

B₂O₃ 基 2 成分酸化物融体の粘度ならびに 熔融塩の粘性特性

論 文

飯田孝道*・川本正幸*²・奥田博文*³・森田善一郎*

Viscosities of Borate-base Binary Molten Oxides and Characteristic Features of the Viscosity of Molten Salts

Takamichi IIDA, Masayuki KAWAMOTO, Hirofumi OKUDA and Zen-ichiro MORITA

Synopsis:

A clear understanding of characteristic features of molten salts requires quantitative discussions on their network structures. From this point of view, viscosities of pure molten borate and borate-base binary oxides, in which network structures would be formed, have been measured by using an oscillating-plate viscometer. Furthermore, characteristic features of viscosity of molten salts have been discussed on the basis of model theories. The results obtained are as follows:

(1) Viscosities of molten B₂O₃ are expressed in the following non-Arrhenius equation:

$$\mu = 0.103 \exp(5.17 \times 10^7 / RT^2) \quad (\text{in Pa}\cdot\text{s})$$

(2) As compared with the viscosities of molten B₂O₃, the viscosities of molten B₂O₃-2mol%SiO₂ are high, while the viscosities of molten B₂O₃-2mol%ZnO, BaO, PbO, Na₂O are low in that order. This order corresponds approximately to that of the relative strength of acidity→basicity for the oxides.

(3) Since network forming melts have higher viscosity values, positive deviations from the viscosities calculated by using an equation for simple melts would provide a quantitative approach to the network structures of melts.

1. 緒 言

熔融珪酸塩などを含む広義の熔融塩は、金属工業や化学工業にとって極めて有用な材料として使用されているが、最も単純なものでも 2 成分からなる融体であり、厳密な研究方法（液体論）に従ってその性質・特性を検討することは容易ではなく、ことに金属製錬などの実用に供されている熔融塩の多くは、多成分から構成されているので、その性質・特性については不明な点が多い。

熔融塩は、各成分間の相互作用によつて一般に複雑な網目構造やクラスターを形成し、熔融塩に特有の性質・挙動を示すと考えられる。換言すれば、熔融塩の特徴的な性質・挙動は主として網目構造[†]に起因するものであり、熔融塩の性質・特性を解明することは、取りも直さず網目構造に関する詳細な情報を得ることに帰着すると考えられる。しかしながら、網目構造については、従来、

定性的な議論は頻繁になされているものの定量的な議論はほとんどなされていない。

そこで本研究では、熔融塩の網目構造を定量的に評価するための基礎資料を得ることを目的として、液体の構造に敏感であり、かつ液体の本質を解明するのに不可欠な動的物性である粘性について検討を加えた。具体的に言えば、従来、網目構造を有するとされている B₂O₃ の粘度を測定し、続いて B₂O₃ に対して各種の酸化物を 2mol % 添加したことによる粘度変化を測定した。更に模型理論の立場から、本測定結果を含めて熔融塩の粘性に関する考察を行うとともに、音速、熱伝導度に関する考察をも併せて行うことによつて、熔融塩の網目構造を定量化するための手掛かりについて検討を加えた。

2. 実 験 方 法

2.1 振動片粘度測定装置

本研究では、著者らが設計・試作した振動片粘度計¹⁾を用いて粘度測定を行つた。その原理、装置、測定方法などについては既に報告したので¹⁾²⁾、本報では装置の

† 多粒子系において一部の粒子が局部的に相関しあつて対（あるいは塊）をなしている状態を、一般にクラスターと呼ぶが、本報ではそのような粒子の状態も含めて網目構造と呼ぶことにする。

昭和 61 年 5 月 19 日受付 (Received May 19, 1986)

* 大阪大学工学部 工博 (Faculty of Engineering, Osaka University, 2-1 Yamadaoka Suita 565)

*² 大阪大学大学院 (Graduate School, Osaka University)

*³ 大阪大学大学院 (現：新日本製鉄(株)) (Graduate School, Osaka University, Now Nippon Steel Corp.)

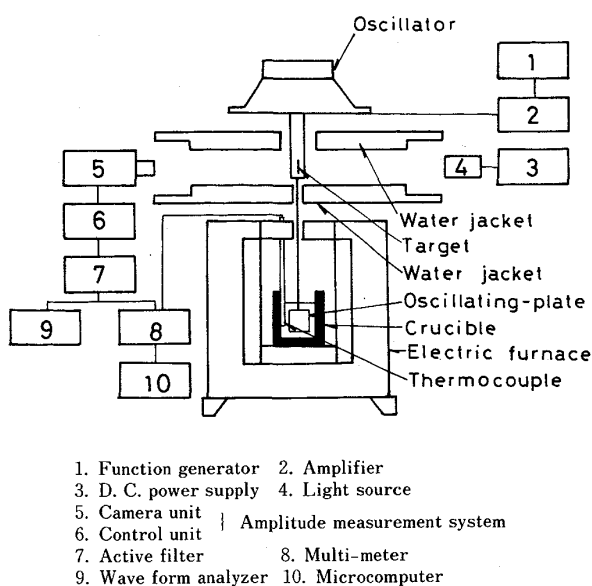


Fig. 1. Schematic diagram of an oscillating-plate viscometer.

