研究論文

AE 波形シミュレーションによる C/C コンポジット
の微小破壊のダイナミクスと進展挙動斎藤 直哉^{*1}, 竹本 幹男^{*1}, 鈴木 裕晶^{*2}, 小野 恒司^{*3}

(1999 年 10 月 12 日受付)

Dynamics and Progression of Micro-fractures in C/C Composite
Studied by AE Waveform SimulationNaoya SAITO,^{*1} Mikio TAKEMOTO,^{*1} Hiroaki SUZUKI^{*2} and Kanji ONO^{*3}

(Received October 12, 1999)

Utilizing the waveform simulation method of bulkwave Acoustic Emission (AE) signals, dynamics (kinetics and kinematics) and progression of microfractures in an unidirectional C/C composite were studied. Frequency and orientation dependence of longitudinal (P-) wave velocity and attenuation were measured utilizing a laser ultrasonic system. Fracture dynamics were studied by the P-waveform simulation so that the computed P-wave amplitude and rise time best matches the monitored values. Here, both the response delay and the attenuation were taken into account. Progression of four fracture types, i.e., matrix crack (Type-1), fiber and inter-laminar debonding (Type-2 and -3) and fiber disbonding (Type-4) during four-point bending were revealed. A sudden propagation of large inter-laminar delamination occurred after the succession of small matrix cracks and inter-laminar debondings.

1. 緒 言

繊維強化複合材料では、マトリックスや繊維の破断、繊維/マトリックス界面やプレプリグ層間の剝離 (Mode-I 型 debonding, Mode-II 型 disbonding) など複雑な微小破壊が発生するが、これらのダイナミクス (破壊モードと生成速度) や発生順を明らかにすることは高性能複合材料の設計や開発に大事である。AE 信号解析技術の進歩によってこれらの破壊タイプや進展挙動を解析することが可能になりつつある。一方、炭素繊維・炭素

(C/C) コンポジットは、マトリックスボイドなどの内部欠陥に起因した微小破壊が小さな負荷から頻繁に発生するため、AE モニタリングでは致命的損傷の発生を調べるのが難しいとされている¹⁾。

Philippidis ら²⁾ は、色々な方向の予き裂をもつ C/C 試験片からの AE を、ニューラルネットワークを用いるパターン認識法で分類した。彼らは、平滑試験片で検出された多くの AE を、予き裂付き試験片に対して考えられる破壊モード (巨視的混合モード破壊) に分類したが、微視的破壊タイプ (モード) との対応が明らかにされていない。

著者らは、実体波 AE の面外変位を計測するとともに、波動減衰と応答遅れを考慮した波形シミュレーション^{2~4)} によってガラス繊維強化プラスチック (GFRP) の微小破壊のダイナミクスを調べた。波形シミュレーションを行うためには、レーザ超音波システムを用いて材料の音響特性 (音速, 減衰, 応答遅れ) を定量化するとともに、音源位置評定を正確に行う必要がある。一方向強化 (UD-)C/C コンポジットの音響異方性は GFRP のそれよりも大きく、また先在欠陥のために波形シミュレーションはもちろん音源位置評定すら難

^{*1} 青山学院大学理工学部 (157-8572 東京都世田谷区千歳台 6-16-1)

Faculty of Science and Eng., Aoyama Gakuin Univ., 6-16-1, Chotosedai, Setagaya-ku, Tokyo 157-8572, Japan

^{*2} 千代田化工建設(株)品質管理部 AE グループ (221-00222 横浜市神奈川区守屋町 3-13)

Chiyoda Chemical and Construction Co., 3-13, Moriya-cho, Kanagawaku, Yokohama 221-0022, Japan

^{*3} Dept. of Materials Science and Engineering, University of California, Los Angeles, CA 90095-1595, U.S.A.

Fig. 1 Experimental setup for AE monitoring from C/C composite.

