2-(*o*-Hydroxyphenyl)-benzoxazole(abbreviated to oxazole) forms a yellow colored 1:2 chelate with copper ion in acidic solution. Since the selectivity of the reaction with copper is high, studies on the gravimetric determination of copper in copper or aluminum alloys have been carried out. The copper oxazole chelate is dissolved into various kinds of organic solvents. The absorption curve of the chelate extracted into organic solvents shows an absorption maximum at 370 nm in carbon tetrachloride, benzene and toluene and at 365 nm in chloroform and methyl isobutyl ketone, whereas the reagent blank has an absorption maximum at 345 nm and a slight absorption at 370 nm against the respective organic solvents. In this paper, a highly sensitive and selective method of spectrophotometric determination of copper has been achieved by extraction of the chelate into carbon tetrachloride.

Since oxazole is only slightly soluble in water, carrier precipitation of a minute amount of copper has also been investigated using oxazole as a collector organic reagent. A single precipitation of 0.01 g of oxazole in each case collects 98~58% of copper in 100~5000 ml of aqueous solution at pH 5.5~7.0. The relationship between the concentration of copper in the aqueous solution *vs.* the amount of copper coprecipitated with oxazole in equilibrium is quite similar as that obtained by solvent extraction. The distribution ratio of copper in this case has been calculated to be 7.0×10^5 (ml/g) at 20°C.

The precipitate of oxazole which collects copreci-

pitated copper is dissolved in hydrochloric acid, followed by carbon tetrachloride extraction and spectrophotometric determination of copper. These experiments were applied to the separation, concentration and determination of copper of an amount below 3 ppb in water samples.

The recommended procedure for the spectrophotometric determination of copper is as follows:

To a sample containing less than 40 μ g of copper in a 100 ml separatory funnel, add 1 M acetic acid and 1 M sodium acetate solution to adjust pH 6.0, 1 ml of 0.5% ethanolic oxazole solution and 10.0 ml of carbon tetrachloride. Shake the liquids for 2 min, separate the organic phase and dried with anhydrous sodium sulfate. Measure the absorbance at 370 nm against the reagent blank as a reference. Beer's law is obeyed up to 40 μ g of copper in 10 ml of the extract and the molar absorptivity is 2.5×10^4 . A constant absorbance was obtained in the range 5.3~7.0 of pH, 50~300 ml of the aqueous layers and 1~3 min of the shaking time.

Interference by hydrolysis of iron(III) up to 20 ppm can be avoided by an addition of 5 ml of 10% ammonium tartrate solution per 100 ml of the aqueous solution. By an addition of 0.01 g of oxazole per 1000 ml sample solution, 88% of copper in the precipitate was recovered from 1000~5000 ml of water samples, followed by the determination of 0.2~30 μ g of copper using the calibration curves obtained by the similar procedure.

(Received June 3, 1972)

ゼフィラミンの存在下タイロンによるモリブデン(VI)の溶媒抽出-吸光光度定量および鉄鋼中のモリブデンの定量への応用

中 谷 正 治*

(1972 年 6 月 26 日受理)

ゼフィラミンの存在において、モリブデンはタイロンと黄色の沈殿を生成し、約 pH 8.0 においてクロロホルムに抽出され、390 nm に吸収極大を示す。共存イオンの影響を除去するため、モリブデンを α -ベンゾインオキシム錯体としてクロロホルムに抽出し、ゼフィラミンの存在において α -ベンゾインオキシムとタイロンとの配位子置換を行なわせ、モリブデン-タイロン-ゼフィラミン三元錯体のクロロホルム溶液の吸光度を測定した。この方法を鉄鋼中のモリブデンの定量に応用した。鉄鋼試料 1.0~0.1 g を精ひょうし、過塩素酸または王水で分解後、100 ml に希釈し、その 10 ml を分取して 10% L-アスコルビン酸 2 ml を加え全容を 20 ml とし、0.2% α -ベンゾインオキシム-クロロホルム溶液 10 ml で抽出する。抽出有機相 5 ml を分取し、pH 8.0 の緩衝溶液 5 ml、0.8% タイロン 2 ml、 $10^{-2}M$ ゼフィラミン 2 ml を加え、3 分間振り混ぜる。5 分間静置したのち、390 nm においてクロロホルムを対照として吸光度を測定する。アスコルビン酸の添加は、モリブデン錯体の抽出および吸光度に影響を与えなかった。タングステンは妨害する。

