

# 琉球大学学術リポジトリ

## [総説] 沖縄における海洋バイオマスによるCO<sub>2</sub>排出削減および炭素回生システムの開発

メタデータ	言語: 出版者: 南方資源利用技術研究会 公開日: 2014-10-26 キーワード (Ja): 海洋バイオマス, 二酸化炭素, 認証排出削減量, 藻類, バイオ燃料, 炭素回生システム キーワード (En): Marine biomass, Carbon dioxide, Certified emission reduction, Algae, Bio-fuel, Carbon recycle system 作成者: 瀬名波, 出, SENAHA, Izuru メールアドレス: 所属:
URL	<a href="http://hdl.handle.net/20.500.12000/0002016637">http://hdl.handle.net/20.500.12000/0002016637</a>

# 沖縄における海洋バイオマスによる CO<sub>2</sub> 排出削減 および炭素回生システムの開発

瀬名波 出

琉球大学工学部機械システム工学科

## Development of absorption and recirculation system of CO<sub>2</sub> by marine biomass in Okinawa

Izuru SENAHA

*Department of Mechanical and Systems Engineering, Faculty of Engineering, University of the Ryukyus*

キーワード：海洋バイオマス、二酸化炭素、認証排出削減量、藻類、バイオ燃料、炭素回生システム  
Keywords : Marine biomass, Carbon dioxide, Certified emission reduction, Algae, Bio-fuel,  
Carbon recycle system

### 1. はじめに

周知のように大気中への二酸化炭素拡散削減は、既に国際的な問題である<sup>1)</sup>。その実現のため我が国でも種々の対策が検討されているが<sup>2,3)</sup>、最も効果的な方策として、特にその排出濃度が高い火力発電所等大型産業プラントからの排出ガス中二酸化炭素を適切に分離回収し固定化を行うことが挙げられる。例えば火力発電所から排出されるガス中の二酸化炭素濃度は約14%で、大気中の二酸化炭素濃度0.034%に対して約400倍にもなる。このような大型プラントから排出される二酸化炭素を拡散することなく回収・固定化さらに再利用を行う炭素回生システムを実現すれば、二酸化炭素拡散削減及び新エネルギー開発において非常に有益な方法となる<sup>4,5)</sup>。

本研究は、火力発電所やゴミ焼却施設等の化石燃料（石油、石炭、天然ガス等）を大量に使用する大型施設から排出される排気ガス中に含まれる二酸化炭素（以後、CO<sub>2</sub>と記す）を、沖縄の豊富な日射量

と高い海水温を活用して高効率に、海藻類を増殖させて海洋植物へのCO<sub>2</sub>回生（植物にCO<sub>2</sub>吸着固定させ、再利用する）させるシステムを開発することを目的とする。

その炭素回生システムプロセスのビジョンとしては、i) まず火力発電所等における化石燃料（=石炭）使用によって排出される高濃度CO<sub>2</sub>を低コストな新手法で海水に溶かし込み、ii) つぎにその高CO<sub>2</sub>濃度の海水を用いて高効率に海藻類の成長を促し、iii) 最終的にはその海藻類を活用しバイオ燃料化または水産業への応用を図ることで、炭素回生システムを構築するものである。本研究が目指す炭素回生システムの構想を図示する。

本報では特に二酸化炭素溶解装置および高濃度二酸化炭素溶解水（海水、淡水）による藻類培養の有効性について概説する。また最後に、本研究における最終目標として、ホソエダアオノリ及びユーグレナを用いたバイオエタノール・バイオディーゼル等のバイオエネルギー製造、炭素回生システムの実証可能性を検討する。

