

温暖化ガス排出抑制のための燃料開発に関する研究

坂本和彦¹、王青躍¹、関口和彦¹、細田 俊彰^{2*}

¹ 埼玉大学大学院理工学研究科環境制御工学専攻、^{2*} 武州ガス株式会社

本研究では、バイオマス廃棄物の燃焼特性やバイオブリケットの耐圧強度やその汚染物質排出抑制効果などによりバイオブリケットの製造技術の適正化を検討し、次の(I)~(IV)の結果を得た。(I)バイオマス燃焼からのHCl, SO₂の1kg当たりの排出量はそれぞれ35~912, 52~1764 mgの範囲であった。特に、食品製造廃棄物の燃焼による大気汚染物質の発生は多くなかった。(II)バイオブリケットの耐圧強度は石炭の種類、バイオマスの添加量、バイオマス中のリグニン含有量によって異なるが、25%農林産廃棄物添加のいずれのダブレット及びバイオブリケットも40 kg以上の耐圧強度に達していた。ブリケットの強度増大のための粘結剤(バインダー)として役立つことができるバイオマスのリグニン含有量は12.1~33.3%の範囲であった。(III)バイオブリケット燃焼によるHCl, SO₂とダスト排出への低減率は26~61%, 82~88%と55~83%の範囲であった。消石灰を硫黄固定剤として添加したバイオブリケットはかなり高い効率で大気汚染物質の排出を抑制できる。(IV)バイオマス添加により、循環性資源の利用により温暖化ガス排出抑制効果も期待された。

1. はじめに

高硫黄並びに高灰分の石炭を主要なエネルギー源としている中国重慶では、酸性雨及び大気汚染による人への健康影響、森林、土壌、作物、建築材料や文化財などへの被害が見出されている¹⁻⁶⁾。従って、酸性沈着の原因物質排出制御技術に関する研究が重要である。バイオブリケットは硫黄分固定率と煤塵の排出低減率も高く、着火性と燃焼性も良く、未燃分損失なども少なく、熱効率が高い⁷⁾ため、重慶の酸性雨原因物質などの排出抑制手法として有効であると期待されている。循環性資源であり、未利用または廃棄物であるバイオマスをバイオブリケットの副原料として用いれば、燃料としての有効性以外にバイオマスに本来的に含まれている植物繊維がブリケットの強度を増大させる粘結剤(バインダー)としても役立つと考えられる。また、バイオマスを添加した成型炭の燃焼灰中には植物生長に有効なCa, Mg, Kなどが多く含まれるため、農林作物成長への栄養塩類補給の肥料として利用可能であり、かつ、燃焼灰中には硫黄の固定(CaSO₄)に利用された消石灰(Ca(OH)₂)の残存分があり、強アルカリ性であるため、土壌酸性化が抑制できると考えられる。そのため、バイオブリケット燃焼灰を酸性雨地域の土壌改良剤として農林地へ散布すれば、廃棄物を出さないゼロエミッションサイクルが構築されると期待される。

* 埼玉県川越市田町 32-12

本研究では、バイオブリケット製造技術の現地化のために、適当なバイオマスを選択するために必要とされる各種バイオマスの成分、性状及び石炭の燃焼特性への寄与などを検討した。また、バイオマスのリグニン含有量、燃焼排気としての汚染物質排出量及び試作したバイオブリケットの耐圧強度により、バイオマス添加によるバイオブリケットの性能への寄与を調べてバインダーとしての適性を検討した。燃焼実験装置により燃焼排気ガスを捕集し、汚染物質排出量を測定し、汚染物排出抑制効果を調べた。

実験用バイオマス試料として、中国西南部にある重慶市の江北区において農作物の廃棄物（トウモロコシの藁、小麦の藁、高粱の藁、稲の藁）、木材廃棄物(オガクズ)、野生植物(野草、雑草)及び食品製造廃棄物(バガス粕、ビール粕、高粱酒粕、豆腐粕)のバイオマスを採集した。採集したバイオマス及び重慶市産並びに成都産の石炭を自然乾燥し、

