

TDR(Time Domain Reflectometry)을 이용한 비포화영역에서 용존오염원의 거동에 관한 실험적 연구

Experimental Study of Solute Transport in the Unsaturated Zone by Using TDR

박 재현¹⁾, 서 일원²⁾, 선우 중호³⁾

초 록

오염원의 이송확산에 관한 많은 연구들이 수행되어 왔으나 특히 비포화 영역에서 오염원 이송확산을 측정하는 것은 매우 어려운 것으로 알려지고 있다. 비포화 토양에서의 오염원 이송확산은 매질의 함수량 변화에 영향을 받기 때문에 오염원 거동특성을 이해하려면 비포화 흐름 분석을 선행한 후 오염원의 이송확산 특성을 분석하여야 한다. 본 연구에서는 비포화 영역에서의 오염원 이송특성을 분석하기 위하여 TDR (Time Domain Reflectometry)을 이용하여 비포화 흐름 및 오염원 이송을 측정하였다. 이를 위하여 본 연구에서는 TDR을 이용하여 오염원 이송을 측정하는 방법을 개발하였으며, 이 방법을 이용하여 1차원의 토양기둥시료에서 비포화 흐름 및 오염원 이송확산에 관한 실험을 수행하고 수치모형을 적용함으로써 비포화 영역에서 오염원의 이송확산에 관한 거동특성을 규명하였다. 본 연구에서는 두 종류의 국내 토양시료(SUS, KUS)를 사용하였는데, 토양의 물리적 특성을 예비실험을 통하여 규명한 후 토양기둥시료를 이용한 본실험을 수행하였다.

비포화 천이흐름하의 오염원 이송확산 실험에서는 급격한 습윤전선의 전진에 따른 鐘形의 함수량 변화를 관측할 수 있었고, 이때 오염원의 농도는 함수량의 분포에 따른 이송확산 특성을 보였다. 오염원의 이송확산은 습윤전선을 추월하지 않으면서 농도 천이구간의 중심점으로부터 전방영역의 농도분포가 습윤전선에서의 함수량 분포와 유사한 종형을 이루고 있음을 관측할 수 있었다. 비포화 정상흐름하의 오염원 이송확산 실험에서는 오염원이 이송하며 농도 천이구간이 확장되어지는 전형적인 형태를 보였다. 또한 예비실험에서 측정한 매개변수를 입력자료로 하여 수행한 수치결과와 실험결과를 비교하였는데 비포화 흐름특성은 실험결과와 수치결과가 정량적으로 일치하는 경향을 보였으나, 오염원 이송확산 특성은 정량적으로 수치결과가 실험결과보다 더 많이 확산되는 경향을 보였다. 따라서 수치모형을 현장에 적용할 경우 확산지수 결정에 주의하여야 할 것으로 판단된다. 즉, 수치모형에 적용할 확산지수는 BTC 실험을 통하여 측정한 확산지수, 수치확산, 흡착계수, 적용영역의 크기 등을 고려하여 결정하여야 한다.

특히 본 논문에서는 TDR을 이용하여 최초로 천이상태의 함수량과 오염원 농도를 측정하였는데 이를 위하여 전기전도도와 함수량관계를 추정하는 식을 제안하였으며, 전기전도도와 토양수 농도, 전기전도도와 함수량의 관계를 이용한 천이상태의 오염원 농도 측정방법을 개발하였다. 특히 제안식에서는 한계함수량의 개념을 도입하여 전기전도도와 함수량관계를 추정하므로 추정식의 실험값 반영 정도를 증가시켰다. 본 연구에서 제안된 식을 이용하여 추정된 전기전도도와 함수량관계는 다른 제안식에 비하

- 1) 서울대학교 공학연구소 특별연구원
- 2) 서울대학교 토목공학과 부교수
- 3) 서울대학교 총장

여 개선된 결과를 보여 주었고, 본 연구에서 개발한 오염원 농도 측정법을 이용하여 측정된 결과 함수량이 0.15이하에서는 측정오차가 크지만 함수량이 0.15이상일 경우 매우 좋은 결과를 보였는데 질량평형을 검토한 결과 약 5 - 10%의 오차율을 보였다. 따라서 본 논문에서 개발된 천이상태의 오염원 농도 측정법은 용존 오염물질의 이송에 관한 정확한 실험을 제공할 것으로 판단된다.

