

# ガラスの流動点測定について

泉谷 徹郎・守屋 喜郎

On the Measurement of the Flow Point of Glass  
by Teturô IZUMITANI and Yosirô MORIYA

## ABSTRACT

The flow point,  $\eta=10^5$  poises, that is one of the reference points for the viscosity in the working temperature range of glass. It was measured with the apparatus proposed by H. R. Lillie. As this was the method that indicated the time required for the test glass fiber, about 0.6 mm in diameter, to flow down when it was locally heated under the specified condition, the relation between the observed time and the temperature at which viscosity was  $10^5$  poises had to be clarified. It was checked from the viscosity-temperature relation determined by using a counterbalanced sphere method. On the other hand, the phenomenon which the fiber flows down was considered to occur owing to the unbalance of the viscous flow and the surface tension, so the contact angle between the test sample (0.5 cm cubic) and the platinum plate was measured. The following results were obtained.

1. This method can be applied in determining the flow point of borate type glasses as well as silicate type glasses.
2. Examining the relation between the viscosity and the surface tension of the glasses near the viscosity of  $10^5$  poises, the temperature at which the sample flows down corresponds to the temperature at which the elongation due to the viscous flow is compensated by the contraction due to the surface tension and the viscosity under that state is about  $10^5$  poises.
3. The temperature at which the contact angle becomes maximum, in which state viscous flow and surface tension are balanced too, coincides with the temperature at which the viscosity is equal to  $10^5$  poises. Consequently the flow point is determined easily by the measurement of the contact angle between glass and platinum plate.

## 1. 緒言

粘性は、ガラス製造の全段階にわたって重要な意義を有するのみでなく、ガラス状態の構造を考察するにあたって無視することのできない性質である。そのために従来から多くの人々により、目的に応じてガラスの粘度は測定されてきた。<sup>1)</sup>ところがガラスの粘度測定は、高温で行うことのほかに、対象とする粘度範囲が、熔融状態における  $10^2 \sim 10^3$  ポアズから、徐冷温度域における  $10^{13} \sim 10^{14}$  ポアズ；さらに室温では  $10^{20}$  ポアズ<sup>2)</sup> というように、きわめて広範にわたるといふ理由から、全温度範囲にわたって正確に測定するという事は非常に困難であり、事実同一のガラスを対象としたと考えられる

場合でも、その測定値が測定者により 100% 程度の開きがあることもめずらしくない。

このようにガラスの粘度は、温度によってきわめて広い範囲に変化するので、用いられる測定法は対象とする粘度範囲に従って異なり、たとえば高温の融液状態では回転円筒法<sup>3)</sup>、落球法<sup>4)</sup>もしくは天秤を用いて、球あるいは棒を上昇または沈降させる方法<sup>5)</sup>が一般に行なわれ、これらの方法によって  $10^2 \sim 10^5$  ポアズの粘度を測定することができる。低温においては、いわゆる fiber elongation method を採用して転移領域の粘度を測定するのが通例である。<sup>6)</sup>しかし、ガラスを製造あるいは成型する上に直接関係ある  $10^3 \sim 10^8$  ポアズ附近の粘度は

あまり測定されていない。もちろん、回転円筒法の中の外筒-内筒法によれば、一定正確な値は期待されるが、この方法は、工程管理というような一般の実用という観点からは多少大げさすぎる。Novotny らのガラスの粒がシンターする時のその形状の変化を追及して、粘度を知ろうという試み<sup>7)</sup>とか、少し粘度は低くなるが、一定の速度で、ノズルからガラスを引き出して粘度を求めるといふ試み<sup>8)</sup>などがなされてはいるが、精度とか、測定条件の点で問題があるように思われる。

