総 説

石油工業における放射性同位元素の利用

佃 豊 之*

Radioisotopes in Petroleum Industry

Toyoyuki TSUKUDA

I. ま え が き

欧米の石油工業における放射性同位元素の利用はきわめて活発でありその応用範囲は非常に広い。大きな放射線源を利用して炭化水素などの改質や重合反応を促進させることから、比較的少量の放射性物質を使用する化学工学面や分析化学面の研究、さらに油井の探知や機器材質の検査に至るきわめて広い範囲に及んでいる。一口に放射能の利用といっても放射性物質から出る放射線は数種あつて表-1に示すとおりその特性はそれぞれ異なっている。

表-1 各種放射線の特性

放射線の種類	質量数	電荷	エネルギー (MeV)
アルファ	4	+2	2~400
ベータ	1/1860	±1	10 ⁻⁸ ~250
ガンマ	—	—	0.01~2.5
プロトン	1	+1	0.07~3,000
ジュートロン	2	+1	0.07~3,000
中性子	1	0	0.02~10.0

石油工業においてこれら放射線を随時広範囲な用途に利用するためには、常時適当な放射線源を保有する必要がある、現に米国の主要石油会社では表-2に示すような放射線源または放射性付与設備を持つている。

強い r 線を出す ^{60}Co はその半減期が長いことから保有線源として広く用いられるが、それでも長期間一定の強さを維持するには相当量の補充を行わねばならない。一般に放射性元素はつぎの(1)式に従つて崩壊し次第に安定な元素へと変化する。

$$N = N_0 e^{-\lambda t} \dots \dots \dots (1)$$

ここで N : t 秒間に崩壊した原子数, N_0 : 崩壊前の原子数, λ : その元素の崩壊定数

したがつて半減期 $T_{1/2}$ は $N/N_0=1/2$ となる期間でありその値は(2)式で表わされる。

$$T_{1/2} = 0.693 \cdot 1/\lambda \dots \dots \dots (2)$$

* 東亜燃料工業株式会社 (東京都千代田区大手町一丁目三番地) Tōa Nenryō Kōgyō K.K.

表-2 米国石油会社の保有する放射線源

会 社 名	場 所	線 源
Atlantic Refining Co.	Philadelphia	linear accelerator 1 MeV
California Research Corp.	Richmond	^{60}Co
Esso Research & Engineering Co.	Linde N. J.	^{60}Co (3,500 c)
Gulf Oil Corp.	Hammerville	Van de' Graaf 3 MeV
Humble Oil & Ref. Co.	Baytown, Texas	Van de' Graaf 2 MeV
Shell Development Co.	Houston, Texas	Van de' Graaf 2 MeV
Shell Development Co.	Emerryville, Calif.	Van de' Graaf 3 MeV
Magnolia Petr. Co.	Dallas, Texas	Van de' Graaf 0.5 MeV
Socony Mobil Oil Co.	East	Van de' Graaf 2 MeV and Fission Product
Sinclair Ref. Co.	Harvey	Fission Product (10,000 c)

^{60}Co の崩壊定数は 42.25×10^{-10} であるのでその半減期は 5.2yr となりその放射線の強さは約5年後に50%まで低下する。また r 線の物質による吸収は(3)式に従う。

$$I_S = I_0 e^{-\mu l} = I_0 e^{-\alpha \rho l} \dots \dots \dots (3)$$

(ただし $\alpha = \mu/\rho$)

ここで I_0 : 透過前の r 線の強さ, I_S : 透過後の r 線の強さ, μ : 線吸収係数, l : 吸収体の厚さ, α : 質量吸収係数, ρ : 密度

(3)式は照射によつて与えたエネルギーを計算する場合や防護壁の厚さを計算するときなどに必要となる基本式である。放射性同位元素の石油工業への利用を大別すると、表-3のとおりであり以下この順序に従つて応用例を概説する^{3),4)}。

表-3 放射性同位元素の応用

放射線源としての利用
炭化水素に対する分解, 重合および合成
ラジオグラフィ
液面および密度の測定
地質調査
トレーサーとしての利用
循環, 混合, かくはん, 蒸留など各単位操作の研究
接触分解触媒の研究
化学分析
液流および漏れの測定
製品の評価

