廃棄プラスチック樹脂のサーマルリサイクルに関する研究* (バーナ内部の燃焼ガスと PET 粉末の流動および 飛しょう PET 粒子の形状と直径変化の画像計測)

山北 龍児^{*1}, 佐藤 毅^{*2}
石野 洋二郎^{*3}, 大岩 紀生^{*3}

An Investigation on Thermal Recycling of Recycled Plastic Resin (PIV/PTV Measurements of Flow Characteristics and Appearances of Flying PET-Particles in the Improved Industrial Burner)

Ryuji YAMAKITA, Tsuyoshi SATO,
Yojiro ISHINO and Norio OHIWA^{*4}

^{**} Graduate School of Engineering, Nagoya Institute of Technology,
Gokiso-cho, Showa-ku, Nagoya-shi, Aichi, 466-8555 Japan

The possibility and applicability of thermal recycling of recycled PET-resin for the industrial burner systems have been investigated by supplying PET-resin powder as an auxiliary fuel to the improved commercial LPG-fuelled ceramic burner. The results showed that a large amount of PET-powder up to 80% is exhausted without burn-up in the open atmospheric operation, whereas it is perfectly consumed in the in-furnace operation. In this paper, in order to obtain key reasons why a large amount of PET-powder is exhausted without burn-up in the cold open atmospheric operation of the industrial burner and to reduce the amount of the unburnt PET-powder, the interrelation between the flow patterns and the dispersion profiles of PET-powder in and downstream of the burner is examined by employing the PIV/PTV system. Appearances and diameters of PET particles flying through the combustion zone downstream the stabilizer are also observed using the proposed technique. According to the results, three factors having great influences on the unburnt rate of PET-powder are found.

Key Words: Heterogeneous Combustion, Thermal Recycling, Waste PET-Resin Powder, Unburnt Rate, PIV/PTV Measurements

1. 緒 言

容器リサイクル法が施行されてから、膨大な量の廃棄プラスチック樹脂が回収されているが、その大部分が利用されずに蓄積され、今なお環境問題の一つとなっている。廃棄プラスチック樹脂は高純度の炭化水素化合物から構成されており、燃料としての再利用(サーマルリサイクル)が可能であり、それに関してさまざまな研究が行われてきた^{(1)~(4)}。また、手法そのものが最終処理に相当するという特徴をもち、商・工業用燃料に利用した場合には、化石燃料使用量の節減効果も有し、エネルギー環境保全につながると考えられる。

そこで、本研究ではこれまで、廃棄プラスチック樹脂の一種である廃棄 PET (polythylene terephthalate) 樹脂粉末 (PET 粉末と略記) を助燃料とするため、まずプロパンを燃料とする市販の窯業用バーナの

燃焼領域に、PET 粉末を溶着せずに直接供給できるように改良を加えた。そしてこの改良バーナを用いて、窯業炉内における燃焼特性^{(5)~(8)}を把握した。また一方で、環状バーナを用いた燃焼特性の把握⁽⁹⁾、単一微粒子の急速加熱過程の可視化実験⁽¹⁰⁾⁽¹¹⁾と球対称一次元解析⁽¹²⁾をすでに実施してきた。

改良バーナを用いた窯業炉内の燃焼実験⁽⁵⁾⁽⁶⁾によれば、①供給した PET 樹脂粉末はすべて蒸発・燃焼して消費されること、②炉内に焼成に必要な高温で均一な空間温度場が形成されること、③焼成の最終工程で要求される還元雰囲気気の制御が可能なこと、④ PET 粉末供給時にも焼成品の白色度が維持されること、などの特性が得られ、窯業用助燃料としての可能性が示された。しかし、低温の大気開放条件下で改良バーナを動作させた場合には、PET 粉末の平均粒径に依存して、供給量の 80% を超える粉末が未燃のまま排出された。この主原因として、バーナ出口下流での周囲空気の誘引による冷却が考えられるが、廃棄プラスチック樹脂の燃料としての効果的な再利用を図るためには、さらにバーナ内部から出口下流域のできるだけ広い範囲におけるプロパン火炎の燃焼ガスと PET 粉末の流動状況を把握し、未燃率増大に関係する諸要因を

