

# メタルハニカム内のディーゼル微粒子燃焼シミュレーション

山本和弘<sup>\*1</sup>

## Simulation on Combustion Flow with Diesel Particle in Metal Honeycomb

Kazuhiro YAMAMOTO<sup>\*2</sup>

<sup>\*2</sup>Department of Mechanical Science and Engineering, Nagoya University,  
Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya 464-8603, Japan

Diesel engines have been used in a wide variety of commercial vehicles. However, several problems must be solved. One of the major concerns is that diesel exhaust gas has more particulate matters (PM) including soot, which are suspected to be linked to human carcinogen. Then, more strict diesel emissions standards are being set in many countries, and diesel particulate filters have been developed to reduce PM in the after-treatment of exhaust gas. In this study, we conduct Lattice Boltzmann simulation on combustion in metal honeycomb filter, where metal obstacles with square shape are inserted in 2-D duct flow with the porosity of 0.8. To examine the filter properties, we change the arrangement and size of metal obstacles in the filter. Results show that the combustion reaction is well simulated to discuss the burning rate of soot particles in the exhaust gas.

*Key Words*: Gas-Solid Two-Phase Flow, Computational Fluid Dynamics, Combustion, Combustion Products, Lattice Boltzmann Method

### 1. 緒 論

ディーゼル車はバスやトラックなどの商用車を中心に広く我々の生活に用いられている。排気ガスに含まれるすすなどのディーゼル微粒子（粒子状物質, Particulate Matters, PMと略）は、発がん性や花粉症などの健康被害の原因になっていることが指摘されており<sup>(1)(2)</sup>、近年、都市部を中心にPMの排出規制が大幅に強化された。その対策として、PMを吸着・除去する多孔質のフィルター（Diesel Particulate Filter, DPF）が開発された<sup>(3)(4)</sup>。

これまでに製品化されたDPFの大部分は素材がセラミックであるが、主に2つの問題点があるものと思われる。1つめはセラミックであるため凹凸の内

部構造まで完全に同じ製品を作ることは不可能であることである。これにより、セラミックのフィルターは製品ごとに特性がばらつくことになる。また2つめの問題点は、吸着・除去した微粒子によりフィルターが目詰まりすることである。このため、次第に排気圧力が増大して燃費が悪化し、最悪の場合エンジン停止に至ることも報告されている。したがって、ある程度PMが捕集された時点でフィルターを交換するか、PMを焼却除去（フィルターの再生）する必要がある<sup>(5)</sup>。ただし、PMはその主成分が炭素であることから、走行条件によっては自然に着火し、燃焼によりフィルターの内部に亀裂や溶損が生じる可能性がある。

そこで本研究では、フィルターの素材に形状を同一に加工可能なメタルハニカムフィルター<sup>(6)(7)</sup>に着目した。素材に金属を用いることにより、①加工や設計の自由度が増す、②振動や衝撃に強い、③触媒

\*原稿受付 2007年9月 日。

<sup>\*1</sup>正員、名古屋大学大学院機械工学専攻（〒464-8603 愛知県名古屋市千種区不老町）。

E-mail : kazuhiro@mech.nagoya-u.ac.jp

機能を付加するのが容易, などのメリットがある。ただし, メタルハニカムはセラミックに比べて構造がシンプルなため, 幾何学的にどのような内部構造にすれば効率的にディーゼル微粒子を処理できるか, について詳細に検討する必要がある。そのためには, 粒子を焼却処理する温度などの条件について調べる必要があるが, 微小なハニカム内部における各種の計測を行うことができないため, フィルターの内部で起こる現象を把握することが難しい。

従来のフィルターの開発では, 試作したフィルターに排気ガスを通し, 内部に吸着した微粒子の量を見積もる実験などが主に行われているが, 測定可能なデータはフィルター前後の圧力差や排気ガスの温度とガス組成だけであった。そこで, 実験だけでなく内部の現象を数値的に解析し, フィルターの特性を把握することが望ましい。しかし, フィルターの内部構造は非常に複雑であり, N-S 方程式などの保存式を解く従来の方法では解析が困難である。また気体の排気ガスに含まれるディーゼル微粒子は固体であるが, 非常に微細で複雑な鎖状構造を持つ粒子の3次元的な構造まで考慮した混相流れ解析は不可能である。そこで我々は, 排気ガス中に含まれるすす粒子の質量分率を考慮することで, 多孔体内部にすす粒子が吸着する現象を格子ボルツマン法 (LBM) により解析し<sup>(9)-(11)</sup>, ディーゼルフィルター内の流れについて検討した。また, すす粒子の燃焼解析を行うことによりフィルターの再生過程を模擬した<sup>(12)-(14)</sup>。