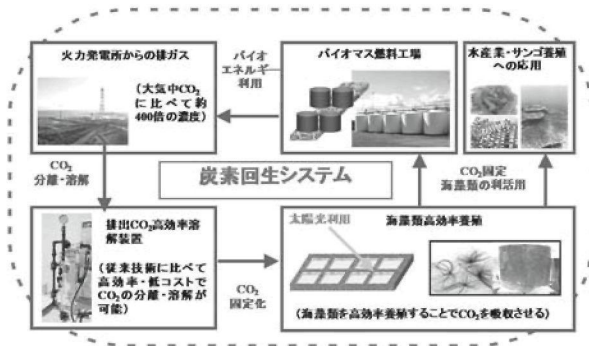


図1. 炭素回収システム

## 2. 二酸化炭素溶解装置および排ガス回収プロセス

炭素回収システムの実現に向けて、まず、火力発電所等から排出される排ガス中に含まれる大量かつ高濃度のCO<sub>2</sub>を、高効率に、安価に、海水中に溶解させる仕組みとプロセスの構築が必要である。本研究における第1ステップとして排ガス中のCO<sub>2</sub>を効率よく分離回収する手法の開発を行った。その概要について説明する。

### 2.1 二酸化炭素溶解装置

一般に液体中にCO<sub>2</sub>等の気体を溶解させる方法には、バブリングと呼ばれるエアレーション技術が用いられる。熱帯魚飼育の際の水槽への空気流入手法と同じ手法と見てよい。この手法は、単純かつまた安価にシステムを構築可能であるが、気泡が水面まで上昇する間に液体中にその一部を溶解させるものであり、溶解しきれずに水面まで達した気泡内の大部分のガスは大気に拡散する。そのため、送り込んだ気体量に対して溶解した気体量が少なく効率が悪い。

このバブリング方式に対して、本研究では新たに“無気泡溶解方式”を提案し、その導入方法を検証する。これはバブリング方式が液体中に気体（気泡）を入れる方式に対して、気体中に液体を流入する“逆転の発想”による気体溶解方式である。本研究で用いるCO<sub>2</sub>溶解装置は、本手法を用いたものであり、加圧タンク内にCO<sub>2</sub>ガス（気体）を充填させ圧力をかけ、その中に海水（液体）を通過させることで海水中にCO<sub>2</sub>を効率よく溶解させるものである。気体溶解装置に水を通わせることで高濃度の溶存二酸化炭素水が得られる。水温や汚濁度の影響

を受けることなくCO<sub>2</sub>をほぼ完全に水中に溶解することができるので気泡はほとんど出ず、本体内圧力や水位を変更することで溶解率の調整ができる。圧力を高くすれば非常に高濃度二酸化炭素溶解液（炭酸水）生成も可能である。本実験で用いた気体溶解装置の水中への二酸化炭素溶解技術は従来の気体を水中に通す方法とは違い、気体の中へ水を通すという逆転の発想から生まれ、気体が均一に溶解した水を得られることにより、藻類培養に適した条件化での対応が可能となる。

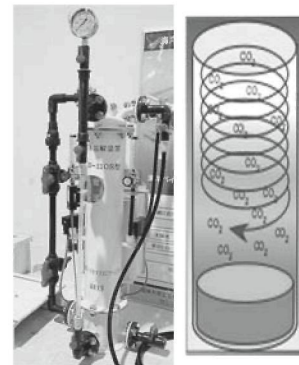


図2. 二酸化炭素溶解装置

### 2.2 排ガス回収プロセス

本研究では、沖縄電力金武火力発電所2号機からの排ガスを回収した。火力発電所からの実排ガス回収のため、発電所内脱硫装置経由後の煙道（地上高約16m）のサンプリングフランジに仮設エルボ管を接続し、さらにフレックスチューブ、地上のコンプレッサー、エアフィルターで微粒子の除去、エアードライヤーで水分除去を介して、排ガス保管容器（プロパン用ガスボンベ）に排ガス回収を行った。火力発電所からの実排ガス回収は初の試みであるが、回収した排ガスにも問題なく安全に行うことができた。

