細胞中における液体移動の可視化・連続的観察による 木材中の物質移動機構の検討(第1報) 吸引下における各種前処理材の仮道管細胞中の液体移動*1

飯田生穂*2,山本賢一*2,善田奈緒*3,王 悦*2

The Mechanism of Liquid Movement in a Wood Cell Cavity by Continuous Visual Observation I.

Liquid penetration in tracheid cells for each pretreated sample under a vacuum^{*1}

Ikuho IIDA*², Kenichi YAMAMOTO*², Nao ZENDA*³ and Yue WANG*²

In this research, samples of heartwood from three softwood species (hinoki, Douglas-fir and sugi) were treated by 1) hot water extraction; 2) compression perpendicular to grain; and 3) a method combining extraction and compression, respectively. The liquid penetration behavior was observed continuously and macroscopically. The results obtained are as follows: 1) Penetration by capillary pressure (degree of suction 0 kPa) involves a repeated process of advancing and stalling. The degree of increase in the penetration length was untreated wood \leq hot water extraction-treated wood< compression-treated wood< extraction/compression combination-treated wood. 2) The influence of the degree of suction on the penetration rate was different in each species. The method of improving penetration of sugi is eliminating the extractive and that for Douglas-fir it is extending the effective access. 3) The liquid penetration between one tracheid and the adjacent one was easy to induce in hinoki, but it could not be confirmed for Douglas-fir and sugi. 4) There were two kinds of bubbles that occurred by pressure reduction. The formation of round bubbles occurred because of the inflow of air from an adjacent tracheid. The formation of a long bubble was because of cavitations in the longitudinal direction of the tracheid.

Keywords : liquid penetration, visual continuous observation, degree of suction, tracheid.

本研究は, 針葉樹 3 樹種の各種前処理材を用い, 仮道管中の液体移動を可視化, 連続観察した。 得られた結果は, 以下の通りである。1) 毛管圧浸透による浸透長は, 浸透・停滞を繰り返し, 前処理によっていずれも増大した。増加の程度は, 無処理材≦熱水抽出処理材<横圧縮前処理材 <熱水抽出・横圧縮複合処理であった。2) 浸透速度に及ぼす減圧度の影響は, 難浸透のスギと ベイマツでは, 浸透効果に前者で抽出物による界面のぬれと壁孔閉鎖, 後者で有効通路の横圧縮 による開放が大きく関係していることが示唆された。3) 仮道管相互の液体移動は, ヒノキ材で は移動が容易で, ベイマツやスギ材ではその移動が殆ど認められなかった。4) 減圧下の液体移 動には 2 種の異なる形状の気泡を観察した。丸形気泡は, 隣接仮道管からの空気の流入, 長径気 泡は仮道管縦方向のキャビテーションに基づき発生することが推察された。

^{*&}lt;sup>1</sup> Received November 15, 2006; accept March 28, 2007. 本報告の一部は, 第56回日本木材学会大会(2006年 8 月,秋田) で発表した。

^{*2} 京都府立大学大学院農学研究科 Graduate School of Agriculture, Kyoto Prefectural University, Kyoto 606-8522

^{*3} 岐阜県加子母村役場 Kashimo village office, Gifu 508-0494

1. 緒 言

これまで,我々は木材への液体の注入性を向上さ せるための技術として圧縮前処理法の提案を行 い¹⁻⁵⁾,また,樹液流を利用した立木注入法による 小径木の染色を試み省エネルギー的な方法による木 材の改質手段としての浸透法を提案⁶⁻⁸⁾してきた。 しかし,いずれの検討においても木材中への液体の 浸透には樹種特性が存在し,基本的な物質移動機構 の解明なくして,木材中に目的薬液を均一に,十分 注入することは多くの樹種について困難であるこ と,比重と浸透量が無相関であるので,木材中の空 隙の多少に浸透性が依存せず,浸透量は細胞の形,

大きさ, 寸法, ならびに有効通路の大きさと分布, その連結性などが支配的因子として関係しているこ となどが考えられ, 機構の解明には, これらの要因 の寄与に関する直接的な検討が是非必要であるこ と, などを指摘した。これまでにも可視化して検討 を加えたものが幾らか認められる^{9,10)}。また, 水分 移動の仕組みなどについて記述したものも見られ る^{9,10)}。しかし, 細胞中の液体移動の様子を可視化 して, しかも連続観察したものはない。

