

基于吸光度的 PET 薄膜专色配方预测方法

张 研^{1,2}, 周世生^{2*}, 曹从军², 任鹏刚²

1. 西安理工大学机械与精密仪器工程学院, 陕西 西安 710048
2. 西安理工大学印刷包装工程重点实验室, 陕西 西安 710048

摘 要 基于吸光度与物质浓度的相关关系建立了一种 PET 薄膜印刷的混合油墨组分预测模型。该方法首先依据光的传播理论和光在墨层与承印材料中的多重内反射原理, 利用基色和混合专色薄膜印品在黑白两色基底上的反射光谱, 建立具有高透低反特性薄膜印品透射光谱的获取方法, 并利用透射光谱求解吸收光谱; 然后对专色吸光度与基色浓度进行回归分析, 确定吸光度与基色浓度线性相关度高的特征波段, 再根据郎伯比尔定律, 利用特征波长处的专色样本吸光度与基色样本吸光度建立组分预测模型, 求解专色样本的配方比例; 最后, 分析预测配方与预设浓度的偏差, 并按照预测配方浓度重新打样, 采用色差与光谱均方根误差对计算配方色与目标专色的匹配程度进行分析, 验证模型精度。以凹印 PET 薄膜双基色混合样品为实验对象, 对提出的方法进行测试。光谱分析表明, 基色样本和专色样本光谱反射率曲线在黑白两种基底上有明显差异, 但都随基色油墨浓度变化具有相同的变化规律, 专色样本的光谱透射曲线随着基色浓度的变化接近浓度比例大的基色曲线, 在 400~580 nm 区间, 专色的吸收光谱随着基色油墨 A 浓度降低而升高, 在 580~700 nm 区间随着基色油墨 A 浓度降低而降低。除 570~590 nm 吸收曲线相交区间以外, 在可见光范围内专色油墨吸光度与基色油墨浓度之间的判定系数 R^2 均大于 0.95, 平均值为 0.990 0, 两者具有强线性相关关系。分别选取基色 A 和 B 波长为 520 nm (R^2 为 0.994 2) 和 700 nm (R^2 为 0.998 5) 处的吸光度代入配色模型, 并利用最小二乘法求解目标专色的配方比例。实验结果表明, 六组预测浓度与预设浓度相比较, 配方平均偏差为 2.5%, 无显著偏差。配方色样本与专色样本色差最大值为 1.98, 最小值为 0.30, 平均值为 0.85, 均满足 GMI 对专色复制的要求, 其中 5 组专色色差小于 1.5, 符合专色忠实复制的要求; 6 组专色的光谱均方根误差最大值为 2.93%, 最小值为 0.49%, 平均值为 1.40%, 基本实现了同色同谱的高精度颜色复制。验证了该方法对于提高专色油墨配色精度和改善 PET 薄膜印刷质量具有显著效果, 可为 PET 薄膜专色配方预测提供科学方法。

关键词 吸光度; 光谱透射率; PET 薄膜印刷; 计算机配色

中图分类号: O433.5+1 **文献标识码:** A **DOI:** 10.3964/j.issn.1000-0593(2019)02-0415-06

引 言

在包装印刷领域广泛使用的专色, 不仅可以凸显产品的品质, 建立品牌专属性, 并且由于其颜色的特殊性, 是常用的防伪手段。专色一般是通过基色油墨混合调制得。随着计算机技术的发展, 专色配色技术更加自动化、智能化, 但如何保证配色的准确性和感官的一致性一直是色彩学领域的研究难点。在纸张印刷配色研究中有基于密度配色方法、基于三刺激值配色方法与基于神经网络等配色方法^[1], 在纤维

