

〈研究論文(學術)〉

액체암모니아 처리 면직물의 물성 및 염색성

전성기*·이창수·임용진·이청*¹·김태경*·이혜정**

경북대학교 공과대학 염색공학과
*한국염색기술연구소
**한국생산기술연구원
(2003. 7. 21. 접수/2003. 8. 8. 채택)

Physical Properties and Dyeability of Cotton Fabrics Treated with Liquid Ammonia

Sung-Ki Jeon *, Chang-Su Yi, Yong-Jin Lim, Chung Lee *, ¹Tae-Kyung Kim *, and Hae-Jung Lee **

Department of Dyeing and Finishing, College of Engineering, Kyungpook National University, Taegu, Korea

¹Korea Dyeing Technology Center, Taegu, Korea

**Korea Institute of Industrial Technology, Kyunggi-Do, Korea

(Received July 21, 2003/Accepted August 8, 2003)

Abstract—It is generally known that cotton treated with liquid ammonia has better soft handle, wrinkle recoveries and stability of appearance as compared with the alkali mercerized cotton.

In this study, the various cotton fabrics treated with liquid ammonia(NH₃), sodium hydroxide(NaOH) and sodium hydroxide(NaOH)/liquid ammonia(NH₃) and untreated cotton fabric were investigated and compared in terms of physical properties and dyeing behavior.

As the result, the strength of four kinds of cotton fabrics were similar. But the elongation of cotton treated with liquid ammonia increased slightly.

Liquid ammonia treatment reduced the crystallinity of cotton and the crystalline structure of cotton transformed from cellulose I to mixed structure of cellulose I and III.

In dyeing, dyeing rate decreased but equilibrium dye uptake increased by liquid ammonia treatment of cotton fabrics.

Keywords : Liquid ammonia, Mercerization, Cotton, Dyeing, C. I. Direct Red 28, Strength, Elongation, X-Ray diffraction

1. 서 론

면섬유의 일반적인 전처리 공정인 수산화나트륨을 이용한 머서화 가공은 면섬유에 견과 같은 광택, 염색성의 향상, 치수안정화, 흡습성의 증가 및 강력의 향상 등의 효과를 부여한다. 그러나 일반적

으로 행해져온 상온(15~20℃)에서의 면섬유 머서화는 수산화나트륨 용액의 점도가 높아 섬유 내부까지 침투가 어려워 직물의 표면만이 강하게 머서화되어 태가 뻣뻣해진다는 결점이 있다. 그러나 태가 경화하는 성질을 주로 이용하는 5℃이하의 저온 머서화의 경우는 섬유의 광택과 투명성이 증가하는 장점이 있다. 이에 비해 60℃이상의 고온에서 머서화를 할 경우 용액의 점도가 낮아져 섬유의 내부까지 알칼리의 침투가 용이해지고 균일한 처

¹Corresponding author. Tel. : +82-53-350-3730; Fax.: +82-53-350-3818; e-mail: ktk615@hanmail.net

리가 가능하여 섬유의 촉감을 부드럽게 하는 장점을 가지고 있다.

이와 유사하게 면직물로 하여금 유연한 태와 우수한 방추성을 부여하는 가공으로서 액체암모니아 처리가공이 있다. 액체암모니아 가공은 액체상태의 암모니아에 면직물을 단시간 침지함으로써 면섬유의 미세구조를 변형시키고 이로 인해 염색성이나 물성 등의 변화를 유도하는 가공이다. 현재 보고된 바에 의하면 액체암모니아로 처리한 면섬유의 경우 부드러운 촉감이나 방추성 등의 물성은 향상되나 일반적인 수산화나트륨에 의한 머서화 가공 면섬유에 비해서는 염색성이 저하하는 것으로 알려져 있다^{1~2)}.

따라서, 본 연구에서는 액체암모니아 처리 면섬유의 염착성 저하의 원인을 조사하고, 장기적으로는 이에 대한 해결방법을 찾고자 한다. 액체암모니아 처리의 목적이 부드러운 촉감에 있으므로 고온 머서화한 경우에 액체암모니아 처리를 병행하여, 각각의 물성 및 염색성을 미처리 섬유와 머서화 또는 액체 암모니아 단독 처리한 경우와 비교하여 조사하였다.