そこで全温度範囲にわたって、連続的に粘度を測定するといういき方のほかに、簡単な方法で特定のいくつかの点を測定して、Fulcher-Tammann の式  $\log \eta = A + \frac{B}{T - T_0}$  から全体を内挿しようという考え方もある。特定点としては、歪点 ( $10^{14.5}$  ポアズ) や徐冷点 ( $10^{13.4}$  ポアズ) のほかに、Littleton の軟化点 ( $10^{7.55}$  ポアズ)、Dietzel の沈降点 (Einsink punkt  $10^4$  ポアズ) および流動点 (Flow point  $10^5$  ポアズ) などがある。

この流動点測定法は、一定の直径の種々のケイ酸塩ガラスの試料を、この目的のために特に考案された流動点測定装置を用いて一定速度で急激に部分加熱を行った場合に、試料がとけて切れる時の粘度が  $10^5$  ポアズに相当することから Lillie によって提案された 粘度の特定点測定法であるが、その意味は必ずしも明らかでなかった。そこで、この測定法の持つ意味、特に  $10^5$  ポアズ附近における粘性と表面張力との関連と、また、この測定法が作業温度範囲の比較的狭いホウ酸塩ガラスについても適用できるかどうかを検討し、この測定法の根拠を明らかにする目的で以下の実験を行った。

実験は、1. 流動点測定装置を用いて、試料がとけて切れるまでの時間と試料の直径との関係。2. 球引上げ法により粘度を測定し、 $10^5$  ポアズを示す温度と上の時間との相関。3. その温度附近でのガラスと白金板との接触角を測定し、その最大値を示す温度と粘度が  $10^5$  ポアズを示す温度との関係 を追及した。

## 2. 実験および結果

### 2.1 流動点測定

#### (1) 装置

内部構造は、Fig. 1a に示すように i) 鉄共振型定電圧装置 ii) 加熱電流調整部 iii) 秒測周波数計算部 iv) 光電流増中部 v) 試料部 よりなる。ヒーターの部分は、Fig. 1b に別に示してある。

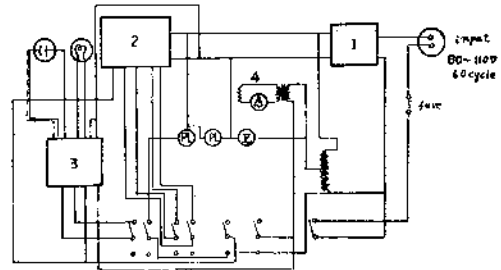


Fig. 1a Schematic diagram of the elements of the flow point apparatus:

- (1) voltage stabilizer,
- (2) frequency counter,
- (3) amplifier,
- (4) heater.

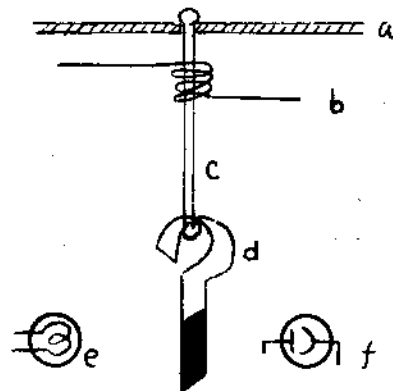


Fig. 1b Sketch of heater:

- (a) supporting plate,
- (b) platinum-rhodium heating coil,
- (c) sample,
- (d) plastic flag,
- (e) incandescent lamp.
- (f) photo-cell.

#### (2) 予備実験

Lillie によれば、一定のガラス試料が、一定条件で局部的に加熱されたとき、加熱された部分の表面張力がその部分より下の試料の重さに耐えきれなくなり流れ落ちるまでの時間は、ガラスにより一定であり、そのときの粘度は  $10^5$  ポアズに相当する。したがって、各ガラス試料について、加熱し始めてから流れ落ちるまでの時間を測定することにより、あらかじめ作成した、とけて切れ

るまでの時間と温度との関係曲線から流動点を知ることができる。そこでそのためには、前もって試料の長さや加熱方法を決定しておく必要がある。

1) ガラス試料の作成

とけて切れるということは、加熱によってガラスの粘度が急激に減少し、また、表面張力も減少するために、わずかの荷重の添加により、表面張力と自重との平衡がくずれる結果起るものであるから、有効荷重が常に一定であるためには、測定に供すべき試料は、本来は表面張力と自重とが釣り合う長さのものでなければならない。直径 0.5~0.8 mm の試料を測定装置に固定して加熱コイルによって部分加熱を行うと、温度の上昇に伴って Fig. 2 a のような伸縮が観察される。