このような観点にたつとき,複雑な毛管構造をと る木材の場合,細胞中を移動する液体の様子を直接 可視化し,連続的観察によって有効な知見が得られ, それが機構を解明する第一段階であると考えられ た。そこで前報¹¹⁾では,可視化して連続的に観察 する方法の検討ならびに動的観察による2,3の針 葉樹材仮道管中の液体移動の様子,界面活性剤添加 溶液の浸透経過などを調べて報告した。それによる と,毛管中を移動する液体のメニスカスは,放射組 織に隣接する仮道管中では左右対称でなく,また, らせん肥厚を有するベイマツでは液体の浸透・停滞 がらせん肥厚位置でも生じることなどを明らかにし た。

本研究は、細胞中を移動する液体の様子を可視化・ 連続観察することにより、液体浸透機構の解明をは かることを目的としている。そこで、本報告では、 前報に続き、とくに木材に予め各種前処理を施した 材を用い、減圧度をかえて浸透の様子を観察し、減 圧度と木材の前処理条件との組み合わせによる浸透 変化から浸透阻害要因やその程度、加えて2、3の 樹種によるそれらの相違を明確にしようとしたもの である。

2. 実 験

2.1 供試材料及び供試液体

供試材には、ヒノキ (Chamaecyparis obtusa),ス ギ (Cryptmeria japonica) 及びベイマツ (Pseudotsuga menziesii)の心材を用いた。最初に、気乾状態にあ るいずれも直径40 cm 以上の丸太材から心材外周部 の繊維走行に正確に沿った40 mm(T)×60 mm(R)× 260(L) mmの柱状ブロックを採取し、これをさらに 繊維方向に40 mm 毎に切断して後述する各種前処理 を施した。各種前処理を施す前の試片は、減圧下で 十分吸水させ、飽水状態として各前処理に用いた。 前処理試片は、その後、接線方向の幅が3mmとな るように接線方向に連続した試片〔30 mm(L)×3 mm(T)×40 mm(R)〕に切断して, 乾燥した。この ようにして採取した前処理試片は、前処理条件別の 試験体の場合は繊維方向に,減圧度別の試験体の場 合は接線方向にそれぞれマッチングさせるため、印 を施した。乾燥後は、最終的に厚さ2mm(R)、長 さ30 mm(L),幅3 mm(T)として浸透の動的観察用 とした。また,採取試験片は浸透観察面が常に木表 側であり、元口からの浸透となるように印を付けて 試片を作製した。

供試液体は,濃度0.2%のパテントブルー水溶液 であった。これは観察時の濃淡を明確に把握できる ようにするためで,染料水溶液と水溶液の表面張力 の相違は小さい(染料溶液: 63.2 dyen/cm,水溶液: 72.0 dyen/cm)ことを確かめて用いた。

2.2 試験片の前処理

2.2.1 熱水抽出処理:大型の三角フラスコに冷却 装置を取り付け,100℃の熱水中で8時間抽出処理 を行い,その後,16時間自然放冷して,計24時間を 1日とする間欠熱水抽出処理を10日間行った。なお, 抽出処理は,水中に抽出された成分が再び試片中に 戻らないように一日毎に新鮮な水と取り替えて10日 間処理した。

2.2.2 横圧縮処理:乾燥や心材化によって閉鎖した壁孔を剥離,ないし破壊する目的で,横圧縮処理 を施した。これは,閉塞壁孔の浸透への寄与,及び 液体流動における抵抗性の知見が得られると考えた ことによる。横圧縮処理は,飽水試片を室温で材料 試験機によって木材の半径方向をそれぞれ45-50% 圧縮した。試片は圧縮後ただちに除荷して変形を十 分回復させた。変形速度は,1mm/minであった。 2.2.3 熱水抽出・横圧縮複合処理:熱水処理は前 述2.2.1と同様の方法で,その後横圧縮処理を施した。 横圧縮処理は前述2.2.2の方法によった。 各種前処理を施した試片は,温度40℃で1昼夜, 続く105℃で3時間乾燥して,全乾とし,全乾状態 における寸法,重量を測定後,恒温恒湿室(20℃, 65% RH)内で気乾状態とした。

