

アンモニアの発生を低減させたコンクリートとその評価技術

Development of Low-Ammonia-Emission Concrete and Evaluation Techniques

依 田 和 久 小野寺 利 之 澤 田 瑞 恵

要 約

現場への適用を目指したアンモニア低減コンクリートとして、前々報¹⁾、前報²⁾の知見を反映させた材料・調合による実験的アプローチを行い、特殊骨材と活性炭を組み合わせたもの、特殊骨材単味、活性炭単味の3種類のコンクリートについて定量的効果を確認した。また、コンクリートの模擬部材から発生するアンモニア量を調べ、室内濃度との関係を明らかにするとともに、コンクリートの含水率からアンモニアの室内濃度を推定する手法を提案した。

目 次

- I. はじめに
- II. 実験計画
- III. 実験結果及び考察
- IV. まとめ

I. はじめに

コンクリートから発生するアンモニアは、美術館・博物館においては収蔵品である絵画を変色させたり、電子デバイス施設においては製品歩留まりを低下させたりする原因物質として指摘されている^{3), 4)}。前々報、前報においてアンモニア低減対策として、コンクリートの材料と調合によるアプローチに関する実験室実験を行い、材料として、特殊骨材や活性炭について一定の効果があることを見出した。これらの材料を用いたコンクリートを現場に適用しようとする場合、最終的に求められるのはアンモニアの室内濃度がスペックを満足することである。そのためには、実大若しくは実大を模擬した部材からの発生するアンモニア量と室内濃度の関係を明らかにすることが重要である。さらに、前報で明らかにしたようにアンモニアの発生量と相関のある表面含水率のように、比較的測定が容易なものでアンモニアの室内濃度を推定できれば、室内濃度の管理が容易となり、本コンクリートの普及・促進に寄与することが期待できる。

II. 実験計画

1. 目 的

本実験の目的は、次のとおりである。現場への適用を目指したアンモニア低減コンクリートとして、前報の知見を反映させた材料・調合による実験的アプローチを行い、石灰石をベースにした特殊骨材と活性炭を組み合わせたもの、特殊骨材単味、活性炭単味の3種類のコンクリートについて定量的効果を確認する。また、コンクリートの模擬部材から発生するアンモニア量を調べ、室内濃度との関

係を明らかにするとともに、コンクリートの含水率からアンモニアの室内濃度を推定する手法を提案する。

2. 実験概要

コンクリートの種類を Table 1 に示す。比較用の普通コンクリート（以降、NP という）は粗骨材として硬質砂岩碎石を、細骨材として川砂を用いている。これに対しアンモニアの発生の低減を意図したコンクリート（以下、アンモニア低減コンクリートという）は次の3種類とした。NP に活性炭を外割りで添加したもの（以降、NK という）、NP に対し、粗骨材及び細骨材ともに天然骨材をベースにした特殊骨材に置換したもの（以降、CP という）、CP に対し、さらに活性炭を外割りで添加したもの（以降、CK という）である。これらのコンクリートに対し、フレッシュ時及び強度性状を把握し、アンモニア発生量及び含水率を調べた。

3. 使用材料・調合

使用材料を Table 2 に、コンクリートの調合を Table 3 に示す。目標値はスランプ 18 ± 2.5 cm, 空気量 4.5 ± 1.5 %, コンクリート温度 20 ± 2 °C とし、試し練りにより調合を決定した。

4. 練り混ぜ及び供試体成型

練り混ぜ方法は次のとおりとした。容量 100L の強制二軸ミキサを用い練り混ぜ量 40~100L として、モルタルを 30 秒混練し、掻き落し後粗骨材を投入し 60 秒練り混ぜて行った。また、活性炭は粗骨材投入から 30 秒後に投入した。

Table 1 コンクリートの種類
(Type of Concrete)