要点だけを述べる。

Fig. 1 に装置の概略を示す。本粘度計は振動駆動装置、振動振幅測定装置、マイクロコンピュータおよび試料加熱用 2 珪化モリブデンヒータ電気炉から構成されている。

正弦波発振器から発振された正弦波が増幅器によって増幅され、駆動コイルに送られる。駆動コイルの正弦振動は、接続部を通して振動片に伝達される。

振幅測定には、非接触電子光学式変位計を使用し、振動片の振動振幅を連続的に電圧に変換してそれをマイクロコンピュータによって、自動記録した。

振動片には一辺の長さ 20 mm、厚さ 0.2 mm の平板状の正方形で、ステンレス鋼製のものを使用した。

2.2 試料

試料には、 B_2O_3 (市販の試薬一級) および B_2O_3 に対する添加用の酸化物として ZnO, PbO (いずれも市販の試薬特級), SiO_2 (市販の試薬一級), BaO (純度 90%), Na_2O (純度 98%) を用いた。試料の質量は、すべて 0.2 kg 程度となるように配合調整した。なお、 B_2O_3 の純度は 95% 程度であり、不純物として硫化物 (SO_4), Pb などの重金属, Fe (以上の全量 0.1 wt% 以下) およびかなりの水分が含まれているので、測定に先立って試料中の水分の除去に努めた。

2.3 実験操作

所定の組成に配合調整した試料を多孔質マグネシア製のつば (内径 55 mm ϕ ×105 mm) 内に充填し、約 473 K の温度において約 8h 保持することによって脱水を行い、直ちにその試料を加熱、溶解した。

最高測定温度 (1 273 K) に到達後、組成の均一化および脱水を行うために試料を十分に攪拌し、更に約 2 h 一定温度に保持した。続いて振動片を試料液体中に浸漬して、振動振幅が約 10^3 s にわたって変化しないことを確認した後、冷却速度約 $2 \times 10^{-2} Ks^{-1}$ の冷却過程において粘度測定を行った。なお試料液体中に Pt-30Rh/Pt-6Rh 熱電対を直接挿入し、試料の温度測定を行った。

3. 実験結果

B_2O_3 および B_2O_3 基 2 元系酸化物融体の粘度測定結果を Fig. 2~Fig. 6 に示す。なお振動片粘度計の場合、直接測定される量は粘度と密度の積であるので、粘度を求めるには密度値が必要であり、本報では、SHARTSIS ら³⁾ の密度測定値あるいはその内挿値を用いた。

振動片粘度計の測定精度を厳密に評価することは困難であるが¹⁾、本測定精度 (誤差) は、 $\pm 4\%$ 程度と考えられる。測定値の再現性を検討するために、すべての試料を新たに作製して粘度の再測定を行ったが、それらは上述の測定誤差の範囲内で一致した。なお、試料中の水分に関しては、上述の処理を行った場合、過去の研究報告⁴⁾ から考えると、0.4 wt% 以下であると推定される。また、実験終了後のつばには溶損等は全く認められなかった。

Fig. 2 に、 B_2O_3 単純塩の粘度測定結果を、また Fig. 3 に本測定結果を他の測定者の結果^{5)~15)} と併せて示す。Fig. 3 から明らかなように、本測定値と従来の測定値

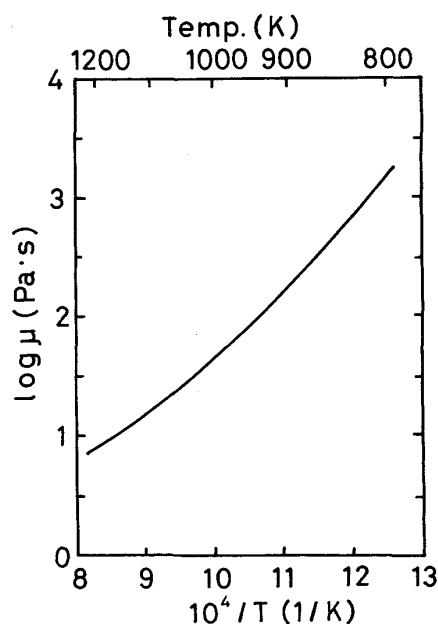
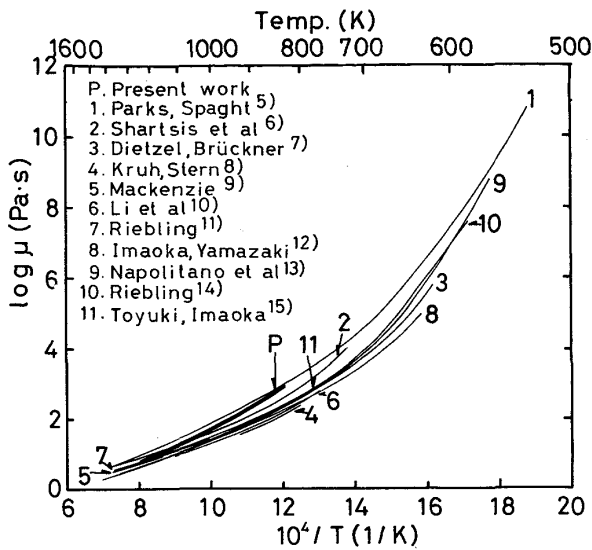
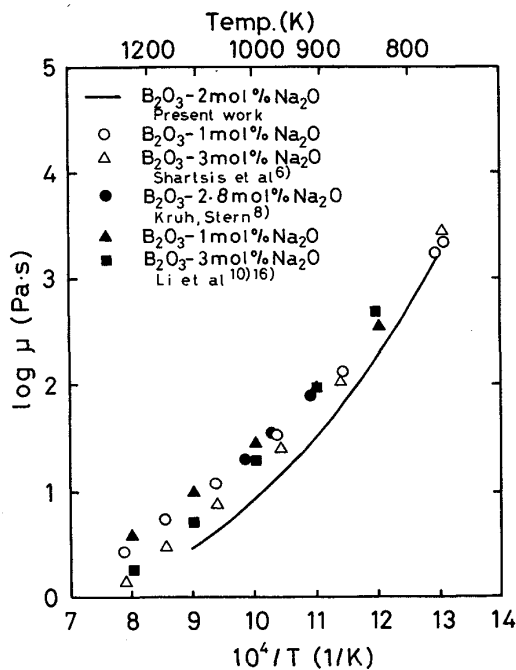