1. 서론

비포화 토양에서의 오염원의 거동 특성은 매질의 함수량 변화에 의하여 영향을 받기 때문에 오염원 거동해석을 위하여 비포화 흐름에 대한 해석이 선행되어야 한다. 비포화 투수계수라는 비선형항을 포함하는 비포화 흐름의 거동이 포화흐름의 거동에 비하여 수학적으로나 물리학적으로 훨씬 복잡한데 여기에 비포화 흐름이 존재하는 영역이 비균질한 토양이라면 비포화 흐름에 대한 예측은 더욱 어려워진다. 그 이유는 토양의 비포화, 비균질 특성은 비포화 흐름 방정식의 매개변수로 사용되는 비포화 투수계수에 영향을 주기 때문인데 이러한 비포화 투수계수를 추정하는데 있어서 비균질토양은 훨씬 더 많은 자료를 요구한다(윤성용, 1994). 비포화 토양에서 오염원 거동 해석을 위한 많은 연구자들의 노력이 있어 왔지만 비포화 토양이 가지는 비선형 특성과 시간적, 공간적 비균질성으로 인하여 자연상태의 비포화 토양에서 오염원 이동을 정확히 예측하기는 불가능하다. 이에 비하여 인공적으로 설계되어진 폐기물 저장소, 쓰레기 매립장 등은 자연상태의 토양에 비하여 상대적으로 토양의 비균질성과 이방성이 단순하며, 그 외 물리 화학적인 특성이 잘 알려진 곳이기 때문에 일단 비포화 토양에서의 흐름과 오염원 이송에 따른 물리, 화학적 특성 등의 상관관계가 명확히 규정되어지기만 한다면 오염원의 거동예측이 상대적으로 용이하다 할 수 있다. 하지만 이를 위해서도 실험을 통한 기초특성을 확보하여야 하며 확보된 각 매개변수 하에서 실제 거동에 관한 실험적 연구가 필요하다. 이러한 필요성에도 불구하고 비포화 상태에서의 오염원 거동에 관한 실험적 연구는 측정방법의 한계로 특히 급격히 함수량이 변하거나 오염원 농도이송이 발생하는 영역에 대한 실험은 거의 불가능하였다.

본 연구의 목적은 실험을 통하여 규명하기 힘들었던 천이상태의 비포화 흐름 및 비포화 오염원 이송에 관한 물리적 거동을 실험을 통하여 규명하는 것이다. 이를 위하여 본 연구에서는 물보유함수, Batch Test, 농도확산곡선 등의 실험을 통하여 물리적 특성이 명확히 규명된 토양으로 구성된 토양기동 시료를 이용하여 비포화 토양에서 흐름 및 오염원 이송에 관한 실험을 수행하였는데 함수량 및 오염원 농도를 측정하기 위하여 TDR(time domain reflectometry)을 이용하였다. 먼저 본 연구를 통하여 TDR을 이용한 비포화 토양에서의 함수량과 오염원농도 측정방법의 개발 및 TDR 측정법의 유용성을 평가하였고, 또한 비포화 흐름 및 오염원 이송에 관한 특성을 1차원 실험을 통하여 규명하고자 하였을 뿐 아니라 수치해를 적용하여 실험결과와 비교하였는데 이를 통하여 수치해를 실제 영역에 적용할 경우의 각 매개변수들의 특성을 살펴보았다.

2. TDR을 이용한 용존오염원의 측정법 개발

2.1 TDR을 이용한 전기전도도의 측정

TDR은 크게 파형발생기(wave generator)와 오실로스코프(oscilloscope)로 구성되어 있다. TDR을 이용하여 토양내 함수량을 측정하는 방법은 임피던스변화에 따른 반향점과 이 사이를 흐르는 전자기파의 속도와 유전율 변화의 관계를 이용하며(박재현 등, 1997), 토양내 오염원의 농도를 측정하는 방법은 반향되는 전자기파의 크기(voltage)를 이용하게 된다. 토양내에서 오염원의 농도가 변하면 토양의 저항, 임피던스가 변하기 때문에 TDR의 탐침을 통하여 반향되는 전자기파의 크기는 토양내의 농도의 변화에 따라 반향정도를 달리하게 된다. 이때 반향되어 오는 전자기파의 크기 변화를 분석하여 토양내 임

