

(9) コンポスト型トイレにおけるアンモニアガスの揮発特性に関する基本的研究

Ammonia volatilization from sawdust matrix in composting toilet

堀田 真也*, 寺沢 実**, 船水 尚行*

Shinya HOTTA*, Minoru TERAZAWA**, Naoyuki FUNAMIZU*

ABSTRACT; Composting toilet using sawdust as artificial soil matrix is an essential process in the onsite wastewater differentiable treatment system. It reduces volume of feces and urine by evaporating of water in feces and urine. And it can also attribute to nutrient recovery from human manure due to giving used sawdust that can be used as organic fertilizer rich in N, P and K. The aims of this paper are 1) to measure nitrogen balance in composting toilet and 2) to evaluate the effect of water evaporation on ammonia volatilization due to its high solubility into water. The nitrogen balance data obtained from the composting toilet operation showed that approximately 25% of nitrogen remained in the sawdust matrix and ammonia emission was always detected. The evaporation of water and ammonia volatilization occurred simultaneously from the composting toilet. In order to evaluate the effect of water evaporation on ammonia volatilization, the time course of pH and ammonia concentration in sawdust matrix were observed during ammonia volatilization process with and without evaporation of water. In the experiments, the rate of ammonia volatilization was greater than the rate of water evaporation in the first period and then the rate of ammonia volatilization decreased and become lower than water evaporation. This change in ammonia volatilization was caused mainly by pH value of water in the sawdust. Especially, at low water content the sawdust pH kept less than pH 6 even if ammonia concentration was high.

KEY WORDS; ammonia volatilization; composting toilet; drying process; pH.

1. はじめに

家庭排水の分離分散型処理では、し尿は他の排水から分離して処理される。このし尿処理の一つとしてコンポスト型トイレがあり、オガクズを担体とし、し尿の好気的分解・コンポスト化が行われる。オガクズを用いる利点として、その多孔性に富み、適度な水分を保持しつつ、通気性にも優れているという性質が挙げられる。このため、し尿の約90%を占める水分を蒸発させることでし尿の減容化(乾燥化)を促し、かつ、し尿中有機物の好気的生物分解を可能にしている^{1),2)}。

従来の家畜糞尿を麦稈等の担体を用いてコンポスト化を行う研究では、コンポスト化の過程でアンモニアガス($\text{NH}_3(\text{g})$)として、窒素が揮発するということが報告がされている^{3),4),5)}。本研究で対象とするコンポスト型トイレでは、(1)し尿が定期的に供給される、(2)有機物負荷を小さく運転する、(3)温度を一定に保つ、等のことから従来の回分的な家畜糞尿のコンポスト化反応とは異なるものの、 $\text{NH}_3(\text{g})$ としての窒素揮発の可能性が存在する。 $\text{NH}_3(\text{g})$ の揮発は、臭気等の問題に加え、有用資源としての窒素の回収・再利用の観点から、積極的なコントロールが望まれる。しかしコンポスト型トイレにおいてその窒素の投入量、 $\text{NH}_3(\text{g})$ 揮発量を含めた窒素收支を把握した例が無いのが現状である。

* 北海道大学工学研究科都市環境工学専攻(Department of Sanitary and Environmental Engineering, Hokkaido University)

** 北海道大学農学研究科環境資源学専攻(Department of Environmental Resources, Hokkaido University)

$\text{NH}_3(g)$ は、水への溶解度が非常に高く、水中では塩基性を呈することが知られている。著者らは、し尿のコンポスト化過程における $\text{NH}_3(g)$ の揮発を次のような過程の結果生じると仮定する。(1)尿中尿素の生物分解と、し中有機物の生物分解によるアンモニア(NH_3 : 本論文では $\text{NH}_3(aq)$ と NH_4^+ の和と定義する)の生成ならびに液相への溶解、(2)液相における分子状アンモニア($\text{NH}_3(aq)$)とアンモニウムイオン(NH_4^+)への解離平衡、(3)液相 $\text{NH}_3(aq)$ の気相への物質移動。この場合、これらの過程、すなわち $\text{NH}_3(g)$ 揮発に影響を与える因子としては、(1)し尿の負荷、(2)反応温度、(3)pH、(4)オガクズ混合物の水分量ならびにその蒸発速度が想定される。これらの因子のうち、家畜糞尿の回分式コンポスト化過程において、pHが高いほど $\text{NH}_3(g)$ の揮発量が多くなることが報告されている。^{3,6,7,8)}。しかし、他の要因についての検討例は従来型のコンポスト化過程においてほとんど見られず、まして、コンポスト型トイレに関する検討例は存在しないのが現状である。

