金網ウィックの有効熱伝導率*

井村英昭^{*1}, 小佐井博章^{*1}, 高島一介^{*2}

The Effective Thermal Conductivity of Screen Wicks

Hideaki IMURA, Hiroaki KOZAI, and Kazusuke TAKASHIMA

An experimental study was performed on the effective thermal conductivity of screen wicks saturated with a liquid. A planar heat pipe was employed to determine the effective thermal conductivity, and its value was calculated from the heat transfer coefficient in the condenser of the heat pipe positioned horizontally. A comparison of the existing correlations with the present experimental data indicated that the effective thermal conductivity of screen wicks could be predicted by Maxwell's equation derived for the case where wick materials (or screens) were dispersed in working liquids. It was also found that, in predicting the effective thermal conductivity by Maxwell's equation, the thickness and porosity of multilayer screen wicks had to be estimated accurately by taking account of the intermeshing between screen layers.

Key Words: Thermal Conduction, Effective Thermal Conductivity, Screen Wick, Heat Pipe, Porosity

1. ま え が き

宇宙空間において、高性能熱伝達素子としてヒートパイプの優れた伝熱特性が実証されて以来、地上用機器への応用が数多く提案され、実用化が進められている^{(1)~(3)}。ヒートパイプによって伝達される熱は、その蒸発部および凝縮部において作動液を含んだウィック層を通過しなければならず、これが温度降下の原因となる。したがって、ヒートパイプの伝熱性能を把握するためにはウィックの有効熱伝導率を正確に見積もることが重要である。

Gorring-Churchill⁽⁴⁾は異なる2成分からなる物質の有効熱伝導率に関して、これらが直列または並列に配置された二つの極限の場合を考え、次式を提出した。

$$\lambda_e = \lambda_l \lambda_s / \{ \epsilon \lambda_s + (1 - \epsilon) \lambda_l \} \quad (1)$$

$$\lambda_e = \epsilon \lambda_l + (1 - \epsilon) \lambda_s \quad (2)$$

Maxwell⁽⁵⁾は互いに干渉しない不規則な大きさの円柱の不規則な配列に基づいて、次式を導いた。

$$\lambda_e = \lambda_c \frac{\lambda_c + \lambda_d - \phi(\lambda_c - \lambda_d)}{\lambda_c + \lambda_d + \phi(\lambda_c - \lambda_d)} \quad (3)$$

ここで、作動液中にウィック材(金網)が分散されていると考えると、 $\lambda_c = \lambda_l$, $\lambda_d = \lambda_s$, $\phi = 1 - \epsilon$ となり、式(3)は次式のようなになる。

$$\lambda_e = \lambda_l \frac{\lambda_l + \lambda_s - (1 - \epsilon)(\lambda_l - \lambda_s)}{\lambda_l + \lambda_s + (1 - \epsilon)(\lambda_l - \lambda_s)} \quad (4)$$

Dunn-Reay⁽¹⁾およびChi⁽²⁾は流体中に不連続物質が分散している場合、式(4)が適用できるというGorring-Churchill⁽⁴⁾の整理結果をもとに、金網ウィックの有効熱伝導率の予測式として、式(4)を推奨している。しかし、彼ら⁽⁴⁾の研究では空気、二酸化炭素、ヘリウムおよびフロン内のガラス繊維などのデータと式(4)との比較は行われているが、分散体として金網を用いた場合のデータとの比較はなされていない。一方、ウィック材中に作動液が分散されていると考えると、 $\lambda_c = \lambda_s$, $\lambda_d = \lambda_l$, $\phi = \epsilon$ と置くことによって、式(3)は次式となる。

$$\lambda_e = \lambda_s \frac{\lambda_s + \lambda_l - \epsilon(\lambda_s - \lambda_l)}{\lambda_s + \lambda_l + \epsilon(\lambda_s - \lambda_l)} \quad (5)$$

大島ら⁽³⁾はDunn-ReayおよびChiとは逆に、式(5)を金網ウィックの有効熱伝導率の予測式として推奨している。Dul'nev-Muratova⁽⁶⁾は繊維状物質の有効熱伝

