

フィルム包装ブロッコリーの呼吸モデル

佐藤博実* 石川豊* 平田孝*

Respiration Model for Broccoli Packaged in Polymeric Films

Hiromi SATO*, Yutaka ISHIKAWA*, Takashi HIRATA*

A method was proposed to develop respiration models of fresh produce.

Samples of fresh broccoli weighing 68 – 227g were packaged in different polymeric films (oxygen permeability : 920 – 7640cc/m² · day · atm at 15°C) and stored at 15°C for 10 days. Surface area and initial void volume of film package were also varied to obtain different gas environments during storage. Respiration rates of the samples were calculated from continuous changes in atmospheric composition within packages. Respiration models were developed as functions of storage times and concentrations of O₂ and CO₂ using multiple regression analysis.

Models developed successfully predicted changes in the gas composition within packages of broccoli.

Keywords : Fresh produce, MA packaging, Oxygen consumption rate, Carbon dioxide evolution rate, Respiration model, Broccoli

青果物のMA包装設計を適切に行うため、ブロッコリーを試料として呼吸モデルを開発した。

ガス透過性の異なる4種類のフィルムを用い、袋表面積と空容積、試料重量を変えてブロッコリーを包装し、15°Cで貯蔵した。各々のガス組成変化の実測値から酸素吸収速度および二酸化炭素生成速度を求め、対応する時間と酸素・二酸化炭素濃度のデータを抽出した。重回帰分析により、任意の包装条件における酸素吸収速度および二酸化炭素生成速度を、それぞれ酸素・二酸化炭素濃度および時間の関数として表すモデルを得た。並行貯蔵した別グループの試料による検証の結果、得られたモデルによって十分な精度で比較的長期間のガス濃度変化の予測が可能ながことが判明した。

キーワード : MA包装、青果物、呼吸モデル、酸素吸収速度、二酸化炭素生成速度、ブロッコリー

* 農林水産省 食品総合研究所 (〒305 茨城県つくば市観音台2-1-2) : National Food Research Institute, Tsukuba, Ibaraki 305

1. 緒 言

ガス透過性の高いプラスチック包装材料を用いて青果物を包装し、鮮度保持に適切な包装内ガス環境を得る技術、すなわちMA包装については多くの報告がある¹⁾。

MA包装は、青果物の呼吸作用と包装材料のガス透過性とをバランスよく調整し、鮮度保持に必要な低酸素・高二酸化炭素環境を得る手法であるから、対象青果物の特性に応じた包装設計が必要であることはいうまでもない。しかし、現状では経験則に基づいた実証試験的アプローチによる包装設計が大勢を占めており、多大の労力と時間が費やされている。

一方、MA包装における青果物の呼吸変化、袋内ガス組成変化、鮮度変化などをシミュレーションにより予測して、適正包装設計を行う試みが検討されてきた。リンゴ²⁾、トマト^{3) 4)}、モモ⁵⁾、ブロッコリー⁶⁾、バナナ⁷⁾ 等について、品質変化や袋内ガス組成変化をシミュ

レートする手法が報告されている。いずれにおいても、鮮度予測を行うためには、呼吸を精度よく測定し、呼吸モデルを効率的に構築する必要があるが、初期の研究では呼吸商を1と仮定したり²⁾、二酸化炭素濃度の影響は無いと仮定して³⁾ 構築したモデルが多い。

著者らは既に、MA包装したブロッコリーを用い、包装材料のガス透過性、サイズ、ヘッドスペースなどの初期条件から、袋の体積変化、酸素吸収速度、二酸化炭素生成速度を簡便に精度よく測定する方法を報告した⁸⁾。今回はこの手法を用い、初期条件のみでその後の呼吸速度変化、ガス組成変化が予測できる呼吸モデルの開発について検討したので報告する。