コンポスト型トイレの主要な機能として、(1)有機物の安定化、(2)病原性微生物の不活化、(3)し尿中水分の蒸発、(4)栄養塩の回収が挙げられる。これらの機能のうち、 $\text{NH}_3(g)$ の揮発と関連するものは、有機物の安定化と水分の蒸発である。有機物の安定化は、し尿中有機態窒素を微生物体中窒素成分と NH_3 態に変換し、また水分の蒸発は溶媒である水の量を定め、液相における $\text{NH}_3(aq)$ ならびに NH_4^+ 濃度に大きな影響を与える。特に、水分蒸発と $\text{NH}_3(g)$ 揮発が同時に起こるような系に関する知見は十分なものとなっていないのが現状である。

以上のことから本研究では、2つの目的を設定した。(1)コンポスト型トイレにおける窒素の収支を把握すること、(2)水分蒸発と $\text{NH}_3(g)$ 揮発が同時に生じる系における、水分蒸発が $\text{NH}_3(g)$ 揮発に与える影響の実験的評価を行うこと。

2. 方法

本研究では上述の目的に対して、以下の三つの実験を行った。

2.1 実験 1: コンポスト型トイレの窒素収支把握実験

オガクズを用いたコンポスト型トイレを実際に運転して、実験期間中の窒素全投入量とオガクズ残存窒素量をそれぞれ求めて、窒素の収支を計算した。試験期間中は、オガクズから揮発する $\text{NH}_3(g)$ 濃度の測定を行った。

オガクズはトドマツの製材くずを風乾させ、目開き 1.7mm の篩をパスした含水率約 10% のものを使用した。使用量は、約 90L(湿重: 約 11.25kg)で、し尿提供者は 4 人とし、毎日担当を 1 人決めて担当日の全てのし尿をトイレに投入した。投入期間は 28 日間とした。し尿それぞれの一日当たりの投入量と期間中全投入量、 NH_3 換算量を表 1 にまとめた。し尿中窒素の含有量は文献値からし尿それぞれの窒素含有率を得て、それを基に計算した⁹⁾。また、投入したし尿の重量測定はトイレ全体を重量計に載せて使用前後のトイレ全体の重量変化から計算して得た。 $\text{NH}_3(g)$ 濃度は北川式ガス検知管を北川式真空法ガス採取器 AP-20(いずれも光明理化工業株式会社製)に接続し、試料気体を 1 分間かけて 100ml 採取して測定した。測定回数は 1 日 2 回とし、12 時間毎に測定を行った。本実験に用いたコンポスト型トイレには便座の下にオガクズを充填した反応槽が設置されている。反応槽にはスクリューが設置されており、トイレ使用後にオガクズの攪拌が行なわれている。反応槽には排気筒が取り付けられており、その先端にはファンが設置されている。このため便座から空気が流れ込み、反応槽を経由し排気筒から出て行く空気の流れが形成されている(図1)。 $\text{NH}_3(g)$ 測定部位は排気筒内部と便座真下の反応槽の二箇所とした。

表1 し尿投入量の一覧

一日当りの投入量 (g/day)	期間中全投入量 (g)	NH_3 換算量(mol)
し 尿	152 888	4.9 16.8
合計	1040	21.8

オガクズの全窒素量は反応槽から採取したオガクズサンプルを 24 時間 105°Cオーブンで乾燥させた後、NC アナライザー(島津製作所、SUMIGRAPH NC-1000)を用いて全窒素量を測定した。