Fig. 2. Viscosity of molten B_2O_3 as a function of temperature.

Fig. 3. Comparison of viscosity data for molten B₂O₃.Fig. 4. Viscosity of molten B₂O₃-2mol% Na₂O as a function of temperature.

はかなり一致していることがわかる。

Fig. 4 に、B₂O₃-2mol% Na₂O の粘度測定結果を、他の測定者の結果⁶⁾⁸⁾¹⁰⁾¹⁶⁾と併せて示す。本測定値は他の測定者の結果よりも多少低いことがわかる。

Fig. 5 に、B₂O₃-2mol% SiO₂ の粘度測定結果を他の測定者の結果¹⁷⁾¹⁸⁾と併せて示す。同図から明らかなように、それらは良く一致していることがわかる。なお、その他の系については、組成および測定温度が本研究のそれらとほぼ一致しているものはまだ報告されてい

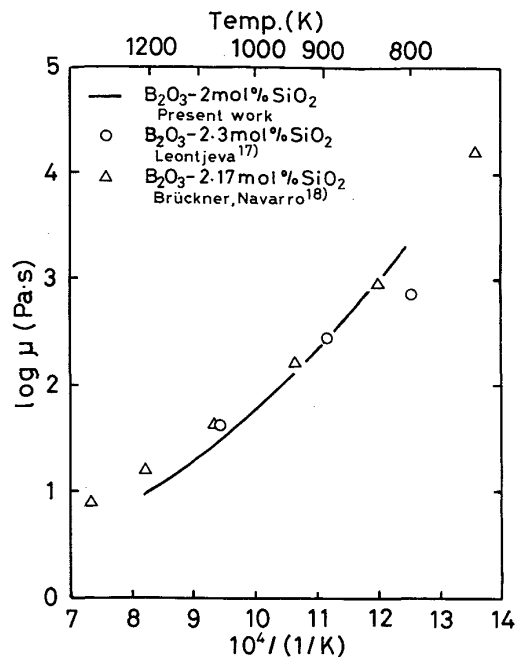
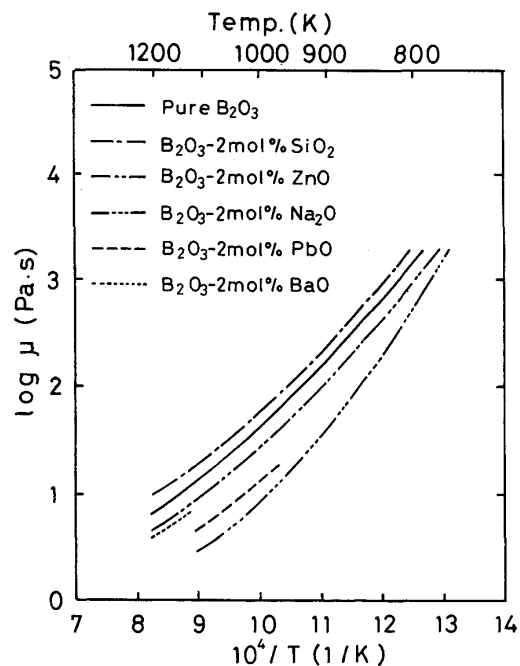
Fig. 5. Viscosity of molten B₂O₃-2mol% SiO₂ as a function of temperature.

Fig. 6. Viscosities of molten binary borates as a function of temperature.

