音響定在波による液中気泡の並進運動制御システムの開発*

阿 部 豊^{*1}, 渡 辺 正^{*2}
足 立 和 成^{*3}, 山 本 憲 一^{*4}

Development of the Translational Motion Control System for Bubble in Liquid by Acoustic Standing Wave

Yutaka ABE^{*5}, Tadashi WATANABE,
Kazunari ADACHI and Norikazu YAMAMOTO^{*5} Yamagata University, Dept. of Mechanical Systems Engineering,
4-3-16 Jonan, Yonezawa, Yamagata, 992-8510 Japan

It is expected that pure and high performance materials could be manufactured in space under the micro-gravity environment. However, if bubbles are initially trapped in the molten material, they cannot escape from the material under the micro-gravity condition and could adversely affect the product quality. In the present study, an ultrasonic acoustic standing wave field is adopted to control the bubble motion under the micro-gravity environment. At first, the experiment with a single ultrasonic transmitter in a fluid with a free surface was conducted to design and develop new horn. It was experimentally confirmed that the bubble can be held stable and stationary in the ultrasonic wave field with new horn. Next, the bubble control experiment was conducted by using dual ultrasonic vibrators. The ultrasonic acoustic standing wave field was moved by shifting the phase difference between the dual ultrasonic transmitters. It was experimentally confirmed that the present technique is applicable to control the bubble position in liquid. Finally, the experimental results were also confirmed by numerically solving the Rayleigh-Plesset equation and bubble motion equation in the translational direction.

Key Words: Micro-Gravity, New Material, Bubble Control, Ultrasonic Acoustic Standing Wave, Phase Shift, Numerical Simulation, Rayleigh-Plesset Equation, Translational Motion

1. 緒 言

これまで、液体中の気泡の並進運動については、流量や差圧などを介した間接的な制御がおこなわれてきており、個々の気泡の並進運動を直接制御することは行われてきていない。これは、液体中の気泡の気液界面に変形や振動さらには回転などの運動が発生するとともに流体場より受ける付加質量の効果などによって、固体の運動とは異なる複雑現象が発生することによって、特別な困難が発生するためと考えることができる。しかしながら、今後、様々な産業分野において、液体中の気泡を直接制御する技術を確立することが、強く要求されてくることが予想される。

微小重力環境下では、流体内の密度差などに起因する浮力が働かないため対流が起らず、また沈殿による分離も発生しない。このような特性を利用して、大型単結晶や均一な合金を製造することが考えられている。しかしながら、初期熔融状態において物質内に気泡が発生した場合、微小重力環境下では気泡はその場に留まることになり、製造される材料の純度や強度等が劣化するなどの悪影響を及ぼすことになる。

また、ガラスの製造や樹脂の射出成型加工などの工程において発生する溶存気体の気泡は、製造品の品質に重大な影響を及ぼすことになる。すなわち、気泡を直接駆動・除去する技術の確立は、微小重力環境下や高粘度溶融体を用いた高機能・高純度材料の製造を行う上で必要不可欠である。

これまで、電場や磁場あるいは温度差などを利用して気泡を駆動することが試みられてきているが^{(1),(2)}、実用的な技術として確立されるまでには至っていない。本研究では、微小重力下における気泡挙動の制御手段として超音波の利用に注目し、その基礎技術を確立することを目的とした。

液体中の気泡と超音波に関する研究としては、音場と気泡半径との関係に関する研究⁽³⁾⁻⁽⁷⁾、ソナーによるキャビテーションの発生に関する研究^{(8),(9)}などがあるものの、気泡の並進運動を超音波によって制御しようとする研究はほとんど行われていない^{(10),(11)}。これは、超音波によって固体を浮遊制御する研究がかなり行われているのに対して⁽¹²⁾⁻⁽¹⁴⁾、際立った特徴となっている。その理由としては、以上で述べたように、①気液界面が存在すること、②その界面が変形や振動をすること、③そのため共振現象が発生すること、④気泡の合体や分裂が発生すること、さらには⑤気泡に対しては付加質量の効果が大きく働くことなど、液体中の気泡の取り扱いに特有の困難が伴うためであると考えられる。