2.2 実験 2:水分蒸発がない場合の実験

実験1と同様のオガクズに尿素を蒸留水に加えて溶かした溶液を加えて、含水率 50%のオガクズ混合物を得た。実験では尿素投入量を 181mg、362mg、724mg と三段階に設定した。これらはそれぞれ NH_3 として 6.0×10^{-3} mol、 2.0×10^{-2} mol、 2.4×10^{-2} mol であった。以後それぞれ、RUN1、RUN2、RUN3 と表記する。尿素は容易に加水分解され、 NH_3 が生成される。また、人間が一日に排泄するし尿中の有機態窒素の 5~6 割が尿素とされている。このため実験 2 では NH_3 源であるし尿中の有機態窒素を代表して尿素を用いた¹⁰⁾。

反応槽は 10L のプラスチック製のバケツとした。オガクズ混合物を投入後、湿り気を与えたタオルで反応槽の口を塞ぎ、大きな輪ゴムで固定した。実験期間は 7 日間とし、期間中反応槽を 25~30°C の温室に安置し、1 日 2 回攪拌を手作業で行った。また 1 日 3 回反応槽の口を塞いでいるタオルに蒸留水を散布し、タオルの乾燥を防いだ。オガクズ混合物の含水率変化はバケツとオガクズ混合物を合わせた総重量の減少から計算した。実験期間中、オガクズ含水率の減少は最大で約 0.3% であった。

測定項目は $\text{NH}_3(\text{g})$ 、オガクズpH、オガクズ中の NH_3 量とした。 $\text{NH}_3(\text{g})$ の測定は実験 1 に準じた。オガクズpH はサンプル湿重 5g に対して、50ml の脱イオン水を加えて、1 時間攪拌し、その後 pH メーターで測定するという土壤環境分析法に準拠した¹⁰⁾。オガクズに存在する NH_3 の定量分析は、インドフェノール青吸光光度法を用い土壤環境分析法に準拠して行った¹¹⁾。分析に供する試料の調整はサンプル湿重 5g に 2M 塩化カリウム水溶液 100ml を加えて 1 時間攪拌して得た。定量分析で得られた全 NH_3 量をオガクズ水分量で除し、オガクズ水分中の NH_3 濃度を推算した。

実験期間中サンプリングを計 19 回行った。サンプリングはオガクズ気相中の $\text{NH}_3(\text{g})$ 濃度上昇傾向にあった期間は 3~6 時間毎に、 $\text{NH}_3(\text{g})$ が減少し始めた期間は 8~12 時間毎に行つた。サンプルは一回につき 10g を採取し、採取後にオガクズを加えて総重量を維持することは行わなかったため、実験開始時に約 715g あつたオガクズ混合物は、実験終了時には約 525g に減少した。

2.3 実験 3:水分蒸発と $\text{NH}_3(\text{g})$ 揮発が同時に生じる場合の実験

実験 3 では水分の蒸発が強制的に生じる実験系を作った。オガクズに NH_3 水を加えてオーブンに投入することで強制的に乾燥を起こし、オガクズから水分の蒸発が起こる場合オガクズ水分中に溶解している NH_3 がどのように揮発するのかを観察した。

オガクズと NH_3 水との混合割合は含水率約 10%の風乾オガクズ 50g に 1mol/l、0.1mol/l、0.01mol/l に希釈した NH_3 水 100ml をそれぞれ加えて、オガクズ混合物を得た。得られたオガクズ混合物を葉さじを用いてよく攪拌し、5.0~5.1g の範囲で 100ml ピーカーに取り、ピーカーを含めた総重量を計測した。試料は 20 個得た。得られた全ての試料を速やかに 60°C に設定したオーブンへ投入して乾燥実験を開始した。オガクズ混合物の調整過程においても $\text{NH}_3(\text{g})$ 揮発が生じていたため、実験開始時のオガクズ水分中 NH_3 濃度はそれぞれ 0.47、0.07、0.01mol/l であった。以後それを RUN4、RUN5、RUN6 と表記する。

実験開始から一定の間隔を置いてピーカーを 1 個ずつ取り出し、5 分間デシケーター内で冷却した後、ピーカーを含めた総重量を測定した。重量減少分を水分蒸発量とみなし含水率を計算した。その後、 NH_3 の定量分析に供した。分析方法は実験 2 に準じた。実験 2 と同様に、オガクズ水分中の NH_3 濃度を推算した。