記号	コンクリート	粗骨材	細骨材	混和材
NP	普通（比較用）	碎石	川砂	－
NK				
CP	アンモニア低減	特殊骨材		－
CK				活性炭

キーワード：コンクリート、アンモニア、特殊骨材、活性炭、室内濃度、含水率、室内濃度推定手法

フレッシュ時のコンクリートの試験を実施し、その後供試体を作製した。供試体の作製はJIS A 1132を参考にして行った。供試体の形状については、圧縮強度用の供試体は $\phi 10 \times 20\text{cm}$ とし、アンモニアの発生量測定用の供試体は、 $10 \times 10 \times 10\text{cm}$ （アクリル製型枠使用）及び $60 \times 60 \times 20\text{cm}$ （木製型枠使用）とした。また、アンモニア発生量測定用の型枠はそれら表面付着物質の影響を除去するため、透明のビニールシートで内張りした。養生は、 20°C の封緘養生とした。圧縮強度の試験材齢は7・28・94日とした。

5. 試験項目及び方法

コンクリートの試験項目及び方法をTable 4に示す。アンモニア測定は次の3方法とした。

(a) キューブ法^{1, 2)}によるアンモニア発生量

$10 \times 10 \times 10\text{cm}$ の供試体レベルでの比較を行うための装置をFig.1に示す。 $20^\circ\text{C} \cdot 60\% \text{RH}$ の恒温恒湿室内で、 $10 \times 10 \times 10\text{cm}$ の供試体の封緘状態を解き直ちに10Lのデシケータに入れ、ガス吸収瓶中の超純水に流量400mL/minで24時間通気させ、濃縮捕集してアンモニア計測用の試料を採取した（以降、キューブ法という）。

(b) フォルメット法⁵⁾によるアンモニア発生量

実部材又は模擬部材の実発生量を把握するために考案した装置をFig.2に示す。 $20^\circ\text{C} \cdot 60\% \text{RH}$ の恒温恒湿室内で、 $60 \times 60 \times 20\text{cm}$ の供試体における $60 \times 60\text{cm}$ 面の中心部にフォルメットを設置し、キューブ法と同様にガス吸収瓶中の超純水に流量400mL/minで24時間通気させ、濃縮捕集してアンモニア計測用の試料を採取した（以降、フォルメット法という）。

Table 2 使用材料
(Properties of Materials)

種類	メーカー・産地等	物性等
普通セメント	S・T・U社均等混合	密度 $3.16\text{g}/\text{cm}^3$
川砂	静岡県小笠産	表乾密度 $2.62\text{g}/\text{cm}^3$ 、吸水率1.26%、粗粒率2.83
特殊骨材	-	表乾密度 $2.63\text{g}/\text{cm}^3$
砕石 ¹	奥多摩産	表乾密度 $2.65\text{g}/\text{cm}^3$ 、吸水率0.51%、粗粒率6.62
特殊骨材 ¹	-	表乾密度 $2.70\text{g}/\text{cm}^3$
AE減水剤	NNB製No.70	リグニンスルホン酸化合物とポリオール複合体
活性炭	K社製	ヤシガラ活性炭

*粗骨材の最大寸法は20mmとした

Table 4 試験項目及び方法
(Test Items and Methods)

分類	試験項目	試験方法
フレッシュ	スランプ	JIS A 1101
	空気量	JIS A 1128
	温度	棒状温度計
	性状	目視観察
	ブリーディング	JIS A 1123
強度	圧縮強度	JIS A 1108
	静弾性係数	JIS A 1149
アンモニア	アンモニアガス発生量	供試体 ¹ からアンモニア試料を液体捕集後、イオンクロマトグラフィーで分析
	表面含水率	高周波容量式水分計
	含水率	$10 \times 10 \times 10\text{cm}$ の供試体の質量が 105°C の環境で恒量になるまで実施

*供試体寸法は $10 \times 10 \times 10\text{cm}$ および $60 \times 60 \times 20\text{cm}$ とした

Table 3 コンクリートの調合
(Mix Proportions of Concrete)

記号	W/C (%)	細骨材率 (%)	単位量 ^{*1} (kg/m^3)				活性炭 ^{*2}
			水	セメント	細骨材	粗骨材	
NP	60	47.8	180	300	852	941	—
NK							9
CP					852	941	—
CK							9