本解析では, 格子ボルツマン法によりメタルハニカム内のすす粒子の燃焼反応を数値的に解析することにした。これにより, フィルター内部の流れや温度場などについて調べ, すす粒子を焼却処理する条件について検討を行った。

## 2. 解析モデルおよび計算方法

**2・1 格子ボルツマン法** ここでは, 格子ボルツマン法 (LBM) について簡単に説明する<sup>(15)-(18)</sup>。LBM では格子ガス法 (LGA) と同様, 粒子の並進と衝突の過程から流れを解析する。粒子の分布関数は, 1 時間ステップで 1 格子だけ分布関数が移動する並進過程と, 分布関数が衝突により平衡分布へ緩和する衝突過程により記述される。今回は 2 次元の流れ場を計算するため, d2q9 モデル<sup>(8)(9)(12)-(14)</sup>を用いた。この場合, 空間は正方形の格子で離散化され, 粒子の速度ベクトルはそれぞれ以下のようになる。

$$e_\alpha = \begin{cases} (0, 0) & \alpha=0 \\ (\cos[(\alpha-1)\pi/2], \sin[(\alpha-1)\pi/2]) \cdot c & \alpha=1-4 \\ (\cos[(\alpha-5)\pi/2+\pi/4], \sin[(\alpha-5)\pi/2+\pi/4])\sqrt{2} \cdot c & \alpha=5-8 \end{cases} \quad (1)$$

ここで,  $c = \delta_x / \delta_t$  であり,  $\delta_x$  と  $\delta_t$  は格子間隔と時間ステップである。

次に計算方法について説明する。既に LBM による燃焼計算の詳細については他の文献<sup>(8)-(11)</sup>で行っているため, 詳細な説明は省略する。まず流れ場を以下の圧力  $p$  に対する分布関数をもとに計算する。発展方程式と平衡分布関数はそれぞれ以下のようになる。

$$F_{p,\alpha}(\mathbf{x} + \mathbf{e}_\alpha \delta_x, t + \delta_t) - F_{p,\alpha}(\mathbf{x}, t) = -\frac{1}{\tau_p} [F_{p,\alpha}(\mathbf{x}, t) - F_{p,\alpha}^{eq}(\mathbf{x}, t)] \quad (2)$$

$$F_{p,\alpha}^{eq} = w_\alpha \left\{ p + p_0 \left[ 3 \frac{(\mathbf{e}_\alpha \cdot \mathbf{u})}{c^2} + \frac{9(\mathbf{e}_\alpha \cdot \mathbf{u})^2}{2c^4} - \frac{3\mathbf{u}^2}{2c^2} \right] \right\} \quad (3)$$

ここで,  $w_\alpha = 2/9$  ( $\alpha=0$ ),  $1/9$  ( $\alpha=1\sim 4$ ), および  $1/72$  ( $\alpha=5\sim 8$ ) である。圧力  $p$  と速度  $\mathbf{u}$  は以下の式から求められる。

$$p = \sum_\alpha F_{p,\alpha} \quad (4)$$

$$\mathbf{u} = \sum_\alpha \frac{\mathbf{e}_\alpha F_{p,\alpha}}{p_0} \frac{\rho_0}{\rho} \quad (5)$$

ここで  $p_0$  と  $\rho_0$  はそれぞれ, 大気圧と基準の密度 (周囲雰囲気密度) である。格子ボルツマン法における動粘性係数  $\nu$  とレイノルズ数  $Re$  は, 次式により与えられる。

$$\nu = \frac{2\tau_p - 1}{6} \frac{\delta_x^2}{\delta_t} \quad (6)$$

$$Re = \frac{UL}{\nu} \quad (7)$$

計算では変数をすべて無次元化し, その無次元量を実際の値に対応させるため, 式(6)(7)で与えられる

Re が実際のレイノルズ数と同じになる緩和時間  $\tau_p$  を算出して計算に用いた。ここで、代表速度  $U$ 、代表長さ  $L$ 、動粘性係数  $\nu$  はそれぞれ、流入速度、フィルターの長さ、窒素の動粘性係数を用いた。