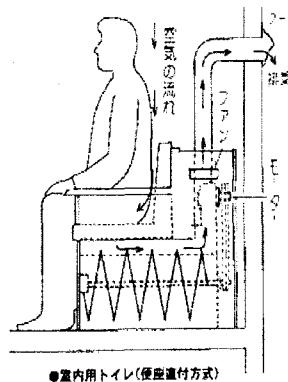


図 1 コンポスト型トイレ図

3. 結果と考察

3.1 実験1:コンポスト型トイレの窒素収支把握実験

コンポスト型トイレを用いた28日間のし尿処理試験の過程でトイレの排気筒、反応槽の二箇所における、 $\text{NH}_3(\text{g})$ 濃度の変化を図2-1、2-2に示す。反応槽中には500~2000ppmの $\text{NH}_3(\text{g})$ が試験開始4日目以降存在した。排気筒中の $\text{NH}_3(\text{g})$ 濃度は攪拌前で約20ppm、攪拌後は50~150ppmと攪拌の前後で明瞭な差が見られ、反応槽を攪拌することでオガクズ気相中から $\text{NH}_3(\text{g})$ が排気筒を経由して系外へ排出されていたことがわかった。

次に、投入された窒素の累積量とオガクズ(絶乾処理後)に残存した窒素量の変化を図3に示す。28日間の実験試験で、し尿としてオガクズに投入した全窒素量のうちオガクズに残存していた窒素量は約25%であった。従って、試験期間中に揮発した窒素は約75%であると推算された。Lopezらはこのコンポスト型トイレにおいては NH_3 の硝化が起こりにくいことを報告している¹²⁾。従って、 $\text{NH}_3 \rightarrow \text{硝酸(硝化)} \rightarrow \text{分子状窒素(脱窒)}$ という経路を経た窒素ガスの揮発は無視できるとし、 $\text{NH}_3(\text{aq})$ が $\text{NH}_3(\text{g})$ として揮発したと仮定した。