2. 실 험

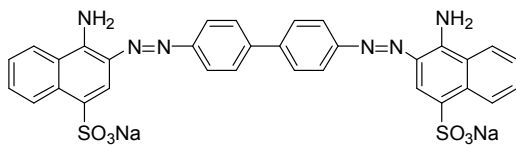
2.1 시료 및 시약

2.1.1 시료

시료는 정련 호발된 100% 면직물(CM100'S/2 × CM100'S/2, 140×84yarns/in.)을 사용하였다.

2.1.2 염료 및 시약

염료는 직접염료인 C. I. Direct Red 28 특급시약(Junsei Chemical, Japan)을 그대로 사용하였다. 염료의 구조는 아래와 같고, 그 외의 시약은 1급 시약을 정제하지 않고 그대로 사용하였다.



C. I. Direct Red 28(Congo red)

λ_{\max} : 512nm (in 25% pyridine)

Molecular Weight : 696.67 g/mole

2.2 실험방법

2.2.1 머서화 및 액체암모니아 처리

머서화 처리는 고온처리법으로 80℃, 25 Bé 농

도의 수산화나트륨 용액에 약 20초간 침지한 후 수세, 중화하였다. 액체암모니아 처리는 최근 한국 염색기술연구소에서 실용화된 액체암모니아 처리기를 사용하여, 액체암모니아 내에서 약 1초간 침지한 후 표면온도 110℃의 drum dryer를 약 15초간 통과하고, 약 3분간 steamer 내에서 체류한 후 수세 건조되었다. 수산화나트륨/액체암모니아 두 가공의 병용처리는 먼저 수산화나트륨에 의한 머서화 처리를 한 후 액체암모니아로 처리하였다.

2.2.2 강도 및 신도 측정

미처리 및 처리 면직물들의 인장강도는 ZWICK Z005 인장시험기를 사용하여, 직물의 인장강도 측정법인 KS K 0521(스트립법)에 준하여 각각 측정하였다.

2.2.3 XRD (X-Ray Diffractometry)에 의한 내부 구조분석

미처리 및 처리 면직물들의 X-선 회절곡선은 CuK α 선을 사용하여 X'pert PRO-MNR(Philips, Netherland)에 의해 0.02°씩 step scanning 하여 얻었다. 결정화도는 각각 분리된 결정면의 X-선 회절강도곡선으로부터 전체 적분강도에 대한 결정회절의 적분강도의 비로 아래 식을 사용하여 계산하였다.

$$DC = \frac{I_c}{I_c + I_a} \times 100$$

DC : 결정화지수(%)

I_c : 결정 영역에 대한 회절적분강도

I_a : $2\theta=18^\circ$ 를 기준으로 한 비결정 영역에 대한 회절적분강도

2.2.4 염색속도

미처리 면직물 및 액체암모니아, 수산화나트륨 처리 면직물 그리고 수산화나트륨 처리 후 액체암모니아 처리 면직물 각 0.02g을 5g/L의 염화나트륨이 가해진 2×10^{-4} mol/L 농도의 C. I. Direct Red 28 염료용액을 사용하여 육비 5,000:1의 조건으로 40, 60, 80, 100℃에서 일정시간 간격으로 염색하여 각각의 염색속도를 조사하였다. 염색기는 고압 pot 형의 Auto Textile Dyeing Machine(고려과학산업 한국)을 사용하였다

2.2.5 염착량 측정

염색이 끝난 각 시료들을 충분히 수세하여 미고착 염료를 제거하고, 진공하에서 완전 건조 후 25% pyridine 수용액으로 90℃에서 완전히 추출하였다. 추출액의 흡광도를 분광광도계(UV-Vis. Spectrophotometer UV-2100, Shimadzu)를 사용하여

측정하고 미리 작성한 검량선으로부터 염착량을 계산하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 강도 및 신도의 변화

Fig. 1, 2는 면직물의 액체암모니아 처리로 인한 기본적인 물성의 변화를 알아보기 위하여 수산화나트륨 처리 면직물, 액체암모니아 처리 면직물 그리고 수산화나트륨 처리 후 액체암모니아를 처리한 면직물 및 미처리 면직물의 강도와 신도를 측정하여 나타낸 것이다.