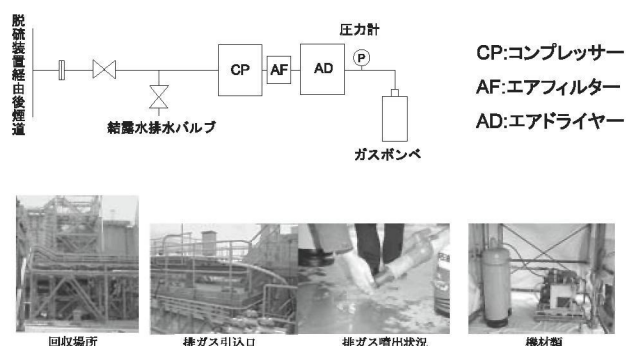


図3. 排ガス回収プロセス配管図およびその様子

### 2.3 実験装置の性能評価試験

本研究ではCO<sub>2</sub>の溶解技術として、バブリング方式に代わって新たに“無気泡溶解方式”を採用した。本方式が火力発電所から排出されるガス中のCO<sub>2</sub>溶解に十分な能力があるのか、本方式の溶解能力を確認しておく必要がある。そこで、本装置設計において、気体溶解装置タンク内圧力の目安とした0.15Mpa（1.5気圧）時の場合における純CO<sub>2</sub>ガスからの溶液（純水）中へのCO<sub>2</sub>溶解濃度の時間変化を示し検討する。

溶解開始から約240秒（4分）まではCO<sub>2</sub>溶解濃度は急激に上昇している。その後、CO<sub>2</sub>溶解濃度約25.0%に達して以降はほぼ一定の値をとっている。これは設定した溶解タンク内ガス圧力での溶液へのCO<sub>2</sub>溶解濃度が平衡状態に達したためであろう。特筆すべきは、非常に短時間でかつ高濃度で平衡状態に達することである。この結果より、“無気泡溶解方式”によるCO<sub>2</sub>溶解能力は非常に高いことが確認された。

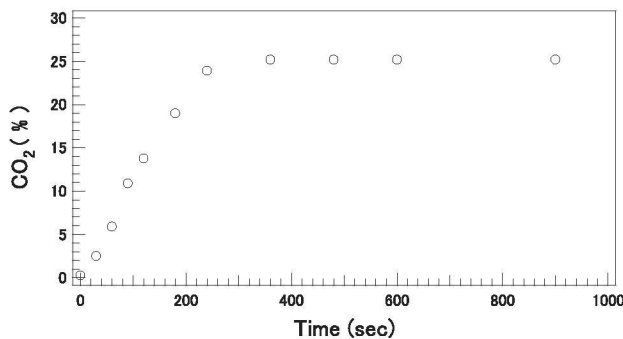


図4. CO<sub>2</sub>溶解濃度の時間変化

つぎにこの火力発電所から回収した排ガスからのCO<sub>2</sub>溶解実験について述べる。純CO<sub>2</sub>溶解と異なり、タンク内に流入させた排ガス中のCO<sub>2</sub>濃度は約14%であり、そのため早い段階でCO<sub>2</sub>溶解度は飽和する。実験装置タンクに注入する排ガスの交換なしで溶解実験を行った場合、CO<sub>2</sub>溶解濃度は約3%で飽和となった。図5このことから高濃度の溶液が必要な場合には、溶解タンク内ガス交換が必要であることが確認された。ただし、後述するように、海藻類の成長に適した濃度は約1~2%（自然状態の海水中CO<sub>2</sub>の約25~50倍）であることから、実際に排ガスからのCO<sub>2</sub>を利用する場合には、機器運用エネルギー負荷の観点からも必ずしもガス交換

による高濃度CO<sub>2</sub>濃縮の必要性についてないものとする。

なおガス交換を行った場合、低圧力（0.12MPa）、高圧力（0.19MPa）いずれの場合でも、行わない場合に比べて明らかにCO<sub>2</sub>溶解濃度が上昇していくことが確認された。特に低圧力について、ほとんど高圧力と変わらない結果を得た。このことは将来的に僅かなエネルギーで排ガスからのCO<sub>2</sub>を分離回収していく際に重要なことで、本実験結果から、あまり気体圧縮に対してエネルギーを使わない低圧力条件でのCO<sub>2</sub>溶解においても、適切にガス交換することで、十分な量・濃度のCO<sub>2</sub>を分離・回収することができることを示唆する。今後、十分に実験、検討を重ねる必要がある。