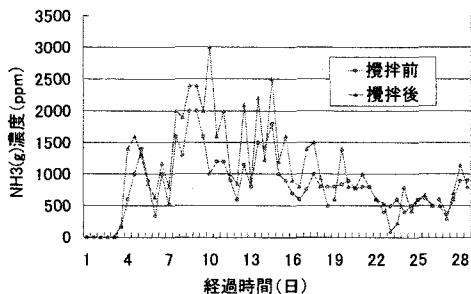


図2-1 反応槽中の $\text{NH}_3(\text{g})$ 濃度の経時変化

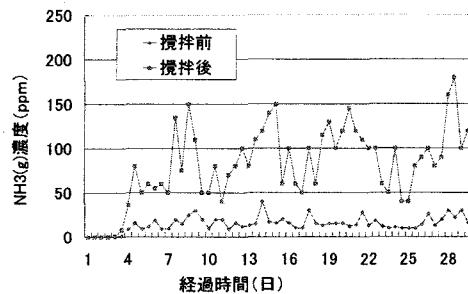


図2-2 コンポスト型トイレ排気筒における $\text{NH}_3(\text{g})$ 濃度の経時変化

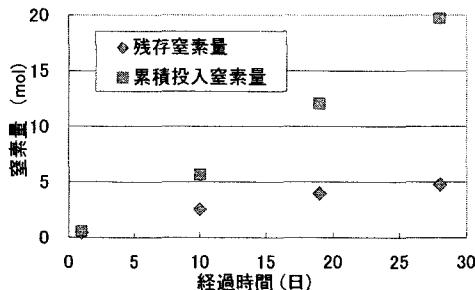


図3 コンポスト型トイレへの投入窒素量と残存窒素量の比較

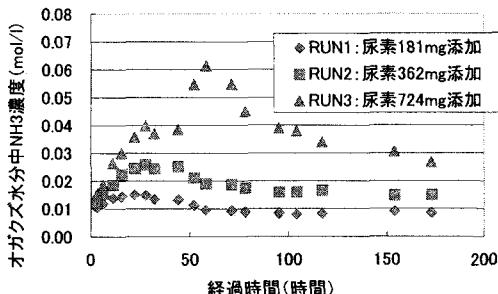


図4 オガクズ水分中の NH_3 濃度の経時変化

3.2 実験2:水分の蒸発がない場合の実験結果

オガクズの水分蒸発が無視できる系内における、オガクズ水分中の NH_3 濃度の変化を図4に示す。実験開始後、尿素の分解による NH_3 の生成が見られた。オガクズpHの経時変化を図5に示す。実験開始から100時間以降、RUN1、RUN2のオガクズ水分中の NH_3 濃度はほとんど変化しなかったが、オガクズpHはこの時期も、徐々に減少していた。また、オガクズ水分中の NH_3 濃度とオガクズpH、オガクズ気相中の $\text{NH}_3(\text{g})$ 濃度との関係を図6、図7に示す。水分蒸発が無い実験系において、オガクズ水分中の NH_3 濃度とオガクズ気相中 $\text{NH}_3(\text{g})$ 濃度、オガクズpHとの間には、 NH_3 濃度が低い場合を除いてそれぞれほぼ一定の関係が成り立っていると考えられる。

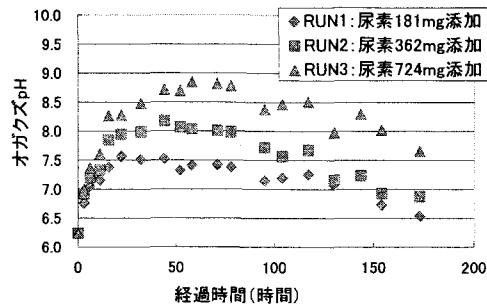


図5 オガクズpHの経時変化

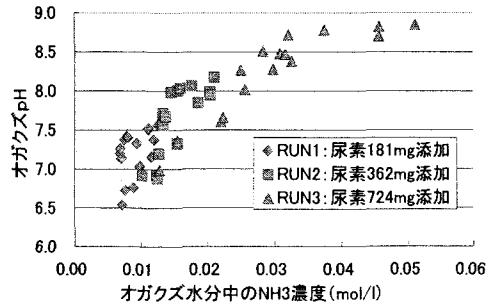


図6 オガクズ水分中のNH₃濃度とオガクズpHとの関係

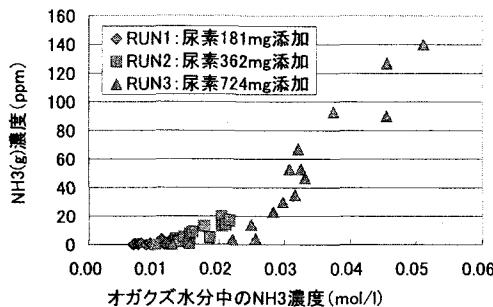


図7 オガクズ水分中のNH₃濃度と
オガクズ気相中NH₃(g)濃度の関係

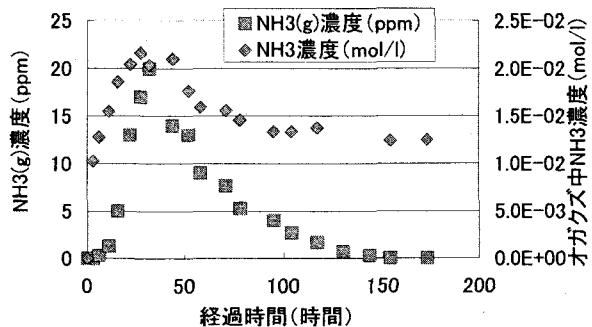


図8 NH₃濃度とNH₃(g)の経時変化
(RUN2:尿素 362mg 添加の反応槽)

RUN2 のオガクズ水分中 NH₃ 濃度とオガクズ気相中 NH₃(g)濃度の経時変化を図 8 に示す。実験後半のオガクズ水分中 NH₃ 濃度は $1.2 \times 10^{-2} \sim 1.3 \times 10^{-2}$ mol/l の間を変化したのに対して、オガクズ気相中の NH₃(g)濃度は検出限界以下に向かって収束していく。オガクズpH とオガクズ気相中の NH₃(g)濃度との関係を図 9-1 に、また特に NH₃ 低濃度域を図 9-2 に示す。図 9-1 から、pH 8.0 以上の区間から、急激に NH₃(g)濃度の上昇が見られた。図 9-2 よりオガクズpH が 7.0 ~ 7.5 の区間において、NH₃(g)濃度が検知され始めたことがわかる。いずれの場合も、NH₃(g)濃度の変化には、オガクズpH によって決まる一定の関係が見られた。