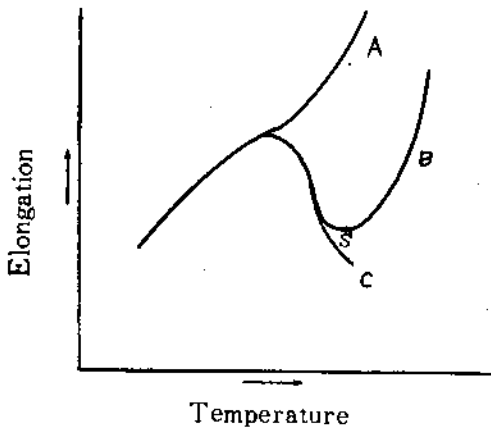


Fig. 2 a Simplified elongation behavior of glass of various length when it was locally heated.

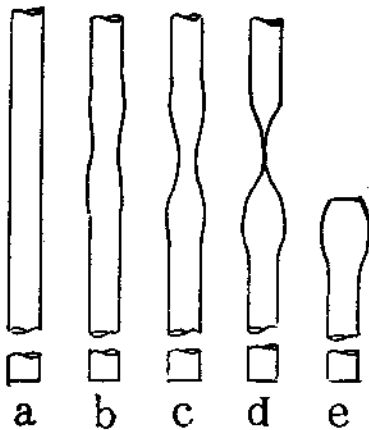


Fig. 2 b Simplified behavior of glass when it flows down.

Fig. 2 a において、A は加熱部の表面張力よりそれ以下の重量が大きい場合で、収縮はみられず、連続的な伸びの後とけて切れる。B は最初粘性流動と膨脹による伸びが観察されるが、温度の上昇に伴い表面張力が有効に作用し始めるために釣合いの状態になり、さらに温度が上昇するとかえって収縮が起る。さらに温度が上ると、表面張力は減少し、また、粘度も減少するので S 点で再び平衡に達し、その後は急激に伸びて切れる。C は自重の小さい試料の場合で、一定の伸びの後、表面張力により連続的に収縮したままの状態になってしまう。なお、切れるまでには、Fig. 2b のような形状の変化を経過する。

そこで、B のような経過を示す試料について S 点での平衡状態を考えると次の関係式が成立する。

$$s = \frac{2 mg}{\pi d} \dots\dots\dots (1)$$

$$\text{また } m = \frac{\pi d^2 l \rho}{4} \dots\dots\dots (2)$$

$$\text{ゆえに } s = \frac{g}{2} \rho \cdot d \cdot l \dots\dots\dots (3)$$

ただし  $s$  はその温度における表面張力 [dyne/cm],  $d$  は試料の直径 [cm],  $l$  は加熱部以下の試料の長さ [cm],  $\rho$  は密度 [gr/cm<sup>3</sup>],  $m$  は加熱部以下の質量 [gr],  $g$  は重力の加速度 [cm/sec<sup>2</sup>] である。ある直径  $d$  の釣り合うような試料について、平衡後  $m$  を測れば (1) 式より  $s$  がわかり、またその試料については  $l$  もわかるので (2) 式から  $\rho$  が求められる。 $s, \rho$  がわかると、(3) 式より任意の直径における長さ  $l$  が  $d$  の関数として求められる。

このようにして、たとえば F 2 タイプのガラスについて、釣り合うような試料の直径、長さおよび質量の関係を求めると、Table 1 のようになる。

Table 1 Relation between  $d, l$  and  $m$  to balance

Sample F 2					
$d$ (cm)	0.0644	0.0664	0.0575	0.0779	0.0755
$l$ (cm)	1.88	1.82	2.10	1.55	1.60
$m$ (gr)	0.0230	0.0236	0.0205	0.0274	0.0266