2. 実験方法

2.1 包装フィルム

供試した包装フィルムの表面積、厚さ、15℃におけるガス透過性をTable 1に示した。

Table 1. Conditions of modified atmosphere packaging

Film	Thickness* (μ m)	Permeability** (ml/m ² ·day·atm)			Surface area of film (m ²)	Initial void volume (ml)	Weight of broccoli (g)	Condition No. in Fig.1
		N ₂	O ₂	CO ₂				
PBD	25.3 ± 0.8	1800	6630	37200	0.1864	3155	226.8	2
					0.1240	1260	215.3	
OPP	30.1 ± 0.2	210	920	3020	0.1240	1365	238.6	4
LDPE	27.8 ± 1.0	1480	5400	21000	0.1240	1261	217.8	5
LDPE	17.5 ± 1.4	2150	7640	33900	0.1240	2173	243.8	3
					0.1240	1273	233.6	
					0.1240	856	247.0	
					0.1240	1008	88.0	
					0.1240	851	68.0	

* mean ± S.D. ** measured at 15℃

PBD : Polybutadiene, OPP : Oriented polypropylene, LDPE : Low density polyethylene.

ガス透過性は、Gasperm - 100 (日本分光) で測定した。

2.2 ブロッコリー

土浦公設卸売市場で購入した愛知県産のブロッコリー (みよ緑1号) を試料として用いた。ブロッコリーは入手後、直ちに15℃、相対湿度90%の恒温恒湿室へ搬入し保管した。

2.3 包装と貯蔵

一晩保管した約200~250gのブロッコリーを各包装フィルムで包装して熱シールで密封した。包装袋の全容積は水浸法により測定

し、水圧による負の誤差は十分小さいものとして無視した。予備試験によりブロッコリーの比重を0.96として、重量から体積を換算し、全容積からブロッコリーの体積を差し引いたものを袋内の空容積 (ヘッドスペース) とした。容積測定後、直ちに15℃、相対湿度90%の恒温恒湿室で貯蔵した。空容積、ブロッコリーの重さ等の条件は各包装区ともに代表的なものをTable 1に示した。

2.4 袋内ガス濃度の測定

約1mlのヘッドスペースガスを包装袋から抜き取り、ガスクロマトグラフ (島津GC-

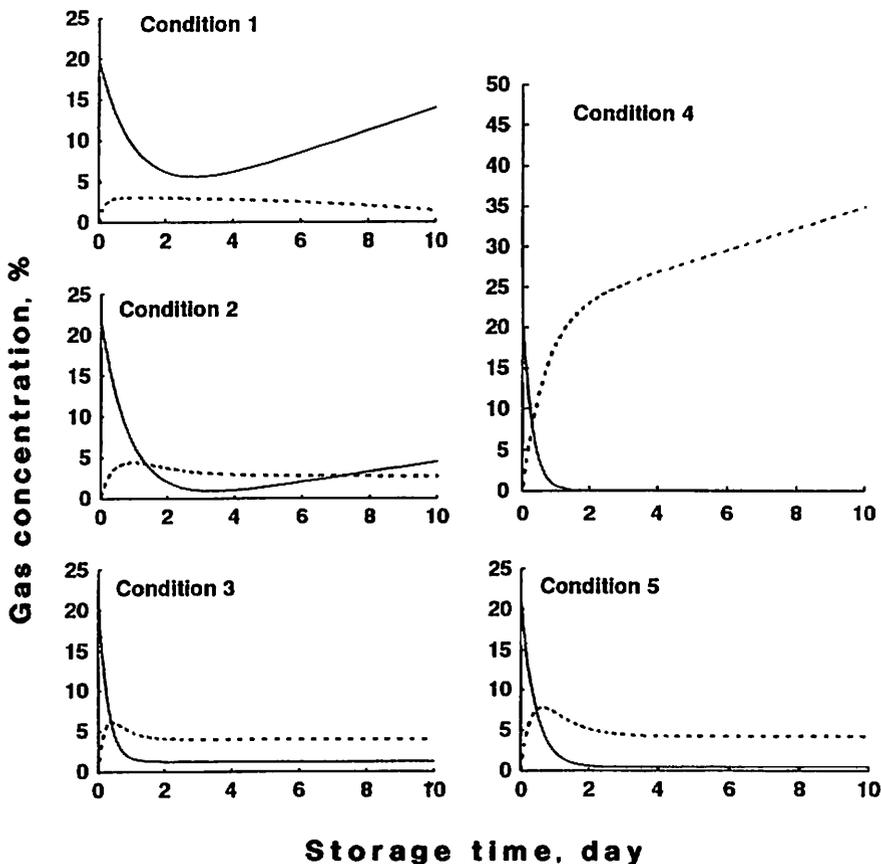


Fig. 1 Changes in gas concentrations within film packages of fresh broccoli
 ——— Oxygen, ······ Carbon dioxide