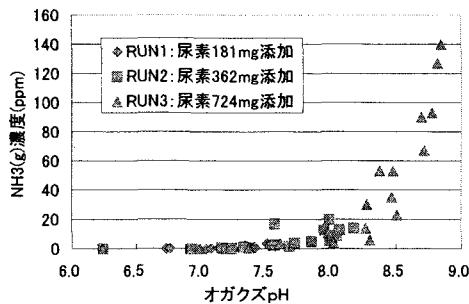


図9-1 オガクズpHに対するオガクズ気相中
NH₃(g)濃度

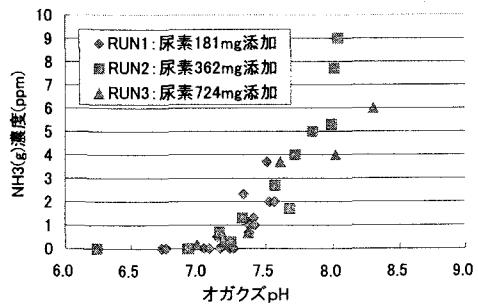


図9-2 オガクズpHに対するオガクズ気相中
NH₃(g)濃度

3.3 実験3: 水分蒸発と $\text{NH}_3(\text{g})$ 挥発が同時に生じる場合の実験

オガクズ水分残存量の経時変化を図10に示す。水分残存量はほぼ直線的に減少し、その速度はほぼ0.01g/minであった。オガクズ水分の蒸発過程において、オガクズ水分中に残存していた NH_3 量の経時変化を図11に示す。オガクズ中の NH_3 量は実験終了まで減少した。特に実験開始から約50分間までの減少速度が大きく、その速度は実験開始時の NH_3 量に依存した。

オガクズ水分中の NH_3 濃度の経時変化を図12-1に示す。また、低濃度域について図12-2に示す。RUN4、RUN5では、乾燥実験開始から約50分間までオガクズ水分中の NH_3 濃度の減少が観察され、その後 NH_3 濃度が増加した。RUN6では、開始後約50分間オガクズ水分中の NH_3 濃度の変化は見られず、その後 NH_3 濃度が増加に転じた。このことはオガクズ中の水分と NH_3 量は一貫して減少しつづける一方で、水分蒸発速度と $\text{NH}_3(\text{g})$ 挥発速度との大小関係が、乾燥過程で変化することを示している。またオガクズ水分中の NH_3 濃度は実験開始直後からの約50分間と、約100分後～約200分後の区間で同等レベルとなっているにもかかわらず、両区間ににおけるオガクズ中 $\text{NH}_3(\text{aq})$ の $\text{NH}_3(\text{g})$ としての揮発速度は大きく異なっていた。

