

# アルミニウムの陽極酸化に関する研究 (第 I 報) ※

スルホサリチル酸等を含む硫酸浴による  
アルミニウムの陽極酸化

横 山 辰 雄                      西 部 慶 一  
新 美 洪 一

Studies on The Anodic Oxidation of Aluminum (I)

Anodic Oxidation of Aluminum in Aqueous Solutions  
Containing Sulfuric Acid and Some Organic Acids

Tatsuo YOKOYAMA              Keiichi              NISHIBE  
Kooichi                      NIIMI

Anodic oxidation of aluminum in aqueous solutions containing sulfuric acid and one of various organic acids was examined.

The organic acids used were sulfosalicylic acid, salicylic acid, benzoic acid and benzenesulfonic acid.

Use of sulfosalicylic acid had been a patent of Kaiser Aluminium & Chemical Corporation.

Results obtained were as follows:

Brownish yellow and abrasion-resistant oxide layers were obtained by using sulfosalicylic acid.

Additions of salicylic acid and benzoic acid were not effective.

Pale yellow or brown colored but not abrasion-resistant oxide layers were obtained by using benzenesulfonic acid.

## 1. 緒 言

アルミニウムの酸化皮膜表面に着色する方法は、従来種々研究されて来ている。例えば予め酸化皮膜を付けたアルミニウムを有機染料で染色する方法、第二鉄の酸化物乃至その水和物を陽極酸化皮膜の穴に析出させる修酸第二鉄の加水分解法<sup>1)</sup>、不溶性無機化合物を付けて着色する方法等がある。

しかし、これらの方法は予め酸化皮膜を付けて置く必要があり、多段階の操作を必要とし煩雑である。

Kaiser Aluminium & Chemical Corporation は硫酸—スルホサリチル酸の電解浴を用いて陽極酸化及び着色を一段階で行ない特許を得ている。

著者らは此の方法に関する事実の詳細を知り、尚サリチル酸、安息香酸、ベンゼンスルホン酸等の基礎的な芳香族酸を加えた場合も考察する目的で、此の実験を行った。

## 2. 実験方法

### 2.1. 試薬及び装置

#### 2.1.1. 試薬

硫酸、スルホサリチル酸、サリチル酸、安息香酸、ベンゼンスルホン酸等使用した試薬は試薬一級品を用いた。

#### 2.1.2. 陽極 (試料)

市販アルミニウム (2S) を 40×200mm の長方形に

切断した。(厚さは 0.5mm であった。) 此れを図一 i に示したような形に、加熱乾燥コイルワニスで被覆し 10cm<sup>2</sup> だけ金属面を露出させた。

### 2・1・3. 陰極

白金板(20×50×0.5 mm)を使用した。

### 2・1・4. 電源

直流はセレン整流器、交流は市販 110Volt の交流を変圧器で調整して使用した。

### 2・1・5. 膜厚測定器

理化学研究所製の静電容量測定型を使用した。

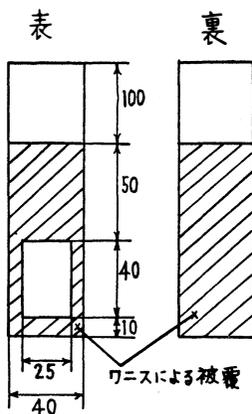
### 2・1・6. 耐食性及び耐摩耗性測定装置

J.I.S.<sup>3)</sup> に従って製作した。

## 2・2. 実験操作

### 2・2・1. 試料の前処理

10%苛性ソーダ水溶液 (65~75°C) に30秒浸け流水で洗い、20%硝酸 (室温) に30秒浸けた後流水で洗滌直ちに電解に供した。



図一 i

### 2・2・2. 電解操作

種々の濃度の硫酸溶液 (2%, 10%, 18%etc.) 300 mlを電解浴に使用する 300ml容量のビーカーに取り、その中に所要の添加物 (スルホサリチル酸、サリチル酸、安息香酸、ベンゼンスルホン酸の中の一種類) を所要量加えて電解浴を調整した。