混色中有 Stearns-Noechel 配色模型和 Friele 配色模型^[2-3], 相关的研究均以反射光谱为基础, 应用最为广泛的是基于 Kubelka-Munk 理论的配色模型^[4-5], 它将反射光谱转换为物质成分的吸收系数与散射系数, 并根据线性加和性原理建模。但已有的研究均以不透明材料为前提, 此类配色模型显然不适用于具有高透光学特性的薄膜印品。PET 聚酯薄膜^[6-7]作为常用的包装印刷薄膜基材, 是以聚对苯二甲酸乙二醇酯为原料的薄膜材料, 其配色仍以人工经验为主, 既浪费生产时间与材料, 又降低生产效率, 针对透明薄膜印品配色相关的研究鲜有报道。另外, 常规测量方法获得的光谱反

收稿日期: 2018-05-24, 修订日期: 2018-10-26

基金项目: 国家自然科学基金项目(51573147)资助

作者简介: 张 研, 1987 年生, 西安理工大学机械与精密仪器工程学院博士研究生 e-mail: 573300946@qq.com

* 通讯联系人 e-mail: zhoushisheng@xaut.edu.cn

射率中包含部分基底表面反射的光能,影响模型预测配方的精度。据此,基于薄膜印品的吸收光谱,建立排除基底影响的计算机专色配方预测模型。吸收光谱是物质分子、原子或原子核对某一波长范围的光选择性吸收所呈现的光谱曲线,并随着浓度的变化吸收强度也不同,可以对物质进行定性、定量及结构分析^[8]。

1 光谱配色模型

1.1 配色模型

物体对入射光线的选择性吸收和反射是物体表面产生颜色的本质原因,对于半透明薄膜印品,根据朗伯比尔定律^[9]

$$A = \lg \frac{1}{T} = \epsilon c l \quad (1)$$

其中, A 为吸光度; T 为光谱透射率; ϵ 为摩尔吸收系数; c 为吸光物质的摩尔浓度, $\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$; l 为吸收层厚度, cm 。

在光谱范围内各波长处的吸收程度是不相同的。朗伯比尔定律描述了当一束平行单色光垂直通过某一均匀非散射的吸光物质时,其吸光度与吸光物质的浓度 c 及吸收层厚度 l 成正比。当吸收物质为多种物质混合而成时,混合物质的吸光度为各组成物质吸光度之和,可表示为

$$A = \sum_{i=1}^N A_i = \sum_{i=1}^N \epsilon_i \int_0^l c_i(z) dz \quad (2)$$

当待测样品满足朗伯比尔定律时,吸光度与物质浓度呈现极强的线性关系。根据这种线性关系,利用不同波长下混合物质的吸光度,可以求解其各个组分的浓度。

基于吸光度的油墨专色配色方法如式(3)所示。该模型表示当某波长处混合油墨的吸光度与基色油墨浓度符合强线性相关时,混合油墨的吸光度可用各基色油墨的浓度与其吸光度乘积之和表示。求解过程为典型的最小值优化问题,可用最小二乘法进行计算,使式(3)最小的浓度 c 即为所求的专色配方。因浓度具有明确的物理意义,要求浓度必须满足非负性和有界性。

$$\begin{aligned} \min f(c_1, c_2, \dots, c_n) &= \sum_{i=1}^n c_i A_{X,i}(\lambda) - A_M(\lambda) \quad (3) \\ \text{s. t. } & c_1 + c_2 + \dots + c_n = 1 \\ & c_1, c_2, \dots, c_n \geq 0 \end{aligned}$$

其中, c_i 为第 i 个基色油墨在混合油墨 M 中的浓度比例; n 为基色油墨数量; $A_{X,i}(\lambda)$ 为第 i 个基色油墨在波长 λ 处的吸光度; $A_M(\lambda)$ 为混合油墨在波长 λ 处的吸光度。

为求解专色配方,首先需获得基色油墨和目标专色油墨在可见光范围的吸收光谱,由式(1)可知,吸收光谱可通过油墨的光谱透射率换算获得,再通过对基色油墨与专色样本进行浓度与吸光度的相关性分析以确定线性度高的特征波段。

1.2 光谱透射率计算

在上层介质为油墨下层介质为承印材料的印刷品中,当光线入射到油墨表面,部分光线在油墨表面发生反射,部分光线穿透油墨层到达承印基底,这部分光线继续在承印材料表面及内部传播,产生反射和透射现象,如图 1 所示。此外,

