

屋根面堆積負荷の非定常挙動に関する連続観測

二瓶 泰雄* 吉田 拓司** 砂田 岳彦***

Continuous Monitoring on Unsteady Behavior of Roof-Deposit Load

Yasuo NIHEI*, Takushi YOSHIDA** and Takahiko SUNADA***

* Department of Civil Eng., Faculty of Science and Technology, Tokyo University of Science, 2641 Yamazaki, Noda 278-8510, Japan

** Department of Civil Eng., Graduate School of Science and Technology, Tokyo University of Science, 2641 Yamazaki, Noda 278-8510, Japan

*** Serio, Patent & Trademark Attorneys, 5-4-11 Akasaka, Minato-ku, Tokyo 107-0052, Japan

Abstract

To examine the temporal variation in the amount of roof deposit, which is one of the main non-point sources in urban areas, and its association with dry fallout, a continuous monitoring of roof-deposit environments is performed by a modeled-stormwater sampling (MOS) technique, by which one can easily obtain deposits from a model roof under simulated rainy conditions. The results indicate that the amount of sediment on the roof (SS_{roof}) decreases rapidly just after a rainfall and then increases gradually until the next rainfall occurs. The temporal variation in SS_{roof} is similar to that in the accumulated value of the deposition rate of SPM (suspended particulate matter), $\int D_{SPM} dt$. The correlation coefficient between SS_{roof} and $\int D_{SPM} dt$ is 0.839, showing that the mutual relationship between them is sufficiently estimated. Note that to obtain an accurate evaluation of roof-deposit load, it is necessary to use $\int D_{SPM} dt$, in which the influences of antecedent fine weather conditions and dry fallout are explicitly incorporated.

Key words: roof deposit, non-point source, MOS technique, SPM, pollutant load

1. はじめに

下水道整備や事業場の排水規制に伴って点源負荷は近年削減傾向となっているのに対して、有効な浄化・処理対策が存在しない面源負荷は湖沼や内湾への流入汚濁負荷に対して大きな割合を占めつつある¹⁾。このような面源負荷は閉鎖性水域における水質環境の改善を阻止する要因の一つであると指摘されている^{2, 3)}。このようなことから、面源負荷の実態を把握し、適切な面源負荷評価法を確立することは必要不可欠である。特に、面源負荷の増加傾向が顕著である都市域では³⁾、面源負荷の主要部分を構成する屋根面や路面等の不浸透面における汚濁物質の発生・排出・流下過程を把握することが急務の課題となっている。

屋根面上の堆積物およびその栄養塩・有機物量は、路面上の堆積物量と比べると一般に小さいものの^{1, 2, 4)}、都市域に占める屋根の面積が路面よりも大きいことを考慮するとこれらの屋根面堆積負荷の実態を把握することは必要であり、そのための調査がいくつか行われている^{5~7)}。これらの調査の多くでは、降雨時における屋根面からの雨水排水を採取し、そのサンプル水に対して水質分析を行う、という実降雨法が用いられている。この実降雨法

により、降雨時に流出する屋根排水の水質環境や流出した堆積物の総量を計測することが可能である。しかしながら、この方法では、降雨時以外における屋根面堆積負荷を計測しないため、晴天時を含めて屋根面堆積負荷の時間変動特性を把握することは難しい。そのため、屋根面堆積負荷と発生源（大気降下物等）との関係の定量化はほとんど行われておらず、結果として、精緻な屋根面堆積負荷モデルの構築が困難となっている。また、屋根面堆積負荷の時間変化を計測するには、ブラシ等により堆積物を直接採取する方法（堆積物採取法）が考えられる²⁾。しかしながら、この方法では、路面堆積負荷調査の場合と同様に、降雨時に流出する成分よりも多くの堆積物が採取されるため、サンプルの代表性に問題があると考えられる⁸⁾。

本研究では、上記とは異なる調査法により、晴天時・降雨時に関わらず屋根面堆積負荷調査を長期にわたり継続的に実施し、屋根面堆積負荷の時間変動特性を明らかにする。また、発生源データ（大気環境）と屋根面堆積負荷との関連性を把握することを試みる。ここで行う調査法は、模擬的に再現された降雨状況下において屋根面上の堆積物を採取する、という方法であり、著者らが路面堆積負荷

