007-07-17</p> <p>キーワード (Ja): バイオガス, メタン発酵, 小規模システム, 食品廃棄物, 食品リサイクル, 食品循環</p> <p>キーワード (En):</p> <p>作成者: 石黒, 英治, 木村, 珠美, 和田, 早緒里, 鈴木, 宏明, 宮城, 明美, 小野, 恭子, 古我, 知浩, 上原, 辰夫, 翁長, 秀光, 福嶋, 規子, 山本, 耕平, 宮城, 建昭, Ishiguro, Eiji, Kimura, Tamami, Wada, Saori, Suzuki, Hiroaki, Miyagi, Akemi, Ono, Kyoko, Kogachi, Hiroshi, Uehara, Tatu, Onaga, Hidemitsu, Fukushima, Noriko, Yamamoto, Kouhei, Miyagi, Kensyo</p> <p>メールアドレス:</p> <p>所属:</p>
URL	<p>http://hdl.handle.net/20.500.12000/916</p>

食品廃棄物によるバイオガスの発生

—小規模メタン発酵システムの開発—

石黒英治¹, 木村珠美^{1*}, 和田早緒里^{1**}, 鈴木宏明², 宮城明美², 小野恭子³
古我知浩³, 上原辰夫⁴, 翁長秀光⁵, 福嶋規子⁶, 山本耕平⁶, 宮城建昭⁷

Generation of Biogas by Use of Food Wastes

—Development of a Small-Scale System of Methane Fermentation—

Eiji ISHIGURO¹, Tamami KIMURA^{1*}, Saori WADA^{1**}, Hiroaki SUZUKI²,
Akemi MIYAGI², Kyoko ONO³, Hiroshi KOGACHI³, Tatu UEHARA⁴,
Hidemitsu ONAGA⁵, Noriko FUKUSHIMA⁶, Kouhei YAMAMOTO⁶
and Kensyo MIYAGI⁷

Abstract

The research on generation of biogas was carried out as one of subjects in a project which has been promoted to make pig feeds using food recyclable resources. The aim of the research was to recycle all of leftover foods collected except those used as the pig feeds. A 1m³ digestion tank and some small 18 l tanks were provided. The former was placed in a vinyl house to examine the effect of heating by the sun, and the latter ones were kept at a temperature of about 38 °C so as to be appropriate for methane fermentation to find the biogas generation rate. It was found that the biogas generation rate for the leftover foods of 1 kg was 70 l/kg a day and a proper amount of leftover foods for the tank volume of 1 m³ was appropriately 11 kg/m³ a day. This means that, for instance, a digestion tank with the volume of 20 m³ and leftover foods of 220 kg per day were needed if you require biogas of 16 m³ per day which is equivalent to kerosene of 10 l as the calorific value.

It is effective in heating the digestion tank to place it in a vinyl house. Although the heating is necessary in wintertime or nighttime, the subtropical climate at Okinawa is advantageous to methane fermentation. Therefore it is considered that the electricity consumption for the heating could be saved much more by use of renewable energies such as solar water heaters, solar batteries or small-sized wind power generators.

¹ 琉球大学教育学部自然環境教育コース

² (会) オキスイ 沖縄市字知花6-23-7

³ (NPO 法人) エコ・ビジョン沖縄 那覇市首里鳥堀4-44-1

⁴ (南) 沖縄環境経済研究所 西原町字翁長841-3

⁵ (株) 光エンジニア 那覇市字識名1279

⁶ (株) ダイナックス都市環境研究所 東京都港区西新橋2-11-5TKK西新橋ビル

⁷ (南) 北中有機肥料 北中城村字萩道160

* 現在の所属: (株) 東芝セラミックス

** 現在の所属: 大阪市立環境科学研究所附設栄養専門学校

1. はじめに

沖縄県は観光県としてホテル、飲食業、食品加工業が多い。一般廃棄物の発生量は年間49万トンで、そのうち生ごみは15万トン程度と推定される。産業廃棄物の動植物性残渣は24万トンなので、合わせて約40万トンの食品廃棄物が発生していることになる（平成13年度）。その多くは焼却や埋め立てによって処分されている。