* 昭和61年5月28日 第23回日本伝熱シンポジウムにおいて講演、原稿受付 昭和62年12月17日。

^{*1} 正員、熊本大学工学部 (〒860 熊本市黒髪2-39-1)。

^{*2} 正員、九州松下電器(株) (〒812 福岡市博多区美野島4-1-62)。

導率に関して、解析的に次式を求めた。

$$\lambda_e = \lambda_s \left\{ c^2 + \nu(1-c)^2 + \frac{2\nu c(1-c)}{\nu c + 1 - c} \right\} \dots\dots\dots (6)$$

ここで、 $\nu = \lambda_l / \lambda_s$, $c = 0.5 + B \cos(\varphi/3)$ であり、 φ および B の値は次式で与えられている。

$$\left. \begin{aligned} 0 \leq \varepsilon \leq 0.5 \text{ のとき } & \varphi = \cos^{-1}(1-2\varepsilon), B = -1 \\ 0.5 < \varepsilon \leq 1 \text{ のとき } & \varphi = \cos^{-1}(2\varepsilon-1), B = 1 \\ 270^\circ \leq \varphi \leq 360^\circ & \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (7)$$

Singh ら⁽⁷⁾は焼結繊維金属ウィックの有効熱伝導率に関して、次の実験整理式を提出した。

$$\lambda_e = \lambda_s \left\{ 1 - \varepsilon + \frac{\lambda_l}{\lambda_s} \varepsilon \exp \left(1 - \sqrt{\frac{\lambda_l}{\lambda_s}} \right)^b \right\} \times \exp \left\{ -\varepsilon \left(1 - \sqrt{\frac{\lambda_l}{\lambda_s}} \right)^b \right\} \dots\dots\dots (8)$$

ここで、 $b = 20\sqrt{\lambda_l/\lambda_s}$ である。

しかし、金網ウィックの有効熱伝導率に関する研究はきわめて少なく⁽⁸⁾⁽⁹⁾、これらの予測式に対して、十分な評価は行われていない。師岡ら⁽⁸⁾は円筒形ヒートパイプを用いて、凝縮部より得られた金網ウィックの有効熱伝導率と Dunn-Reay および Chi が推奨している Maxwell の式(4)との比較から全般的に予測値が実測値より低くなる結果を示した。しかし、師岡らは n 層重ねた金網ウィックの厚さを金網1層の厚さの n 倍と仮定しており、ウィック厚さの決定に疑問がある。また、円筒形ヒートパイプにおいては重力の影響によって、円周方向の液膜厚さが一様でないと考えられ、有効熱伝導率を正確に見積もるデータとしては妥当とは言えない。Abhat-Seban⁽⁹⁾はヒートパイプをモデル化した装置を用い、水およびアセトンを使用して蒸発部の熱伝達係数から、金網ウィックの有効熱伝導率を求めて、実測値が並列モデルの式(2)よりも直列モデルの式(1)に近いことを示した。しかし、この装置による実験では蒸発部で気液界面の後退が考えられ、正確に有効熱伝導率を測定するには無理がある。

そこで、本研究では周方向の重力の影響がない平板形ヒートパイプを製作し、ウィック厚さを外部より測定できる装置とした。また、作動液体として純水を、ウィックにステンレス鋼製金網を使用して、金網ウィックの有効熱伝導率を凝縮部の熱伝達係数の測定により求めた。さらに、実験データと先に述べた各種の予測式との比較検討を行い、それらの予測式の妥当性について明らかにした。

2. 記 号

A, A_i : 伝熱面および気液界面の面積 m^2

d : 金網の線径 m または inch

L : 蒸発潜熱 J/kg

N : メッシュ数 $1/\text{inch}$

n : 金網の層数

q_c : 凝縮部伝熱面の平均熱流束 W/m^2

R : ガス定数 $\text{J/(kg}\cdot\text{K)}$

S : 金網の縮れ係数 ($=1.05$)

T_v, T_{wc} : 蒸気温度および凝縮部伝熱面温度 K

ΔT_{sc} : 過冷度 $= T_v - T_{wc}$ K

w : 金網の目開き m

α_c : 凝縮部の熱伝達係数 $\text{W/(m}^2\cdot\text{K)}$

α' : 蒸発・凝縮係数 ($=0.03$)

