

次世代ウェットエンド改質システムによる抄紙マシンの トータルソリューション

ソマル株式会社*¹ 技術開発部 大石 浩之*²
但木 孝一, 春日 一孝, 藤田 幸裕

Total Solution of Papermaking Machine by New type Wet-end Improver

*Hiroyuki Oishi*², Koichi Tadaki, Kazutaka Kasuga and Yukihiro Fujita*
Technical Dept., SOMAR Corporation*¹

Abstract

In recent years, the effect or performance of various wet-end chemicals has been weakened, because of the closed system of papermaking machines, recent poorer quality of pulp materials and other factors mentioned later. Especially, the dosage of the wet-end chemicals such like retention aid, paper strength agent, and sizing agent has increased to show their further more effect, in response to the higher dosage of waste paper and fillers. That resulted in stain of papermaking equipment, and defects of paper surface.

“REALIZER A Series” which our company has developed, is an effective / practical high-performance coagulant and special cationic polymer to applied to pretreatment process of pulp materials. On the other hand, “REALIZER R Series, FX Series” is a high molecular special polymer with various structure which enables to achieve excellent retention with small dosage.

We’d like to emphasize the New type Wet-end System, the unique usage system, that is, using together “REALIZER A Series”, “REALIZER R Series” and “FX Series”. It would be noted that we named the unique system “AXISZ SYSTEM” and R & D has been still working for farther better runnability and productivity.

In this paper, we’d like to introduce the characteristics of the abovementioned and newly developed systems.

1. はじめに

近年、抄紙マシンのクローズド化やパルプ原料の悪化等のため、各種内添薬剤の効果が発揮しにくい状況へ変化してきている。特に古紙や填料の高配合化で歩留り剤、紙力剤、サイズ剤等の各種ウェットエンド薬剤の添加量が増え、抄紙マシンの汚れや紙面欠陥の問題を抱えるマシンが増加している。

弊社で開発を進めてきた「リアライザーAシリーズ」は、粘着性ピッチや紙面欠陥対策等に有効な高機能凝結剤で、パルプ原料の前処理段階に適用する特殊なカチオン性ポリマーである。また高機能歩留り剤「リアライザーRシリーズ、FXシリーズ」は低添加で高い歩留り物性が得られる様々な構造を有する高分子量特殊ポリマーとなっている。

現在、これらの薬剤を組み合わせる次世代ウェットエンド改質システムを「アクシーズシステム」と命名し、更なる抄紙マシンの操業性、生産性の向上のためにテストを継続している。以下にこれらの最新システム等の特徴を紹介する。

*¹ 〒340-0003 埼玉県草加市稲荷 5-19-1/19-1, Inari5-Chome, Soka, Saitama, 340-0003. Japan

*² E-mail: oishi.hiroyuki.c2@somar.co.jp

2. 各種抄紙マシンのウェットエンド物性の変化

中性抄造条件の板紙、塗工紙、新聞マシンの主なウェットエンド物性値を表1にまとめた。何れも紙面欠陥の問題を抱えているマシンの例となっているが、インレット中の灰分含有率が高まって来ている特徴も共通している¹⁾²⁾。

特に板紙マシンの傾向として、全歩留りが50%台と低く、NTU濁度が高く、カチオン要求量の値が低い傾向が共通して見られた。また紙面欠陥の分析結果からは古紙由来の粘着性のピッチ成分が多く検出された。

弊社の「アクシーズシステム」を適用することにより歩留り物性を高め、白水負荷を低減することにより、これらの欠陥トラブルを解決できる。また歩留り物性のみでなく「地合い」「紙力」「サイズ度」等と言った紙質の向上も可能となる。

表1 各抄紙マシンのウェットエンド物性及び紙

	全歩留り (%)	灰分歩留り (%)	カチオン要求量* ($\mu\text{eq/L}$)	NTU 濁度* (度)	紙面欠陥分析 結果(主成分)
ライナー(中層)	52.7	24.6	3.6	105	酢酸ビニル、スチレン
中芯(中層)	50.1	18.5	8.5	120	アクリレート系物質
白板(中層)	55.8	26.5	4.2	270	スチレン、酢酸ビニル
塗工原紙(64g/m ²)	69.5	35.6	13.4	39.2	スチレン、ブタジエン
新聞紙(42.8g/m ²)	56.9	27.5	25.1	31.3	酢酸ビニル、アクリレート系物質

※カチオン要求量・NTU 濁度: 白水の数値

3. 「アクシーズシステム」の特徴

弊社の「アクシーズシステム」は図1に示すように3種類の高機能ポリマーから成り立っている。それぞれの薬剤を組み合わせることで最適なシステムを構築可能だが、最大の特徴は、各薬剤が単独で効果を発揮できる点にある。