* 原稿受付 2005 年 3 月 29 日。

^{*1} 正員、名古屋工業大学大学院工学研究科 (〒466-8555 名古屋市昭和区御器所町)。

^{*2} (株)トヨタ自動車 (〒471-8571 豊田市トヨタ町 1)。

^{*3} 正員、名古屋工業大学大学院工学研究科。

E-mail: oiwa.norio@nitech.ac.jp

探る必要がある。

そこで本論文では、プロパン火炎のみのバーナ内部の燃焼ガス流動場の PIV 計測、ならびに PET 粉末供給時の燃焼ガスと PET 粒子の流動状況および PET 粒子の形状変化の PTV 計測を行った。得られた結果と未燃率の測定結果との関係から未燃の要因を策定し、PET 粉末燃焼用のバーナに不可欠な要件を検討した。なお、PET 粉末の供給にあたっては、粒径分布との対応関係を明確にするため、粉末を分級して大中小の3種類に分割し、火炎概形と未燃率の測定を行った。

2. 実験装置および方法

2・1 実験装置の構成 実験装置は、PET 粉末燃焼用改良バーナ、プロパン供給系、プロパン用空気供給系、PET 粉末供給系、および各種計測装置から成る⁽⁶⁾。用いたプロパンは市販の LPG で、純度は 96.4% である。

2・2 PET 粉末燃焼用改良バーナ 図 1(a) に用いた改良バーナの直接写真を、図 1(b) に PET 粉末供給用に改良されたバーナ基部の構造と寸法を示す。バーナ内の火炎の直接観察が可能なようにセラミックス製のバーナタイルを石英ガラス管(内径 28 mm、長さ 220 mm)に置き換えた点、および PET 粉末を直接燃焼領域に導入するための搬送管(内径 4 mm、外径 5 mm、長さ 202 mm)をバーナ軸に沿って設置した点が市販の窯業用バーナからの改良点である。

プロパンと空気は所定の流量でバーナ上流部で半径方向内向きに流入・混合し、保炎器下流に予混合火炎を形成させる。PET 粉末は、搬送用空気とともにバーナ中心部の供給管を通して保炎器出口直後の中心軸

Fig. 1 The improved twin-fueled burner used

近傍のプロパン火炎領域に供給され、その下流に輝炎の PET 粉末火炎を形成させる。

粉末を構成する粒子の粒径分布の影響を明確にするため、質量メディアン直径 $d_m = 176.4 \mu\text{m}$ の粉末を #80 および #150 のふるいを用いて大: $d > 180 \mu\text{m}$, 中: $100 \mu\text{m} < d \leq 180 \mu\text{m}$, 小: $d \leq 100 \mu\text{m}$ の3種に分級した。なお、PET 粉末の低位発熱量は $\Delta H_c = 21.8 \text{ MJ/kg}^{(1)}$, 密度は $\rho_{\text{PET}} = 1.38 \times 10^3 \text{ kg/m}^3^{(13)}$ である。

2・3 未燃 PET 粒子捕集装置 大気開放燃焼実験で用いた捕集装置の概略を図 2 に示す。バーナ出口から 400 mm の位置に垂直に衝突板を置き、この板の上部から水道水を流して水膜を形成させ、燃焼ガスを衝突させて未燃 PET 粒子を受け止めてフィルタで捕集する。捕集された未燃 PET 粒子質量 $m_{\text{C,PET}}$ と供給

Fig. 2 Schematic diagram of the water curtain method; collection of unburned plastic-particles

(a) System for PIV/PTV measurements

(b) System for magnifying particle imaging

Fig. 3 Schematic diagrams of two optical systems

Fig. 4 Direct and processed photographs of a PET-particle

PET 粉末質量 m_{PET} の比を用いて、未燃率を $M_{\text{PET}} = m_{\text{C,PET}}/m_{\text{PET}}$ と定義した。なお、ガラス管への溶着はほとんど確認されなかった。

2・4 PIV/PTV 計測装置 プロパン火炎の燃焼流動場計測に用いた PIV/PTV 計測装置の系統図を図 3(a) に示す。本実験の改良バーナによって形成される PET 粉末火炎は輝炎の形態を取り、PET 粒子は火炎中を燃焼ガスとともに高速度で飛しょうする。そのため、パルス発光時間が短く出力の大きいダブルパルス Nd:YAG レーザ (Continuum 製, CLP 10 PIV, 発振波長 532 nm, 最大出力 220 mJ/pulse, パルス幅 5 ns) を光源として採用し、撮影には CCD カメラを用いた。レーザ光は光学系によって厚さ 0.3 mm, 幅 50 mm のシート光として測定部に入る。レーザ光のトリガとカメラシャッタの同期には、遅延装置を用いた。また、火炎の自発光の写り込みを避けるため、中心波長 532 nm, 透過率 80.0% を有する干渉フィルタを装着させた。