Fig. 1의 강도의 변화에서는 액체암모니아로 처리한 면직물의 강도가 경사방향으로 미미하게 증가하였으나 전체적으로는 시료들 간에 큰 차이를 보이지 않고 있다. 그러나 Fig. 2의 신도의 변화를 살펴보면 액체암모니아 처리한 면직물의 경우에 경, 위사 모두 신도가 상당히 증가되었음을 알 수 있다.

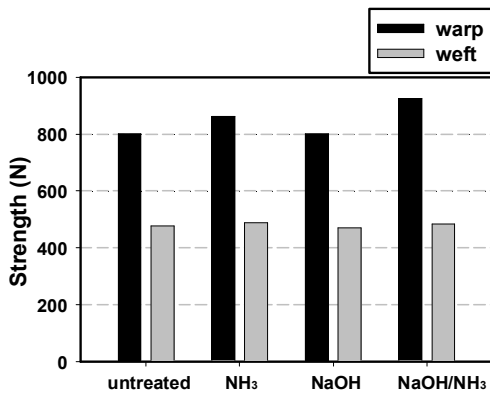


Fig. 1. Strength of various cotton fabrics.

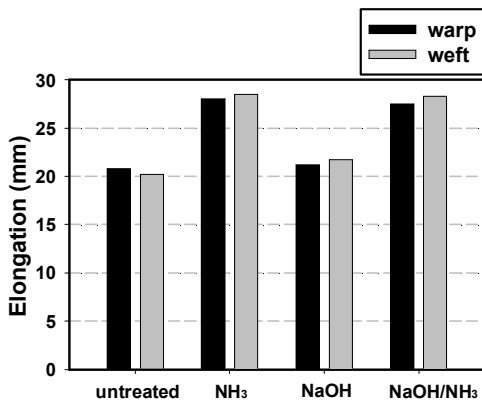


Fig. 2. Elongation of various cotton fabrics.

수산화나트륨 용액은 면섬유 중심부까지의 침투가 다소 어려워 불균일한 팽윤을 나타내고 또한 작용력이 강해 면섬유를 손상시킬수 있다. 반면, 액체암모니아는 물보다 표면장력과 점도가 낮고 작은 부피를 가지므로 단시간 내에 섬유의 손상없이 면섬유 중심부까지 균일하게 침투하여 섬유를 팽윤시키며 이러한 균일한 팽윤효과로 인하여 피브릴 배열이 정돈되고 간격이 평균적으로 좁아지는 것으로 알려져 있다.³⁻⁴⁾ 그러므로 액체암모니아 처리에 의해 직물의 밀도가 균일하게 증가하여 직물의 수축이 일어나는 것과 더불어 팽윤에 의한 셀룰로오스 분자 사이의 미끄럼성 증가 및 분자 배열의 균제화⁵⁾로 인해 강도 및 신도가 증가된 것으로 여겨지며 이러한 신도의 증가는 액체암모니아 처리면의 특성인 유연성과 관련되어지는 것으로 생각된다.

3.2 X-선 회절에 의한 결정화도 및 내부구조

Fig. 3은 수산화나트륨, 액체암모니아, 수산화나트륨/액체암모니아 처리 면직물 및 미처리 면직물의 X-선 회절강도곡선을 나타낸 것이다.