光线还在油墨层内、承印基材层内以及油墨与承印材料的界面中发生多重内反射^[10]。通常利用分光光度计、光谱仪等设备可直接测得光谱反射率,油墨光谱透射率则可通过计算获得。

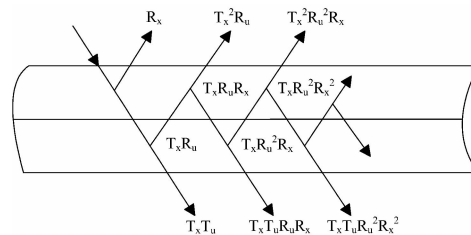


图 1 墨层和承印材料的反射和透射示意图

Fig. 1 Reflectance and transmittance of ink and substrate

定义 R_x 为油墨的光谱反射率, T_x 为油墨的光谱透射率, R_u 为承印材料的光谱反射率, T_u 为承印材料的光谱透射率,则油墨叠加承印材料的光谱反射率 R_{xu} 可以表示为

$$R_{xu} = R_x + R_u T_x^2 (1 + R_u R_x + \dots) \quad (4)$$

数列求和得

$$R_{xu} = R_x + \frac{R_u T_x^2}{1 - R_u R_x} \quad (5)$$

油墨叠加承印材料的光谱透射率 T_{xu} 表示为

$$T_{xu} = T_x T_u (1 + R_u R_x + \dots) \quad (6)$$

求和

$$T_{xu} = \frac{T_x T_u}{1 - R_u R_x} \quad (7)$$

结合式(5)和式(7),分离出变量 R_x 和 T_x

$$R_x = \frac{T_u R_{xu} - R_u T_{xu}^2}{T_u^2 - R_u^2 T_{xu}^2} \quad (8)$$

$$T_x = \sqrt{(R_{xu} - R_x) \left(\frac{1}{R_u} - R_x \right)} \quad (9)$$

为求解 R_x 和 T_x ,将印制好油墨的 PET 薄膜(理论透射率 100%)样条分别放置在黑白两种不透明漫反射基材上利用分光光度计进行光谱反射率测量,得到两组油墨叠加基材的光谱反射率数据 R_{xw} (白底)和 R_{xb} (黑底)。将 R_{xw} 和 R_{xb} 以及两种基材的光谱反射率数据 R_{uw} (白底)和 R_{ub} (黑底)分别代入式(5)可以推导出油墨的光谱反射率

$$R_x = \frac{R_{uw} R_{xb} - R_{ub} R_{xw}}{R_{uw} (1 + R_{ub} R_{xb}) - R_{ub} (1 + R_{uw} R_{xw})} \quad (10)$$

将 R_{xw} 和 R_{uw} 代入式(9)即求出油墨的光谱透射率

$$T_x = \sqrt{(R_{xw} - R_x) \left(\frac{1}{R_{uw}} - R_x \right)} \quad (11)$$

1.3 模型性能评价方法及指标

评价配色模型精度最直观的方法是按照模型预测配方重新进行打样,将按照预测配方重新打样的样本定义为配方色样本,按照预配方印制的样本定义为目标专色样本,对配方色与目标专色采用色差和光谱均方根误差两个指标进行差异分析。色差评价是利用分光光度计测量配方色与目标专色的色度值,采用 CIEDE2000 色差公式^[11-13]进行计算。计算公式如式(12)

$$\Delta E_{00} = \left\{ \left(\frac{\Delta L'}{K_L S_L} \right)^2 + \left(\frac{\Delta C'}{K_C S_C} \right)^2 + \left(\frac{\Delta H'}{K_H S_H} \right)^2 + R_T \left(\frac{\Delta C'}{K_C S_C} \right)^2 \left(\frac{\Delta H'}{K_H S_H} \right)^2 \right\}^{\frac{1}{2}} \quad (12)$$