一方、温度、すす濃度、酸素濃度などのスカラー量は、流れ場と同様に各スカラー量に対する分布関数を用いて求める。その発展方程式と平衡分布関数を示す。

$$F_{s,\alpha}(\mathbf{x} + \mathbf{e}_\alpha \delta_x, t + \delta_t) - F_{s,\alpha}(\mathbf{x}, t) = -\frac{1}{\tau_s} [F_{s,\alpha}(\mathbf{x}, t) - F_{s,\alpha}^{eq}(\mathbf{x}, t)] + w_i Q_s \quad (8)$$

$$F_{s,\alpha}^{eq}(\mathbf{x}, t) = w_\alpha s \left\{ 1 + 3 \frac{(\mathbf{e}_\alpha \cdot \mathbf{u})}{c^2} + \frac{9(\mathbf{e}_\alpha \cdot \mathbf{u})^2}{2c^4} - \frac{3u^2}{2c^2} \right\} \quad (9)$$

$$s = T, Y_i$$

ここで  $Q_s$  は生成項であり、反応による発熱速度や化学種の生成・消滅を表す項である。式(8)の緩和時間  $\tau_s$  については、式(2)の  $\tau_p$  と同じ値を与えた。これらの分布関数を積算することにより、温度と化学種の成分  $i$  の濃度（質量分率）が求められる。

$$s = \sum_\alpha F_{s,\alpha} \quad s = T, Y_i \quad (10)$$

今回の解析では、すすの燃焼反応として以下の一段反応を仮定し、反応定数は Lee らの値を用いた<sup>(19)</sup>。ただし、すす粒子の金属体表面への吸着は考慮していない。



**2・2 計算領域と境界条件** Fig. 1 に一例として長さ 40mm のフィルターを用いたときの計算領域を示す。図の左側にある入り口よりすす粒子を含んだ排気ガス（温度 400°C）を一様に流入させる。すす粒子は、高温のフィルター内で燃焼する。メタルハニカムを模擬するため、図に示すように流路内部に正方形の金属体を規則的に配置した。配置方法は(a)格子配置と(b)千鳥配置の2種類とした。フィルターの前後に助走区間（入口と出口にそれぞれ 20mm）を設けたため、計算領域全体は長さ 80mm-240mm、幅 25mm とした。格子数は  $x$  方向（流れ方向）がフィルター

の長さにより 401~1201 点、 $y$  方向は 126 点である。2種類の金属体は空隙率が 0.8 になるように配置し、その1辺の長さ  $D$  を 1~5 mm まで変化させた。

次に境界条件について説明する。金属体の温度 ( $T_w$ ) は 700°C から 900°C とし、流入するすすの質量分率は過去の計算を参考に 0.01 一定とした<sup>(8)-(11)</sup>。排気ガスの組成は、体積分率で酸素 10%、窒素 90%<sup>(20)</sup> としたが、酸素濃度の影響を調べるため、排気ガス中の酸素濃度を最大 21% まで変化させた。境界条件は、入口で流入境界、上下の境界はすべりなしとし、出口は自由流出境界とした。流入速度は 20cm/s 一定とした<sup>(8)(9)</sup>。

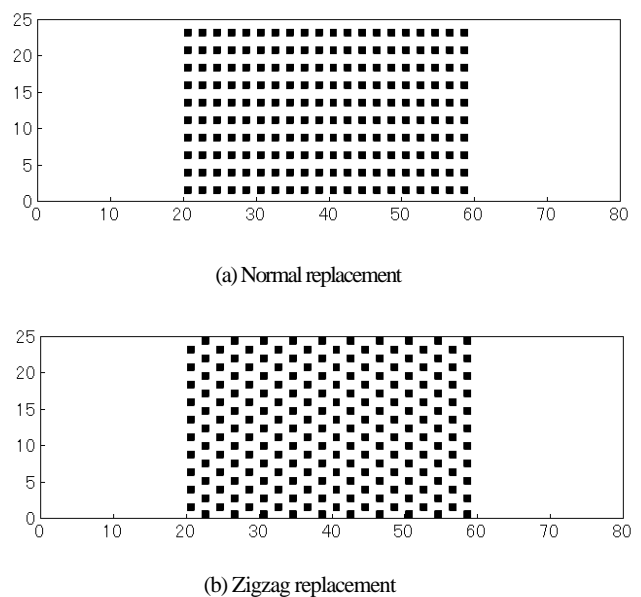


Fig. 1 Numerical domain and metal replacement;  $L = 40$  mm

### 3. 解析結果および考察

**3・1 メタルハニカム内の流れ場** まず、メタルハニカム内の流れ場や温度場について説明する。Fig. 2 は、計算開始から 1.0 秒後の速度ベクトル、温度分布、反応速度分布、すす濃度分布をそれぞれ示している。このときの金属体の温度は 900°C であり、 $D = 1$  mm の金属体を格子状に配置した結果である。まず内部の流れの様子であるが、金属体を格子状に配置したため、ちょうど金属体と金属体の間を流れがほぼまっすぐに通過している様子が観察された。次に温度場であるが、Fig. 2(c) の反応速度分布と比較することにより、次のことがわかった。すなわち、400°C の排気ガス中では反応しないすす粒子も、フィルターの内側は温度の高い金属体によりさらに高温となっているため、すす粒子が反応していることがわか