피던스의 변화를 측정하고 임피던스의 변화로부터 총토양전기전도도(bulk soil electrical conductivity, σ_b)를 추정하게 된다. 오염원의 농도변화에 의하여 총토양전기전도도가 다르게 분포할 경우, 토양에 대한 전자기파의 반향특성은 다음과 같이 요약될 수 있다. 충전기전도도가 증가하게 되면 임피던스를 구성하는 저항이 낮아지므로 토양에 설치되어 있는 TDR 탐침근처의 임피던스는 감소하게 되고 토양의 유전효과에 의하여 탐침을 따라 흐르는 전자기파의 전압이 감소하게 된다. 따라서 TDR 탐침을 따라 반향되는 전자기파의 전압을 분석하면 충전기전도도가 높은 토양은 전기전도도가 낮은 토양에 비하여 반향곡선의 뒷부분이 아래로 처지게 된다(Evett, 1996). 즉, 유입 전자기파의 전압과 반향되어 나오는 전자기파의 상대적 전압차는 토양수(soil solution)내의 농도변화를 의미하게 된다. TDR을 이용한 용존 오염원의 농도측정법은 이온의 전기전도특성을 이용하는 방법이기 때문에 용존되어 이온화 되는 오염원에 대하여 측정이 가능한데 전기전도도가 너무 커지면 반향과의 감쇄정도를 이용하여 농도를 측정하기 어려워지므로 TDR을 이용한 농도측정의 한계를 CaCl_2 6g/L로 제시하기도 한다(van Loon 등, 1990). 농도차에 의한 전자기파의 반향특성을 알아보기 위하여 염화칼륨(KCl) 농도가 0 meq/L, 30 meq/L, 60 meq/L로 성형된 시료를 측정하여 반향곡선의 형태를 살펴보았다. 농도변화에 따른 반향곡선의 형태를 Fig. 1에 나타내었다. 여기서 V_0 는 진입하는 전자기파의 전압, V_1 은 반향되는 지점의 최저전압, V_2

는 반향이 지나고 난 후의 전자기파가 가지고 있는 전압, V_f 는 상당한 시간(반향시간의 10배에 해당하는 시간)이 지난 후의 전자기파가 가지고 있는 전압에 해당한다. Fig. 1에서 보듯이 최상단의 곡선이 0 meq/L이며 농도가 증가하면서 곡선이 아래로 처지게 되는데 가운데 곡선이 30 meq/L, 제일 하단의 곡선이 60 meq/L을 나타낸다. 즉 전자기파의 반향곡선은 농도가 증가할수록 반향곡선의 뒷부분이 아래로 처지게 되는데 이는 반향후 전자기파의 전압이 낮아진다는 의미이다.

Topp 등(1988)이 제안한 유효전기전도

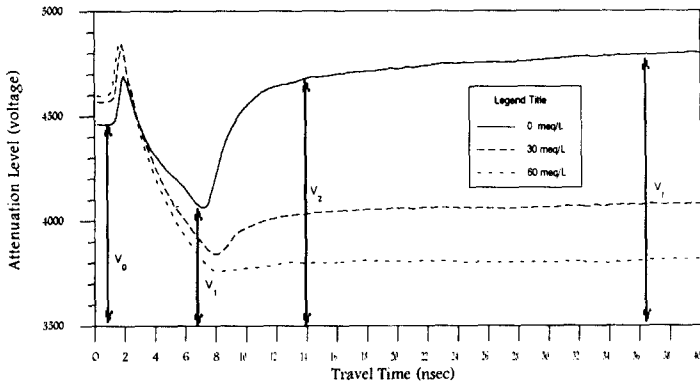


Fig. 1. Characteristics of the TDR Attenuation Signal Level for Concentration

도(effective electrical conductivity, σ_T)는 다음과 같다.

$$\sigma_T = \frac{\sqrt{K'}}{120\pi L} \ln\left(\frac{V_1(2V_0 - V_1)}{V_0(V_2 - V_1)}\right) \quad (1)$$

TDR의 반향곡선의 형태로부터 유효전기전도도를 추정하는 방법은 여러 연구자들에 의해 제안되고 있으며 이들 추정식은 토양의 유전율상수와 반향전압에 의하여 결정된다.

