

## 溶剂体系对聚乙二醇浸渍杨木尺寸稳定性的影响

何 锐<sup>1</sup>, 刘雨晗<sup>1</sup>, 石江涛<sup>1,2\*</sup>, 黄琼涛<sup>2</sup>

(1. 南京林业大学 材料科学与工程学院, 江苏 南京 210037; 2. 宜华生活科技股份有限公司, 广东 汕头 515834)

**摘 要:**为探究溶剂体系对聚乙二醇浸渍处理后杨木尺寸稳定性的影响,采用分子量 1 000、2 000 和 4 000 的聚乙二醇分别与丙酮、乙醇、水进行复配,然后浸渍杨木,考察了密度、增重率和体积膨胀率的变化。结果表明,丙酮作为溶剂时,浸渍后木材密度增幅最大,增重率显著高于乙醇与水的体系,常温 30 d 后尺寸变化最小。乙醇与水作为溶剂时,3 种分子量的聚乙二醇浸渍木材密度和增重率相差不大,但乙醇溶剂在保持尺寸稳定性上明显优于水溶剂。丙酮作为溶剂时,易增加聚乙二醇在木材中的渗透性,提升增重率和木材密度,能有效控制体积膨胀率。说明聚乙二醇浸渍木材的性质与溶剂类型有关。

**关键词:**溶剂体系;聚乙二醇;尺寸稳定性;杨木

**中图分类号:**S781.3

**文献标志码:**A

**文章编号:**1001-7461(2022)01-0217-05

## Effect of the Solvent System on the Dimensional Stability of Polyethylene Glycol Impregnated Poplar Woods

HE Rui<sup>1</sup>, LIU Yu-han<sup>1</sup>, SHI Jiang-tao<sup>1,2\*</sup>, HUANG Qiong-tao<sup>2</sup>

(1. College of Materials Science and Engineering, Nanjing Forestry University, Nanjing 210037, Jiangsu, China;

2. Yihua Life Technology Co., Ltd., Shantou 515834, Guangdong, China)

**Abstract:** The purpose of this study was to explore the effect of the solvent on the stability of poplar woods after polyethylene glycol (PEG) impregnation. Three kinds of PEG with the molecular weights of 1 000, 2 000, and 4 000 were mixed with acetone, ethanol, and water, respectively, to make a series solutions, in which the poplar woods were immersed. The variations in density, weight gain rate and volume expansion rate were observed. The results showed that when acetone was used as a medium to mixed with PEG, the wood density increased mostly, the weight gain was significantly higher than ethanol and water, the minimum dimensional change was found after 30 days of immersion at room temperature. No significant differences in wood density and weight gain rate were found when ethanol and water were used as the solvents to mix with polyethylene glycol with three molecular weights, however, the dimensional stability of mixing ethanol as solvent was better than water. When acetone was used as the solvent, the permeability of polyethylene glycol in wood was high, which enhanced the weight gain rate and density of the wood to effectively control the volume expansion. The results suggested that the properties of PEG-soaked wood were related to the mixing solvent for PEG.