る。この反応は発熱反応であるので、排気ガスの温度はさらに上昇している。Fig. 2(d)のすす濃度分布によれば、フィルター出口におけるすす濃度がほぼゼロであったため、金属体の温度が  $900^{\circ}\text{C}$  の場合は流入したすす粒子をほぼ完全にフィルターの内部で焼却処理できていることがわかった。

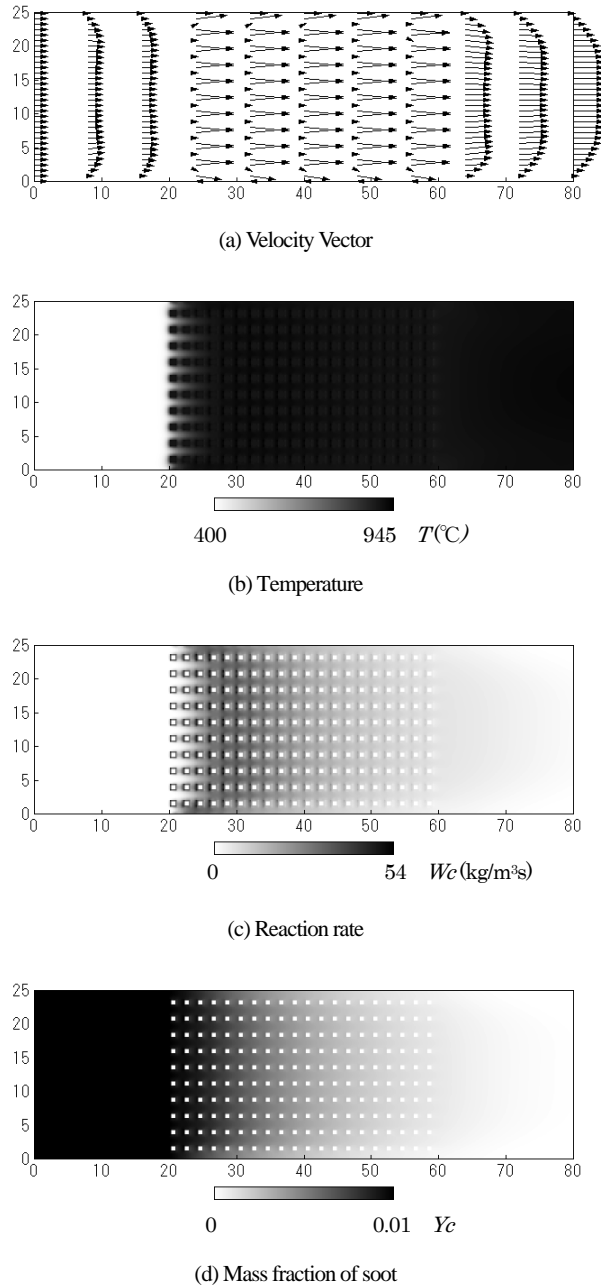


Fig. 2 Temperature and soot concentration in normal replacement metal filter;  $D = 1 \text{ mm}$ ,  $T_w = 900^{\circ}\text{C}$ ,  $L = 40 \text{ mm}$

**3.2 金属体の大きさの影響** 一方、金属体の大きさによってどのような差が見られるのかを調べるため、金属体の温度を  $900^{\circ}\text{C}$  一定とし、金属体の大き

さを  $2 \text{ mm}$  と  $5 \text{ mm}$  にしたときの計算を行った。金属体を格子配置したときに得られたすす濃度分布の結果を Fig. 3 に示す。 $D=1 \text{ mm}$  の Fig. 2(d) と比較すると、同じ空隙率になるよう金属体を配置しているため、金属体の大きさが大きいほど排気ガスとの接触面積が小さくなり、フィルター内部で反応するすすの量が減少し、焼却されないままフィルターの外に排出されるすすが増えてくることがわかった。