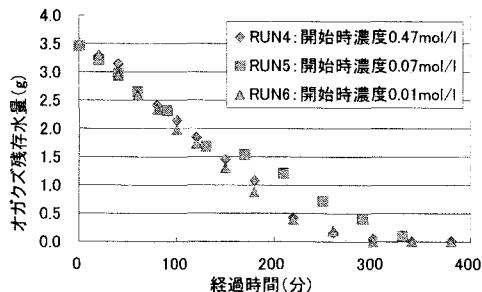


図10 オガクズ水分の経時変化

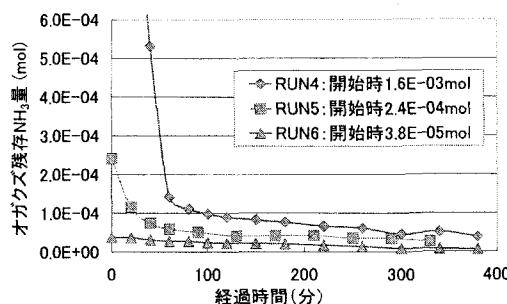


図11 オガクズ残存 NH_3 量の経時変化

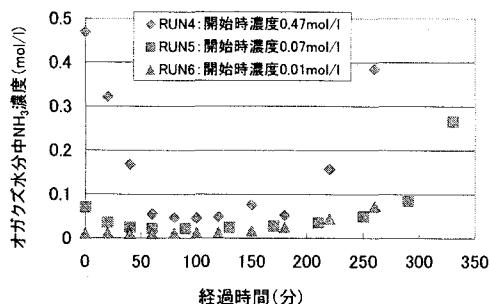


図12-1 オガクズ残存 NH_3 濃度の経時変化

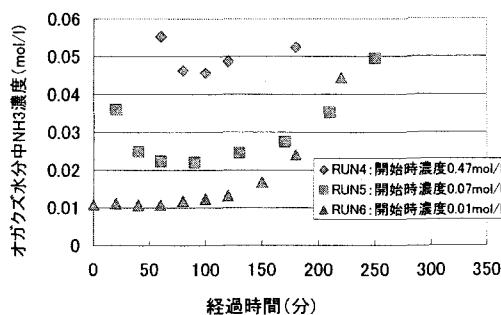


図12-2 オガクズ残存 NH_3 濃度の経時変化

オガクズの水分蒸発過程におけるオガクズpHの経時変化を図13に示す。pHに対する液相中の $\text{NH}_3(\text{aq})$ と NH_4^+ の存在比は 25°C において解離定数が $\text{pK}_a = 9.25$ であることから、 $\text{pH} = 9.25$ で $1:1$ であると計算される¹³⁾。従って、オガクズpHに対する $\text{NH}_3(\text{aq})$ と NH_4^+ の存在比は、pH8.25、pH7.25、pH6.25において、それぞれ存在比がおよそ $1:10$ 、 $1:100$ 、 $1:1000$ であると推算される。図13より一定の速度で水分蒸発が進行する過程で、オガクズpHは減少し続けていたことがわかる。 NH_3 水を加えない風乾オガクズはpH6.0～6.5であり、105度のオーブンで24時間乾燥させ、水分を完全に飛ばしたオガクズはpH5.0～5.5であった。これらのことから、風乾オガクズと絶乾オガクズにおいてもオガクズpHに差異が認められ、乾燥するほどオガクズpHは低くなることが分かる。そして、図13におけるpHの低下においては風乾オガクズ本来のpH6.0～6.5付近を境として、pHの低下傾向が変わっており、その時

の $\text{NH}_3(\text{aq})$ と NH_4^+ の存在比は概算で 1:1000 であると推測された。以上のことから、実験開始時と後半ではオガクズ pH の値が異なり、実験後半の低 pH 下では $\text{NH}_3(\text{aq})$ 濃度が低いことにより $\text{NH}_3(\text{g})$ 挥発速度が遅くなっていたと推察される。

水分蒸発過程におけるオガクズ中の NH_3 量と、オガクズ中の NH_3 濃度変化との関係についてについてについて、表 2 にまとめた。

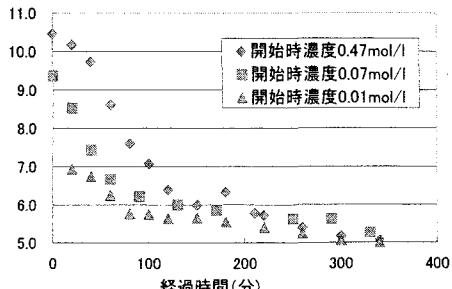


図 13 オガクズ pH の経時変化

表 2 乾燥過程における NH_3 量変化と NH_3 濃度変化との関係

NH_3 量	減少		
NH_3 濃度	H_2O 蒸発速度 < $\text{NH}_3(\text{g})$ 挥発速度 減少	H_2O 蒸発速度 = $\text{NH}_3(\text{g})$ 挥発速度 一定	H_2O 蒸発速度 > $\text{NH}_3(\text{g})$ 挥発速度 増加