本研究においては、まず単一超音波振動子を用いた実験装置を用いて、液体中の気泡を制御するために最適な超音波発

* 原稿受付 1999年8月20日。

^{*1} 正員, 山形大学工学部 (☎ 992-8510 米沢市城南4-3-16)。^{*2} 正員, 日本原子力研究所 (☎ 319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2-4)。^{*3} 山形大学工学部。^{*4} 学生員, 山形大学大学院。

E-mail: yutaka@mabeken3.yz.yamagata-u.ac.jp

生システムについての検討を行い、新しい超音波伝送体（ホーン）の開発を行った。次に、新たに開発したホーンをテスト部の上下に2つ接続した超音波駆動装置を作成した。その装置を用いて、2つの超音波振動子間の位相差を変化させることにより音響定在波を移動させた場合、音響定在波中に保持された気泡が、どのように駆動されるかについて実験的に検討した。最終的に、その実験結果に対して、気泡の振動と並進運動を考慮した数値解析を行い、気泡挙動に及ぼす音響定在波の影響について、実験と解析を照合することで定量的な評価を行った。

2. 新型ホーンの開発

2・1 実験装置 図1に単一超音波振動子を有する実験装置の概要図を示す。実験装置は、内径40mm、長さ300mmのガラス製円管、共振周波数14.58kHzのボルト締めランジュバン型超音波振動子、ホーンよりなる。テスト部に、超音波振動子の半波長の整数倍の水位に水を張り、テスト部下部に設置した超音波振動子から超音波を発生させると、液体と気体間の音響インピーダンスの違いによって、超音波は自由液面で反射され、ホーン先端と自由界面の間に音響定在波が形成される。図1の実験装置では、上方からハイドロフォンを挿入しテスト部内の音圧分布を計測することができる。この実験装置を用いて、液中の気泡を制御するために最適な超音波発生システムについての検討を行うこととした。特に、直接の音響放生源として重要となるホーンの最適設計を、図1の実験装置を用いて行うこととした。

実験は、①テスト部に音響定在波を形成、②気泡が無い状態での音圧分布を計測した後、③注射器を用いてテスト部内に気泡を放出し、④その挙動をデジタルカメラを用いて観察した。実験では超音波の出力、水位、気泡径等をパラメータとして変化させ、得られた画像データを計算機による画像解析を行うことによって気泡挙動や位置等についての評価を行った。

Fig.1 Experimental apparatus

2・2 従来型ホーンを用いた実験結果 図2は、図1の実験装置を用いて行った実験結果の一例である。図2左には軸方向音圧分布の計測結果を、図2右には定在気泡の撮影結果を示す。音圧の最大値は約0.02MPaと小さいものの、約3mm程度の気泡が、音圧分布の節から腹に向かう位置に3個、定在していることが確認できる。

図2の実験で使用したホーンの形状を図3(a)に示す。図3(a)のホーンは通常使用されているステップ型ホーンである。材質は超音波振動子と同じジュラルミンとし、長さはジュラルミン中における音波の半波長の長さ175.7mmとした。これによって、ホーンの両端が超音波の振動の腹、ホーンを固定するためのフランジ部が節となる。

この従来型ホーンを用いた実験では、図2に示した以上の電力を供給しても、より大きな気泡を定在させることはできなかった。これは、液を蓄積するためのテスト部容器への音響エネルギーの逃げや超音波振動子とホーンとの間のパワーロスなど、図3(a)に示したホーンが液中気泡を制御するための最適設計となっていなかったためと考えられる。

Fig.2 An experimental result of stationary bubble by ultrasonic stranding wave

2・3 超音波伝送体の改良 液中気泡を駆動するために最も適したホーンを開発するために、様々な形状のホーンに対して、有限要素法を用いた解析⁽¹⁵⁾を行い、その中で最適と判断した形状のホーンを製作することとした。図3(a)は、フラットな形状のフランジを接続した旧型のホーンであり、図3(b)は、テスト部壁面への超音波の逃げを防止するためにフランジ部分に凹凸部を設けてばね構造にした新型のホーンの概要図である。図4は、有限要素解析に用いたメッシュ分割の一例である。図4に示す要素分割によって得られた解析結果の一例を図5に示す。図5は、超音波振動子と接

合するホーン下端面での変位でホーン中央部のフランジ上端面の変位を割った値を、フランジ付け根部を原点とした半径位置に対して示している。半径 62mm 付近に変位 0 となる位置があり、この位置を境に変位が逆位相から同位相に変わっている。図 5 より、旧型ホーンより新型ホーンのほうが、フランジ部での変位が、より少ないことがわかる。