* 東京理科大学理工学部土木工学科 〒278-8510 千葉県野田市山崎2641

** 東京理科大学大学院理工学研究科土木工学専攻 〒278-8510 千葉県野田市山崎2641

*** セリオ国際特許事務所 〒107-0052 東京都港区赤坂5-4-11

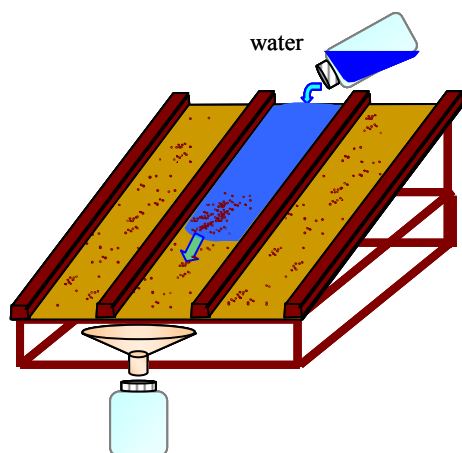


Fig. 1 Schematic view of the present sampling technique for roof deposits.

調査法として提案している模擬降雨流出水採取法（模擬降雨法もしくはMOS法）⁸⁾の一種である。この調査法は天候に関係なく実施可能であるため、ほぼ毎日調査を実施し、屋根面堆積負荷の非定常挙動やそれと大気環境データ（Suspended Particulate Matter, SPM）の関連性を検討する。

2. 屋根面堆積負荷調査法

2.1 本調査法の基本的な考え方

前述したように、実降雨法や堆積物採取法では、晴天時を含む屋根面堆積負荷の時間変化をモニタリングすることは難しい。そこで本研究では、次のような考え方に基づく屋根面堆積負荷調査方法を導入する。

- ① 簡便に降雨流出過程を模擬して堆積物を採取する。
- ② 時間的に大きく変化する屋根面堆積負荷の日変化データを取得する。
- ③ 調査作業の安全性に留意する。

これら3点を念頭において、ここでは、Fig. 1に示すように、模型屋根を設置し、その屋根面上端から水道水を流して下端において流出水を採取する、という屋根面堆積負荷調査を実施する。この方法では、模擬的な降雨流出状況を簡易的に再現するために、水道水を屋根面に流し、流れてきた水道水により浮遊・掃流させられる堆積物のみを取得する（上記①）。この方法は、ブラシなどを用いて堆積物を根こそぎ取得する堆積物採取法よりも、降雨流出成分に近い屋根面堆積物を採取できるものと考えられる。実際の調査では、屋根面の凹部（以下、レーンと称す）に水道水を流し、下端部において流れてきた水を採取する、という作業を行っており、調査対象のレーンを日々変化させることにより、屋根面堆積負荷の時間変化を追跡することが可能となる（上記②）。また、実物の屋根を調査に利用することも考えられるが、日々、様々な天候の下で調査を行う際には、実物の屋根では安全面に問題がある。そのため、ここでは、建物屋上に設置された模型屋根を用いる（上記③）。上述したように、本調査法では模擬的に降雨流出状況を簡易的に再現した形で屋根面堆積物を採取しており、本調査法を一種の模擬降雨法⁸⁾と見なすことができる。なお、調査対象レーンを毎回変化させると、レーン毎に堆積履歴が異なる。各レーンの調査間隔は概ね3週間であり、その

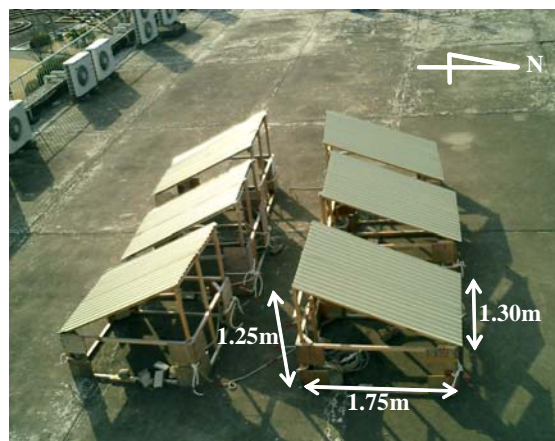


Fig. 2 Photograph for model roofs used in the present monitoring technique.

間には通常降雨が生じて大部分の堆積物が流出するため、レーン間の堆積履歴の差は解消される。また、無降雨期間が続いた時に、堆積履歴の異なるレーン間の堆積状況を予備的に確認したところ、有意な差は見られなかった。このようなことから、調査レーンを変化させても計測結果には影響はないものと考えられる。

2.2 屋根面堆積物の採取・分析方法

本論文で用いる模型屋根はFig.2に示している亜鉛メッキ銅版製であり、合計6つの屋根を建物屋上に設置している。この模型屋根の勾配は23°、大きさは高さ1.25m、横幅1.30m、奥行き幅1.75mである。一つの屋根面におけるレーン数は16であり、各レーンの幅は5.5cmである。各レーンにおける汚濁物の堆積状況にはバラツキが見られるので、本調査では、一回の観測において3レーン分を利用する。本調査法における屋根面堆積物の採取手順はFig.3に示すとおりであり、以下の4ステップから構成される。