しくなることが懸念される。そこで、UD-GFRP について構築した音源位置評定アルゴリズムや波形シミュレーション法が、C/C コンポジットに適用できるか否かを検討し、UD-C/C コンポジットの破壊挙動を検討した。

はじめに、レーザ超音波システムを用いて UD-C/C コンポジットの音響特性を測定した。次に、ノッチつき試験片の4点曲げ中の AE を8チャンネル AE システムを用いて検出した。波形シミュレーションは限られた AE にのみ可能であったが、4タイプの破壊速度と進展挙動をある程度は解析できたので報告する。

2. 試験片および AE モニタリングシステム

Fig. 1 には、試験片と AE モニタリングシステムを示す。試験片は、プリフォームドヤーン法によって作製された繊維含有率 50 mass% の UD-C/C コンポジット (Across AC 250) で、直径 $8\ \mu\text{m}$ の炭素繊維 (HT, 引張り強さ: 4.0 GPa) が使用されている。一辺 25 mm の矩形断面をもつ 200 mm 長さの試験片の片面 (図では上面の $X=8\ \text{mm}$) に、幅 0.3 mm、深さ 10 mm の U 字スリットを導入し、 $8.3 \times 10^{-4}\ \text{mm/s}$ の定クロスヘッド速度 4 点曲げを行った。なお、座標原点は試験片の重心位置である。試験片下側の #1 の位置には周波数帯域 0.02~1.2 MHz のコニカル型面外変位センサー (Dunegan, S 9208) を、#2 から #8 の位置には、周波数帯域 0.1~1 MHz の共振型小型センサー (PAC 社, PICO, 受感部径 4 mm ϕ) を設置した。すべてのセンサー出力は 10 MHz 帯域プリアンプ (NF 回路ブロック社, NF 9913) で 20 dB 増幅したのち、8 チャンネルディジタルライザー A (オートニクス, APC-510) を用いてサンプリングインターバル 50 ns, サンプリングポイント

1,024 点で離散化データとし、ワークステーションに転送した。また、AE パターン認識による破壊モード分別を行う目的で、#1 センサー出力を分岐し、ディジタルライザー B (Tektronix, RTD 720 A H 310, 200 ns, 2,048 点) を使用して波形全体を取りこんだが、その結果については次報で報告する。

3. 波形シミュレーション法と UD-C/C コンポジットの音響特性

3.1 波形シミュレーション法

破壊のダイナミックスは、(1) 式で計算される縦波面外変位 $U_i(x, t)$ が実測面外変位 (#1 センサー出力) と一致するように繰返し計算で求める。

$$U_i(x, t) = \exp[-\alpha(x-x')] \cdot T_{ij}(x, t, x', t') * Ab_j(x', t') * R(t) \quad (1)$$

ここで、記号 $*$ は畳込み積分を意味し、 $T_{ij}(x, t, x', t')$ は媒体の第 2 種グリーン関数、 $Ab_j(x', t')$ は位置 x' におけるき裂体積生成速度 (A はき裂面積、 b_j は開口ベクトル) である。 $T_{ij}(x, t, x', t')$ を計算するためには、音源座標、#1 センサー方向の音速が必要である。また、 $\exp[-\alpha(x-x')]$ は縦波減衰で α は AE 周波数帯域における縦波減衰率である。また、 $*R(t)$ は応答遅れを補正する。遅延関数 $R(t)$ は、縦波減衰の周波数依存性を Kelvin-Voigt モデルに対する解析的周波数依存性⁵⁾ にカーブフィッティングすることによって求める。このためには、縦波速度と減衰の方向依存性と周波数依存性を測定する必要がある。

3.2 C/C コンポジットの音響特性

3.2.1 縦波速度異方性

縦波群速度異方性は、Fig. 2 に示すレーザ iso-angular scanning (IAS) 法⁶⁾で測定した。すなわち、

Fig. 2 Experimental setup for measuring the P-wave group velocity by IAS method.

試験片表面に Q-スイッチ YAG レーザを照射し、繊維方向に対して $(90^\circ - \theta_g)$ 方向に伝播する縦波を対面上でレーザ干渉計を用いて測定する。なお、 θ_g はエネルギー波の伝播方向で、 $\theta_g = 0$ は繊維方向を意味する。実際の実験では、YAG レーザ用のミラーとレンズを設置したテーブルを高精度ステージを用いて繊維方向に移動して測定した。縦波の検出にはヘテロダイン型レーザ干渉計を用いたため、特殊なカーボンペーストを表面に塗りこんで硬化させたのち、鏡面研磨し金を真空蒸着した。伝播距離を縦波到達時間（ゼロ・クロッシング時間）で除すことによって群速度異方性を求めた。なお、 θ_g が 45° より小さくなると縦波の検出が難しくなるので、表面法線方向に繊維を持つ試験片に取替えて測定した。Fig. 3 の●は群速度の方向依存性を示したものである。繊維方向の群速度は 10,000 m/s で、繊維直交方向の速度 2,000 m/s の 5 倍に達する。なお、音源位置評定のためには、(2) 式の楕円関数で近似した異方性 V_{gi} を計算スキームに取りこんだ。