2.2 전기전도도와 토양수 농도의 관계

토양의 전기전도도를 이용하여 농도를 계산하는데 있어 가장 기본적인 가정은 '일정한 함수량에서 토양내 용액농도와 전기전도도는 선형적 거동을 한다'는 것이다(Kachanoski 등, 1992). 이 가정을 일정한 함수량에서 토양내 용액농도와 전기전도도의 관계를 표현하면 식 (2)와 같다.

$$C = A \sigma_a + B \quad (2)$$

여기서 C 는 토양수의 농도(meq/L), σ_a 는 토양의 충전기전도도(bulk soil electrical conductivity,

S/m), A, B 는 경험상수이다. 충전기전도도(σ_a)는 고체상(solid phase of soil)에 의한 전기전도도(σ_s)와 액체상(liquid phase of soil, soil solution)에 의한 전기전도도(σ_w) 등 두가지의 전도요소(conducting element)에 의하여 구성되어진다.

만약 함수량에 따른 전기전도도를 계산 할 수 있다면 위의 관계를 이용하여 토양수의 농도를 계산 할 수 있다. 함수량에 따른 전기전도도 예측에 관한 추정식은 여러 연구자들에 의하여 제안되었는데 (Table 1), 기존의 제안식들은 식(3)과 같은 제약조건을 만족시키지 못하는 경우가 많다.

Table 1. Relationships between Electrical Conductivity and Water Content

Proposer	Electrical Conductivity for Water Content
Keller & Frischrecht (1966)	$\sigma_{ra}(S) = S^n \quad S > S_{cr}, n \approx 2$ $\sigma_{ra}(S) = aS^n \quad S < S_{cr}, n \approx 4 \sim 5$
Gupta & Hanks (1972)	$\sigma_{ra}(\theta) = a\theta + b$
Rhoades (1989)	$\sigma_a = \left[\frac{(\theta_{solid} + \theta_{ws})^2}{\theta_{solid}} \sigma_s \right] + (\theta_w - \theta_{ws}) \sigma_{wc}$
Mualem (1991)	$\sigma_{ra}(\theta) = \left(\frac{\theta}{\theta_s} \right)^{2.5}$

$$\sigma_a > \sigma_s \quad (3-a)$$

$$\sigma_{a,60} > \sigma_{a,30} > \sigma_{a,0} \quad (3-b)$$

따라서 본 연구에서는 위에서 제시한 한계조건을 만족시키는 함수량에 따른 전기전도도 추정식을 제안하였다. 이를 위하여 한계함수량이라는 개념을 도입하였다. 한계함수량이란 다음 식(4)와 같은 형태로 표시되는데 상대전기전도도와 함수량이 선형관계를 유지하는 함수량의 최저 한계점을 의미한다.

$$\theta_{cr} = \theta_r + \frac{(\theta_s - \theta_r)}{n}, \quad n \geq 2 \quad (4)$$

본 연구에서는 한계함수량의 개념을 이용하여 함수량에 따른 전기전도도를 추정하는 식으로 다음과 같이 제안하였다. 이 관계를 적용하기 위하여 우선 각 시료에 대한 함수량, 농도별 전기전도도를 측정하여야 한다. 본 연구에서 이식을 적용한 결과는 Fig. 2와 같다.

$$\sigma_a = \sigma_{sat}(a\theta + b) \quad \theta_{cr} \leq \theta \leq \theta_s \quad (5-a)$$

$$\sigma_a = \sigma_{sat} \left(\frac{\theta}{\theta_{cr}} \right)^m (a\theta_{cr} + b) \quad 0 < \theta < \theta_{cr} \quad (5-b)$$

2.3 함수량에 따른 오염원농도 추정식

본 연구에서는 염화칼륨(KCl) 농도가 0 meq/L, 30 meq/L, 60 meq/L로 성형된 시료를 이용하여 함수량에 따른 전기전도도를 측정하였는데 이를 이용하여 천이흐름에서 오염원의 농도를 추정하는 다음과 같은 식(6)을 제안하였다. 이 관계는 식(2)와 식(5)를 이용한 결과이다. 이 식을 적용한 결과는 Fig. 3과 같다.