- Step1: 屋根面上の3つのレーンを霧吹きにより湿らす。
- Step2: 1番目のレーンに対して屋根上端より400mlの水道水を流し、下端でその水を採取する。
- Step3: 2番目のレーンに移動する。そして、Step2で採取したサンプル水を、2番目のレーン上端より流し、その水を下端にて採取する。
- Step4: 同じことを3番目のレーンにおいても実施する。

なお、上記調査に個人差が生じないように、水道水400mlを流す時間（約7s）を統一している。得られたサンプル水のうち、全サンプルには濁度、一部のサンプルのみSSと粒径分布を分析する。分析方法として、濁度に関してはサンプル水を十分攪拌し、その後メスシリンダーに注ぎ、その中に多項目水質計（WQC-24、東亜ディーケーケー（株）製）を挿入し計測する。SSにはガラス繊維ろ紙法⁹⁾を用いる。また、粒径分布の計測には、レーザ回折式粒径分布測定装置（SALD-3000S、株式会社島津製作所製）を使用する。

上記の手順では、屋根面堆積物を採取する前のStep1で屋根面に霧吹きを行っている。これは、屋根面の湿り具合により、レーンに水を流した時の状況が大きく異なるためである。Fig.4は、霧吹きの使用の有無による水の流下状況を比較したものを示している。ここでは、可視化の関係で、着色液をレーン上端から流している。これを見ても明らか

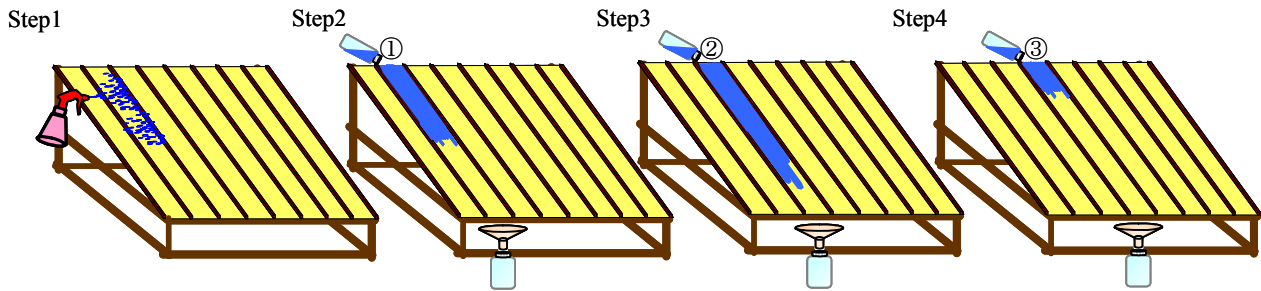


Fig. 3 Procedure for collecting roof deposits in the present monitoring technique.

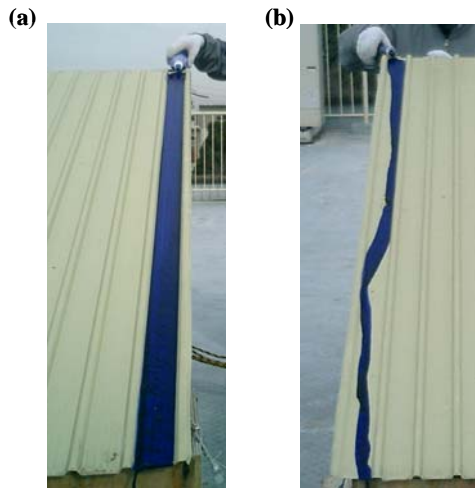


Fig. 4 Flows on roofs with (a) and without (b) using a spray-gun.

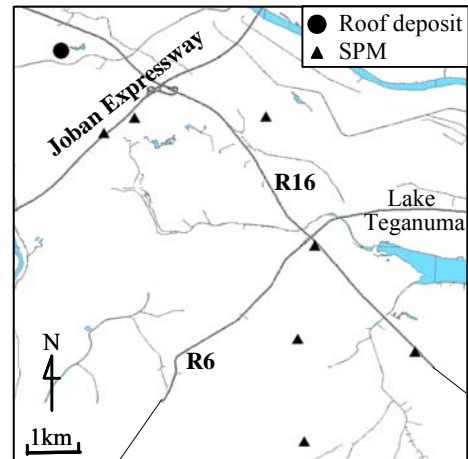


Fig. 5 Locations of measuring stations for roof deposits and SPM.