在包装印刷领域, 根据 GMI(国际图形测量公司)认证标准, 专色色差小于 1.5 则可视作无色差的忠实复制, 色差小于 2.8 表示有小量色差, 但满足专色复制要求。

2 实验与结果分析

2.1 样本制备

利用 RK printing proofer 凹印打样机按照预先设置的配方浓度制备若干样本。具体过程是利用 METTLER TOLEDO ME204 电子天平称取 300g 凹印蓝墨和 300g 凹印红墨分别与稀释剂按照 3:1 的比例混合作为调配专色的基色油墨 A 和 B。实验中所用稀释剂为乙酸乙酯和乙醇按 1:1 比例混合得到的溶液。基色油墨配制完成后, 按照表 1 所示的预设浓度准确称量基色油墨 A 和 B 并充分调配, 然后利用凹印打样机在 0.15 mm PET 薄膜上印刷基色与专色, 获得建模所需的基色油墨样本(S01, S02)和专色油墨样本(S03, S04, S05, S06, S07, S08)。打样完成后静置样品至油墨充分干燥。

表 1 实验制备样本的预设配方

Table 1 Recipes of printing samples

样本名称	A 预设浓度/%	B 预设浓度/%
S01	100	0
S02	0	100
S03	50	50
S04	67	33
S05	33	67
S06	17	83
S07	83	17
S08	9	91

2.2 光谱数据预处理

采用爱色丽 X-Rite CI64 分光光度计对所有样本进行光谱反射率测量。测量时将样本平铺在基材上方, 每个样本分别以白色纸张和黑色纸张两种基材为背景, 黑白纸张为均匀漫反射不透明材质, 同时黑白两种基材的光谱反射率也将被记录下来, 测量过程要求在平整的台面上进行。每个样本测量 3 次, 取其平均值作为各样本最终的测量值。分光光度计的采样波长为 400~700 nm, 采样间隔为 10 nm。

实验共有基色样本 2 组, 专色样本 6 组, 基色样本与专色样本的光谱反射率测量结果如图 2 所示。图 2(a)是白色基底 uw 与白色基底上各样本的光谱反射率, 图 2(b)是黑色基底 ub 与黑色基底上各样本的光谱反射率。由于背景色不同, 样本的光谱反射率有明显差异, 但都随基色油墨浓度变化具有相同的规律。

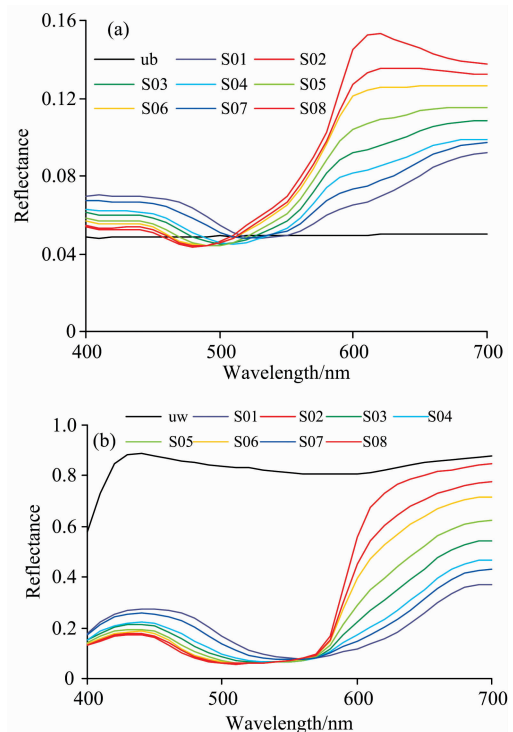


图 2 黑白基底与样本的光谱反射率

(a): 白色基底; (b): 黑色基底

Fig. 2 Reflectance of samples on different backgrounds

(a): White background; (b): Black background

测量完成后, 将测得的光谱反射率代入式(10)与式(11)计算所有样本的光谱透射率并绘制曲线, 结果如图 3(a)所示。计算所得的光谱透射率排除了背景底色的影响, 仅表征 PET 薄膜上墨层的透射特性。图 3(a)中的透射率曲线显示出专色样本的透射性能介于两组基色样本之间, 且随着基色 A 浓度降低, B 浓度升高, 专色样本的光谱透射曲线接近浓度比例大的基色。