2.3 動的観察

30 mm(L)×3 mm(T)×40 mm(R) 試料を用意し, この試片の木表側の板目断面をミクロトームで平滑 に面出した後、この表面から約2.0 mmの位置で切 断し、30 mm(L)×3 mm(T)×2 mm(R)の観察試片 を作り浸透観察に用いた。観察はいずれも早材部で あった。観察装置の概要は,前報11)に示した通り である。すなわち、木材がある程度光透過性を示す 材料であることを利用して観察する方法で、反射型 光学顕微鏡(BX60M型,オリンパス製)とその接 眼レンズ側に CCD カメラ (3CCD 型, ソニー製)を 取り付け、反射光に基づいて画像を撮像するように しており、ディスプレイ上で約1500倍、印画紙上で 約500倍の観察が可能な方法で,分解能は0.5 µm 程 度である。顕微鏡のステージ上にはFig.1に示す試 作の観察装置をおき,その上に試片の板目面が観察 表面となるように水平にした。木口面の一端に一定 量の染料水溶液を添加したときの染料水溶液が、仮 道管繊維方向に移動する様子を板目面表面から観察 した。観察像はビデオテープレコーダー、または DVD レコーダで録画し、それを再生して解析する ことにより、浸透長と時間の関係などを調べた。吸 引下の浸透実験は、染料水溶液添加側と反対側の木 口面に減圧チューブを挿入し、他端よりハンディア スピレータ(A-3S型,東京理科製)で減圧した。 チューブ途中にはデジタルマノメータ (DM-1型, SIBATA 製)を取り付けて減圧度を測定できるよう にしてあり,減圧度の程度を数段階変化させて,浸 透長を測定した。

結果と考察

3.1 各種前処理材の浸透経過

Fig.2. A, B, Cに各種前処理材の毛管圧浸透(減 圧度0kPa)による浸透経過を3樹種について示す。



Fig. 1. The stage for observation of test samples.



Fig. 2. The process of liquid penetration for hinoki (A), Douglas-fir (B) and sugi (C).

Note : the degree of suction is 0 kPa.

Legend : \bigcirc : untreated wood ; \triangle : hot water extraction treatment ;

 \Box : compression perpendicular to grain;

 \diamond : extraction/compression composite treatment

図中のAはヒノキ材で, Bはベイマツ材で, Cはス ギ材の結果である。また各プロットは前処理の違い を示している。図によると,前処理によって浸透長 の増加が著しく変化することが認められる。ヒノキ 材の場合,無処理材と熱水抽出処理材では浸透長の 増加が緩慢で,浸透,停滞を繰り返して浸透長の増 加が進行する。この挙動は抽出処理材で顕著である。 これに比べて横圧縮処理と抽出・横圧縮複合処理で は極めて短時間の間に浸透長の急激な増加が生じ る。従ってヒノキ材 (Fig.2A)の場合には,無処理 材及び抽出処理材グループと横圧縮処理及び抽出・ 横圧縮複合処理のグループに2大別できる経過が認 められる。ヒノキ材の場合,抽出処理効果は極めて 小さい。これは、後述するがヒノキ材の無処理の場 合,ぬれが良好で、浸せきぬれに先行して拡張ぬれ が仮道管中を進行する¹¹⁾ので、浸せきぬれによる 液体進行時の接触角が 0°で $\cos \theta = 1$ となり、毛管 張力が最大限に働くのに対して、むしろ抽出処理す ると界面のぬれが悪くなり、結果として無処理材と 抽出処理材では、浸透長の増加に逆転が生じた結果 になったと判断される。