食品リサイクル法では食品の売れ残りや食べ残しまたは食品の製造過程で発生する食品廃棄物について、それらの発生抑制と減量化とともに、食品廃棄物のうち資源として有用なものを「食品循環資源」と定義し、その飼料や肥料としての再生利用を謳っている。しかしながら、食品リサイクル法は月100トン以上の排出事業者に対してこれを義務付けてはいるものの、県内の多くのホテルや飲食店はこれに該当せず、排出される廃棄物の一部は環境資源として活用されてはいるものの多くは通常の生ごみとして処分されている。

一方、県内では養豚業が盛んである。かつては「残飯養豚」がひろく行われていたが、近年は輸入のトウモロコシを基本とした配合飼料による養豚の普及に伴ってほとんど見られなくなった。残飯養豚は食のリサイクルという観点からは見直されるべきではあるが、安全性や衛生面、あるいは栄養バランスの面などで多くの問題がある。残飯養豚とは異なる、食品循環資源を利用した新しい飼料化技術の確立、ノウハウの蓄積が望まれる。

このような背景の下に、平成14年に沖縄県産学官共同研究推進事業「食品循環資源の飼料化装置の実用機器開発と資源循環型畜産システムの構築」がスタートした。この事業では食品循環資源の回収システムの構築、それらを原料とした飼料の製造機器の開発、そして製造した飼料による豚の肥育が行われた。これらの成果は報告書¹⁾にまとめてある。産学官共同研究推進事業は平成15年で終了したが、その後も食の循環を意味する「くいまーる」プロジェクトとして、NPO法人エコ・ビジョン沖縄を中心に推進されている。平成16年12月にははじめての「食品循環養豚全国会議」を沖縄で開催し²⁾、食品循環資源による養豚を実践している各地の養豚家らが集まった。

本論文では、当プロジェクトの中で行った食品廃棄物によるバイオガス発生の研究について述べる。飼料化のために回収された食品残渣すべてが飼料化に適しているわけではない。飼料用として選分けられた以外の食品残渣は、堆肥化などの処理が必要となる。一方、食品残渣から飼料を作る過程において殺菌や保存のために、加熱によって食品残渣中に含まれる多量の水分を蒸発・乾燥させる必要がある。これには通常、重油や灯油を燃料とする熱源が用いられるが、その消費は飼料の製造コストに直接はねかえる。このような課題の解決を目指し、食品残渣によるメタン発酵の研究を行うことになった。

メタン発酵の現象は自然界では古池や沼などで見られる。中国などでは古くから農村で利用されてきた。日本でも大正末期から昭和にかけて一部の農村で家畜のし尿処理方法として利用されていた。しかし、燃料需要の大きい冬季にはほとんどガスの発生がなく、設備費がかさむことやプロパンガスの普及でメタン発酵の利用する人はほとんどいなくなった。しかし、近年、環境問題やエネルギー問題から、メタン発酵が見直され、下水処理、都市ごみの処理、家畜糞尿の処理等に大型プラントが建設されている。

メタン発酵は酸素のない嫌気性雰囲気のもとで生じ、36から40℃を適温とするメタン菌による中温発酵と45から56℃を適温とする高温発酵がある。高温発酵のほうが、発酵速度や消化能力が大きい。加温のためにより大きなエネルギーが必要である。沖縄は冬季でも平均気温が15℃を下回らず、1年を通して暖かい気候である。そのため加温のためのエネルギーが少なく済み、メタン発酵にとっては有利な場所であると考えられる。飼料化装置の燃料として使用するにはどれほどの規模のバイオシステムが必要かを見積もり、また、この研究を通じて1農家あるいは個人でも利用できる小規模メタン発酵システムを開発することが本研究の目的である。

