水産研究・教育機構 機関リポジトリ
FRA Japan Fisheries Research and Education Agency Institutional Repository

# 単一油滴の炎による重質油の燃焼性評価



| メタデータ | 言語: Japanese<br>出版者: 水産大学校<br>公開日: 2024-10-11<br>キーワード (Ja):<br>キーワード (En):<br>作成者: 森下, 晋一, 前田, 和幸, 阿部, 清三, 津田, 稔, 桐畑, 友明<br>メールアドレス:<br>所属: 水産研究・教育機構 |
|---|---|
| URL | https://fra.repo.nii.ac.jp/records/2011743 |

This work is licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License.

Journal of National Fisheries University 50 (4) 129−136 (2002)

# 単一油滴の炎による重質油の燃焼性評価

森下晋一*1・前田和幸*1・阿部清三*2・津田　稔*1・桐畑友明*3

# Evaluation of Combustion Characteristics of Low Grade Bunker Fuel by Flame of Single Droplet

Shin-ichi Morishita*1, Kazuyuki Maeda*1, Seizoh Abe*2,
Minoru Tsuda*1 and Tomoaki Kirihata*3

The flame generated by the combustion of the low grade bunker fuel changes the size, flickers, breaks to pieces, and produces a large amount of soot. The cause is that the residue in the fuel burns. This paper clarified the combustion characteristics by a new method to express the flame's size on single fuel droplet with luminosity. After it was confirmed that the flame's size and the luminosity had the correlation, this method was applied to the fuel and compositions. As a result, the combustible gas generated from the fuel changed in quality from evaporated vapor to thermal cracking gas of aromatics and asphaltene. When the thermal cracking gas burned, the generation of a large amount of soot and an active division of the flame occurred at the same time. The soot piled up and stayed in the flame.

## 1　まえがき

重質油を大気圧の下、高温雰囲気で燃焼させると炎と多量のすすを発生する。これは重質油中に在る高沸点分やアスファルテンが熱分解して炭素質になることが原因しており、着火性や燃焼の持続性、炎の安定性、排ガス組成に影響を与える。残さ分を基材にする重質油の燃焼性を評価するには、構成分の燃焼に与える影響を考慮することが必要である。燃料油の燃焼性評価には物性値から導き出された実験式を利用する方法[1,2]や、熱天秤装置を用いて加熱による質量変化や発熱状況を分析対象にする熱重量測定及び示差熱分析による方法[3)~5)]等がある。また、単一油滴の燃焼現象を観察して評価する報告[6)]もある。複雑な組成の重質油の燃焼を的確に評価するには油滴の燃焼状態を観察することが分かりやすい。しかしその評価に個人差が影響し易いことから、より客観的な方法が求められる。そこで本研究では単一油滴に発生する炎に着目し、燃焼経過中にその大きさが変化する様子を図で表す方法として、炎の側面から発する光量をフォトトランジスターで電圧に変換することを試みた。その結果、炎の大きさと光量が相関することを確認できたことから、重質油に適用した。

## 2　実験方法と装置

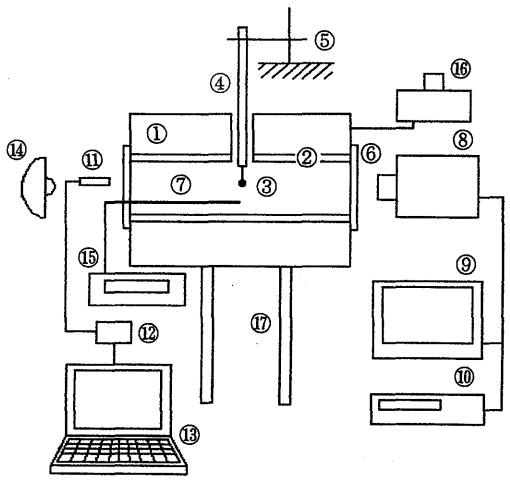
### 2．1　油滴燃焼装置

燃焼装置の概略をFig. 1に示す。油滴を燃焼させる管状炉と発生した炎およびその様子を記録する装置からなる。管状炉（直径2,000mm、長さ2,200mm）には軸心を中心とする円筒状（内径80mm）の空間があり、その中央には軸心と直角方向に管状炉の外壁から内部に貫通する穴（内径6 mm）が開けられている。油滴を石英糸（直径0.2mm）の先端に付着懸垂し、手動で移動させた管状炉内に穴

2001年11月30日受付. Received Nov. 30. 2001.

