鉛直方向に振動する粒状体薄層上の粒子拡散

農工大・工・応用物理 佐野 理(Osamu Sano) 農工大・工・応用物理 鈴木勝博(Katsuhiro Suzuki)

1. はじめに

粒状体が示す複雑な挙動については古く<sup>1)</sup>から様々な研究が進められている. 近年になって、これらは固液相転移(流動化)を伴う臨界現象として、非線形非 平衡系の示す散逸構造の格好の場として、あるいは粒子集合体と連続体を結 ぶメソスコピックな系として再び注目を集め、実験的・数値的・解析的研究 が急速に進んでいる2-4). とく鉛直方向の加振により発生する対流5-13や波動 <sup>14-17)</sup>, 異種粒子の混合・分離<sup>18-20)</sup>, 粒状体薄層に見られる平面パターン<sup>21-25)</sup>な どについてはこの10年足らずの間に急速な理解が深まった感がある.しか しながら、たとえば、定常的な対流や波動運動という「全体」の振る舞い(オ イラー的な情報)が知られていても、粒状体の構成粒子がどのように混合して いくか,あるいはその中で特定の粒子(とくに大きさや形状が異なった粒子)が どのように輸送されるかという「部分」の挙動(ラグランジュ的な情報)に対し て,充分に予測できるほどに普遍的な理解が得られているとは言えない状況 である.一般に粒状体を上下に加振すると.構成粒子の動き易さに著しい不 均一が生じ、たとえば自由表面付近や外力が与えられる境界付近で移動度は 大きく,それ以外の領域では動きは極めて緩慢であって,気体分子運動論で 仮定されるような熱平衡状態が粒状体全体で実現されることは稀である.し かし、厚さが10粒子程度以下の粒状体薄層を考えると、そこでは、粒子のほ とんど全てが外部からの加振の影響を直接受け、また、粒子間で非弾性衝突 を行なってある定常状態が維持される. そこでは加振条件に依存した特徴的 なメソスコピック構造がつねに生成消滅を繰り返している. これらはミクロ には離散粒子系であるが、それらの包絡線(面)を見れば連続体で近似できるよ うなマクロな系でもある.このような点に着目して、われわれは鉛直方向に 加振した粒状体薄層を考え、その中での粒子拡散の実験とモデル計算を行なっ

た. これをもとにメソスコピックな系の理解を深めたいと考えている.

## 2. 実験装置

図1に、本実験で用いた実験装置の概略図を示す. 粒状体を入れる容器は浅い円筒(直径106mm,深さ31mm)及び薄型直方体(縦91mm,横91mm,奥行8mm)の2種類である.いずれか一方の容器を加振機(EMIC,513-B)の上に垂直に取り付け、ファンクション・シンセサイザーとアンプで加振する.容器は剛体的に上下振動し、それ自身がいわゆるクラドニのパターンを示すような固有振動状態にはないことを予め確認した.今回の報告では、粒状体として直径d=0.13±0.05 mmの乾燥したガラスビーズを用い、振動の波形は正弦関数,振動数f=15~45Hz,振幅a=0.45~1.6 mm,またマーカーとして直径D=0.23~1.53 mmのガラスビーズを用いた結果を示す.粒状体の動きは通常のCCDカメラ,および高速ビデオカメラ(Photron,HVC-11B)で撮影し、後に画像解析を行なった.なお、実験はすべて大気圧の下で行なった.



3. 実験結果

一般に、粒状体の振舞いは、粒径dや形(の分布)、密度 ρ、摩擦係数 γ、粒 状体の層の厚さH、縦横のアスペクト比W/H、振動数f、振動振幅a、などに 依存する. 我々の実験では粒子としてほぼ単一径の一様な球形ガラスビーズ を用いているのでd、ρ、γなどは固定されている. また容器の側壁の影響は、 そこから粒子数個分の距離までしか現れないことが予備実験で明らかになっ ている(粒状体の対流に対しては側壁の影響は極めて重要であるが、これから 示す自由表面の波動に対してはその限りではないようである). したがって、



140

ここでとくに重要となるパラメターは振動の加速度と重力加速度の比 $\Gamma=4\pi^2 a$  $f^2/g(g$ は重力加速度),および粒状体の層の厚さ $\eta=H/d$ である.