2. バイオガス発生の実験

2-1. 生ごみの前処理

用いた生ごみは、大学生協食堂の残飯である。ご飯、麺類、茶殻が多く、野菜、果物、魚、肉類は少なかった。しょう油などの調味料も含まれているので塩分は多いことが予想されるが測定は行っていない。集めた生ごみはハンディタイプの攪拌機で破碎したが、パイナップルの皮や魚の骨など硬いものは予め取り除いておいた。破碎すると見た目は液状を呈したが、ミキサーで砕いたようには細かく碎かれていない。水分率は82~83%であった。メタン発酵が生じる過程では、たんぱく質やでんぷん等の有機物が直接メタン菌により分解されることなく、それらはまずは好気性および通性嫌気性菌により低分子化され、さらに酸発酵を経由しなければならない。そのため発酵槽に投入する前に3ヶ月以上ビニール袋に詰めて嫌気性雰囲気においた。このことによって、メタン発酵がよりスムーズに行われると考えられる。

2-2 1m³発酵槽による実験

本研究では加温のためのエネルギーが小さくてすむ38℃付近を適温とする中温発酵を行うこととした。図1には4m四方のビニールハウスの中に

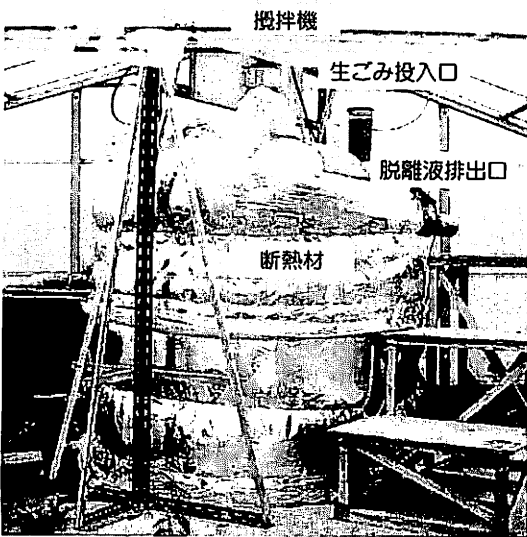


図1. ポリエチレン製1m³発酵槽

設置した容量1m³のポリエチレン製発酵槽を示す。

発酵槽には生ごみ投入口、脱離液排出口が設けられている。発酵槽の周囲をヒーター（家庭用電気カーペット2畳大、最大500W、温度調整付）とその外側にグラスウールの断熱材で覆った。ビニールハウス内では太陽が出ているときは夏場では50℃にも達することがあるし、冬場でも30℃は得られるので、加温のためのエネルギーは節減できる。発酵槽内の攪拌は攪拌機によって1日1回30分間行われた。

2005/1/12より生ごみの投入を開始し、4/21までの約3ヶ月間実験を行った。生ごみの投入量とバイオガス発生量を図2(a)に示す。最初は発酵液を安定化させるため数kgの少量を数日ごとに投入したが、次第に投入量を増やし1ヶ月後の2/17には週1回に約20kgを投入することにした。2/17から4/21までの9週間に、生ごみ171kgの投入量に対して20.9m³の発生量を得た。生ごみ1kgあたりの発生量は120ℓ/kgである。

発酵槽の液温とpH、およびハウス内気温を図2(b)に示す。発酵槽の温度は35℃付近に、pHは7.6付近に保たれている。ハウス内の気温は最低17℃、最高32℃であったが、これらは午前中（大