3AH) で酸素、二酸化炭素、窒素を経時的に分析した。分析条件は前報⁹⁾の方法によった。なお、各ガスのTCD検出器に対する相対感度は、窒素 100、酸素 94.3、二酸化炭素 115.9 として計算した⁹⁾。

2.5 計算

計算は全て、PC-9801RA (日本電気) を用いて BASIC プログラムにより行った。

2.5.1 袋の体積変化、酸素吸収速度、二酸化炭素生成速度の算出

ガスクロマトグラフィーにより得られた袋内ガス組成分析データを用いて、前報⁹⁾の方法により計算で求めた。

2.5.2 重回帰分析

各袋のガス組成変化の実測値に当てはめた最小二乗曲線を 0.1 日毎に分解して種々の組み合わせの酸素、二酸化炭素濃度を抽出した (Fig. 1)。そして酸素濃度 ($[O_2]$)、二酸化炭素濃度 ($[CO_2]$)、時間 (T) を独立変数とし、呼吸速度 (酸素吸収速度、二酸化炭素生成速度) を従属変数とする重回帰分析 (変数増加法) を行った。酸素濃度、二酸化炭素濃度、時間、それぞれの二乗 ($[O_2]^2$, $[CO_2]^2$, T^2)、平方根 ($[O_2]^{1/2}$)、立方根 ($[O_2]^{1/3}$, $[CO_2]^{1/3}$, $T^{1/3}$)、逆数 ($[O_2]^{-1}$)、指数 ($e^{-[O_2]}$)、三者間の積 ($[O_2] \cdot [CO_2]$, $T \cdot [O_2]$, $T \cdot [CO_2]$)、除算した項 ($[O_2] / [CO_2]$) も独立変数として加えた。これは一次の項のみによる限界、すなわち回帰方程式の非線形性や、一次の項同士の相互作用に対応できるようにするためである。

2.5.3 ガス組成変化の予測

重回帰分析によって得られた酸素吸収速度および二酸化炭素生成速度のモデルを使い、

重回帰分析に使ったグループとは別に並行して貯蔵したグループについて、ガス組成変化の予測を行った。前報⁹⁾の理論により、包装袋内における酸素量の変化速度 dV_{O_2}/dt は、

$$\frac{dV_{O_2}}{dt} = K_{O_2} \cdot A \cdot (0.21 - P_{O_2}) - B_{O_2} \cdot W$$

同様に二酸化炭素の変化速度 dV_{CO_2}/dt は、

$$\frac{dV_{CO_2}}{dt} = -K_{CO_2} \cdot A \cdot P_{CO_2} + B_{CO_2} \cdot W$$

ここに、

K_{O_2} : 包装袋の酸素透過度 ($cc/m^2 \cdot day \cdot atm$)

K_{CO_2} : 包装袋の二酸化炭素透過度

($cc/m^2 \cdot day \cdot atm$)

A : 包装袋の表面積 (m^2)

P_{O_2} : 包装袋内の酸素分圧 (atm)

P_{CO_2} : 包装袋内の二酸化炭素分圧 (atm)

B_{O_2} : 単位重量一日当りの酸素消費量

($cc/day \cdot kg$)

B_{CO_2} : 単位重量一日当りの二酸化炭素生成量

($cc/day \cdot kg$)

W : ブロッコリー重量 (kg)

V_{O_2} : 袋内酸素量 (cc)

V_{CO_2} : 袋内二酸化炭素量 (cc)

t : 貯蔵期間 (day)

である。

モデルで得られる酸素消費速度および二酸化炭素生成速度を B_{O_2} および B_{CO_2} に代入すると、袋内の酸素量および二酸化炭素量の変化速度が求まる。これを用いて各ガス成分の袋内初発量からの増減を算出し、ガス組成変化の予測曲線を得た。