* 佐世保工業高等専門学校：長崎県佐世保市沖新町

1 緒 言

タイロン (1,2-ジヒドロキシベンゼン-3,5-ジスルホン酸二ナトリウム) がモリブデン(VI) と反応して生成する黄色の水溶性錯体に基づくモリブデンの吸光度定量法が報告されている¹⁾。著者はこの水溶性錯体に第4級アンモニウム塩であるゼフィラミン (塩化テトラデシル-ジメチル-ベンジル-アンモニウム) を加えると黄色の沈殿を生成し、クロロホルム、ジクロロメタン、1,2-ジクロロエタンなどの溶媒に抽出されることを見だし、モリブデンの吸光度定量の基礎的条件を検討した。しかしながら鉄や過塩素酸塩などの共存イオンの妨害が大きく、鉄鋼などの分析にそのまま適用することは困難である。したがって鉄(III)、バナジウム(V)、クロム(VI)などの妨害イオンをアスコルビン酸で還元し、モリブデンを α -ベンゾインオキシム錯体としてクロロホルムに抽出し、抽出有機相にタイロンおよびゼフィラミンを加え、振り混ぜることにより、 α -ベンゾインオキシムとタイロンとの配位子置換を行なわせ、黄色のモリブデン-タイロン-ゼフィラミン三元錯体のクロロホルム溶液が得られることに着目して、これをモリブデンの定量に用い、鉄鋼分析に応用して満足な結果が得られたので報告する。

2 装置および試薬

2.1 装 置

吸収スペクトルの測定には島津ダブルビーム分光光度計 UV-200 型、吸光度の測定には日立-パーキンエルマー分光光度計 UV-VIS 139 型を用い、セルは光路長 10 mm の石英製のものを使用した。錯体の抽出には 100 ml 円すい型分液漏斗を用い、イワキ製 KM 式万能シェーカーで振り混ぜを行なった。pH の測定には日立-堀場 M5 型ガラス電極 pH メーターを用いた。

2.2 試 薬

モリブデン標準溶液 (10 $\mu\text{g Mo/ml}$) : 和光純薬工業製特級モリブデン酸ナトリウム 1.261 g を純水に溶解し 500 ml として 1 mg/ml の溶液を調製し、さらに 100 倍に希釈して 10 $\mu\text{g/ml}$ の溶液とした。原液の標定は α -ベンゾインオキシム重量法によって行なった。

0.8% タイロン溶液 : 同仁薬化学製タイロン 8.00 g を純水に溶解し 100 ml とし貯蔵液とし、さらに 10 倍に希釈して用いた。

10⁻²M ゼフィラミン溶液 : 同仁薬化学製ゼフィラミン 1.840 g を純水に溶解し 500 ml とした。

0.2% α -ベンゾインオキシム-クロロホルム溶液 : 和光純薬工業製特級 α -ベンゾインオキシム 1.00 g をクロロホルムに溶解し、500 ml とした。

10% L-アスコルビン酸溶液 : 和光純薬工業製特級 L-

アスコルビン酸 50.0 g を純水に溶解し 500 ml とした。

緩衝溶液 : 0.2M リン酸二水素カリウム溶液 50.00 ml と 0.2N 水酸化ナトリウム溶液 46.80 ml を 200 ml に希釈し、pH 8.0 の緩衝溶液を調製して用いた。そのほか、酢酸-酢酸ナトリウム系、アンモニア-塩化アンモニウム系および上記のリン酸系緩衝溶液を用いた。

抽出溶媒その他の試薬はすべて特級品を使用した。

3 モリブデン-タイロン-ゼフィラミン三元錯体の抽出

3.1 実験操作

モリブデン 50 μg を 100 ml 分液漏斗にとり、緩衝溶液 (pH 8.0) 5 ml、0.8% タイロン溶液 2 ml、10⁻²M ゼフィラミン溶液 2 ml を加え、さらに純水を加えて全容を 20 ml とし、クロロホルム 10 ml を加えて 3 分間振り混ぜる。5 分間静置し 2 層に分離後、有機相を無水硫酸ナトリウム約 0.5 g で脱水し、波長 390 nm において、試薬ブランクを対照として吸光度を測定する。