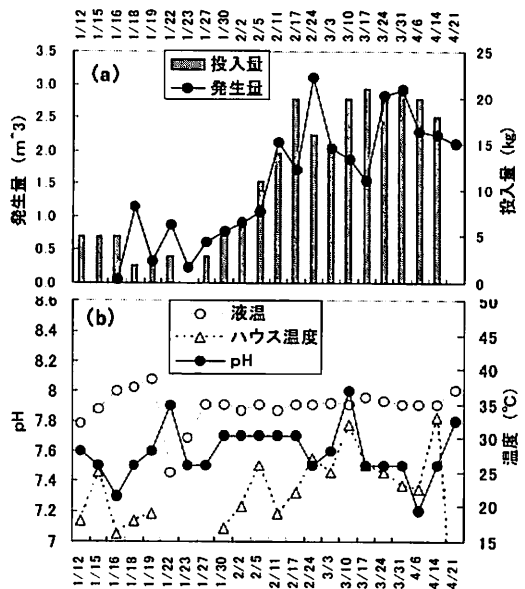


図2. 1m³発酵槽を用いた実験：(a)生ごみ投入量とバイオガス発生量、(b)消化液のpHおよび温度、ビニールハウス内の気温

半が午前10時くらい)の測定で太陽が昇り始めたところであり、また冬季であることを考慮するとビニールハウスの使用は発酵槽の加温に有効であることが分かる。

実用的な観点からは、生ごみの投入は毎日行うべきであり、従って実験としてもこれに近い形で行うべきであるが、実験場所と筆者の勤務場所の関係で週1回しか現場に訪れることができなかった。そこで、18ℓ缶を発酵槽に用いた室内実験を並行して行った。

2-3. 18ℓ缶発酵槽による実験

図3に示すように、攪拌機を備えた18ℓ缶発酵槽を発泡スチロールで作った保温箱の中に置き、保温箱内部を電球で温めた。1時間の攪拌を1日3回行った。発酵槽を3つ用意して、生ごみの投入方法が異なる2つの実験と、グリストラップに溜まるごみを原料とした発酵実験を行った。

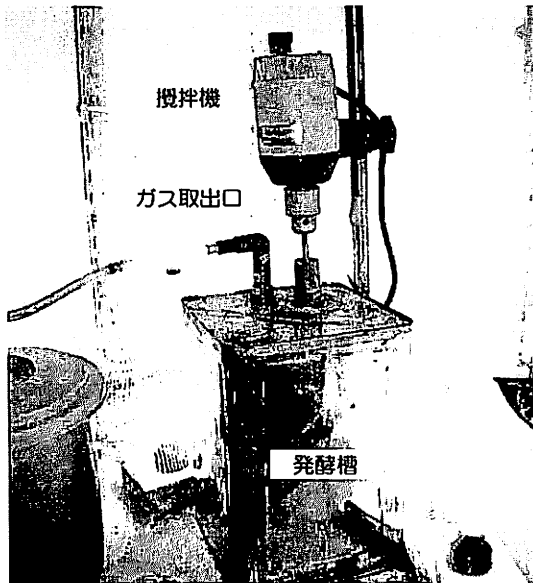


図3. 18ℓ缶発酵槽

[実験1] この実験は投入した生ごみが発酵し終わるまでに発生するガスの総量を見積もるために行った。そのため、1度生ごみを投入したら、ガスの発生がなくなるまで次の投入を行わない。図4(a)に投入した生ごみの量と発生したガス量を示す。3/13に1回目300gの生ごみを投入した。

その翌日は12.4ℓのガスが発生し、その後徐々に発生量が減少した。8日後の3/21には1.9ℓの発生しか見られなかったため、2回目600gを投入した。1回目と同じように翌日は発生量が多く11ℓを得たが、その後は減少した。4/2の3回目、4/13の4回目も同様に投入直後に発生量が大きくなり、その後は減少するという傾向を示した。pHおよび温度を図4(b)に示す。実験期間を通じてpHは7.3~7.8の間で安定していた。液温は約38℃であった。1回目300gを投入後の8日間の全発生量は52ℓ、2回目600gを投入後の12日間の全発生量は55ℓ、3回目500gを投入後の12日間は39ℓで、4回目600gを投入後の10日間に82ℓであった。4回を合計すれば、2kgの生ごみに197ℓのガスが発生したことになる。生ごみ1kgあたり100ℓ/kgの発生量となる。