**Key words:** solvent system; polyethylene glycol; dimensional stability; poplar woods

速生杨木尺寸稳定性差,易开裂、易干缩、不耐腐朽,向木材细胞中注入增容剂是提高速生材尺寸

稳定性的一个有效方法。增容剂可以维持细胞壁的饱满状态,大幅提高尺寸稳定性<sup>[1]</sup>。聚乙二醇是一

收稿日期:2021-02-22 修回日期:2021-04-04

基金项目:“十三五”国家重点研发计划课题(2017YFD0600204);南京林业大学大学生创新创业训练项目(202010298002Z)。

第一作者:何 锐。研究方向:木材性质改良。E-mail:2360623946@qq.com

\* 通信作者:石江涛,博士,副教授。研究方向:木材性质及其功能性改良。E-mail:shijt@njfu.edu.cn

种效果良好的木材膨胀剂,性质稳定,长期存放不变质<sup>[2-3]</sup>,且作用机理、最适宜的浓度、温度、素材含水率等条件已经基本理清<sup>[4]</sup>,通过成熟的浸渍手法可以有效抑制木材干缩<sup>[5-6]</sup>。但由于聚乙二醇的高吸湿性,在高湿度条件下易大量流失<sup>[7]</sup>,引起木材密度大幅减小,尺寸稳定性也随着降低。近年来通过对木材热处理的研究,木材的耐受性进一步提高,但在超过 160 ℃ 的高温下木材仍会开裂,且热处理温度越高木材强度受损越大<sup>[8-9]</sup>,加入 PEG 则可以有效克服木材在高温下的性质缺陷。木材初始密度<sup>[10-11]</sup>、浸渍时间、浸渍温度、PEG 的分子量都是影响浸渍效率至关重要的因素,溶剂体系也应该成为一个值得关注的方面。在尺寸变化不太大的前提下,使更多的聚乙二醇进入木材细胞,不仅可以抵抗高湿度条件下的药剂流失,还可以最大限度地提高木材的密度和材质性能。本研究旨在通过比较 3 种溶剂体系改性效果的同时,拓展 PEG 浸渍木材的研究思路 and 更多可能的应用领域。

在 PEG/SiO<sub>2</sub> 协同处理木材的过程中,浸渍率高低的关键是各组分在木材中的分布与结合。这也与 PEG 的分散溶剂体系密切相关。本研究比较了丙酮、乙醇和水作为溶剂与 400、1 000、2 000 和 4 000 等不同分子量 PEG 的复合体系在杨木中的浸渍率与分布规律,并考察了改性后木材的尺寸稳定性。结果显示丙酮作为溶剂时,改性木材密度和重量增加均远远大于乙醇和水,体积膨胀率也维持在较低水平,这种变化在 30 d 内可以保持稳定,而且膨胀率还有缩小的趋势。不可忽视的是,即使乙醇作为溶剂时的效果不如丙酮,但也比水作为溶剂要优越,乙醇搭载 PEG 改性木材的密度更大、增重率更高而且体积膨胀率是三者中最小的,后续还应再考虑体积膨胀与密度、力学性能等改良的性价比,如每单位体积膨胀的密度增加或质量增加等。

## 1 材料与方法

### 1.1 试验材料与制备方法

选择分子量 1 000、2 000 和 4 000 的 PEG,与丙酮、乙醇和水 3 种溶剂体积比 1:1 复配,在熔融状态下(60 ℃),常压浸渍。所用的杨树(*Populus*),采集自河南焦作林场的人工林,树龄 10~15 a,选其中无虫蛀腐烂且纹理通直的木材锯切成多个待用样品。杨木试材含水率约 14%,木材尺寸 30 mm×20 mm×20 mm(纵向×弦向×径向)。浸渍后计算 PEG 增重率和密度。改性木材常温常湿(平均温度 23 ℃,平均湿度 50%~60%)下放置 30 d,以体积膨胀率评价改性木材尺寸稳定性。

### 1.2 性能检测

1.2.1 密度 在试样的横切面、弦切面、径切面 3 个面的中心位置,分别测出弦向、径向和顺纹方向尺寸,精确至 0.001 mm。使用排水法测量试样体积,结果精确至 0.001 cm<sup>3</sup>。称出试样质量,精确至 0.001 g。将试样放入烘箱内,开始温度 60 ℃ 保持 4 h,再在(103±2) ℃ 下烘 8 h 后,开始选试样试称,至最后 2 次称量之差不超过试样质量的 0.5% 时,即认为试样达到全干<sup>[12]</sup>。试样全干时的密度应按式(1)计算<sup>[13]</sup>,精确至 0.001 g·cm<sup>-3</sup>。

$$\rho_0 = m_0 / V_0 \quad (1)$$

式中: $\rho_0$  为试样的全干密度,g·cm<sup>-3</sup>;  $m_0$  为试样全干时的质量,g;  $V_0$  为试样全干时的体积,cm<sup>3</sup>。