II. 放射線源としての利用

a) 炭化水素に対する分解, 重合および合成

多くの直鎖状パラフィンに中性子または γ 線を照射して化学変化を与え, より有用な物質に変化させる種々の試みが行われてきた。たとえば液状 n -ブタンに1MeVの電子加速機より出る電子を照射するとC-H結合が切れブチル基ができ, この一部はさらに水素を放出してブチレンとなり最終的にオクタンおよびオクテンを主成分とする生成物が得られる。一方イソブタンに照射すると C_8 のほか C_7 が生成することからC-C結合の切断が起つて中間的に C_3 が生成することが知られている²⁾。炭化水素に対する高エネルギー放射線の照射はこれら軽質パラフィンにとどまらず n -ペンタンのようなものから C_{10} ~ C_{50} に至るまで広範囲のパラフィンにも試みられ, そのとき起つた化学反応について種々の調査が行われているがまだその反応機構は明確でない^{5), 6), 7)}。しかしながら, これらの工業面に対する応用として原油に γ 線を照射してガソリンの収率を高めること, 製油所ガスに中性子を照射して高オクタン価のヘキサメチルエタンを製造すること⁹⁾, パラフィンロウに中性子または γ 線を照射してその融点を高めること, 接触分解原料油をあらかじめ照射しておいて分解ガソリンの収率を高めることなどがその対象となつてゐる。しかし放射エネルギーは熱, 圧力, 触媒などの作用を促進する能力はあるが, これらに取つて代るものでないといわれているので, この方面にあまり過大な期待はかけられない。しかしながらポリエチレンのような石油化学製品に対する照射はその品質改良に威力を発揮し数々の有益な研究が行われている。たとえばポリエチレンがイオン化放射線で処理されると分子間に架橋が生じてさらにrigidな構造になり熱による軟化が行われ難くなつて融点は180°C以上となる。この場合ポリエチレンの強じんなflexibleな性質は失われず, かつ化学的に不活性であるので製品の実用価値は大いに増大する¹⁾。またICI法によるポリエチレンの重合

においては200°C, 1,000~2,000 atmが必要となつてゐるが, これに照射を応用すると室温1 atmで十分重合し, しかも製品の性質はZiegler法の製品とよく似たものが得られる。この照射に必要な線量はプラスチックを変性するのに必要な線量の約1%に過ぎないのでこの経済的であるから, 将来 γ 線を出す核分裂物質が大量に利用できるようなれば容易に工業化が行われる可能性のあるものの一つである。

b) ラジオグラフィ

放射線の透過力を利用して鑄物の良否や溶接の具合を検査するために, 以前からX線発生装置が用いられてゐるが, 放射性同位元素を利用すれば線源がきわめて小さく, 自由に複雑な機器の内部に挿入することができるので, 簡便かつ経済的である。また油送管の閉そく箇所や精留塔の内部構造の変化などを運転中に発見することが可能であり, この方面の応用は盛んである。たとえば精留塔内部のバブルキャップの状態を知るのに還流線からアンチモンに標識を付した10mcのトリフェニルアンチモンを1パイント(pint)の灯油に溶解したものを送り込み液流の不均一を調査し内部構造の改良が行われ¹⁰⁾, ^{59}Fe をパイプの内側に挿入し流出物中に含まれる鉄屑中の ^{59}Fe を検出して腐食の状態が探知された。また長距離を同一油送管で異種の原油を送る場合に, 送り元で油中に ^{124}Sb を加えて到着点で検出とともにパイプを切り替えることも実地に行われている¹¹⁾。

c) 液面および密度の測定

タンク反応ソウなどの密閉容器内の液面を測定する方法として図-1に示すように線源と検出器の位置の相異により浮子型, 透過型, 散乱型の3種がある。

図-1 液面計の諸形式

また管内流体の密度を外部から連続測定したり, 流動層中の粉体の密度を測定するために γ 線の吸収を利用することが便利であるので既に広く実用されている¹²⁾。

流動触媒層の密度を測定する場合の線源としては半減期長くかつエネルギー0.5~1.5 MeVの放射線を出すものがよい。もし0.5 MeV以下であると大きな実装置を透過するために非常に多量の線源が必要となり, 一方1.5 MeV以上のものになると吸収が少な過ぎて正確なデータが得られない。この意味から ^{60}Co (1.1 および1.3 MeV) および ^{137}Cs (0.66 MeV) は都合のよい線源である。測定はカラムの反応塔と流動中の反応塔とについて γ 線吸収を同一線源によつて行い, 結果はつぎの