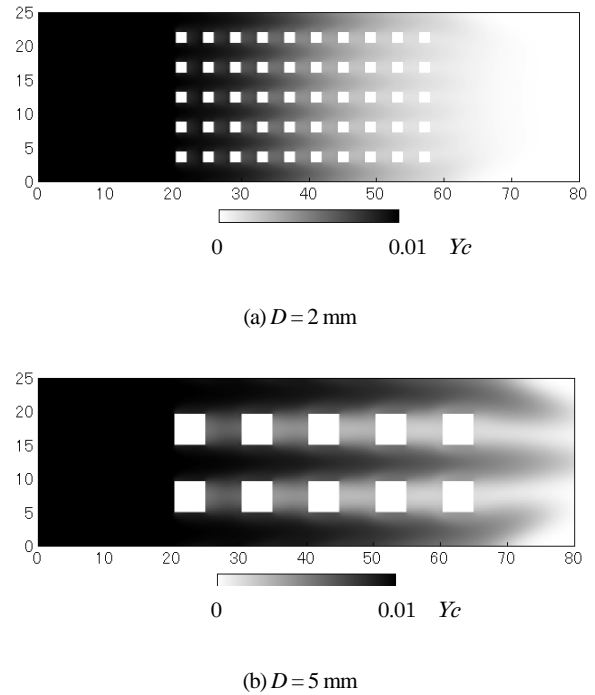


Fig. 3 Mass fraction of soot;  $T_w = 900^{\circ}\text{C}$ ,  $L = 40 \text{ mm}$

**3.3 金属体の配置方法と温度の影響** 次に、金属体の配置方法を変えたときの違いについて検討した。格子配置を行った Fig. 2 と比較するため、同条件において金属体を千鳥配置した結果を Fig. 4 に示す。それぞれ、速度ベクトル、温度分布、反応速度分布、すす濃度分布を示している。これによると、すす粒子を含む流れは、千鳥配置をした金属体に衝突して左右に分岐し、合流して再度分岐することを繰り返す様子が観察できる。最高温度は  $967^{\circ}\text{C}$  であったことから、格子配置した場合より  $20^{\circ}\text{C}$  ほど高い値となった。反応速度の最大値も高くなっていたことから、格子配置より千鳥配置のほうがすす粒子の燃焼反応も促進されるものと思われる。

このことを確認するため、金属体の配置方法の違いを定量的に検討した。金属体の温度を  $700^{\circ}\text{C}$  から  $900^{\circ}\text{C}$  まで変化させて計算を行い、すす粒子の反応量について調べた。金属体の大きさが  $5 \text{ mm}$  の場合の計

算開始からの出口のすす濃度の時間変化を Fig. 5 に示す. 金属体の温度を変化させて計算領域出口でのすす濃度を求め, フィルターを通過した後のすすの残存量を求めている. これによると, いずれの場合も時間が経過するにつれて出口のすす濃度は徐々に減少し, やがてほぼ一定の値になっていることがわかる. ただし, 金属体の温度が  $700^{\circ}\text{C}$  では流入したすすの 20%程度しか焼却処理できていない. 一方,