1.2.2 增重率(WPG)

$$W_{PG} = (G_2 - G_1) / G_1 \times 100\% \quad (2)$$

式中: $G_2$  为试样浸渍后的质量,g;  $G_1$  为试样浸渍前的质量,g。

1.2.3 体积膨胀率<sup>[14]</sup> 试样体积膨胀率即 BC(膨胀系数公式中用  $B_C$  表示)计算。

$$B_C = (V_2 - V_1) / V_1 \times 100\% \quad (3)$$

式中: $V_2$  为试样烘干后的体积,cm<sup>3</sup>;  $V_1$  为试样初始烘干后体积,cm<sup>3</sup>。

所有数据至少测量 4 次,均计算平均值和标准差,数据计算采用 Excel 2013,作图采用 Origin 2019。

## 2 结果与分析

### 2.1 密度

3 种溶剂体系与分子量 1 000、2 000 和 4 000 PEG 复配浸渍木材的密度见图 1。丙酮/PEG 1 000、乙醇/PEG 1 000 和水/PEG 1 000 体系中,杨木的初始气干密度为(0.416±0.013)g·cm<sup>-3</sup>,浸渍后常温(22~25 ℃)常压放置 7 d,密度分别为(0.678±0.074 3)、(0.482±0.027 2)g·cm<sup>-3</sup>和(0.437±0.018 0)g·cm<sup>-3</sup>;放置 25 d 后,密度分别为(0.690±0.074 6)、(0.484±0.020 0)g·cm<sup>-3</sup>和(0.445±0.018 2)g·cm<sup>-3</sup>。3 个溶剂体系复配的 PEG 浸渍后,木材密度均有增加。丙酮/PEG 1 000 体系处理后增幅最大,可达 58%;水/PEG 1 000 体系增幅最小,约 7%。而且这种增幅,在常温常压下 25 d 内保持相对稳定。其中,丙酮和水作为溶剂时,25 d 后密度有微小增加,这可能是由于其吸湿造成的。丙酮/PEG 2 000、乙醇/PEG 2 000 和水/PEG 2 000 体系中,杨木的初始气干密度为(0.410±0.012 5)g·cm<sup>-3</sup>,浸渍后常温常压放置 7 d,密度分别为(0.594±0.068)、(0.482±0.019)g

$\cdot \text{cm}^{-3}$  和  $(0.472 \pm 0.041) \text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$ ; 放置 25 d 后, 密度分别为  $(0.598 \pm 0.067)$ 、 $(0.481 \pm 0.019) \text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$  和  $(0.460 \pm 0.030) \text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$ 。同样的, 密度在常温常压下 25 d 内保持相对稳定。丙酮/PEG 4 000、乙醇/PEG 4 000 和水/PEG 4 000 体系中, 杨木的初始气干密度为  $(0.415 \pm 0.006) \text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$ , 浸渍后常温常压放置 7 d, 密度分别为  $(0.649 \pm 0.044)$ 、 $(0.471 \pm 0.023) \text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$  和  $(0.439 \pm 0.026) \text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$ ; 放置 30 d 后, 密度分别为  $(0.656 \pm 0.051)$ 、 $(0.475 \pm 0.022) \text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$  和  $(0.444 \pm 0.028) \text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$ 。密度在常温常压下 30 d 内保持相对稳定。

以上结果表明, 丙酮作为溶剂时, PEG 改性木材的密度增幅最大, 而且分子量大小对于结果有较明显的影响。理论上认为, PEG 分子量越大, 越难于在木材中渗透, 尤其是达到 3 000 以上时, 已经难以穿过细胞壁<sup>[15]</sup>, 更多的是填充细胞间隙, 所以 PEG 4 000 引起木材密度增大的主要原因是自身较高分子量, 并且达到和 PEG 1 000 处理相似的密度。乙醇作为溶剂时, 改性木材密度增幅 10%~15%,

随着 PEG 分子量增大, 密度增幅略有降低。而以水作为溶剂, 改性木材密度增幅 7%~10%, 且与 PEG 分子量相关性不明显。这些现象说明改性木材密度不仅与 PEG 的浸渍量有关, 最重要的是与 PEG 的分子量有关。这说明丙酮更容易使 PEG 渗透进木材内部。较低分子量 PEG 有利于在木材中渗透, 而分子量大的 PEG 即使渗透率略低, 但其自身较高的分子量也有利于改性木材密度的增加。