(a) 薄層上の波動の断面形

図2に鉛直縦長セルで観測された代表的な流動状態を示す.一般に $\Gamma>1$ で 対流が発生する.ある程度以上の厚さ( $\eta$ が数100程度)をもった粒状体の層で あれば、 $\Gamma$ の増加に伴い、対流によって作られている斜面に小さな波(さざ波) が重畳してくる( $\Gamma\sim5$ 程度).これらのパターンは縦長容器の前後の奥行き方 向にはほぼ一様である.さらに $\Gamma$ を増加させていくと、容器の前後にも対流 が生じ、3次元的なパターンが見られる( $\Gamma\sim10$ 程度).場合によっては、対流



図3 粒状体表面波断面の定在波 (η=8,Γ=5.3; f=35 Hz; 648 frame/s)

セル対の数が増加していく<sup>11)</sup>. これよりも高いΓに対しては,対流の生じている領域が自由表面付近に局在してくるようである. これに対して, ηが10以下の薄層では, Γの増加とともに,対流,層全体のうねり,うねった薄層の 頂点付近でのバーストの発生,定在波の発生,のような変遷が観測される.

図3に、定在波の形成過程を示す.図3では各コマの間の時間間隔が1.543 ms,振動の周期はT=1/f=28.57 ms=18.5 フレームである.したがって、例 えば233フレームに対して251~252フレーム目が振動の1 周期後の画像に対 応する.この時間間隔に対して、振動の山と谷が入れ替わっていること、す なわち外部摂動の周期の2倍の周期で同じ波形が繰り返す、いわゆるパラメトリック励振であることが容易に認められる.また、波の振幅と波長がほぼ 同程度であり、とくに山の部分でカスプを生じたり非常に急激な立ち上がり を伴っていることは水面定在波には見られない特徴である<sup>26-31)</sup>.

## (b) 平面形の f, a 依存性

図4に水平な偏平セルで観測された代表的な流動パターンを示す.大略を 言えば,(i) a = 1.5 mm,  $f = 10 \sim 20$  Hzでは大きさも配置も不規則な偏平円錐 の集合体,(ii) a = 1.0 mm,  $f = 25 \sim 35$  Hzでは正方形セル,(iii) a = 0.8 mm,  $f = 40 \sim 50$  Hzでは縞状セルが観測されている.また不完全ではあるが(ii)から (iii)への移行期に3角形や6角形のセルも観測され,(iii)より高い振動数でパ ターンが1度崩れた後に再び正方形に近いパターンが出現することも観測さ れている.これらは,これまで知られたパターン形成<sup>21-25)</sup>と定性的に一致し ている.



図4 平面形 (a) 偏平円錐の集合体 : *f* =15 Hz, *a* =1.7 mm, (b) 正方形 : *f* =30 Hz, *a* =0.93 mm (c) 縞状 : *f* =40 Hz, *a* =0.86 mm

これらのパターンの観測範囲を図5に示した.特に正方形セルについて, その特徴をまとめると①外部振動数の1/2の振動数で同じパターンが繰り返さ れる,言い換えると,外部振動と同じ時間間隔では"山"(粒子が密に集合し て盛り上がっている部分)と"谷"(粒子がない部分)が入れ代わっている, ②パターンの空間的周期が一定で2方向あり,それらが直交している(つま り正方形),この性質は,容器側壁に隣接したセルでわずかに歪む程度であ る,③正方形セルの辺の向きは何らかの偶然的要素で実験の度に変わるが, 実験の途中で変化していくようなことはない,④加振振幅を増加するとセル のサイズは増加する,⑤加振振動数が増加するとセルのサイズは減少する. これらのうち,①②は図3に示したパラメトリック励振による定在波が,直 交する2方向に存在しているものとして理解される.また,④はaの増加によっ て粒子が受ける加速度の増加により遠くまで飛行できるため,⑤はfの増加に よって底面が自由飛行粒子に衝突する時間が短くなるためと考えられる.



(c) 正方形セル上の粒子拡散

つぎに,正方形セルを形成する薄層上の定常表面波の上でマーカー粒子が どのような振る舞いをするか調べてみよう.