3.2 吸収曲線

3.1 の実験操作に従って求めた吸収曲線を Fig. 1 に示す。Fig. 1 に見られるように、モリブデン-タイロン-ゼフィラミン三元錯体は 390 nm に吸収極大を示した。これは水溶性のモリブデン-タイロン錯体の吸収極大と同じであった。試薬ブランクは 390 nm においてほとんど吸収がみられなかった。

Fig. 1 Absorption spectrum of molybdenum(VI)-tiron-zephiramine complex in chloroform
Mo: 50 μg ; Reference: Reagent blank

3.3 pH の影響

3.1 の実験操作において、種々の pH の緩衝溶液を用いて抽出を行ない、抽出有機相の吸光度を測定した。そ

の結果を Fig. 2 に示す。pH 2.0~5.0 では酢酸-酢酸アンモニウム系緩衝溶液、pH 6.0~8.0 ではリン酸塩系緩衝溶液、pH 9.0~11.0 ではアンモニア-塩化アンモニウム系緩衝溶液を用いた。Fig. 2 に見られるように、pH 6.5~8.5 において一定の吸光度が得られる。したがって本実験では pH 8.0 の緩衝溶液を用いた。

Fig. 2 Effect of pH

Mo: 50 μ g

3.4 抽出溶媒の選択

種々の溶媒を用い、抽出溶媒として適当かどうかを検討した。この結果、クロロホルム、1,2-ジクロルエタン、ジクロルメタンが最も良好であった。四塩化炭素、メチルイソブチルケトン、酢酸エチルも良好であったが、有機相の濁りの除去にやや多量の無水硫酸ナトリウムを必要とした。その他イソアミルアルコール、酢酸ブチル、エチルエーテル、イソプロピルエーテル、ベンゼン、*n*-ヘキサンなどは沈殿に対する溶解性が低く、抽出溶媒としては不適当であった。本実験ではクロロホルムを用いた。

3.5 試薬添加の順序

試薬の添加順序を種々変えて抽出を行ない、抽出有機相の吸光度を測定した結果、吸光度に影響はみられなかった。

3.6 タイロン溶液の添加量の影響

3.1 の実験操作において、タイロン溶液の添加量を種々変えて検討した結果を Fig. 3 に示す。Fig. 3 に見られるように、1~5 ml の添加量において一定の吸光度が得られた。本実験では 2 ml を用いることとした。これ

はモル比にしてモリブデンに対し約 100 倍に相当する。Fig. 4 に見られるように、錯体の解離がかなり大きいためと考えられる。

Fig. 3 Effect of the amount of 0.8% tiron

Mo: 50 μ g; Zephiramine: 1×10^{-3} M

3.7 ゼフィラミン溶液の添加量の影響

3.1 の実験操作において、ゼフィラミン溶液の添加量を種々変えて抽出有機相の吸光度を測定した。この結果、1~5 ml の間において一定の吸光度が得られたので、本実験では 2 ml を用いることとした。これはモル比にしてモリブデンに対し 40 倍に相当する。

3.8 振り混ぜ時間

沈殿をクロロホルムで抽出するときの振り混ぜ時間の影響を 30 秒~5 分間の範囲で検討した結果、1 分以上振り混ぜれば抽出平衡に到達することがわかった。したがって本実験では 3 分間振り混ぜることとした。

3.9 呈色の安定性

クロロホルムに抽出した錯体の吸光度を 2 分以上 45 分まで放置して測定したが、吸光度に変化は認められなかった。この呈色は 48 時間後も変化がなかった。本実験では 5 分間放置後吸光度を測定することとした。

3.10 共存イオンの影響

3.10.1 陽イオン 鉄(III)、バナジウム(V)、タングステン(VI) が大きな妨害を与える。マンガン(II) は pH 8.0 において空気酸化を受け、青色の錯体を生成して妨害する。ニッケル(II)、コバルト(II)、クロム(III)、クロム(VI)、銅(II)、ジルコニウム(IV)、亜鉛(II)、鉛(II)、カドミウム(II)、アルミニウム(III) はモリブデン 50 μ g に対し 2 倍量の共存においてわずかながら誤差を与える。