*1 水産大学校 海洋機械工学科 (Department of Ocean Mechanical Engineering, National Fisheries University).
*2 水産大学校練習船 (Training Ship Koyo-Maru, National Fisheries University).
*3 水産庁 (Fisheries Agency).

を通して挿入し、所定位置で燃焼させる。管状炉と石英糸は互いの動きや振動が影響しないように絶縁して配置する。管状炉内の温度は所定値を維持するようヒーターの電圧を調節して行い、温度の測定は油滴から約10mm離れた位置に設けた熱電対で行う。油滴の燃焼経過の状況は、管状炉の軸方向に設置されたビデオカメラにより映像を、また同一軸上でビデオカメラと反対側に置かれたフォトトランジスター（光センサー）により炎の光量を捉え記録する。



①:Furnace, ②:Ceramic Tube Jacket, ③:Silica Filament, ④:Support, ⑤:Stand, ⑥:Heat-Resisting Glass, ⑦:Thermocouple, ⑧:Video Camera, ⑨:Video Display, ⑩:Video Recorder, ⑪:Photo Sensor, ⑫:AD Converter, ⑬:Personal Computer, ⑭:Lamp, ⑮:Digital-Voltage Meter, ⑯:Voltage Regulator, ⑰:Guiderail.

**Fig.1** Schematic diagram of experimental apparatus.

## 2．2　燃焼経過の記録

ビデオカメラによって油滴が変化する様子を録画するに際し、画面中に加熱開始からの経過時間（5 ms毎）を挿入した。炎の大きさは炎の側面からの光量を光センサーにより電圧に変換した値（出力）で表し、パソコンで記録した。

## 2．3　重質油の性質と測定法

試料に用いた重質油の性状をTable 1に示す。組成分析にはIP-40法を用いて重質油をアスファルテン(Asp)と油分(Mal)に分別し、さらにシリカゲルを分配剤にしたカラムクロマトグラフを用いてMalを飽和分(Sa分)と芳香族分(Ar分)に分別した。またOV-17を充填剤にしたガスクロマトグラフを用いて各成分を加熱したとき発生する燃料蒸気の炭化水素分布を調べた。

**Table 1** Various properties of fuel

| Sample no. | 1 | 2 | 3 | 4 |
|---|---|---|---|---|
| Density 15 ℃,kg/m $^3$ | 972.8 | 981.9 | 954.6 | 948.2 |
| Kinematic viscosity 50 ℃,mm $^2$/s | 177.8 | 179.2 | 183.5 | 175.3 |
| CCAI | 842 | 851 | 824 | 818 |
| Composition wt% | | | | |
| Saturated compounds (Sa) | 24.1 | 22.2 | 25.8 | 26.2 |
| Aromatic compounds (Ar) | 67 | 68.5 | 66 | 65.5 |
| Asphaltene (Asp) | 8.9 | 9.3 | 8.2 | 8.3 |

加熱された重質油が蒸発や熱分解によって減量したり、吸・発熱する状況は、熱天秤装置で測定した。分析は、油量約5 mgを空気流量50ml/secの雰囲気の中、室温から800℃まで20℃/minの割合で昇温して行った。

## 2．4　炎の測定条件

実験に先立って炎の大きさと光センサーの出力、および石英糸の先端で燃焼できる油滴の大きさと加熱温度の関係を調べた。

### 2．4．1　炎の大きさと光センサーの出力

燃焼装置でワセリンの単一油滴を燃焼させると安定したエンベロープ炎を維持できることを利用して、炎の大きさと出力の関係を確かめた。ワセリンは減圧蒸留残油から分離精製されたパラフィン系炭化水素化合物であり、重質油の飽和成分に近い性状である。検討対象として、ワセリンの量を変えて石英糸に付着させ、燃焼が持続する間の出力とそのビデオ画像を用いた。これらから5 ms毎の出力と、同時刻におけるビデオ画像の印刷図を測定して炎の側面積を求めた。両者の関係をFig. 2に示す。なお炎の側面積は油滴を基準にしてX軸とY軸の最大長さを乗じた値とした。図に示されるようにワセリンの量に関わらず同一の直線で表され、炎の側面積と出力は比例している。