電解時間はすべて60分とした。

陰極と陽極は間隔 5cmで平行に対立させた。

電流密度は 3.0, 5.0, 7.0Amp/dm<sup>2</sup>の3種類とし、摺動抵抗を用いて一定となるように調節した。

電解中はマグネチックスターラーを用いて終始攪拌した。

浴の外側を冷却水で囲み、浴の温度を出来るだけ 20°C に保つようにした。しかし高電圧を要する場合は 20°C を越えることもあった。

試料は電解終了後直ちに流水にて洗滌し、室温で自然乾燥させた。

### 2・2・3. 膜厚、耐食性、耐摩耗性の測定

J.I.S.<sup>4)</sup> に従って行った。

## 3. 実験結果

### 3・1. 硫酸—スルホサリチル酸

スルホサリチル酸は水、アルコール、エーテルに非常に良く溶ける白色結晶であり溶液は無色透明であ

表一 I 硫酸—スルホサリチル酸

硫酸濃度 (%)	硫酸溶液 1ℓ に加えたスルホサリチル酸の g 数	電流密度 (Amp/dm <sup>2</sup> )	浴電圧 (Volt)		厚さ (μ) (ダイヤル目盛)	耐食性 (秒)	耐摩耗性 (秒)	皮膜の状況
			開始	最終				
2.0	100	D.C. 3.0	23	30	20以上 (4.8)	1200以上	5400以上	薄い黄褐色 平滑均一
"	"	D.C. 5.0	24	68	20以上 (3.8)	"	"	黄褐色 平滑均一
"	"	D.C. 7.0	25	71	20以上 (3.4)	"	"	褐色 平滑均一
"	"	A.C. 3.0	20	22	8.0 (23.0)	10以下	47	無色透明 平滑
"	"	A.C. 5.0	28	29	13.0 (13.9)	27~32	470	少し黄色 平滑
"	"	A.C. 7.0	30	34	18.0 (10.7)	36~42	1850	黄色 平滑
10	1.7	D.C. 3.0	19	19	20以上 (3.4)	600以上	1800以上	乳白色 平滑
"	"	D.C. 5.0	20	21	20以上 (2.7)	"	"	灰色 ひび割れ
"	"	D.C. 7.0	21	30	20以上 (3.6)	"	"	灰色 むらあり ひび割れ
"	"	A.C. 3.0	11	11	20 (9.7)	25~30	"	無色透明 平滑
"	"	A.C. 5.0	14	16	20以上 (7.6)	85~90	"	乳白色 平滑
"	"	A.C. 7.0	15	21	20以上 (5.0)	160~170	"	淡黄色 むらあり

〃	100	D.C. 3.0	18	19	20以上 (3.0)	600以上	〃	灰色 平滑
〃	〃	D.C. 5.0	19	30	20以上 (3.3)	〃	〃	灰色 ひび割れ
〃	〃	D.C. 7.0	21	40	20以上 (2.8)	〃	〃	暗い灰色 ひび割れ
〃	〃	A.C. 3.0	17	20	20 (9.5)	10以下	125	透明な地に銀色の 斑点
〃	〃	A.C. 5.0	21	29	20以上 (5.7)	17~20	285	薄い黄色 むら多い
〃	〃	A.C. 7.0	34	36	20以上 (4.1)	56~63	1525	薄い黄色 むら多い
18	1.0	D.C. 3.0	15	16	20以上 (3.6)	600以上	3600以上	乳白色 平滑
〃	〃	D.C. 5.0	17	25	20以上 (3.0)	〃	〃	薄い灰色 平滑
〃	〃	D.C. 7.0	17	30	20以上 (2.5)	〃	〃	薄い灰色 ひび割れ
〃	〃	A.C. 3.0	14	14	20 (9.4)	30~33	350	無色透明 平滑
〃	〃	A.C. 5.0	20	20	20以上 (7.0)	57~61	3400	淡黄色 むらありやや平滑
〃	〃	A.C. 7.0	21	21	20以上 (5.6)	68~71	3550	明るい黄色 平滑
〃	10	D.C. 3.0	14	17	20以上 (4.1)	600以上	3600以上	乳白色 平滑
〃	〃	D.C. 5.0	17	25	20以上 (3.4)	〃	〃	薄い灰色 少しひび割れ
〃	〃	D.C. 7.0	17	33	20以上 (5.3)	〃	〃	灰色 ひび割れ
〃	〃	A.C. 3.0	7	7	20 (9.8)	10以下	2800	無色透明 平滑
〃	〃	A.C. 5.0	10	10	20以上 (6.7)	50~63	2700	少し黄色 平滑
〃	〃	A.C. 7.0	12	16	20以上 (8.0)	56~62	3180	薄い黄色 平滑
〃	20	D.C. 3.0	15	16	20以上 (4.2)	600以上	3600以上	乳白色 平滑
〃	〃	D.C. 5.0	16	24	20以上 (4.1)	〃	〃	薄い灰色 平滑
〃	〃	D.C. 7.0	17	38	20以上 (4.2)	〃	〃	薄い灰色 ひび割れ
〃	〃	A.C. 3.0	7	11	10.6 (16.3)	10以下	21	一部黄色 むら多い
〃	〃	A.C. 5.0	10	16	21.7 (9.1)	30~34	200	黄色、一部無色
〃	〃	A.C. 7.0	11	17	20以上 (7.5)	17~25	100	黄色 むらあり
〃	50	A.C. 3.0	12	15	3以下 (44.5)	10以下	0	無色透明 平滑
〃	〃	A.C. 5.0	16	20	8.6 (21.6)	11~16	110	無色透明 平滑
〃	〃	A.C. 7.0	18	22	9.0 (18.9)	11~15	70	黄色 むら多し