将光谱透射率代入式(1)计算样本的吸收光谱并绘制曲线得到如图 3(b)所示结果。该图表明: 专色样本对光谱的吸收强度随组分浓度比例改变而变化, 在 400~580 nm 区间, S03—S08 的吸收光谱随着基色 A 浓度降低而升高; 在 580~700 nm 区间, S03—S08 的吸收光谱随着基色 A 浓度降低而降低, 所有样本吸收曲线相交于 570~590 nm 波长区域, 另外所有样本的光谱反射率曲线(白底)、光谱透射率曲线也均相交于此。

2.3 配方预测

在求解配方比例之前, 首先将样本的吸光度与基色 A 浓度进行回归分析, 验证吸光度与基色浓度的线性关系, 实验结果如图 4 所示。在可见光 400~700 nm 范围内除波长 570~590 nm 区域外, 其他各波长处的吸光度与基色 A 浓度的判定系数 R^2 均大于 0.95, 平均值为 0.990 0, 线性程度高。570~590 nm 区间为各浓度样本光谱曲线相交的位置, 吸光度与浓度不具有典型的线性关系。

由于专色样本制作时仅使用了两种基色, 从图 4 中选用

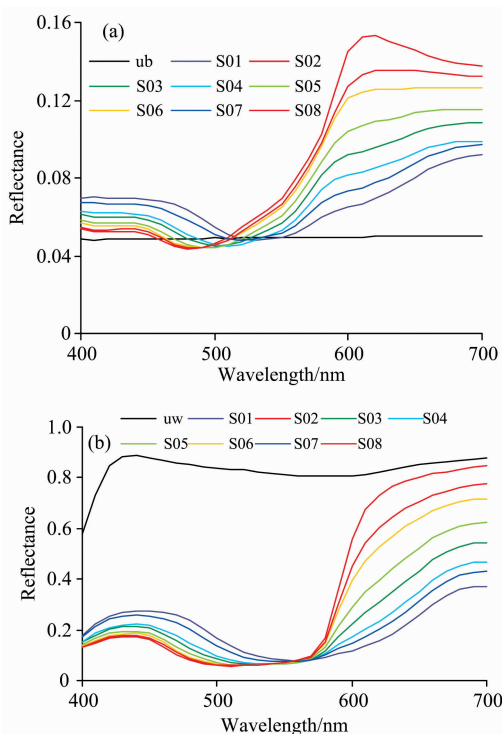


图 3 样本光谱透射率曲线 (a) 和吸收曲线 (b)
Fig. 3 Transmittance curves (a) and Absorbance curves (b) of samples

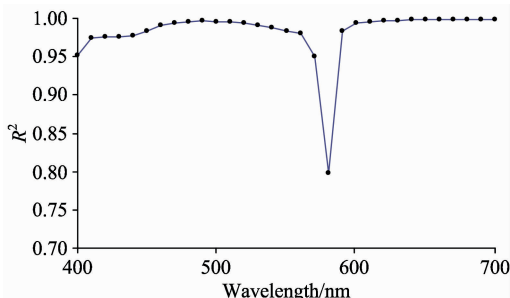


图 4 可见波长范围内吸光度与基色 A 浓度的判定系数
Fig. 4 Coefficient of determination between absorbance and concentration of primary ink A in visible spectral region

两组线性程度高的特征波段用于配方预测，特征波段的选择应避免 570~590 nm 波长区间，这样既可保证预测精度，又可使运算过程简洁。特征波段选取的计算结果如图 5 所示。520 nm 波长处相关系数 R^2 为 0.994 2，700 nm 波长处的相关系数 R^2 为 0.998 5，均呈强线性相关关系，符合配色模型计算要求。