これらの値をもとにして、上述の方法によって、 $s = 221$  [dyne/cm],  $\rho = 3.73$  [gr/cm<sup>3</sup>],  $l = 0.121 \times \frac{1}{d}$  [cm] が得られる。同様にして求められた各ガラスの

表面張力, 密度および長さの関係を Table 2 に示す。  
この  $l$  に相当する長さの試料が測定に供せられた。

Table 2 Relation between  $s$ ,  $\rho$  and  $l$

Sample	$s$ [dyne/cm]	$\rho$ [gr/cm <sup>3</sup> ]	$l$ [cm]
F 2	221	3.73	0.121/d
BK 7	263	2.47	0.127/d
SK 4	315	3.75	0.171/d
BaF 10	302	3.84	0.160/d
BCL 7	259	4.47	0.118/d
BCL 8	260	4.37	0.121/d
BCL 151	285	4.91	0.118/d
L 102	222	4.91	0.092/d

ii) 加熱方法

流動点の測定は, 10<sup>5</sup> ポアズの粘度を与える温度を直接に測定するかわりに, その尺度として, 試料を加熱し始めてから流れ落ちるまでの時間を測定するのであるから, 加熱コイルは, ガラスがその温度で直ちに伸び, 瞬間的に流れ落ちるに十分な上昇速度をもって急激に, しかも一定速度で温度上昇させねばならない。そのため, コイルに加える電圧は厳密に 40v に保った。これでコイルは約 5 秒間で 1100°C まで上昇し, 最高温度は 1300°C となる。

(3) 測定

(2)-1) で決定された長さの試料 (直径 0.5~0.8 mm) の一方の先端を玉状にし, Fig. 1b に示すように支持台より加熱コイルを通して懸垂させ, 下端も玉状にして光源から出た光が光電管に入るのを遮蔽するために, 重さ 0.079 gr のフラグを吊す。40 v の電圧でコイルに通電と同時に周波数積算計が動作し, ガラスがとけて切れると, 光束を遮蔽していたフラグが下に落ち, 光電流が流れて自動的に積算計が停止し, 加熱し始めてから試料が切れるまでの周波数, したがって時間を記録する。

(4) 測定結果

とけて切れるまでの時間は, 各ガラス試料によって異なり, また同一のガラスにおいても直径により直線的に変化する。各ガラス試料について直径と時間との関係を Fig. 3 に示す。

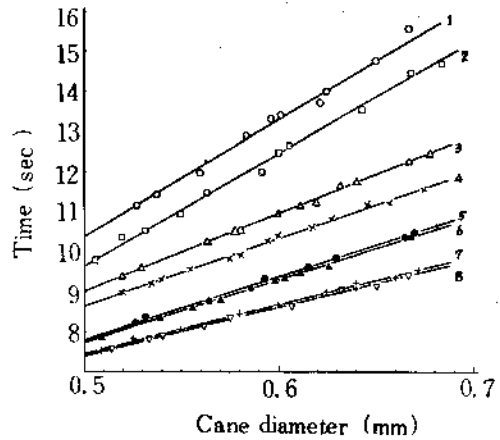


Fig. 3 Relation between cane diameter and time required for the sample to flow down; (1) SK 4 (2) BK 7 (3) BaF 10 (4) L 102 (5) BCL 7 (6) F 2 (7) BCL 8 (8) BCL 151.

Fig. 3 に示すように, 切れるまでに要する時間は試料の直径に依存するので, 各試料については一定の径の値をもって比較するためには一定の径の値をもって比較すると Table 3 の結果が得られた。

Table 3 The time required for the 0.6 mm in diameter sample to flow down.