$$C(\theta) = \frac{60}{(\sigma_{a,60}(\theta) - \sigma_{a,0}(\theta))} \{ \sigma_a(\theta) - \sigma_{a,60}(\theta) \} + 60 \quad (6)$$

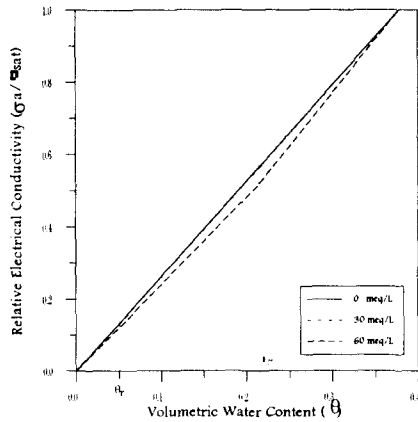


Fig 2. Relationship between the Bulk Soil Electrical Conductivity and the Soil Water Concentration for Given Water Content by Using Proposed Formula at Present Study

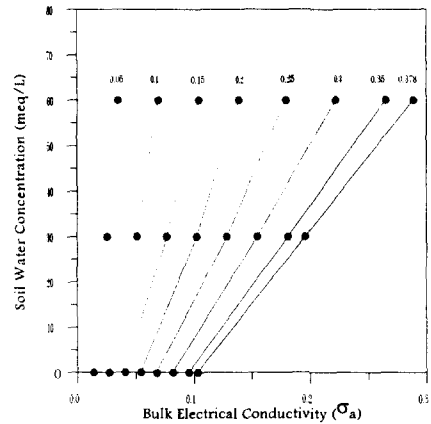


Fig 3. Relationship between the Relative Bulk Soil Electrical Conductivity and the Soil Water Concentration by Using Proposed Formula at Present Study

3. 비포화 오염원이송에 관한 지배방정식

비포화영역에서의 오염원 이송확산을 연구하기 위해서는 비포화 흐름방정식과 이송확산 방정식을 이용한다. 비포화 흐름방정식은 식(7)과 같은 Richards Equation을 이용하는데 함수량에 대해 비선형 거동을 하는 비포화투수계수의 영향을 받는다. 비포화 투수계수는 일반적으로 물보유함수(water retention curve)를 이용한 비포화 투수계수 추정식을 이용하여 산정한다. 본 연구에서는 이를 위하여 실험에 사용된 토양의 물보유함수를 측정하였다.

$$C(\psi) \frac{\partial \psi}{\partial t} - \frac{\partial}{\partial z} \left(K(\psi) \frac{\partial \psi}{\partial z} \right) - \frac{\partial K(\psi)}{\partial z} = 0 \quad (7)$$

오염원의 이송확산을 산정하기 위하여 식(8)과 같은 비포화 이송확산 방정식을 이용한다.

$$\frac{\partial (R\theta C)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left(\theta D_z \frac{\partial C}{\partial z} \right) - \frac{\partial (v_z \theta C)}{\partial z} - \lambda R\theta C \quad (8)$$

여기서 R 은 지체인자(retardation factor), C 는 오염원 농도, v_z 는 흐름방향의 공극수 유속(pore water velocity), D_z 는 흐름방향의 동수역학적 이송확산계수(coefficient of hydrodynamic dispersion)이다. 본 연구에서는 실험결과와의 비교를 위한 數值模型으로 Kool, J.B. & M.T., van Genuchten(1992)이 개발한 HYDRUS를 이용하였다.

4. 토양의 기초자료 획득을 위한 예비실험

4.1 물보유함수의 매개변수 추정 결과

물보유함수를 측정하기 위하여 체적기압판(volumetric pressure plate extractor)을 이용하였다. 측정된 자료를 van Genuchten 식을 이용하여 매개변수를 추정한 결과는 다음 Table 2와 같다.

Table 2. Estimated Parameters for van Genuchten's Water Retention Function

Water Retention Function	Drying Process		Wetting Process	
	A	n	A	n
van-Genuchten				
(KUS)	0.03729	1.6113	0.04048	2.1987
(SUS)	0.02331	3.7089	0.06273	2.6123

4.2 토양의 기초적 특성분석 실험

실험시료의 기본특성, 흡탈착계수, 분산지수 등을 측정하였는데 흡탈착계수를 추정하기 위하여 회분 실험을 수행하였고, 분산지수를 추정하기 위하여 농도변화곡선 실험을 수행하였다. 실험결과는 다음 표와 같다.