$$V_{gi} = \sqrt{\frac{V_x^2 V_y^2 V_z^2 \{ (x-a_i)^2 + (y-b_i)^2 + (z-c_i)^2 \}}{V_y^2 V_z^2 (x-a_i)^2 + V_x^2 V_z^2 (y-b_i)^2 + V_x^2 V_y^2 (z-c_i)^2}} \quad (2)$$

ここで、 V_x は繊維方向の群速度、 V_y, V_z は繊維垂直方向の群速度で、 (x, y, z) は弾性波の入力点（音源）座標、 (a_i, b_i, c_i) は検出点座標である。

一方、図に示した破線は、式 (3) を用いて群速度曲線から推定した位相速度 V_p である。

$$V_p = V_g \cos(\theta_p - \theta_g) \quad (3)$$

θ_p は位相の伝播方向角である。データ□は、繊維方向が試験片表面に対して 0° から 15° おきに 90° になるように切出した 7 枚の試験片に、直径 14 mm の縦波用 PZT 素子 2 個（共振周波数 1, 2, 3 MHz）を用いて through

Fig. 3 Orientation dependency of the P-wave phase velocities in C/C composite specimen.

transmission 法（対向パルサー・レシーバー法）で測定した縦波速度である。試験片厚さ（12 mm 程度）は PZT 素子の直径より小さいので time-of-flight 法で求めた速度は位相速度に近い。実測速度は 45° 方向で 400 m/s 程度遅くなっているが、推定位相速度とはほぼ一致している。位相速度はグリーン関数の計算に用いるが、その異方性は方向余弦 (l, m, n) を用いた (4) 式で近似した。

$$V_{pi} = \sqrt{V_{px}^2 l^2 + V_{py}^2 m^2 + V_{pz}^2 n^2} \quad (4)$$

すなわち、(2) 式の群速度異方性から音源位置を求め、変位センサーに対する方向余弦から位相速度を求め、グリーン関数を計算する。

3.2.2 縦波位相速度と減衰の周波数依存性および遅延関数

位相速度や減衰の周波数依存性は、繊維方向の異なる試験片にパルス YAG レーザを照射し、球面波の震央応答（初動縦波 P_1 と反射縦波 P_3 ）をヘテロダインレーザ干渉計で計測し、(5)、(6) 式の spectral ratio 法^{7,8)} で求めた。

$$\alpha(f) = \frac{1}{2r} \left(\ln \left| \frac{P_1(f)}{P_3(f)} \right| - \ln 3 \right) \quad (5)$$

$$V_p(f) = \frac{4\pi fr}{[\arg(P_3(f)/P_1(f)) + \Delta\phi]} \quad (6)$$

ここで、 $\alpha(f)$ は減衰率の周波数依存性、 $V_p(f)$ は位相速度分散、 r は試験片厚さである。また、 $\Delta\phi$ は、 P_1 と P_3 波の位相差である。手順の詳細は UD-GFRP について報告^{2,4)} したのでここでは結果のみを述べる。

Fig. 4 は、減衰の方向依存性である。減衰の異方性も方向余弦を用いる式 (4) で近似できる。なお、減衰

Fig. 4 Orientation dependency of the P-wave attenuation in C/C composite.

補正項のための α としては, AE 周波数帯域の上限に近い 1 MHz での減衰値を用いた.

C/C コンポジットを Kelvin-Voigt モデルで近似できるとすると, 縦波減衰と位相速度はそれぞれ (7), (8) 式で与えられる⁵⁾.

$$C_p(\omega) = C_p(0) \sqrt{1 - \left(\frac{4}{3}\right) i \omega \tau \epsilon \left(\frac{C_s^2(0)}{C_p^2(0)}\right) (1 - i \omega \tau + \epsilon)^{-1}} \quad (7)$$

$$\alpha(\omega) = \omega \left[\text{Im} \left\{ \frac{1}{C_p(\omega)} \right\} \right] \quad (8)$$

ここで, τ , ϵ はそれぞれ遅延時間と遅延強度, $V_p(0)$ と $V_s(0)$ は角周波数 $\omega=0$ における縦波および横波位相速度である. 従って, 減衰の周波数依存性 $\alpha(\omega)$ から Kronig-Krammer⁹⁾ の関係によって得られる位相速度分散をもとめ, 式 (8) にフィッティングさせることによって ϵ と τ が求まり, Fig. 5 に示すような遅延関数が求まる. $R(t)$ は式 (9) で与えており, インパルスに対する応答遅れである.