(4), (5) 式の計算から得られる。

$$I_z = I_0 e^{-(\alpha_a \rho_a l_a + \alpha_v \rho_v l_v + \alpha_i \rho_i l_i)} \dots \dots \dots (4)$$

$$I_f = I_0 e^{-(\alpha_g \rho_g l_g + \alpha_p \rho_p l_p + \alpha_i \rho_i l_i)} \dots \dots \dots (5)$$

ここで a, v, i, g, p はそれぞれ空気, 容器壁, 保温材, ガス, 粉体粒子を示し z はカラの反応塔, f は流動中の反応塔を表わす。また α, ρ, l はそれぞれ質量吸収係数, 密度, 吸収体の厚さを示し, I は r 線の強さを示す。流動触媒層の平均密度 ρ_m は(6)式から求められる。

$$\rho_m = (1/\alpha_p l_a) \ln I_z / I_f \dots \dots \dots (6)$$

この方法で直径 6 in から 40 ft に至るまでの管や, 容器中の流動触媒密度を測定した実績があり, その標準偏差は 13% であるという。

d) 地質調査

油井探索機に小型の中性子発生装置を取り付け, 高速の中性子を試掘孔を囲む岩層に当て, 岩石の元素に当たって二次的に出る放射線 (r 線) をシンチレーションカウンタで検出する。この場合水素原子を多量に結合している炭化水素や地下水層に遭遇すると反射してくる r 線がはなはだしく減少するので判定が可能である¹³⁾。

III. トレーサーとしての利用

a) 循環, 混合, かくはん, 蒸留など各单位操作の研究

図-2 に示すように硫酸法アルキレーション装置において反応ソウの原料硫酸混合効率を比較するため 15 mc の ^{86}Rb を使用し, わずか 3 日間に満足な結果を得たと報ぜられている¹⁴⁾。 ^{86}Rb は酸によく溶解する上, その半減期が 19.5 day であるので実験後も現場プラントの酸を棄却しなくとも安全である。

図-2 アルキレーションにおける硫酸混合効果の測定 (Esso Standard, Baltimore)

またガソリン中のイオウ化合物をカセイソーダ溶液で抽出するユニゾール装置における抽出液の混合状態を知るためカセイソーダ溶液中に ^{124}Sb を NaSbO_3 の形で加えたものが用いられ, グリースの混合装置でその混合

効率を知るために ^{132}I が使用される。 ^{132}I の半減期はわずか 3.3 hr であるので ^{132}Te に変化させて使用する。すなわち ^{132}I を入れた容器にカセイソーダを加え酢酸で中和すると, Te は沈殿するが ^{132}Te の崩壊によって生成した ^{132}I は酢酸ナトリウム液中に溶解したまま残っているのを, これを利用する^{12), 14)}。精留塔の精留効果を調査するために ^{124}Sb をトリフェニルアンチモンの形で使用することはすでにラジオグラフィーの項で述べたが, 適当な放射性同位元素を選ぶことによって蒸留中における原油中の塩類の行動, 分解程度などを知ることができるので塩化物などによる腐食問題の解決策として期待されている。