「リアライザーAシリーズ」は、従来の凝結剤等と異なりカチオン要求量や濁度の低減に重きを置いたコンセプトではなく、紙面欠陥対策に最適な高機能な凝結剤となっている。系内のピッチ成分を凝集させることなく、パルプ繊維等へ定着させることができるポリマー構造が特徴となっている。

高機能歩留り剤「リアライザーRシリーズ」はカチオン性歩留り剤単独添加、「リアライザーFXシリーズ」はアニオン性歩留り剤単独添加に対応できる特殊ポリマーとなっている。填料歩留りを大きく向上させるだけでなく、パルプ繊維に均一に定着させることができるのが特徴である。そのため地合いを低下させることなく歩留り物性を向上可能である。

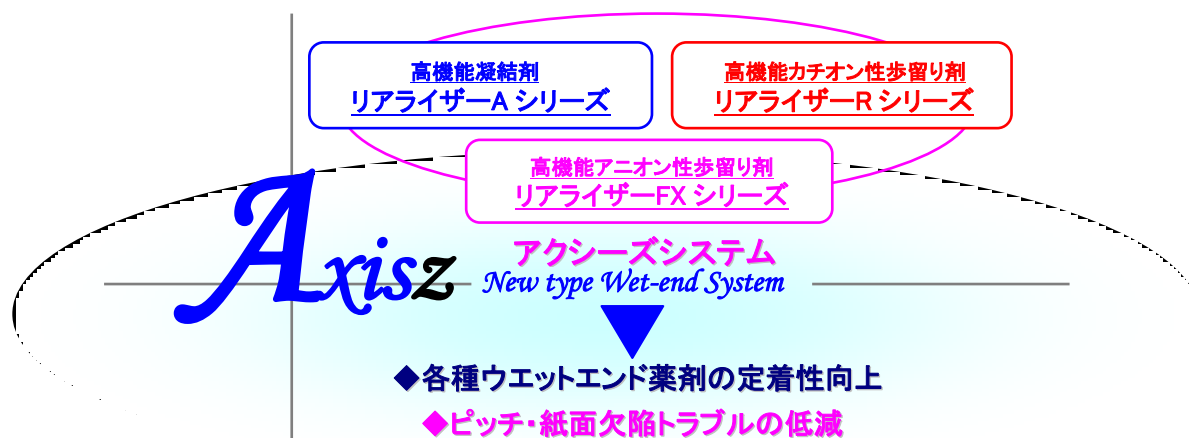


図1 次世代ウェットエンド改質システム「アクシーズシステム」の特徴

4. 板紙マシンへの「リアライザーRシリーズ」の適用

日本の板紙マシンでは、ウェットエンドパートにおいて紙力増強のために「紙力系紙力剤」が添加され、更に歩留り、濾水性向上を目的とした「濾水系紙力剤」が併用される場合が多い。海外の板紙マシンでは歩留り、濾水性向上のために、一般的に歩留り剤を添加しており、紙力剤の二液処方で操業する方法は特殊なケースと言える。

歩留り剤が添加されないマシンは高い歩留りを維持し続けることが難しく、歩留り物性が低下してくるとピッチ成分がマシン系内で循環しながら凝集、粗大化し紙面欠陥や用具汚れを引き起こしやすくなる³⁾。

現在、板紙マシンにおいて弊社高機能歩留り剤「リアライザーR シリーズ」の適用を進めており、ライナーマシン、白板紙マシンで紙力やサイズ特性を向上させながら紙面欠陥低減をした実施例を紹介する。

4. 1 ライナーマシンへの「リアライザーRシリーズ」の適用

A社、多層抄きのライナーマシンの全歩留り、灰分歩留りの向上を目的に「リアライザーR101」を導入した例を紹介する。「リアライザーR101」導入前は、濾水系紙力剤をS/C前に各層、平均400ppm添加していた。それに対して「リアライザーR101」を各層、平均190ppmで置換えたところ、表2のように全歩留りは平均8.7ポイント、灰分歩留りは平均10.9ポイントアップさせることができた。

従来の濾水系紙力剤を添加している時のカチオン要求量は $1.6\mu\text{eq/L}$ と極端に低かったが、低カチオンタイプの「リアライザーR101」との置換により $4.6\mu\text{eq/L}$ に上昇しており、「リアライザーR101」が系内電荷状態の改善にも寄与したと考えられる。また濾水系紙力剤の半分以下の添加量でも紙力が低下することなく歩留り物性が向上した。一般的に灰分歩留りが向上すると紙力が低下してしまうケースが見られるが、「リアライザーR101」はパルプ繊維間の結合を強める特殊な構造を持つため、紙力と歩留りアップを両立できる。また紙力系紙力剤など内添薬剤のパルプ繊維等への定着力も高めることができ、そのことが紙力改善にも寄与している。