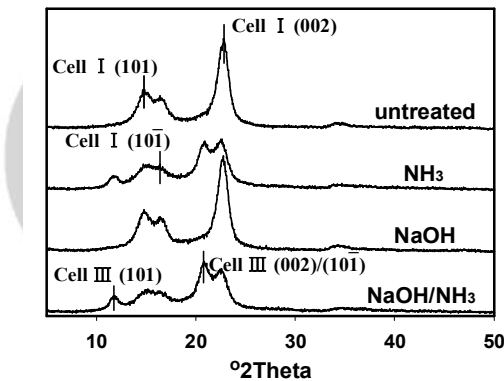


Fig. 3. X-ray diffraction patterns of cotton fabrics.

미처리 면직물의 경우는 $2\theta=14.6^\circ$ 와 16.4° 에서 각각 셀룰로오스 I의 (101)면과 (10 $\bar{1}$)면의 회절강도가 나타나고, $2\theta=22.6^\circ$ 에서 (002)면의 회절강도가 나타나고 있어 일반적으로 알려진 비⁶⁾와 같이 셀룰로오스 I의 결정구조를 잘 나타내고 있다.

수산화나트륨 처리된 면직물은 결정구조의 변화가 거의 일어나지 않아 대체로 일반 면섬유의 셀룰로오스 I의 결정구조를 나타내고 있다. 이것은 셀룰로오스 I의 결정구조에서 셀룰로오스 II의 결정

구조로 비교적 용이하게 변환되는 상온(15~20℃)의 일반적인 머서화 가공법 또는 5℃ 이하의 저온 머서화 가공법과는 달리 본 연구에서의 고온 머서화 가공법은 80℃의 고온에서 수산화나트륨 수용액의 점도가 낮아져 셀룰로오스 I에서 셀룰로오스 II로의 변환이 완만하게 이루어지므로 셀룰로오스의 구조적 변화가 크지 않기 때문이다.^{4,7-8)}

한편, 액체 암모니아 처리 면직물 및 수산화나트륨/액체암모니아 처리 면직물의 경우는 셀룰로오스 I 구조 이외에 11.7°에서 셀룰로오스 III의 (101)면과 20.7°에서 셀룰로오스 III의 (002)면, (101)면의 회절강도가 나타나 액체암모니아 처리를 함으로써 셀룰로오스 I의 일부가 셀룰로오스 III로 변형되어 셀룰로오스 I과 III가 혼재된 결정구조로 나타남을 알 수 있다.

Table 1은 미처리 및 처리 면직물들의 X-선 회절 결과로부터 계산한 결정화지수를 나타낸 것으로 수산화나트륨 처리 면직물은 76.8%의 결정화지수를 보여 미처리 면직물의 결정화지수 78.6%와 거의 비슷함을 알 수 있다. 반면 액체암모니아 단독 처리 및 수산화나트륨/액체암모니아 병용처리된 두 면직물의 결정화지수는 각각 65.6%와 67.3%로 감소하였으며, 액체 암모니아로만 처리된 면직물의 결정화지수가 병용 처리된 면직물보다 다소 낮게 나타나고 있다. 이와 같은 처리 면직물들의 결정화지수의 감소는 주로 액체암모니아에 의한 것으로, 면섬유 중심부까지 액체 암모니아의 보다 균일하고 우수한 침투성 및 팽윤작용에 의하여 면직물의 결정성이 감소하고 비결정성이 상대적으로 증가되었기 때문이라 생각된다.

Table 1. Crystallinity index calculated from X-ray diffractogram on various cotton fabrics

Treatment	X-ray Crystallinity index (%)
Untreated	78.6
NH ₃	65.6
NaOH	76.8
NaOH/NH ₃	67.3

3.3 C. I. Direct Red 28에 의한 온도별 염색속도 및 평형염착량

액체암모니아 처리면에서 결정화도의 저하로 섬유내부의 비결정 영역이 증가한 경우 일반적으로 수산화나트륨 처리 면직물보다 염착량이 증가할

것으로 예상되나 보고된 바¹⁻²⁾에 의하면 염착량이 오히려 감소하는 것으로 알려져 있다.

