合成潤滑油りん酸エステル中の微量塩素の定量*

山内俊男**, 岡日出男**

Determination of Total Chlorine in Phosphoric Acid Esters Used for Synthetic Lubricants*

by Toshio Yamauchi** and Hideo Oka**

Summary: Determination of total chlorine in phosphoric acid esters by the Wickbold method, the Bomb method and the Sodium alcoholate method was studied and the following conclusions were obtained.

(1) The Wickbold method and the Bomb method are not suitable for the trace chlorine determination because of their difficulties in achieving perfect combustion and the ill effect of phosphoric acid ions produced by the combustion.

(2) The Sodium alcoholate method is effective in the trace chlorine determination, as it is able to treat the relatively large quantities of esters.

(3) An accuracy of the Sodium alcoholate method is shown below with the standard deviation ranging from 2.2 to 4.8.

(4) The commercially available new and used phosphoric acid esters were analyzed by the Sodium alcoholate method, and the results are satisfactory.

(5) This method is very simple and it took only 2 hrs to complete the analysis of any single sample, thereby assuring the rapidness and automation of this method.

1 ま え が き

合成潤滑油の一種であるりん酸エステルは、難燃性作動油として今日広く使われるようになってきている。

このりん酸エステルは合成法によって製造されるが、その過程で使用される塩素系化合物が、精製除去する努力にもかかわらず微量残存することがある。この微量塩素不純物は実装置の腐食に関与するといわれている。従ってその微量塩素をは握しておくことは、品質管理および実用上のトラブル防止の面からも重要である。

従来、塩素の定量方法は主として鉱油系の試料に対するものが多く、主な規格法としては、①酸水素炎燃焼法による吸光光度法¹⁾、②ランプあるいは酸水素炎燃焼法による吸光光度法²⁾、③ボンベ燃焼法による重量法³⁾、④Na-アルコラート法^{4),5)}、⑤けい光X線法⁶⁾などが知られている。酸水素炎燃焼法は、通称ウィックボルド法(Wickbold)とも呼ばれているもので、微量硫黄分を測定する際の水溶液化の方法としても使用されている。

これらの方法では、りん酸エステルのような合成潤滑油中の塩素の定量には適用外とされているが、Felsen および Gilbert⁷⁾ は、酸水素炎燃焼法における水素の代りにアルゴンガスを使用して、微量電量滴定によって定量する方法を示している。

る。

さて本報では、現在鉱油系に対して用いられている三つの方法の適用性を検討したので、以下その結果について報告する。

(1) 酸水素炎燃焼法による吸光光度法(UOP 606-66)

(2) ボンベ燃焼法による吸光光度法(ASTM D 808-63の重量法を吸光光度法とした)

(3) Na-アルコラート法(ASTM D 1317-64 および IP 118 に準拠した改良法)

2 実験方法と結果

2.1 ウィックボルド酸水素炎燃焼法(UOP 606-66)

2.1.1 実験試薬

(1) イソオクタン 試薬特級品をシリカゲル G 923 で精製したもの。

(2) 蒸留水 イオン交換後さらに蒸留したもの。

(3) 塩素標準液 10^{-6} g Cl/ml

特級塩化ナトリウム 0.1648 ± 0.0002 g を精ひょうし、蒸留水で 1 l 定容とする ($100 \mu\text{g Cl/ml}$)。この溶液 100 ml を分取し、蒸留水で 1 l 定容とする ($10 \mu\text{g Cl/ml}$)。

(4) 鉄明ばん溶液 0.25 M/9 M HNO₃

特級硫酸第二鉄アンモニウム 60.3 g を 500 ml フラスコに入れ、約 100 ml の蒸留水を加え、さらに特級濃硝酸 280 ml を加えた後蒸留水で 500 ml 定容とする。

(5) チオシアン酸第二水銀エチルアルコール飽和溶液

特級チオシアン酸第二水銀を特級エタノールに飽和状態になるように適量加える。

* 昭和 51 年 12 月 2 日受理

** 昭和石油株式会社中央技術研究所 (243-03 神奈川県愛甲郡 愛川町 中津字桜台 4052-2)

Central Research Laboratory, Showa Oil Co., Ltd. (4052-2 Sakuradai, Nakatsu, Aikawa-machi, Aiko-gun, Kanagawa 243-03)