丙酮作为溶剂时, 各试验组木材密度的增长率都 >50%; 乙醇和水作为溶剂时, 木材密度增长维持在 10% 左右, 如果进一步设置 PEG 浓度梯度、木材含水率梯度对比, 预计丙酮作为溶剂时的最优密度增长可达 70% 以上。PEG 的浸渍量与 PEG 分子量成反比关系, 随着分子量的提高, 浸渍效率逐渐下降, 但较大分子量的 PEG 4 000 对木材密度的提升反而比 PEG 2 000 更为优秀, 且与 PEG 1 000 所得改性材的密度基本相同, 这说明在某个分子量节点后, 提升木材密度和增重率最重要的影响因素由浸渍量变为 PEG 分子质量, 二者呈现此消彼长的关系。

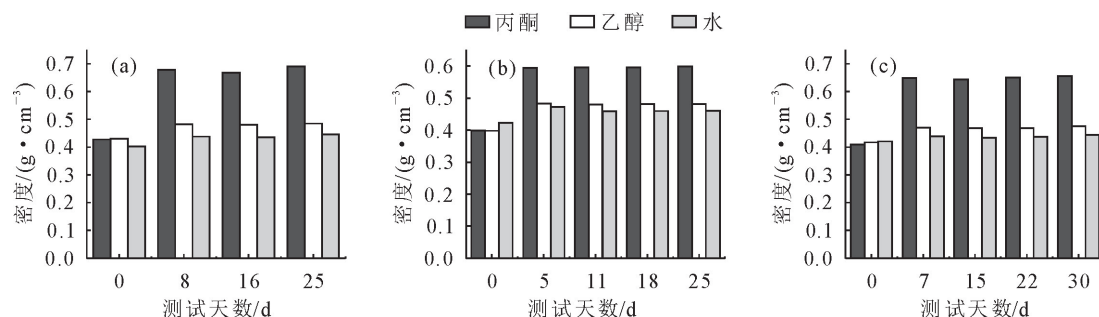


图 1 3 种不同溶剂体系与分子量 1 000(a)、2 000(b)和 4 000(c)浸渍后木材的气干密度(含水率约 14%)及其在 30 d 内常温常压下的变化

Fig. 1 The air-dry density of the woods (with the moisture content of about 14%) after immersed in polyethylene glycol with the molecular weights of 1 000 (a), 2 000 (b) and 4 000 (c) in three different solvent systems and the changes under normal temperature and pressure within 30 days

## 2.2 增重率(WPG)

3 种溶剂体系与分子量 1 000、2 000 和 4 000 PEG 复配处理木材的增重率见图 2。丙酮/PEG 1 000、乙醇/PEG 1 000 和水/PEG 1 000 体系中, 浸渍后常温常压放置 7 d, 增重率分别为 74.3%、19.8% 和 18.1%; 放置 25 d 后, 增重率分别为 74.6%、20.0% 和 18.2%。丙酮/PEG 2 000、乙醇/PEG 2 000 和水/PEG 2 000 体系中, 浸渍后常温常压放置 7 d, 增重率分别为 55.2%、26.6% 和 22.3%; 放置 25 d 后, 增重率分别为 54.5%、25.1% 和 16.6%。丙酮/PEG 4 000、乙醇/PEG 4 000 和水/PEG 4 000 体系中, 浸渍后常温常压放置 7 d, 增重率分别为 65.0%、15.3% 和 10.8%; 放置 30 d

后, 增重率分别为 64.3%、14.7% 和 9.9%。结果显示, 丙酮溶剂体系有利于 PEG 在木材中的渗透, 最高增重率可达 74.3%, 不同分子量之间的增重率明显不同。低分子量时, PEG 更容易渗透木材, 但是高分子量时虽然渗透效率下降, 但是自身的分子量也有助于增重率的提升。然而在乙醇和水的体系中, PEG 2 000 反而有更好的增重率, 说明 3 种溶剂与 PEG 的溶解度也存在差异。

通过对比密度、增重率和体积膨胀率, 得到了与 M. H. Alma *et al*<sup>[16]</sup> 相似的结论, 即密度的增加与 WPG 成正比, 且 PEG 可以最大化提高木材的抗干缩性, 同时还观察到在各个溶剂体系内各种不同分子量 PEG 带来的密度增长始终与增重率成正比关

系。在丙酮体系中,PEG 2 000 是一个明显的分子量节点,从 2 000 开始增大或减小分子量,所得木材的密度和增加质量都会提高。但在乙醇体系中所结论截然相反,从 2 000 开始增大或减小分子量,密度和重量增加越来越小,这也表示 2 000 是 PEG 与乙醇复配较合适的分子量。