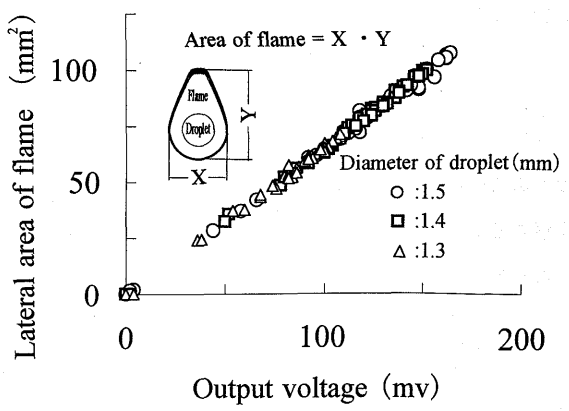



**Fig.2** Output voltage of photo sensor correlating to lateral area of flame.

### 2．4．2　油滴の大きさと加熱温度

石英糸先端に付着する油滴の大きさは石英糸の太さに制約される。油滴が適度の大きさであれば炎の大きさが変化する様子やすすの発生する様子を観察できるが、大きすぎると燃焼中に落下する。本研究に用いる石英糸に合う油滴の大きさを定めるため、付着量を変えて燃焼を繰り返した。なお、石英糸に付着している油滴は懸垂した楕円状をしているので回転楕円体と見なし、平均直径で大きさを表した。その結果、平均直径1.5mmの場合が燃焼を全うでき、燃焼期間中の炎やすすの観察に適していた。

油滴の大きさは試料にかかわらず同一であることが望ましいが、重質な油ほど流動性を欠きシリンジで一定量を採取することは困難である。そのため本研究では針金（0.6mm）に塗布した試料の一部を石英糸先端に付着させ、平均直径が1.5mmになるように努めた。

着火には油滴の加熱温度が影響することから、5通りの径の異なるワセリン滴を550℃から800℃の間、50℃毎に設定した温度のもとで燃焼させた。炎が持続した時間をFig. 3に示す。図から650℃を越えると測定値の分散が小さくなるとともに安定している。また、高温になると着火遅れが短くなり、着火前の油滴の状態を観察しにくい。これらのことから加熱温度は650℃を採用した。

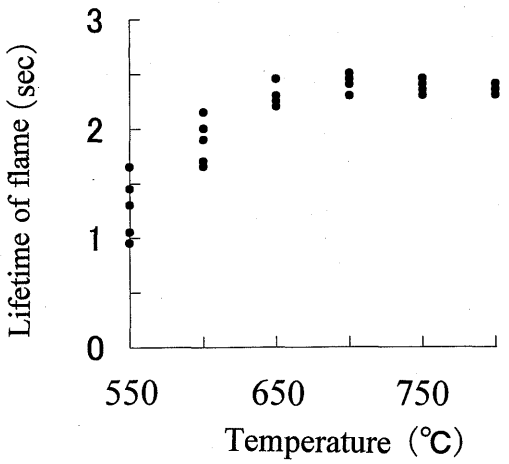



**Fig.3**　Lifetime of flame generated in single droplet of vaseline.

以上のことから油滴を燃焼し記録する条件をTable 2に示す。

**Table 2**　Condition to record of flame

| | | |
|---|---|---|
| Combustion temperature | ℃ | 650 |
| Interval of measure | ms | 50 |
| Recording period | sec | 5 |

## 3　結　果

### 3．1　重質油の燃焼過程

炎の大きさを出力で表し、燃焼中のその変化を光量曲線とするとき、炎の大きさは各計測時間における出力と燃焼中に示した最大出力の比で表した。重質油4種類の結果をFig. 4に示す。図示のように重質油4種類とも同様の傾向を示し、炎の状態も類似していたことから、No. 4重質油における燃焼画像を挿入した。図に示されるように、燃焼は油滴周囲に生じた燃料蒸気と空気の混合気が着火し、球状の炎を発生することから始まる（画像a）。この炎の熱により燃料蒸気が上昇するため、炎の先端が伸びてエンベロープ炎になる。その先端から黒褐色の細いひも状のすすが連なって発生し室内を浮遊する（画像b）。炎は球状からエンベロープ炎に移る間に一時的に小さくなる。この変化する時期と50ms毎に行う光センサーの計測時期が一致すれば光量曲線にピークとして現れる。このことがFig. 4におけるNo.2, 3の重質油に示されている。安定して燃焼を続けていたエンベロープ炎は燃焼の半ばを過ぎた頃から大きくなり始め、すすも多くなる（画像c）。この時期には油滴から放射状に噴出する小火炎が見られる。すすにも変化が現れ、炎の先端から発生するすすに加えて油滴上部に滞留した状態の幅広いすす（ブロック状すす）が多量に発生する。炎がこれを包み込むように大きくなる（画像d）。一層活発に噴出する小火炎のため炎は乱れて一定の形を保てず（画像e）、分裂して一気に消滅する。燃焼後の石英糸には油滴