表2 ライナーマシンへの「リアライザーR101」の適用（表層の物性）

	添加量 (ppm)	圧縮強度 (N)	全歩留り (%)	灰分歩留り (%)	カチオン要求量 ($\mu\text{eq/L}$)	NTU 濁度 (度)
濾水系紙力剤	400	49.5	49.5	17.8	1.6	123
リアライザーR101	150	58.7	58.7	29.2	4.6	77

※カチオン要求量・NTU 濁度：白水の数値

4. 2 「リアライザーRシリーズ」による内添薬剤の添加量削減

古紙配合率の上昇に伴い、紙力剤、硫酸バンド、サイズ剤等の各内添薬品はそれぞれの効果が発揮しにくくなり、添加量の増加傾向が見られる。内添薬剤の添加量増加は、ピッチや紙面欠陥を引き起こす原因となっている。

B社、白板紙マシンでは濾水系紙力剤を各層平均450ppm添加していたが、灰分歩留りが低く、紙面欠陥トラブルを抱えていた。従来の濾水系紙力剤を「リアライザーR101」で各層、平均150ppmで置換した結果、全歩留りを平均7.8ポイント、灰分歩留りを平均9.3ポイント向上させることができた。特に添加量の多い表層では、表3のように濾水系紙力剤750ppmに対し「リアライザーR101」は250ppmで大幅な歩留り向上が実現できた。全歩留りや灰分歩留りが向上したことで各種内添薬剤の定着性や歩留りが向上し、サイズ剤添加量を0.8%から0.6%へ25%の添加量削減ができた。これは、濾水系紙力剤等の過剰添加で系内の電荷バランスが崩れ、陽転に近い状況であったため、ピッチ等が凝集しやすい状況であったと考えられる。「リアライザーR101」添加により系内の電荷バランスを整えることができ、歩留り物性の向上と共にサイズ剤の添加量低減が可能になったものと考えられる。

表3 白板紙マシンへの「リアライザーR101」の適用（表層の物性）

	添加量 (ppm)	サイズ剤 添加量(%)	全歩留り (%)	灰分歩留り (%)	カチオン要求量 (μ eq/L)	NTU 濁度 (度)
濾水系紙力剤	750	0.8	70.5	28.1	0.2	55.5
リアライザーR101	250	0.6	77.7	36.8	2.1	12.8

※カチオン要求量・NTU 濁度：白水の数値

4. 3 「リアライザーR シリーズ」による紙面欠陥低減

A社ライナーマシンでは濾水系紙力剤と「リアライザーR101」との置換の結果、歩留り物性が改善され平均すると白水濃度は約32.0%と大幅に低減された。

弊社では「ポリエチレンスティック (PES) 法」という独自のピッチ定量方法を実施しており、実機試験時の白水濃度の推移とポリエチレンスティック (PES) 付着量の推移を図2に示す。PES 付着量は濾水系紙力剤添加時が多く、「リアライザーR101」添加時は少ない。これはそのままマシン系内のピッチ量を示している。白水濃度が低減されたことにより、マシン系内を循環するピッチ成分が減少して用具汚れや紙面欠陥低減に繋がった。

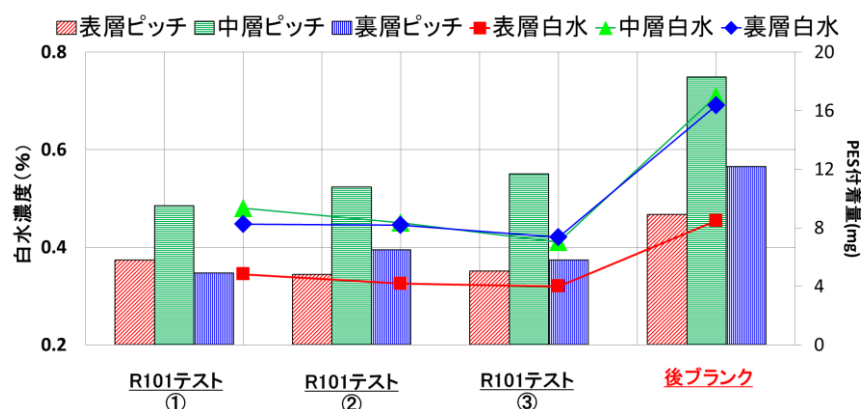


図2 ライナーマシンでの「リアライザーR101」適用時の白水濃度と系内ピッチ量の推移

このマシンは粘着物質やスチレン系物質による図3のような紙面欠陥発生も課題であったが、濾水系紙力剤から「リアライザーR101」への置換で紙面欠陥数が50%低減されるという結果を得ることができた。