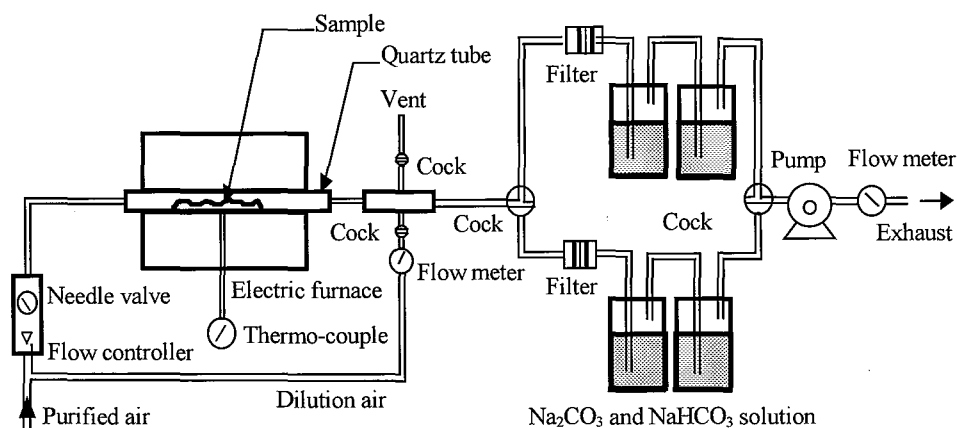


Fig. 1. Experimental equipment for combustion test.

細かく(5mm以下)破碎した。

Fig. 1に示した実験装置の燃焼管は内径16 mm、外径20 mm、長さ520 mmの透明石英管である。試験方法は、燃焼空気を1.0 l/minの流量で供給しながら燃焼管を500°Cまで加熱昇温させた後、試料0.500 gまたは1.000 gを乗せた燃焼ボートを燃焼管の中央部に投入し、燃焼管を800°Cまで加熱昇温させ、その温度で20分間保って、試料を燃焼させ、同時に吸引ポンプで石英製フィルター（パールフレックス社製2500QAT-UP）により粒子状物質を採取し、燃焼排ガスを直列に接続してある二つのインピンジャに導き、排気ガス中に含まれる酸性大気汚染物質を捕集液(150 ml, イオンクロマトグラフの溶離液(2.7 mM- Na_2CO_3 / 0.3 mM- NaHCO_3))で捕集した。イオンクロマトグラフ(DIONEX社製DX100型、導電率検出器)により捕集液中の SO_3^{2-} 、 SO_4^{2-} などの濃度を測定した。捕集液中のイオン濃度より、燃焼排気としての汚染物質排出量を求めた。採取した一定量のフィルターをイオン交換水により超音波抽出し、桐山ロート用濾紙No. 5C(桐山製作所製)で濾過し、定容した後、一部溶液をイオンクロマトグラフにより F^- 、 Cl^- 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-}

(DIONEX社製Ion Pac AS12A分離カラム), Na^+ , NH_4^+ , K^+ , Ca^{2+} 及び Mg^{2+} (DIONEX社製 Ion Pac CS12A分離カラム)濃度を測定した。

JIS P8008 方法により, バイオマス試料 1.0000 g をエタノール・ベンゼン(1:2, v/v) 混合溶剤 100 ml でソックスレーにより 6 時間抽出し, 濾過した後の試料に 72% 硫酸 15ml を添加した後 20°C の水浴内で 4 時間放置する。1 l 三角フラスコに蒸留水 560ml で洗い落とし, 還流冷却管を付けて 4 時間沸騰させ, ガラスろ過器で吸引ろ過し, 蒸留水で洗い, 105±3°C で 4 時間乾燥し, 残留物の質量を計測し, リグニン(%)を計算した⁹⁾。

実験室ではハイプレッシャージャッキ(井内盛栄堂社製)を用い, 粉炭とバイオマスとの混合物に消石灰($\text{Ca/S}=2$)を添加して 4 トンの圧力でタブレット型のバイオブリケット($\phi 12 \times 7$ mm, 1 g)を試作した。また, 中国重慶と四川省成都, 日本北海道工業試験場において, 粉炭(70~85%)とバイオマスなどの植物繊維質(15~30%)の混合物を原料として, その混合物に硫黄固定剤として消石灰($\text{Ca/S}=2$)を添加して 3~5 トンで加圧したロール型プレスで連続的に圧縮成型してアーモンド型($\phi 22 \times 35$ mm, ca. 8 g)或いはピロー型($\phi 40 \times 45$ mm, ca. 30 g)のバイオブリケットを実験的に製造した。さらに, 軸圧試験器(丸東製作所製)を用い, 直径 10 mm の鋼球で圧縮してバイオブリケットを破壊するまでの耐圧強度を求めた。