いようである。

Fig. 6 に、本研究で測定した 6 種類の試料に対する結果をまとめて示す。同図から明らかなように、B₂O₃-2mol% PbO、B₂O₃-2mol% BaO については測定温度範囲が比較的狭いので、厳密な評価は困難であるが、各系の粘度は非 ARRHENIUS 的な温度変化を示している

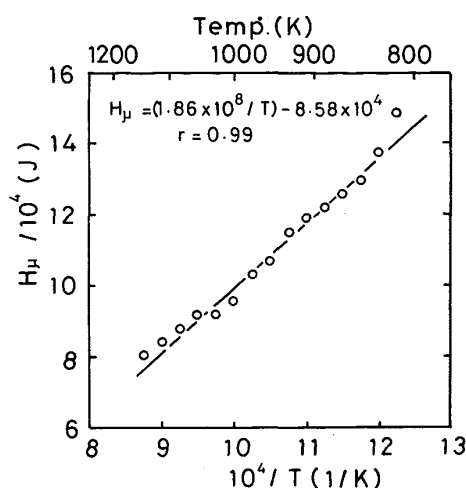


Fig. 7. Apparent activation energy of viscosity for molten B_2O_3 .

ことがわかる。

Fig. 7 に、 B_2O_3 単純塩の粘度に対する見掛けの活性化エネルギー H_μ の温度変化を示す。なお同図中のプロットは、連続測定によつて得られた粘度の温度変化曲線、すなわち Fig. 2 から算出した各温度における H_μ の値を示す。同図から明らかなように、見掛けの活性化エネルギーは、温度の逆数に対して直線的に変化しているのが認められる。

熔融 B_2O_3 の粘度の本測定結果は、次式で表される。

$$\mu = 0.103 \exp(5.17 \times 10^7 / RT^2) \quad (\text{in Pa} \cdot \text{s}) \quad (1)$$

液体金属のような単原子分子から構成されている系の場合には、粘度の温度変化は良い近似で ARRHENIUS の式に従うことが知られており¹⁹⁾、 B_2O_3 系融体の粘度に関するこのような非 ARRHENIUS 的挙動は、網目構造を形成する液体の著しい特徴と言える。

ここで B_2O_3 の粘度に及ぼす各酸化物の効果について検討しよう。 B_2O_3 単純塩を基準にして考えると、同図から明らかなように、 B_2O_3 に比べて酸性度が高い SiO_2 を添加すると、同一温度における粘度は高くなり、一方 B_2O_3 に比べて酸性度が低い Na_2O 、 PbO 、 ZnO 、 BaO を添加すると、同一温度における粘度は低くなるのがわかる。また、その効果は Na_2O が最も大きく、以下 PbO 、 BaO 、 ZnO の順であり、このような結果は、これらの酸化物の酸性→塩基性の相対的強さの順²⁰⁾、すなわち $SiO_2 \rightarrow B_2O_3 \rightarrow ZnO \rightarrow PbO \rightarrow BaO \rightarrow Na_2O$ と、ほぼ一致することがわかった（ただし PbO と BaO の順は一致しない）。

さて、珪酸塩などを含む広義の熔融塩の物性的な特性は、主として網目構造によるとの観点に立てば、網目構

造を定量的に論ずることが重要である。本測定結果からも明らかなように、粘性は構造に敏感な物性であるから、粘度に基づいて網目構造を定量化することが可能と考えられる。しかしながら、熔融塩の音速、熱伝導度も重要な物性ではあるが、それらと網目構造との関係については従来ほとんど検討されていないので、次に、この問題について検討を加えるとともに、粘度と網目構造との関係について、更に、検討を加えることにする。それによつて、熔融塩の諸物性ならびに熔融塩の性質・特性に関する理解が深まり、また網目構造を定量的に論ずるのに有効な手掛かりが得られると考えられる。

4. 熔融塩の粘度、音速、熱伝導度の特徴

熔融塩の網目構造を解明するためには、網目構造が形成されていない単分子あるいは単原子分子液体に対する式に基づいて議論を進める必要がある。そこで、本研究では、単分子（単原子分子）液体について良い近似で成り立つ模型理論あるいは経験則の立場から導出された粘度、音速、熱伝導度に関する式を熔融塩に対して適用し、それらの式からの偏倚量を明らかにすることによつて網目構造に関する検討を加える。