Sample	time (sec)	Sample	time (sec)
F 2	9.30	BCL 7	9.38
BK 7	12.47	BCL 8	8.67
SK 4	13.31	BCL 151	8.62
BaF 10	10.97	L 102	10.32

これらの時間が, 10<sup>5</sup> ポアズの粘度を与える温度とどのような対応を示すかを検討するために, 次に球引上げ法で粘度を測定し, 10<sup>5</sup> ポアズに相当する温度を求めた。

2.2 球引上げ法による粘度測定

(1) 測定理論

無限に広い溶液中を小さい球が自由落下する場合の液の粘度と落下速度との関係は, ストークスの法則により (4) 式で表わされる。

$$\eta = \frac{2}{9} \text{gr}^2 \frac{(\rho_s - \rho_l)}{v} \dots \dots \dots (4)$$

ただし  $\eta$  は液の粘度 [gr/cm<sup>2</sup>/sec],  $r$  は球の半径

[cm],  $\rho_s$ ,  $\rho_l$  は球および液の密度 [gr/cm<sup>3</sup>],  $v$  は落下速度 [cm/sec],  $g$  は重力の加速度 [cm/sec<sup>2</sup>] である。

下に落す力を  $f$  [gr·cm/sec<sup>2</sup>] とすると

$$f = \frac{4}{3} \pi r^3 (\rho_s - \rho_l) g \dots\dots\dots(5)$$

したがって  $\eta = \frac{1}{6\pi r} \cdot \frac{f}{v} \dots\dots\dots(6)$

実際には、容器と球の相対的な大きさにより  $\frac{1}{6}\pi r$  のところに、Ladenburg,<sup>12)</sup> Francis<sup>13)</sup> あるいは Faxen<sup>14)</sup> などの補正項が入るが、いずれにしてもその部分は一定と考えられるので定数  $K'$  とおくと

$$\eta = K' \cdot f/v \dots\dots\dots(7)$$

(7) 式が球引上げ法にも適用されるが、このときは、引上げる力は荷重で置き換えられ、また、 $v$  のかわりに 1 cm 上昇または沈降するに要する時間を  $t$  [sec] とすると、(7) 式は

$$\eta = k w t \dots\dots\dots(8)$$

ただし  $w$  は加えた有効荷重 [gr], よって  $f = wg$ ,

また  $K = K'g$  である。なお実際には、 $K$  の値は粘度既知のグリセリンおよびシリコン油を標準とし、 $w$  と  $t$  の測定から (8) 式を用いて求めたが、その値は、 $\eta = 11.78$  ポアズのグリセリンに対しては 57.72,  $\eta = 117.7$  および  $\eta = 1180$  ポアズのシリコン油に対しては、それぞれ 58.79, 58.85 であった。

(2) 測定装置および測定法

装置の概略を Fig. 4 に示す。<sup>15)</sup>

図中 1 が天秤、2 が電気炉である。A は天秤の重心位置を調整するためのおもり、B はビーム押え、C は過剰おもり、D は指針のふれを調整するための支え棒である。天秤の一方の皿から 0.3 mm の白金線で吊した直径約 8.5 mm の白金-ロジウム (4%) の球を一定温度の試料融液中に浸漬し、融液の粘度に応じた荷重 ( $w$  gr) を皿にかけ、その重量により融液中の白金球を上昇あるいは沈降させて、天秤の指針が、目盛の一定区間 (EF) を通過するに要する時間 ( $t$  sec) を測定する。この  $w$  と  $t$  との関係を、同一温度で数種の  $w$  について求めると、10 ポアズ以上では、 $w$  対  $1/t$  は直線になる。したがって、その勾配 ( $w \cdot t$ ) を求めれば、(7) 式から  $\eta$  が計算できる。