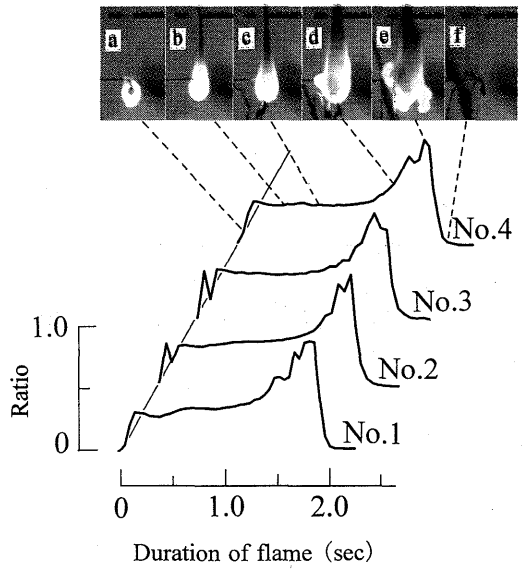



**Fig.4**　Ratio of maximum size of flame generated in single droplet of fuels.

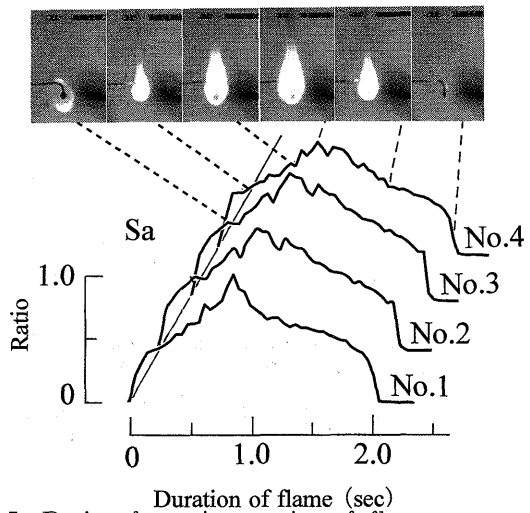



**Fig.5** Ratio of maximum size of flame generated in single droplet of saturated compounds.

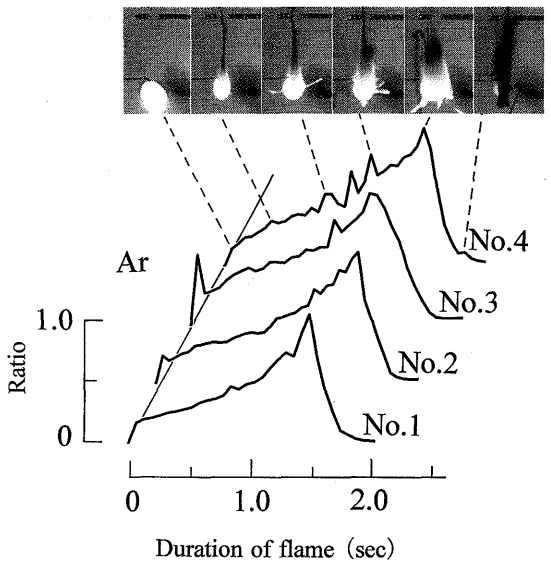



**Fig.6** Ratio of maximum size of flame generated in single droplet of aromatic compounds.

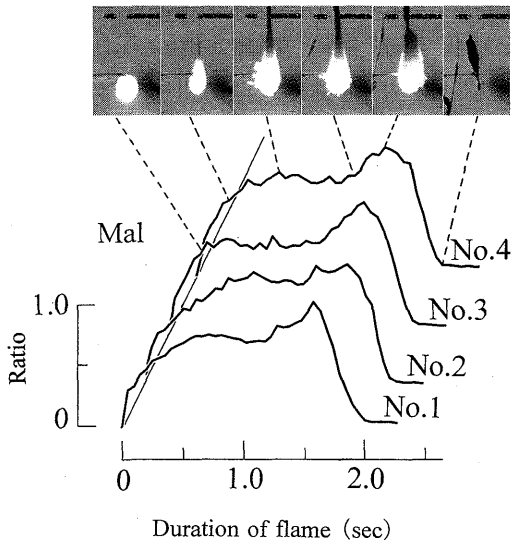



**Fig.7** Ratio of maxmum size of flame generated in single droplet of maltenes.

が付着していた所にひも状すすと少量の固着したすすが残留している(画像f)。これらは加熱を続けると燃焼されるが、固着したすすが消えるまでには長時間を要した。このような油滴の燃焼を炎とすすの様子から3期間に分けることにした。すなわち、着火からエンベロープ炎が形成されるまでを燃焼前期、それ以後からブロック状すすが発生を始めるまでを燃焼中期、炎が消滅するまでを燃焼後期とした。