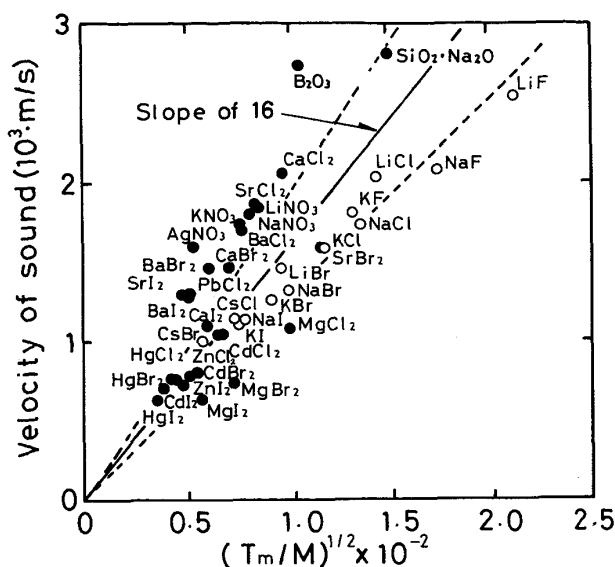
4.1 熔融塩の音速

単純な液体の融点における音速 U_m は、次式で表されることが古くから知られている²¹⁾²²⁾。

$$U_m = k_v \left(\frac{T_m}{M} \right)^{1/2} \quad (2)$$

ここで、 k_v は比例定数、 T_m は融点、 M は分子量を表す。なお、添字 m は融点における値を表す。

熔融塩に対する (2) 式の関係を、Fig. 8 に示す。同図から明らかなように、比例定数を $16 (\text{m} \cdot \text{s}^{-1} \text{kg}^{1/2} \text{K}^{-1/2} \text{mol}^{-1/2})$ とすることによつて、多数の熔融塩に対して (2) 式が近似的に成り立つことがわかる。すなわち網目構造を形成しない典型的なイオン性液体と考えられるハロゲン化アルカリに対しても、また強い網目構造を形成する代表的な熔融塩と考えられる B_2O_3 ²³⁾、 SiO_2 系²⁴⁾ ($SiO_2 \cdot Na_2O$) および $ZnCl_2$ に対しても、(2) 式が近似的に成立することがわかる。なお、Fig. 8 の結果によると、ハロゲン化アルカリと他の熔融塩とは異なつたグループを作つていると見なすことができる。しかしながら、単原子分子である液体金属の音速が、約 $26 (\text{m} \cdot \text{s}^{-1} \text{kg}^{1/2} \text{K}^{-1/2} \text{mol}^{-1/2})$ なる比例定数 k_v を有し²⁵⁾、ハロゲン化アルカリ以外の熔融塩すなわち B_2O_3 、 $SiO_2 \cdot Na_2O$ などのグループに属すること、また網目構造を形成する $ZnCl_2$ がハロゲン化アルカリのグループに属することなどを考えると、Fig. 8 の結果を網目構



○: Alkali halides Dashed lines denote $\pm 20\%$ error band

Fig. 8. Velocities of sound in molten salts as a function of $(T_m/M)^{1/2}$.

造を形成しないグループと形成するグループに分類することは困難である。50~60% 以内の k_U 値の相違を議論するためには、各データの精度に関する詳細な検討ならびに液体分子のポテンシャルエネルギーなどを考慮した厳密な理論の展開が必要と考えられるが、いずれも現在のところ極めて困難な問題と思われる（数十%程度の k_U 値の相違は、網目構造の問題ではなく、液体分子間に働く力の種類の相違によることも考えられる）。

以上、粗い議論に基づいた検討結果ではあるが、熔融塩の音速は、一定の質量（分子量）を持った粒子の振動運動によって主として支配される物性であり、網目構造を敏感には反映しない物性と考えることができる。

4.2 熔融塩の熱伝導度

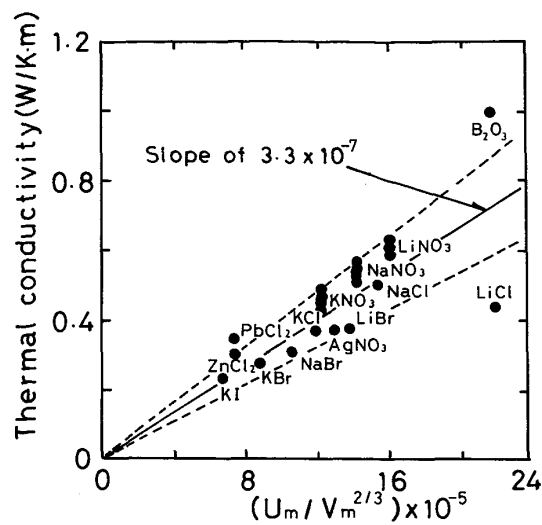
非金属単分子液体の融点における熱伝導度 λ_m は、次式で与えられる²²⁾。

$$\lambda_m = k_\lambda \frac{U_m}{V_m^{2/3}} \quad (3)$$

ここで、 k_λ は比例定数、 V_m は分子容を表す。

熔融塩に対する (3) 式の関係を図 9 に示す。同図から明らかなように、比例定数を $3.3 \times 10^{-7} \text{ (m}^2 \text{ s}^{-2} \text{ kg} \cdot \text{K}^{-1} \text{ mol}^{-2/3})$ とすることによって、網目構造を形成する B₂O₃²⁶⁾ および ZnCl₂ に対してもハロゲン化アルカリなどと同様に (3) 式が近似的に成り立つことがわかる。なお、NaCl の λ_m の値には 0.5 (W/m·K)²⁴⁾ を採用したが、0.9~1 (W/m·K) なる値も報告されている²⁶⁾²⁷⁾。

以上の検討結果から、熔融塩の熱伝導度も音速と同様



Points linked by a vertical line represent different experimental values for a single salt Dashed lines denote $\pm 20\%$ error band

Fig. 9. Thermal conductivities of molten salts as a function of $U_m/V_m^{2/3}$.