3. 結果と考察

3.1 MA包装系内のガス濃度変化

Table 1の各包装条件下における袋内ガス濃度の変化をFig. 1に示した。各コンディション共に測定データに当てはめた最小二乗曲線で図示した。

酸素濃度変化でみると、まず貯蔵開始後の濃度低下の速さに差がみられた。コンディション1と3で、フィルムの種類や表面積が共通であるにもかかわらず、それぞれの最低酸素濃度に達するまでの時間に明らかな差がみられたが、その理由は袋の表面積と空容積に対する試料重量の差であると考えられた¹⁰⁾。また、各コンディションにおける最低酸素濃度は、コンディション1を除くと包装フィルムの酸素透過度が低いほど小さな値となっていた。

一方、二酸化炭素濃度変化では、コンディション4において貯蔵2日後に20%を超える急速な増加がみられ、その後も増加し続けた。その他のコンディションでは1~2日後に見かけ上、平衡に達した。貯蔵3日目以降の平衡二酸化炭素濃度は、フィルムの二酸化炭素透過度の低いものほど高くなっていたが、酸素濃度と比べると各コンディションの差は大きくなかった。

以上、包装条件を変えることによって、様々な酸素・二酸化炭素濃度変化曲線が得られ、通常のMA包装におけるガス濃度変化をカバーすることができたと考えられた。

コンディション4にみられるような高二酸化炭素状態が、青果物の呼吸生理に与える影響について、ニンジンやキャベツにおいてはその影響を受けにくいという報告がある¹¹⁾。

従来の呼吸モデルの中にも、二酸化炭素濃度の影響を考慮していないものが報告されている^{2) 9)}。しかし、モモ、ブロッコリー、レタスのように、高二酸化炭素濃度で酸素吸収に顕著に影響を受けるものもあり¹¹⁾、包装条件によっては高二酸化炭素条件下に長期間さらされることになり、呼吸モデルの開発にあたっては、二酸化炭素濃度の影響は無視できないと考えられる。したがって、青果物の呼吸モデル、すなわち酸素吸収速度および二酸化炭素生成速度を求める関数を構築する場合には、酸素濃度や時間の項のみでなく二酸化炭素濃度の項も必要であると考えられる。

得られたガス濃度変化は様々な酸素・二酸化炭素濃度の組み合わせを含んでおり、モデル構築に必要な変化曲線として十分であると考えられた。

3.2 呼吸モデル構築に用いたガス組成の組み合わせ

呼吸モデルを構築するためには、酸素と二酸化炭素の様々な組み合わせ下における呼吸速度データを得なければならない。Table 1に示した条件で貯蔵した結果、酸素・二酸化炭素濃度の組み合わせは、酸素：0.5~20%、二酸化炭素：2~20%の範囲をカバーすることができた (Fig. 2)。図中で、右上側にくるような組み合わせ (酸素・二酸化炭素ともに高濃度になるような組み合わせ) は、今回の実験系では得られなかった。この理由は、使用した各フィルムの二酸化炭素透過性が、いずれの場合も酸素透過性の数倍の値であり、生成した二酸化炭素が袋外へ拡散・放出する速さのほうが、酸素が袋内へ流入する速さよりも大きく、高酸素・高二酸化炭素状態には

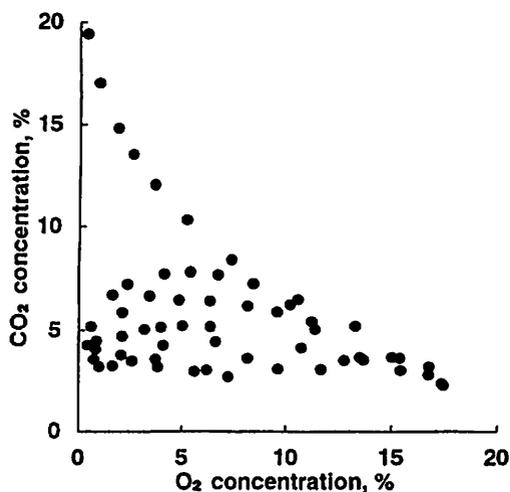


Fig. 2 Oxygen - carbon dioxide combinations used for preparing respiration models.