## 3．2　重質油成分の燃焼過程

重質油の種類が異なっても同成分であれば光量曲線と炎の様子は類似していたことから、Fig. 5からFig. 7にはNo.4試料油の画像を示した。

Fig. 5に示されるSa分の光量曲線は釣り鐘状を示し、炎が最も大きくなるのは燃焼中期である。画像に見られるように燃焼中はエンベロープ炎を保ち、炎の先端から淡い黒色で幅のあるひも状すすが連続して上昇する。その幅は炎の大きさに合わせるようにわずかに変化する。消滅後の石英糸に付着物はない。

Fig. 6に示されるAr分の光量曲線は右上がりの斜面を持つ三角形状を示す。着火後にできるエンベロープ炎が最小であり、燃焼が進むと共に大きくなり燃焼後期に最大になる。炎の先端から黒色の糸状すすが連なって立ち昇り、燃焼室内を浮遊する。画像に示されるようにエンベロープ炎から頻繁に小火炎の噴出が見られ、燃焼が進むにつれてその頻度と数が多くなる。燃焼後期では糸状すすが途切れてブロック状すすに変わり、これを包むように炎が大きくなるとともに、活発に噴出する小火炎と炎の分裂が起こり、一気に消滅する。消滅後の石英糸にはレース様のブロック状すすが多量付着している。

Fig. 7に示されるMalの光量曲線はM形を示す。画像に見られるように燃焼中はエンベロープ炎を保ち、先端から黒色の糸状すすが連なって上昇する。燃焼後期になると糸状すすからブロック状すすに変わり、炎は大きくなるが乱れたり分裂することはない。燃焼中に盛んに噴出する小火炎は炎の形に影響を与えることはない。消滅後の石英糸に付着しているブロック状すすはAr分に比べて少量である。

## 3．3　重質油および成分の熱的性質

### 3．3．1　蒸発・熱分解の性質

重質油4種類の熱的性質を熱天秤装置により分析した。加熱温度に対して、試料の質量変化（TG曲線）と吸・発熱による熱変化（DTA曲線）の結果をFig. 8に示す。ま

た各重質油の成分のTG曲線が類似していたことからNo. 4 重質油の結果をFig. 9 に示す。これらから質量変化を蒸発領域（室温～400℃）、熱分解領域（400℃～500℃）、炭素質化領域（500℃～800℃）に分けて整理[5]した結果をTable 3 およびTable 4 示す。両表から炭素質の生成量は重質油では約30～33wt%、成分ではAr分が約30～35wt%、Aspが約56～63wt%であった。

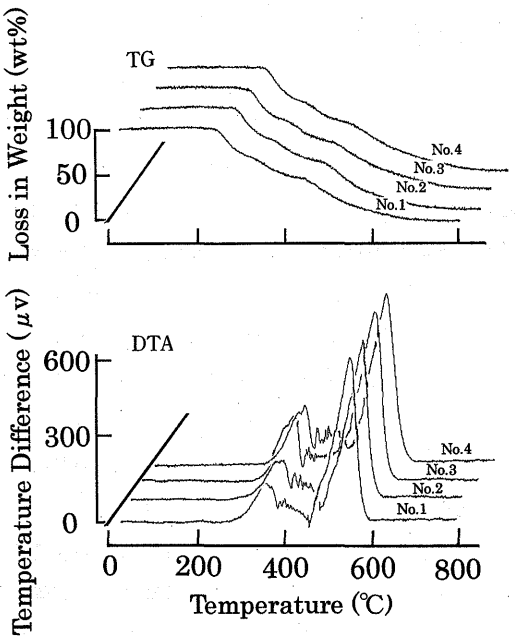



**Fig.8** TG and DTA curve of fuels measured by thermobalance.

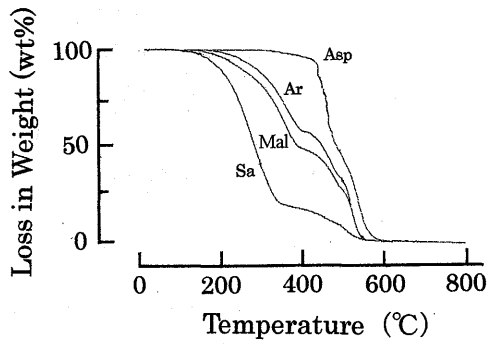



**Fig.9** TG curve of compositions of no.4 fuel measured by thermobalance.

**Table 3** Measurement result of fuels by thermobalance(wt%)

| Sample no. | 1 | 2 | 3 | 4 |
|---|---|---|---|---|
| Evaporation | 48.3 | 48.3 | 45.7 | 46.8 |
| Thermal cracking | 20.9 | 21.6 | 22.1 | 19.9 |
| Carbonization | 30.8 | 30.1 | 32.2 | 33.4 |