る。

### 3・1・1. 硫酸濃度2.0%の場合

直流の場合、スルホサリチル酸 100g を硫酸溶液1ℓ  
に加え、陽極電流密度 3.0Amp/dm<sup>2</sup> では皮膜は黄色

がかった褐色となった。電流密度を大きくすると褐色  
が濃くなる。皮膜はどれも 20μ以上の厚さを持ち、耐  
食性、耐摩耗性も非常に良い。しかし浴電圧は 5.0  
Amp/dm<sup>2</sup> では 68Volt, 7.0Amp/dm<sup>2</sup> で 71Volt に達し

温度を低く保つ事は困難になってくる。浴の色は殆んど変らない。

交流の場合、電流密度を増せば皮膜は黄色を帯びて来る。しかし皮膜の性質は余り良くない。浴の色は3.0Amp/dm<sup>2</sup>では黄色に、5.0Amp/dm<sup>2</sup>以上では黄褐色に着色する。又白金陰極に黄色の析出物があり指でこすると取れる。

### 3・1・2. 硫酸濃度10%, 18%の場合

直流の場合、スルホサリチル酸の添加量を変化させても硫酸だけの場合と大差がなく灰色を主とした皮膜

を生ずる。

交流の場合、スルホサリチル酸の添加量の少ないところ(1.0g, 10g etc.)では硫酸だけの場合と良く似た状態である。添加量が多いところ(20g以上)では黄色い斑点や黄色の面が出来るが均一性に欠ける。この場合も浴自体黄色乃至褐色に着色する。

### 3・2. 硫酸—サリチル酸

サリチル酸は水に20°Cで0.22の溶解度を持つ針状結晶である。溶解度以上加えた場合は一部液中に懸濁し大部分は浴面上に浮いている。

表—II 硫酸—サリチル酸

硫酸濃度 (%)	硫酸溶液1ℓに加えたサリチル酸のg数	電流密度 (Amp/dm <sup>2</sup> )	浴電圧 (Volt)		厚さ(μ) (ダイヤル目盛)	耐食性 (秒)	耐摩耗性 (秒)	皮膜の状況
			開始	最終				
2.0	3.3	D.C. 7.0	25	30	20以上 (6.6)	1200以上	3600以上	黒灰色 やや平滑
"	"	A.C. 7.0	50	80	17.0 (11.2)	45~52	1760	乳白色 平滑
10	20	D.C. 3.0	20	20	20以上 (2.7)	600以上	1800以上	明るい灰色 平滑
"	"	D.C. 5.0	20	25	20以上 (3.3)	"	"	灰色 ひび割れ
"	"	D.C. 7.0	25	35	20以上 (3.7)	"	"	暗い灰色 ひび割れ
"	"	A.C. 3.0	18	20	19.5 (10.3)	0	42	透明な地に灰色の 斑点
"	"	A.C. 5.0	19	27	20以上 (6.4)	10~15	290	透明な地に金色の 点
"	"	A.C. 7.0	20	33	20以上 (7.0)	25~30	73	乳白色に金色の析 出物
18	1.0	D.C. 3.0	15	16	20以上 (4.6)	600以上	3600以上	乳白色 平滑
"	"	D.C. 5.0	17	22	20以上 (3.2)	"	"	薄い灰色 ひび割れ
"	"	D.C. 7.0	17	26	20以上 (4.1)	"	"	薄い灰色 ひび割れ
"	"	A.C. 3.0	11	13	9.5 (18.0)	10以下	0	黄色の細かい斑点 さらさらする
"	"	A.C. 5.0	12	13	20以上 (7.1)	14~20	60	"
"	"	A.C. 7.0	13	15	20以上 (7.2)	30~43	100	"
"	20	D.C. 3.0	15	16	20以上 (4.6)	600以上	3600以上	乳白色 平滑
"	"	D.C. 5.0	17	18	20以上 (4.4)	"	"	薄い灰色 平滑
"	"	D.C. 7.0	17	19	20以上 (5.6)	"	"	"
"	"	A.C. 3.0	8	13	2.9 (38.8)	10以下	0	無色透明 平滑
"	"	A.C. 5.0	14	14	20以上 (8.2)	10~15	0	黄色の細かい斑点 さらさらする
"	"	A.C. 7.0	15	15	8.4 (21.2)	16~19	35	黄色の大きな斑点 凸凹