また、ホーンの製作にあたって、ホーンと超音波振動子の接合面の研磨を従来の研磨剤番号 1500 番から、さらに細かい 4000 番で行うこととした。図 6 に、この二つの場合におけるホーンへの入力電力の値を示す。図 6 より、研磨を 4000 番で行ったホーンは 1500 番で行ったホーンに比べ、より高い電力が入力されていることが確認できる。このことから、より微細な研磨剤で接合面を研磨することで、接合面でのパワーロスを少なくし、より高い入力パワーを得ることができていることが分かった。

Fig.3 Configuration of the horns

Fig.4 Mesh configuration for the finite element analysis

Fig.5 Estimation of vibration at the fringe of the horns

Fig.6 Input power

2・4 改良後の実験結果 作製されたホーンを用いてテスト部内に音響定在波を形成、その中に注入した気泡の挙動を観測することによって新型ホーンの性能評価を行った。図 7(a)は図 3(a)の旧型ホーン、図 7(b)は図 3(b)の新型ホーンを用いた実験結果である。音圧分布測定の結果ならびにそのときの定在気泡の気泡静止位置とその画像を示している。いずれの場合もテスト部内でのホーン先端からの水位は 124mm、超音波振動子への入力電力は 10W であった。この入力電力は図 2 の場合よりはるかに大きな値である。同じ供給電力であっても定在波の腹の位置における最大音圧は、旧型ホーンで約 0.08MPa、新型ホーンで約 0.1MPa であり、旧型ホーンに比べ新型ホーンでは約 30%程度強い最大音圧を得ることができた。また、軸方向により一様な音圧分布であることが分る。また、定在気泡の径も、旧型ホーンでは、約 3mm 程度であるのに対して、新型ホーンでは、約 4mm 程度とより大きく、またより安定して定在していることを確認した。

(a) Original horn

(b) Modified horn

Fig.7 Sound pressure and stationary bubble position

Fig.8 Axial and radial distribution of sound pressure

図8は、新型ならびに旧型ホーンを用いて形成した音場の軸方向ならびに半径方向音圧分布の比較図である。気泡を注入しない状態で測定している。図8のように入力電力が10Wと大きい場合、軸方向音圧分布は、旧型ホーンで非均一となるのに対して、新型ホーンでは軸方向にほぼ均一な分布となっている。また、気泡を注入した場合の気泡定在位置での半径方向音圧分布は、新型ホーンを用いた場合に、より大きな音圧となっていた。図7に示したように新型ホーンによってより大きな気泡を安定して保持できた原因は、図8に示した音圧分布の違いによるものと考えられる。

3. 気泡駆動実験

3・1 超音波による液中気泡の駆動原理 図9に超音波による液中気泡の駆動原理の概要図を示す。図9(a)に示す様に、液体に満たされたガラス管の上下に超音波振動子とホーンを設置し、超音波を放射することによりガラス管内に音響定在波を形成させる。その後、その定在波中に気泡を注入すると、図7(a)に示すように音場中に気泡が定在する。次に、図9(b)に示す様に上下の超音波振動子の位相差を変化させることにより音響定在波を移動させる。実験では、音響定在波の移動に伴って、気泡の位置や気泡の径がどのように変化するかを観測した。

Fig.9 Experimental concept

3・2 実験装置 図10に、図9で示した駆動原理に基づいて作製した実験装置の概要図を示す。テスト部は内径22mmのガラス管からなり、上下部には発振周波数19.3KHzの超音波振動子をホーンを介して接続している。発信周波数を図1の実験装置より大きくしたのは、実際の微小重力実験装置搭載用に装置を小型化するためである。テスト部内のホーン間距離は104mmとした。計算機で作成された超音波振動子の駆動信号は、D/A変換器を通して電圧変動の正弦波信号に変化された後、電力増幅器によって増幅され、それぞれの超音波振動子へ入力される。この正弦波信号によって超音波振動子が駆動され、テスト部内に音響定在波が形成される。一旦、音響定在波形成した後、上下の超音波振動子に入力する信号の位相差を変化させ、音響定在波を図9に示すように移動させ、そのときの気泡挙動や位置をデジタルカメラによって撮影した。