b) 接触分解触媒の研究

流動接触分解における触媒の流動過程は化学的にも機械的にもきわめて複雑である。粉状触媒は接触反応のほかに熱伝導の媒体としても働き, 反応塔内では連続的に炭素が生成し再生塔内で焼却される。触媒粒子に対する炭素の沈着や活性度の低下は触媒粒子の反応塔内にとどまる時間の関数であるので各塔内における時間の分布を知ることが最も大切である。しかしながら流動層における粉体の行動はあまりにも複雑であるので, 放射性同位元素が利用されるまでは触媒の行動状態を知ることはできなかった。接触分解触媒に関する研究は Esso Standard, Texaco, Shell など巨大石油会社がそれぞれその結果を発表しているがその一例として Shell では触媒混合状態, 活性低下過程, 触媒損失などについてつぎのような研究を行った^{15), 16), 17), 18)}。この研究に用いられる放射性同位元素としては再生塔におけるはげしい酸化条件に耐えかつ反応塔内における還元性高温に耐えねばならないということ, 検出器に対する感度の点から強い r 線を出すものでなければならないということなどから ^{46}Sc と ^{146}Ce が選ばれた。 ^{46}Sc の半減期は 85 day で安定な ^{46}Ti になる間に 1 個の β 線 (0.36 MeV) と 2 個の r 線 (0.89, 1.12 MeV) を出す。また ^{144}Ce の半減期は 275 day で 40% は 1 個の β 線 (0.17 MeV) と 1 個の r 線 (0.13 MeV) を出し, 残りの 60% は 1 個の β 線 (0.3 MeV) だけを放出し ^{144}Pr を經由してただちに安定な Nd になる。標識触媒は $^{46}\text{ScCl}_3$ を含む ScCl_3 の酢酸溶液中にシリカ-アルミナ触媒を加えてこれに吸着させて製造する。このものはマッフル炉中 1,800°F で 2 hr 加熱し高温の酸化条件に曝(さら)しても安定である。使用する 10 lb の触媒は injection vessel からいつたん装置内に混合されると装置表面の放射線の強さは 0.01mr/hr となつて夜光時計の出す放射線の 1% 程度に過ぎないので非放射性的の触媒と全く同様な取扱いを行つて差し支えない。図-3 は混入点, 試料採取点を示したものである。この結果から触媒の流れの不良箇所が明瞭となり装置の構造改良への指針が与えられた。

図-3 接触分解触媒混合状態の調査
(Shell 関係 3 工場)

流動接触分解装置では反応塔、再生塔の頂部から失われる微粉触媒のほかに温度、スチームその他の要因によって失われる触媒の活性低下を補うため、常時新触媒を補充しなければならない。この触媒の不活性化過程を調査することは問題が流動層であるだけに非常に困難であつたが放射性同位元素を利用し、新触媒に標識を付することによつてこの測定が可能となつた。この測定には $^{46}\text{ScCl}_3$, 37 mg を 25 ガロンの水に溶解し 90 lb の触媒を加えて ^{46}Sc を均一に吸着させて用いた。装置内の平衡触媒保有量 650 t に対し毎日 10 t の新触媒を添加し再生塔頂部からの損失は毎日 5.5 t あり反応塔の頂部からは毎日 0.2 t の損失があつた。したがつて 4.3 t は装置内触媒量を一定に保つために抜き出す必要があつた。前記 90 lb の触媒を 10 t の新触媒とともに添加し(これを標識触媒とする)添加後一定の日時をおいて触媒試料を抜き出し触媒の空隙(げき)容積*, 表面積, trapped voidなどを調査するとともに放射能の測定によつて数量的関係を計算した結果、不活性化の原因が判明したと報告されている。触媒の密度分布は適当な 2 種以上の液体の混合割合を変化させて調整した種々の密度の浮遊液に触媒を混じ、浮遊するものと沈降するものとに分離して測定するのであるが、触媒の空隙容積の一部が閉じられている場合とか、何かの物質により封じられていて浮遊液が入り込めない場合には実際の密度より小さい密度となつて浮遊する。この場合には、触媒の空隙容積のうち表面積の有効でない部分があり、この部分を trapped void と呼んでいる。触媒の添加後第 1 日目および第 29 日目に取つた試料のうち比較的密度の低い部分について放射能を測定した結果、第 1 日目のものがはるかに弱いことから浮遊の原因となる trapped void の生成は比較的緩慢に起ることがわかつた。しかしこの生成は触媒の寿命のある間中引き続いて起り、第 29 日目の試料では最も密度の小さい部分では有効表面積は少なく、trapped void は全空隙容積の 40% も占めている。

一方、空隙容積および表面積の変化に対しては浮遊液中で沈降する比較的密度の高い部分について調査が行われ、図-4 および 図-5 に示されるような結果が得られ

* 触媒粒内の気孔容積

ている。図-4 における斜線部分は標識触媒 95% の部分についての表面積、空隙容積関係の分布を示したもので、毎日添加されて平衡状態にある触媒の分布を示している全面積と比較すれば、第 1 日目で急激に表面積および空隙容積が変化していることがわかる。図-5 はこの減少状態をグラフ化したものである¹⁹⁾。