(3) 測定結果

8 種のガラスについて求めた結果を Fig. 5 に示す。

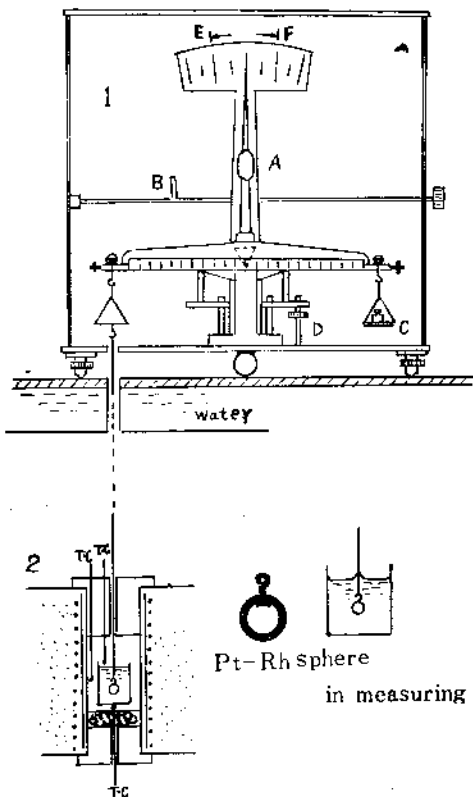


Fig. 4. Viscosity measuring apparatus by a counterbalanced sphere method; (1) balance, (2) electric furnace.

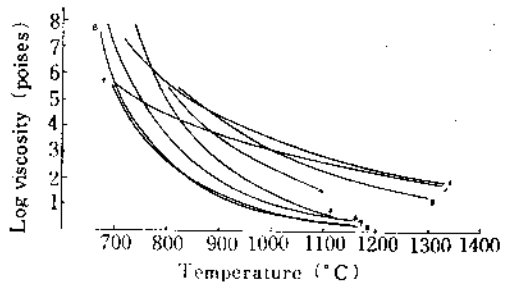


Fig. 5 Viscosity-Temperature relation of optical glasses; (1) BK 7 (2) F 2 (3) SK 4 (4) BaF 10 (5) L 102 (6) BCL 7 (7) BCL 151 (8) BCL 8

これから 10<sup>5</sup> ポアズを示す温度として、Table 4 が得られた。

Table 4 Temperature corresponding to viscosity of  $10^5$  poises.

Sample	Temperature corresponding to viscosity of $10^5$ poises ( $^{\circ}\text{C}$ )
SK 4	851
BK 7	845
BaF 10	820
L 10 2	797
BCL 7	750
F 2	746
BCL 8	710
BCL 151	708

(4) とけて切れるに要する時間と  $10^5$  ポアズの温度との関係

Fig. 5 に示されているように、球引上げ法によって測定された 8 種のガラスの粘度曲線の中、F 2 と BCL 7 とは、曲線の状態が相当に異なっているにもかかわらず  $10^5$  ポアズ附近で交差し、しかも F 2 の方が幾分低温である。これに対し、両者の本装置で得られた時間は、Table 3 でみたように 9.30 および 9.38 秒でほとんど同一であり、且つ F 2 の方が少し短い。このことは、本装置で得られた。F 2 および BCL 7 の時間は  $10^5$  ポアズの粘度を与える温度と対応していることを示している。そこで 2.1 で得られた全ての試料についての、とけて切れるまでの時間と粘度曲線から得られた  $10^5$  ポアズに相当する温度との関係を見た。その結果が Fig. 6 である。

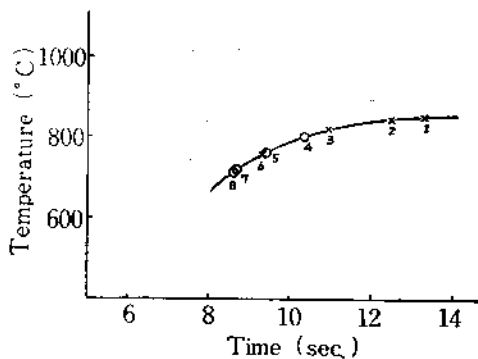


Fig. 6 The flow point calibration curve;  
 (1) SK 4 (2) BK 7 (3) BaF 10  
 (4) L 102 (5) BCL 7 (6) F 2  
 (7) BCL 8 (8) BCL 151