将基色样本 S01, S02 在波长为 520 与 700 nm 处的吸光度代入配色模型，利用最小二乘法分别求解目标样本 S03, S04, S05, S06, S07 和 S08 的配方浓度比例，计算结果如表 2 所示。从预测浓度与预设浓度的偏差角度分析，两者非常接近，平均偏差为 2.5%。

2.4 配方精度验证

由表 2 中结果可以观察到预测配方与预设浓度十分接

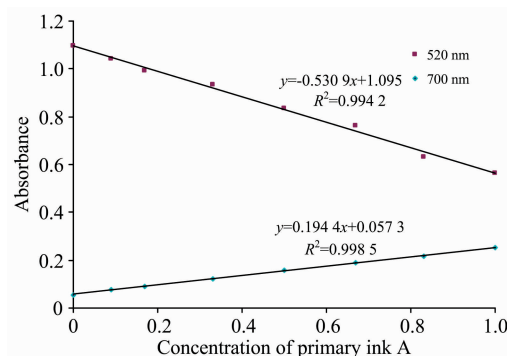


图 5 特征波长吸光度与基色 A 浓度的回归分析
Fig. 5 Regression analysis between absorbance and concentration of primary ink A at characteristic wavelengths

表 2 目标样本配方预测
Table 2 Predicted recipes of target samples

样本	A 预设浓度 / %	B 预设浓度 / %	A 预测浓度 / %	B 预测浓度 / %
S03	50	50	49.5	50.5
S04	67	33	63.5	36.5
S05	33	67	31.1	68.9
S06	17	83	19.6	80.4
S07	83	17	86.7	13.3
S08	9	91	10.3	89.7

近，为进一步评价配方预测精度，将基色 A 与 B 按照表 2 所示的预测浓度比例混合并打样，配方样本命名为 C03—C08，分别对应专色样本 S03—S08，C03—C08 制备过程与 S03—S08 一致。待配方样本完全干燥后，将专色样本与配方样本平铺放置在标准光源箱中 D50 光源下进行主观评价实验，选取 15 名视觉正常人员参与评价颜色色相、明度和饱和度差异，得出的结论是 C07 与 S07 亮度与色相有微小差异，其余样本均无显著差别。

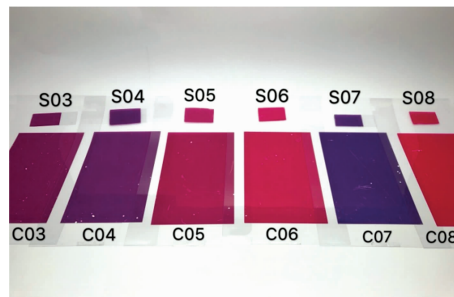


图 6 目标样本与配方样本主观评价
Fig. 6 Visual evaluation of target samples and remade samples

除主观评价外，将图 6 中所有样本平放在白色基底上，利用分光光度计测量光谱反射率与色度值，并用式 (12) 计算相应样本的色差。测量结果如表 3 所示。从表中可以看出，6 组样本中，目标样本与配方样本之间色差最大值为 1.98，最小值为 0.30，平均值为 0.85，全部满足专色复制要求，其中 S03, S04, S05, S06 和 S08 色差均小于 1.5，满足无色差患

实复制要求。

图 7 描述的是 C03—C08 配方样本与相应目标样本 S03—S08 的光谱反射率曲线的匹配程度,从图 7 可以看出,配方样本 C03, C04, C05, C08 与目标样本的光谱反射率曲线几乎重合, C06 与 C07 两个样本在红色波段与目标样本存在少许差异。结合表 3 可知,目标样本与配方样本之间均方根误差 RMSE 最大值为 2.93%, 最小值为 0.49%, 平均值为 1.40%, 基本实现了同色同谱的高精度颜色复制。

表 3 目标样本与配方样本的的精度评价
(测量条件: D50 光源/2° 视场)

Table 3 Chromatic difference and RMSE of samples (D50/2°)

目标样本	配方样本	ΔE_{00}	RMSE/%
S03	C03	0.59	0.75
S04	C04	0.3	0.62
S05	C05	0.35	0.49
S06	C06	1.29	2.19
S07	C07	1.98	2.93
S08	C08	0.61	1.42