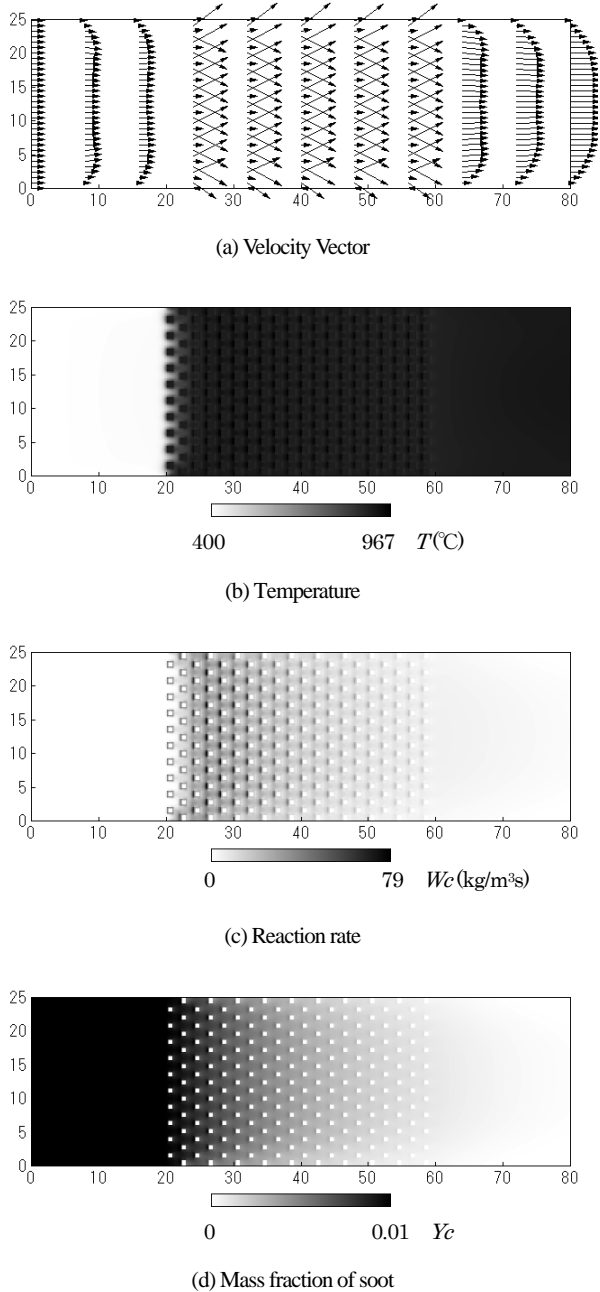


Fig. 4 Temperature and soot concentration in zigzag replacement metal filter;  $D = 1\text{ mm}$ ,  $T_w = 900^{\circ}\text{C}$ ,  $L = 40\text{ mm}$

金属体の温度を  $900^{\circ}\text{C}$  にすると, 流入したすす粒子をほぼ完全に焼却処理できることがわかった. また両者を比較すると, 実線の格子配置よりも点線の千鳥配置のほうがフィルター内部で焼却されるすすの量が多いことがわかった.

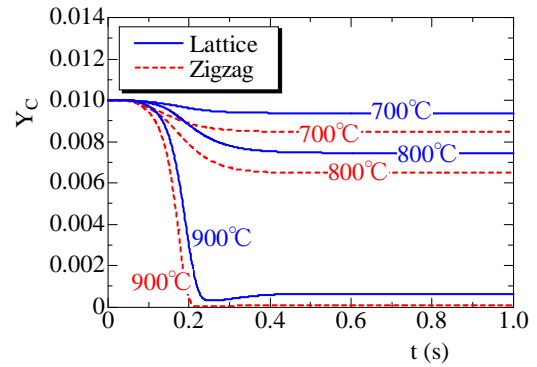


Fig. 5 Soot concentration at filter exit;  $D = 5\text{ mm}$ ,  $L = 40\text{ mm}$

### 3-4 酸素濃度の影響

次に, 酸素濃度を変化させて, すす粒子の反応がどの程度変化するかについて検討した. 今回の酸素濃度としては, 体積濃度で 10% と空気中の値である 21% を用いた. 前節と同様, 金属体の温度を  $700^{\circ}\text{C}$  から  $900^{\circ}\text{C}$  まで変化させて計算を行い, すす粒子の反応量について調べることにした. 金属体の大きさが  $1\text{ mm}$  の場合の計算開始からのすすの残存量の時間変化を Fig. 6 に示す. 金属体は格子配置, フィルターの長さは  $40\text{ mm}$  である. これによると, 酸素濃度 21% のときよりも酸素濃度 10% のほうが出口でのすす濃度は大きいことから, メタルハニカム内部で焼却されるすす粒子の量は酸素濃度が低下すると小さくなることがわかった.

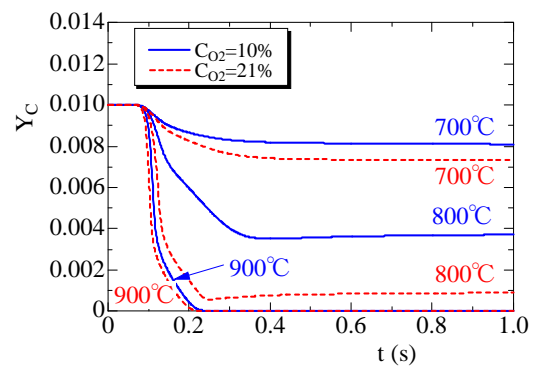


Fig. 6 Soot concentration at filter exit in normal replacement metal filter;  $D = 1\text{ mm}$ ,  $L = 40\text{ mm}$