*1AE減水剤の添加量はセメント100kgに対し、250mLとした

*2外割置換とした

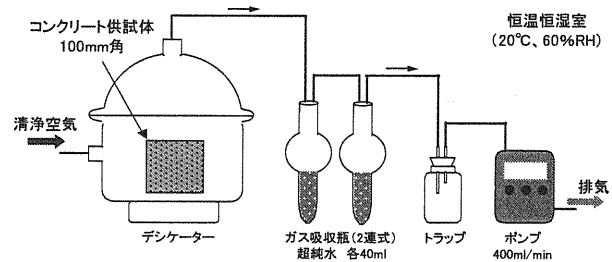


Fig.1 キューブ法によるアンモニアの測定装置
(Sampling Device of Ammonia by the CUBE Method)

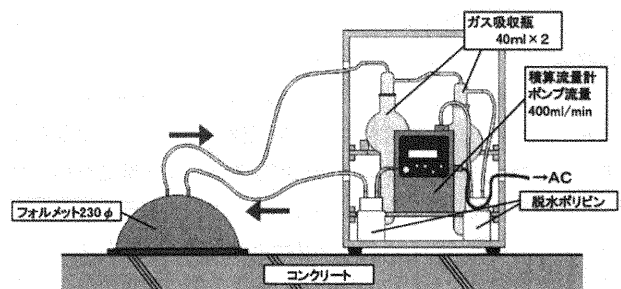


Fig.2 フォルメット法によるアンモニア測定装置
(Sampling Device of Ammonia by FORMET Method)

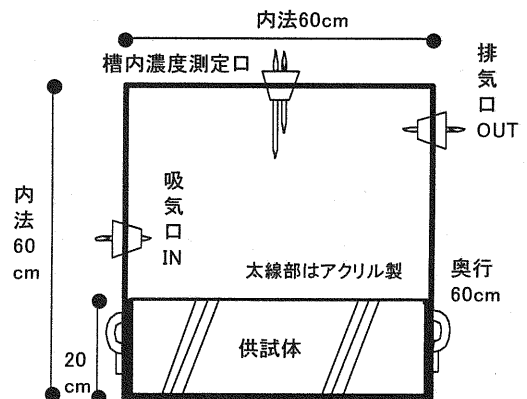


Fig.3 小型条件室のアンモニア濃度の測定装置
(Sampling Device of Ammonia on Laboratory Test Cell)

(c) 小型条件室のアンモニア濃度

小型条件室のアンモニア濃度の測定装置を Fig.3 に示す。60×60×20cm の供試体を床部材として想定して、これを覆う 60×60×40cm の空間となる小型条件室のアンモニア濃度を測定した。このときの、気積 $V(\text{m}^3)$ /アンモニア発生対象の総面積 $S(\text{m}^2)$ は 0.4 (0.144/0.36) とした。これは美術館の収蔵庫前室などに比較的狭い空間がみられ⁶⁾、2.5×2.5×2.5m 程度の空間を想定したものである。小型条件室は 20℃・60%RH の条件室に存置し、小型条件室の換気回数は 0.5 回/h とした。測定は、アンモニアの発生量が相対的に多く、室内濃度を把握しやすいと考えられる NP のみを行った。

採取した試料はいずれもイオンクロマトグラフィーで分析し、アンモニアの濃度を調べた。キューブ法及びフォルメット法についてはアンモニアの発生量を算出した。アンモニアの発生量は、材齢ではなく、封緘状態の供試体を開封してから期間と相関がある。アンモニアの発生量の計測は、材齢 4 日を開封直後 (0 日) とし、開封 1 日後、同 7 日後、同 28 日後の計 4 回の時点で実施した。

アンモニアの測定時に合わせて、供試体の表面含水率を高周波容量式のコンクリート・モルタル水分計により測定した。ただし、キューブ法は供試体をデシケータから随時取り出すことができないので、測定は試験開始前 (0 日) と終了後 (28 日) の 2 回のみとした。

試料が含水量を有する限り、内在しているアンモニアが気体となって発生する可能性がある。そこで質量による含水率 (以下、含水率という) を求め、表面含水率との関係を把握した。含水率は、気乾状態の 10×10×10cm の供試体を 105℃ で恒量になるまで加熱して、その際の質量減少量を絶乾状態の試料の質量で除して求めた。