なお、PIV 計測時のトレーサ粒子には市販の歯科用焼石こう (粒子径約 20 μm) を、PTV 計測時のトレーサ粒子には粒子径 $100 < d \leq 180 \mu\text{m}$ に分級された PET 粉末を用いた。また、1 断面の速度分布を得るのに用いた PIV データ数は 60 個、1 断面の粒子分布および粒子存在確率の算出に用いた PTV 計測時の粒子数は約 3 000 個である。

2・5 飛しょう PET 粒子形状の拡大観察 本実験では、既存の PIV/PTV システムに工夫を加え、高速で飛しょう中の PET 粒子形状の瞬間拡大観察を可能にした。図 3(b) に、PIV/PTV 計測に用いたダブルパルスレーザの一方を停止させ、もう一方のパルス光のみを利用した拡大撮影装置の系統図を示す。第 1 および第 2 プリズムを用いて光軸を調節されたパルス光は (光路①) 凹レンズによって広げられ (光路②)、さらに測定断面下部で反射シート (白紙) によって垂直上方に曲げられて測定断面を通過し (光路③)、粒子を照射する。5 ns という短いパルス幅を有するレーザ光で

Fig. 5 Variation of flame appearances with sieved PET-powder; $\phi_m = 0.8$, $H_m = 11.6 \text{ kW}$, $m_{\text{PET}} = 9.6 \text{ g/min}$

照射された飛しょう中の PET 粒子は、接写レンズ (Ken 製, 40 mm) を介して比較的シャープな画像として記録される。なお、予備実験の粒子画像の検討結果によれば、この光学系の焦点深度は $\pm 0.5 \text{ mm}$ と見積もられている。

図 4(a) に、256 階調で撮影された粒子画像の一例を示す。また、この画像の明暗を反転させて二値化処理を施した画像を図 4(b) に示す。図 4(b) を見ると、粒子の影の輪郭が正確に表示されていることが知れる。そこで、この白い領域のピクセル数から粒子の投影断面積を求め、それに等価な投影断面積を有する球状粒子を想定し、その粒子径の下流方向の変化を把握した。

2・6 実験手順および方法 実験に際しては、まずプロパン火炎を形成させ、それに 3 種類に分級された PET 粉末を供給して燃焼状態の観察と未燃粒子量の測定を行う。この場合、5 min にわたる 2 回の測定を行い、それらの平均値を未燃 PET 粉末量とした。続いて、プロパン火炎の燃焼流動場の PIV 計測、ならびに PET 粉末供給時の PET 粒子速度、粒子の存在確率の算出、および飛しょう中の粒子形状の拡大観察を行う。最後に、拡大粒子画像を解析することにより、下流方向への粒子径の変化を把握する。

なお、用いた石英ガラス管は 14 mm の半径に対して 2 mm の肉厚を有するので、ガラス管内の壁面近傍における粒子画像への影響が予想される。しかし、本

Fig. 6 Variation of unburnt PET-particle rate with sieved PET powder; $H_m=11.6$ kW, $m_{\text{PET}}=9.6$ g/min

実験で用いたバーナの特長から、ガラス管内では供給された PET 粉末の中心軸まわりへの集中が激しく、壁面近傍の粒子存在確率が小さいこと、したがって、ガラス管内の粒子挙動の平均的考察に対する影響は小さいと考えられること、および中心軸に沿う平均粒子速度を除いて定量化を行っていないこと、などの理由から、本論文ではガラス管内部の屈折率の影響を考慮していない。

3. 実験結果および考察

3・1 改良形産業用バーナの開放燃焼特性 本実験では、はじめに分級された 3 種類の粉末粒径 d をパラメータとし、各粒径条件における火炎挙動および未燃率の把握を行った。PET 粉末を供給する前のプロパン火炎の設定条件に関しては、当量比を $\phi_m=0.8$ に、発熱速度を $H_m=11.6$ kW に固定した。そして、その燃焼場に PET 粉末を $m_{\text{PET}}=9.6$ g/min 供給した。なお、PET 粉末の発熱速度は $H_{\text{PET}}=3.5$ kW に相当する。