なように、霧吹きを使用しないと、水はレーン内を偏って流れるのに対して、霧吹きを使用すると水はレーン内をほぼ一様に流下している。ここではレーン全体の堆積物を偏りなく取得する必要があるため、本調査法では堆積物採取前に屋根面への霧吹きを行うこととする。なお、霧吹きによる蒸留水の使用量は20mlであり、霧吹きによりレーン下端より流出する水はないことを確認している。

2.3 現地調査と解析データの概要

本研究では、模型屋根を本学野田校舎5号館屋上に設置し屋根面堆積負荷調査を実施している。本学野田校舎は、Fig.5 中の●印に位置し、近くには国道16号線が存在する。屋根面の向きにより堆積環境の違いが生じることを鑑みて、Fig.2 に示すように、模型屋根を北向き、南向きにそれぞれ3つずつ配置する。今回の調査では、各向きの屋根から3レーンずつ選定して前述した調査を行い、得られた2つのサンプル水に対する水質分析結果の平均値を観測データとして採用している。本観測は2005年9月15日から開始して現在まで継続して行われており、週末や祝日を除きほぼ毎日調査が実施されている。ここでは、観測開始から2006年3月31日までの結果を解析対象とする。前節で記述したように、得られたサンプル水全てに対して濁度を計測する。その濁度を屋根面上の堆積物量に換算するために、同一サンプル水に対する濁度とSSの相関関係を求め、その相関式より変換されたSS値を調査対象とする3レーンの面積の総和(=0.297m²)で除し、単位面積当たりの堆積物量(以下、屋根面SS(SS_{roof}))と呼ぶ)を算出する。

屋根面SSの時間変動特性と気象条件や大気環境との関

係性を検討するため、これらのデータを収集する。このうち、気象データとして雨量、温湿度、風向・風速を模型屋根の周囲にて計測する。後述するデータ解析に使用する雨量には転倒マス式雨量計(Onset社)、風速には三杯式風速計(Campbell社)をそれぞれ使用する。また、大気環境データとしては、屋根面堆積負荷の発生源の一つとなる浮遊粒子状物質濃度(SPM)の実測データを、環境省大気汚染物質広域監視システム(通称そらまめ君)¹⁰⁾より取得する。ここでは、Fig.5に示す千葉県柏市の7地点における1時間毎の測定値を解析対象とする。なお、本来ならば、屋根面堆積負荷調査を行っている本学周辺の野田市などにおけるSPMデータを用いるのが望ましいが、観測期間中においてデータ欠測がいくつか生じたことやこの地域ではSPM等の大気環境に大きな差が見られなかったため、ここでは上記の7地点のみをデータ解析に用いる。

3. 観測結果と考察

3.1 屋根面SSの時間変化

本観測により得られた屋根面SSの時間変動特性を調べるために、全観測期間における日雨量Rと屋根面SSの時系列変化をFig.6(a), (b)に示す。なお、2005年12月19日から2006年1月14日における屋根面SSデータは欠測している。これは、2005年12月19日において、強風のため模型屋根の一部が転倒・破損し、観測データの取得が困難になったこと、また、修理した模型屋根をしばらくの間大気中に暴露する必要があったためである。これらの図を見ると、屋根面SSは一定とはならず、0.0~0.25g/m²の範囲で時間的に