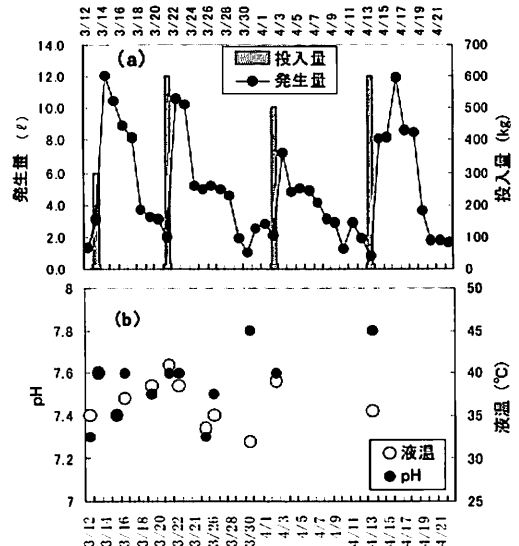


図4. 18ℓ缶発酵槽を用いた[実験1]: (a)生ごみ投入量とバイオガス発生量、(b)消化液のpHおよび温度

[実験2] この実験は毎日生ごみを投入しつづけたときに発生するガス量を見積もるために行った。図5(a)に投入量と発生量を、図5(b)にpHと液温を示す。最初3/19に600gの生ごみを投入し、その後3/21, 22と同じ量を2回投入した。しかし、最初7.6あったpHの値が6.6まで下がったので、pH値の回復を待つて3/29から毎日200gを投入

することにした。4/7あたりから1日のガス発生量が一定値に落ち着いてきた。4/7から4/13までの平均は1日あたり14.2ℓ/日の発生量であった。生ごみ1kgあたりの投入量に換算すると、70ℓ/kgとなる。pH値を見ると3/29から下がる傾向を示している。そのため消石灰を溶かした水(pHは約12)200から300ccを生ごみと一緒に発酵槽に入れた。その結果、4/7にはpHは7.4になり、ガス発生量も増加した。

4/13から生ごみの投入量を2倍の400gに増やし、ガス発生量の変化を見ることにした。最初2日間ほどは発生量は増加する傾向を見せたが、すぐに減少し始めた。pH値も下がり始め、4/20には6.5になり、ガス発生量も激減した。この時も、生ごみ投入時にはいつも消石灰を溶かした水200-300ccを加えていたが、pHの低下は止まらなかった。そこで、生ごみの投入を中止した。するとpHの値が上がるとともにガス発生量も回復する兆しが見えた。

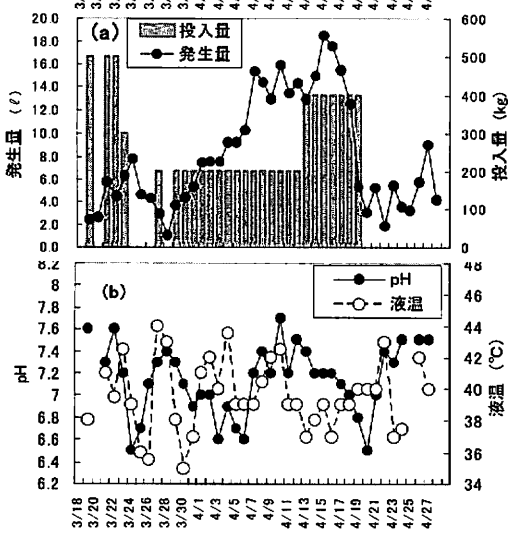


図5. 18ℓ缶発酵槽を用いた[実験2]：(a)生ごみ投入量とバイオガス発生量、(b)消化液のpHおよび温度

[実験3] グリストラップに溜まったごみのメタン発酵実験

グリストラップとは、スーパーや飲食店、ホテルなどの厨房で排水を直接下水道に流さないため

に一時的に溜めておく設備のことだが、溜まったごみには油脂成分が多く含まれ、そのため清掃やごみの処理が難しい。そこで、グリストラップのごみの処理法としてメタン発酵が使えるかどうかを調べることにした。この場合、油脂成分が発酵するかどうかを調べるため、ごみから分離した油脂を発酵槽に投入した。投入した量と発生量を図6(a)に示す。3/4に200g、3/5に250gの油脂成分を投入したが、その後不在のため発生量を測定できなかった。3/13に320gの油脂を入れたが、この日のガス発生量は多いので、以前に投入した油脂の発酵が継続していることが分かる。3/21に発生量が1.3ℓと少なくなったので、130gの油脂を投入した。6日後に発生量がピークになり、その後減少した。4/2に油脂115gを投入してやはり6日後に最大になった。油脂の場合は生ごみに比べてメタン発酵に至るまでに日数を要することが分かる。3/13から3/21まで320gの投入に対して20.9ℓ、3/21から4/2まで130gの投入量に対して全発生量は34.7ℓ、4/2から4/28までは115gに対して68.2ℓの発生量である。合計して1kg当りにすれば、発生量は220ℓ/kgとなる。pHは図6(b)に示すように6.8-7.6の間にあった。