**3.5 フィルターの長さの影響** 最後に、メタルハニカムの長さ  $L$  を変えて計算を行った。金属体の大きさ  $5\text{ mm}$ 、温度  $800^\circ\text{C}$  の場合について得られた計算開始からのすすの残存量の時間変化を Fig. 7 に示す。これによると、フィルターの長さが  $40\text{mm}$  の場合は、流入したすす粒子の約  $70\%$  がフィルター内で処理できず、出口からそのまま排出されていることがわかる。しかし、フィルターの長さを長くすると、フィルター内部で燃焼するすす量は増えるため、出口でのすす粒子濃度は減少し、長さが  $200\text{mm}$  では流入したすすのほとんどが焼却処理できた。

金属体の配置方法による違いについて定量的に検討するため、フィルターの長さを変化させて出口のすす濃度を求めた。その結果を Fig. 8 に示す。金属体の大きさは  $5\text{mm}$ 、温度  $800^\circ\text{C}$  の場合であり、入り口のすす濃度で割ることで流入したすす量の何パーセントが焼却処理できたかわかるようにした。これによると、Fig. 7 でも明らかとなったように、フィルターの長さが長いほうが内部で燃焼するすす量が増加するため、出口のすす濃度はフィルターの長さを大きくすると減少することがわかる。

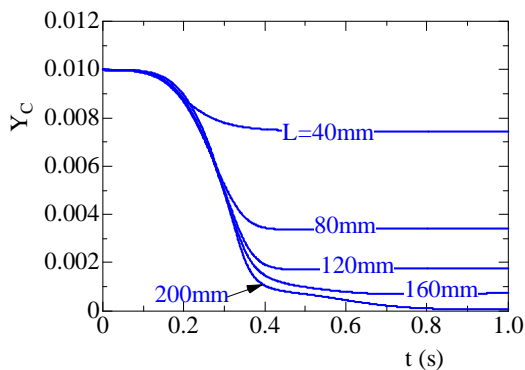


Fig. 7 Soot concentration at filter exit;  $D = 5\text{ mm}$ ,  $T_w = 800^\circ\text{C}$

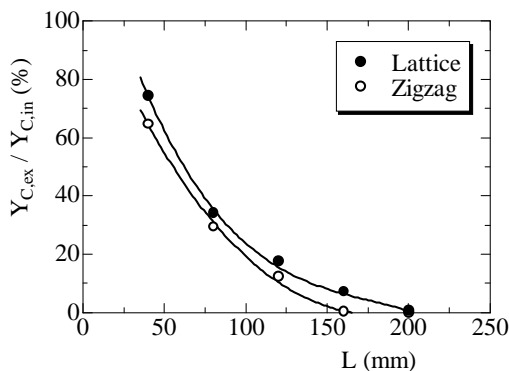


Fig. 8 Variations of burned soot at filter exit with filter length;  $D = 5\text{ mm}$ ,  $T_w = 800^\circ\text{C}$

両者を比較すると、金属体を千鳥配置にするほうがより多くのすすが焼却されており、金属体を千鳥配置にすることで  $160\text{mm}$  のフィルター長さがあればほぼ完全に焼却処理できた。したがって、金属体を千鳥配置にした場合のほうがより短いフィルター長さで格子配置と同程度のすす焼却量を得ることができることがわかった。

## 4. 結 論

本研究では、格子ボルツマン法を用いてメタルハニカムフィルター内のすす粒子の燃焼過程を解析した。その結果、以下のような結論を得た。

1. 金属体の温度を  $700^\circ\text{C}$  から  $900^\circ\text{C}$  まで変化させたところ、温度が高いほどフィルター内部で焼却できるすす量は多くなる。
2. 金属体の大きさを  $1\text{mm}$  から  $5\text{mm}$  まで変化させたところ、同じ空隙率であれば金属体の大きさが小さいほど流入する排気ガスと金属体との接触面積が増加するため、フィルター内部で反応するすす量も多くなる。
3. 金属体の配置によりフィルター内部の流れに違いが見られ、温度場や反応速度場が変化した。その結果、格子配置より千鳥配置のほうがすすの燃焼が促進される。
4. メタルハニカム内部で焼却されるすす粒子の量は、排気ガス中の酸素濃度が小さくなると低下する。
5. フィルターの長さを長くすることで、フィルター内部で焼却処理できるすすの量は増える。

以上により、排気ガス中のディーゼル微粒子の濃度や酸素濃度をもとに、金属体の温度やフィルター長さを適切に選定し、また金属体を千鳥配置にすることにより、メタルハニカムを用いても排気ガス中の微粒子の後処理が十分可能であることが示唆された。