に、網目構造を敏感には反映しない物性と考えることができる²⁾。

4.3 熔融塩の粘度

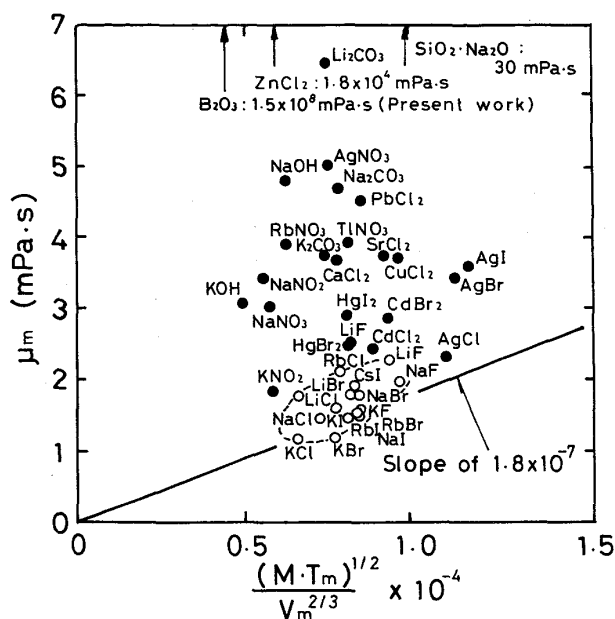
単分子液体の融点における粘度 μ_m は、次式で与えられる²⁸⁾。

$$\mu_m = k_\mu \frac{(MT_m)^{1/2}}{V_m^{2/3}} \quad (4)$$

ここで、 k_μ は比例定数を表す。なお、単原子分子の場合は、比例定数を $1.8 \times 10^{-7} \text{ (m} \cdot \text{s}^{-1} \text{ kg}^{1/2} \text{ K}^{-1/2} \text{ mol}^{-1/6})$ とすることによって、(4) 式が良い近似で成立することが知られている²⁹⁾³⁰⁾。粘性は分子（原子、イオン）の運動量輸送現象であるから、液体金属に対して伝導電子を直接考慮する必要がなく、液体アルゴンと同様に液体金属の場合も比例定数を $1.8 \times 10^{-7} \text{ (m} \cdot \text{s}^{-1} \text{ kg}^{1/2} \text{ K}^{-1/2} \text{ mol}^{-1/6})$ とした (4) 式が成り立つ³⁰⁾。

種々の熔融塩³¹⁾³²⁾ に対する (4) 式の関係を図 10 に示す。同図から明らかなように、ハロゲン化アルカリに関しては、単分子液体に対するものと同一の関係式が近似的に成立することがわかる。一方、他の熔融塩に関しては、比例定数を $1.8 \times 10^{-7} \text{ (m} \cdot \text{s}^{-1} \text{ kg}^{1/2} \text{ K}^{-1/2} \text{ mol}^{-1/6})$ とした (4) 式の関係から不規則に偏倚しているが、特に、網目構造を形成するといわれている B₂O₃、ZnCl₂、SiO₂·Na₂O の場合には、著しい偏倚を示している。

²²⁾ 音速および熱伝導度は網目構造を全く反映しない物性とは考えられないが、それらと網目構造との関係を明らかにするためには、高精度の測定データと厳密な理論的検討が必要と思われる。



○: Alkali halides

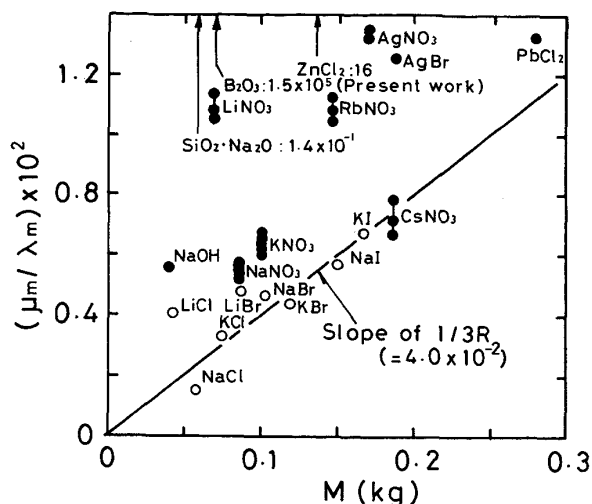
Fig. 10. Viscosities of molten salts as a function of $(MT_m)^{1/2}/V_m^{2/3}$.