(i) 長時間スケールにおける粒子の挙動

マーカー粒子(直径D=1.42 mm)の軌道を0.5 s ( $\equiv \Delta t$ )間隔で1280 s にわた り測定した.図6はそのうちの500 s のデータをプロットしたものである.軌 道は、円形容器内をほぼ均等でランダムに動いているように見える.実際、 容器中心を原点とする直角座標系x,yを導入し、各時刻での粒子の位置座標 (X, Y)を読み取って統計をとると、① $\overline{X}$ ,  $\overline{Y}$ の時間平均の原点からのずれは容器 径の1.7%以下である、②粒子の存在確率密度は、容器側壁近傍で4角形セル サイズ入程度の距離に至るまでほぼ一様である、③容器中心からの長さ $|\overline{X}|$ ,  $|\overline{Y}|$ の差は4%以下であり、X, Yの相関係数は0.015である、④ $\overline{V_x}$ ,  $\overline{V_y}$ は $|\overline{V_x}|$ ,  $|\overline{V_y}|$ の0.4%以下である、⑤ $|\overline{V_x}|$ ,  $|\overline{V_y}|$ の差は高だか0.7%程度である、⑥ $V_x$ ,



図6 長時間軌道(サンプリングタイム0.5 s; 500 sのデータ)

*V*<sub>y</sub>はそれぞれ標準偏差32.3 mm/s, 32.2 mm/s のガウス分布である, などの 結果が得られた.これらはマーカー粒子の運動が*x*, *y* 方向について独立で, またセル構造の存在に伴う空間異方性がマーカー粒子には現れていないこと, および,この時間スケール(*t*≫*Δt*)で見る限りマルコフ過程であることを示唆 している.そこでつぎに粒子の変位の分散

 $V_{D}(\tau) = \langle [\xi(t+\tau) - \xi(t)]^{2} \rangle$  (1) を計算する. ここでをは粒子の座標XまたはY,  $\tau$ は時間,  $\langle ... \rangle$ は集合平均 を表わす. 物理現象では $V_{D}(\tau) \propto \tau^{2n}$ のような指数法則が成り立つことがしば しばある. この指数2hをヘルダー指数と呼ぶ. もし, 連続的でなめらかな軌 道であれば2h=2, 古典的ブラウン運動のような拡散現象では2h=1であること が知られている. 薄層定常表面波上でのマーカー粒子の挙動について測定し た結果, 0.5 s $\leq \tau \leq 5$  sの範囲で2h $\approx 1$ であること(すなわち拡散的であること) が分かった. なお, 実験結果によると $\tau \geq 5$  s では2hは減少している. これは 容器の大きさが有限であり, この程度の時間以上になると, 側壁に衝突し反 射される(したがって距離は増加しない)ことに依っているものと思われる.

(ii) 短時間スケールにおける粒子の挙動

非常に短い時間でみれば、マーカー粒子は粒状体薄層上をホッピングして いるはずであるから、軌道も「弾道的」に見えるはずである.これを考慮し て、われわれは高速度ビデオカメラにより軌道追跡を行なった.画像はサン プリングタイムt<sub>s</sub> =2.69 ms,および5.38 msで収録し解析した.粒子の軌道は 区分的に直線的であり、定在波と衝突した時の相互作用によりときおり大き な運動方向変化を伴っている.しかし、どの部分が実際に自由放物運動に対 応するか、を「平面図」だけで判定することは困難である.そこで鉛直に立 てた縦長容器で粒状体薄層の定在波とマーカー粒子の観測(「断面図」に相当) を行なった.これによると、マーカー粒子の平均自由時間は10 ms程度以下で あった.

(iii) 中間時間スケールにおける粒子の挙動

粒子軌道の例を図7に示す.(a)は粒径の大きなマーカー粒子,(b)は粒径の小さなマーカー粒子の場合である.前者では直線に近いものの割合が高い

が、後者ではかなり曲折が目立つ.これは、粒子がセルの境界にはばまれて、 かなり長い時間漂動していることによる.図8にマーカー粒子と正方形セル との相互作用の1例を示す.粒子は振動周期の数倍の時間にわたり特定のセ ルに捕えられたのち隣接するセルに運ばれていく.