δ : 液膜または金網の厚さ m

δ_w : ウィックの厚さ m

ε : 空けき率

θ : ヒートパイプの水平からの傾斜角 deg°

λ_c, λ_d : 媒体および分散体の熱伝導率 $\text{W/(m}\cdot\text{K)}$

λ_e : 有効熱伝導率 $\text{W/(m}\cdot\text{K)}$

λ_l, λ_s : 液体およびウィック材料の熱伝導率 $\text{W/(m}\cdot\text{K)}$

ρ_l, ρ_v : 液体および蒸気の密度 kg/m^3

ϕ : 分散体の体積率

添 字

1: 1層

3. 実験装置および方法

実験装置の概略を図1に示す。また、ヒートパイプ

図1 実験装置の概略

の蒸発部の断面図を図2に示す。本実験に使用した平板形ヒートパイプは伝熱面の長さが600 mm、幅が70 mmで、黄銅製伝熱板上に伝熱面と同じ長さを持つ、高さが15 mmの内ケースをかぶせることによって通路が形成され、通路の高さは20 mmである。内ケースの外側に外ケースを設け、内ケース内面での蒸気の凝縮を防ぐために両ケースの間に蒸気温度に等しくなるように調節された水を循環させた。この内および外ケースは透明なポリカーボネイト樹脂で製作し、読取り顕微鏡による側面からのウィック厚さの測定とヒートパイプ内部の観察を可能にした。ヒートパイプ内部には図2に示すように、上部にステンレス鋼製板ばねを取付けたウィック押え板によって、ウィックが伝熱面に密着するように張られている。ウィック押え板はヒートパイプ長さ方向に31個等間隔に設置されており、蒸気流の圧力損失ができるだけ小さくなるように2個の長穴が開けられている。ヒートパイプ内面は正常な作動を行わせるために中性洗剤とエチルアルコールを用いて洗浄し、ウィックおよびウィック押えは中性洗剤とアセトンで洗浄した後、さらに純水中で煮沸した。

伝熱板は一端から200 mmが蒸発部、他端より300 mmが凝縮部、その中間の100 mmが断熱部である。蒸発部(図2)は長さ50 mmの4個のヒータブロックを伝熱板下面に取付けて電気加熱される。加熱用電源は定電圧装置を通し、各ヒータに等熱負荷を供給するようにしゅう動変圧器によって調節した。各ヒータブロックの下部には下方への熱損失をできるだけ少なくするために、上面と下面に銅-コンスタンタン熱電対が埋め込まれたフェノール樹脂板をはさんで補償用ヒータを設けている。凝縮部は伝熱板下面に取付けられた冷却ジャケットに温度が調節された一定流量の水を流して冷却される。ヒートパイプの下部は周囲空気への熱損失を少なくするために岩綿によって十分断熱されている。伝熱面温度は蒸発部、断熱部および凝縮部

図2 平板形ヒートパイプの詳細

にそれぞれ20, 4および13箇所伝熱面より9.75 mmの位置に銅-コンスタンタン熱電対を埋め込んで測定し、内面までの補正を行って求めた。蒸気温度は蒸発部、断熱部および凝縮部でそれぞれ1箇所測定した。

本実験に使用したウィックの特性を表1に示す。金網の線径 d および目開き w の測定には万能測定顕微鏡を用いた。ヒートパイプに装着された多層金網ウィックの厚さは図3に示すように側面より読取り顕微鏡を用いて、各ウィック押えに設けたポンチこん跡の位置をウィック装着前後に測定し、その移動量の平均値として求めた。空けき率 ϵ の値は単層金網の場合、メスシリンダ内のエチルアルコール中に試料を沈めたときの体積増加量と試料の見掛けの体積から求め、多層金網の場合は金網の重なりを考慮した次式を用いて計算した。

$$\epsilon = 1 - \{n\delta_i(1 - \epsilon_i)/\delta_w\} \dots \dots \dots (9)$$

実験前に真空ポンプでヒートパイプ内の空気を十分取り除いた後、図1に示したバルブ⑥にビュレットを取付けてウィック空けき体積の1.05倍程度の作動液体を封入した。次に、ウィックを水平にして十分プライミングを行った後、傾斜角、蒸気温度および熱負荷を変えて実験を行った。

4. 実験結果と考察

図4(a)および図4(b)に水平モード($\theta=0^\circ$)における実験結果を熱流束 q_c と過冷度 ΔT_{sc} の関係で示す。パラメータは蒸気温度である。ここで、 ΔT_{sc} は蒸