図中×印がケイ酸塩系統のガラス、○印がホウ酸塩系

統のガラスである。全ての点は、完全に一つの曲線上にのっている。このことから、あらかじめ標準のガラスについてこの曲線を決めておくと、ほかのどのようなタイプのガラスについても、流動点の測定すなわちとけて切れるまでの時間の測定から  $10^5$  ポアズに相当する温度を知ることができる。

## 2.3 接触角の測定

## (1) 測定装置および測定法

装置の概略を Fig. 7 に示す。

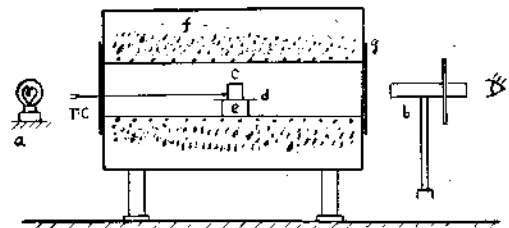


Fig. 7 Apparatus for contact angle measurement

- (a) lamp (b) angle read telescope  
 (c) sample (d) platinum plate  
 (e) isolite plate (f) electric furnace  
 (g) mica window.

横型炉のほぼ中央、温度分布の均一の所に、滑らかな白金板上に一辺 5 mm の立方体（または直径および高さ 5 mm の円柱）の試料を置き、 $2\sim 3^{\circ}\text{C}/\text{min.}$  の速度で温度を上昇させ、角度読取望遠鏡でガラス試料と白金板との接触角を測定した。この際ガラス試料は、Fig. 8 に示すように、軟化点附近よりその表面張力のために表面収縮が起り、まず角の部分が丸くなり、漸次まるみを増し、したがって接触角を増大させた後、ある温度でその最大点を経て急速に周囲に流れ拡がる。

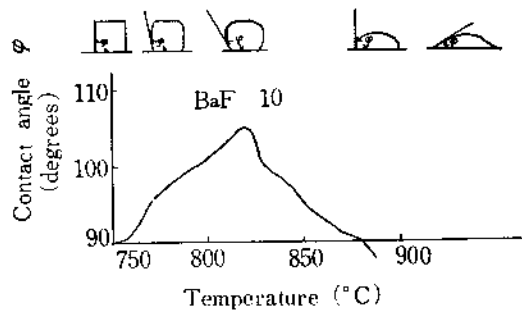


Fig. 8 Contact angle-Temperature relation.

## (2) 測定結果

数種のガラス試料について、上記の方法で接触角が最大になる温度を求めた。その結果を Table 5 に示す。なお比較のために、Fig. 5 から求めた  $10^5$  ポアズに相当する温度も併記したが、両者はきわめてよい一致を示した。したがって、接触角の最大になる温度を測定することにより流動点を知ることができる。

Table 5 Temperature at which contact angle becomes maximum

Sample	Temp. ( $^{\circ}$ C) from contact angle	Temp. ( $^{\circ}$ C) from viscosity curve
BaF 10	820	820
F 2	741	746
BCL 8	713	708

## 3 考察

上記のように、流動点測定装置で求められるのは、ガラスの糸がとけて切れるまでの時間である。そこで、この時間が  $10^5$  ポアズに相当する温度と完全に対応していることを確認する必要がある。Lillie はこれを統計的手法で行ったが、著者らは、表面張力との関係において追及した。Fig. 2a に示したように、本来釣合うべき試料が切れるという現象は、その温度において、自重による伸びと表面張力による収縮との平衡に破綻が生ずる結果起るものであるが、それは試料の急激なる温度上昇により、ガラスの粘度も減少し、表面張力も減少する上に、さらに、フラグによるわずかの荷重 (0.079g) によって一層激しくなり、瞬間的な融断へと導き、実質的には、Fig. 2a の S 点 (あるいは G. Tammann の表面張力の測定実験<sup>16)</sup> における B 点) に相当する温度で切れるものと考えられる。測定した全てのガラスが同様な状態で切れることは、Fig. 6 が完全に一本の曲線上にのることから十分に推測される。