Fig. 1 Wickbold Oxygen-Hydrogen Burning Apparatus

- (6) 濃硝酸および希硝酸 (1:1)
 (7) 炭酸ソーダ溶液 0.02 N
 (8) 水素ガスおよび酸素ガス 高純度のもの。
 (9) パラクロル安息香酸 有機微量分析研究懇談会委員会検定合格品。

2.1.2 装置および器具

- (1) ウィックボルド燃焼装置 図1に示すようなもので、東京科学精機(K.K)製、TS-L型および備品一式。
 (2) 分光光度計 日立 101 型
 (3) 吸収セル 10 mm×20 mm
 (4) ホットプレート 電気ヒーター式
 (5) その他、ビーカー、ピペット、ネスラー管、メスフラスコ、時計皿、ガラス棒など。

2.1.3 定量方法

(1) 定量方法の概略

溶媒で希釈した試料をウィックボルド燃焼装置で燃焼させ、生じた Cl ガスを炭酸ソーダ溶液に吸収させ、塩化物にかえる。この吸収液を濃縮した後、鉄明ばん溶液とチオシアン酸第二水銀溶液を加えて発色させ、波長 460 nm における吸光度を測定し、あらかじめ作成した検量線からこの吸光度に対する Cl 濃度を求める。空試験も同様にして行いその値を補正する。

(2) 検量線の作成

Cl 標準液を 0.5, 1.0, 2.0, 4.0, 6.0, 8.0 および 10 ml ずつ正確に分取し、50 ml ネスラー管に入れ、水を加えて約 20 ml とし、鉄明ばん溶液 2.0 ml、チオシアン酸第二水銀飽和溶液 2.0 ml を加え、良く振り混ぜた後水を加えて 25 ml とする。約 10 分後 460 nm における吸光度を測定する。空試験は 20 ml の水に試薬を加えて発色させその吸光度を測定する。各 Cl 濃度の吸光度から空試験のそれを引いた正味の吸光度を求め、各 Cl 濃度に対してプロットし検量線を作成する(分析ごとに)。

(3) 定量操作

試料約 1 g を精ひょうし、イソオクタン 60 ml で溶かして、0.02 N 炭酸ソーダ溶液を吸収液にしてウィックボルド燃焼装置で燃焼させる。燃焼後装置内を蒸留水で洗浄し、500 ml ビーカーに洗い流し、希硝酸で中和後約 40 ml になるまでゆるく煮沸しながら濃縮する。濃縮液を 50 ml 定容にして、これの 20 ml をネスラー管に分取し、発色液を加えて発色させ、460 nm における吸光度を測定する。空試験は、イソオクタン 60 ml を同様に燃焼させ、吸光度を測定する。検量線から空試験の吸光度を引いた正味の吸光度に対する Cl 値(μg)を求め、次式より Cl 濃度(ppm)を計算する。

$$\frac{2.50 C}{W} = \text{Cl, (ppm)}$$

C: 発色液 25 ml における Cl, (μg)

W: 試料量 (g)

(4) 問題点とその対策

上述した定量方法と検量線を用いて実際にりん酸エステル中の Cl を分析したところ、鉱油系の場合とは違った、問題点となる二つの現象が見られた。

その第一は、りん酸エステルがやはり難燃性故に、少量の試料を多量の溶媒で希釈しなければ完全燃焼しないということ。それにも増して一番問題となった第二の点は、実試料と空試験(イソオクタン)の吸光度が、空試験の方が大きく、装置などの汚れなどによるものではないということがわかった。

第一の問題は、鉄明ばん-チオシアン酸第二水銀溶液による発色法が、比較的低濃度でも感度が良いことから、第二の点が解決されればそれほど問題にならないことがわかった。

第二の問題は、単なる金属を含まない普通の炭化水素の完全燃焼では、CO₂ と H₂O だけが生成するが、りん酸エステルの場合はその他にりんと酸素を含むので、主としてこのりんが燃焼によって単なるりんとして排出されるのではなく、酸化をうけてりん酸イオン(PO₄³⁻)となり、吸収液に吸収され発色を妨害すると推定された。

この問題は種々調査、検討の結果、上記発色法では色々な金属や陰イオンによる妨害を受け、その中に PO₄³⁻ も含まれていることがわかった⁹⁾。

そこで、実際にりん酸エステルを燃焼させた時の吸収液についてりんを定量(潤滑油中のりんの定量法と同じ吸光度法⁹⁾)したところ、試料によってパラツキはあるが、約 6.5 wt% (PO₄³⁻として約 20 wt%) あり、りん酸エステルそのもののりん含有量の約 80% が吸収されていることがわかった。