またB社白板マシンでは図4のような紙面欠陥が課題となっていた。原因はスチレン系物質が硫酸バンド由来のアルミニウムや填料由来のカルシウムやケイ素と凝集し、発生したものと考えられる。

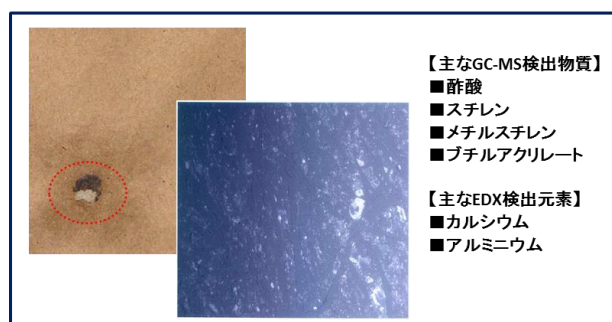


図3 A社ライナーマシン紙面欠陥と欠陥部 SEM 画像

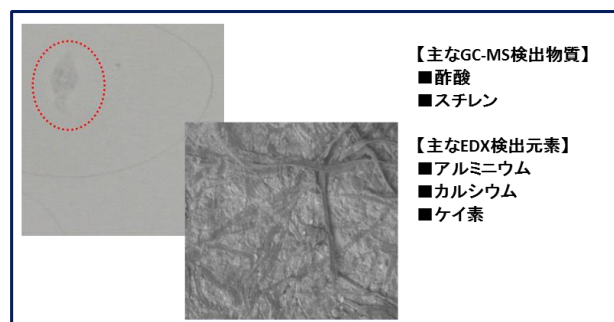


図4 B社白板紙マシン紙面欠陥と欠陥部 SEM 画像

図5にB社白板紙マシンにおける実機試験時の白水濃度推移を示す。濾水系紙力剤を「リアライザーR101」に置換したことで各層平均すると白水濃度は約23.8%低減した。また、上述のように薬剤の定着性が向上したことから、サイズ剤添加量削減や紙面欠陥形成物質のアルミニウムを含む、硫酸バンド添加量削減をすることができた。以上のように「リアライザーR101」による白水濃度低減や内添薬剤量削減の効果で、紙面欠陥を低減することができた。

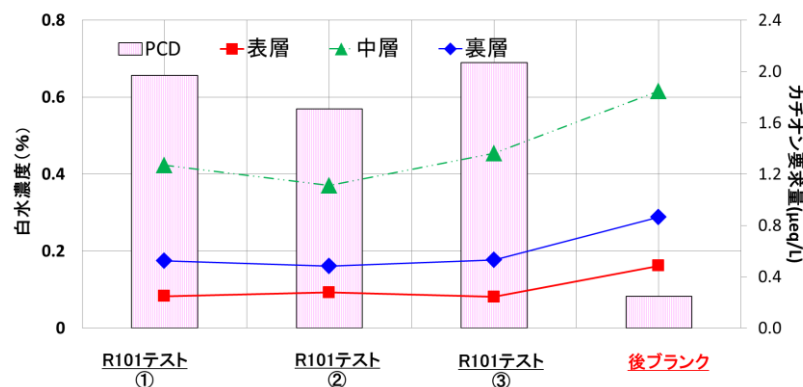


図5 白板紙マシンでの「リアライザーR101」適用時の白水濃度とカチオン要求量推移

5. 新規カチオン性歩留り剤「リアライザーR600」の適用

これまで弊社では、超高分子量を特徴とする「リアライザーRシリーズ」を開発し、従来のカチオン／アニオン性歩留り剤からなるデュアル添加システムと比較して、地合いと歩留り物性向上に有利なカチオンシングル添加を推奨し、多くのマシンで実績を積んできた⁴⁾。しかし、最近では古紙や填料の高配合化がさらに高まってきているため、地合いや歩留り物性の向上のみならず、欠陥減や薬剤定着向上などの要求にも応える必要がある。従って、これまでの開発コンセプトとは異なる分子設計を行い新規カチオン性歩留り剤「リアライザーR600」を開発した。

「リアライザーR600」は特殊なポリマー構造を持たせることにより、図6に示すような填料成分との相互作用を高めて過凝集させることなく、パルプに均一に定着することが可能な次世代型歩留り剤である。また、形成したフロックがS/C等の機械的シェアーを受けてもその特殊構造によりフロックが再架橋するため、従来のRシリーズよりも飛躍的に歩留り物性を高めることができる。