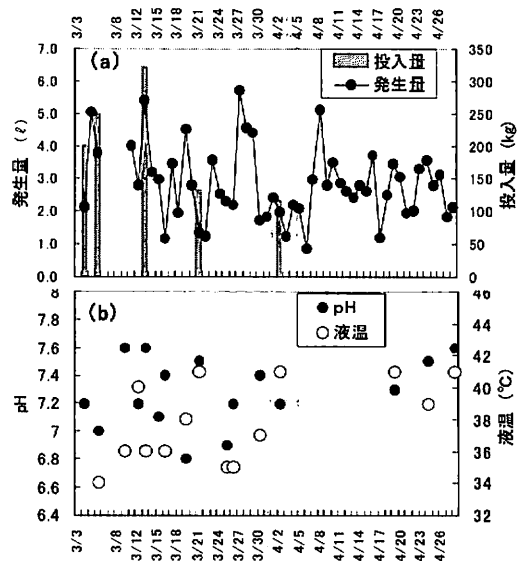


図6. 18ℓ缶発酵槽を用いた[実験3]：(a)グリストラップのごみ投入量とバイオガス発生量、(b)消化液のpHおよび温度

4. 考察

4.1 生ごみによるガス発生量について

18 ℓ 缶 [実験 1] の図 4(a) から見られるように、生ごみを投入した直後からメタンが盛んに発生する。これは生ごみが発酵槽に投入される前に、長期間嫌気性雰囲気にならされていたので、メタン発酵が生じるために必要な酸生成過程が十分に進行し可溶化していたためと考えられる。10日間ほどすると発生量がなくなり、発酵し終える。この間に発生するガス量は平均して 100 ℓ / kg である、一方、1 m³ 発酵槽による実験では 1 週間に一度生ごみを投入するのであるから、投入した生ごみはほぼ発酵し終えていると考えてよい。このときのガス発生量は 120 ℓ / kg であるので、18 ℓ 缶 [実験 1] の結果より 2 割ほど大きい。

18 ℓ 缶 [実験 2] では毎日 200 g の生ごみ投入に対して、70 ℓ / kg のガス発生量となっている。これは上記の 120-100 ℓ / kg に比べて 3、4 割ほど小さい値である。メタン発酵の最適の pH の値は 6.8 から 7.4 といわれている。生ごみ 200 g 投入時も石灰水を加えることによって pH の低下を抑えているので、有機物負荷量が若干大きすぎることが発生量に関係しているのかもしれない。生ごみの量を 400 g に増加させると、pH の値を維持させることができず、ガス発生量が減少する。これは明らかに有機物負荷量が大きすぎて、発酵液が大きく酸性に傾きメタン発酵が阻害されてきたことを示す。因みに、生ごみの pH は 5.4 であった。したがって、この結果からは、18 ℓ 缶発酵槽に対しては、毎日の生ごみの投入量は 200 g 程度が最大と思われる。この値を用いると、発酵槽の容量が 1 m³ である場合には生ごみの投入量は 11 kg / m³ · day となる。

報告³⁾によると、生ごみ 1 t / day あたり 140 m³ / day の発生例があるとされている。これは 140 ℓ / kg · day のバイオガス発生量に相当する。また、実証プラントの例⁴⁾では 2 t / day の生ごみから 106.2 m³ / day のバイオガス発生を得ており、この場合は 53 ℓ / kg · day に相当する。本実験で得られた値 70 ℓ / kg · day はこの 2 つの値の間にある。これら発生量の違いはおそらく生ごみを構成する食品の種類の違いによるものと思われる。