なりにくいためである。

YangとChinnan¹²⁾は、ガスバリアー性の高いフィルムでトマトを包装し、包装内の雰囲気組成の異なる20通りの混合ガス (O₂: 5~20%, CO₂: 0~20%) で置き換えて、呼吸量を測定した。しかし、MA包装に使われる包装材料はTable 1に示した物性に近いものが多く¹⁾、通常の条件では極端な高酸素・高

二酸化炭素環境は得られないと考えられる。

したがって、通常のMA包装を想定した場合には、得られた組み合わせで必要十分であると判断し、これを呼吸モデル構築のための母集団とした。

3.3 酸素吸収速度のモデル

酸素吸収速度 (R_{O₂}) を従属変数とし、酸素濃度 ([O₂])、二酸化炭素濃度 ([CO₂])、時間 (T) およびそれらの組み合わせを独立変数として、重回帰分析 (変数増加法) を行った結果をTable 2に示した。第一ステップで最も有効な独立変数として選択されたのは [O₂] であった。独立変数が増えるにしたがって重相関係数 (R) は増大したが、5変数以上になるとRの増加が少なく、またモデルとしては複雑になりすぎるため、AIC (情報量規準) の値からみて、5変数を使った回帰式が妥当であると判断した。即ち、酸素濃度 ([O₂])、酸素および二酸化炭素濃度の立方根 ([O₂]^{1/3}, [CO₂]^{1/3})、二酸化炭素濃度の2乗 ([CO₂]²)、酸素濃度と時間との積 (T・[O₂]) の5つである。酸素濃度の立方根 ([O₂]^{1/3}) および二酸

Table 2. Multiple regression models for relations between O₂ consumption rate and several variables

Step	Partial regression coefficient						AIC	R	R ²
	[O ₂]	[CO ₂] ^{1/3}	[O ₂] ^{1/3}	[CO ₂] ²	T・[O ₂]	Const.			
1	5.492	—	—	—	—	28.76	493.15	0.8807	0.7756
2	4.514	-38.22	—	—	—	101.57	457.70	0.9386	0.8811
3	1.933	-38.99	25.70	—	—	75.47	452.45	0.9459	0.8948
4	-0.309	-77.14	47.00	0.183	—	111.33	441.41	0.9569	0.9157
5	-1.882	-95.03	60.82	0.241	-0.563	129.02	440.13	0.9593	0.9202

AIC : An information criterion, R : Multiple correlation coefficient, R² : Coefficient of determination. T, T², T^{1/3}, [O₂]², [CO₂], T・[CO₂], [O₂]²・[CO₂], [O₂]/[CO₂] were also discussed as independent variables, but not selected in most suitable 5 variables.

化炭素濃度の立方根 ($[\text{CO}_2]^{1/3}$) に対する偏回帰係数をみると、前者は従属変数（酸素吸収速度）に対して正の寄与、後者は負の寄与を示しており、低酸素・高二酸化炭素では呼吸が抑制されるという一般的な考え方¹⁾との矛盾はない。また、この5変数を使った回帰式の R^2 (決定係数または寄与率)の値からこの式で92%は説明できることを表しており、必要十分な精度であるといえる。

Fig. 3 (a) にモデルによる酸素吸収速度の計算値と個々の実測値との関係を示した。吸収速度の大きい領域で多少ばらつきがみられた。これは、MA包装開始直後には袋内の酸素濃度が高いために吸収速度も大きく、急速な濃度変化とそれに伴う体積変化が起こるため、測定誤差が含まれたものと考えられる。しかし、相関係数は $r=0.956$ と非常に高く、計算値と実測値はほぼ一致し、重回帰分析によるモデル構築が適切であることを示している。よって、これを酸素吸収速度のモデル、‘モデル1’とした。

呼吸モデルは、線形^{3) 7) 13)}、非線形^{6) 12)}を含めてこれまでにいくつか報告されている。これらのうち時間を変数に組み入れないもの^{3) 6) 7) 13)}は呼吸量の時間依存性が考慮されていないために数日間の変化についてのみ適用できるモデルとなっており、長期貯蔵中における呼吸変化を予測するには適さないと考えられる。また、酸素濃度のみを変数として酸素吸収量を表したモデル^{9) 13)}では、比較的高二酸化炭素濃度における呼吸変化については検討されていない。本実験におけるモデルは、酸素および二酸化炭素濃度、時間の3つのパラメータを含んでいる。このため、低酸素・高二酸化炭素濃度下における呼吸変化を長期にわたり予測できると考えられる。