3.10.2 陰イオン 過塩素酸イオンが大きな妨害をは、かなりの共存イオンの影響が認められる。これらの示す。硝酸イオンを除いては、硫酸イオン、フッ化物イオン、リン酸水素イオン、酢酸イオン、クエン酸イオンはモリブデン 50 μg に対し 100 倍量共存しても妨害しない。

3.11 錯体の組成

ゼフィラミン $1 \times 10^{-3} M$ の存在のもとにおいて、モリブデンとタイロンとのモル比を連続変化法により求めた結果を Fig. 4 に示す。Fig. 4 からモリブデン-タイロン-ゼフィラミン三元錯体におけるモリブデンとタイロンとの結合比は 1 : 3 であると考えられる。

Fig. 4 Continuous variation method

[Mo(VI)]+[tiron] = $2.5 \times 10^{-4} M$; Zephiramine : $1 \times 10^{-3} M$; pH : 8.0

3.12 検量線

3.1 の実験操作に従って、水相中のモリブデン 10~100 $\mu\text{g}/20 \text{ ml}$ について検量線を求めた結果、上記の濃度範囲においてベールの法則に従う。検量線から求めたモル吸光係数は 1.3×10^4 であった。感度は第4級アンモニウム塩の存在において、ピロガロールレッド²⁾あるいはピロカテコールバイオレット³⁾を用いる定量法には及ばないが、一般にモリブデンの呈色試薬として用いられるチオシアン酸塩あるいはトルエン-3,4-ジチオールによる溶媒抽出定量法の感度⁴⁾に匹敵する。またタイロンのみを用いた場合に比べて著しく感度が高く、実用分析としてじゅうぶん有効であると考えられる。

4 配位子置換を利用したモリブデンの定量

3で示したモリブデン-タイロン-ゼフィラミン三元錯体のクロロホルム抽出によるモリブデンの定量において

影響を除くため、モリブデンをあらかじめ α -ベンゾインオキシム錯体としてクロロホルムで抽出し、これにタイロンおよびゼフィラミン溶液を加えて振り混ぜ、 α -ベンゾインオキシムとの配位子置換によって生成したモリブデン-タイロン-ゼフィラミン三元錯体の呈色を測定するモリブデンの定量条件を検討した。

4.1 実験操作

モリブデン 50 μg を 100 ml 分液漏斗にとり、2N 塩酸 1 ml、10% L-アスコルビン酸 2 ml を加え、純水で全容を 20 ml とし、これに 0.2% α -ベンゾインオキシム-クロロホルム溶液 10 ml を加え、3 分間振り混ぜる。分相後、有機相を 50 ml 共せん付き三角フラスコにとり、それから 5 ml を別の分液漏斗へ分取し、以下 3.1 の実験操作に従って試薬を添加し、全容を 20 ml とすることなく、そのまま振り混ぜ、有機相の吸光度を波長 390 nm において、クロロホルムを対照として測定する。

4.2 α -ベンゾインオキシム-クロロホルム溶液によるモリブデンの抽出の諸条件

モリブデンの抽出時の酸濃度および酸の種類について検討した。Goldstein ら⁵⁾は 2~20% 塩酸溶液から定量的な抽出が可能であり、過塩素酸、硫酸も同様な結果が得られるが、リン酸およびフッ化水素酸では抽出不完全であることを、また吉田ら⁶⁾は、0.1~2.0N 塩酸溶液から、モリブデン 0.1 μg ~1 mg が定量的に抽出できることを報告している。著者は 4.1 の操作に従って、0.1, 0.6, 0.9 および 1.8N 塩酸、0.45 および 0.9N 過塩素酸で抽出を行ない、結果に差のないことを確認した。さらに 0.1, 0.6 および 1.8N 硝酸を用いた場合にも結果に差異が認められなかった。したがって、鉄鋼分析のための試料の分解には過塩素酸 20 ml を用い、分解困難な試料については王水 20 ml を用いることとした。抽出時の抽出溶媒の量、試薬濃度、抽出回数および振り混ぜ時間については吉田ら⁶⁾の報告に従った。

4.3 アスコルビン酸添加の影響

α -ベンゾインオキシムと錯体を生成してクロロホルムに抽出されるバナジウム(V)、クロム(VI)を還元するため、4.1 に示したとおり、アスコルビン酸溶液を添加して抽出を行なった。この際、モリブデン(VI)はアスコルビン酸によってモリブデン(V)に還元されると考えられるので、アスコルビン酸溶液の添加がモリブデン錯体の吸光度に及ぼす影響を検討した。しかし 4.1 の