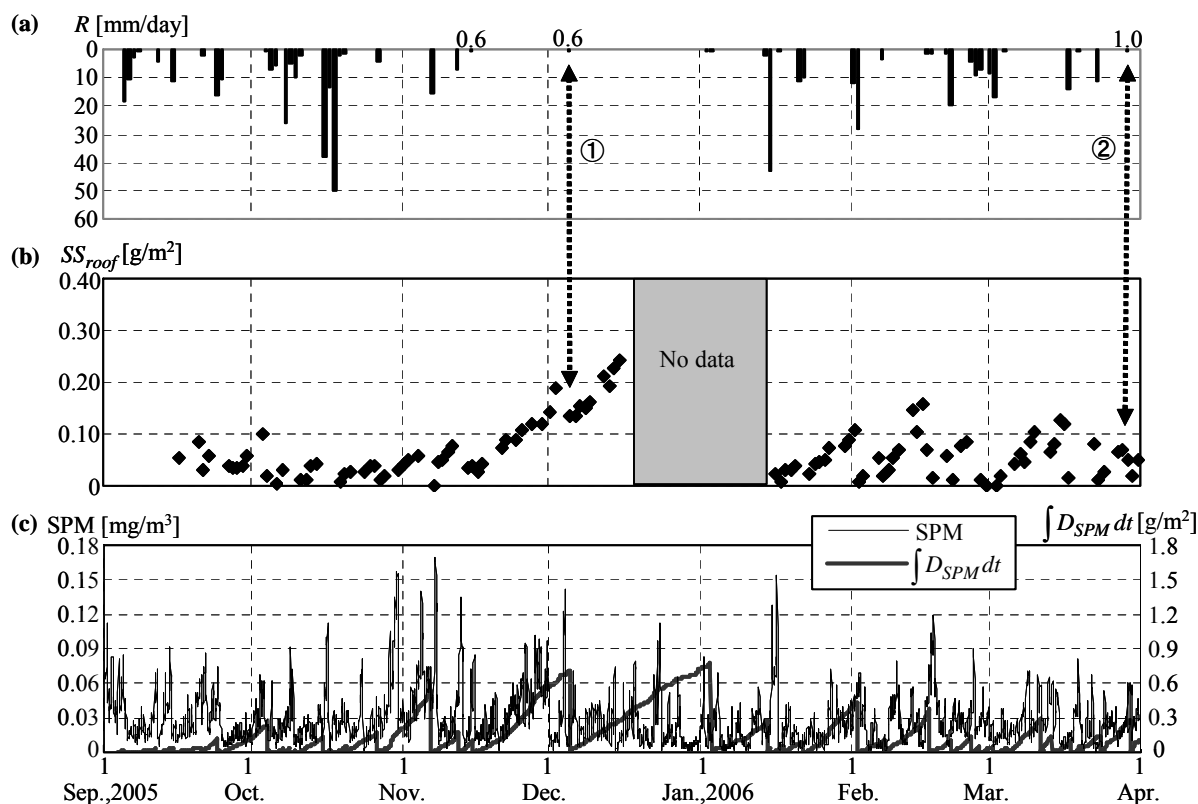


Fig. 6 Temporal variations of daily precipitation R (a), SS_{roof} (b) and SPM (c).

変化している。このときの屋根面SSの大きさは、本調査地点近傍の一般道路での堆積物量（およそ0.15～0.60g/m²）⁸⁾よりも全般的に小さくなっている。また、屋根面SSの変化は降雨量に対応して生じており、降雨量が観測された直後には屋根面SSは減少し、その後、次の降雨時まで屋根面SSは増加する。そのため、降雨量の少ない11～12月の屋根面SSはその他の時期よりも大きい。また、無降雨期間が続いても、屋根面SSは一定値に近づかず増加傾向を保っている。

降雨前後における屋根面SSの減少量を詳細に調べると、多くの降雨時には、降雨後の屋根面SSは降雨前と比べて大幅に減少し、降雨直後の観測値は概ね0.05g/m²以下となっている。しかしながら、降雨量が少ない時には、降雨直後の屋根面SSは必ずしも大幅に減少しておらず、その値は0.05g/m²以下とはならない場合が見られる（Fig.6中矢印①, ②）。矢印①の降雨時（日雨量0.6mm, 最大時間雨量0.2mm）には、降雨前の屋根面SSが0.187g/m²であったのに対して、降雨後には0.135g/m²となっている。一方、矢印②の時（日雨量1mm, 時間雨量1mm）には、0.070g/m²（降雨前）から0.050g/m²（降雨後）までしか屋根面SSは減少しなかった。以上より、雨量が多いと屋根面SSの大部分は流出するのに対して、雨量が少ない場合には屋根面SSの3割程度しか屋根面より流出しない。このような屋根面SSの流出特性を分ける雨量の閾値としては、目安として日雨量約1mmである。この雨量の閾値については、多くの観測事例を通して、今後検討する予定である。

3.2 屋根面SSの粒径分布

屋根面SSの粒径分布特性を調べるために、2005年11月30日に採取された屋根面SSの粒径加積曲線をFig.7に示す。これより、屋根面SSの中央粒径は13μmであり、また、屋

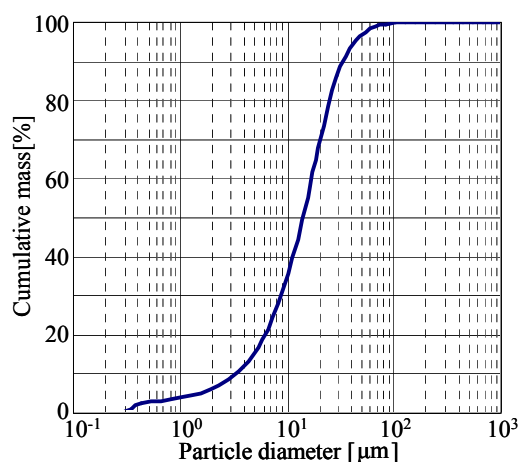


Fig.7 Grain-size distribution of roof deposits

屋根面SSの90%以上は30μm以下の微細粒径成分となっている。同様な分析をほぼ同時期に採取された6サンプルについて実施したところ、中央粒径は12～15μmとなり、上記とほぼ同じ計測結果が確認されている。屋根面SSの起源の大部分は大気降下物であると考えられるが、今回の調査地点では、その半分程度は10μm以下の浮遊粒子状物質（SPM）¹¹⁾起源であり、そのSPMの中でも粒径2～10μmの粗大粒子¹¹⁾が大部分を占める。また、屋根面SSに対する残りの半分の起源は、SPMよりも大きい径のエアロゾルからなるPM（Particulate Matter）であると考えられる。