3・1・1 粒子径が火炎挙動に及ぼす影響 図 5 に、火炎の直接写真を示す。図 5(a) は PET 粉末を供給する前のプロパン火炎を、図 5(b), (c) および図 5(d) はそれぞれ小: $d \leq 100 \mu\text{m}$, 中: $100 \mu\text{m} < d \leq 180 \mu\text{m}$, 大: $d > 180 \mu\text{m}$ に分級された PET 粉末を供給した場合の火炎を表す。なお、PET 粉末の有無による火炎形状の変化は文献(6)に記されているので、ここでは省略する。

図 5 によれば、分級された粒子径が小さいほど火炎は太くかつ長くなり、輝炎の発光も強くなっている。また、輝炎の発光開始位置もより上流に位置する。微細な粒子は粗大な粒子に比べて早期に融解・蒸発・着火すると考えられるので、同一の滞在時間および PET 粉末供給量の条件下では、微細な粒子を多く含む粉末ほど蒸発量も多くなり、PET 蒸気の活発な拡

Fig. 7 Mean velocity profiles across the sections without PET-powder supply ($\phi_m=0.8$)

Fig. 8 Appearances of the PET-powder flame ($\phi_m=0.8$, $m_{\text{PET}}=9.6$ g/min)

Fig. 9 Velocity variations along the axis

散燃焼がそれに続く。その結果、図 5 のような顕著な相違が現れると考えられる。

3・1・2 水膜法による未燃率の定量的検討 図 6 に未燃率の測定結果を示す。左から順に、小: $d \leq 100 \mu\text{m}$, 中: $100 \mu\text{m} < d \leq 180 \mu\text{m}$, 大: $d > 180 \mu\text{m}$ に分級した PET 粉末を用いた場合である。図 6 によれば、小: $d \leq 100 \mu\text{m}$ の場合には未燃率が約 30% であるのに対して、大: $d > 180 \mu\text{m}$ の場合には 90% を超えており、ほとんど蒸発・燃焼せずに大気中に飛散しているのがわかる。中: $100 \mu\text{m} < d \leq 180 \mu\text{m}$ の場合には、この粉末中に $180 \mu\text{m}$ に近い直径の粒子を多く含んでいるため、大: $d > 180 \mu\text{m}$ の場合と同様に高い未燃率(約 80%)を示している。

この未燃率の測定結果は火炎形状に基づく予測結果とよく符号しているため、定性的には、火炎発光強度が弱く火炎長が短い場合には、PET 粉末の多くは蒸

Fig. 10 Variations of distributions and histograms of PET-particles

発・燃焼せずに大気中に飛散していることがわかる。

3・2 燃え残りの諸要因の検討 本節では、3・1 節の結果を受けて燃え残りの諸要因を検討する。設定条件はプロパン火炎の当量比と発熱速度を $\phi_m=0.8$ と $H_m=11.6 \text{ kW}$ とし、 $100 \mu\text{m} < d \leq 180 \mu\text{m}$ に分級された PET 粉末の供給量を $m_{\text{PET}}=9.6 \text{ g/min}$ とした。

3・2・1 プロパン火炎中の軸方向速度の断面分布

図 7 に、ガラス管内のプロパン火炎の主燃焼領域における 11 断面の軸方向平均速度の断面分布を示す。横軸は保炎器出口からの距離 x を表す。図 7 によれば、下流方向に進むに従い平均化されていくと同時に加速されていることがわかる。加速流中における 2 流体は混合しにくい性質があるので⁽¹⁴⁾⁽¹⁵⁾、PET 粒子は分散されにくい条件下に供給されていることがわかる。

3・2・2 PET 粒子速度および存在確率の断面分布

図 8 に、 $100 \mu\text{m} < d \leq 180 \mu\text{m}$ の PET 粉末を供給した場合の火炎の直接写真を改めて示す。図 8 中には、PET 粉末燃焼挙動と PIV および PTV の計測位置との関係がわかるよう軸方向距離 x が併記されている。図 9 にその火炎の中心軸上における燃焼ガス速度 V_t および PET 粒子速度 V_{PET} の推移を示す。燃焼ガス速度および PET 粒子速度の測定に関しては、それぞれ図 9 中に記された●印(9 点)および■印(8 点)の中心軸上の位置で行った。