図7 粒子軌道の例: (a) 大きなマーカー粒子, (b)小さなマーカー粒子 (両者で空間スケールが異なっていることに注意)



図8 マーカー粒子と正方形セル(下方にあるバーは10mm)



図9 変位の相関  $\tau - V_D(\tau)$ 

図9に $\tau - V_D(\tau)$ を両対数プロットしたものを示す. これはやや大きいマー カー粒子D=1.43 mmについての結果であるが, この図から $\tau$ のかなり広い 範囲にわたり指数法則が成り立つことが伺える. その指数は5.38 ms $\leq \tau \leq$ 108 msにおいて2h=1.84±0.04であり, 加振振動数 f への依存性は小さいよ うに思われる. ここで指数が非整数であることに注意されたい. このような 運動は近年フラクショナル・ブラウン運動(fractional Brownian motion)と していろいろな現象で報告されている例がある<sup>27-31)</sup>.

同様の実験を、マーカー粒子径を変えて行なった結果を図10に示す.マー カー粒子径Dが減少すると指数2hは減少し、1に近づいていく.これは小さ な粒子ほどセル構造に捕らえられたり、あるいは表面波に乗って移動したり する効果が増大するためと解釈できる.



図10 指数(2h)のマーカー粒子径(D/d)依存性

4. 数値シミュレーション

実験で観察された現象を数値計算で確認し、また、いろいろな要素の影響 を評価・予測するために簡単な2次元のモデル計算を行なった(3次元モデル への拡張については後に述べる).まず、われわれは、定在波を構成する粒状 体を連続体で近似し、表面の変位を

 $z = A \, \left[ \, \sin^{2n}(kx) \, \cos^2(\omega t) + \cos^{2n}(kx) \, \sin^2(\omega t) \, \right], \tag{2}$ 

のように近似する.ここで、xは水平方向、zは鉛直上向きの座標、tは時間であり、媒質は無限に広いと仮定した.また、A、 $k(=2\pi/\lambda), \omega(=2\pi f)$ は定在波の振幅、波数( $\lambda$ :波長)、角振動数(f:振動数)である.実験で観測された定在波形を再現するために、n=2と選ぶ.また、粒状体媒質の大きさdは上の表現に陽に現れていないが、A、 $\lambda$ 、fがdの関数であることから、前者を指定することによって陰にdを考えていることになる.

この中に半径Dの球形粒子を投入しその動きを追うのであるが、これは粒状体表面と接触するときに運動量のやりとりがある以外は、一様な重力加速度gの下での自由放物運動をする。衝突の判定は「マーカー粒子中心から粒状体表面に下した垂線の長さがD/2以下になったとき」とした。このときの粒子の速度 $v(v_n, v_t)$ 、自由表面の速度を $V(V_n, V_t)$ とする。ここで添字n, tは自由表面に対してそれぞれ法線方向、接線方向の成分であることを示す。衝突

に際してつぎの条件を与える.まず①衝突は非弾性的であり,衝突状態にある時間∆tは粒子が粒状体にめり込んだ距離を法線方向の相対速度で割った時間の2倍とする(粒状体媒質に入り込む過程と出ていく過程が対称であると仮定する),②法線方向の相対速度変化を次式で仮定する:

$$\widetilde{v}_n - \widetilde{V}_n = -e(v_n - V_n), \qquad (3)$$

ここで、上付き波線~は衝突後の対応した物理量を表わす.またeは衝突係数 である.③接線方向の運動量変化は摩擦抵抗によって生じていると考える: すなわち、薄層の上層部が実効粘性 μ の流体とみなせるものとして

$$\widetilde{\mathbf{v}}_t - \mathbf{v}_t = -C \left( \widetilde{\mathbf{v}}_t - \widetilde{\mathbf{V}}_t \right) , C = \frac{6\mu\Delta t}{\rho D^2}, \qquad (4)$$

を満たす.ここで $\rho$ は粒子の密度.また④衝突状態にある時間内に粒子は衝 突点から $V_t\Delta t$ だけ移動(対流)する.以上の仮定の下で,ルンゲ・クッタ法 (時間刻み0.01)による数値シミュレーションを行なった.

図11はその1例で, A=0.1, f = 30, D/d=4.6, λ=1.0, C=5.0, e=0.90 である.



図11 シミュレーションの例(a) 断面内の軌道, (b) 水平座標の時間変化

この軌道からヘルダー指数を計算すると $2h=1.75\pm0.03$ であった. パラメ ターをいろいろ変化させ、2hのD/d依存性を調べた結果を図12に示す. A=0.1, f=30,  $\lambda=1.0$ ではe=0.9, C=5の計算が実験結果と比較的よく一致し ているように思われる.