これと対比してベイマツ材 (Fig. 2B) では、4つ の処理条件中で急激に浸透量が増加する処理は横圧 縮前処理で、ヒノキの場合と類似するが、ヒノキと 比べて幾らかの点でその挙動が大きく異なる。すな わち、ヒノキに比べて停滞時間が明らかに長い挙動 を示す。また、停滞後の液体の進行が極めて急激で 突発的な進行を示すことである。この傾向はとくに 横圧縮処理,及び熱水抽出・横圧縮複合処理で明確 である。このことは横圧縮処理によって有効通路の 拡大がはかられても界面のぬれが改善されないの で,その浸透阻害要因を通過するのにかなりの時間 を必要とし、壁孔部の比較的小さい通路から細胞内 腔に向かって液体が進行すると, 阻害要因も軽減さ れ、結果として大きく液体の進行がはかられること によると考えられる。しかし, 続く壁孔の出現によ って再び阻害要因が出現し、大きく停滞することに なる。この繰り返しによって液体が進行する。加え てベイマツ材の場合には前報で明らかにした仮道管 内腔中にらせん肥厚が存在する¹²⁾ため,らせん肥 厚位置での拡張ぬれが浸透阻害要因として寄与する が, 圧縮処理によってらせん肥厚の圧縮変形を引き 起こし,肥厚部の拡張ぬれ⁹が改善されたことなど が関与しているものと考えられる。スギ材の場合 (Fig. 2C) もベイマツ材同様に浸透, 停滞を繰り返 して進行しており,加えて浸透量の増大は圧縮前処 理,抽出・圧縮複合処理で効果が認められる。

以上の結果から,3樹種のうちでヒノキ材は易浸 透性の材でその浸透は,拡張ぬれが先行し,続く浸 せきぬれによって浸透がなされる樹種であるの で¹¹⁾,比較的浸透・停滞が顕著でなく,しかも吸液 量は3樹種中最大である。これに対してベイマツ材 は圧縮前処理,熱水抽出・圧縮複合前処理によって 浸透性の改善が顕著で3樹種中での改善は中庸であ るが,ベイマツ材では停滞後に突発的浸透長の増大 を示す樹種として大きな特徴がある。これは壁孔の 閉鎖の要因が,大きくかかわり,横圧縮処理による 閉塞壁孔の解放が大きく影響している。それに加え

て拡張ぬれを必要とするらせん肥厚の前処理による 改善, すなわち, 圧縮処理によってらせん肥厚の圧 縮変形を引き起こし,肥厚部の拡張ぬれ¹¹⁾が改善 されたことで良好な変化をもたらしたものと考えら れる。スギ材は壁孔の閉鎖に加えて、仮道管内腔或 いは壁孔部の抽出物のぬれが不良で、前処理によっ て有効通路の改善がなされてもぬれが良好でないた め毛管圧上昇法では3樹種中一番小さかったと考え られ、横圧縮による液体通路の拡大よりもぬれの寄 与が大きいため、浸透性の改善効果はベイマツ材よ り小さく表れたと考えられる。このことはスギ材の 場合,各種前処理を施した材であってもある減圧度 以上にならないと浸透速度が大きくならないが、こ れは細胞内腔表面のぬれが悪く、多量の抽出物位置 で液の進行が停止すると、その阻害物を飛び越える 駆動力、すなわち減圧度以上にならないと液体の進 行が行われない。浸透阻害にうち勝つ減圧度になっ てはじめて浸透長が増大する結果からも理解でき る。結果として樹種の浸透性の改善は、毛管圧浸透 法では, 全般的に見てヒノキ材>ベイマツ材>スギ 材となる。

3.2 各種前処理材の減圧注入による浸透長の変化

Fig.3にヒノキの減圧下における浸透経過を,ま た, Fig. 4 に経過曲線から求めた浸透長25 mm に達 するまでに要した時間に基づく平均浸透速度を減圧 度との関係で示す。Fig.3中には比較のため減圧度 0kPaの毛管圧浸透の結果も示してある。ヒノキ材 の場合,前処理を施すと,浸透の改善効果は著しい。 圧縮前処理,及び抽出・圧縮複合処理では数十秒の 極めて短い時間で測定試片長の30 mm に到達する。 Fig.4によると、平均の浸透速度は、無処理材では 減圧度とともに漸増するが、その増加の程度は小さ い。これに比べて各種前処理材は比較的興味深い結 果を示す。すなわち,熱水抽出処理及び圧縮前処理 では、減圧度20-30 kPa 範囲で浸透速度の急激な増 加が見られ、複合処理では減圧度に比例、ないしよ り低い減圧度15-20 kPaで急激な増加を示している。 これは各処理によって浸透通路の改善が図られたこ とに関係していると考えられる。

次にベイマツ材の減圧下における浸透経過を Fig. 5,ならびに平均浸透速度と減圧度の関係を Fig. 6 に示す。Fig. 5 によると、ベイマツ無処理材の浸透 経過は、減圧度をいくら増加しても浸透長の増加は 顕著でない。抽出処理でわずかに改善されるが、そ の効果は小さく、圧縮前処理で極めて大きく改善さ れる。その結果、平均浸透速度は図示しているよう に横圧縮処理と、複合処理で著しく大きくなり、減



Fig. 3. The process of liquid penetration for hinoki (degree of suction $0 \sim 60 \text{ kPa}$).