測定した石炭試料の水分, 灰分, 揮発分, 硫黄分などの基礎分析結果を **Table 1** に示した。Chendu coal 1 を除いて, いずれの石炭にも, 硫黄分, 灰分などの大気汚染原因物質の含有率がかなり高い。そして, 硫黄分の多くは燃焼性硫黄であり, 燃焼による SO_2 として排出される。これらの分析結果より, 中国西南部の成都および重慶では大気汚染物質の拡散に不利な地理的条件と気象条件に加えて高硫黄分, 高灰分の石炭を排出抑制対策が不備なまま使用しているため, 重度大気汚染が引き起こされていることが再確認された。

Table 1. Compositions of coal used in production of bio-briquette (%)(dry basis).

Coal sample	Ash	Volatile matter	Fixed carbon	Sulfur		
				Combustible	Incombustible	Total
Chendu raw coal 1 ^{a)}	23.0	8.7	66.5	0.40	0.11	0.51
Chendu raw coal 2 ^{a)}	29.2	15.9	54.9	2.03	0.67	2.70
Chendu raw coal 3 ^{a)}	28.6	11.9	59.5	2.64	0.31	2.95
Chongqing raw coal 1 ^{a)}	29.8	12.7	57.5	2.47	0.26	2.73
Chongqing refined coal 2 ^{b)}	16.0	19.7	64.3	1.11	0.11	1.22
Chongqing raw coal 3 ^{b)}	38.6	20.9	40.5	2.16	0.37	2.53

^{a)} Anthracite coal; ^{b)} Bituminite coal.

Table 2 より、バイオマスの揮発分と灰分はそれぞれ 65.5~85.9%と 1.7~25.5%の範囲にあり、80%以上の高揮発分かつ 6.0%以下の低灰分のバイオマスはオガクズ、高粱の藁、食品製造廃棄物(高粱酒粕、バガス粕、豆腐粕及びビール粕)であった。低残存灰分量及び高揮発分という観点から考えた場合、食品製造廃棄物はバイオブリケットの副原料として利用可能と推定される。石炭やバイオマスなどの固体燃料の燃焼初期に分解燃焼が先行するので、それが酸化雰囲気中で可燃性の熱分解生成ガス(揮発分)を生じ、この生成物が着火源により着火する。着火温度は一般にその揮発分が多いほど低い。バイオマスと石炭の混合物であるバイオブリケットの燃焼の場合、石炭は着火温度以下の温度でも着火に至らない程度の熱分解生成物を発生している。これに着火温度の低いバイオマスが配合されていると、石炭よりずっと低い温度から熱分解生成物を発生し、バイオブリケットの着火温度は単純の石炭よりかなり低く、また、バイオマスの添加量とともに着火温度は低下していた¹¹⁾。従って、バイオマスを副原料として石炭に添加してバイオブリケットを製造する場合、高揮発分のバイオマスはバイオブリケットの着火性を高めると考えられる。

Table 2. Emission of the air pollutants from biomass combustion and basic analysis of biomass (dry basis).

Biomass	Emission (mg/kg-biomass)		Combustible sulfur ^{a)}	Ash	Volatile matter	Fixed carbon
	HCl	SO ₂				
Sorghum wine sake lees	136	91	0.005	4.3	82.5	13.2
Baggass dregs	150	228	0.011	2.8	84.6	12.6
Tofu dregs	153	1208	0.060	4.4	83.1	12.5
Beer sake lees	354	1764	0.088	5.5	81.6	12.9
Sawdust	80	114	0.006	1.7	83.9	14.4
Rice straw	912	220	0.011	17.0	69.0	14.0
Wheat straw	406	386	0.019	8.2	85.9	5.9
Maize stalk	203	599	0.030	12.5	79.9	7.6
Sorghum stalk	799	789	0.039	4.2	82.6	13.2
Wilds grass	35	52	0.003	21.7	67.7	10.6

^{a)} Combustible S was defined as sulfur emitted from biomass combustion.