表1 ウィック特性

Mesh	Sieve opening w [μm]	Wire diameter d [μm]	Layers	Thickness δ [μm]	Porosity ϵ
28	583.5	309.1	1	732	0.746
			2	1133	0.672
48	303.7	219.7	1	477	0.673
			2	744	0.581
			4	811	0.615
			4	1499	0.584
100	146.5	108.4	1	225	0.671
			1	341	0.566
			2	348	0.575
			4	658	0.550
			4	660	0.552
			4	684	0.567
			4	696	0.575
			8	719	0.588
200	78.1	50.7	1	1493	0.603
			8	1672	0.646
			8	137	0.734
				632	0.539
				686	0.574

図3 ウィック厚さの測定方法

気温度と伝熱面温度のそれぞれの算術平均の差である。なお、以下の図および表で、使用した金網ウィックは(メッシュ数)(材質)-(層数)のように表し、(材質)中のSはステンレス鋼製金網を意味している。これらの図において、各蒸気温度に対する実験データはほぼ傾き1の直線上にあり、凝縮部熱伝達係数 α_c は熱流束に依存せず、蒸気温度ごとにほぼ一定の値を示す。したがって、 $\theta=0^\circ$ の場合、凝縮部では q_c に関係なく、一定厚さの液膜が形成されていると考えられる。穴戸ら⁽¹⁰⁾は電気容量法によりウィック内の作動液分布の測定を行い、水平モードでの凝縮部液膜厚さは封入量によって変化するが、長さ方向にほとんど一定であるという結果を得ている。以上の結果および本実験ではウィック空けき体積の1.05倍の作動液を封入したことから、凝縮部ウィックは作動液で飽和されていると考えてよい。また、凝縮部熱伝達係数 α_c は蒸気温度 T_v の増加とともに若干大きくなることが、図4からわかる。

図5は q_c と ΔT_{sc} の関係で傾斜角の影響を示す。傾斜角 θ は蒸発部が凝縮部より下方にある場合(ボトム

ヒートモード)正であり、逆の場合(トップヒートモード)負である。実験データはトップ、水平、ボトムヒートモードの順に上方に位置している。すなわち、 α_c が大きくなっている。トップヒートモード($\theta < 0^\circ$)の場合、凝縮部端に液だまりが現れたため α_c は小さくなり、ボトムヒートモード($\theta > 0^\circ$)の場合は作動液が重力の影響によってウィック内へ後退したために α_c は大きくなったと考えられる。また、ボトムヒートモードのデータの傾きは1より小さいので、 α_c は q_c の増加とともに徐々に減少し、これらのデータは水平モードのデータの延長線上に近づいている。これは q_c の増加につれて、凝縮部ウィック内の液膜が徐々に厚くなっていくためである。以上の結果から、以下においてはウィックが作動液で完全に満たされていると考えられる水平モードのデータから有効熱伝導率 λ_e を求める。

ヒートパイプの凝縮部における熱伝達機構は作動液を含んだウィックを通しての熱伝導と気液界面における凝縮であると考えられ⁽⁸⁾⁽¹¹⁾、 α_c は次式で表される。

$$\alpha_c = 1 / \left\{ \frac{\delta}{\lambda_e} + \left(1 - \frac{\rho_v}{\rho_l} \right) \frac{T_v \sqrt{2\pi R T_v}}{\rho_v \alpha' L^2} \frac{A}{A_i} \right\} \quad (10)$$

したがって、この式より λ_e の値を求めるためには液膜厚さ δ および伝熱面と気液界面の面積比 A/A_i を決定しなければならない。水平モードの場合、前述のように、凝縮部ウィックは作動液で飽和されていると考えられるので、 $\delta = \delta_w$ 、 $A/A_i = 1$ と置くことができ、有効熱伝導率 λ_e は α_c に関する実験データより次式を用いて算出される。

$$\lambda_e = \delta_w / \left\{ \frac{1}{\alpha_c} - \left(1 - \frac{\rho_v}{\rho_l} \right) \frac{T_v \sqrt{2\pi R T_v}}{\rho_v \alpha' L^2} \right\} \quad \dots (11)$$