図12 ヘルダー指数の粒径依存性:実験と数値計算の比較



これを3次元モデルに拡張した例を図13に示す.





図13 3次元モデルによる 数値シミュレーション ここではy方向にも定在波を仮定し、マーカー粒子が粒状体表面と衝突する点で接平面を考え、これに垂直な方向に(3)と同様な条件、また接線方向に(4)と同様な条件を当てはめた.図13の(a)では粒子が小さいために軌道の曲折が 多く、(c)では粒径が大きくなって直線的な軌道の割合が増えていくのが見られ、実験観測と定性的に一致する.

## 5. 考察

われわれは、鉛直に加振した粒状体薄層上のマーカー粒子の拡散を議論してきた.そのためには、媒質粒子の一部を着色し、その広がりを調べる方がもっと直接的であるように思われるかもしれない.しかし、媒質が不透明なために同じ大きさの粒子は直ちに覆われてしまい着色粒子の長時間観測が確保できない.逆に、粒径比D/d≥3のマーカー粒子は粒子の分離効果<sup>18-20)</sup>によって比較的表層近くにとどまるので観測が容易である.これが、粒径の違う単一粒子の動きについて統計的な挙動を調べ、その上でD/d→1とする方法を用いた理由である.

変位の相関を測定した結果、相関時間  $\tau < 10$  ms では弾道的(2h=2)、  $\tau >$ 500 ms では拡散的(2h = 1)であり、その中間領域で2h=非整数の指数法則が 成り立っているように思われる. これが単なるクロスオーバーであるかどう かは議論の余地があろう<sup>32)</sup>.水面定在波上の粒子拡散の場合については、この ような非整数の指数法則はよく知られており、表面張力波で外部加振の振幅a が小さい場合に2h=1.3~1.4<sup>27,28)</sup>,表面重力波の場合に1.7<sup>29)</sup>という報告がある. いずれの場合も振幅が大きくなると2h→1に近づく.水面波での制御パラメ ターaはわれわれの粒状体ではA/Dに対応すると考えられる. ただしAは粒状 体薄層の定在波の振幅で外部振動の振幅aそのものではない. このAは正方形 セルを観測した実験条件ではほぼ一定である.したがってaやA/Dを増加させ ることはDを減少させることに対応し、これによって2hが1に近づいていく ことと定性的に一致する.他方,拡散異常は、これよりも古く、定常レイリー・ ベナール対流系での拡散<sup>33-37)</sup>においても認められている.これらは、拡散粒子 が流れに乗って運ばれ、流れの分岐点で確率的に隣接セルへ移動していく結 果、分子拡散とは桁違いに速い拡散過程(対流拡散)になっていると考えられる。 われわれの場合にも、マーカー粒子は単に粒状体表面に衝突し反射されるだ

けでなく、そこで接触している間に表面波に乗って運ばれる効果が無視でき ないと考えられる.もっとも実験的にこの状態を確認するのはかなり困難で ある.それは、媒質が不透明であり、マーカー粒子が正方形セルの境界部分 の峰より下にある時は側方からの観測ができないからである.これについて は数値モデルの信頼性を高め、数値解析の側から、前述の指数法則の有無を 明かにすることができると考えている.

これまで述べてきたように、鉛直に加振した粒状体薄層はミクロに見れば 粒子間衝突が支配的である.その時間・空間スケールは粒子間の平均衝突時 間・平均自由行程である.他方、装置の大きさや外部撹乱の周期で決まるマ クロなスケールがある.両者の間の領域(メソ領域)では自己組織構造が動的に 変動し、"定常状態"を実現している.そこでのマーカー粒子の運動は周囲 の媒質を「粒子」集合体と見ると同時に、「流体」からの波動的な相互作用 を受けているように見える.この点で、われわれの系は分子動力学的な離散 的アプローチと流体力学的な連続的アプローチの接点となる可能性を持って いる.この領域の解明によって分子拡散と対流拡散を結ぶメソスケールでの 拡散が明かになることも期待している.

参考文献

(1) M.Faraday: Philos. Trans. R. Soc. London 121, 299 (1831).