一方、1kg 当たりバイオマス燃焼からの HCl と SO₂ の排出量は少なく、それぞれ 35~912 と 52~1764 mg の範囲であった。また、バイオブリケット化を硫酸型酸性雨汚染防止対策の一つと考えた場合の副原料としてのバイオマスの最も重要な特性である燃焼性硫黄含有率を見ると、農作物の廃棄物と比べ、植物性バイオマスと食品製造廃棄物中の燃焼性硫黄含有率も一般に少なく、オガクズが一番低く、ビール粕が一番高かった。ビールの製造過程で、硫黄含有酵素を添加し

ていることがビール粕燃焼からのやや高い SO₂ 排出の原因と考えられる。食品製造廃棄物燃焼からの大気汚染物質排出量は多くないため、廃棄物の有効利用及び環境への負荷低減を考えた場合、食品製造廃棄物のバイオブリケットのバインダーとしての利用可能性は高いと推定される。なお、食品製造廃棄物は動物の飼料として使われているため、農作物廃棄物をバイオマスとするバイオブリケット製造の方が副原料であるバイオマスを得やすいと考えられる。

石炭にバイオマスを添加してバイオブリケットを製造する場合、バイオマスはバインダー効果を示し、石炭へのバイオマス添加量の増加と共に耐圧強度は増加し、バイオマス添加量が15~25%で十分な耐圧強度を持っている。バインダー作用はその中に含まれるリグニンとヘミセルロースの軟化によって石炭粉が接着した結果と考えられる⁷⁾。Table 3に示したバイオマスのリグニン含有量は12.1~33.3%であった。農作物廃棄物と比べて、豆腐粕及びビール粕のリグニン含有量は著しく低かった。

Table 3. Lignin content of the biomasses (%) (dry basis).

Biomass	Wheat straw	Sorghum stalk	Maize stalk	Sorghum wine sake lees	Rice straw
Lignin content	33.3	30.4	28.8	25.7	24.4

Biomass	Sawdust	Baggass dregs	Wild grass	Beer sake lees	Tofu dregs
Lignin content	22.4	21.7	21.0	15.7	12.1

石炭にバイオマスを添加してバイオブリケットを製造する場合、バイオマスはバインダー効果を示し、バイオマス添加量が15~25%で通常のハンドリングに耐え得る強度を持っているが、その成型特性は主原料である石炭の石炭化度、炭質等、及び副原料であるバイオマスの種類、添加量によって影響を受ける⁷⁾。そのため、予め原料配合による成型特性を知る必要があるが、その手立としてダブルレット試験が有効であると考えられる。試作したダブルレット及びバイオブリケットの耐圧強度の測定結果からバイオブリケットの成型特性は以下のようにまとめられる。

1) 石炭とバイオマスの比を 3:1 でオガクズ(25%)を添加した場合、石炭種によって、バイオブリケットの耐圧強度は異なり、選炭の方が原炭よりある程度高かった。また、北海道工業試験場において試作したものに比べ、現地で生産したバイオブリケットの方が耐圧強度は低かったが、いずれのダブルレット及びバイオブリケットも 40 kg 以上の耐圧強度を持っていた。よって、25% のバイオマスを添加すれば、十分な強度のあるバイオブリケットを生産することが可能である。

2) Fig. 3 によると、バイオブリケットダブルレットの耐圧強度はリグニン含有量に関係し、バガスを除いてバイオマスリグニン含有量の増加と共に耐圧強度は上昇することがわかった。ここでは、バガス添加のバイオブリケットダブルレットはかなり耐圧強度を持っていることは、バガス中にはリグニンとヘミセルロース以外に糖分も含まれているためと推定

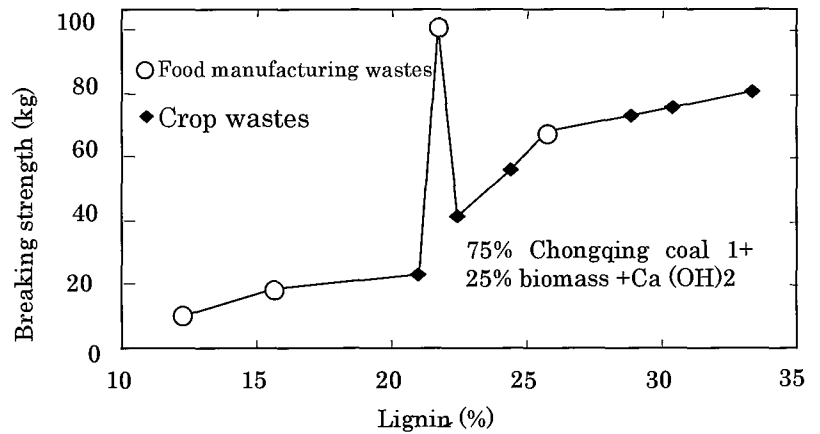


Fig. 3. Relationship between the breaking strength of bio-briquette and the lignin content of biomass.