実験操作において、アスコルビン酸溶液を添加した場合と添加しない場合とについて吸光度を測定したところ、結果にはまったく差異が認められなかった。アスコルビン酸溶液の添加量の影響については5・3において検討した。

4・4 モリブデンの量と吸光度との関係

4・1の実験操作に従って検量線を作成した結果、モリブデン 0~100 μg において吸光度との間に直線関係が成立することがわかった。

4・5 共存イオンの影響

3の実験において大きな誤差を示すイオン種および鉄鋼分析に関連のあるおもな共存イオンについて、4・1の実験結果に与える影響を検討した。その結果をTable Iに示す。Table Iに見られるように、タングステンを除いては他の共存イオンは1mgの存在においてもその影響はほとんど認められなかった。

Table I Effect of interfering ions in extracting molybdenum as α -benzoinoxime complex into chloroform

Ion (mg)	Added as	Mo found (μg)	Difference (μg)
Cr(III) 1	KCr(SO ₄) ₂	48.8	-1.2
Cr(VI) "	Na ₂ CrO ₄	48.7	-1.3
V(V) "	Na ₃ VO ₄	50.0	0.0
Mn(II) "	MnSO ₄	48.8	-1.2
Fe(III) "	(NH ₄)Fe(SO ₄) ₂	49.4	-0.6
Ni(II) "	NiSO ₄	50.6	+0.6
Co(II) "	CoSO ₄	48.8	-1.2
Zr(IV) "	ZrO(NO ₃) ₂	50.0	0.0
W(VI) "	Na ₂ WO ₄	69.8	+19.8
Cu(II) "	CuSO ₄	48.8	-1.2
ClO ₄ ⁻ 5	NaClO ₄	49.1	-0.9

Mo(VI) taken : 50 μg

5 鉄鋼中のモリブデンの定量

以上の結果をもとにして鉄鋼中のモリブデンの定量方法を次のように定めた。

5・1 定量操作

モリブデンの含有量に応じて鉄鋼試料 1.0~0.1g を精ひょうし、100 ml コニカルビーカーにとり、過塩素酸 20 ml (試料の分解困難な場合は王水 20 ml) を加え、加熱分解し、冷却後 100 ml メスフラスコへ移し、純水で標線まで希釈する。その 10 ml を分取し、以下4・1の操作に従って吸光度を測定し、あらかじめ作成した検量線によりモリブデンの含有量を求める。ただ

し鉄鋼試料のひょう取量が多い場合は、10% アスコルビン酸をさらに添加して、鉄(III)を完全に還元しておく必要がある。

5・2 検量線の作成

純鉄 1.0g をはかりとり、過塩素酸または王水 20 ml を加えて加熱分解し、冷却後 200 ml メスフラスコへ移し入れ、標線まで希釈する。それから 10 ml (鉄 50 mg) を分取し、以下4・1の操作に従って検量線を作成する。検量線は過塩素酸を用いた場合も王水を用いた場合も同じであった。

5・3 抽出時におけるアスコルビン酸溶液の添加量の影響

鉄 50 mg の存在において、アスコルビン酸溶液の添加量がモリブデン錯体の吸光度に及ぼす影響を検討した。その結果をFig. 5に示す。Fig. 5に示すように、10% アスコルビン酸溶液 1~5 ml の添加量において、吸光度に変化はみられなかった。本実験では 2 ml を用いた。しかしながら、アスコルビン酸を添加しない場合は、Fig. 5に見られるように、吸光度は、アスコルビン酸を添加した場合よりも大きくなる。これは微量抽出された鉄(III)とタイロンとが鋭敏に反応して、赤色錯体を生成するためであると考えられる。たとえば鉄鋼試料 2g をひょう取して分析した場合、アスコルビン酸溶液 2 ml では鉄(III)の還元がふじゅうぶんのため、吸光度の増加を示したが、アスコルビン酸 4 ml 添加して抽出を行なった場合は、標準値と一致した分析結果が得られた。