Fig. 5 Retardation function $R(t)$ for UD-C/C composite.

$$R(t) =$$

$$\begin{cases} \epsilon_0 \{1 - \exp(-t/\tau)\} & : 0 \leq t \leq \tau \ln(1 - 1/\epsilon_0) \\ \epsilon_0 \exp\{\ln(1/(\epsilon - 1)) - t/\tau\} & : -\tau \ln(1 - 1/\epsilon_0) \leq t \end{cases} \quad (9)$$

ここで, $\epsilon_0 = 1/\exp(1 + \ln \epsilon)$ である.

3.3.3 UD-C/C コンポジットの音源位置評定精度

必要な音響特性が求まったので, はじめに音源位置評定精度を調べた. Fig. 6 に示すような, 深さ 3 mm のスリット付き長方体試験片 ($26^W \times 60^L \times 30^H \text{ mm}^3$) に 8 個の PICO センサーを設置し, A から E 点に人工音源を与え音源位置を評定した. なお, #1, 3, 7 センサーは上面 (実線の丸) に, #2, 6, 7 は下面 (破線の丸) に, #4, 5 は側面に設置した. 試験片端面 (Y-Z 面) にセンサーがつけられれば位置評定精度は格段に改善できるが, 曲げ試験を考えて設置していない. センサー配置はシミュレーションに基づいて最も評定精度を上げられる位置になっている. 人工音源 (A~F) は, 画鋏頭を PZT 素子で打撃して与えた. 位置評定アルゴリズムには, 文献 4) に報告した繰返し計算法を用いた. Fig. 6 の○は入力点, □は推定座標で, 最大誤差は 2.6 mm (B点) であった. 評価精度は, 1) 群速度が早くかつ異

Fig. 6 Source location (□) estimated to a given source points (○).

Fig. 7 Load-displacement curve and cumulative AE event of the four fracture types (Type-1 to Type-4) classified by the source simulation.

方が大きい割には試験片が小さいこと、2) PICO センサーが 4 mm の受感部径をもつこと、3) センサーを端面に設置していないことからやや悪いものの、実測群速度異方性を用いれば一応の評定ができる。なお、位相速度異方性を用いて位置評定を行うと音源は試験片のはるかに外に同定されるので、群速度異方性を用いなければならない。

4. 波形シミュレーションによるダイナミクスと進展挙動

4 点曲げにおける荷重-クロスヘッド変位と、4 破壊タイプの AE 累積数を Fig. 7 に示す。荷重 11.3 kN でき裂が水平方向 (X 方向) に大きく伝播し、6.5 kN まで低下したので実験を中断した。1,440 個の AE が検出されたが、音源位置評定が出来た AE 数は 391 個、面外変位シミュレーションができたのはわずか 131 個であった。解析できた AE 数が少ないのは、音源位置が変位センサーの下から 8 mm 離れると SP 波が観察され、近距離場を音源とする波形が遠距離場を音源とする他の破壊タイプのそれと類似してくることに起因している。この詳細については次報で紹介する。なお後述するように、Type-1 はモード I 型マトリックスおよび繊維破断、Type-2 と 3 は繊維/マトリックス界面のモード I 型剥離 (debonding) およびプレプリグ層間剥離であるが、き裂開口ベクトルが右のモデル図に示すように異なっている。Type-4 は、繊維界面に沿うモード II 型破壊 (disbonding) である。