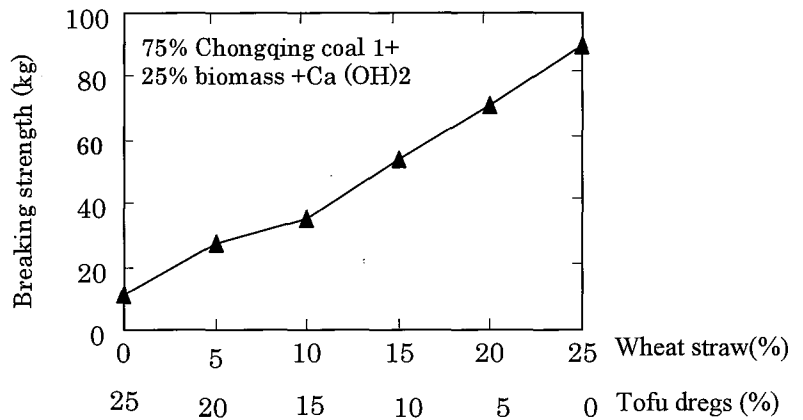


Fig. 4. Relationship between breaking strength of bio-briquette and mixed biomasses.

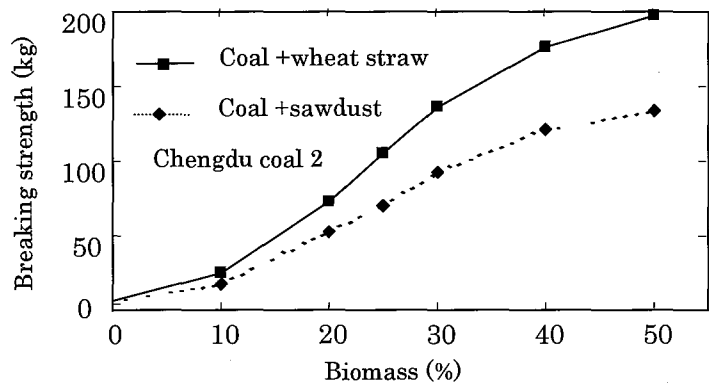


Fig. 5. Relationship between the breaking strength of bio-briquette and addition of biomass.

される。故に、本実験で用いた 10 種類バイオマスの中、バガスは最も良好的なバインダー効果を示し、かつその燃焼からの大気汚染物質も多くないため、最適的な副原料であると考えられる。

3) また、低リグニン含有量の食品製造廃棄物と農作物廃棄物との混合物をバイオマスとすれば、食品製造廃棄物をバインダーとして利用できると考えられる(Fig. 4)。

一般に石炭へのバイオマス添加量の増加と共に耐圧強度は増加した(Fig. 5)。重慶産石炭にバイオマス(麦藁及びオガクズとも) 20%を添加したバイブリケットの耐圧強度は50 kg以上に達していた。

Table 4 に示した原炭の燃焼に比べ、バイブリケット燃焼からのHCl, SO₂ とダストの排出量は著しく低減され、本研究の燃焼条件下でそれぞれの低減率は26~61%, 82~88%と55~83%の範囲であった。また、有煙炭では、ダストの低減効果は無煙炭より顕著であった。なお、HClの固定率はあまり高くなかった原因として、バイオマスの燃焼は石炭より多くHClを排出し、かつ塩化物は高温で分解しやすいためと考えられる。石炭のバイブリケット化により燃焼排出ガス中のSO₂などの汚染物質が効果的に抑制されるので、バイブリケット化は硫酸型酸性雨汚染防止対策の一つとして有効であると期待できる。

Table 5. Emission of the air pollutants from coal and their bio-briquette combustion, and reduction efficiency of pollutants by bio-briquetting (dry basis).