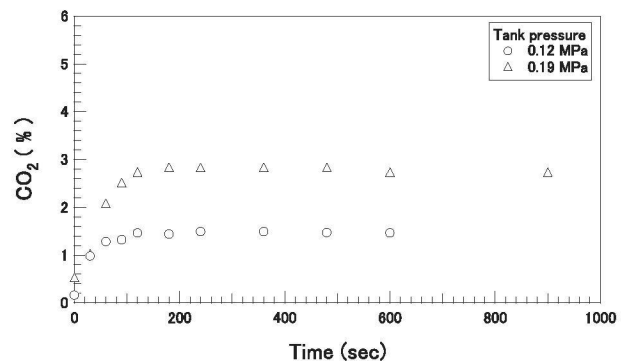


図5. 排ガス中CO<sub>2</sub>溶解濃度の時間変化

## 3. 二酸化炭素溶解水（海水、淡水）による藻類の培養

### 3.1 藻類（海水、淡水）の選択

二酸化炭素溶解海水および淡水による藻類培養方法として、“胞子及び発芽体集塊化法（ぶちも栽培法）”<sup>6,7)</sup>による青海苔系海藻培養と高濃度CO<sub>2</sub>培養可能なユーグレナ（淡水性微細藻類）<sup>8,9,10)</sup>の二種類を用い、微細藻類高効率高速培養の実証実験を行った。一般に陸上植物に比較して海洋植物の成長は10倍以上ある。その急速な成長はしばしば湖や海の原因破壊の原因とさえなる<sup>11,12)</sup>。これは、陸上植物が固体すなわち「土」の上で生育しているのに対して、海洋は液体である「海水」の活動力を利用するといった差に起因している。また陸上植物と異なり重力への支柱を必要としないことも要因と考えられる<sup>13)</sup>。今回の炭素回生システムでもこのような優位点に着目し、排ガスから吸収したCO<sub>2</sub>を植物の成長に必要な資源として捉え、さらに成長速度を上げ

ようとするものである。

本研究で使用する海藻として高知大学で研究を進めている“孢子及び発芽体の集塊化による海藻養殖法”手法によるアオノリ集塊を用いた。図表3-2に本研究で用いたアオノリ集塊の写真を示す。一般にアオノリ類は非常に成長速度が速く、CO<sub>2</sub>を効率的に吸収させるのに向いた種であることがわかっている。なお、アオノリを含む通常海藻類は岩等に付着し成長する。そのため、これまでの海藻養殖の場合、ネット等に海藻種苗を固定する方法が主であった。しかしながらその方法は二次元面での養殖であり、高密度で養殖ができない、また海藻の生長がばらつくといった問題があった。そのため養殖用水槽単位当たり（設置面積当たり）の収穫量を高めるために、高密度で浮遊養殖が可能となる孢子及び発芽体の集塊化による海藻養殖法が開発された。これは海藻が孢子の段階で複数の海藻体が互いに連結するように操作し、発芽体の集塊を大量に作って養殖する方法である。特に藻類のなかでも日間成長率の高いホソエダアオノリを本研究では使用した。

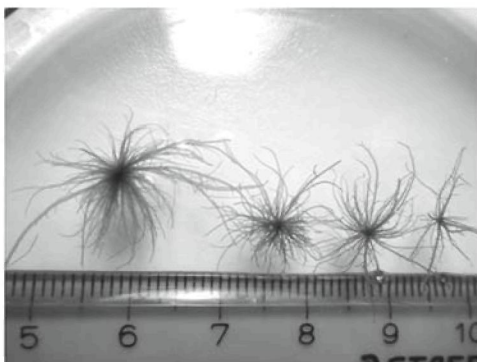


図6. ホソエダアオノリ集塊

つぎに淡水性藻類としてはユーグレナを用いた。ユーグレナについては既にその培養水槽に排ガスを抜気させることで、高濃度CO<sub>2</sub>・低Ph環境下においても非常に良く成長することが確認されていることより本実験で扱う藻類として適当である。またユーグレナはCO<sub>2</sub>を吸収し、有用な物質を作り出す能力を持っているとともに、ビタミン、必須アミノ酸等人間が体外から摂取すべき栄養素をほぼすべて含有している。またビタミンAを豊富に含むという特徴があるため、栄養失調で苦しむ人々に、ユーグレナは生きるための必要な栄養を与えること期待されている。このため健康食品への利用や水・油に対す