## 謝 辞

本研究の一部は、本研究の一部は、文部科学省の平成 17, 18 年度科学研究費補助金 (17760162) により行われた。ここに記して謝意を表す。

## 文 献

- (1) Hamada, H., and Obuchi, A., Recent trends: The After-treatment Technologies of NO<sub>x</sub> and PM



- Emission from Diesel Vehicles, *Engine Technology*, Vol.6, No4, (2004), pp. 14-20.
- (2) Searles R. A., Bosteels D., Such C. H., Nicol A. J., Andersson J. D., and Jemma C. A., Investigation of the Feasibility of Achieving Euro V Heavy-Duty Emissions Limits with Advanced Emission Control Systems, F02E310, *FISITA 2002 World Congress* (2002), pp.1-17.
  - (3) Clerc, J. C., Catalytic diesel exhaust aftertreatment, *Applied Catalysis B: Environmental* 10 (1996), pp.99-115.
  - (4) Stratakis G. A., Stamatelos A. M., Experimental investigation of the pressure drop in porous ceramic diesel particulate filters, *Proc. Instn. Mech. Engrs.*, 216, Part D (2002), pp.773-784.
  - (5) Society of Automotive Engineers of Japan, *Automotive Technology Handbook*, Vol. 4, (2005), pp.117.
  - (6) Kawasaki, K., Shioji, M., Ashikaga, Y., Okuda, M., Performance for Trapping Particulates and Regeneration of Metal-Honeycomb Type DPF, *JSAE paper*, Vol.34, No.4, (2003), pp.113-118.
  - (7) Shibata, M., A Study of Metal Partial Filter System for Field Application, No.19-06 *JSAE Symposium* (2007), pp.8-11.
  - (8) Ochi, F., Yamamoto, K. and Yamashita, H., Simulation on Flow in Porous Media with Soot Deposition, *J. Japan Society of Fluid Mechanics*, Vol. 24, No. 5, (2005), pp. 535-541.
  - (9) Yamamoto, K. and Ochi, F., Soot Accumulation and Combustion in Porous Media, *J. Energy Inst.*, Vol. 79, No. 4, (2006), pp. 195-199.
  - (10) Yamamoto, K., Satake, S., Yamashita, H., Takada, N. and Misawa, M., Lattice Boltzmann Simulation on Porous Structure and Soot Accumulation, *Mathematics and Computers in Simulation*, Vol. 72, (2006), pp. 257-263.
  - (11) Yamamoto, K., Satake, S., Yamashita, H., Takada, N., and Misawa, M., Lattice Boltzmann Simulation on Flow with Soot Accumulation in Diesel Particulate Filter, *Int. J. Modern Physics C*, Vol.18, No.4, (2007), pp.528-535.
  - (12) Yamamoto, K., Numerical Simulation on Flow in Porous Media with Combustion, *J. Japan Society of Fluid Mechanics*, Vol. 23, (2004), pp. 295-302.
  - (13) Yamamoto, K., Takada, N. and Misawa, M., Combustion Simulation with Lattice Boltzmann Method in a Three-dimensional Porous Structure, *Proc. Comb. Inst.*, Vol.30, (2005), pp. 1509-1515.
  - (14) Yamamoto, K. and Takada, N., LB Simulation on Soot Combustion in Porous Media, *Physica A*, 362, (2006), pp. 111-117.
  - (15) Hou, S., Shan, X., Zou, Q., Doolen, G. D. and Soll, W. E., Evaluation of Two Lattice Boltzmann Models for Multiphase Flows, *J. Computational Physics* 138, (1997), pp. 695-713.
  - (16) Filippova, O. and Hanel, D., Lattice-Boltzmann simulation of Gas-particle Flow in Filters, *J. Comput. Physics B*, Nos.1&2, (2003), pp. 197-200.
  - (17) Inamuro, T., Yoshino, M. and Ogino, F., Lattice Boltzmann Simulation of Flows in a Three-dimensional Porous Structure, *Int. J. Num. Methods in Fluids*, Vol.29, (1999), pp. 737-748.
  - (18) Inamuro, T., *Physicality research* 77-2, (2001), 197-232.
  - (19) Lee, K. B., Thring, M. W. and Beer, J. M., On the Rate of Combustion of Soot in a Laminar Soot Flame, *Combustion and Flame*, Vol.6, (1962), pp.137-145.
  - (20) Oi-Uchisawa, J., Obuchi, A., Effect of Feed Gas Composition on the Rate of Carbon Oxidation with Pt/SiO<sub>2</sub> and the Oxidation Mechanism, *Applied Catalysis B: Environmental* 21, (1999), pp. 9-17.