- Note: A : untreated wood ; B : hot water extraction treatment ;
 - C: compression perpendicular to grain;
 - D: extraction/compression composite treatment

圧度にほぼ比例して浸透速度が増加している。

スギ材の浸透経過を Fig.7, その平均浸透速度を Fig.8 に示す。スギ材の場合,無処理材であっても 減圧度を増すとある程度浸透長を増加する。しかも, Fig.8 の平均浸透速度の結果で明確であるが,ベイ マツ材では,減圧度を増加しても熱水抽出処理の浸 透長の増加は極めて小さかったのに対して,スギ材 では熱水抽出処理の効果が明確である。従って,ス ギ材では熱水抽出処理で改善することから有効通路 が確保されているとき,界面のぬれが熱水抽出処理 で改善され,その結果として浸透性を大きく改善で きるが,ベイマツ材の場合には,熱水処理のみでは,



Fig. 4. Changes in the initial rate of penetration with increase in the degree of suction for hinoki. Note: $^{*}\Delta L$ is 25 mm.

Legend : See Fig. 2.

ぬれの改善が小さく,前処理(横圧縮処理,及び複 合処理)による有効通路の確保によって大きく改善 されるのみである。その結果、毛管圧浸透における 浸透性の順位はヒノキ材>ベイマツ材>スギ材であ ったものが、減圧浸透ではヒノキ材>スギ材>ベイ マツ材となる。このスギ材とベイマツ材の浸透性の 逆転は、次のように考えられる。すなわち、ベイマ ツ材とスギ材では閉塞壁孔による通路のないことと 界面のぬれのいずれも浸透に関係しているがベイマ ツ材は減圧によって突発的な浸透長の増大が生じる のみで, 壁孔位置でのぬれに伴う浸透障害を越える 吸引力がかなり大きいことによる。これに対してス ギ材はぬれの障害を越える吸引力20-30 kPa 以上に なると、浸透長の著しい促進がなされるため、両者 で逆転が生じたものと考えられる。以上より, 3 樹 種の浸透に及ぼす影響因子は、ヒノキは易浸透性の 樹種で、ベイマツは壁孔の閉鎖が極めて大きな因子 として浸透に関係し,スギ材は壁孔の閉鎖と抽出物 のぬれが極めて大きな浸透阻害要因として関係して いることが示唆される。

3.3 仮道管及び仮道管相互中の液体移動の特異挙 動の観察

Photo 1 に隣接仮道管に移動する液体移動の様子 を示す。矢田¹³⁾ は軟X線照射法によってヒノキ心 材の繊維方向における毛管圧流動の観察から隣接仮 道管への液体移動は放射組織に隣接した仮道管の比 較的限られた仮道管径の小さい部位に限定されるこ とを指摘している。しかし,可視化,連続的観察に よる本結果は,隣接部に放射組織がない場合でも隣 接仮道管への液体移動は達成されることを観察し



 Fig. 5. The process of liquid penetration for Douglas-fir (degree of suction: 0~90 kPa).
Note: See Fig. 3.

た。このような結果は、ヒノキ材の場合、しばしば 観察することができた。なお、ベイマツ材とスギ材 では、横方向における隣接仮道管相互間の移動はほ とんど認められなかった。

また,減圧下のヒノキ材の浸透結果では液体浸透 毛管中に気泡が発生する様子を観察した。その気泡 形成のパターンには2種類が存在した。一つは気泡 が正円の形で複数個出現して移動する様子を観察で きた。他方は1ないし2個の帯状の気泡として観察 できた。これらの気泡は明らかに気泡の発生,出現 形態をことにした。Photo2に正円の気泡を示す。 また,正円の気泡の発生の様子を模式図でFig.9に 示す。前報において,ヒノキ材の液体浸透は仮道管 中の液体浸透がまず最初に内腔表面を拡張ぬれによ ってぬらし,続いて浸せきぬれが後方から進行する



Fig. 6. Changes in the initial rate of penetration with increase in the degree of suction for Douglas-fir. Note: $^{*}\Delta L$ is 4 mm. Legend: See Fig. 2.