### 3．3．2　燃料蒸気の組成

熱分解装置付きガスクロマトグラフを用いて加熱した油滴から発生する燃料蒸気の成分を調べた。加熱温度は油滴の燃焼を行う管状炉と同じ650℃である。重質油 4 種類および各成分のクロマトグラムが類似していたことから、No. 4 重質油の結果をFig.10に示す。図には、低分子量成分の存在と、炭素数16（$C_{16}$）の化合物が多いことが示されている。

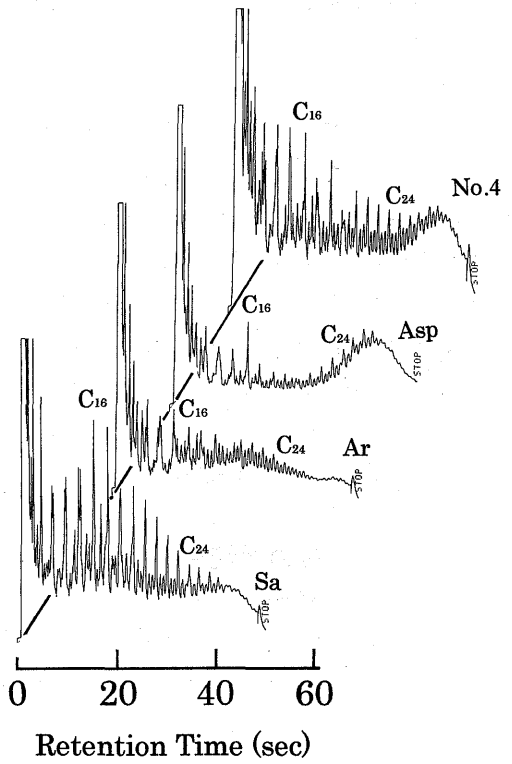



**Fig.10** Chromatograms of gases generated when no.4 fuel is heated to 650℃ by pyrolysis furnace.

**Table 4** Measurement result of compositions by thermobalance (wt%)

| Sample no. | | Composition | | | |
|---|---|---|---|---|---|
| | | Mal | Sa | Ar | Asp |
| 1 | Evaporation | 64.5 | 81.2 | 46.7 | 4.6 |
| | Thermal cracking | 19.7 | 12.1 | 18.5 | 39 |
| | Carbonization | 15.8 | 6.7 | 34.8 | 56.4 |
| 2 | Evaporation | 63.8 | 82.5 | 43.1 | 4.5 |
| | Thermal cracking | 20.5 | 11.3 | 24.5 | 32.6 |
| | Carbonization | 15.7 | 6.2 | 32.4 | 62.9 |
| 3 | Evaporation | 61.1 | 82.4 | 45.7 | 5.5 |
| | Thermal cracking | 18 | 13.1 | 21.1 | 36 |
| | Carbonization | 20.9 | 4.6 | 33.2 | 58.5 |
| 4 | Evaporation | 57.3 | 82.2 | 47.3 | 5.4 |
| | Thermal cracking | 20.4 | 14.3 | 22.7 | 38 |
| | Carbonization | 22.3 | 3.5 | 30 | 56.6 |

# 4 考 察

## 4.1 光量曲線

ワセリンを燃焼させた際発生する炎の大きさを炎の側面積で表したとき、出力との間にはFig. 2の関係がある。図のように油滴の大きさに関わらずエンベロープ炎の側面積が出力と比例していることは、炎の大きさを出力で表せることを示しており、燃焼中の変化を追従することができる。この場合、炎の色は同じことが必要である。重質油と各成分の炎は油滴を中心にしたエンベロープ形の輝炎であり黄色の濃淡差は小さい。炎がこの様な形になるのは石油系燃料の単一油滴が拡散燃焼する際に見られ、油滴直径が約1mmのときは油滴を取り囲むエンベロープ形の拡散炎となる[7]ことによる。本研究で現れた炎の色は、すすを多量に発生する燃焼後期では炎の上部が暗色になり、小火炎の噴出や炎の分裂が起きる所は白色に近い黄色になり濃淡ができる。そのため出力に変動を生じるが、これらの発生は不規則でしかも瞬時であるため、光量曲線の傾きに与える影響は小さい。これらのことから、光量曲線は炎が大きさを変化する様子を表しているといえる。