III. 実験結果及び考察

1. フレッシュ時の性状

(1) 基礎的性状

フレッシュ時のコンクリートの試験結果を Table 5 に示す。NP, NK, CP, CK の 4 種類のコンクリートは全てスランブ、空気量、コンクリート温度の目標値の範囲を満足するものであった。また、コンクリートの性状は、活性炭を混入した NK がやや粗い状態であったが、ほかのものは良好であった。

(2) ブリーディング性状

コンクリートのブリーディング量を Fig.4 に示す。ブリーディング量は NP が最も多く 0.31cm³/cm² であり、この値は前報と同等であった。これに対し、NK が 0.25cm³/cm²、CP が 0.13 cm³/cm²、CK が 0.13 cm³/cm² となり、これらのブリーディング量は、比較用の普通コンクリート (NP) を 100% とした場合、43~83% と小さくなる傾向を示した。特に、特殊骨材を用いたコンクリートの場合、骨材に付着する石粉の保水性が、ブリーディング抑制に寄与したものと考えられる。

2. 強度性状

(1) 圧縮強度

コンクリートの圧縮強度を Fig.5 に示す。コンクリートの圧縮強度は、いずれも材齢 7 日から材齢 94 日にかけて増進傾向にある。材齢 94 日の圧縮強度は、NP が 35N/mm² であった。これに対し、NK が 41 N/mm²、CP が 40 N/mm²、CK が 39 N/mm² となり、これらの圧縮強度は、比較用の普通コンクリート (NP) に比べ 11~

Table 5 フレッシュ時のコンクリートの試験結果
(Properties of Fresh Concrete)

記号	スランブ (cm)	空気量 (%)	コンクリート温度 (°C)	性状
目標値	18±2.5	4.5±1.5	20±2	—
NP	20.0	4.9	19.0	良
NK	18.0	4.6	20.4	やや粗いが良
CP	20.0	4.2	18.8	良
CK	19.0	5.4	19.1	良

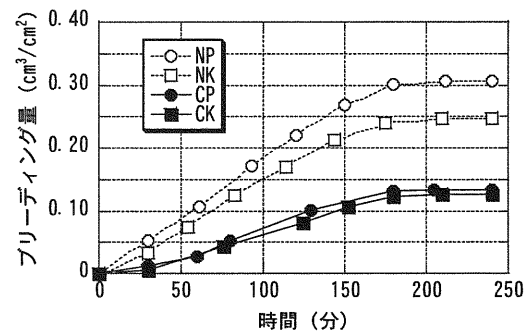


Fig.4 コンクリートのブリーディング量
(Amount of Bleeding Water from Concrete)

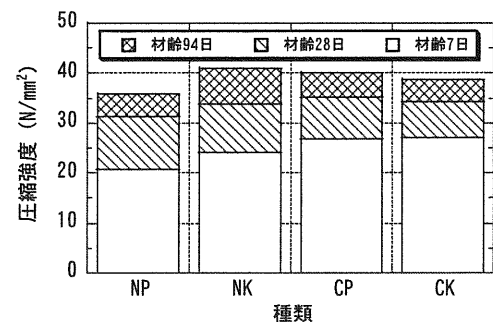


Fig.5 コンクリートの圧縮強度
(Compressive Strength of Concrete)

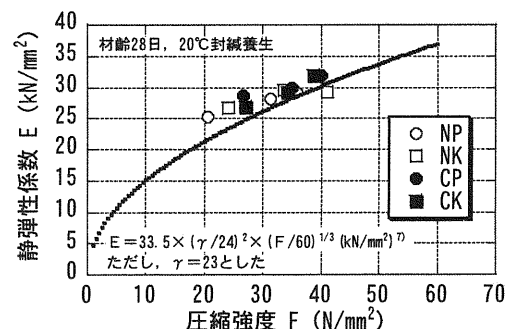


Fig.6 コンクリートの静弾性係数
(Static Modulus of Concrete)