AE は低い荷重から連続して発生したが、荷重-変位曲線の勾配は 4.5 kN 以上で小さくなっている。Type-1

と Type-4 による AE は、荷重-変位曲線とほぼ同じ傾向で増加しているが、層間剥離による Type-3 AE は小さな荷重では少なく、荷重 3.5 kN (変位 0.9 mm) から 8 kN (変位 1.5 mm) までの間で増加したのち、発生が停止している。一方、10.3 kN で小さな荷重低下が見られたのちに 11.3 kN で長い層間剥離が発生し荷重が 6 kN 低下している。6 kN の荷重低下を引き起こした界面剥離が危険 (重要) な損傷と考えられるが、この前に AE の増加は見られなかった。今回用いた AE システムは、破壊のダイナミクスの解析を目的として開発したもので、200 ms 程度のデッドタイムをもち、感度も市販装置ほど良くない。すなわち、危険な損傷発生の兆候を検知するには AE システムが不向きであったことが考えられる。今後、サンプリング速度の速い市販シス

Fig. 8 Source location of detected AE signals in UD-C/C composite.

テムを併用して AE 発生傾向を検討する必要がある。

Fig. 8 には 131 個の音源位置を示す。破壊は、 $-28 < X < +30$ mm の範囲まで進展している。この範囲は、除荷後に蛍光探傷で調べた側面のき裂範囲 $-44 < X < +47$ mm より 36 mm も短い。探傷法で調べた剥離長さとは Fig. 8 の音源範囲の違いは、11.3 kN で起こった全長 36 mm の層間剥離によるもので、AE が検出された領域での音源は正しく評定されていると考えられる。

Fig. 9 は、#1 センサーによる面外変位 (上段) と計

算変位を比較したものである。なお、き裂体積 Ab_j は、 $\sin^4(\pi t / \Delta T_r)$ ランプ関数で近似した。 ΔT_r はき裂生成時間を意味する。Type-1 では、 $Ab_j = 1.3 \times 10^{-15} \text{ m}^3$ のモード I 型破壊が $0.96 \mu\text{s}$ で生成するとして計算した初動縦波の振幅と立下がり時間は、検出変位と良く一致している。減衰や応答遅れは縦波についてのみ考慮されているので、SP や S 波形の一致 (到達時間や振幅) は必ずしも良くないが全体としては検出波に似ている。Type-2 や -3 についても、S 波までの波形は一応類似している。モード II 型破壊の Type-4 では、縦波のポラリ

Fig. 9 Comparison of detected and simulated out-of-plane displacement with the illustration of four fracture types.

Fig. 10 Source parameters of four fracture types in C/C composite specimen.

Fig. 11 Matrix crack observed on the fracture surface.

Fig. 12 Experimental setup for the crack opening test of UD-C/C composite specimen.

ティーは正になるという特徴があり、他のタイプと容易に区別できる。Fig. 10 には、タイプ別原波形パラメータを示す。なお、UD-GFRP の原波形パラメータの範囲をシャドウで示したが、C/C コンポジットの微小破壊の生成時間 ΔT_r の多くは、GFRP のそれよりも遅い（長い）時間に推定された。Type-1 破壊（図中記号×）が炭素繊維断断であるとすれば、その生成速度はガラス繊維のそれよりも小さく（短く）ても良いはずであるが、むしろ大きい。破面観察を行ったところ、Fig. 11 に示すようにマトリックスポイドを基点としたクラックが観察され、繊維断断はほとんど観察されなかった。一方、受入れ試験片では、空孔や小さなクラック状の欠陥は観察されたが、300 μm 長さのクラックは観察されなかった。すなわち、Type-1 AE は、マトリッククラックによる AE と考えられる。また、Type-3 のき裂体積（○）はかなり小さく推定されているが、この破壊はプレプリグ層間のへき開型剝離によるものであることが次の実験で明らかになった。

実験終了後の試験片を Fig. 12 のように機械加工し、層間を開口させて Type-3 破壊を起こさせた。4 点曲げで発生した 32 mm 長さの層間剝離が予亀裂として使用されている。変位センサーと PICO センサーを 1 個ずつ設置して AE をモニターした。PICO センサーは波形認識による破壊の同定のためである。荷重-クロスヘッド変位と AE 累積数を Fig. 13 に示す。多くの AE は、荷重が 0.25 kN（変位：0.3 mm）を超えて発生した。0.689 kN までに 1,796 個の AE が検出されたが、外観観察では予亀裂が進展した様子はなかった。また試験後

Fig. 13 Load-displacement curve with cumulative AE event count for UD-C/C composite specimen.