## 4.2 重質油成分の燃焼性

重質油4種類の燃焼経過状況と光量曲線が同じ傾向を示したことから、No.4重質油について考察する。

Sa分の燃焼はFig. 5に示すように、すすの発生が少なく燃焼中はエンベロープ炎であり、光量曲線は釣り鐘状である。炎の大きさに影響を与えるのは油滴からの燃料蒸気量であり、着火後は炉の熱に炎からの熱も加わって増大するが、燃焼が進むとともに油滴が小さくなるため減少する。この増減が光量曲線を釣り鐘状にする。Sa分の組成は、Fig.10およびTable 4から、$C_{16}$の化合物を主成分として約82wt%を占める蒸発分と、400℃[3)5)]以上に加熱されると熱分解する成分である。このためSa分の燃焼は含有量の多い蒸発分の影響が大きく表れる。またすすの発生が少なく、燃焼後に石英糸に付着物がないことは、飽和成分は加熱されると分子の切断や遊離基を生成[8)]して酸化されやすいことと、燃焼を終えるまで保たれるエンベロープ炎によってすすが燃焼されるためと思われる。

Ar分の光量曲線はFig. 6に示されるように、右上がりの斜面を持つ三角形状である。Ar分の炎も燃料蒸気量に影響されるが、多量のすすを発生することが特徴である。これは芳香族分が高温に熱せられると熱分解のため重・縮合して多環芳香族分となり、さらに炭素質化してすすになり易い[9)]からである。Table 4に示す熱分析結果によると、Ar分は蒸発分のほかに熱分解分が約53wt%あり、Sa分に比べ多い。これが400℃を越えて加熱されると分解ガスと炭素質になり、すすの発生量を増大する要因となる。燃焼後期に太く幅広いブロック状すすが発生するのは、分解ガスの一部が炎の熱と油滴付近の酸素不足によってすすとなり、また熱分解によって生成する炭素質が混じり合い、一端を油滴上部の石英糸に付着した状態で累積するためと思われる。このようになると、燃焼はブロック状すすの外縁に拡散してきた空気によって行われるため、炎がすすを包むように大きくなる。消滅後に石英糸に付着しているレース様のブロック状すすは、加熱を続けると管状炉の熱で速やかに燃焼されることから、隙間の多い炭素粒子が連なった気相形すすであるが、炎の先端に発生するすすに比べて密度が大きいため飛散しないと思われる。一方蒸発や熱分解が進むと油滴は粘稠になり、油滴内部で発生した分解ガスの泡の放出を困難にする。画像に見られる小火炎は油滴内部から噴出する分解ガスが燃焼するためである。これらのことからAr分の燃焼は蒸発分から始まり、次いで分解ガスが加わるとブロック状すすが発生し、その外縁で燃焼が行われるため炎が大きくなるという経過をとる。燃焼後期には頻発する小火炎によって炎が分裂し消滅する。

Aspを石英糸に付着させることは困難であり実験装置で燃焼を行えない。それは溶剤によって重質油から分離されたAspは微細に破砕された皮膜状のためである。そこでMalと重質油の燃焼を比較してAspの燃焼への関わりを考察する。Malの光量曲線はFig. 7に示すようにM形で2つのピークがある。MalがSa分とAr分の混合であることから、光量曲線にはそれぞれの特徴が表れるはずである。前述のSa分とAr分の性質から、前期のピークは両成分の蒸発分であり、後期のピークはAr分の熱分解分が主な原因であることは明らかである。このことはTable 4に示されるMalには約57wt%の蒸発分があること、また残りの約43wt%である熱分解分には、同表の分析値からSa分の熱分解分は約18wt%、Ar分のそれは約53wt%であり、Ar分の占める割合が大きいことに示されている。一方重質油の光量曲線はFig. 4に見られるようにAr分によく似た右上がりの斜面を持つ三角形状であるが、ピークの傾斜が急である。燃焼後期で光量曲線に影響するのは熱分解分であり、重質油の場合Ar分とAspである。重質油中のAspは凝集した多環芳香族分が油に不溶になった成分であり、熱分解して分解ガスと炭素質になる。Table 4に示されるように炭素質になる割合は成分中で最多である。そのため蒸発分