図 12-2 におけるオガクズ水分中 NH_3 濃度が減少傾向から増加傾向に変わった区間(RUN4では 80~120 分、RUN5 では 40~120 分、RUN6 では、0~60 分)の pH はそれぞれ 6.4~7.6(RUN4)、6.0~7.4(RUN5)、6.3~6.9(RUN6) であった。また水分の蒸発がない実験においては、図 9-1 よりオガクズ気相中で $\text{NH}_3(\text{g})$ が検出され始めたオガクズ pH は 7.0~7.5 であった。

4.まとめ

オガクズを担体としたコンポスト型トイレでは、し尿として投入される窒素の多くが無機化され、 $\text{NH}_3(\text{g})$ として系外へ揮発していることが分かった。一ヶ月の実働試験においてオガクズに残存していた窒素量は、期間中全投入窒素量の約 25% であると推測された。

オガクズから水分蒸発と $\text{NH}_3(\text{g})$ 挥発が同時に起こる場合、水分蒸発速度と $\text{NH}_3(\text{g})$ 挥発速度の大小関係が経時に変化することが確認された。オガクズ含水量が少ない場合には、オガクズ水分中の NH_3 濃度が上昇傾向を示すにもかかわらずオガクズ pH は低下し、 $\text{NH}_3(\text{g})$ 挥発速度が低くなると推察された。今回の実験条件では $\text{NH}_3(\text{g})$ 挥発速度が水分蒸発速度より低下する pH は、約 7.0 付近であった。

5.謝辞

本研究を行うにあたりコンポスト型トイレの実働実験において、北海道大学農学研究科の上野康博氏、藤本啓太氏からの協力を得ました。水分蒸発と $\text{NH}_3(\text{g})$ 挥発が同時に生じる場合の実験では、同研究科の長谷川洋子氏、平松洋氏らに協力して頂くことで、正確なデータを得ることができました。彼らの協力に深く感謝の意を表します。

6.参考文献

- Horisawa S., Tamai Y., Sakuma Y., Doi S., Terazawa M. (2000) : Effect of moisture content of a wood matrix on small-scale biodegradation system for organic solid waste, *Journal of Wood Science*, 46, 317-321
- S. M. Rao Bhamidimarri and S. P. Pandey (1996) : Aerobic thermophilic composting of piggery solid wastes, *Water Science and Technology*, 33 (8), 89-94

- 3) Witter, E., Lopez-Real, J., (1987) : The potential of sewage sludge and composting in a nitrogen recycling strategy for agriculture, *Biological Agriculture and Horticulture*, 5, 1-23
- 4) Martins, O., Dewes, T., (1992). Loss of nitrogenous compounds during composting of animal wastes, *Bioresource technology*, 42, 103-111.
- 5) E. Witter and J. Lopez-Real (1988) : Nitrogen losses during the composting of sewage sludge, and the effectiveness of clay soil, zeolite and compost in adsorbing the volatilized ammonia, *Biol. Wastes*, 23, 279-294
- 6) Svend Tage Jakobsen (1994) : Aerobic decomposition of organic wastes I. Stoichiometric calculation of air change, *Resources, Conservation and Recycling*, 12, (3-4), 165-175
- 7) M.A. Sanchez-Monedero, A. Roig *, C. Paredes, M.P. Bernal (2001) : Nitrogen transformation during organic waste composting by the Rutgers system and its effects on pH, EC and maturity of the composting mixtures., *Bioresource technology*, 78, 301-308.
- 8) T. DEWES (1996) : Effect of pH, temperature, amount of litter and storage density on ammonia emissions from stable manure, *Journal of agricultural science, Cambridge*, 127, 501-509.
- 9) Joseph C. Jenkins (1999) : *THE HUMANURE HANDBOOK* 57
- 10) Bo-Bertil Lind, Zsofia Ban, Stefan Byden (2000) : Nutrient recovery from human urine by struvite crystallization with ammonia adsorption on zeolite and wollastonite, *Bioresource technology*, 73, 169-174.
- 11) 日本土壤肥料学会監修 ; 土壤環境分析法編集委員会編 (1997) : *土壤環境分析法*
- 12) MIGUEL ANGEL LOPEZ ZAVALA (2003) : Onsite wastewater differentiable treatment system. *DOCTOR THESIS*, 115-124.
- 13) 日本化学会編(1966):*化学便覧基礎編II* 1053-1054