る不溶性・親和性を持つパラミロンを含むことから化粧品・日用生活品への利用が期待されている。高濃度CO<sub>2</sub>溶液状態での培養が可能なが既に実証されており、また、食用サプリメント化も可能なことから、バイオ燃料化に加えて、食用化への可能性も高い。

### 3.2 高濃度二酸化炭素溶解水による藻類培養実験

ホソエダアオノリ、ユーグレナともに高濃度CO<sub>2</sub>溶解水で培養することで成長速度（光合成速度）が増すことが確認された。屋外実験設備での純CO<sub>2</sub>溶解海水によるホソエダアオノリ培養実験結果および排ガス抜気実験によるユーグレナ培養実験結果を例に示す。

#### 3.2.1 ホソエダアオノリ培養結果

ホソエダアオノリの培養については屋内・屋外水槽実験の場合も純CO<sub>2</sub>ガスおよび排ガスを用いた場合の2種類のガスでのCO<sub>2</sub>溶解海水で実験を行った。CO<sub>2</sub>溶解濃度は屋内の場合を参考に純CO<sub>2</sub>の場合が2%、排ガスの場合が1%に調整した。代表して純CO<sub>2</sub>ガス、500L培養槽の場合の実験結果を示す。



図7. 屋外500L培養槽（4基）

500L水槽においても小型水槽の場合と同様に養殖実験の6日間の間、ほぼ同程度の傾きの曲線で成長している。4日目までの自然海水との成長比は約1.5倍、6日目で約1.2倍と比較的大きな成長結果となった。しかしながら4～6日目においては成長率が落ちてしまっている。このことはホソエダアオノリそのものが比較的大きな海藻に成長することで、水槽内で互いに絡まり、その結果、成長が落ちてしまったことに起因する。

なお排ガスから CO<sub>2</sub>溶解海水を用いた場合の実験結果については、屋内でのフラスコ使用時の実験結果と同じく約1.1倍となった。屋内、屋外を通じて火力発電所排ガスから分離溶解した CO<sub>2</sub>溶解海水を用いた場合、ホソエダアオノリの成長量が約1.1倍程度に留まった原因については必ずしも明確ではない。その要因をいくつか検討すると、まず排気ガス中の CO<sub>2</sub>以外の成分で何かしら海藻成長に阻害を及ぼす成分があったのではないかと考えられる。他の要因として考えられるのが、排ガス中の CO<sub>2</sub>以外の成分、例えば酸素が海水に溶け込むことで pH の変化を促し、これが CO<sub>2</sub>溶解量が測定器表示に対しても影響したのではないかと考えられる。いずれにせよ現段階では原因は究明できておらず、今後詳細に検証していく必要がある。

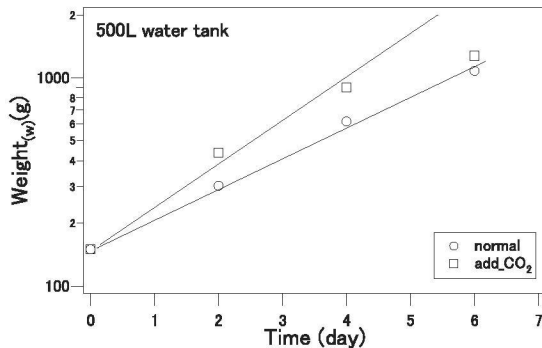


図 8. 屋外500 L水槽でのホソエダアオノリ成長変化

### 3.2.2 ユーグレナ培養結果

ユーグレナ培養結果については排ガス通気実験結果をもとに概説する。今回の一連の実験工程においては高濃度 CO<sub>2</sub>溶解水生成時の滅菌処理が難しく、棍菌のような細菌が増殖しているため、ユーグレナ培養には不相当であった。細菌の繁殖を防ぐためにはフィルター滅菌等を行う必要がある。そのため基