ここで、水の場合の蒸発・凝縮係数 $\alpha' = 0.03 \sim 0.04$ で

(a) 48 メッシュ, 4 層

(b) 100 メッシュ, 8 層

図4 蒸気温度の影響

図5 傾斜角の影響

表 2 有効熱伝導率の予測値と実測値の比較

Wick	Porosity ϵ	λ_e [W/(m·K)]						
		Experiment	Series Eq. (1)	Parallel Eq. (2)	Maxwell Eq. (4)	Maxwell Eq. (5)	Dul'nev Eq. (6)	Singh Eq. (8)
28S-2	0.672	1.269	0.925	5.772	1.185	3.802	3.108	4.518
48S-2	0.581	1.447	1.060	7.198	1.435	4.903	3.981	5.786
48S-4	0.584	1.419	1.055	7.151	1.426	4.865	3.951	5.744
100S-2	0.575	1.481	1.071	7.292	1.454	4.980	4.042	5.873
100S-4	0.552	1.464	1.112	7.652	1.530	5.279	4.279	6.211
100S-8	0.603	1.361	1.024	6.853	1.369	4.626	3.761	5.471
200S-8	0.539	1.553	1.137	7.856	1.575	5.452	4.417	6.403

図 6 有効熱伝導率と空けき率の関係

図 7 有効熱伝導率の式(4)による計算値と実測値の比較

あることが報告されている^{(12)~(15)}ので、本研究では師岡ら⁽⁸⁾⁽¹¹⁾と同様に、甲藤⁽¹²⁾による値 0.03 を用いた。また、物性値は蒸気温度に対する値を使用した。

表 2 に、蒸気温度 $T_v=40^\circ\text{C}$ の場合の有効熱伝導率 λ_e の実測値と前述した各種の予測式による計算値との比較を示す。表 2 からわかるように、実測値は直列モデルの式(1)と並列モデルの式(2)の値の間にあり、式(1)は実測値より約 30% 低い値を、式(2)は約 5 倍大きい値を示す。分散体として金網を考えた場合の Maxwell の式(4)の値は実測値ともっともよく一致している。しかし、作動液を分散体と考えた場合の式(5)はかなり高い値を示す。したがって、金網を重ねた多層金網ウィックは金網内に作動液が分散しているのではなく、作動液中に金網が分散していると考えべきである。一方、繊維状物質に対する Dul'nev-Muratova の式(6)および焼結繊維金属に対する Singh らの式(8)の予測値はいずれも実測値よりかなり高い値を示している。これは、多層金網ウィックが繊維状物質や焼結繊維金属ウィックに比べて固相間の接触面積がかなり小さいことを示している。

図 6 は蒸気温度 $T_v=40^\circ\text{C}$ の場合の有効熱伝導率 λ_e と空けき率 ϵ の関係を示したものである。図 6 中の実線および破線はそれぞれ式(4)および式(1)を示し、式(2)、(5)、(6)および式(8)は大きな値を与えるので、記入していない。また、縦棒はデータのばらつきを示し、最大 $\pm 6\%$ 程度である。図 6 から、 λ_e の値

は ϵ の値の増加とともに減少し、式(4)とかなりよく一致していることがわかる。そこで、金網のメッシュ数、層数、空けき率および蒸気温度を変えて得られたすべての実測値 $\lambda_e(\text{Exp.})$ と式(4)による計算値 $\lambda_e(\text{Cal.})$ の比較を図 7 に示す。図 7 からわかるように、有効熱伝導率 λ_e の実測値は計算値とほぼ $\pm 10\%$ の範囲内で一致している。なお、式(11)の λ_e に Maxwell の式(4)を代入して変形すると次式となる。

$$q_c = \Delta T_{sc} / \left\{ \frac{\delta_w}{\lambda_l} \frac{\lambda_l + \lambda_s + (1-\epsilon)(\lambda_l - \lambda_s)}{\lambda_l + \lambda_s - (1-\epsilon)(\lambda_l - \lambda_s)} + \left(1 - \frac{\rho_v}{\rho_l} \right) \frac{T_v \sqrt{2\pi R T_v}}{\rho_v \alpha L^2} \right\} \quad (12)$$

図 4 および図 5 に式(12)を実線で示しているが式(12)と実験データは定性的にも定量的にも一致しており、有効熱伝導率の算出に用いた式(11)が妥当であることがわかる。