以上の検討結果から、熔融塩の粘度は熱伝導度や音速の場合に比べて、網目構造を敏感に反映する物性と考えられる。網目構造を形成する融体の粘度は高く、単分子液体に対して成り立つ式からの偏倚(差異)は、主として網目構造によるものと考えられるので、熔融塩の粘度は、網目構造を定量化するための重要かつ有効なパラメーターと推察される。

4.4 熔融塩の粘度と熱伝導度との関係

ANDRADE は、粘性の現象を分子振動による運動量の輸送現象と考えて、単純な液体に対する粘度式²⁸⁾を導出し、また押田は熱伝導度について ANDRADE と同様の考え方をもち分子振動によるエネルギーの輸送現象とする立場から非金属液体に対する熱伝導度の式³³⁾を導出した(液体金属の熱伝導度は主として電子によるものであり、非金属液体とは伝導の機構が異なる)。いずれも分子振動数などをパラメーターとする単純な表式ではあるが、液体分子の振動数に対する厳密な式は提出されておらず、液体分子の振動数を評価するためにかなり粗い近似式である LINDEMANN の式^{34)~36)}が用いられているので、彼らの式から算出される粘度、熱伝導度もまたかなり粗い近似値である。しかしながら、ANDRADE の粘度の式と押田の熱伝導度の式を組み合わせることによって、分子の振動数が消去され、かつ次のような簡単な粘度と熱伝導度との間の関係式が得られる³⁷⁾。

$$\frac{\mu_m}{\lambda_m} = \frac{M}{3R} \quad \text{..... (5)}$$



○: Alkali halides Points linked by a vertical line represent different experimental values for a single salt

Fig. 11. Ratio of viscosity to thermal conductivity vs. formula weight M .

ここで、 R は気体定数を表す。なお、(2) (3) および (4) 式を組み合わせることによって、次のような式が得られる。

$$\frac{\mu_m}{\lambda_m} = \frac{M}{(k_\lambda k_v/k_\mu)} \quad \text{..... (6)}$$

ここで、(5) 式と (6) 式を比較すると

$$\frac{k_\lambda k_v}{k_\mu} = 3R \quad \text{..... (7)}$$

が得られる。(7) 式の左辺の値は 29 (J/mol·K) であるから、(7) 式が近似的に成り立つことがわかる。比例定数 k_v 、 k_λ は種々の熔融塩の測定値を用いて経験的に決定された値であるが、(7) 式が近似的に成立するので、それらは近似的に単分子液体に対する値と見なすことができる。したがって、このような結果からも音速、熱伝導度は液体の構造を敏感には反映しない物性と考えられることができる。

熔融塩に対する (5) 式の関係を図 11 に示す。同図から明らかなように、ハロゲン化アルカリについては、(5) 式の関係が比較的良好な近似で成り立つが、 B_2O_3 、 $ZnCl_2$ 、 $SiO_2 \cdot Na_2O$ などについては Fig. 10 の結果と同様に、同関係から著しい偏倚を示すのがわかる。ANDRADE の式および押田の式は、いずれも網目やクラスターを形成しない単分子(あるいは単原子)液体を対象とし、分子論的模型理論に基づいて導出された式である。したがって、(5) 式が成立する液体は、一応、単分子(あるいは単原子)液体と考えることができ、一方 (5) 式から偏倚する液体は単分子状態ではなく、網目

を形成している液体と考えることができる。Fig. 11 の結果によると、単分子液体に対する定数すなわち $(1/3R)$ の傾きから偏倚する溶融塩は、その傾きの左上方にプロットされているので、多少形式論的ではあるが、それらの分子量 M (Fig. 11 の横軸のパラメーター) が大きくなったものとすれば、それらの溶融塩に対してもハロゲン化アルカリと同様に (5) 式が成立することになる。すなわち、網目構造が形成されているので、分子量が増加し、分子が移動あるいは拡散し難くなり、換言すれば、粘度が高くなったと見なすことができる。以上のように考えれば、(5) 式からの偏倚量は、網目構造の強さあるいは広がりを表す尺度とみなすことができる。

5. 結 言

溶融塩の性質・特性を解明するためには、溶融塩の網目構造を定量化することが不可欠であるとの観点から、まず、それに対する基礎資料を得ることを目的として、網目構造を形成するとされている B₂O₃ の粘度および B₂O₃ に 5 種類の酸化物、すなわち SiO₂, ZnO, BaO, PbO および Na₂O を 2 mol% 添加した場合の粘度変化を測定した。更に、単分子液体に対する模型理論に基づいて、網目構造の定量的な評価方法について検討を加えた。

得られた結果は次のとおりである。

(1) B₂O₃ および B₂O₃ 基酸化物融体の粘度の温度変化は、非 ARRHENIUS 的挙動を示す。このような挙動は、網目構造を形成する液体の特徴である。B₂O₃ 単純塩の粘度は、次式で表される。

$$\mu = 0.103 \exp(5.17 \times 10^7 / RT^2) \text{ (in Pa} \cdot \text{s)}$$

(2) B₂O₃ 単純塩に SiO₂ を添加すると、その粘度は B₂O₃ の粘度に対して高くなり、一方その他の酸化物を添加すると、粘度は B₂O₃ に対して低くなり、その効果は Na₂O が最も大きく、以下 PbO, BaO, ZnO の順である。B₂O₃ 単純塩の粘度に対する各種の酸化物の添加効果は、これらの酸性・塩基性の相対的強さの順にほぼ対応する。