17%大きくなる傾向を示した。

(2) 静弾性係数

コンクリートの静弾性係数を Fig.6 に示す。NK の 1 点を除き、鉄筋コンクリート構造計算規準に示されている式⁷⁾のやや上側にプロットされた。

3. アンモニアの発生量

(1) コンクリート種類別アンモニアの発生量

キューブ法によるアンモニア発生量の経時変化を Fig.7 に、同様にフォルメット法によるものを Fig.8 に示す。すべてのコンクリートともアンモニアの発生量は経過日数に伴い低減している。アンモニアの発生量は、NP>NK>CP>CK となり、アンモニア低減コンクリートはその効果がみられた。

供試体を開封してから 28 日までのアンモニア発生量を積算した総発生量を Fig.9 に示す。この数値からコンクリート種類別に定量的な比較を行うと、フォルメット法において、NP を 100%とした場合、NK が 33.6%、CP が 6.8%、CK が 1.4%であり、キューブ法において、NP を 100%とした場合、NK が 54.9%、CP が 4.6%、CK が 1.3%となる。NK の値が測定方法別でやや異なるが、大括りするため、測定方法別の値を平均してみると、NP を 100%とした場合、NK が 44.2%、CP が 5.7%、CK が 1.4%となる。このことからアンモニア低減効果は、特殊骨材と活性炭を組み合わせたコンクリートが最も大きく、特殊骨材単味、活性炭単味の順となった。

(2) 測定方法別アンモニアの発生量

Fig.7 及び Fig.8 を比べると、NP においてキューブ法に比べ、フォルメット法は、経過時間に伴う低減傾向が鈍い様相がみられる。

キューブ法及びフォルメット法におけるアンモニア発生量の比較を Fig.10 に示す。NP においてフォルメット法のアンモニア発生量はキューブ法のものに比べ大きく、回帰した場合その差は $20 \mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h}$ 程度となった。また、アンモニア低減コンクリートでは測定方法による影響は見られず、同等であった。

(3) アンモニアの室内濃度

アンモニアの室内濃度式算定式 (1)⁵⁾に基づき、小型条件室における室内濃度の算定を行った。十分な時間が経過し、室内濃度が定常状態となると仮定したとき (1) 式は、(2) 式のとおり表すことができ、ここではこの (2) 式を用いて室内濃度を算定した。

$$C = (\sum KS) \cdot [1 - \exp(-\beta T)] / V\beta + C_0 \cdots \cdots (1)$$

$$C = (\sum KS) / V\beta + C_0 \cdots \cdots (2)$$

ただし、C: アンモニアの室内濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

K: フォルメット法のアンモニアの発生量 ($\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h}$)

S: 対象部位面積 (m^2), ここでは 0.36 を代入

β : 換気回数 (回/h), ここでは 0.5 を代入

T: 時間 (h)

V: 気積 (m^3), ここでは 0.144 を代入

C_0 : 外気濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

(2) 式から算出したアンモニアの室内濃度の計算値と実測値を Fig.11 に示す。実測値は NP のみであるが、経過日数 1 日を除き、計算値と実測値はほぼ一致しており、アンモニアの発生量からアンモニアの室内濃度値が推定できるといえる。なお、アンモニアの発

生は経時に伴い減衰する傾向があるので、実測値のうち、経過日数 0 日に比べアンモニア濃度の高い 1 日の値は再検討の余地がある。

また、各コンクリート別アンモニアの室内濃度の計算値は、NP>NK>CP>CK の順であるが、その差は、経過 0 日で顕著であり、NP が $482 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であるのに対し、アンモニア低減コンクリートは、NK が $254 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、CP が $72.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、CK が $37.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ となった。特に、CK は、開封直後でも、美術館・博物館の室内濃度の基準値・推奨値として示されている許容値⁸⁾ $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ にかかなり近い結果となった。

(4) コンクリートの表面含水率

フォルメット法で用いた $60 \times 60 \times 20\text{cm}$ 供試体の表面含水率の経時変化を Fig.12 に示す。経過 0 日の表面含水率は、NP、CP、CK