また、空けき率 ϵ の値として、金網の重なりを考慮した式(9)の代わりに、従来用いられている Marcus⁽¹⁶⁾によって提案された式(13)による値を用いた場合、師岡ら⁽⁸⁾の結果と同様に、実測値は式(4)による計算値より全般的に高くなった（なお、金網の縮れ係数 S の値としては従来から用いられている値 1.05 を用いた）。

$$\epsilon = 1 - \pi S N d / 4 \quad (13)$$

これは Marcus の式(13)が金網間の重なりを考慮していないために、重なりを考慮した式(9)よりも大きい値(本実験の範囲では、1.00~1.25 倍の値となった)を与えるためである。このことから、金網ウイックの有効熱伝導率 λ_e を予測する場合、金網間の重なりを考慮して空げき率を求める必要があり、そのためにはウイック厚さを正確に測定しなければならないことがわかる。なお、ウイック厚さが有効熱伝導率の値に直接関係してくるので、厚さが伝熱面上で一様となるように、3章で述べた各ウイック押えにおける測定値がそれらの算術平均の $\pm 5\%$ 以内になるまで組立および測定を繰返した。

5. 結 論

平板形ヒートパイプを用いて、作動液体として純水を、ウイックにステンレス鋼製金網を使用し、ヒートパイプの凝縮部熱伝達係数より多層金網ウイックの有効熱伝導率を求めた。さらに、有効熱伝導率の実測値と各種の予測式との比較検討を行って、以下の結論が得られた。

(1) ウイック空げき体積の1.05 倍程度の作動液を封入した本実験においては、水平モードの場合、凝縮部ウイックは作動液で飽和されていると考えられる。ボトムヒートモードの場合は傾斜角が大きいほど、ウイック内液膜は薄くなり、凝縮部熱伝達係数は大きくなる。また、熱流束の増加とともに凝縮部ウイック内の液膜は徐々に厚くなり、熱伝達係数が減少して実験データは水平モードのデータの延長線上に近づく。

(2) 多層金網ウイックの有効熱伝導率の予測式としては作動液中に金網が分散していると考えた場合の

Maxwell の式(4)が適当である。

(3) Maxwell の式(4)を用いて有効熱伝導率を予測する場合、空げき率を正確に見積もる必要があり、そのためには金網の重なりを考慮すべきである。

終わりに、本実験に協力された当時熊本大学学生 石田真一、柏田茂の両君ならびに実験装置の製作に多大のご協力をいただいた熊本大学工学部 勝尾真次郎技官に謝意を表する。

文 献

- (1) Dunn, P. D. and Reay, D. A., *Heat Pipes*, (1976), 232, Pergamon Press.
- (2) Chi, S. W., *Heat Pipe Theory and Practice*, (1976), 213, McGraw-Hill.
- (3) 大島・ほか 2 名, ヒートパイプ工学, (昭 54), 220, 朝倉書店.
- (4) Goring, R. L. and Churchill, S. W., *Chem. Eng. Prog.*, 57-7 (1961), 53.
- (5) Maxwell, J. C., *A Treatise on Electricity and Magnetism*, (1954), 435, Oxford Univ. Press.
- (6) Dul'nev, G. N. and Muratova, B. L., *RTS* 4881, (1968), Boston SPA, Yorkshire.
- (7) Singh, B. S., ほか 2 名, *Int. J. Heat Mass Transf.*, 16-1 (1973), 145.
- (8) 師岡・ほか 2 名, 機論, 47-414, B (昭 56), 351.
- (9) Abhat, A. and Seban, R. A., *Trans. ASME, J. Heat Transf.*, 96-3 (1974), 331.
- (10) 宍戸・ほか 3 名, 化学工学論文集, 9-6 (昭 58), 650.
- (11) 柴山・師岡, 機論, 45-389, B (昭 54), 110.
- (12) 甲藤, 伝熱概論, (昭 52), 237, 養賢堂.
- (13) Silver, R. S., *Engineering*, 161 (1946), 505.
- (14) Sukhatme, S. P. and Rohsenow, W. M., *Trans. ASME, J. Heat Transf.*, 88-1 (1966), 19.
- (15) Collier, J. G., *Convective Boiling and Condensation*, (1972), 310, McGraw-Hill.
- (16) Marcus, B. D., *NASA CR-2018* (1972).