Fig.10 Experimental apparatus

3・3 実験結果 図11は、上下二つの超音波振動子間に位相差を付けたときの気泡の位置変化を、画像とともに示したものである。気泡径は約2.4mm、超音波振動子への入力電圧は1.0W、超音波振動子の発振周波数は19.3KHzで、位相差は120°である。図11中の写真AおよびBは、それぞれ図11中の時刻AおよびBでの気泡の様子である。位相差のない0°の状態において、図中A点付近に定在していた気泡は、上下の超音波振動子間の位相差を0°から120°とヘシフトさせるとともに、約13mm上方のB点付近へと移動した。上方へ移動した気泡はオーバーシュートとアンダーシュートを繰り返した後、所定の位置に定在する結果となった。図12(a)および(b)は、上下の超音波振動子間の位相差を少しずつ変化させ、気泡の定在位置を測定した結果である。図12(a)は気泡を上方へ駆動した結果であり、図12(b)は下方へ駆動した結果である。上方へ駆動した図12(a)の場合には、位相差は30°づつ、下方へ駆動した図12(b)の場合には、その半分の15°づつ位相差を増加させた。その結果、気泡の大きさに関わらず、上方向ならびに下方向のいずれの方向へも駆動できることを確認した。駆動距離は、位相

差を 0° から 360° まで変化させた場合、約 39mm であった。実験装置テスト部に充填した約 20°C の水中に形成された定在波の節と節の間隔は、水中での音速を 1480m/s とすると、理論的には 38.3mm と評価される。このことから、位相差が 0° から 360° に変化する間、気泡は、音圧分布の始めの節の位置から次の節の位置まで移動したものと考えられる。図 12 の実験結果は、本システムによって、駆動方向や気泡径に関わらず、図 9 に示した駆動原理のとおり気泡を駆動できることを示すものと考えられる。

Fig.11 Bubble moving by phase shift

Fig.12 Bubble movement by phase shift

4. 解 析

4・1 解析モデル 図 12 に示した液中気泡の音場による並進運動を解析的に模擬するために、気泡の半径方向の運動と並進運動を連立して数値的に解析することとした。

まず、非圧縮性流体中の球形気泡の半径方向の運動は、以下の Rayleigh-Plesset の式で表されるものとした。

$$R \frac{d^2 R}{dt^2} + \frac{3}{2} \left(\frac{dR}{dt} \right)^2 + \frac{4\mu}{\rho_l R} \frac{dR}{dt} = \frac{1}{\rho_l} \left(P_g - P_l + P_v - \frac{2\sigma}{R} \right) \quad (1)$$

ここで、 R は気泡の半径、 μ 、 ρ_l は周辺流体の粘性係数及び密度、 P_g は気泡内の気体の圧力で気泡内で一定と仮定、 P_l 、 P_v はそれぞれ流体中の圧力場、気泡内の蒸気圧、 σ は表面張力である。

次に、気泡の並進運動を、次式で表すこととした。

$$m_b \frac{du_b}{dt} = -V \frac{dP_l}{dx} - \frac{1}{2} \rho_l \frac{d}{dt} (V u_r) - \frac{1}{2} \rho_l u_r^2 A C_d + V (\rho_l - \rho_g - \rho_v) \cdot g \quad (2)$$

ここで、 m_b 、 u_b 、 V はそれぞれ気泡の質量、並進速度及び体積であり、 u_r は気泡と周辺流体との相対速度、 A は気泡の断面積、 C_d は摩擦係数、 g は重力加速度である。式(2)の右辺第 1 項は圧力の空間変化による力、第 2 項は気泡の運動によって生じる仮想質量効果による抗力、第 3 項は摩擦による抗力、第 4 項は気泡に働く浮力を表している。