図 8 を見ると、 $x \geq 100 \text{ mm}$ の領域に輝炎が発生し、ガラス管出口下流の $x=200 \sim 300 \text{ mm}$ の領域で最も発光が著しい。したがって、この領域では融解・蒸発・燃焼に伴う PET 粒子径の顕著な減少が予想される。

一方図 9 によれば、 $x \leq 100 \text{ mm}$ の上流域では、

PET 粒子と燃焼ガスはほぼ等しい軸方向速度と下流方向への速度増加の傾向を示している。しかし $x \geq 150 \text{ mm}$ の下流域では、燃焼ガス速度が $x=225 \text{ mm}$ 付近で最大値 $V_t=42.5 \text{ m/s}$ に達してから減速しているのに対して、PET 粒子速度は $V_{\text{PET}}=25 \text{ m/s}$ とほぼ一定値を示している。このような両者の速度挙動の差が生じる要因として、燃焼ガス流速の PIV 計測に用いたトレーサ粒子と PET 粒子の粒径と質量の差および慣性力による PET 粒子の加速遅れなどが挙げられる。

なお、図 9 の結果に基づいて、 $x=0 \sim 300 \text{ mm}$ の火炎領域における PET 粒子の滞在時間を概算すると約 15 ms となった。この滞在時間は、単一球形粒子の急速加熱実験の球対称一次元解析結果⁽¹²⁾ において得られた粒径 $150 \mu\text{m}$ の粒子の寿命に比して短い。このような高温領域における滞在時間が不十分である PET 粉末の燃焼条件も、未燃率増大の要因の一つとなることが知れる。

次に、PTV 画像における粒子座標を統計的に処理して得られた粒子の空間分布図と存在確率のヒストグラムを、それぞれ図 10 の上側と下側に示す。上図に関しては、ガラス管内の $x=50 \sim 100 \text{ mm}$ の領域と、バーナ出口下流の $x=200 \sim 300 \text{ mm}$ の中心軸を通る横断面において計測した。また下図のヒストグラムは、上図中に引かれた 5 mm 間隔の 2 本の破線に囲まれた領域内に存在する粒子群に基づいて作成されている。

図 10(a)によれば、 $x=50 \text{ mm}$ 断面の中心軸付近に偏って多く存在していた PET 粒子が、 $50 \sim 100 \text{ mm}$ の範囲ではガラス管内全体に分散していくようすが観

Fig. 11 Variations of direct photographs and histograms of PET-particles

察できる。しかし、それより下流の断面〔図 10(b), (c)〕ではわずかに PET 粒子の存在範囲が広がるものの、大部分の粒子が中心軸付近に存在していることが知れる。この原因の一つとして、先に述べたガラス管内での加速流の影響が考えられる。

以上の PIV/PTV 計測の結果から、未燃率を大きくする要因として、加速流の影響によりバーナ内において PET 粒子が効果的に分散されていなかったこと、PET 粒子が中心軸付近に多く偏って存在しているため個々の粒子への熱伝達が阻害されて有効に熱が利用されていなかったこと、および高温領域における十分な滞在時間が得られていなかったことの 3 点が考えられる。これにより、未燃率低減のための基本的なバーナ設計方針が得られたことになる。

3・2・3 飛しょう PET 粒子の形状と粒径変化

図 11 に、いくつかの代表的な計測断面における PET 粒子写真および粒子径計測結果から得られたヒストグラムを示す。図 11(a) は非燃焼時の $x=50$ mm 断面、図 11(b), (c) および図 11(d) はそれぞれ燃焼時における $x=100, 200, 300$ mm の断面の測定結果である。下側の図中の右上の数字は計測に用いたデータ数を表す。なお、図 11 に示した粒子写真は互いに対応するものではなく、得られた画像から任意に抽出されたものである。

上図から、まず非燃焼時に撮影された粒子の概形はスパイラルミルで粉碎されたままの角張った不規則な形を呈している。しかしいったん、高温燃焼時にさらされて融解過程を経ると、小さい粒子から次第に角が丸くなり、中心部分が明るくなっていく。このような