そのため、その対策として、1) りん濃度を変えた時の吸光度の減少傾向をみるため、何点かの一連の Cl 濃度の水溶液に、りん濃度を 6 点変えてりんを添加(KH₂PO₄として)した実験と、2) りんの添加量が異なる時、Cl の検量線がどのように変化するかを調べるため、一連の Cl 濃度の水溶液に日常遭遇するりん濃度、55 mg/50 ml、70 mg/50 ml、および 90 mg/50 ml をそれぞれ一定量添加し、検量線を作成する実験を行った。

その時の結果は、1) を表 1 に、2) を図 2 に示したが、1) の実験では、りんの添加量が増加するにつれて多少のパラツキはあるが吸光度は減少する傾向を示し、Cl を含まないブランクでもその傾向がみられる。2) の実験では、1) でもわかった

Fig. 2 Calibration Curves for Determination of Chlorine

Table 1 Effect of Phosphoric Acid Ion on the Intensity of Absorbance in the Determination of Chlorine

Cl, μg	P, mg	0	0.9	2.7	9	27	90
0		0.120	0.126	0.127	0.128	0.112	0.063
71		0.447	0.458	0.460	0.460	0.387	0.195
142		0.724	0.722	0.733	0.668	0.586	0.291

ように、リンの添加量が増加するにしたがって検量線のこう配が小さくなるのがわかる。

これらの結果から、実際の定量分析では図2に示した検量線を使用することとした。リンの補正は、分析試料が同一銘柄であるときは実機使用時間数が異なっても、ある1回のリンの定量値をそのまま共通に使用した。また、各市販品を何回か繰り返した場合でも上記と同じ方法をとった。

なお、リンを添加する方法では、鉄明ばん液を4 ml とし、30 ml 定容とした。また、対照液には蒸留水にりん液（りん濃度は実試料を分析した時の50 ml 中のmg数、約55 mg ~ 70 mg/50 ml）を加え、さらに鉄明ばん溶液4 ml とチオシアン酸第二水銀溶液2 ml 加えたものを使用した。空試験の場合も吸収液に対照液の時と同一量のりん液と発色液を加えて測定した。表1で KH_2PO_4 を添加したが、燃焼時の吸収液については、P分として定量するので PO_4 値として表示しなかった。

2.1.4 定量結果

次に示す試料について定量分析を行った。

(1) 市販りん酸エステルに吸着剤を通して精製したもの（以下、精製油Aと略す、その吸光度は空試験の時と同じ）に、パラクロル安息香酸を添加したCl 10 ppm と 20 ppm の標準試料。

(2) 市販品試料Bと精製油Aで1対、2対、6対および12対1に希釈した試料。

(3) 市販品試料Cの新油と実機使用油。

以上の試料について分析した結果は表2に示すとおりであ

Table 2 Determination of Chlorine in Various Phosphoric Acid Esters (Wickbold Method)

Sample	Cl, ppm	1st	2nd	3rd	Average
Standard Sample-1 (Cl, 10 ppm)		35	34	30	30
Standard Sample-2 (Cl, 20 ppm)		32	29	36	32
Sample-B		69	85	53	68
Diluted by Chlorine Free Ester 1:1		113	31	—	72
"	1:2	66	25	—	46
"	1:6	27	31	—	29
"	1:12	33	25	—	29
Sample-C		110	38	59	69
Used Oil-1		41	73	28	47
" -2		68	63	94	75
" -3		43	27	69	46
" -4		31	66	25	40

る。表2から、全体的には各試料内でのデータのバラツキが大きい。Cl 10 ppm と 20 ppm の両標準試料については、バラツキは小さいが、全く標準値とかけ離れた分析値が得られた。結局、以上の結果から、信頼性のあるデータは得られないと判断されたので、やむなく中止せざるを得なかった。

2.1.5 考察とむすび

ウィックボルド法の、鉄明ばん-チオシアン酸第二水銀溶液によって発色させ比色定量する方法は、きわめて高感度で微量の塩素の定量に適した方法であるが、りん酸エステルが燃えにくいこと、従って大量希釈によって燃焼後の水溶液量が増大し、その濃縮に長時間要すること、および燃焼によって生じたりん酸の影響を受けることなどから種々検討を加えたが、他に望ましい方法があれば必ずしも適した方法ではないと判断され中止した。