## 3・2・1. 硫酸濃度2.0%の場合

直流の場合、黒灰色の少しむらのある皮膜が出来た。硫酸だけの場合の皮膜と良く似ている。

交流の場合は乳白色の平滑な皮膜が出来る。浴電圧は非常に高く、電流密度  $7.0\text{Amp}/\text{dm}^2$  では20分後に  $80\text{Volt}$  に達し約  $75\text{Volt}$  から火花放電が起る。浴の着色はない。白金極に黄色の柔かい析出物がある。

## 3・2・2. 硫酸濃度10%, 18%の場合

直流の場合、灰色を主体とした硫酸だけの浴と余り変りがない皮膜が出来る。

交流の場合、黄色の細かい斑点が出来た。サリチル酸の添加量を多くすると斑点の大きさが少し増大する。

## 3・3. 硫酸—安息香酸

表—Ⅲ 硫酸—安息香酸

硫酸濃度 (%)	硫酸溶液1ℓに加えた安息香酸のg数	電流密度 (Amp/dm <sup>2</sup> )	浴電圧 (Volt)		厚さ (μ) (ダイヤル目盛)	耐食性 (秒)	耐摩耗性 (秒)	皮膜の状況
			開始	最終				
2.0	3.3	D.C. 7.0	30	32	20以上 (7.9)	600以上	3600以上	黒灰色 やや平滑
"	"	A.C. 7.0	44	80	20以上 (7.2)	83~91	985	乳白色 火花放電のあとがある
10	20	D.C. 3.0	19	19	20以上 (3.2)	600以上	1800以上	明るい灰色 平滑
"	"	D.C. 5.0	20	22	20以上 (2.9)	"	"	灰色 ひび割れ
"	"	D.C. 7.0	21	30	20以上 (3.1)	"	"	暗い灰色 ひび割れ
"	"	A.C. 3.0	21	23	13.8 (13.4)	10以下	126	透明の地に白色の斑点
"	"	A.C. 5.0	26	29	20以上 (7.7)	17~19	240	乳白色 平滑
"	"	A.C. 7.0	29	36	20以上 (5.2)	53~58	100	乳白色 平滑
18	1.0	D.C. 3.0	15	16	20以上 (4.9)	600以上	3600以上	乳白色 平滑
"	"	D.C. 5.0	17	23	20以上 (3.6)	"	"	薄い灰色 少しひび割れ
"	"	D.C. 7.0	17	32	20以上 (8.3)	"	"	薄い灰色 ひび割れ
"	"	A.C. 3.0	11	12	11.0 (15.9)	10以下	11	無色透明 平滑
"	"	A.C. 5.0	21	22	16.3 (11.9)	17~21	38	"
"	"	A.C. 7.0	26	27	20 (9.3)	31~40	750	少し黄色やや透明 平滑
"	20	D.C. 3.0	14.5	15	20以上 (5.1)	600以上	3600以上	乳白色 平滑
"	"	D.C. 5.0	17	21	20以上 (3.9)	"	"	薄い灰色 平滑
"	"	D.C. 7.0	17	33	20 (9.4)	"	"	薄い灰色 ひび割れ
"	"	A.C. 3.0	12	17	9.5 (17.9)	10以下	15	無色透明 平滑
"	"	A.C. 5.0	18	21	14.4 (12.9)	21~23	360	"
"	"	A.C. 7.0	21	26	19.2 (10.2)	20~28	370	少し黄色透明 平滑

安息香酸は水に  $20^{\circ}\text{C}$  で  $0.29$  の溶解度を持つ針状結晶である。溶解度以上加えた場合は一部浴中に懸濁し大部分は浴上面に浮いている。

## 3・3・1. 硫酸濃度2.0%の場合

直流では黒灰色の皮膜が出来る。(サリチル酸と同様である。)