式(1)において、断熱を仮定すると、 γ を比熱比として、気泡内の圧力 P_g は、以下の式で表される。

$$P_g = P_{g0} \left(\frac{R_0}{R} \right)^{3\gamma} \quad (3)$$

$$P_{g0} = \frac{2\sigma}{R_0} + P_{l0} - P_v \quad (4)$$

ここで、添字 0 は圧力変動のない平衡状態を示す。

いま、気泡半径が音場による圧力変動の波長よりも十分に小さく気泡の運動が流体内の圧力場に影響せず、 x 軸方向に一次的に変化すると仮定する。このとき、一方の振動子が角振動数 ω と波数 k で発信し、距離 L だけ離れているもう一方の振動子が同一の角振動数と波数であるが位相が ϕ だけずれて発信しているとき、流体場に発生させた音響定在波は、次式で与えられる。

$$P_l = P_{l0} + \Delta P \sin \left(\omega t - \frac{kL - \phi}{2} \right) \cos \left(kx - \frac{kL - \phi}{2} \right) \quad (5)$$

ここで、 ΔP は、圧力変動の振幅である。角周波数は $2\pi f_d$ 、波数は $2\pi/\lambda$ で定義され、 f_d と λ はそれぞれ駆動周波数と波長である。

さらに、式(2)において、並進速度 u_b ならびに相対速度 u_r は、次式で定義される。

$$\frac{dx}{dt} = u_b. \quad (6)$$

$$u_r = u_b - u_l. \quad (7)$$

また、周辺流体の速度 u_l は、式(5)より、以下のように定義される。

$$u_l = -\frac{k\Delta P}{\omega\rho_l} \cos\left(\omega x - \frac{kL - \phi}{2}\right) \sin\left(kx - \frac{kL - \phi}{2}\right). \quad (8)$$

式(2)中の摩擦係数 C_d は、Crum⁽⁶⁾によって液体中で上昇する空気泡を用いた実験より測定された次式を用いる。

$$C_d = 27.0 \text{Re}^{-0.78}, \quad (9)$$

ただし、

$$\text{Re} = \frac{2\rho_l u_l R}{\mu_l}. \quad (10)$$

解析は、式(1)から式(10)を連立し、ルンゲクッタ法により数値的に解くことによって行った。

4・2 解析結果 図13は、音響定在波中に直径2.05mmの気泡が定在しているとき、上下の振動子への駆動信号の位相差を、それぞれ120°、180°、240°と変化させたときの気泡挙動の実験結果と解析結果の比較である。図13の左軸は下部のホーン先端からの距離、右軸はその距離を波長で割って無次元化したもので、0.25および0.75の位置が圧力変動の節、0.5の位置が圧力変動の腹である。解析で用いた式(5)中の音圧変動の振幅は、図10の実装置の上部から振動子とホーンを取り去った状態で音圧分布を実測し、その値を用いた。また、解析上の原点は、始めに気泡が定在していた位置としており、式(5)中の振動子間の距離 L は一波長とした。実験結果ならびに解析結果ともに、始め圧力変動の節よりやや上方に安定して定在していた気泡が位相差をつけると同時に上方へ移動し、移動した上方の位置において安定して定在する結果となった。ただし、解析結果では、上方に移動した気泡は上下の振動を繰り返した後、定在する結果となった。定量的には、位相差が120°の場合に数値解析は実験結果を過小評価し、位相差が180°と240°の場合には数値解析は実験結果を過大評価した。

図14は、音響定在波中に定在している直径2.86mmの気泡に対して、上下の振動子間の位相差を30°毎に180°まで、5秒間ずつ変化させたときの気泡の挙動を、時間に対して示したものである。図14の解析結果では、位相差をつけると

同時に気泡は上方へ移動し、上下振動を繰り返した後に安定して所定の位置に定在する結果となった。

図14の数値解析を360°まで行い、気泡の移動距離を実験結果と比較したものが図15である。解析結果は、位相差が90°から180°付近まで実験結果を過小評価し、位相差が180°以上では実験結果を過大評価した。これは図13に示した実験結果と解析結果の違いに対応している。位相差が0°から360°までの全移動距離でみると、実験結果ならびに解析結果ともに平均39mm移動する結果となっている。これは本研究で使用した超音波振動子の振動数19.3kHzと室温約20℃の水中の音速1480m/sから理論的に計算される定在波の節と節の間隔38.3mmにほぼ一致し、本実験によって得られた気泡の移動挙動が、本解析モデルによって模擬できることを示すものである。ただし、実験において観測された位相差180°付近におけるプラトーは、解析では計算されなかった。これは、実験において形成された音響定在波が図8に示すように必ずしも1次元的ではなかったこと、実験における気泡が完全な球形ではなかったことなどによるものと推定される。今後、より大きな気泡を取り扱おうとする場合、気泡の変形や多次元的音場分布を取り扱うための解析モデルの構築が必要となるものと考ええる。