2.2 ボンベ燃焼法 (ASTM D 808-63)

2.2.1 実験試薬

- (1) 2.1.1 の実験試薬 (2)~(6) に同じ。
- (2) 炭酸ナトリウム溶液 50 g/l l.
- (3) 酸素ガス 高純度のもの。

2.2.2 装置および器具

- (1) ボンベ燃焼装置一式。
- (2) 試料皿石英およびステンレス。
- (3) 2.1.2 の (2)~(5) に同じ。

2.2.3 定量方法

(1) 定量方法の概略

酸素を圧入したボンベ中で試料を燃焼させ、生じた塩素ガスを炭酸ナトリウム溶液に吸収させ、塩化物にかえる。この吸収液を濃縮した後、ウィックボルド法と同様の操作を行って定量する。

(2) 検量線の作成

2.1.3 (1) に同じ。

(3) 定量操作

試料約1 g を試料皿に精ひょうし、ASTM D 808-63 に準じて燃焼させる。燃焼後、ボンベ内、試料皿およびふたの内面を蒸留水で洗浄し、洗液を500 ml ビーカーに移し、その後はウィックボルド法と同様に発色させ、吸光度を測定する。

(4) 問題点とその対策

上述した定量方法と検量線を用いて、実際にりん酸エステル

中の塩素分を定量したところ, ウィックボルド法と同じく二つの問題点がみられた。

第一の問題は, ASTM 法では燃焼後内部に未燃油又はすすが少しでも残った場合は, ボンベを清浄にして試験をやり直すところがあるが, りん酸エステルの場合は試料量を少なくしてもすすが残り, ある時には未燃油も残った。ステンレス皿の場合は全て皿の表面がはく離し, 水洗すると白濁する現象がおきた。

第二の問題は, ウィックボルド法の第二の問題点と全く同じ現象がみられた。

第一の問題は, やむを得ず石英皿の場合は燃焼後の洗液を No. 5 A のろ紙でろ過し, ステンレス皿の場合は洗液を No. 5 A のろ紙でろ過した後ある程度濃縮し, 再び No. 5 C のろ紙でろ過して前述の定量方法に従って定量した。

第二の問題は, ウィックボルド法の第二の問題点と同じと考え, 同様の操作を行って定量した。

2.2.4 定量結果

次に示す試料について定量分析を行った。

- (1) 2.1.4 の (1) の精製油 A。
- (2) 2.1.4 の (2) の試料 B と市販品試料 D。
- (3) 2.1.4 の (3) の試料 C の新油。

以上の試料について分析した結果は表 3 に示すとおりである。表 3 から, 試料 B と C についてはバラツキが小さかった。試料 A と D については, バラツキが大きく試料 A の石英皿の場合は, りんを添加したブランク値より低い値が出た。

以上の結果から, 信頼性のあるデータは得られないと判断され, やむなく中止せざるを得なかった。

2.2.5 考察とむすび

ウィックボルド法でも述べたように, りん酸エステルが完全に燃焼しないこと, 燃焼によって生じたりん酸の影響を受けることなどから, この方法は必ずしも適した方法ではないと判断され中止した。

2.3 Na-アルコラート法 (ASTM D 1317-64 および IP 118 に準拠した改良法)

2.3.1 実験試薬

- (1) 金属ナトリウム 化学用棒状のもの。
- (2) *n*-ブチルアルコール 市販特級品
- (3) 蒸留水 2.1.1 に同じ
- (4) 希硝酸 (1:7)
- (5) *n*-ヘキサン 市販特級品
- (6) 鉄明ばん溶液 2.1.1 に同じ
- (7) イソアミルアルコール 市販特級品
- (8) N/10 硝酸銀溶液
- (9) N/20 チオシアン酸アンモニウム溶液
- (10) バラクロル安息香酸 2.1.1 に同じ

Table 3 Determination of Chlorine in Various Phosphoric Acid Esters (Bomb method)