交流の場合、乳白色の少し青色がかった皮膜が得られる。浴電圧はサリチル酸の場合と同様に高い値を示す。電流密度  $7.0 \text{ Amp/dm}^2$  で30分後に  $80 \text{ Volt}$  に達し火花放電が起る。

### 3・3・2. 硫酸濃度10%, 18%の場合

直流の場合、灰色を主とした皮膜であり硫酸だけの

浴の場合と大差がない。

交流の場合には一般に皮膜が透明であった。浴の着色は起らなかった。

### 3・4. 硫酸—ベンゼンスルホン酸

ベンゼンスルホン酸は水に易溶のべとべとした褐色の物質である。浴は黄色乃至褐色に着色している。溶

表—IV 硫酸—ベンゼンスルホン酸

硫酸濃度 (%)	酸度 (%)	硫酸溶浮れに加えたベンゼンスルホン酸のg数	電流密度 (Amp/dm <sup>2</sup> )		浴電圧 (Volt)		厚さ (μ) (ダイヤル目盛)	耐食性 (秒)	耐摩耗性 (秒)	皮膜の状況
			開始	最終	開始	最終				
2.0		3.3	D.C.	3.0	23	24	20以上 (5.8)	54~60	2500	褐色がかった灰色、むら多い、凸凹
"	"	"	D.C.	5.0	26	30	20以上 (5.9)	600以上	3600以上	黒灰色、むらあり凸凹
"	"	"	D.C.	7.0	27	35	20以上 (6.5)	"	3600以上	黒灰色、少しむらあり少し凸凹
"	"	"	A.C.	3.0	16	23	9.4 (18.1)	12~18	68	無色透明平滑
"	"	"	A.C.	5.0	32	32	17.2 (11.2)	25~31	1080	淡黄色透明平滑
"	"	"	A.C.	7.0	35	70	20以上 (7.7)	60~66	1940	乳白色平滑
"	"	25	D.C.	3.0	24	23	20以上 (2.7)	600以上	1080	黄色がかった灰色ざらざらする
"	"	"	D.C.	5.0	25	28	20以上 (3.8)	"	3600以上	褐色がかった灰色少しざらざらする
"	"	"	D.C.	7.0	29	40	20以上 (4.2)	"	"	明るい灰色少しざらざらする
"	"	"	A.C.	3.0	20	50	12.4 (14.6)	30~34	230	無色透明平滑
"	"	"	A.C.	5.0	30	80	20以上 (9.3)	35~40	670	淡黄色、火花放電のあとがある やや平滑
"	"	"	A.C.	7.0	30	80	17.1 (11.3)	34~40	740	淡黄乳白色、火花放電のあとがある 平滑
"	"	100	D.C.	3.0	15	3.4	6.2 (24.6)	0	0	黒色の斑点が多い凸凹
"	"	"	D.C.	5.0	16	4	9.1 (18.6)	0	0	"
"	"	"	D.C.	7.0	17	5.5	9.5 (18.1)	0	0	"
"	"	"	A.C.	3.0	8	9	3以下 (56)	0	0	黒色の斑点が多いざらざらする
"	"	"	A.C.	5.0	10	11	6.1 (27.3)	0	0	"
"	"	"	A.C.	7.0	12	14	5.6 (27.1)	0	0	"
3.0		25	D.C.	3.0	20	23	20以上 (3.3)			黄灰色 少し凸凹
"	"	"	D.C.	5.0	22	27	20以上 (3.8)			黄灰色 やや平滑
"	"	"	D.C.	7.0	28	50	20以上 (4.6)			黒灰色一部黄色 やや平滑
4.0		25	D.C.	3.0	22	22	20以上 (4.8)	600以上	3600以上	灰色、むら多い凸凹
"	"	"	D.C.	5.0	22	30	20以上 (4.6)	"	"	黒灰色 平滑

〃	〃	D.C. 7.0	22	40	20以上 (8.9)	〃	〃	黒色 平滑
10	20	D.C. 3.0	20	19	20以上 (3.3)	〃	1800以	明るい灰色 平滑
〃	〃	D.C. 5.0	23	22	20以上 (4.4)	〃	〃	灰色 ひび割れ
〃	〃	D.C. 7.0	23	50	20以上 (3.4)	〃	〃	暗い灰色 ひび割れ
〃	〃	A.C. 3.0	13	22	16.1 (11.9)	10以下	27	透明の地に銀色の斑点
〃	〃	A.C. 5.0	21	31	20以上 (8.5)	30~35	215	乳白色 平滑
〃	〃	A.C. 7.0	23	30	20以上 (6.2)	50~60	500	淡黄色 平滑