3.3 屋根面SSとSPM沈着フラックスの相関性

このような屋根面SSと発生源である大気中の浮遊物質

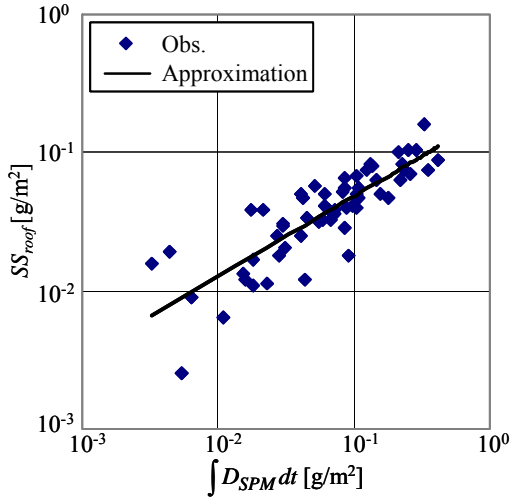


Fig. 8 Relationship between SS_{roof} and $\int D_{SPM} dt$.

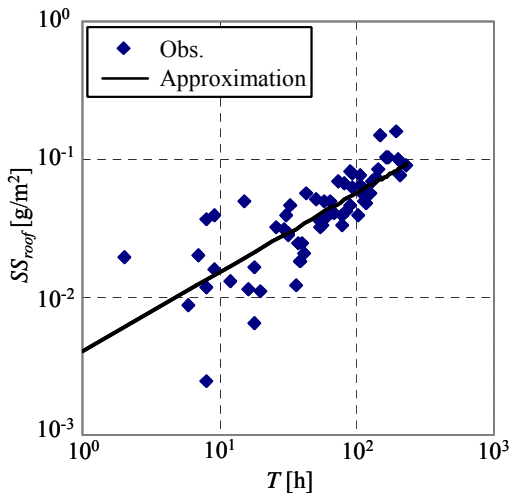


Fig. 9 Relationship between SS_{roof} and antecedent fine-weather hour T .

濃度との関係性を調べるために、SPMの時系列データをFig.6(c)の細線で示している。ここでのSPMは解析対象である柏市における7地点の計測結果の平均値である。また、前述したように、屋根面SSの半分程度は $10\mu\text{m}$ より大きな粒径を持つPMから成るため、SPMとともにPMについても検討する必要があるが、PMに関する実測データは限定されており、本学周辺の観測地点ではPMは計測されていないので、ここでは、SPMデータのみを取り扱う。この図を見ると、屋根面SSと同様に、SPMも時間的に大きく増減し、最大で $0.15\text{mg}/\text{m}^3$ に達している。

SPMと屋根面SSを直接的に比較するために、屋根面へのSPM沈着量を算出する。SPM沈着フラックス D_{SPM} は、SPMと沈着速度 W_d の積として、次のように与えられる。

$$D_{SPM} = SPM * W_d \quad (1)$$

式(1)中の沈着速度 W_d には様々な実測データやモデル式が存在するが¹¹⁾、ここでは、静止空気中の沈降速度 W_0 に乱流拡散の効果を加算する次式を採用する¹²⁾。

$$W_d = W_0 + 0.006u \quad (2)$$

ここで、 u は風速であり、上式中の速度の単位は全てm/sである。また、沈降速度 W_0 に関しては、前節の屋根面SSの粒径分布を考慮して粒径 $10\mu\text{m}$ としてストークス式より得られる $W_0 = 3.1 \times 10^{-3} \text{m/s}$ という値を採用する。屋根面SSはFig.7よりSPMとPMの沈着フラックスの累積値の和に相当すると考えられるが、ここではSPMデータしか収集されていないので、SPM沈着フラックスの累積値 $\int D_{SPM} dt$ を算出した結果をFig.6 (c) 中に太線で示す。ここでは、降雨が観測された直後に累積値 $\int D_{SPM} dt$ を便宜的に0として、累積値 $\int D_{SPM} dt$ を計算している。これを見ると、屋根面SSとSPM沈着フラックスの累積値の時間変化は類似しており、両者の間には何らかの相関性があることがうかがえる。