Sample Cl, ppm	A	B	C	D
1st *1	—*3	77	3	5
2nd *2	6	83	3	37

*1 Using Quartz dish

*2 Using Stainless steel dish

*3 Obtained lower Absorbance value than blank absorbance Value

2.3.2 装置および器具

- (1) 還流器一式
- (2) 10 ml, 1 ml 自動ビュレット
- (3) その他, メスシリンダー, 分液漏斗, 共栓付三角フラスコなど

2.3.3 定量方法

(1) 定量方法の概略

試料に *n*-ブチルアルコールと金属ナトリウムを加えて, 試料中の Cl を NaCl として生成させ, その NaCl を含む酸性試料溶液に過剰の硝酸銀溶液を加えて塩化銀を沈殿させ, 鉄明ばん溶液 (Fe³⁺) を加えた後, チオシアン酸アンモニウム溶液で逆滴定して, Fe³⁺ と CNS⁻ による赤色錯イオン Fe(CNS)⁻³ を終点として読みとり定量する。

(2) 定量操作

試料約 20 g を精ひょうして, *n*-ブチルアルコール 20 ml, 金属ナトリウム (1 g ± 0.2 g) を加えて 2 時間空気還流させる。還流後蒸留水 30 ml で還流器を洗浄して, 室温まで放冷後分液漏斗に移す。希硝酸 50 ml, *n*-ヘキサン 50 ml を加え 30 秒間激しく振る。三角フラスコを蒸留水 25 ml で 2 回洗浄し分液漏斗に移し, *n*-ヘキサン層を洗浄し滴定溶液を作る。この溶液に鉄明ばん溶液 4 ml, イソアミルアルコール 10 ml 加えた後, N/20 チオシアン酸アンモニウム溶液 0.5 ml 加え, N/10 硝酸銀溶液で滴定し, 過剰に加える (計 5.0 ml とした)。最終的には N/20 チオシアン酸アンモニウム溶液で逆滴定し, 内容物が淡かっ色となったところを終点として目盛を読みとる。空試験は *n*-ブチルアルコール 20 ml と金属ナトリウム 1 g ± 0.2 だけで同様の操作を行った。試料と空試験の滴定量から次式により Cl 含有量を算出する。

$$\frac{(C-B) \times N \times F \times 35.46}{10 W} = \text{Cl, (wt\%)}$$

B: 試料の滴定に要したチオシアン酸アンモニウム溶液の滴定量 (ml)

C: 空試験の滴定に要したチオシアン酸アンモニウム溶液の滴定量 (ml)

N: チオシアン酸アンモニウム溶液の規定度

F: チオシアン酸アンモニウム溶液の Factor

W: 試料量 (g)

(3) 標準試料

2.1.4 の (1) の精製油 A にバラクロル安息香酸を添加した Cl, 17, 33, 50 ppm の試料を作り, これらを標準試料として定量した。結果を表 4 に示す。標準偏差は平均値を基準とした。

表 4 より試料-1 は最大値 17 ppm, 最小値 11 ppm, 平均値は 14 ppm で, 試料-2 は二つ飛び離れた値が出たが, 試料をまちがえたのか原因がはっきりしない。飛び離れた二つの値を棄却した最大値は 34 ppm, 最小値 27 ppm, 平均値は 31 ppm となった。試料-3 は最大値 54 ppm, 最小値 38 ppm, 平均値は 46 ppm となった。

この表より, 3 点だけ計算より若干多いが, 他の全ては計算値と同じかそれ以下の値が出ている。又平均値も計算値より小さい値になった。小さい値が出るということは, チオシアン酸アンモニウム溶液の滴定量が計算値より多いということである

Table 4 Determination of Chlorine in the Standard Sample (Sodium alcoholate method)

No.	Sample	17 ppm	33 ppm	50 ppm
1		13	31	52
2		15	27	46
3		15	32	48
4		13	17*	38
5		13	18*	46
6		13	32	45
7		11	29	54
8		17	32	48
9		17	29	40
10		11	34	45
Average or mean		14	31	46
Deviation		-3	-2	-4
Standard Deviation		2.16	2.27	4.83

が、今回は最初 10 ml のビュレットで滴定し、終点付近に達した時 1 ml のマイクロビュレットで滴定したが、1 滴が 0.03 ml 入る。20~30 ppm の値を出す時 1 滴で 3~4 ppm の差が出るので、終点付近になった時 1/3 滴か 1/2 滴をビュレットの先に付けて蒸留水で洗い落として滴定した。この滴定法は終点が見にくいということがある、滴定の際滴定液が若干多くなったためと思われる。