3.4 二酸化炭素生成速度のモデル

Fig. 4に酸素吸収速度 (R_{O_2}) と二酸化炭素生成速度 (R_{CO_2}) との関係を示した。二酸化炭素生成速度を酸素吸収速度の一次関数とする回帰式において $r=0.869$ であり、両者の相

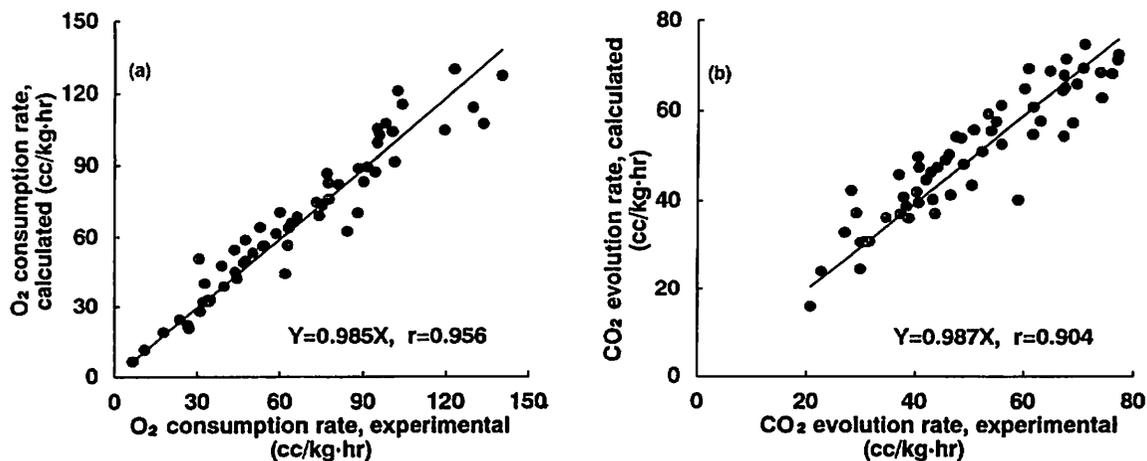


Fig. 3 Correlogram between experimental and calculated respirations.

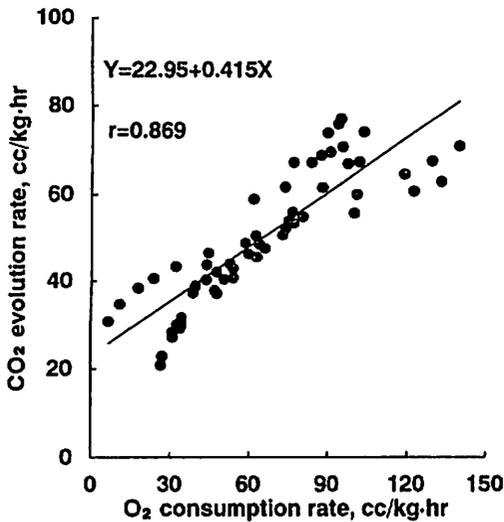


Fig. 4 Correlogram between oxygen consumption rate and carbon dioxide evolution rate.

関はかなり高かった。また、一般に一定の酸素吸収速度以下においては呼吸商 (RQ) が高まり、二酸化炭素の生成が酸素の吸収を上回る場合が考えられる。本回帰式の傾きは1より小さく、約40ml/h・kg以下の酸素吸収速度においてはRQが1より大きくなることを示し、二酸化炭素生成速度を表すモデルとし