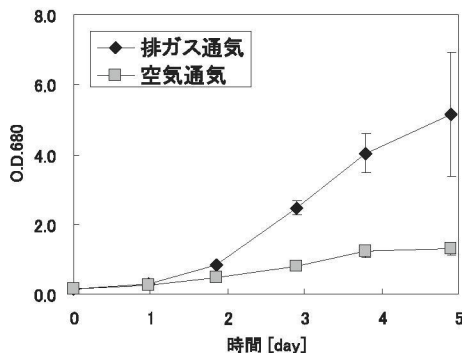


図 9. 排ガス通気によるユーグレナ成長変化

本的に排ガス中 CO<sub>2</sub>溶解と同等の溶解水が得るために通気実験を行った。培養開始初日と5日目のユーグレナの増殖曲線を示す。

発電所排出ガスを直接通気した場合の方が、空気を通気した場合よりも良好な増殖を示した。過去に同環境条件下で15% CO<sub>2</sub>を通気して培養した場合の比増殖速度と比較しても、本実験の排出ガス通気培養の比増殖速度は遜色ない値だった。本実験により、発電所排出ガスを通気して、ユーグレナが培養可能であることを確認できた。

## 4. バイオ燃料化の検討

現在、トウモロコシ等の澱粉原料、サトウキビからの糖原料を基にしたバイオエタノール生産およびその技術開発が行われている<sup>14)</sup>。しかしながら、これらの食用資源と競合する作物からのバイオエタノール生産はそれを主原料とする食料品の高騰を招く等、問題が大きい。そこで各国では食用資源と競合しないバイオマス資源からのエタノールの生産技術開発が急速に進められている。このような状況で特に陸上植物に比べ炭素固定能も高く、藻類からの燃料エネルギー生産が注目されている<sup>15)</sup>。資源として藻類は将来有望な原料の1つであり、多くの研究がなされている<sup>16,17,18)</sup>。本節では、上述したホソエダアオノリ、ユーグレナを利用したバイオ燃料化に関する方法検討、ならびにバイオエタノール化試験を行った結果を示す。なおバイオエタノール化試験は共同研究者である琉球大学農学部・小西照子准教授、平良東紀准教授らによる。

バイオエタノールは、糖を原料として微生物による代謝の産物として生成される。本研究で養殖対象

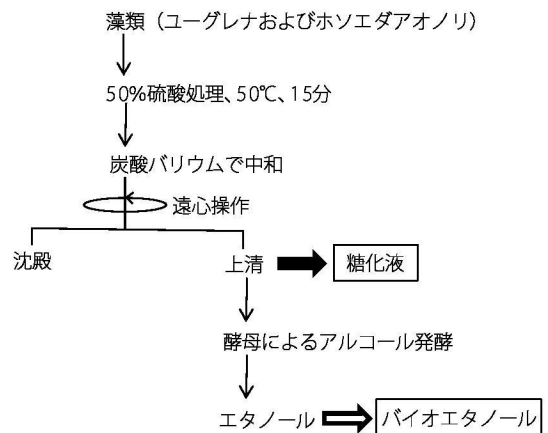


図10. バイオエタノール化試験工程

としたホソエダアオノリ、ユーグレナは乾燥重量当たりの全糖量及び糖化液の糖組成分析の結果、比較的バイオエタノールの生産に適していることが確認された。その結果を踏まえてバイオエタノール化試験を行った。その工程概略を示す。