Sample	Emission (mg/g-coal)			Combustible S%	Reduction efficiency (%)		
	HCl	SO ₂	Dust		Dust	HCl	SO ₂
Chendu raw coal 1 ^{a)}	0.05	8.01	0.69	0.40			
B.B ^{c)} (coal+sawdust)	0.04	1.02	0.31	0.05	55	30	83
Chengdu raw coal 2 ^{a)}	0.20	40.62	2.37	2.03			
B.B ^{c)} (coal+sawdust)	0.10	4.16	0.90	0.21	62	35	85
Chengdu raw coal 3 ^{a)}	0.15	52.83	2.82	2.64			
B.B ^{c)} (coal+sawdust)	0.06	6.65	1.02	0.33	64	49	82
Chongqing raw coal 1 ^{a)}	0.39	49.49	2.25	2.47			
B.B ^{c)} (coal+sawdust)	0.11	5.48	0.79	0.27	65	61	84
Chongqing refined coal 2 ^{b)}	0.12	22.20	8.93	1.11			
B.B ^{c)} (coal+sawdust)	0.12	2.06	2.18	0.10	76	54	87
B.B ^{c)} (coal+rice bran)	0.28	1.93	1.60	0.10	82	26	88
B.B ^{c)} (coal+maize stalk)	0.30	2.67	1.59	0.13	82	31	83
B.B ^{c)} (coal+tofu dregs)	0.14	2.99	1.51	0.15	83	50	82

^{a)} Anthracite coal; ^{b)} Bituminite coal, ^{c)} Bio-briquettes (B. B.) were produced from 75 wt% of raw coal and 25 wt% of biomass by the addition of sulfur-fixation agent (Ca(OH)₂)(Ca/S=2.0)

石炭にバイオマスを添加したバイオブリケットの耐圧強度は石炭種類、バイオマスの添加量、バイオマス中のリグニン含有量によって異なるが、バイオマス添加量の増加と共に耐圧強度は増加し、バイオマスリグニン含有量の増加と共に耐圧強度は上昇することが確認された。食品製造廃棄物以外のバイオマスを25%以上混合したいずれのダブレット及びバイオブリケットも40 kg以上の圧力に耐え得るので、十分な強度のあるバイオブリケットを生産することが可能である。ここで用いた10種のバイオマスの中でバガスは、そのブリケットの耐圧強度並びに汚染物質排出量からバインダーとして最適的なバイオマスであると考えられる。

本研究の燃焼条件下でバイオブリケット燃焼によるHCl, SO₂とダスト排出への低減率は26~61%, 82~88%と55~83%の範囲であった。また、いずれの原炭およびバイオブリケット燃焼エアロゾルも酸性であり、すべての酸緩衝能力 ΔC_b は負の値であったが、バイオブリケット化は酸性度及び大気エアロゾルへの寄与を低減させると推定された。従って、バイオブリケット化は硫酸型酸性雨汚染防止対策の一つとして有効であると期待できる。

- 1) 坂本和彦：中国の酸性雨，環境と測定技術，20, 51~56 (1993).
- 2) 高世東：中国重慶市における酸性沈着及びその原因物質の排出抑制に関する研究，博士論文（埼玉大学）(1998.3).
- 3) 白俊華，彭中貴：重慶市における霧水による人体の肺機能への影響，四川医学，7, 86~88 (1986) (中国語).
- 4) 全浩，鄭有斌：重慶市における大気汚染による生態系への影響，中日大気汚染防止対策シンポジウム—重慶 92, pp. 257~264 (1992) (中国語).
- 5) 前田泰昭，辻野善夫：大気汚染の建造物と材料への影響，中国環境ハントブック(定方正毅ら編)，pp. 82~84, サイエンスフォーラム(1997).
- 6) 単運峰，戸塚積：大気汚染地域の森林被害，中国環境ハントブック(定方正毅ら編)，pp. 132~139, サイエンスフォーラム(1997).
- 7) 丸山敏彦：バイオブリケットと国際技術協力．日本エネルギー学会誌，74, 70~77 (1995).
- 8) 高世東，坂本和彦，王軍，董旭輝，畠山史郎，全浩，松本光弘：石炭燃焼エアロゾルの化学特性及びその酸性雨への関与，第15回エアロゾル科学・技術研究討論会論文要旨集，pp. 281~283 (1998).
- 9) 高世東，坂本和彦，畠山史郎：東アジアの酸性雨原因物質排出

制御の手法の開発と環境への影響評価に関する共同研究：低灰分のバイオブリケット製造に適したバイオマス・バインダーの選定, Global Environment Fund, Eco-Frontier Fellowship in 1997, pp. 225~235 (1997).