- (2) H.M.Jaeger & S.R.Nagel: *Science* 255,1523(1992); *Rev.Mod.Phys.* 68, 1259 (1996).
- (3) G.B.Lubkin : *Phys.Today* 48 (no.10), 17 (1995).
- (4) H.M.Jaeger, S.R.Nagel & R.P.Behringer: Phys. Today 49 (no.4), 32 (1996).
- (5) P.Evesque & J.Rajchenbach: *Phys.Rev.Lett.* **62**, 44(1989).
- (6) S.Duady, S.Fauve & C.Laroche: Europhys. Lett. 8,621(1989).
- (7) Y-h.Taguchi: *Phys.Rev.Lett.* **69**, 1367 (1992).
- (8) J.A.C.Gallas, H.J.Hermann & S.Sokolowski: Phys. Rev. Lett. 69, 1371 (1992).
- (9) H.K.Pak & R.P.Behringer: Phys.Rev.Lett. 71, 1832(1993)
- (10) H.K.Pak, E.Van Doorn & R.P.Behringer: Phys. Rev. Lett. 74, 4643 (1995).
- (11) K.M.Aoki, T.Akiyama, Y.Maki & T.Watanabe: *Phys.Rev.* E54, 874 (1996).
- (12) Y.Lan & A.D.Rosato: Phys. Fluids 9, 3615 (1997).
- (13) O.Sano & H.Matsutani: *Proc.7th Asian Cong. Fluid Mech.*,Chennai(India), p.605 (1997).

- (14) A.Goldshtein, M.Shapiro, L.Moldavsky & M.Fichman: J.Fluid Mech. 287, 349(1995)
- (15) E.Clement, L.Vanel, J. Rajchenbach & J.Duran: Phys. Rev. E53, 2972(1996).
- (16) S.MacNamara & W.R.Young: *Phys.Fluids* A5,34(1993).
- (17) K.M.Aoki & T.Akiyama : Phys. Rev. Lett. 77, 4166 (1996).
- (18) A.Rosato, K.J.Strandburg, F.Prinz & R.H.Swendsen: *Phys.Rev.Lett.* 58, 1038 (1987).
- (19) R.Jullien, P.Meakin & A.Pavlovitch: *Phys.Rev.Lett.* **69**, 640 (1992).
- (20) J.B.Knight, H.M.Jaeger & S.R.Nagel: Phys. Rev. Lett. 70, 3728 (1993).
- (21) F.Melo, P.Umbanhowar & H.L.Swinney : Phys. Rev. Lett. 72, 172 (1994).
- (22) F.Melo, P.Umbanhowar & H.L.Swinney: Phys. Rev. Lett. 75, 3838 (1995).
- (23) P.Umbanhowar, F.Melo & H.L.Swinney: Nature 382, 793(1996).
- (24) T.H.Metcalf, J.B.Knight & H.Jaeger: *Physica* A236, 202(1997).
- (25) O.Sano & K.Suzuki: Proc. 3rd Int.Conf.Fluid Mech.,Beijing(China), p.657 (1998).
- (26) J.Miles & D.Henderson: Ann. Rev. Fluid Mech. 22, 143 (1990).
- (27) R.Ramshankar, D.Berlin & J.P.Gollub: *Phys.Fluids* A2, 1955 (1990).
- (28) R.Ramshankar & J.P.Gollub: *Phys.Fluids* A3, 1344 (1991).
- (29) S.T.Milner: J. Fluid Mech. 225, 81 (1991).
- (30) N.Tokugawa, M.Umeki & T.Kambe: Fluid Dyn.Res. 16, 43 (1995).
- (31) E.Schroeder, J.S.Andersen, M.T.Levinsen, P.Alstr $\phi$ m & W.I.Goldberg: *Phys.Rev.Lett.* **76**, 4717 (1996).
- (32) N.Menon & D.J.Durian: Science 275, 1920 (1997).
- (33) F.Sagues & W.Horsthemke: Phys. Rev. A34, 4136 (1986).
- (34) B.I.Shraiman: *Phys.Rev.* A36, 261 (1987).
- (35) M.N.Rosenbluth, H.L.Berk, I.Doxas & W.Horton: *Phys.Fluids* **30**, 2636 (1987).
- (36) T.H.Solomon & J.P.Gollub: Phys. Rev. A38, 6280 (1988).
- (37) O.Sano: J.Phys.Soc.Jpn. 62, 1202 (1993).