この技術はアニオン性歩留り剤にも応用可能であり、後述する「リアライザーFXシリーズ」にも導入されている。

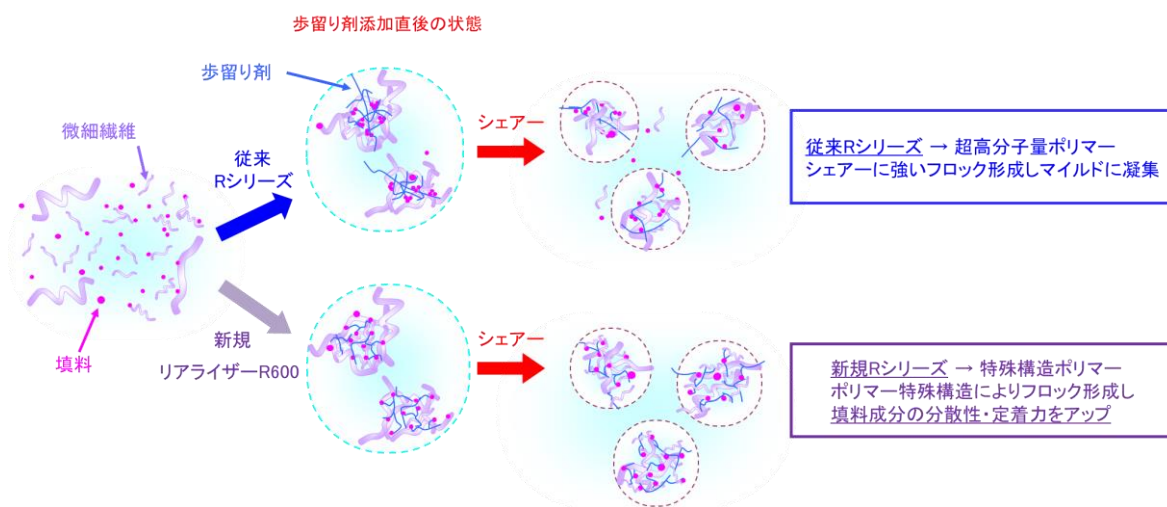


図6 リアライザーR600添加によるフロック形成メカニズム

5. 1 塗工原紙マシンにおける「リアライザーR600」シングル添加の適用

C社、塗工原紙マシンにおけるDIP高配合銘柄での灰分歩留りの向上を目的に「リアライザーR600」を導入した例を紹介する。適用前はS/C前後にカチオン性ポリマー／アニオン性ポリマーからなるデュアルシステムであったが、DIP高配合銘柄では灰分歩留りと地合いが不十分であったため「リアライザーR600」シングル添加を適用した。その結果、他社デュアル添加システムのトータル添加量から45%削減した添加量110ppmでも灰分歩留りが10ポイント以上向上した。

また、S/C前シングル添加であること及び添加量が大幅に削減できたことは、地合いの向上にもつながる。原紙について、3Dシートアナライザーを用いて地合いとブロック状態について測定した結果を表4に示す。他社デュアルシステムと比較して歩留りが増加しているながらも、地合いが向上すると共にブロック数が増加してサイズが減少していることから、リアライザーR600の適用により緻密で均一なブロックが形成されていることが確認できる。

表4 地合いとブロック状態の比較

歩留り剤システム	S/C前	S/C後	全歩留り (%)	灰分歩留り (%)	地合い※ インデックス	ブロック状態	
	カチオン(ppm)	アニオン(ppm)				数	サイズ(mm ²)
他社デュアルシステム	120	80	69.0	21.5	15.3	290	15.03
リアライザーR600 カチオンシングル添加	170	0	82.2	36.2	17.3	320	13.71
	140	↑	79.8	34.8	18.9	333	12.12
	110	↑	75.1	32.0	20.7	349	11.19

※値が高いほうが良好

5. 2 白板紙マシンにおける「リアライザーR600」シングル添加の適用

D社 白板紙マシンの表層では、S/C前後にカチオン性ポリマー／アニオン性ポリマーからなるデュアルシステムであったが、填料由来の欠陥が多く発生していた。これは、填料歩留りを上げるためにS/C前後に歩留り剤を300ppm／250ppmと過剰に添加していたため、薬剤の分散性が低下して填料が凝集し欠陥を生じているものと推察された。そこで「リアライザーR600」をS/C前に450ppmシングル添加で置き換えたところ、図7に示すように填料由来の欠陥が40%減少し添加量を抑えながらも歩留り物性(特に灰分歩留り)が向上した。

また、中層ではS/C前にカチオン性ポリマーのシングル添加であったが、こちらも「リアライザーR600」に置き換えることにより添加量を30%以上削減しても歩留り物性が向上した。さらに、濾水・搾水性が大幅に向上することで乾燥性が改善し抄速が5%アップした。板紙のような紙厚の高い品種では、中層の濾水性を向上させることが乾燥性を改善するためのポイントであり、「リアライザーR600」のような灰分歩留りに特化した歩留り剤の適用により、微細な灰分を均一にパルプに定着して乾燥性を改善できる。