図-4 放射性触媒の不活性化

図-5 放射性触媒の不活性化

つぎに損失の問題であるが反応塔頂部からのものはスラリーとして回収されるが再生塔頂部からの触媒の損失はコントロールできないので作業費を増加する原因となる。この損失は濃度の低いことと微粒子であることのために測定は困難であり普通装置内残量から損失量を逆算している所が多い。しかしながら適当なスタックサンプラーの使用と放射性同位元素で標識する技術の発達によつて触媒の損失率および損失触媒の新旧を知る貴重な資料が得られるようになった。標識触媒は ^{46}Sc を ScCl_3 の形で用いシリカ-アルミナの上に吸着させた。この結果 Houston の接触分解装置では 30 日までの累積損失(c%) はつぎの(7)式で表わされることがわかつた。

$$c = 6.8 t^{0.25} \dots \dots \dots (7)$$

ここで t は injection からの時間を示す。

また Shellburn の装置では(8)式のとおりであり、最初の日の損失は 22% もあるが 3 日目には 6% に過ぎなくなることが認められた。

$$c = 4t^{0.5} \dots \dots \dots (8)$$

c) 化学分析

化学分析への応用は放射分析、希釈分析、放射化分析などがある。放射分析では A^+ を定量すべき成分とし AB が沈殿する成分とすると、既知量の B^- に一定量の標識元素 B^{*-} を混じ、 A^+ に対し過剰の $B^- (+B^{*-})$ を加え AB を分離したのち残存する B^- の量を B^{*-} の放射能から知り、計算で A^+ の量を求める定量法である。

希釈分析では分析しようとする成分の量を x 、標識成分の既知量を a 、 a の持つ放射能を A とすれば標識成分の比放射能 S は A/a で既知であり、標識成分を加えた希釈物の一部からこの成分を純粋に単離して測定した比放射能 S_0 は $A/(a+x)$ であることから (9) 式の S_0/S は既知であり x を求めることができる。

$$S_0/S = (a+x)/a \dots \dots \dots (9)$$

放射化分析では原子炉で活性化した放射性物質の半減期およびエネルギーの測定から成分を判定するもので、原油を照射してバナジウムを定量する、などがその例である。このほか従来 X 線吸収法が用いられていた原油中のイオウの定量に ^{55}Fe の放射線を利用すると精度もよく迅速に定量できる²⁰⁾、また β 線の後方散乱が原子番号の大きい元素ほど多いことを利用して TEL の定量も可能である。また水素の β 線吸収が他の元素の 2 倍あることおよび中性子の散乱の大きいことを利用して水素の定量を行うこともできる^{21), 22)}。さらにこの応用として炭化水素の C/H 比の値を測定することもできる。

d) 流液および漏れの測定

油井からの石油採取量を増すため油井に注入された水の地下における流れをたどり油井中への水の注入量、注入範囲などを知るために水に対する溶解度が高くかつ石油貯蔵設備に吸着されない性質をもつ ^{192}Ir 、 ^{103}Ru など白金系の放射性同位元素が用いられる²³⁾。100~200 mc の塩化物として使用し水中での濃度は数 ppm でよいことが報ぜられている。またコンクリートの下を通る水導管の漏れを知るのに ^{131}I を用いると簡単に知ることができる²⁴⁾。これなど半減期はわずか 8 day であるので放射能が残り危険を与える心配はない。さらに水溶性かつ半減期の短いものを使用し工場全廃水量を下流の水の放射能から知ることができる。

以上の応用を通じて一般的にいえることは、これらはそのほとんどすべてが放射能の与える危険量よりはるかに少量の放射性同位元素を使用して、ばく大な見掛容積を占める流体の量や成分を的確に知ることができる点からして今後の応用方面はますます拡大するであろうことである。

e) 石油製品の評価

潤滑油の性能を知るために試験エンジンのピストンリングなどをあらかじめ原子炉で放射化しておき、運転後廃油中のスラッジの放射能を測定して損耗の程度を記録する。放射性同位元素を利用することによって以前は数カ月を要したエンジンの摩耗試験がわずか数時間で行いえるようになった^{25), 26)}。部品の放射化には 1~4 週間を要するが、この間 ^{58}Fe は ^{59}Fe に変り ^{59}Fe は β 線および γ 線を出して ^{59}Co に変る。また自動車用ガソリンエンジンにおける点火センその他への炭素の沈着の問題を ^{14}C を用いて調査し、ヘキシルトルエン、ナフタ