この SS_{roof} と $\int D_{SPM} dt$ の関連性を定量的に検討するために、両者の相関図をFig.8に示す。ここでは、日雨量1mm以下の降雨が観測された直後から次の降雨時までのデータは図示されていない。これは、前述したように、日雨量1mm以下の降雨時では屋根面SSの全ては流出しないが、SPM沈着フラックスの累積値 $\int D_{SPM} dt$ は雨量に関わらず降雨後には0としているためである。この図を見ると、全体的には、SPM沈着フラックスの累積値 $\int D_{SPM} dt$ とともに屋根面SSは増加している。両者のデータに対して適用された近似式は以下ようになる。

$$SS_{roof} = 0.184 \left(\int D_{SPM} dt \right)^{0.580} \quad (3)$$

ここで、上式の SS_{roof} と $\int D_{SPM} dt$ には g/m^2 の単位を用いている。この式の相関係数は0.839であり、 SS_{roof} と $\int D_{SPM} dt$ は概ね良好な相関性を有していることが分かる。このように、式(3)を用いることにより、SPM沈着フラックスデータから屋根面SSを精度良く推定することが可能となる。なお、 SS_{roof} が小さい場合 (<約 $0.03\text{g}/\text{m}^2$) には、 SS_{roof} と $\int D_{SPM} dt$ の間にはデータのバラツキがやや目立つ。これは、降雨直後にSPM沈着フラックスの累積値を便宜的に0としているためであるが、屋根面SSが非常に小さいときの結果であるため、これらのバラツキはここでは大きな問題とならないと考えられる。

SPM沈着フラックスの累積値を用いて屋根面SSを推定する式(3)には、SPMと先行晴天時間 T (直前の降雨からの経過時間) の効果が反映されているが、両者の寄与率は不明である。そこで、屋根面SSと先行晴天時間 T に関する相関図をFig.9に示す。これを見ると、 SS_{roof} と T の間にはデータのバラツキが大きい、次の近似式が得られた。

$$SS_{roof} = 0.00417 T^{0.574} \quad (4)$$

ここで用いられている単位は、 SS_{roof} には g/m^2 、 T にはhourである。この SS_{roof} と T の間の近似式に対する相関係数は0.768であり、 SS_{roof} と $\int D_{SPM} dt$ の場合 (=0.839) よりも小さいことが分かる。以上のことから、精度良く屋根面SSを推定する上では、先行晴天時間のみでは不十分であり、先行晴天時間とSPMの影響を加味したSPM沈着フラックスの累積値 $\int D_{SPM} dt$ を用いる必要性が示唆された。

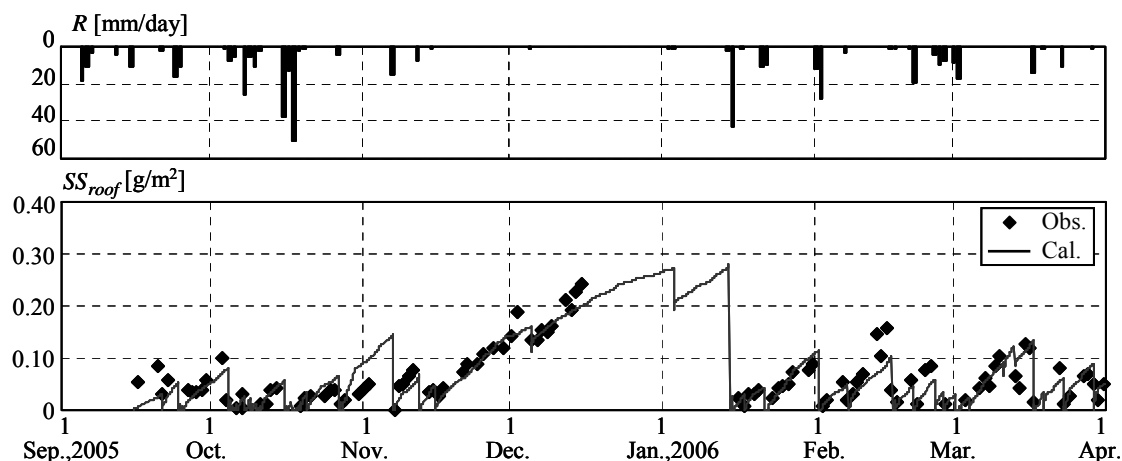


Fig. 10 Comparison of temporal variations of the calculated and observed SS_{roof} .