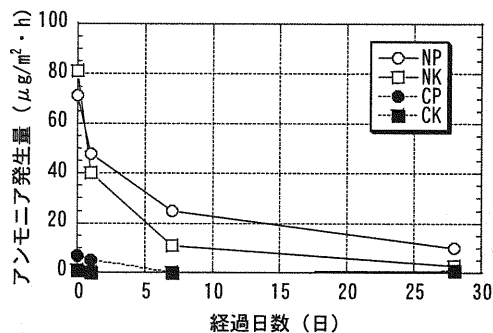


Fig.7 キューブ法によるアンモニア発生量
(Ammonia Emission Rate Measured with the Cube Method)

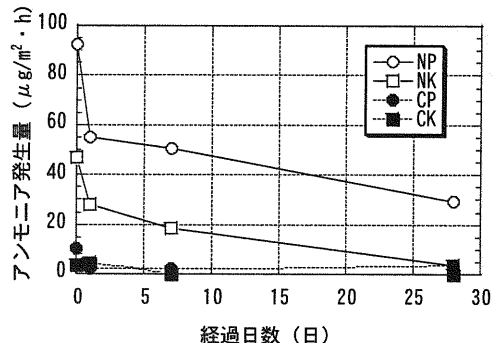


Fig.8 フォルメット法によるアンモニア発生量
(Ammonia Emission Rate Measured with the FORMET Method)

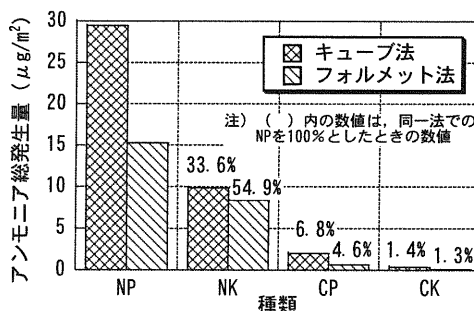


Fig.9 アンモニアの総発生量
(Total Amount of Ammonia Emission)

が11.3~12.0%であり、NKのみ7.5%であった。その後、含水率もアンモニア発生量と同様に全種類ともに減衰傾向を示し、経過日数28日では、全て3.6~4.7%と大差ない値となった。

本実験で用いた表面含水率の計測器の測定範囲は0~12%であり、気乾状態のコンクリートの含水率は10%程度以下⁹⁾と考えられることから、測定値が10%を超えるものについては検討対象外とした。

含水率と表面含水率の関係をFig.13に示す。この図から明らかに質量変化による含水率と、電気的に計測した表面含水率の間には相関がみられる。

コンクリートの含水率からアンモニアの発生量の経時変化を考えた場合、NPの含水率は経過日数28日で4.1%であるが、既往の文献¹⁰⁾から判断すると、表面含水率は微減を続け、大よそ平衡状態になるのに9ヵ月から1年を要している。普通コンクリートを使用し、少なくともこの期間において強制乾燥などの特別な措置を施さなかった場合、その空間におけるアンモニアの濃度は大きく低減することは期待し難いと考えられる。

(5) コンクリートの表面含水率によるアンモニア濃度の推定手法

前報でも述べたようにコンクリートの表面含水率とアンモニア発生量の間には、Fig.14に示すとおり相関がみられ、普通コンクリートの場合、下式(3)に示すとおり、実験回帰式を得ている。

$$C = 2.03 \cdot \text{EXP} (0.562 \cdot Q) \cdots \cdots (3)$$

ただし、C：アンモニア発生量 ($\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$)
Q：コンクリートの表面含水率 (%)
供試体は $10 \times 10 \times 10 \text{ cm}$

アンモニア濃度について、次の手順で計算した推定値と実測値の比較を、Table 6に示す。

- キューブ法の供試体の表面含水率 (%) を計測する
- (3) 式からこの表面含水率を用いて、キューブ法のアンモニア発生量を計算する。
- キューブ法によるアンモニア発生量を用いて、フォルメット法によるアンモニア発生量を計算する (NP の場合、Fig.10 で得た実験式 (4) を用いる)。