그러므로, 액체암모니아 처리한 면직물과 비교해 다른 면직물들의 셀룰로오스 결정구조의 차이에 의한 염색현상을 알아보기 위하여 C. I. Direct Red 28를 사용하여 미처리 면직물 및 액체암모니아 처리, 수산화나트륨 처리 면직물 그리고 수산화나트륨 처리 후 액체암모니아 처리한 각 면직물의 온도별 염색속도를 조사해 Fig. 4~7에 나타내었다. Fig. 4~5에서 상대적으로 저온인 40℃와 60℃의 경우 염색초기에는 미처리나 수산화나트륨 처리된 머서화 면직물의 염착량이 크게 나타나지만 시간이 갈수록 이러한 현상이 역전되어 오히려 액체암모니아 처리한 경우의 염착량이 크게 나타나 Fig. 8의 온도별 평형염착량에 있어서는 모든 온도에서 액체암모니아 처리한 경우가 미처리나 머서화 경우보다 높게 나타나고 있다.

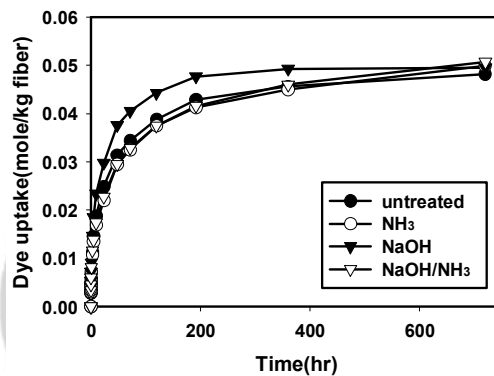


Fig. 4. Dyeing rates of C. I. Direct Red 28 on various cotton fabrics at 40℃.

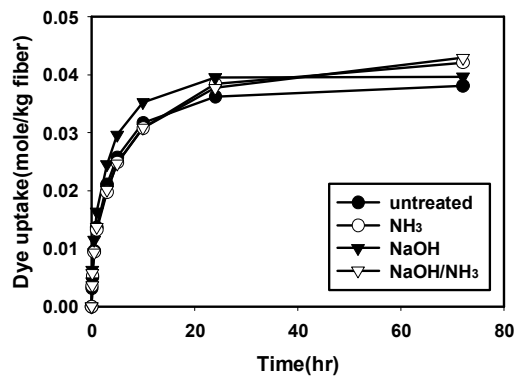


Fig. 5. Dyeing rates of C. I. Direct Red 28 on various cotton fabrics at 60℃.

이와 같이 저온에서 염색시 실용적인 염색시간에서는 확실히 액체암모니아 처리 면직물이 수산화나트륨 처리 면직물 보다 염착량이 저하한다. 그러므로 일반적으로 면직물에 액체암모니아를 처리할 경우 염색성이 저하한다고 알려져 있는 것은 이러한 현상 때문일 것으로 생각된다. 이러한 양상은 온도가 높아질수록 달라져 Fig. 6~7의 80℃와 100℃에서는 염색초기에도 액체암모니아 처리한 경우의 염착량이 높게 나타남을 알 수 있다. 결국 염색속도에 있어서는 차이가 있으나 평형염착량 면에서는 모든 온도에서 X-선 회절 결과로부터 얻은 결정화지수와 거의 일치하여 비결정성이 크게 증가한 액체암모니아 처리 면직물의 경우가 미처리 또는 수산화나트륨 처리 면직물 보다 높게 나타나고 있음을 알 수 있다.

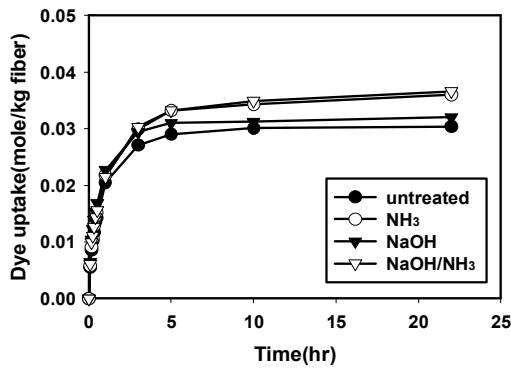


Fig. 6. Dyeing rates of C. I. Direct Red 28 on various cotton fabrics at 80℃.