ことが明らかになり、ヒノキ材は内腔表面のぬれが 極めて良好な樹種であることを示した。このような 浸透が率先浸透部でなされるとき、図中に示してい るようにA, B, Cのように拡張ぬれが進行し、隣 接仮道管位置で壁孔縁, 壁孔壁小孔と拡張ぬれが進 行し, 壁孔壁小孔部の液体の有効通路は極めて狭い ので、結果として対向する表面をぬらした液膜は相 互に接することとなり、その位置でメニスカスを形 成できるようになる。このような状態になると、孔 口から壁孔室に存在した空気は壁孔の孔口と小孔と の間に閉じこめられる。減圧下では、この閉じこめ られた空気が仮道管内腔中に押し出される形で気泡 を形成することになる。これが、正円気泡の出現と なる。他方,帯状の気泡 (Photo 3) は,その原因 が明確でないが、突然出現することから紡錘形をし た仮道管先端部の壁孔を通過し、仮道管内腔から壁 孔,続く内腔,壁孔の通路の系において,内腔の通 路系と壁孔の通路系では後者が明らかに小さいこと から液体の移動は、当然壁孔部で大きな抵抗を受け る。結果として減圧下では連続水脈が分離しやすく, いわゆるキャビテーションを引き起こすことにな る。これが帯状の気泡の出現を引き起こしていると 考えられる。本来、水分子間の分離にはかなりの力 が必要であるが,内腔表面,壁孔位置での表面は平 滑でなく複雑で,種々の物質の堆積を伴っているで あろう。このような場合には水脈の分離は比較的容 易になると考えられる。気泡の発生は注入性を考え たとき,減圧注入効果を低下させるので液体浸透に おいて適度の減圧度で処理しない限り、多くの気泡 の発生を促して浸透が有効に機能しない結果を引き



Fig. 7. The process of liquid penetration for sugi (degree of suction : 0~60 kPa).
Note : See Fig. 3.

起こすことになる。

文 献

- 1) 飯田生穂, 高山知香子, 宮川 修, 今村祐嗣:木 材学会誌 38(3), 233-240 (1992).
- 2) 飯田生穂,池内 晃,今村祐嗣:木材学会誌 41(9),811-819 (1995).
- 3) 飯田生穂,守 繁和,中村嘉明,酒井温子,今村 祐嗣:木材学会誌 42(6),581-588 (1996).
- Watanabe, U., Imamura, Y., Iida I.: J. Wood Sci. 44 (2), 158-162 (1998).
- Iida, I., Suleaman, Y., Watanabe, U., Imamura, Y. : J. Wood Sci. 48(1), 81-85 (2002).
- 6) 飯田生穂,森岡茂勝:木材保存 16(1),30-37 (1990).



Degree of suction (kPa)



Legend : See Fig. 2.





- Note: the liquid penetration was from one tracheid to an adjacent tracheid through the bordered pit. The extension of wetness was not great.
 - (初田生穂,野村隆哉,森岡茂勝:京都府立大学 学術報告・農学 No. 41, 64-70 (1989).



Photo 2. The development of bubbles (A) by the liquid penetration.



Fig. 9. Model of access between pit aperture and pit membrane pore showing the development of a bubble.



- Photo 3. The process of penetration of hinoki treated by hot water extraction (degree of suction is 20.3 kPa).
- Note: the liquid penetration was in liquid phase-gaseous phase-liquid phase-gaseous phase-liquid phase.
 - 8) 飯田生穂, 今村祐嗣:木材保存 20(6), 312-317 (1994).
 - Matsumura, J., Booker, R. E., Donaldson, L. A., Ridoutt, B. G.: *IAWA. J* 19(1), 25-33 (1998).
- Abe, H., Funada, R., Kuroda, N., Furusawa, O., Shibagaki, M., Fujii. T. : *IAWA. J* 22(1), 63-72 (2001).
- 河合 厚, 飯田生穂, 石丸 優:木材学会誌 47(6), 493-500 (2001).
- 12) 佐伯 浩: "走査電子顕微鏡図説木材の構造", 日本林業技術協会,東京 1982, pp. 130-131.
- 13) 矢田茂樹:木材工業 41(5),209-214 (1989).