リン、プロピルトルエンなどの重質芳香族を主とするある種の高沸点炭化水素の存在がこの問題の主因をなしていることなどが確認されている。このほか金属面に対する油膜の生成を測定することによって添加剤の効果を知らること、たとえば酸化防止剤には ^{35}S を、極圧添加剤には ^{14}C (ステアリン酸の形で) を、またさび止め剤には ^{45}Co などを使用して潤滑作用、さび止め作用の良否が判定されている。

IV. む す び

以上は現外までに行われた石油工業における放射性同位元素利用面の紹介であるがこれらを総括して現在までに各石油会社が発表した実用放射性同位元素の種類と応用例を表-4 に掲げる。ただし本表には単なる研究のための応用は除外してある¹⁰⁾。

表-4 石油会社の現場に実用している放射性同位元素

応 用 目 的	放射性同位元素の種類
1. ラジオグラフィー混合操作など一般	^{60}Co , ^{137}Cs
2. ラジオグラフィー油気管中の析出物	^{192}Ir
3. 触媒混合, 触媒損失	^{140}Ba , ^{144}Ce , ^{51}Cr , ^{86}Rb , ^{46}Sc , ^{60}Co , ^{198}Au
4. 触媒流動速度	^{132}I , ^{137}Ba , ^{46}Sc , ^{65}Zr
5. 液体流速, 液体混合	^{131}I , ^{132}I , ^{86}Rb , ^{82}Br
6. 熱交換器の漏れ	^{124}Sb , ^{24}Na , ^{82}Br
7. ガス流速	^3H , ^{82}Br
8. 飛マツ (沫) 同伴	^{140}Ba , ^{14}C , ^{124}Sb , ^{60}Co
9. グリース混合	^{132}I

これらのほとんどが化学工学的問題であるが、今後この方面に特に直接的な貢献がなされるものと期待している。

(昭和 32 年 10 月 4 日受理)

文 献

- 1) P.R. Hills, K.D. Kilburn, *Ind. Chemist*, No.389, 247 (1956)
- 2) V.J. Keenan, R.M. Lincoln, R.L. Rogers, *Am. Chem. Soc. Petrochemical Div. Meeting Report*, Sept. 17-21 (1956)
- 3) G. Weber, *Oil & Gas J.*, No. 26, 48 (1955)
- 4) G. Weber, *Oil & Gas J.*, No. 27, 66 (1955)
- 5) F.W. Lampe, *Am. Chem. Soc. Petrochemical Div. Meeting Report*, 2, No. 2, April (1957)
- 6) A.I. Snow, G.A. Uhl, *Am. Chem. Soc. Petrochemical Div. Meeting Report*, 2, No. 2, April (1957)
- 7) P. Riesz, K.E. Wilzbach, *Am. Chem. Soc. Petrochemical Div. Meeting Report* 2, No. 4, Sept. (1957)
- 8) H.A. Dewhurst, *Am. Chem. Soc. Petrochemical Div. Meeting Report* 2, No. 4, Sept. (1957)
- 9) *Oil & Gas J.*, No. 22, 71 (1957)
- 10) G.C. Gester, R.D. Lee, D.E. Hull, *Petroleum Processing*, No. 4, 550 (1953)
- 11) D.E. Hull, J.W. Kent, *Ind. Eng. Chem.*, 11, 2745 (1952)
- 12) W.H. King, *Am. Chem. Soc. Miami Meeting*