時々刻々のSPM沈着フラックスデータから、式(3)を用いて屋根面SSを推定した結果をFig.10に示す。ここでは、降雨量が1mm以下のときには、降雨時における屋根面SSの減少率(降雨前後の屋根面SSの差を降雨前の値で除したもの)を実測値より0.3と与えて、屋根面SSを評価している。これを見ると、SPMデータを考慮した式(3)による屋根面SSの推定結果は実測値と良好に一致していることが分かる。このように、式(3)を用いることにより、SPM等の大気環境データから、晴天時を含む屋根面SSの時間変化や降雨時における屋根面SSの流出量を推定することが可能となる。さらに、式(3)は大気環境データと屋根面SSを直接的に関係付けているため、屋根面を含む面源負荷削減を行う上で、大気環境の改善目標を定量的に示すことが可能となると考えられる。

4. まとめ

1) 晴天時を含む屋根面堆積負荷の時間変動特性を捉えるために、模型屋根を用いて、模擬的に降雨状況を簡便に再現した形で屋根面堆積物を採取する、という一種の模擬降雨法⁸⁾に基づく調査を半年間ほぼ毎日実施した。本調査法は、実降雨法と異なり晴天時における調査が可能であり、また、ブラシ等を用いる堆積物採集法と異なり降雨時に流出する成分を簡便に採取できる方法となっている。

2) 屋根面SSは時間的に大きく増減し、降雨時に大幅に減少し、次の降雨までの間に緩やかに増加する、という時間変動特性が見られた。また、降雨時における屋根面SSの減少量としては、降雨量が多いときには屋根面SSの大部分が流出するのに対して、降雨量が少ないときには屋根面SSの3割程度しか流出しないことが判明した。

3) 屋根面SSとSPM沈着フラックスの累積値の間には有意な相関関係(相関係数0.839)が得られ、発生源であるSPMから屋根面SSを精度良く評価できることが示された。また、屋根面SSを高精度に推定するには、先行晴天時間のみでは不十分であり、先行晴天時間とSPMの影響を加味したSPM沈着フラックスの累積値を用いる必要性が示唆された。

なお、本論文では亜鉛メッキ銅版製の模型屋根を使用して調査を実施したが、今後は、様々な材質や設置角度の屋根における堆積負荷調査を実施する予定である。

謝辞

本調査を行う際には、東京理科大学理工学部土木工学科水理研究室学生諸氏には多大なる御助力を頂いた。また、水質分析の際に、同学科出口浩教授に様々な便宜を図って頂いた。粒径分析を行う際には、東京大学大学院新領域創成科学研究科環境学専攻鯉淵幸生講師に御協力して頂いた。本研究の一部は、科学研究費補助金基盤研究(C)(2)(研究代表者:二瓶泰雄)、下水道振興基金研究助成金(研究代表者:二瓶泰雄)によるものである。ここに記して謝意を表す。

(原稿受付 2006年6月2日)

(原稿受理 2006年10月13日)

参考文献

- 1) 山田淳(2000) 面源負荷—その現状と課題—, 環境技術, **29**(7), 496-501.
- 2) 和田安彦(1990) ノンポイント汚染源のモデル解析, 214pp., 技報堂出版, 東京.
- 3) 古米弘明(2002) 都市域の雨天時汚濁負荷流出解析の現状と課題, 水環境学会誌, **25**(9), 524-528.
- 4) 武田育郎(2001) 水と水質環境の基礎知識, 198pp., オーム社, 東京.
- 5) 和田安彦(1985) 非特定汚染源負荷の流出量とその特性, 環境技術, **14**(1), 97-101.
- 6) 嶋津暉之, 和波一夫(1997) 雨水の地下浸透に関する研究(その2)—各種雨水排水の水質と流出特性—, 東京都環境科学研究所年報, 256-268.
- 7) 井上弥九郎, 松原誠, 榎原隆, 山下洋正(2000) 屋根雨水の水質特性, 土木技術資料, **42**(10), 24-29.
- 8) 二瓶泰雄, 砂田岳彦, 水野智之(2006) 模擬降雨流出水採取法に基づく路面塵埃環境の時間的・空間的変動特性の把握, 水環境学会誌, **29**(5), 261-268.
- 9) (社)日本下水道協会(1997) 下水試験方法上巻—1997年度版—, 116-118, 東京.
- 10) <http://w-soramame.nies.go.jp/>.
- 11) 浮遊粒子状物質対策検討会(1997) 浮遊粒子状物質汚染予測マニュアル, 東洋館出版社, 398p., 東京.
- 12) 北林興二, 横山長之, 松本和久(1983) ふんじん拡散シミュレーション, 公害, **18**(5), 325-345.