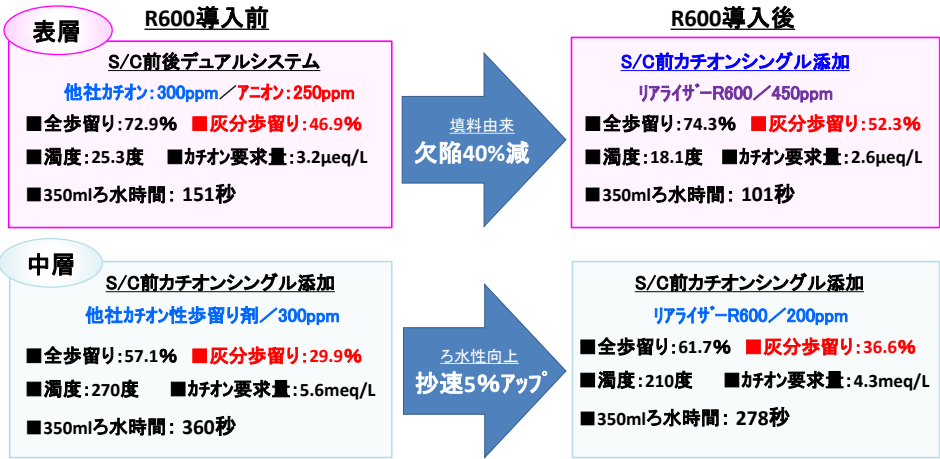


図7 白板紙マシンにおける歩留り物性比較

5. 3 「リアライザーAシリーズ」と「Rシリーズ」の併用

「リアライザーAシリーズ」は低カチオンで疎水性の高い性質を持つためピッチ成分を疎水性相互作用により捕捉しパルプに定着する。また、分子量・分子量分布を最適化しているためピッチ成分を凝集させずにパルプへ定着可能である。5. 2 と同様の白板紙マシンの表層において、さらなる欠陥減を目標として高機能凝結剤「リアライザーA2400」を種箱に200ppm添加したところ、欠点がさらに20%減少した。図8に示すように「リアライザーA2400」の適用により弊社ポリエチレンスティック法で定量したピッチ量(PES 付着量)は半減していることから、粘着性ピッチなどのイオン性の低い成分が欠陥に関与しているものと考えられる。また、一般的な指標である濁度やカチオン要求量は大きく変化していないことから、これらの値が必ずしも欠陥数と関連していないこともポイントである。

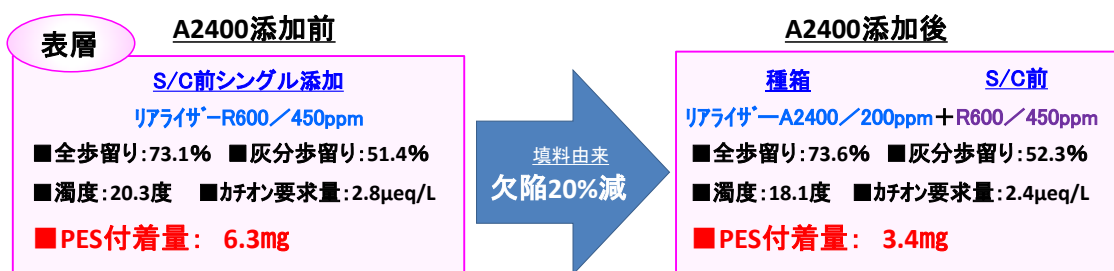


図8 リアライザーA2400 適用時のウェット物性比較

6. 新規アニオン性歩留り剤「リアライザーFX77」の適用

近年の洋紙マシンは、原紙灰分を向上させるためS/C前後に多量の歩留り剤を添加することで灰分歩留りを向上させている場合が多い。過剰量の歩留り剤添加は、抄紙マシンの汚れだけでなく地合いを悪化してしまう要因にもなりえる。そのため、各抄紙マシンに最適な歩留り剤を適用し、最小限の添加量で管理する事が紙品質面・コスト面から非常に重要であると考えられる。

抄紙系内には、洋紙・新聞・板紙とどの分野においても硫酸バンドやカチオン化澱粉、その他、紙力剤、凝結剤、濾水性向上剤などカチオン性物質が多く使用されていることが多い。近年、特に両性澱粉から安価なカチオン化澱粉への切替えやカチオン性ポリマーを用いた紙質向上などが急速に進んでおり、抄紙系内は従来と比較してカチオン要求量の値が低く推移する等、抄紙環境は大きく変化している。このような抄紙環境で歩留り向上を目的に従来同様の高電荷密度の歩留り剤をS/C前後に添加した場合、電気的に過剰なフロックを形成してしまい、地合いが悪化してしまう問題がよく見受けられる⁵⁾。