Fig.13 Measured and calculated trajectory of bubble position

Fig.14 Calculated trajectory of bubble position by phase Difference

Fig.15 Bubble movement by phase shift

5. 結 言

- (1) 超音波による液中気泡の並進運動制御を行うために最適な超音波伝送体（ホーン）を、有限要素解析の結果を基に設計・作成した。
- (2) 新たに作製したホーンを用いた特性実験より、ホーン固定用フランジ部をばね構造にした新型ホーンは、旧型ホーンに比較して同じ入力電力に対してより大きな最大音圧を達成するとともに、より均一な音圧分布を実現し、気泡を安定させて定在させることができることを確認した。
- (3) D/A 変換器を基に作製した発振システムにより、振動子間の位相差を変化させることによって、径の異なる気泡を駆動できること、その移動距離が理論値とほぼ一致することを確認した。
- (4) 本実験装置によって駆動された気泡の挙動が、本解析モデルによっておおよそ模擬できることを確認した。

謝 辞

本研究を遂行するに当たっては、寺西卓也（日立工機）、中谷文人、中野剛、三春貴央（山形大）の各氏に多大なるご協力を頂いた。また、本研究は、文部省科学研究費基盤研究（C）（No. 11650204）の補助を受けて実施した。ここに記して感謝の意を表する。

参 考 文 献

1. T.Tsukada et al., "Effect of EHD Convection on Motion of A Bubble under Microgravity," J.Chem.Eng.Japan, 28(6), (1995), pp.810-815.
2. N.I.Wakayama, "Magnetic Buoyancy Force Acting on Bubbles in Nonconducting and Diamagnetic Fluids under Microgravity," J.Appl.Phys., 81(7), (1997), pp.2980-2984.
3. L.V.King, "On the Acoustic Radiation Pressure on Spheres," Proc.Roy. Soc. London, Ser..A, 147, (1934), pp.212-240.
4. K.Yoshioka, Y.Kawashima and H.Hirano, "Acoustic Radiation Pressure on Bubbles and Their Logarithmic Decrement," Acoustics 5, (1955), pp. 173-178.
5. H.H.Bleich, "Effect of Vibration on the Motion of Small Gas Bubbles in a Liquid," Jet Propulsion 26, (1956), pp. 958-964.
6. L.A.Crum, "Bjerkness Forces on Bubbles in a Stationary Sound Field," J.Acoust.Soc.Am. 57, (1975), pp. 1363-1370.
7. W.Lauterborn, "Numerical Investigation of Nonlinear Oscillations of Gas bubbles in Liquids," J.Acoust.Soc.Am. 59, (1976), pp. 283-293.
8. M.S.Plesset, "The Dynamics of Cavitation Bubbles," J.Appl.Mech. 16, (1949), pp.277-282.
9. A.L.Eller and L.A.Crum, "Instability of the Motion of a Pulsating Bubble in a Sound Field," J.Acoust.Soc.Am. 47, (1970), pp. 762-767.
10. H.Azuma, S.Ogiwara and s. Yoshihara, "Removal of Bubbles by Acoustic Wave," Proc. 14th Int. Symp.on Space Tech. And Sci., Tolyo, (1984), pp. 1609-1617.
11. T.Watanabe and Y.Kukita, "Translational and Radial Motions of a Bubble in an Acoustic Standing Wave Field," Phys.Fluids A5(11), (1993), pp.2682-2688.
12. L.D.Rozenberg, "High Intensity Ultrasonic Fields," Plenum Press (1971)
13. R.Whymark, C.Rey, J.Yearnd and R. Broz, "Acoustic Levitation Materials Processing Systems," 17th Aerospace Science Meeting (1979)
14. Y.Yamakoshi and Y.Oie, "Ultrasonic Sound Pressure Measurement from Micro Particles Locus Observation in Periodically Perturbed Ultrasonic Standing Wave," 音響学会誌 52(1), (1994), pp.3-9.
15. K.Adachi, et al., "Development of Bolt-Clamped Langevan-Type Transducer with High Mechanical Quality Factor for Excitation of Large Torsional Vibration", Jpn. J. Appl. Phys., Vol.33 (1994), pp.1182-1188