(3) 粘性は網目構造を敏感に反映する物性であり、一方、音速および熱伝導度は、網目構造を敏感には反映しない物性である。溶融塩の粘度の単分子液体の粘度に対する偏倚量は、溶融塩の網目構造の強さあるいは広がりを表す尺度と考えられる。

最後に、溶融塩に関する文献を御教示いただきました、京都大学化学研究所 作花清夫教授、幸塚広光助手、京都大学工学部 吉本護助手に心から謝意を表します。また、実験上、種々の御協力をいただきました大阪大学大

学院 (現、川崎製鉄(株)) 鷲尾勝氏に深く感謝致します。

文 献

- 1) 森田善一郎, 飯田孝道, 川本正幸, 毛利 晃: 鉄と鋼, **70** (1984), p. 1242
- 2) 飯田孝道, 川本正幸, 藤本慎司, 森田善一郎: 鉄と鋼, **71** (1985), p. 1490
- 3) L. SHARTSIS, W. CAPPS and S. SPINNER: J. Am. Ceram. Soc., **36** (1953), p. 35
- 4) F. C. EVERSTEIJN, J. M. STEVELS and H. I. WATERMAN: Phys. Chem. Glasses, **1** (1960) 4, p. 122.
- 5) G. S. PARKS and M. E. SPAGHT: Physics, **6** (1935), p. 69
- 6) L. SHARTSIS, W. CAPPS and S. SPINNER: J. Am. Ceram. Soc., **36** (1953), p. 319
- 7) A. DIETZEL and R. BRÜCKNER: Glastechn. Ber., **28** (1955), p. 455
- 8) R. KRUH and K. H. STERN: J. Am. Chem. Soc., **78** (1956), p. 278
- 9) J. D. MACKENZIE: J. Phys. Chem., **63** (1959), p. 1875.
- 10) P.-C. LI, A. C. GHOSE and G.-J. SU: Phys. Chem. Glasses, **1** (1960), p. 202
- 11) E. F. RIEBLING: J. Am. Ceram. Soc., **47** (1964), p. 478
- 12) 今岡 稔, 山崎敏子: 窯業協会誌, **73** (1965), p. 264
- 13) A. NAPOLITANO, P. B. MACEDO and E. G. HAWKINS: J. Am. Ceram. Soc., **48** (1965), p. 613
- 14) E. F. RIEBLING: J. Am. Ceram. Soc., **49** (1966), p. 19.
- 15) 頓行 宏, 今岡 稔: 窯業協会誌, **84** (1976), p. 175
- 16) P.-C. LI, A. C. GHOSE and G.-J. SU: J. Am. Ceram. Soc., **45** (1962), p. 83.
- 17) A. LEONTJEVA: Zh. Fiz. Khim., **13** (1939), p. 1020
- 18) R. BRÜCKNER and J. M. F. NAVARRO: Glastechn. Ber., **39** (1966), p. 283
- 19) 飯田孝道, 森田善一郎, 竹内 栄: 日本金属学会誌, **39** (1975), p. 1169.
- 20) 後藤和弘, 松下幸雄: 電気化学 **35** (1967), p. 514.
- 21) たとえば, 戸田盛和, 松田博嗣, 樋渡保秋, 和達三樹: 液体の構造と性質 (1976), p. 11 [岩波書店]
- 22) 森田善一郎, 飯田孝道, 川本正幸: 学振 140 委-175 (昭和 60 年 6 月)
- 23) 大田陸夫, 田中紳一郎, 曾我直弘: 昭和 58 年窯業協会年会講演予稿集 (1983) H-10, p. 107.
- 24) 後藤和弘, 永田和宏: 学振 140 委-174 (昭和 60 年 6 月)
- 25) 飯田孝道, 森田善一郎: 学振 140 委-69 (昭和 53 年 12 月)
- 26) 朝比奈正, 小坂岑雄: 学振 140 委-T5 (昭和 55 年 12 月)
- 27) A. G. TURNBULL: Australian J. App. Sci., **12** (1961), p. 324
- 28) E. N. da C. ANDRADE: Phil. Mag., **17** (1934), p. 497
- 29) 飯田孝道, 森田善一郎: 日本金属学会会報, **19** (1980), p. 655.
- 30) 後藤廉平, 平井西夫, 花井哲也: レオロジーとその応用 (1964), p. 49 [共立出版]
- 31) G. J. JANZ: Molten Salts Handbook (1967), p. 52 [Academic Press]
- 32) E. T. TURKDORGAN: Physicochemical properties of molten slags and glasses, The Metals Society (1983), p. 1
- 33) I. OSIDA: Proc. Phys.-Math. Soc. Japan, **21** (1939), p. 353
- 34) F. A. LINDEMANN: Physik, **11** (1910), p. 609
- 35) A. K. SINGH and P. K. SHARMA: Can. J. Phys., **46** (1968), p. 1677
- 36) J. N. SHAPIRO: Phys. Rev., **B1** (1970), p. 3982
- 37) 原島 鮮: 液体論 (1954), p. 182 [岩波書店]