て利用可能なことが示唆された。

しかし、酸素・二酸化炭素濃度の組み合わせと酸素吸収速度は、必ずしも1対1に対応しているとは限らない。異なる酸素・二酸化炭素濃度の組み合わせが同一の酸素吸収速度を与える場合も考えられる。そこで酸素吸収速度のモデルと同様に、酸素および二酸化炭素濃度、時間、およびこれらを組み合わせた値を独立変数、二酸化炭素生成速度を従属変数として重回帰分析を試みた (Table 3)。変数増加法の第七ステップにおける寄与率は $R^2 = 0.844$ であり、酸素吸収速度のモデルと比べてやや低い値であった。しかしFig. 3 (b) にみられるように、モデルによる計算値と実測値との相関係数は $r = 0.904$ と十分高く、さらにモデルの独立変数の数やAICの値からみて、二酸化炭素生成速度のモデルとしては十分な精度であると判断した。

二酸化炭素生成速度を酸素吸収速度の一次関数として表したものを‘モデル2’、別個の重回帰分析によるものを‘モデル3’とし、‘モデル1’と併せてTable 4に示した。

Table 3. Multiple regression models for relations between CO₂ evolution rate and several variables

Step	Partial regression coefficient								AIC	R	R ²
	[O ₂] ^{1/3}	[O ₂]·[CO ₂]	T·[CO ₂]	T	T ^{1/3}	[CO ₂] ²	T·[O ₂]	Const.			
1	22.44	—	—	—	—	—	—	11.11	438.67	0.7808	0.6096
2	36.39	-0.451	—	—	—	—	—	0.95	420.00	0.8515	0.7250
3	32.49	-0.336	0.521	—	—	—	—	1.54	415.29	0.8687	0.7546
4	29.70	-0.350	0.802	-1.406	—	—	—	7.55	412.34	0.8800	0.7743
5	37.69	-0.250	0.142	-5.207	37.14	—	—	-37.05	407.50	0.8939	0.7990
6	52.30	-0.337	-0.373	-6.787	60.39	0.063	—	-80.55	398.56	0.9127	0.8330
7	55.10	-0.366	-0.822	-1.606	66.51	0.130	-1.464	-88.91	396.60	0.9186	0.8439

AIC : An information criterion, R : Multiple correlation coefficient, R² : Coefficient of determination. [O₂], [O₂]², [O₂]⁻¹, [O₂]^{1/2}, e^{-[O₂]}, [CO₂], [CO₂]^{1/3} and [O₂] / [CO₂] were also discussed as independent variables, but not selected in most suitable 7 variables.

Table 4. Respiration models

Model	Equation
1 = O ₂ consumption rate	${}^M R_{O_2} = -1.882 [O_2] - 95.03 [CO_2]^{1/3} + 60.82 [O_2]^{1/3} + 0.241 [CO_2]^2 - 0.563T \cdot [O_2] + 129.02$
2 = CO ₂ evolution rate	${}^M R_{CO_2} = 0.415 {}^M R_{O_2} + 22.95$
3 = CO ₂ evolution rate	${}^M R_{CO_2} = 55.1 [O_2]^{1/3} - 0.366 [O_2] \cdot [CO_2] - 0.822T \cdot [O_2] - 1.606T + 66.51T^{1/3} + 0.13 [CO_2]^2 - 1.464T \cdot [CO_2] - 88.91$

3.5 呼吸モデルの検証

モデル作成用の試料と並行して貯蔵した別グループのブロッコリーを用いて、構築した呼吸モデルの検証を行った。Fig. 5 (a) にその中の1条件について、Table 4のモデル1, 2を用い、ブロッコリー包装袋内の酸素・二酸化炭素濃度変化の予測をし、実測値と比較した結果を示した。予測曲線は実測値とよく一致し、またモデル3を用いた場合も同様に実測値と予測値はよく一致した (Fig. 5 (b))。モデル3による予測では、貯蔵初期の二酸化

炭素濃度変化が若干低く予測された。これは、重回帰分析に用いた独立変数の設定が、必ずしも完全ではなかったことによるものと思われる。しかし、この試料における貯蔵後期の酸素濃度の僅かな漸減傾向は捉えられており、モデルが適切かつ有効であると判断された。これは、モデルが時間と二酸化炭素濃度の項を含むためであり、一定期間以上の貯蔵においては両項が不可欠であると考えられた。