解度以上加えた場合は浴中に懸濁している。

#### 3・4・1. 硫酸濃度2.0%の場合

直流ではベンゼンスルホン酸の添加量の少ない場合(3.3g加えた場合)は硫酸だけの場合と殆んど変わらない。しかし17g~25g加えた場合は電流密度3.0Amp/dm<sup>2</sup>で黄灰色の皮膜が得られた。33g以上加えると部分的に溶解が起り黒色の斑点が出来る。

交流の場合はベンゼンスルホン酸を17g~25g加えると浴電圧が高く約80Voltになった。100g加えた場合は浴電圧は非常に低く、酸化皮膜の生成が無く黒い斑点が全面に出来た。

#### 3・4・2. 硫酸濃度3.0%, 4.0%の場合

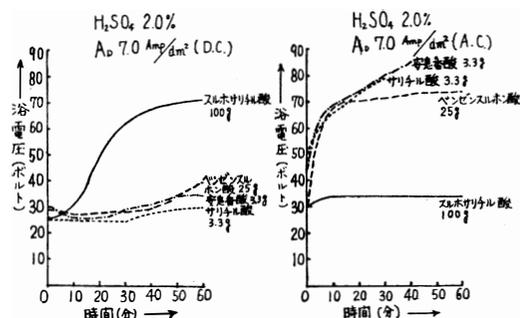
直流では硫酸濃度3.0%より4.0%の方が皮膜は平滑になるが黒色が強くなる。

交流では浴電圧は硫酸濃度2.0%の場合より低くなるが皮膜に関しては大きな変化はない。

#### 3・4・3. 硫酸濃度10%の場合

直流及び交流のどちらも硫酸だけの浴の場合と余り変わらない。

#### 3・5. 浴電圧の時間的变化



図一Ⅱ

図一Ⅱは7.0Amp/dm<sup>2</sup>の定電流における浴電圧の時間的变化を示したものである。

スルホサリチル酸を加えた場合、直流では高い浴電圧を示し交流では低い値を示している。他の三つの有機酸は直流では低く交流では高く、スルホサリチル酸の場合と全く逆の現象を示している。

#### 3・6. 浴の着色に就いて

##### 3・6・1. 浴の着色状況

サリチル酸、安息香酸を加えた場合は全く浴の着色は起らない。

スルホサリチル酸を加えた場合、直流では変色しないが交流の場合黄色乃至褐色に着色して来る。又電流を増せば直流の場合は皮膜が、交流の場合は浴の方が色が濃くなって来る。この着色は、直流の場合電解で生成した着色物質が殆んど全部酸化皮膜に付着混合したのであり、交流の場合は殆んど全部浴の中に入って膜面に付着しない状況なので上に述べた事実が起ったものと考えられる。

ベンゼンスルホン酸の場合、初めから浴自体褐色に着色しているので変化はわからなかった。

##### 3・6・2. スルホサリチル酸を加えた場合の着色した浴のスペクトル吸収

硫酸—スルホサリチル酸浴を交流で電解して着色した浴を、分光光度計を用いてスペクトル吸収曲線を求めた。

この場合ブランクは新しく作った硫酸—スルホサリチル酸浴で無色透明である。

約340mμに最大らしきところが見られるがスルホサリチル酸のピークと重なり、はっきり見出す事は出来なかった。

## 4. 結 語

(1)スルホサリチル酸を用いた場合、直流電流で黄色乃至黄褐色に着色した強い酸化皮膜が得られた。

(2)サリチル酸及び安息香酸を用いた場合、硫酸単独の浴の場合と大差がなかった。

(3)ベンゼンスルホン酸を用いた場合、黄灰色に着色した酸化皮膜が得られたが、皮膜の性質は余り良くなかった。

(4)着色物質は有機酸の電解生成物であろう。

#### 文 献

※電気化学協会・高分子学会両北陸支部研究発表秋季大会（昭和38年11月）（於長岡）にて一部発表

- 1) 小久保定次郎：  
アルミニウム合金の表面処理法（内田老鶴圃）など。
- 2) Kaiser Aluminium, Chemical Corp.  
Brit. Pat. 850, 576 (1961).
- 3), 4) J. I. S. H 8601 (1961).

（昭和39, 10, 30受付）