10) 高世東, 董旭輝, 王軍, 磯部友護, 石谷治, 坂本和彦, 王瑋, 王青躍: 石炭—バイオマス成型炭利用による地域完結型総合環境保全対策, 第15回エアロゾル科学・技術研究討論会論文要旨集, pp. 180~182 (1998).

11) 森本茂樹, 竹道覚, 石山栄三, 藤原達郎, 高橋徹, 丸山敏彦: 混合固体燃料の燃焼特性—着火温度, ばい煙量及び分解燃焼残炭—, 北海道立工業試験場報告, No. 283, p. 295~302 (1984).

12) 熊毅, 李慶達: 中国土壤, 科学出版社, pp. 430~609, 1987 (中国語).

13) L. O. Hedin and G. E. Likens (佐竹研一訳): 粉塵の減少が酸性雨を悪化させる? 日経サイエンス, 3, 96~102 (1997).

[研究成果の発表状況]

(1) 口頭発表

- ① 高世東: 中国重慶市の酸性雨の現状, 第 8 回酸性雨問題研究会シンポジウム論文集, pp. 7~12 (1997).高世東, 坂本和彦, 王王韋, 陳思龍, 趙大為: 中国重慶における大気エアロゾルについて, 第 14 回エアロゾル科学・技術研究討論会, pp. 21~22 (1997).
- ② 高世東, 坂本 和彦, 王王韋, 村野健太郎: 中国重慶市の酸性雨原因物質制御のためのバイオブリケット用バイオマスに関する調査・研究, 第 38 回大気環境学会年会公演要旨集, p. 316 (1997).
- ③ 坂本和彦, 王王韋, 高世東, 王軍: 石炭のバイオブリケット化による SO₂ とフッ化物の排出制御, 第 38 回大気環境学会年会講演要旨集, p. 319 (1997).
- ④ 高世東, 董旭輝, 王軍, 磯部友護, 石谷治, 坂本和彦, 王王韋, 王青躍: 石炭一バイオマス成型炭利用による地域完結型総合環境保全対策, 第 15 回エアロゾル科学・技術研究討論会論文要旨集, pp. 180~182 (1998).
- ⑤ 高世東, 坂本和彦, 王軍, 董旭輝, 畠山史郎, 全浩, 松本光弘: 石炭燃焼エアロゾルの化学特性及びその酸性雨への関与, 第 15 回エアロゾル科学・技術研究討論会論文要旨集, pp. 281~283 (1998).
- ⑥ 高世東, 坂本和彦, 董旭輝, 王軍, 畠山史郎: 重慶市の酸性雨原因物質制御のための低灰分のバイオブリケット製造に適したバイオマスの選定, 第 39 回大気環境学会年会講演要旨集, pp. 369 (1998).
- ⑦ J. Wang, K. Sakamoto, X. Dong, S. Gao, K. Yokosima, O. Ishitani: Study on control of Acid Rain of Chongqing Area: Fixation of Sulfur Dioxide, Proceeding of the 39th Annual meeting of the Japan Society for Atmospheric Environment, pp.367 (1998).
- ⑧ 高世東: 中国重慶市における大気汚染及び酸性沈着の状況, 第 10 回“酸性雨”基礎環境講座(つくば) (1998).
- ⑨ S. Gao, K. Sakamoto, X. Dong, S. Hatakeyama and Q. Wang (1999): Chemical components of coal and bio-briquette combustion aerosols and its relationship to acid rain. First Asia aerosol conference abstracts, pp.328~329 (Nagoya, Japan).

- ⑩ S. Gao, K. Sakamoto, X. Dong, W. Wang, S. Hatakeyama and Q. Wang (1999): Studies on emission control for precursors causing acid rain: Studies on coal-biomass briquetting in Chongqing, China. Proceeding-CD of the 4th international symposium on coal combustion, Session 2-6 (4p.) (Beijing, China).
- ⑪ 董旭輝, 坂本和彦, 高世東, 畠山史郎, 内山巖雄: 重慶地域における室内外の環境汚染物質の測定と暴露量の推定, 第40回大気環境学会年会講演要旨集, pp.573 (1999).