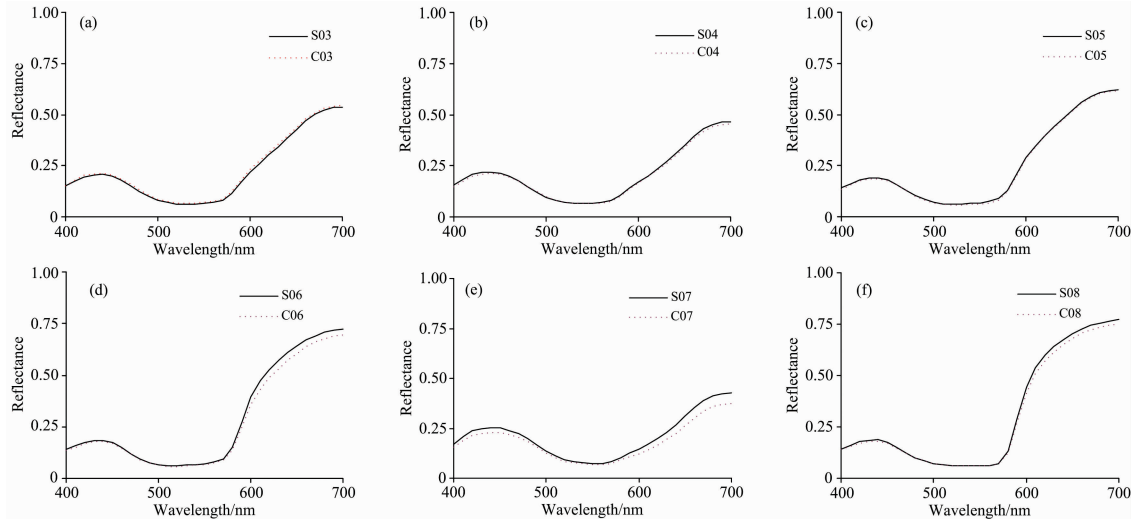


图 7 目标样本与配方样本光谱反射率曲线

Fig. 7 Spectral reflectance curves of target samples and remade samples

3 结 论

针对 PET 薄膜专色配色,利用薄膜高透低反性质和黑白两种基底建立了获得薄膜印品光谱反射率和光谱透射率的方法。根据郎伯比尔定律以及吸光度与浓度在特征波长处的强线性相关关系,提出了基于吸光度的薄膜印品配色方法,并以凹版印刷专色配方预测为例,从颜色色差与光谱均方根

误差两方面验证了配色的有效性和准确性。该方法无需制作基色油墨梯尺,建模样本少,计算过程简洁,一次预测就可以获得与真实比例极为接近的预测结果,解决了现有薄膜印品配色精度无法保证的问题,也为其他印刷方式或承印材料印刷提供了新的配色思路。本方法仅用二元混合的专色进行了验证,后续研究将对三元及三元以上混和的专色进行验证。

References

- [1] Furferi R, Governi L. Color Research & Application, 2011, 36(3): 179.
- [2] Shen J, Zhou X, Ma H, et al. Textile Research Journal, 2016, 87(3): 296.
- [3] Li Rong, Gu Feng. Coloration Technology, 2010, 122(2): 74.
- [4] Schabbach L M, Bondioli F, Fredel M C. Journal of the European Ceramic Society. 2011, 33(5): 659.
- [5] Neuman M, Coppel L, Edstroem P. Nordic Pulp & Paper Research Journal, 2012, 27(2): 426.
- [6] Stinson R M, Obendorf S K. Journal of Applied Polymer Science, 2015, 62(12): 2121.
- [7] GUO Mei, XIONG Ying, XU Peng, et al(郭梅,熊英,徐鹏,等). Polymer Materials Science and Engineering(高分子材料科学与工程), 2010, 26(2): 54.
- [8] LIU Hui-jun, TAO Shao-hua, YANG Bing-chu, et al(刘慧军,陶少华,杨兵初,等). Spectroscopy and Spectral Analysis(光谱学与光谱分析), 2015, 35(12): 3490.
- [9] Mayerhoefer Thomas G, Muschke Harald, Popp Juergen. ChemPhysChem, 2016, 17: 1948.
- [10] Klein G A. Industrial Color Physics. Springer-Verlag, Berlin, 2004.
- [11] Luo M R, Cui G, Rigg B. Color Research & Application, 2001, 26(5): 340.