Fig. 5 Effect of the amount of 10% ascorbic acid
Mo : 50 μg ; Fe : 50 mg

5・4 配位子置換のための振り混ぜ時間

クロロホルムに抽出した α -ベンゾインオキシム錯体を、ゼフィラミンの存在において、タイロンとの配位子

置換反応を行なわせるための振り混ぜ時間を 0.5~5 分間の範囲で検討した。その結果 2 分以上振り混ぜれば一定の吸光度が得られたので、本実験では 3 分間振り混ぜることとした。

5・5 鉄鋼標準試料の分析

5・1 の定量操作に従って鉄鋼標準試料を分析した結果を Table II に示す。得られた分析結果は標準値とよく一致することがわかる。

Table II Analytical results of molybdenum in steels

Sample	Sample taken (g)	Standard value (%)	Mo found (%)	Difference (%)
JISS 605-3 alloy tool steel	0.1	0.4	0.39	-0.01
" 500-1 Cr-Mo steel	0.2	0.19	0.19	0.00
" 651-3 stainless steel	0.5	0.073	0.074	+0.001
" 503-1 Ni-Cr steel	1.0	0.014	0.014	0.000
" 420-2 carbon steel	2.0†	0.015	0.015	0.000

JISS: Japan Iron and Steel Standard Sample; † 4 ml of 10% ascorbic acid was used.

タングステン含有鋼についてはあらかじめタングステンを除去するか、あるいはタングステン-タイロン-ゼフィラミン錯体の吸収が 440 nm 以上では認められないことから、440 nm での検量線を用いることによってモリブデンを定量することが可能であると考えられる。

文 献

- 1) F. Will, III., J. H. Yoe : *Anal. Chim. Acta*, **8**, 546 (1953).
- 2) 武内次夫, 四条好雄 : 本誌, **15**, 473 (1966).
- 3) 小原人司, 石橋信彦, 安部清美 : 同上, **19**, 48 (1970).
- 4) 上野景平 : 同上, **20**, 736 (1971).
- 5) G. Goldstein, D. L. Manning, O. Menis : *Anal. Chem.*, **30**, 539 (1958).
- 6) 吉田博之, 米沢仲四郎, 郡司勝文 : 本誌, **19**, 818 (1970).

☆

Spectrophotometric determination of molybdenum (VI) by solvent extraction with tiron in the presence of zephiramine and its application to the determination of molybdenum in iron and steel. Masaji NAKATANI (Sasebo Technical College, Okishin-cho, Saseboshi, Nagasaki-ken)

It was found that molybdenum reacts with tiron in the presence of zephiramine to give a yellow precipitate (molybdenum-tiron-zephiramine ternary complex) which has an absorption maximum at 390 nm when extracted into chloroform at pH 8.0. This spectrum of the complex may be used in the spectrophotometric determination of molybdenum, but such ions as iron (III), vanadium (V), and perchlorate interfere seriously with the determination. To prevent the interference of these ions, molybdenum was extracted into chloroform as α -benzoinoxime complex, which then reacted with tiron in the presence of zephiramine to form the molybdenum-tiron-zephiramine ternary complex in chloroform. This reaction was applied to the determination of molybdenum in iron and steel. The proposed procedure is as follows; 1.0~0.1 g of steel sample is decomposed with 20 ml of perchloric acid or aqua regia. After being cooled, the solution is transferred to a 100 ml volumetric flask and diluted to the mark with water. A 10 ml portion is transferred into a 100 ml separatory funnel, then 2 ml of 10% L-ascorbic acid is added and made up to 20 ml with water. It is shaken with 10 ml of 0.2% α -benzoinoxime-chloroform for 3 min. After two phases have separated, a 5 ml portion of the organic phase is transferred to the second separatory funnel, and then 5 ml of phosphate buffer solution (pH 8.0), 2 ml of 0.8% tiron and 2 ml of 10^{-2} M zephiramine are added and shaken for 3 min and allowed to stand for 5 min. The lower organic phase is taken into a 50 ml stoppered conical flask. After dehydration with anhydrous sodium sulfate, the content is taken into a 1 cm cell and the absorbance is measured at 390 nm against chloroform.

Analytical results of the standard samples of iron and steel by this method were satisfactory. The addition of L-ascorbic acid solution in extracting the complex did not affect the determination of molybdenum, but the coexistence of tungsten interfered with the determination, so in the case of tungsten-bearing steel, it was necessary to remove tungsten prior to the extraction of the molybdenum complex.

(Received June 26, 1972)