発生するバイオガスはメタン約 60%、二酸化炭素約 40% であり、発熱量は約 5,500 kcal / m³ である。一方、燃料としてよく用いられる灯油の発熱量は 8,900 kcal / ℓ である。すなわち、灯油 1 ℓ はバイオガス 1.6 m³ に相当する。もし 1 日 10 ℓ の灯油が必要ならば、16 m³ / day のバイオガスを発生させなければならない。そのためには、[実験 2] から得られたガスの発生量 70 ℓ / kg の値を用いると、発酵槽の容積は 20 m³ となり、毎日の生ごみ投入量は 220 kg / day となる。

いま、生ごみ中の有機物含有率を 12% とすると、220 kg の生ごみには有機物は 27 kg 含まれ、有機物負荷は 1.4 kg / m³ · day となる。中温発酵では、下水スラッジの発酵では 0.5 ~ 1 kg / m³ · day、汲み取り尿では 0.8 kg / m³ · day、アルコール発酵廃液で 2 ~ 2.5 kg / m³ · day の有機物負荷が適当とされてきた⁵⁾。これらと比較すると 20 m³ 発酵槽に投入する生ごみの量として 1 日あたり 220 kg は妥当な値と考えられる。

4.2 グリストラップのごみによるガス発生量について

グリストラップのごみ中の脂肪成分からは、生ごみのそれに比べ 2 倍も大きい 220 ℓ / kg のガス発生量が得られた。この結果は脂肪がメタンを最も多く発生するという報告⁶⁾と一致する。投入してからガス発生量が最大になるのは 1 週間後でその後も長期間発酵が持続する。生ごみのように前処理を施していないので、メタン菌による発酵とそこに至る前段階で生じる低分子化、酸生成過程が同時に進行していると思われる。投入量に対する発生量は大きいが発酵速度が遅いので、発酵槽での滞留期間を相当長く取らないといけない。また、表面にスラッジが溜まりやすいことも分かった。したがって、グリストラップに溜まったごみを処理する場合には大容量の発酵槽と攪拌も頻繁に行う必要があるものと思われる。

5. バイオガス発生システム

バイオガス発生システムを図 7 に示す。発生ガス中に含まれる硫化水素の除去のための脱硫装置、ガスの貯蔵容器、コンプレッサーなどからな

る。本研究では取りあえず手元にある既製品を代用して1つのシステムを作り上げてみた。

1次ガスホルダーには図8に示すようにケミカルドラム缶の上蓋を除去し、そこに大きなビニール袋を取り付けたものを用いた。ドラム缶の容積は200ℓで、写真ではその上に1.5倍くらい大きいビ

ニール袋が膨らんでいるので約500ℓのバイオガスが溜まっている。2次ガスホルダー（高圧）には図9に示すように同じくケミカルドラム缶を用い、ダイヤフラム式のコンプレッサーで1.5気圧までバイオガスを圧縮して貯蔵した。2次タンクの先には、水を入れたペットボトルがホースでつな