まずユーグレナ糖化液の発酵においては、窒素源等を添加してなくとも酵母は生育したが、発酵効率は25%に止まった。この結果より窒素源を添加する等さらなる改善が求められる。ホソエダアオノリ糖化液に窒素源として酵母エキス及びポリペプトンを添加した結果、酵母は良好に生育し、約50%の変換効率でエタノールが得られた。50%までで止まったのは海藻中に含まれる塩の影響と思われる。今後糖化液の前処理による塩類除去（イオン交換カラム処理等）を行うことにより、酵母の生育及びエタノール収量のさらなる改善が期待される。さらに得られ

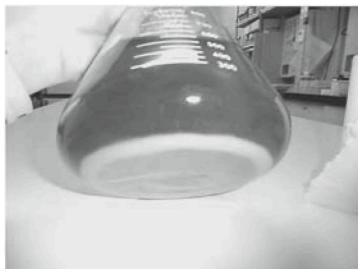
た発酵液400mLを蒸留した結果、1.5%エタノール溶液が50mL得られ、蒸留によって93%以上のエタノールが回収された。図にホソエダアオノリ糖化液での酵母が良好に生育した様子、蒸留によるバイオエタノール抽出およびその燃焼試験の様子を示す。

今回の実験によって、大型藻類である海藻のホソエダアオノリからバイオエタノールが生成・回収できることが分かった。糖化工程の改善すなわち中和方法・硫酸除去方法等の変更、糖質加水分解酵素を用いた糖化等により高濃度の糖化液が得られ、かつ糖化液の塩分濃度をある程度低下させることができれば、十分に酵母は生育し、燃料化に十分なエタノールが得られることが期待される。

## 5. おわりに

本研究では、i) 石炭等の化石燃料使用によって排出される高濃度CO<sub>2</sub>を低コストな新手法で海水に溶かし込み、ii) つぎにその高いCO<sub>2</sub>濃度の海水を用いて高効率に海藻類を増殖させ、iii) 最終的にはその海藻類を活用しバイオ燃料化を図ることで、「炭素回生システム」の開発を行った。その結果、本研究で提唱した無気泡溶解装置によるCO<sub>2</sub>溶解が高い能力を持つこと、またCO<sub>2</sub>溶解海水による海藻（ホソエダアオノリ）培養実験においては、2%の純CO<sub>2</sub>溶解海水で、通常の海水での培養に対して約1.4倍成長が促進されることが確認された。さらにその海藻からのバイオエタノール化試験を行った結果、バイオ燃料として期待できることが確認された。また本稿では示していないが、上記の工程を通じてエネルギーバランスの試算をした結果、特に海藻養殖において培養時の海水ハンドリングおよびバイオ燃料化前処理（乾燥・脱塩）に要するエネルギーが多いことが判明した。これらのプロセスの改善を行うことで炭素回生システムが実現可能であろうと試算しており、今後さらに技術開発を進める必要がある。

最後に炭素回生システムの構築を考える際のエネルギー・資源に対する「質」的な見方について述べたい。一般に環境問題を考えるにあたって二酸化炭素の排出を減らすこと、またゴミとして扱われているものを回収しリサイクルすることなどは有益なことと思われる。しかしながらそのこと自体が目的となり、その手法やいかに社会に実装にかかる工



(a) 発酵液



(b) 蒸留



(c) 燃焼試験

図11. バイオエタノール製造および燃焼試験

エネルギーなどを考えた場合、必ずしも環境に良いとばかりとは言えないことも多い。環境に良かれと思って取り組んだことそのものがかえって二酸化炭素の増加や資源の無駄につながることもありえる。このようなことは単にエネルギーや資源の「量」の観点のみを考えているため（エネルギー・質量保存則）に起こりえる問題である。環境問題を考える場合には、さらにエネルギーや資源の「質」の観点、すなわちエントロピー的な見方を導入する必要がある<sup>19,20,21)</sup>。このような見方から改めて大型プラントから排出される二酸化炭素について考えてみる。この場合、大型プラントの煙突から排出される前の排ガス中に含まれる二酸化炭素は大気に拡散した状態に比べて400倍も密度が高く、エントロピー的に小さい状態、すなわち価値が高いとも見直すことができる。それでは二酸化炭素を有用とするのは何かを考えた場合、すぐに植物の光合成が思い起こされる。植物（本研究では藻類）にとっては二酸化炭素が有用な資源となり得るのだ。本研究で提唱した炭素回生システムはこのようにエネルギー・資源の質的価値を考慮したエントロピー増大を抑えつつ社会実装化を意図した試みである<sup>22,23)</sup>。今回提案したシステムはその単純な一例でしかないが、今後、沖縄における自然環境の持つポテンシャルおよびプラント等から発生する廃熱等をエントロピー的観点から考慮し炭素回生システムに導入することで、より良いシステム化が達成できるものと考えられる。それにより沖縄における持続可能な循環型社会構築に寄与するものとなることを信じ今後も研究を進めるものである。