弊社、アニオン性歩留り剤「リアライザーFXシリーズ」は、近年の抄紙環境の変化に合わせ新規に開発した薬剤である。特徴としては、カチオン性物質が多く存在する抄紙環境で非常に高い歩留り効果を発揮する点にある。更に「リアライザーRシリーズ」と同様にシェアーに強い特殊なポリマー構造を持たせているため、S/C前に単独添加することが可能で歩留りと地合いを併せて向上させることが可能な薬剤となっている。

現在、取り組んでいる洋紙マシンにおけるアニオン性歩留り剤「リアライザーFX77」単独添加による品質・操業性改善の実施例を紹介する。

6.1 「リアライザーFX77」による歩留り向上効果

E社、塗工原紙マシンでは、過剰量の歩留り剤を添加して灰分歩留りを向上させていた。そのため系内でフロックが過凝集し、地合いが悪化するという問題が発生していた。その問題を解決すべく最適薬剤を選定した結果、当マシンでは原料から抄紙段階でカチオン化澱粉や硫酸バンドといったカチオン性物質が多く使用されていたため、アニオン性歩留り剤「リアライザーFX77」単独添加が最も効果が高かった。従来、カチオン性ポリマーをS/C前に添加し、コロイダルシリカをS/C後に添加するデュアルシステムを採用していたが、「リアライザーFX77」をS/C前に単独添加することでトータル添加量を70%削減した70ppmでも同等以上の歩留り効果を発揮することが可能であった(図9)。

このように抄紙系内の変化に合わせ、最適な歩留り剤を選定することで大幅な歩留り物性の向上を実現する事が可能である。「リアライザー-FX77」は、S/Cのシェアーにも非常に強い特殊ポリマー構造を持っているため、アニオン単独添加で歩留り物性を向上させることが実現できたと考えられる。

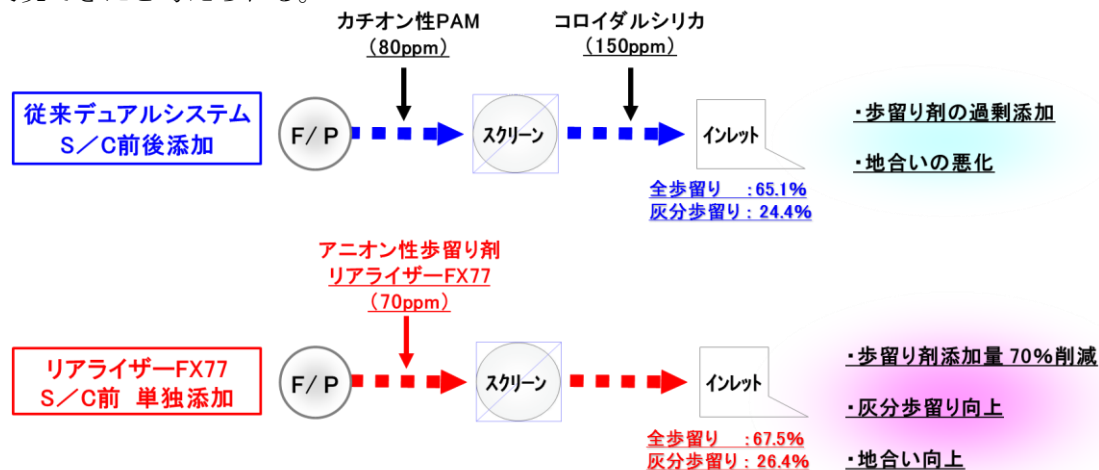


図9 塗工原紙マシンでの「リアライザー-FX77」の歩留り効果

6.2 「リアライザー-FX77」による地合い改善効果

上記E社、塗工原紙マシンの最重要課題であった地合いへの影響について結果を説明したい。図10に3Dシートアナライザーを用いて地合いインデックスを測定した結果を示す。「リアライザー-FX77」の適用により地合い指数は17%上昇し、目視でも地合い向上が確認できる良好な結果を得ることができた。

地合い向上の一番の理由は、薬剤特性の違いにあると考えられる。従来のデュアルシステムの問題点としては、カチオン、アニオン両薬剤とも電荷の高い薬剤であり、インレット前でブロックの過剰凝集が生じていたと考えられる。そのため填料成分が不均一に分布し、地合い低下に繋がっていた。一方「リアライザー-FX77」は、低アニオン・高分子量タイプの特殊な構造をもつ歩留り剤であり、ポリマーの電荷に頼らずに歩留りを向上させるメカニズム