つきに、接触角の変化は、試料の粘性流動と表面張力の釣合いの変化を示していると考えられるので、それが最大になる点 (ガラスを濡らす材料では、接触面の材質が異なってもほとんど同じ結果が得られた) は、Fig. 2a の S 点に相当するものと考えてよい。そこでもし試料が切れるときの粘度が  $10^5$  ポアズに相当するならば、

それは S 点の粘度がほぼ  $10^5$  ポアズであり、また接触角の最大になる温度が  $10^5$  ポアズを示す温度に一致することを意味すると考えられる。逆に、もし接触角が最大になるときの温度が、 $10^5$  ポアズの温度に一致すれば、とけて切れるときの粘度は  $10^5$  ポアズに相当することになる。Table 5 のような結果が得られたことは、上の推定が正しいことを示している。また、接触角が最大になる点が Fig. 2a の S 点に相当することは、この点においては、わずかのショックおよび温度上昇によっても流動状態になることから推測されることである。

## 4 結言

作業温度範囲内にある粘度の特定点としての流動点 (粘度が  $10^5$  ポアズになる温度) の測定法を、i) 流動点測定装置によるガラス試料がとけて切れるまでの時間の測定、ii) 球引上げ法による粘度測定、iii) 接触角の測定から検討した。その結果次の結論を得た。

1. Lillie の提唱した測定法は、ケイ酸塩ガラスのみでなく、ホウ酸塩ガラスについても適用できることを認めた。
2.  $10^5$  ポアズ附近における試料の自重による伸びと表面張力による収縮との関係と、接触角の変化とを対比すると、ガラスが切れるのは粘性流動と表面張力が釣合う点に相当し、そのときの粘度が  $10^5$  ポアズであると考えられる。
3. 接触角が最大になる点も、粘性流動と表面張力が釣合う点に相当することから、ガラスと白金板との接触角を測定することによっても容易に流動点を知ることができる。

本研究は元立命館大学理工学部学生現東芝化成工業株式会社森実敏倫氏の労苦に負うところが多く、ここに厚く感謝の意を表する。また接触角の測定にあたっては当所第4部片岡技官より種々便宜を与えられたことを附言して深く感謝する。

## 参考文献

- 1) たとえば S. English: *J. Soc. Glasstech.*, **8** 205 (1924)  
S. English: *ibid.*, **12** 107 (1928)
- 2) G. O. Jones: *Glass*, Methuen & Co. L.T.D

- London (1956) P. 5
- 3) たとえば H. R. Lillie : *J. Am. Ceram. Soc.*,  
12 516 (1929)  
H. R. Lillie : *Phys. Rev.*, 36 347  
(1930)
- 4) A. R. Wood : *J. Soc. Glasstech.*, 16 43  
(1932)
- 5) たとえば L. Shartsis & S. Spinner : *J. Res.  
Nat. Bur. Stand.*, 46 176 (1951)
- 6) たとえば H. R. Lillie : *J. Am. Ceram. Soc.*,  
14 502 (1931)  
H. R. Lillie : *ibid.*, 16 619 (1933)
- 7) A. Novotny & J. Kroupa : *Silikáty*, 2 50  
(1958)
- 8) R. L. Tiede : *J. Am. Ceram. Soc.*, 38 183  
(1955)
- 9) J. Littleton : *J. Am. Ceram. Soc.*, 10 259  
(1927)
- 10) A. Dietzel u. R. Brükner : *Glastech. Ber.*,  
30 73 (1957)
- 11) H. R. Lillie : *J. Am. Ceram. Soc.*, 35 149  
(1952)
- 12) R. Ladenburg : *Ann. Physik*, 23 456  
(1907)
- 13) A. W. Francis : *Physics*, 4 403 (1933)
- 14) L. Shartsis & S. Spinner : *J. Res. Nat.  
Bur. Stand.*, 46 176 (1951) 参照
- 15) 功刀雅長, 山手有 : 溶融塩, 2 99 (1959)
- 16) G. Tammann u. H. Rabe : *Z. Anorg. u.  
Allgem. Chem.*, 162 17 (1927)

(昭和35年6月7日受付)