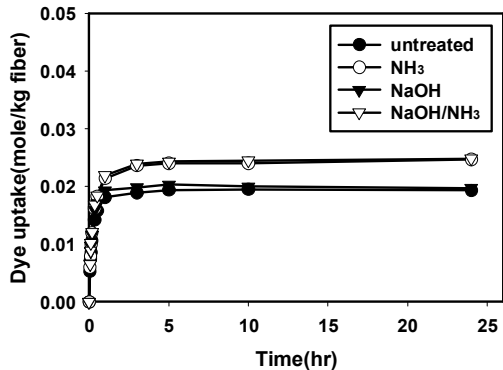


Fig. 7. Dyeing rates of C. I. Direct Red 28 on various cotton fabrics at 100℃.

3.4 확산계수

섬유구조의 변화에 의한 염색성의 변화는 확산

계수로부터 간접 비교될 수 있다⁹⁾. 그러므로 본 연구에서 면직물을 액체암모니아로 처리할 경우 염색속도가 저하되는 원인을 각 면직물의 확산계수 비교를 통해 설명될 수 있을 것이다. Fig. 9는 각 면직물들의 60℃에서의 염색속도 곡선으로부터 아래의 Crank 방정식의 근사식을 이용하여 초기염색속도에 대한 C/C_{eq} 를 $t^{1/2}$ 에 대해 플롯한 것으로, 이 때 얻어지는 직선의 기울기로부터의 확산계수를 구할 수 있다. Table 2는 각 온도별 염색속도 곡선으로부터 계산된 확산계수를 나타낸 것이다.

Table 2. Diffusion coefficients(D_T) of C. I. Direct Red 28 on various cotton fabrics

Treatment	Temp.(℃)	$D_T(\text{cm}^2/\text{min} \times 10^{-10})$
Untreated	40	0.32
	60	3.01
	80	7.94
	100	33.36
NH ₃	40	0.24
	60	2.10
	80	6.81
NaOH	40	0.51
	60	3.72
	80	9.05
NaOH/NH ₃	40	0.26
	60	2.05
	80	5.62
	100	27.09

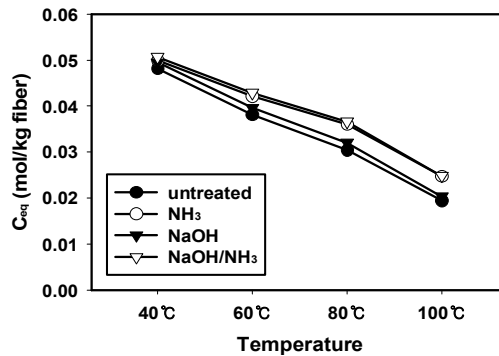


Fig. 8. Equilibrium dye uptakes of C. I. Direct Red 28 on cotton fabrics according to dyeing temperature.

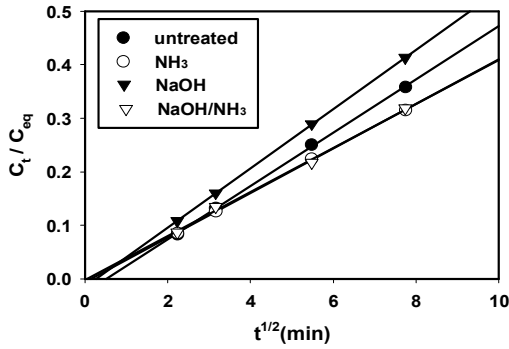


Fig. 9. Relationship between $t^{1/2}$ and C_t/C_{∞} in dyeing rate of various cotton fabrics with C. I. Direct Red 28 at 60 °C

$$\frac{C_t}{C_{eq}} = 4\sqrt{\frac{D_T}{\pi r^2}}$$

- C_t : 시간 t 에서의 염착량
- C_{eq} : 평형염착량
- r : 섬유의 반지름(7.86 μ m)
- D_T : 확산계수

그 결과, 처리 및 미처리 면직물 모두 온도가 높을수록 확산계수는 증가하며 각 온도에서 확산계수는 수산화나트륨/액체암모니아 처리 액체암모니아 처리, 미처리 수산화나트륨 처리 면직물 순으로 증가하고 있다. 이것은 앞서 언급된 액체암모니아 처리 면직물의 경우 염색속도가 저하되는 현상과 일치하는 것으로 액체암모니아 처리는 섬유 내부로 염료가 확산되는 속도를 느리게 한다는 것을 확인할 수 있다.