の燃焼に続いて熱分解が始まると、Aspによる分解ガスがAr分のそれに加わり、発生するすすを多くすることになる。またAspから生成された炭素質はブロック状すすをさらに大きくすることになり、炎が大きくなって燃焼後期の光量曲線を急上昇させる。消滅後の石英糸先端に付着している少量の炭化物は、Malの場合にはなく重質油に現れたことからAspの熱分解生成物であり、燃焼に時間がかかる残炭形すすである。Aspの熱分解による炭素質化はAr分と同様に油滴の粘度を高める。重質油の場合、両成分の影響により油滴から分解ガスの噴出が一層盛んになるため、火炎は激しく分裂する。これらが燃焼後期の光量曲線を急傾斜にする原因である。

### 4．3　重質油の燃焼性評価

これまでの考察により燃焼には重質油成分の蒸発分と熱分解分が大きく影響している。Fig.11にまとめたNo. 4 重質油と各成分において、No. 4 重質油の光量曲線が着火から燃焼中期まで変化が小さく経過しているのは蒸発分が燃焼するためであり、燃焼後期に急上昇するのは熱分解によるブロック状すすの発生と、分解ガスの噴出による炎の乱れのためである。成分の中でもAspが炭素質になることは、同図の重質油とMalの比較から、燃焼後期の炎の大きさに影響を与えることが明らかである。また炎を激しく分裂させて一気に消滅する原因にもなっている。

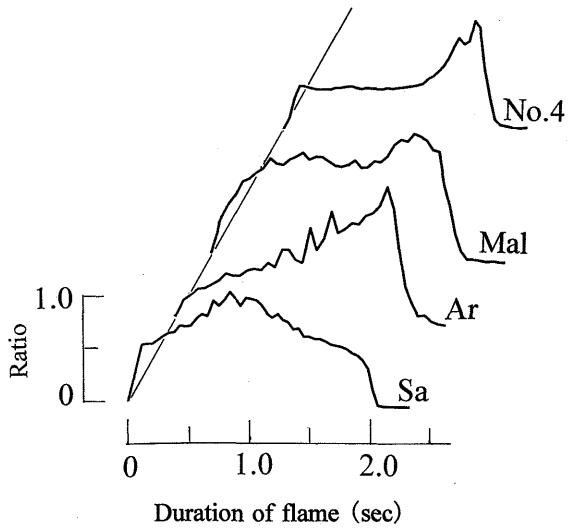



**Fig.11** Ratio to maximum size of flame generated no.4 fuel and it's compositions.

## 5　まとめ

単一の油滴に生じる炎が発生して消滅するまでの間、大きさを変えていく様子を図示できることから、この方法を重質油に適用した。その結果、重質油の成分が燃焼に及ぼす影響を明らかにすることが出来、次のことを得た。

1）　重質油の燃焼は蒸発分の着火から始まり、次いで熱分解によって発生した分解ガスが加わって持続するが、同時に多量のすすを生じるとともに、活発な炎の分裂が起こって消滅する。

2）　Sa分とAr分の中で蒸発する成分はエンベロープ炎を保って燃焼を持続するが、Ar分とAspの熱分解が始まると、多量の浮遊する気相形すすのほかに炎の中に滞留するブロック状のすすを発生するため、炎が大きくなる。

3）　Aspは最も炭素質になりやすく、Ar分とともに油滴を粘稠にする。そのため油滴内部に生じ放出を妨げられた分解ガスが噴出して、炎の分裂を促すことになる。

本研究で用いた方法をさらに詳細に検討すれば燃料油の組成を推測できると思われる。

## 文　献

1）Nomura, H., Satoh, T., Nagasawa, T., Yoshida, E., CIMAC 1987, Paper D-59.

2）A.P.Zeelenberg, H. J. Fijin van Droat, H. L. Barker, CIMAC 1983, Paper D-13.2.

3）峰山隆志, 淡井信幸, 舶機誌, 24(1), 44(1989).

4）林　利昭, 清水和夫, 上原　淳, 舶機誌, 33(6), 431(1998).

5）森下晋一, 燃協誌, 70(2), 263(1991).

6）玉木恕乎, 久保田俊雄, 堀井泰聡, 舶機誌,22(6), 363(1987).

7）J.N.Bradley:火炎と爆発（須賀正夫・北村揚一訳）, 三共出版, 東京, 1969, p.116.

8）森田義郎, 石油精製（昭晃堂）, p.50(1980).

9）神谷佳男, 真田雄三, 冨田　彰, 石炭と重質油（講談社), p.103(1979).