以上の結果から、日常潤滑管理する場合には支障がないと思われたので、実際のりん酸エステル試料について分析した。

2.3.4 定量結果

次に示す試料について定量分析を行った。

(1) 2.2.4 の (2) の試料 B, D の新油と実機使用油。

(2) 市販品試料 E の新油

(3) 2.1.4 の (3) の試料 C の新油と実機使用油。

以上の試料について分析した結果は表 5 に示すとおりである。表 5 より試料 B と C については、最高 10 ppm 程度の差が出たが、使用油の場合は n -ヘキササン層を分離する時に黒っぽい物がからんで、完全に分離されない時があった。

新油については、主に市販品試料 C は、12~16 ppm と安定した結果が得られた。空試験は終点もはっきりし、毎回ほぼ同じ滴定量だった。

また、参考のために鉱油系ベースオイルにパラクロル安息香酸を添加して Cl, 10 ppm と 30 ppm の試料を作り、同様の操作で定量した。その結果を表 6 に示す。この場合も計算値より低い値が出たが、りん酸エステルの時と同じ結果によるものと

Table 5 Determination of Chlorine in Various Phosphoric Acid Esters (Sodium alcoholate method) (ppm)

No.	1	2	3	Average
Sample				
Sample-B New oil	23	—	—	23
Sample-B Used oil	23	17	23	21
Sample-C New oil	16	12	14	14
Sample-C Used oil				
100 hr	10	7	17	11
200 hr	20	10	11	14
300 hr	10	12	9	10
Sample-D New oil	21	24	—	22.5
Sample-D Used oil	23	26	31	27
Sample-E New oil	82	—	—	82

Table 6 Determination of Chlorine in the Petroleum Sample

No.	1	2	3	Average
Sample				
10 ppm	8	6	11	8
30 ppm	27	24	28	26

思われる。

又、赤外分光分析で PCB の混入が確認されたりりん酸エステルについて Cl 分を測定し、PCB の量を推定したところ、液体クロマトで推定した PCB 量 1.6 wt% に対し、本法で Cl 分を測定し PCB 量を計算した値は 1.2 wt% であった。従ってこのような試料にも適用できるのではないと思われる。

今回の実験は ASTM D 1317-64 と若干違った操作で行ったが、ASTM の場合は鉱油系潤滑油またはグリースの場合の Cl 定量法で、しかもパーセントオーダーの方法であるが、今回の実験のような ppm 単位の塩素を含むりん酸エステルについても十分適用できると思われる。

2.3.5 考察とむすび

ASTM D 1317-64 および IP 118 に準拠し、ナトリウムアルコラート法によってりん酸エステル中の Cl 分を定量した結果、実機使用油については例えば、平均 11 ppm に対して ± 5 ppm のバラツキを示すものもあるが、新油については、いずれも平均値の ± 2 ppm 以内のバラツキで分析し得た。以上の結果より、ナトリウムアルコラート法は十分適用できると思われる。

3 結 論

(1) 合成潤滑油の一種であるりん酸エステル中の Cl 定量法についてウィックボルド法、ボンベ法、Na-アルコラート法について検討した結果、前二法はやはり難燃性であるということ、また燃焼によって生じたりん酸の影響を受けることなどから、必ずしも適当な方法ではないと判断された。

(2) Na-アルコラート法は、チオシアン酸アンモニウム溶液による滴定のとき終点が判定しにくいということがあるが、1 回で分析し得る試料量が、他の二法に比べて比較的多量に処理し得るので、Cl 含有量が微量の場合有効であると考えられる。

(3) 実際の試料を定量した場合、実機使用油について例えば、平均 11 ppm に対して ± 5 ppm のバラツキを示すものもあるが、新油についてはいずれも平均値の ± 2 ppm 以内のバラツキで分析し得た。従って、日常製品の品質管理の面から十分にこの方法が適用できると思われる。

謝 辞

終りに、本研究の発表を許可された昭和石油 (株) に厚く感謝の意を表す。また、懇切な御指導を賜った工学博士木下真清所長ならびに工学博士藤田 稔課長に厚く感謝の意を表す。

引 用 文 献

- 1) UOP 606-66.
- 2) ASTM D 2384-68.
- 3) ASTM D 808-63.
- 4) ASTM D 1317-64.
- 5) IP 118.
- 6) Motil, B.E., *Anal. Chem.*, **34**, 1731 (1962).
- 7) Felsen, M.J., Gilbert, W., *Lub. Eng.*, **30**, 506 (1974).
- 8) 内海, 日化, **73**, 838 (1952).
- 9) ASTM D 1091-64 に準拠.