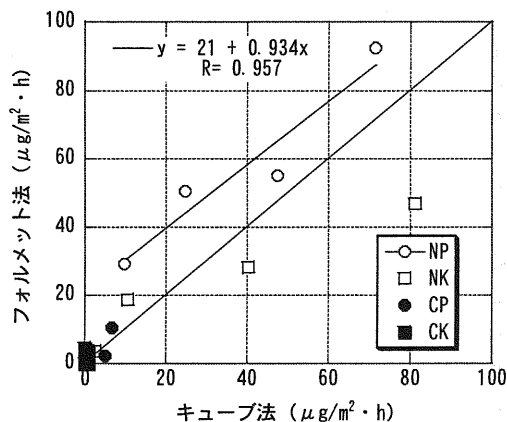


Fig.10 測定方法別アンモニアの発生量の比較
(Comparison of the Ammonia Emission Rate by Test Method)

$$FC = 0.934 \cdot CC + 21 \cdots \cdots (4)$$

ただし、FC：フォルメット法によるアンモニア発生量
CC：キューブ法によるアンモニア発生量
単位はいずれも ($\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$)

- (d) フォルメット法によるアンモニア発生量を用いて (2) 式によりアンモニア濃度を計算する。

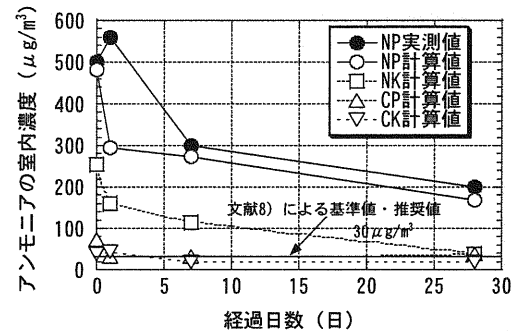


Fig.11 アンモニア濃度の実測値と計算値
(Measured and Predicted Ammonia Gas Concentration)

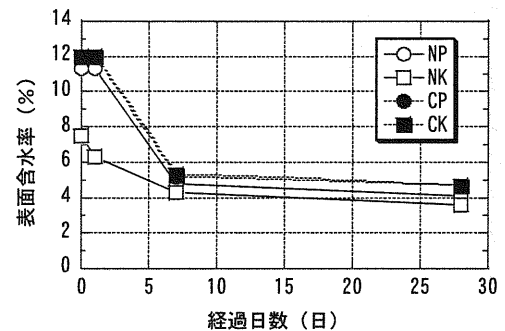


Fig.12 表面含水率の経時変化 ($60 \times 60 \times 20 \text{ cm}$ 供試体)
(Changes in Near-surface Moisture Content of Concrete)

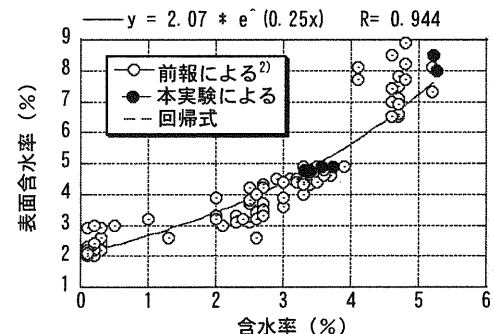


Fig.13 含水率と表面含水率の関係
(Relationship between Moisture Contents obtained by Microwave (Near-surface moisture content) and Gravimetric Method)

なお、経過日数 0 及び 1 日では、表面含水率の測定値が 11.3% となったが、参考のためにそのまま計算した。

Table 6 より、経過日数 7 及び 28 日で、実測値と推定値がほぼ一致した。このときの表面含水率は 4.1~4.8% と、5% 程度以下であった。これに対し、経過日数 0 及び 1 日では乖離が見られた。初期の 0~1 日で乖離がみられたのは、これらの時点の含水率は 11.3% と高く、(3) 式がコンクリートの含水率 8% を超えるような値をカバーできていないためと考えられる。

今回は、あくまでも試算であるが、アンモニア濃度を推定する手法として有効と考えられ、今後、ほかのコンクリートでもデータを蓄積し、かつ適用を目指している展示室・倉庫・工場など実際の建物空間の空気質濃度との対応を調べ、推定手法の信憑性を高める必要がある。