- [12] Sharma G, Wu W, Dalal E N. *Color Research & Application*, 2005, 30: 21.
[13] Pecho O E, Ghinea R, Alessandretti R, et al. *Dental Materials*, 2016, 32(1): 82.

An Absorbance-Based Prediction Method of Spot Color Formula for PET Film

ZHANG Yan^{1,2}, ZHOU Shi-sheng^{2*}, CAO Cong-jun², REN Peng-gang²

1. School of Mechanical and Precision Instrument Engineering, Xi'an University of Technology, Xi'an 710048, China
2. Shaanxi Provincial Key Laboratory of Printing and Packaging Engineering, Xi'an University of Technology, Xi'an 710048, China

Abstract A model for predicting spot color ink formula for PET film printing is proposed based on the correlation between absorbance and the concentrations of primary inks. Firstly, according to the methodology with the concept of light propagation and the multiple internal reflectance of ink layer and substrate, a method for obtaining the spectral transmittance of the thin film prints with high transmission characteristic is established by making use of the reflectance of the film prints with back and white substrates. The absorption spectrum of the film prints in the visible spectrum is obtained by the spectral transmittance. Then, the regression equation between the absorbance of spot color inks and the concentrations of a primary color ink is established to determine characteristic wavelengths with strong linear correlation. After that, according to Lambert-Beer law, the prediction model is established by using the absorbance of the spot color samples and the absorbance of the primary color samples at the characteristic wavelengths, in order to obtain the proportions of primary color inks. Finally, the deviation between the predicted formulas and the actual concentrations is analyzed. In order to evaluate the accuracy of the prediction method, the remade samples are compared with target samples in terms of chromatic difference and the spectral root mean square error. Some dual-components spot color samples produced on PET film by gravure are used as experimental subjects to verify the proposed method. The analysis of spectrum shows that the reflectance on the black substrate is significantly different from the reflectance on the white substrate, but both have the same trend with the variation of primary ink concentration. The transmittance curves of spot color samples are situated between the curves of primary color samples and move closer to the primary color with higher concentration. The absorption spectrum of samples increase in the region of 400~580 nm with the decrease of concentration of primary ink A, and decrease in the region of 580~700 nm as the concentration of A decreases. Except for the region of 570~590 nm, the linear correlation coefficients R^2 between absorbance of spot color inks and the concentration of primary color A are higher than 0.95 and the average value is 0.990 0, which means a strong linear correlation in the visible spectrum range. The absorbance values at the wavelength 520 nm (R^2 of 0.994 2) and 700 nm (R^2 of 0.998 5) of the primary inks A and B are selected to predict the formulas of spot colors by using the least squares method. The results show that the 6 groups of predicted concentrations are with 2.5% deviation from the actual concentrations of target samples, which means no significant difference. The maximum chromatic difference between the target samples and remade samples is estimated to be 1.98, the minimum to be 0.30, and the average value to be 0.85, which satisfies the requirement of spot color reproduction. 5 of the 6 groups are smaller than 1.5, which satisfies the requirement of faithful reproduction. The maximum RMSE is 2.95%, and the minimum is 0.49%, and the average value is 1.40%, which means a high precision color reproduction in the visible spectrum. It is confirmed that the proposed method could effectively improve the printing quality and the spot color matching precision, which may provide a scientific method for the predictive study of spot color ink formula of PET film printing.

Keywords Absorbance; Spectral transmittance; PET film print; Computer color matching

(Received May 24, 2018; accepted Oct. 26, 2018)

* Corresponding author