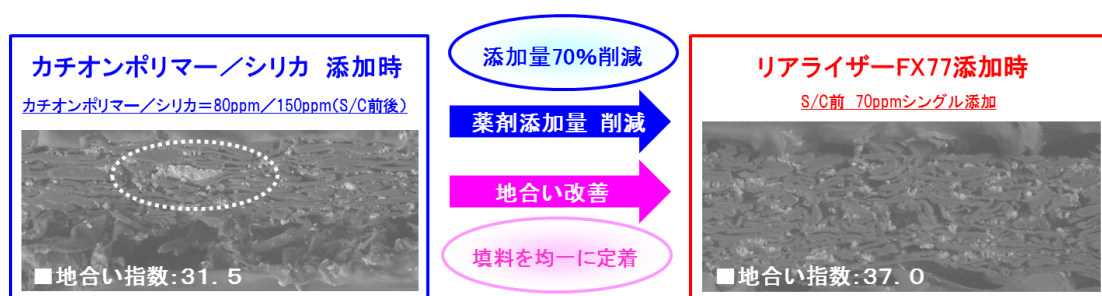


図10 リアライザー-FX77 適用時の原紙断面 SEM 画像適用時の原紙断面像

を持つ。そのため過剰な凝集を発生することなく、地合い向上には最適な薬剤であると言える。テスト中の原紙断面を走査型電子顕微鏡（SEM）で観察した結果、従来デュアル添加時には推測の通り、填料の不均一な分布が観察された（図10）。これはS/C後での填料成分の過凝集が原因であると考えられる。一方「リアライザー-FX77」適用により填料分布は均一になり、地合い向上効果が明確に確認された。このように「リアライザー-FX77」を用いた結果、薬剤添加量の削減と填料分布の分散性向上により目標とする地合い改善を達成する事が出来た。

6.3 「リアライザーFX77」による乾燥性の向上

濾水・搾水性や乾燥性の向上を目的として、コロイダルシリカを添加している抄紙マシンが見られる。当上質紙マシンでは、カチオン性ポリマー／コロイダルシリカの S/C 前後添加処方と比較して「リアライザーFX77」 S/C 前、一液添加適用によりドライヤー蒸気圧を低減することができた。

表 5 リアライザーFX77 適用による原紙の地合い状態とドライヤー蒸気圧の変化

		地合い インデックス (－)	フロック状態		200mL 濾水時間 (秒)	ドライヤー 蒸気圧 (kPa)
			数 (個)	サイズ (mm ²)		
従来デュアルシステム (S/C 前後添加)	①	31.5	406	10.3	251	58.3
	②	31.2	410	9.9	255	57.1
リアライザーFX77 (S/C 前添加)	①	37.9	450	8.2	188	52.5
	②	37.0	439	8.4	184	52.9

一般に歩留り剤を添加した場合、ワイヤー上でフロックを形成し、ワイヤーパートでの水抜け（濾水性）は向上するが、フロック内部に結合水を持つてしまうことでプレスでの搾水性やドライヤーでの乾燥性が悪化してしまう傾向がある。そのため、ワイヤー上で留まる最小サイズのフロックを形成する事が重要である⁶⁾。

表 5 に 3D シートアナライザーを用いてフロック状態を測定した結果を示す。その結果、従来の S/C 前後、デュアルシステム時と比較して原紙中のフロック数は増加し、フロックサイズは 19%小さくなっていることが分かった。つまり「リアライザーFX77」適用により結合水を持ちにくい細かいフロックを形成するため、歩留り物性の向上と併せてドライヤー蒸気圧を 8.7%低減する事が可能となり、エネルギー消費量の低減に貢献する事ができた。

7. ま と め

高機能歩留り剤「リアライザーR シリーズ」や「リアライザーFX シリーズ」を各種抄紙マシンに適用することにより地合い等の紙質を向上と共に歩留り物性を向上可能である。「アクシーズシステム」の各種薬剤は、低添加で内添薬剤の定着性を向上可能な点が紙面欠陥低減にも有効なため様々なマシンへの適用を進めている。

今後も更に高機能化を進めた「ウェットエンド改質システム」を開発し、紙製品の紙質向上、環境負荷の低減、抄紙マシンの稼働効率向上など総合的な提案ができるよう進めていきたいと考えている。

References

- 1)Koichi Tadaki, Tomoko Asada and Kazutaka Kasuga Tappi J. **63**, (10),15 (2009)
- 2)Koichi Tadaki:Japan Tappi J. **62**, (11),33 (2008)
- 3)Koichi Tadaki, Kenji Tsunekawa and Shuichi Arai:Japan Tappi J. **56**, (8),58 (2002)
- 4)Koichi Tadaki, Tomoko Asada and Tsunekawa Kenji:Japan Tappi J. **57**, (9),1 (2003)
- 5)Koichi Tadaki, Tomoko Asada and Miho Kato:Japan Tappi J. **60**, (8),38 (2006)
- 6)Koichi Tadaki, Masa Taniguchi and Sigeru Kurose:Japan Tappi J. **58**, (8),56 (2004)