- Report*, April 7-12 (1957)
- 13) R.J. Heemstra, J.W. Watkins, F.E. Armstrong, *Am. Chem. Soc. Petrochemical Div. Symposium*, April 8-13 (1956)
 - 14) G. Weber, *Oil & Gas J.*, **69**, 99 (1956)
 - 15) E. Singer, D.B. Todd, V.P. Guinn, *Ind. Eng. Chem.*, **1**, 11 (1957)
 - 16) D.B. Todd, W.B. Witson, *Ind. Eng. Chem.*, **1**, 12 (1957)
 - 17) A.E. Handlso, R.W. Kunstmans, D.O. Schissler, *Ind. Eng. Chem.*, **1**, 25 (1957)
 - 18) A.J. Brandel, B.A. Fries, D.E. Hull, *Am. Chem. Soc. Petrochemical Div. Meeting Report 2*, No. 2, April (1957)
 - 19) W.B. Wilson, G.M. Good, T.J. Deahl, C.P. Brewer, W.G. Appleby, *Am. Chem. Soc. Petrochemical Div. Meeting Reprt*, April 8-13 (1956)
 - 20) H.K. Hughes, J.W. Wilczewski, *Anal. Chem.*, **12**, 1889 (1954)
 - 21) R.B. Jacobs, L.G. Lewis, *Oil & Gas J.*, **28**, 128 (1953)
 - 22) V.N. Smith, J.W. Otvos, *Anal. Chem.*, **2**, 357 (1954)
 - 23) P.H. Emmett, *Oil & Gas J.*, **28**, 82 (1953)
 - 24) W.A. Bachman, *Oil & Gas J.*, **28**, 134 (1955)
 - 25) L.J. Gorry, *Am. Chem. Soc. Petrochemical Div. Meeting Report*, **1**, No. 4, Sept. (1956)
 - 26) R. A. Mengelkamp, K. A. McCollom, C. E. Stoops, L.A. McReynolds, *Am. Chem. Soc. Petrochemical Div. Meeting Report 2*, No. 2, April (1957)

当協会に下記の交換、寄贈雑誌が到着しておりますから御利用下さい。

交 換 誌

東京工業試験所報告 Vol. 47, No. 1~Vol. 52, No. 8
 名古屋工業技術試験所報告 Vol. 1, No. 1~Vol. 6, No. 10
 機械試ニュース所報, 年報, 資料, 報告 (工業技術院機械試験所) 1952, No. 1~1957, No. 11
 繊維工業試験所彙報, 年報 (工業技術院繊維工業試験所) No. 29~42
 食糧研究所研究報告 (食糧庁, 食糧研究所) No. 8~12
 科学研究所報告 第 30 輯第 1 号~第 33 輯第 5 号
 ビタミン (日本ビタミン学会) Vol. 5, No. 1~Vol. 13, No. 5
 生産研究 (東大生産技術研究所) Vol. 5, No. 7~Vol. 9, No. 11
 岡山大学農学部学術報告 No. 2~10
 山梨大学工学部研究報告 No. 6~8
 北海道大学工学部報告 No. 10~15
 資源技術試験所報告 No. 35~39
 大阪工業奨励館報告 Vol. 3, No. 1~Vol. 9, No. 18
 日本油脂工業会・日本油剤工業会・会報, 年報, 1953, No. 8~1957, No. 8
 Journal of Tokyo University of Fisheries (東京水産大学) Vol. 39, No. 1~Vol. 43, No. 2
 (関係冊子不定期) The Library of Chalmers University of Technology (スウェーデン)
 Olii Minerali Grassi e Saponi Colori e Vernici (Stazione Sperimentale per le Industrie Degli Olii e Dei Grassi, Milano, イタリア) Vol. 31, No. 9,

Vol. 32, No. 2~Vol. 34, No. 9
 Grasas y Aceites (Instituto de la Grasa y sus Derivados, スペイン) Vol. 6, No. 1~Vol. 8, No. 4
 Fette Seifen Anstrichmittel (ドイツ) 1953 Vol. 54, No. 1~1957, Vol. 59, No. 10
 Journal of the American Oil Chemists' Society (アメリカ) 1954, Vol. 31, No. 4~1957, Vol. 34, No. 11
 Oléagineux, (Revue générale des corps gras et dérivés フランス) 1956, No. 1~1957, No. 11
 Prace Instytutów i Laboratoriów Badawczych Przemysłu Polonego i Spozywczego (ポーランド) 1955, 1~1957, 1~3
 Arquivos de Bromatologia (ブラジル) 1954, 1~4, 1955, 1~2, 1956, 1
 Журнал Прикладной Химии (ソビエット) 1957, Vol. 30, No. 1~No. 8

寄 贈 誌

名古屋工業大学学報 No. 6~7
 工業の進歩 (大阪府技術協会) 1955, No. 1~1957, No. 11
 三洋油脂ニュース (三洋油脂) No. 35~52
 日本水産株式会社研究所報告 No. 7~No. 8
 日本鉄板 (日本鉄板) No. 4~7
 第一工業製薬社報, No. 241~250