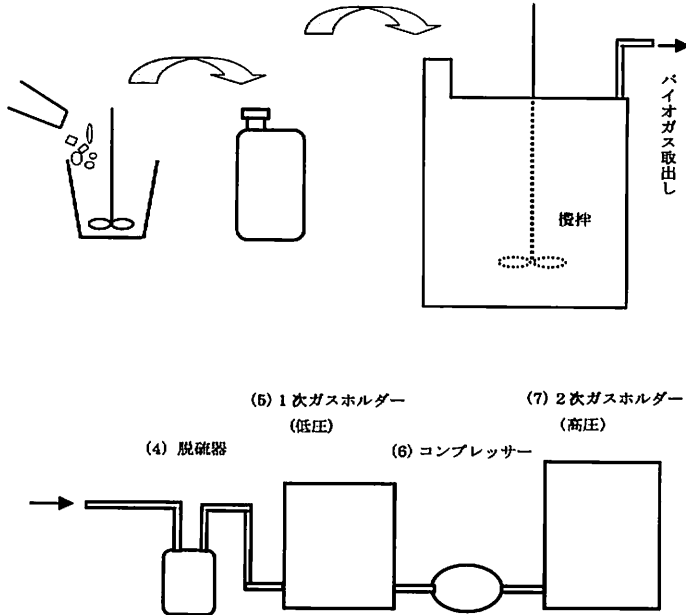


図7. バイオガス発生システム



図8 1次（低圧）ガスホルダー



図9 2次（高圧）ガスホルダー

がれており、水をくぐって出てきたガスを用いて発火テストを行った。

メタン発酵では発酵槽の加温が大きな問題である。加温に用いている電気カーベットの温度調節が作動して、気温の高低にかかわらず液温は35℃でよく安定している。太陽が照る日はビニールハウス内はすなわちこの部分は40～50℃になる。今回、加温に使われた電力消費量の測定を行っていないが、昼間電気カーベットの作動している時間は短く電力は相当節減されているように思われる。今後は太陽電池、小型風力発電、太陽熱温水器など自然エネルギーによって加温が可能かどうかを検討する必要がある。一般には、エネルギー自立型として発生したバイオガスの一部を加温に使うには、数 t/日程度の廃棄物の投入が可能な大型装置が必要であるとされるが、もっと小型の装置であっても沖縄の温暖な気候を生かした方式でエネルギーを節減できる可能は十分ある。

6. まとめ

食品循環資源の飼料化プロジェクトの中で、回収された食品すべてを有効利用するという目的から食品残渣によるバイオガスの発生研究を行った。生ごみ投入量は発酵槽容積 1 m³につき11kg/m³・day が適量であり、またこのときバイオガスの発生量は生ごみ 1 kgあたり 70 ℓ/kg・day であった。これらの値を用いると、たとえば灯油10 ℓに相当するバイオガス16m³/day を得るには、容積20m³の発酵槽に毎日220kgの生ごみを投入すれば良い。また、ビニールハウス内に発酵槽を設置することは発酵槽の加温に有効であることが分かった。冬季および夜間には加温のためにエネルギーが必要ではあるが、沖縄の暖かい気候はメタン発酵には有利である。さらに太陽熱温水器、太陽光発電、小型風力発電などを併用すればさらに省エネルギー化が実現できるものと思われる。

謝 辞

本研究を進めるにあって多くの方々のお世話になりました。本学部生涯健康教育コースの東盛キヨ子教授からは食品の栄養分析実験をご指導して

いただき、飼料や生ごみの成分を調べていただきました。本学部技術教育教室および同教室の玉城利雄教務職員には学内で屋外実験場所を提供していただくなどのご配慮をいただきました。琉球大学農学部の石原昌信教授には、菌の培養方法をご指導していただきました。那覇浄化センターの上原盛隆氏には下水処理におけるメタン発酵の実際を教えていただきました。具志川浄化センターの宮城周子氏（現在、下水道管理事務所）および同施設で勤務されている榎しんこうエンジニアリング政野悟志氏からは施設の消化槽から消化液を提供していただき、これによって本研究を軌道にのせることができました。これらの方々に対して心より感謝申し上げます。

最後に、次の一文を付け加えさせていただきたい。著者の一人、小野が平成17年4月をもって食品循環資源の飼料化プロジェクトから離れることになりました。このプロジェクトはこれまで彼女のすばらしい活動によって支えられてきました。他の著者は心を込めて感謝の意を表します。

参考文献

- 1) NPO 法人エコ・ビジョン沖縄、平成14年度補正沖縄産学官共同研究推進事業「食品循環資源の飼料化装置の実用機器開発と資源循環型畜産システムの構築」成果報告書、平成16年3月
- 2) 食品循環養豚全国会議資料集、沖縄リサイクル運動市民の会・NPO 法人エコ・ビジョン沖縄発行、平成16年12月14日
- 3) 中国四国地域バイオマスセミナー資料 株式会社タクマ；<http://www.chushi.maff.go.jp/Biomass/16seminar/irei.pdf>
- 4) 横須賀市；<http://www.city.yokosuka.kanagawa.jp/bio>
- 5) 地域循環産業研究会企画 “廃棄物のメタン発酵—理論と実用化技術—”、サイエンティスト社発行、2000年8月、p.46
- 6) 小野良二著 “メタンガス利用の理論と実際”、文雅堂書店、昭和38年、p.82