## REFERENCES;

1. UNFCCC, "Copenhagen Accord", Decision2/CP. 15, 18-19 December 2009.
2. 西岡秀三, 「日本低炭素社会のシナリオ・二酸化炭素70%削減の道筋」, 日本経済新聞社, 2008.
3. Raven, J. A.; P. G. Falkowski, "Oceanic sinks for atmospheric CO<sub>2</sub>". *Plant Cell & Environment*, Vol.22: pp.741-55, 1999.
4. Batjes, Niels H., "Total carbon and nitrogen in the soils of the world". *European Journal of Soil Science*, Vol. 47, pp.151-63, 1996.
5. I. Senaha et. al, "Contact of algae with condensed carbon dioxide to accelerate solid/gas reaction in the living body", *Proc. of Innovative Materials for Processes in Energy Systems*, pp459-463, 2010.
6. 平岡雅規, *Focus NEDO*, pp.4-15, 2004.
7. Hiraoka, M., and Oka, N., *J.Appl. Phycol.* Vol. 20, pp.97-201, 2008.
8. Leedale, G. F., "Euglenoid Flagellates", Englewood Cliffs, New Jersey, Prentice-Hall, 1967.
9. 鷺見芳彦「微細藻類が開く未来～有用性とその利用～」, 科学技術動向研究センター, 2009.
10. 長船哲齊「現代生命科学～Discover Life Science」, 芦書房, 2007.
11. Lobban, C.S. & P.J. Harrison, "Seaweed ecology and physiology", Cambridge University Press, Cambridge, UK, 1994.
12. van den Hoek, C., D. G. Mann & H. M. Jahns, "Algae, An introduction to phycology", Cambridge University Press, Cambridge, UK, 1995.
13. Darley, W. M., "Algal biology: a physiological approach", Blackwell Scientific Publications, Oxford, UK, 1982.
14. 湯川英明, 「バイオリファイナリー技術の工業最前線」, シーエムシー出版, 2008.
15. 能登谷正裕, 「海藻利用への基礎研究－その課題と展望－」, 成山堂書店, 2003.
16. Guiry, M. D. & G. Blunden (eds), *Seaweed Resources in Europe: Uses and Potential*. John Wiley & Sons, Chichester, UK, 1991.
17. Ohno, M. & A. T. Critchley (eds), *Seaweed cultivation and marine ranching*. JICA, Yokosuka, Japan, 1993.
18. Siew-Moi, P., A. T. Critchley & P.O. Ang Jr. (eds), *Advances in seaweed cultivation and utilisation in Asia*. University of Malaya Maritime Research Centre, Kuala Lumpur, Malaysia, 2006.
19. 槌田 敦, 「資源物理学入門」, NHKブックス, 1982.
20. 白鳥紀一, 「環境とエントロピー－熱物理学



- から”，「循環型社会を問う ―生命・技術・経済」，藤原書店，pp.73-93，2001.
21. 杉本 裕，“二酸化炭素の触媒的固定化反応による高分子の合成”，オレオサイエンス，8-5，pp.217-224，2008.
  22. 武田邦彦，“環境負荷を考慮したリサイクルのあるべき姿”，日本機械学会誌，104-995，pp.664-669，2001.
  23. 大場大司，他，“循環型社会の物質フローの解析”，化学工学論文集，28-5，pp.493-500，2002.