3.5 확산활성화에너지

액체암모니아 처리에 의한 면직물의 염색속도 감소 및 평형 염착량의 증가 현상을 보다 명확히 규명하기 위하여 섬유내부로의 염료 확산성 비교에 사용될 수 있는 파라미터인 확산활성화에너지를 구하였다. 온도별 확산계수로부터 아래의 Arrhenius 식에 의해 $\ln D_T$ 를 $1/T$ 에 대해 플롯함으로써 직선을 얻을 수 있는데(Fig. 10) 이 직선의 기울기로부터 확산활성화에너지를 구할 수 있다.

$$\ln D_T = \ln D_0 - \frac{E_D}{RT}$$

D_T : 온도 T 에서의 확산계수(cm^2/min)

- D_0 : 상수
- E_D : 확산활성화에너지(cal/mol)
- R : 기체상수(1.9872 cal/mol · K)
- T : 절대온도(K)

Table 3은 Fig. 10에서 얻은 직선의 기울기로부터 확산활성화에너지를 계산하여 나타낸 것이다. 그 결과 미처리나 수산화나트륨 처리한 면직물에 비해서 액체암모니아로 처리한 면직물 경우 확산활성화에너지가 더 크게 나타난다. 확산 활성화에너지는 염료분자가 섬유내부로 확산되기 위하여 넘어야하는 에너지 장벽을 의미하는 것으로 액체암모니아 처리 면직물의 경우 다른 면직물 보다 많은 에너지가 소요되므로 저온에서 염료의 확산이 어려움을 의미한다. 그러므로 액체암모니아 처리의 경우 미처리나 수산화나트륨 처리에 비해 평형염착량은 증가하지만 염색속도가 느려지므로 낮은 염색온도 및 실용적인 시간 내에서 염색을 할 경우 염착량이 저하하는 것으로 생각된다.

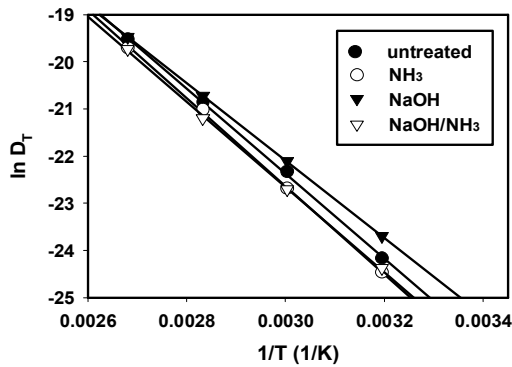


Fig. 10. Relationship between $\ln D_T$ and $1/T$ in dyeing rate of various cotton fabrics with C. I. Direct Red 28.

Table 3. Activation energy of diffusion(E_D) of C. I. Direct Red 28 on various cotton fabrics