概形の変化は下流ほど激しく、融解による形状変化と光の透過性の増大が主要因となっていると考えられる。

一方、図 11 下図のヒストグラムを見ると、測定断面が下流側へ移動するのに従い、分布のピークが粒径の小さい方向へ移行していく傾向が見られる。しかし、PET 粒子の平均粒径の大きい本論文の作動条件では基本的に未燃率が高いため、ヒストグラムに現れる変化は小さいと考えられる。

以上、レーザ光を背景光に用いることにより、高速燃焼ガス中を飛しょうしている PET 粒子の詳細な形状観察と粒子径計測が可能となり、下流方向への PET 粒子の形状と粒径の変化を把握することができた。

4. 結 言

本論文では、PET 粉末燃焼用改良バーナが大気開放燃焼させたときの未燃 PET 粒子量を測定し、粒子径に伴う未燃率の変化を把握した。そして、その未燃率を系統的に低減させるために、燃え残りの諸要因を検討した。得られた結果は以下のように要約される。

(1) PIV/PTV 計測結果から、未燃率を高くする要因として、加速流の影響によりバーナ内において PET 粒子が効果的に分散されていないこと、PET 粒子が中心軸付近に多く存在して粒子個々への熱伝達が悪く有効に熱が使われていないこと、十分な滞在時間が得られていないことの 3 点が考えられる。

(2) ダブルパルスレーザの一方の光を背景光として利用することにより、燃焼領域を飛しょうしている

粒子の詳細な形状の拡大観察を可能にした。また、得られた粒子写真に画像処理を施して粒子径計測を行うことで、下流方向への粒子径変化も明らかにした。

今後は、得られた未燃率を増大させる諸要因を加味しながら、良好な燃え切り特性を有する実用バーナの開発を系統的に進めていく。

本研究の実施にあたり、大学院前期課程一年生の加藤雄貴君の多大な協力を得た。

文 献

- (1) 既設発電ボイラーを対象とした廃プラスチック燃料化基礎技術の調査研究報告書, (社)プラスチック処理促進協会, (1993).
- (2) プラスチックのサーマルリサイクル技術基礎データ集, (社)プラスチック処理促進協会, (1993).
- (3) Williams, P. T. and Williams, E. A., *J. Inst. Energy*, (1998), 81-93.
- (4) Zhao, B. and Bar-Ziv, E., *Proc. Combust. Inst.*, **28** (2000), 2659-2666.
- (5) Ishino, Y., Yamakita, R., Kuroda, S., Kato, M., Yasuda, M. and Ohiwa, N., *Proc. 6th ASME-JSME Thermal Eng. Joint Conf.*, (2003-3), CD-ROM: Paper No. TED-AJ 03-181.
- (6) 山北龍児・石野洋二郎・大岩紀生, 機論, **71**-701, B (2005), 357-364.
- (7) 佐藤毅・山北龍児・石野洋二郎・黒田茂男・安田益雄・大岩紀生, 第13回環境工学総合シンポジウム講演集, No. 03-10 (2003), 326-329.
- (8) 石野洋二郎・黒田茂男・山北龍児・加藤正樹・安田益雄・大岩紀生, 第40回燃焼シンポジウム講演論文集, (2002), 61-62.
- (9) Yamakita, R., Miura, K., Ishino, Y. and Ohiwa, N., *JSME Int. J.*, **48**-1, Ser. B (2005), 83-91.
- (10) Yamakita, R., Ishino, Y. and Ohiwa, N., *Proc. 1st Int. Symp. Micro and Nano Technol.*, (2004), CD-ROM: Paper No. XXXIV-C-04.
- (11) 加藤慎也・山北龍児・石野洋二郎・大岩紀生, 2004年度年次大会講演論文集, No. 04-1 (2004), 51-52.
- (12) Yamakita, R., Ishino, Y. and Ohiwa, N., *Proc. 6th KSME-JSME Thermal Fluids Eng. Conf.*, (2005), CD-ROM: Paper No. KD. 08.
- (13) 高分子大辞典, (1994), 1015, 丸善.
- (14) 石野洋二郎・山口譽起・大岩紀生, 機論, **68**-667, B (2002), 935-942.
- (15) 石野洋二郎・山口譽起・大岩紀生, 機論, **57**-538, B (1991), 206-212.