### 2.3 体积膨胀率

3 种溶剂体系与分子量 1 000、2 000 和 4 000 PEG 复配浸渍木材的在常温常压下体积变化见图 3。丙酮/PEG 1 000、乙醇/PEG 1 000 和水/PEG 1 000 体系浸渍后,常温常压放置 7 d,体积膨胀率分别为 9.5%、6.3%和 8.5%;放置 25 d 后,体积膨胀率略有降低,分别为 7.9%、5.9%和 6.8%。丙酮/PEG 2 000、乙醇/PEG 2 000 和水/PEG 2 000 体系浸渍后,常温常压放置 7 d,体积膨胀率分别为 3.9%、3.9%和 9.1%;放置 25 d 后,体积膨胀率略有降低,分别为 2.6%、2.9%和 6.7%。丙酮/PEG 4 000、乙醇/PEG 4 000 和水/PEG 4 000 体系浸渍后,常温常压放置 7 d,体积膨胀率分别为 3.6%、2.3%和 5.9%;放置 30 d 后,体积膨胀率略有降低,分别为 2.1%、0.8%和 4.1%。

结果表明,丙酮/PEG 和乙醇/PEG 体系浸渍后

木材体积膨胀率随着 PEG 分子量增大而减小,而且常温常压下,体积膨胀率长时间都会减小。而水/PEG 体系浸渍后,木材体积膨胀率在 PEG 2 000 时最大,分子量 4 000 时最小。改性木材体积膨胀率在初期增大的原因主要是 PEG 浸渍的溶胀作用导致的。由于丙酮体系中 PEG 浸渍量最大,所以其体积膨胀率较大。而水/PEG 体系中,虽然 PEG 浸渍量不是很高,其体积膨胀率较大的原因是木材的吸湿导致的,其中纤维素和半纤维素上的自由羟基和木材的微毛细管多孔体结构表现出吸附性和毛细管凝结现象<sup>[17]</sup>。丙酮和乙醇均属于有机溶剂,在常温下容易挥发,因此其增重率随时间而降低,暴露出 PEG 进而在湿度空气中析出,使得体积膨胀率下降。这 2 种体系都远远比水单独溶解 PEG 更优越,在丙酮和乙醇体系内,试件放置 30 d,尺寸变化很小,且呈现恢复原始尺寸的趋势;但水作为溶剂体系时,尺寸变化较大且放置过程中易产生回弹,对比之下尺寸稳定性较差。不论哪种溶剂或 PEG 体系,改性木材的体积膨胀率随着时间逐渐减小。这与聚乙二醇自身的吸湿性及其在溶剂之间的溶解性有关。后期试验中还要继续评价改性木材的物理力学性能。

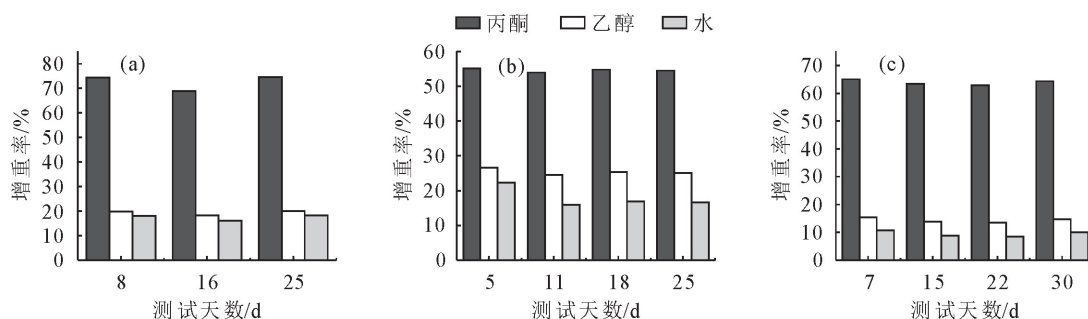


图 2 3 种不同溶剂体系与分子量 1 000(a)、2 000(b)和 4 000(c)浸渍后木材的增重率及其在 30 d 内常温常压下的变化

Fig. 2 The rate of weight gain of the woods after immersed in polyethylene glycol with the molecular weights of 1 000 (a), 2 000 (b) and 4 000 (c) in three different solvent systems and the changes under normal temperature and pressure within 30 days