Treatment	E_D (cal/mol)
Untreated	4,399
NH ₃	4,561
NaOH	4,000
NaOH/NH ₃	4,403

앞서 언급한 바와 같이 평형염착량의 증가는 결

정화도와 일치하는 결과이며 결정화도가 증가했음에도 염색속도가 느려지는 현상을 미세구조적으로 유추해 보면, 액체암모니아 처리에 의한 결정화도의 감소로 염료가 침투 및 염착할 수 있는 비결정 영역의 절대량은 증가하였으나 그 내부의 pore 크기에 있어서는 염료가 확산되기 쉬운 큰 pore 보다는 상대적으로 염료가 섬유내부로 침투 및 확산되기 어려운 작은 pore 가 주로 생성되어 그 양이 상대적으로 많이 증가되었기 때문으로 생각된다. 그러나 이러한 작은 pore 는 염색온도가 충분히 높을 경우 섬유분자의 열적운동이 활발해져 염료의 침투가 용이할 정도로 확대되므로 고온에서의 염색에는 염착량의 저하가 일어나지 않는 것으로 생각된다. 또한 수산화나트륨 처리의 경우는 미처리의 경우와 결정화도가 비슷함에도 큰 pore 가 생김으로써 염색속도가 증가한 것으로 보이며, 수산화나트륨 처리후 액체암모니아 처리를 할 경우는 큰 pore 가 생겼지만 다음에 액체암모니아 처리를 해서 다시 작은 pore 가 생김으로써 액체암모니아 처리만을 한 경우와 비슷한 결과가 나타나는 것으로 추측된다.

4. 결 론

본 연구에서는 수산화나트륨 처리와 액체암모니아 처리 유무에 대한 면의 물성 및 염색성에 대하여 조사하였다.

1. 수산화나트륨 처리나 액체암모니아 처리를 할 경우 모두 강도에 대해서는 큰 변화가 없었으나 신도에 있어서는 액체암모니아 처리한 경우가 약간 증가되었다.
2. 결정구조는 액체암모니아로 처리할 경우 셀룰로오스 I 에서 셀룰로오스 I 과 III 가 혼재한 구조로 바뀌었고, 미처리 면직물과 수산화나트륨 처리 면직물의 결정 화도는 거의 비슷하였고 액체암모니아 처리한 면직물의 결정화도는 크게 낮아졌다.
3. 염색에 있어서는 지금까지는 액체암모니아 처리의 경우 단순히 염착량이 감소한다고 알려져 있었으나, 본 연구의 결과로 단지 염색속도가 느릴 뿐 평형염착량은 증가됨을 알

수 있었다. 평형염착량의 증가는 결정화도와 일치하는 결과이며 결정화도가 증가했음에도 염색속도가 느린 이유는 액체암모니아 처리로 인해 비결정영역은 증가하였으나 염료가 섬유내부로 침투하기에 더 어려운 작은 pore 가 주로 생성되었기 때문인 것으로 생각된다.

참고문헌

1. T. Wakida and M. C. Lee, Dyeing and mechanical properties of cotton fabrics treated with sodium hydroxide/liquid ammonia and liquid ammonia/ sodium-hydroxide, *Dyeing Industry*, **48**(5), 222 ~227(2000).
2. T. Wakida, M. C. Lee, S. Niu, Y. Yanai, H. Yoshioka, S. Kobayashi, S. Y. Bae, and K. H. Kim, Dyeing properties of cotton fibers treated with liquid-ammonia, *J. Soc. Dyers & Colour.*, **111**, 154 ~158(1995).
3. 柳内雄一, 液体アソニアと形態安定加工, *纖維と工業*, **50**(10), 575 ~579(1994).
4. 金鎮佑 外 2人 共著, “纖維加工學”, 螢雪出版社 pp.134~144, pp.150~156(1998).
5. 綿의 形態安定化 加工(2), *纖維技術振興*, **9**(2), 41 ~45(1995).
6. J. Shore, “Cellulosics Dyeing”, Society of Dyers and Colourists, pp.16 ~24, pp.57 ~65(1995).
7. 塩澤 和男, 마-세라이즈와 液安加工-(1) 苛性ソーダによる膨潤處理, *纖維加工*, **50**(5), 201 ~218(1998).
8. G. J. Jo, S. Y. Bae, M. C. Lee, H. W. Kim, P. K. Park, and T. Wakida, Effects of Sodium Hydroxide, Liquid Ammonia and Cellulose Treatment of Cotton Fibers on the Fine Structure and Dyeing Properties. *J. Kor. Fiber Soc.* **35**, 23 ~30(1998).
9. H. Kobsa and C. Jones, Investigating the Structure of Nylon Fibers by Measuring the Diffusion Coefficient of Acid Dyes, *Text. Res. J.*, **55**(10), 573 ~578(1985).