Table 3. Physical Properties for Test Soils

Characteristics of Soil	SUS	KUS
Soil Class	Sand	Loamy Sand
Saturated Water Content	0.378	0.455
Residual Water Content	0.05	0.05
Bulk Density	1.7046 g/cm ³	1.6126 g/cm ³
Saturated Hydraulic Conductivity	0.0167 cm/s	0.0022 cm/s

Table 4. Adsorption Parameters

Soil	k	η
SUS	0.000026	1.43
KUS	0.002399	0.96

Table 5. Dispersivities

	SUS	KUS
Dispersivity (cm)	3.8314	6.1287

5. 비포화 흐름 및 이송확산 실험

비포화영역에서 이송확산 특성을 관찰하기 위하여 내경 250mm, 길이 600mm의 1차원 시료용기를 이용한 본 실험을 수행하였다. Table 6과 같은 경우에 대하여 실험을 수행하였다. 비포화 천이상태의 오염원 이송특성은 Fig. 4, Fig. 5와 같다. 비포화 정상상태에서의 오염원 이송특성 Fig. 6과 같다.

Table 6. Experiment Case

Group	Category		Soil Type		Initial Concentration (meq/L)	Concentration of Influent
	Flow	Transport	SUS	KUS		
A	Transient	-	SUSA1	KUSA1	Dry	0 meq/L
B	Steady	Transient	SUSB1	-	0 meq/L	30 meq/L
			-	KUSB1	30 meq/L	60 meq/L
			SUSB2	-	0 meq/L	60 meq/L
			-	KUSB2	60 meq/L	0 meq/L
C	Transient	Transient	SUSC1	KUSC1	Dry	30 meq/L
			SUSC2	KUSC2	Dry	60 meq/L

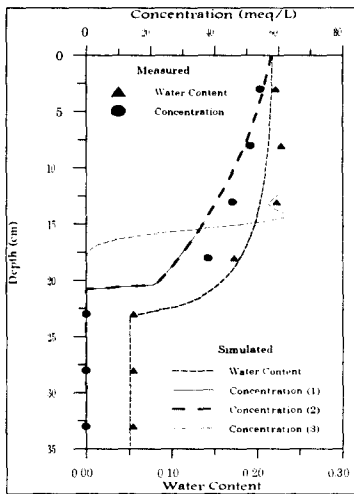


Fig. 4 Comparison between Measured and Simulated Data for SUS

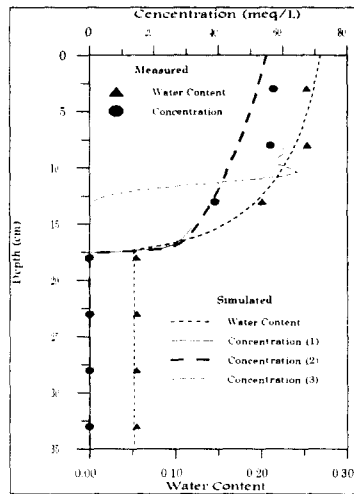


Fig. 5 Comparison between Measured and Simulated Data for KUS

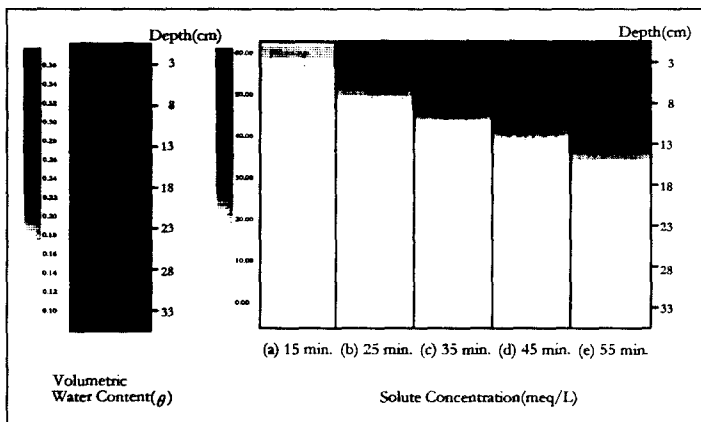


Fig. 7 Propagation of Concentration for SUSB2

6. 결론

본 연구를 통하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

(1) 함수량에 따른 전기전도도의 관계 제안

Gupta & Hanks(1972), Mualem(1991)이 제안한 식이 함수량에 따른 전기전도도를 표현하는데 한계를 보이고 있음을 알 수 있었으며, 본 연구에서 제안한 식을 이용할 경우 비포화 천이흐름에서 오염원 농도측정이 가능하였다. 오염원 총량에 대한 질량평형을 검토한 결과 10%이내의 측정오차를 보였다.