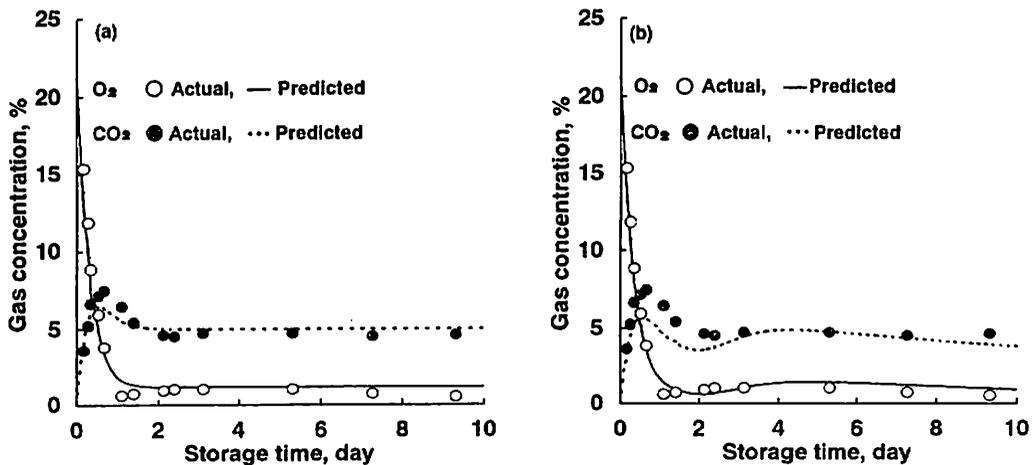


Fig. 5 Predicted and actual changes in oxygen and carbon dioxide concentrations.
 (a) : Predicted by Model 1 and 2 in Table 4
 (b) : Predicted by Model 1 and 3 in Table 4

4. 結 論

新しく開発した呼吸測定法から得られるデータを基に、酸素濃度、二酸化炭素濃度、時間を含む呼吸モデルを構築することができた。前述したように、時間項を含まない呼吸モデルでは、7日間以上の予測を行って実測値と比較した例は少ない。本モデルは時間の項も含むため、9日間以上の比較的長期間にわたって精度よく予測を行うことができ、開発したモデルが適切かつ有用であることを示すことができた。しかし、時間の項を含めたモデルを構築するためには、実測する期間と同じだけの実験期間が必要となり、迅速にモデルを構築することは困難である。促進試験法等を開発し、実験期間を短縮する必要がある、検討中である。

<文 献>

- 1) A. A. Kader, D. Zagory and E. L. Kerbel, *CRC Crit. Rev. Food Sci. Nutr.*, 28 (1), 1 (1989)
- 2) V. Jurin and M. Karel, *Food Technol.*, 17 (6), 104 (1963)
- 3) Y. S. Henig and S. G. Gilbert, *J. Food Sci.*, 40, 1033 (1975)
- 4) C. C. Yang and M. S. Chinnan, *Trans. ASAE.*, 30 (2), 548 (1987)
- 5) K. R. Deily and S. S. H. Rizvi, *J. Food Process Engineering*, 5, 23 (1981)
- 6) D. S. Lee, P. E. Hagggar, J. Lee and K. L. Yam, *J. Food Sci.*, 56 (6), 1580 (1991)
- 7) K. Hayakawa, Y. S. Henig and S. G. Gilbert, *J. Food Sci.*, 40, 186 (1975)
- 8) 石川豊、佐藤博実、石谷孝佑、平田孝、*日本包装学会誌*, 1 (2), 143 (1992)
- 9) T. Hirata, T. Nishiyama, H. Sato, Y. Ishikawa, T. Shiina and T. Ishitani, *J. Pack. Sci. Technol. Japan*, 2 (1), 15 (1993)
- 10) A. C. Cameron, W. Boylan - pett and J. Lee, *J. Food Sci.*, 54 (6), 1413 (1989)
- 11) Y. Kubo, A. Inaba and R. Nakamura, *J. Amer. Soc. Hort. Sci.*, 115 (6), 975 (1990)
- 12) C. C. Yang and M. S. Chinnan, *Trans. ASAE.*, 31 (3), 920 (1988)
- 13) P. Veeraju and M. Karel, *Modern Packaging*, 39 (12), 168 (1966)

(原稿受付 1992年11月13日)

(審査受理 1992年12月24日)