の蛍光探傷でも予亀裂は進展していなかった。そこで、音源が予亀裂先端（-8,0,4）にあると仮定して、波形シミュレーションを行った（Fig. 14）。シミュレーション波の S 波までは検出波と良く一致している。また、この波形は Fig. 10 の Type-3 波形と良く一致しており、Type-3 がモード I 型 debonding であることを裏付けている。 Ab_i は $7 \times 10^{-16} \text{ m}^3$ から $2.3 \times 10^{-15} \text{ m}^3$ で、Fig. 10 に示したそれと一致しており、小規模の delamination が頻繁に起こることを示している。なお、PICO センサーのすべての検出波について、パワースペクトルの相互相関係数 g_i を計算したところ、0.8 以上の高い類似度を示した。音源が大きく移動すると g_i は 0.4 以下（続報）になることから、高い g_i は音源がほとんど移動していないことを示唆している。

Fig. 14 Comparison of detected and simulated out-of-plane displacement due to Type-3 fracture.

これらのことから、プリフォームドヤーン法で作製された切欠付き UD-C/C コンポジットの曲げ試験では、繊維破断が起ることはまれで、小規模のマトリックス破壊や層間剝離 (debonding) が頻繁に起こり、これらが AE モニタリングに対して noisy な環境を作るとともに、致命的な大規模層間剝離を誘発するものと考えられる。

5. 結 論

4 点曲げを受ける 50 mass% 一方向強化炭素繊維・炭素コンポジット内で発生する微小破壊のダイナミクスと進展挙動を AE 波形シミュレーション法で解析した。結果は以下のように要約される。

1) レーザ iso-angular scanning 法を用いて、縦波群速度の方向依存性を定量化した。群速度異方性は楕円近似され、繊維方向の群速度は 10,000 m/s、繊維と直交方向のそれは 2,000 m/s であった。また、群速度から推定される位相速度の方向依存性は方向余弦を用いて近似でき、through transmission 法で求まる位相速度とほ

ぼ一致する。群速度異方性は音源位置評定に、位相速度異方性はグリーン関数の計算に使用した。また、異なる繊維方向の試験片に対してレーザ超音波法で検出した震央球面波の spectral ratio をとれば、縦波位相速度と減衰の周波数依存性が計測でき、Kelvin-Voigt モデルに対する遅延関数を抽出することが出来る。

2) 8 チャンネル AE システムを用いて音源位置評定を行うとともに、面外変位シミュレーションによって破壊のダイナミクスを推定した。破壊タイプは、モード I 型マトリックスクラック (Type-1)、繊維およびプレプリグ層間剝離 (Type-2, -3)、繊維/マトリックス界面のモード II 型剝離 (Type-4) に分類された。Type-1, -4 は負荷重に比例して増大した。プリフォームドヤーン法で作製された切欠付き UD-C/C コンポジットの曲げ試験では、小規模の debonding やマトリックスクラックが継続して発生した後、大きな突発的損傷 (層間剝離) を誘発するものと推定された。

本研究の一部は、文部省科学研究費補助金萌芽研究 (No. 10875130) によってなされた。

参 考 文 献

- 1) T.P. Philippidis, V.V.N. Nikolaidis and A.A. Anastassopoulos : *N.D.T and E. Int.*, **31**, 5 (1998), 329-340.
- 2) H. Suzuki, M. Takemoto & K. Ono : *J. Acoustic Emission*, **14**, 1 (1996), 35-50.
- 3) T. Kinjo, H. Suzuki, M. Takemoto & K. Ono : *J. Acoustic Emission*, **15**, 1-4 (1998), 19-32.
- 4) 金城鉄男, 鈴木裕晶, 竹本幹男 : 日本機学会論文集 (A 編), **63**, 616 (1997), 2642-2648, 2648-2655.
- 5) R.L. Weaver, W. Sachse and L. Niu : *J. Acoust. Soc. Am.*, **85**, 6 (1989), 2262-2266.
- 6) W. Sachse & Y.J. Pao : *J. Appl. Phys.*, **48**, 6 (1978), 4320-4327.
- 7) K. Balasubramaniam & S.C. Whitney : *N.D.T and E. Int.*, **29**, 4 (1996), 225-236.
- 8) B.F. Pouet : *J. Acoust. Soc. Am.*, **93** (1993), 1286-1292.
- 9) R. Kronig : *J. Opt. Soc. Am.*, **12** (1926), 547-557.