IV. まとめ

本実験の結果から得られた知見を以下に示す。

- ①アンモニア低減コンクリートはフレッシュ性状及び強度性状において実用上問題ないものであった。
- ②アンモニア低減コンクリートは、アンモニアの発生が低減する効果が見られた。その効果について供試体を封緘状態から開封してからの 28 日までの総発生量で比較すると、普通コンクリートを 100% とした場合、特殊骨材と活性炭を組み合わせたコンクリート CK が 1.4% と最も小さく、特殊骨材単味が 5.7%、活性炭単味が 44.2% の順であった。特に、CK は、開封直後でも、美術館・博物館の室内濃度許容値 $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ にかなり近い結果となった。
- ③コンクリートの表面含水率が 5% 以下の場合、表面含水率から算出したアンモニアの室内濃度の推定値と、実測値が一致した。このことからコンクリートの表面含水率からアンモニアの室内濃度の推定する手法の可能性を示した。

今後、開発したアンモニア低減コンクリートについて、現場への適用を推進していく予定である。

謝 辞

本実験を行うに当たり、住友大阪セメント、太平洋セメント、宇部三菱セメント、アサノコンクリート(品川工場)、クラレケミカル、ポゾリス物産の各社から試料の提供等のご協力を頂きました。紙面を借りて謝意を表します。

参考文献

- 1) 神本良一ほか；コンクリートから発生するアンモニアガスの低減に関する研究，鹿島技術研究所年報，Vol.50，(2002.9)，pp.81-86.
- 2) 依田和久ほか；コンクリートから発生するアンモニアの低減に関する実用化研究，鹿島技術研究所年報，Vol.52，(2004.9)，pp.145-150.

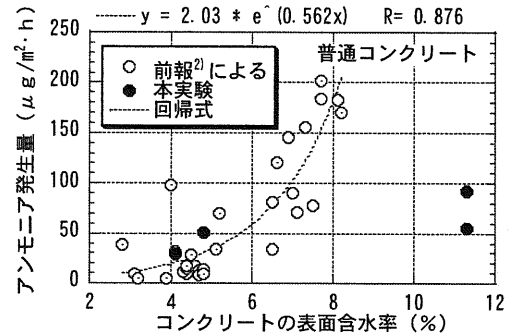


Fig.14 表面含水率とアンモニア発生量の関係
(Relationship between Water Content of Concrete and Ammonia Emission Rate)

Table 6 アンモニア濃度の実測値と推定値の比較
(Comparison of Measured and Predicted Ammonia Gas Concentrations)

項目	細目	開封したからの経過日数			
		0	1	7	28
実測した表面含水率(%)	—	11.3	11.3	4.8	4.1
推定したアンモニア発生量 ($\mu\text{g}/\text{h}\cdot\text{m}^2$)	キューブ法	1163	1163	30	20
	フォルメット法	1107	1107	49.1	40.0
アンモニア濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	推定値	5556	5556	266	220
	実測値	500	560	300	200

- 3) 黒坂五馬；コンクリートから発生するアンモニア発生機構の研究，古文化財の科学，Vol.37，(1993)，pp.46-53.
- 4) 小林一輔ほか；コンクリートにおけるアンモニアの発生機構に関する研究，日本建築学会構造系論文集，第 532 号，(2000.6)，pp.27-33.
- 5) 武廣絵里子ほか；集合住宅におけるホルムアルデヒドの部位別発生に関する研究（その 3）実住宅での発生量に関する検討，第 17 回空気清浄とコンタミネーションコントロール研究大会，(1999.4) pp.151-154.
- 6) 建築思潮研究社編；建築設計資料 49 美術館 2，建築資料研究社，(1994)，p.139.
- 7) 日本建築学会編；鉄筋コンクリート構造計算規準・同解説・許容応力度設計法，(1999)，p.39.
- 8) 佐野千絵；美術館・博物館の空気室の現状と望ましいレベル・対策，空気洗浄，第 38 巻，第 1 号，(2000.5)，pp.20-26.
- 9) 岡田清ほか；コンクリート工学ハンドブック，朝倉書店，p.217
- 10) 三浦徹也ほか；コンクリート構造物の乾燥特性に関する研究，鹿島技術研究所年報，Vol.37，(1989.10)，pp.37-44.