(2) TDR을 이용한 오염원 농도의 측정

비포화 천이흐름시 함수량이 0.1이하일 경우 토양내 오염원의 농도를 측정하는 것이 거의 불가능하였지만 함수량이 0.15이상인 영역에서는 오염원농도의 측정오차가 현저히 줄어들었다. 함수량이 0.1이하에서 농도측정이 거의 불가능한 이유는 오염원의 이송매체인 수막(water film)이 불완전하게 연결되었기 때문으로 판단되며, 낮은 함수량에서의 측정 오차율의 증가는 전기전도도와 농도사이의 비선형 관계에 기인하는 것으로 판단된다. 즉, 농도나 함수량이 작아지면서 전기전도도도 작아지는데 전기전도도도 작아지면 전기전도도와 농도의 관계가 비선형 거동을 하는 것으로 추측된다.

(3) 비포화 정상흐름에서 오염원이송

계단형으로 유입되는 오염원의 농도가 시간이 지남에 따라 농도 천이구간이 확대되었으며, 본 연구에서는 HYDRUS 수행결과가 실험값보다 더 큰 확산정도를 보였다. 이것은 수치해가 가지는 수치확산의 영향으로 판단된다.

(4) 비포화 천이흐름에서 오염원이송

계단형으로 유입되는 물과 오염원의 농도가 시간이 지남에 따라 중형의 분포를 가지며 이동하였다. HYDRUS 수행결과 오염원 농도는 실험값보다 확산정도가 더 크게 발생하였지만 함수량은 거의 일치하였다.

(5) 오염원 이송확산 특성은 정량적으로 수치결과가 실험결과보다 더 많이 확산되는 경향을 보였다. 따라서 수치모형을 현장에 적용할 경우 확산지수 결정에 주의하여야 할 것으로 판단된다. 즉, 수치모형에 적용할 확산지수는 BTC 실험을 통하여 측정된 확산지수, 수치확산, 흡착계수, 적용영역의 크기 등을 고려하여 결정하여야 한다.

참고문헌

박재현, 윤성용, 김상준, 선우중호(1997). TDR을 이용한 토양함수량의 측정, 한국수자원학회지, 제30권 6호, 587-595.

윤성용 (1994). 비포화 비균질 이방성매질에서 스펙트럼 섭동방법을 이용한 추계학적 흐름모형, 서울대학교 공학박사 학위논문.

Evelt, S. R. (1996). Algorithms for determination of travel times from TDR wave form, USDA-ARS, Conservation & Production Research Lab.

Gupta, S. C., and Hanks, R. J. (1972). Influence of water content on electrical conductivity of the soil, *Soil Sci. Soc. Am. J.*, Vol 36, 855-857.

- Keller, G. V., and Frischknecht, F. C. (1966). *Electrical methods in geophysical prospecting*, Pergamon Press, New York.
- Kool, J. B., and van Genuchten, M. T. (1992). *One dimensional variably saturated flow and transport model*, IGWMC, Colorado School of Mines.
- Mualem, Y., and Friedman, S. P. (1991). Theoretical prediction of electrical conductivity in saturated and unsaturated soil, *Water Resour. Res.*, 27(10), 2771-2777.
- Rhoades, J. D., Manteghi, N. A., Shouse, P. J. and Alves, W. J. (1989). Soil electrical conductivity and soil salinity: New formulations and calibrations, *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 53, 433-439.
- Topp, G. C., Yanuka, M., Zebchuk, W. D. and Zegelin, S. (1988). Determination of electrical conductivity using Time Domain Reflectometry: Soil and water experiments in coaxial lines. *Water Resour. Res.*, 24, 945-952.