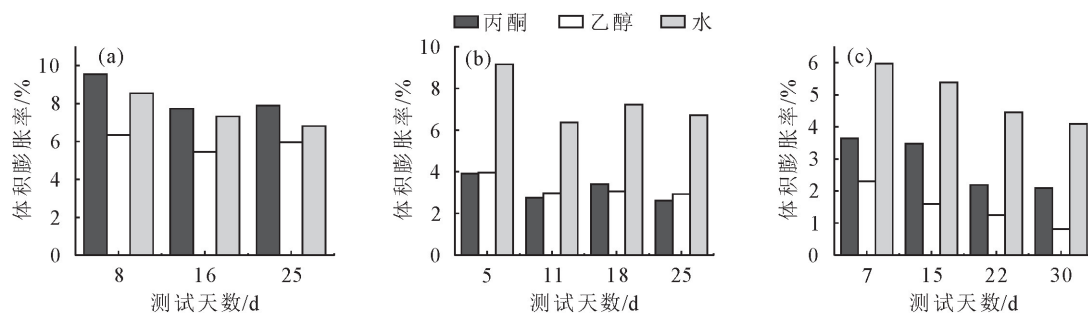


图 3 3 种不同溶剂体系与分子量 1 000(a)、2 000(b)和 4 000(c)浸渍后木材的体积膨胀率及其在 30 d 内常温常压下的变化

Fig. 3 The rate of the expansion of the woods after immersed in polyethylene glycol with the molecular weights of 1 000 (a), 2 000 (b) and 4 000 (c) in three different solvent systems and the changes under normal temperature and pressure within 30 days



通过聚乙二醇浸渍改良木材性质时最常用的溶剂体系仍然是水与聚乙二醇按一定比例复配。试验结果表明,与水相比,有机溶剂在增加 PEG 浸渍量的同时,还能保持更优越的尺寸稳定性。有机溶剂的使用也存在一些不足,比如易挥发,浸渍过程中需要观察,注意剩余有机溶剂的量,使之始终与 PEG 的配比保持平衡;或者目前阶段对于有机溶剂使用不多,潜在的其他影响因素尚未探明,需要使用更多分类的溶剂体系,更多种类的木材进行更为深入系统的探究。目前阶段丙酮溶剂体系作用于 PEG 改性木材的优越性不仅可以弥补这些不足,而且对于 PEG 浸入木材内部的能力有质的提升,因此认为丙酮是比水更优的聚乙二醇的分散溶剂。

### 3 结论

溶剂类型对不同分子量 PEG 浸渍木材的密度、增重率和体积膨胀率产生较明显的影响。丙酮作为溶剂时,有利于 PEG 在木材中的渗透,改性后木材的密度和增重率有明显提升。总的浸渍效果由大到小为:丙酮溶剂、乙醇溶剂、水溶剂。乙醇与水作为溶剂时,3 种分子量的 PEG 改性木材密度和增重率相差不大,但乙醇溶剂在保持尺寸稳定性上明显优于水溶剂。丙酮+PEG 4 000 体系,30 d 后尺寸变化是体积膨胀 2.1%,增重率 64.3%,密度 $(0.656 \pm 0.051) \text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$ ,是最优的处理工艺。各种溶剂体系浸渍改性后木材的密度、增重率与体积膨胀率,在常温常压条件下基本保持稳定,据此可以认为,PEG 浸渍木材具有在普通条件使用的潜力。后续还应考量各体系下改性木材的力学性能、疏水性能以及 PEG 渗出的防护措施等。

### 参考文献:

- [1] 郑绍鑫,张钰雯,符韵林. 聚乙二醇改良速生桉木材变形研究[J]. 林业科技通讯,2015(5):77-79.
- [2] 尹思慈. 聚乙二醇处理木材的研究——I. 处理因素的正交试验[J]. 南京林业大学学报,1984(4):61-74.  
YIN S C. The treatment of wood with polyethylene glycol (I) orthogonal experiments of treating conditions[J]. Journal of Nanjing Forestry University,1984(4):61-74. (in Chinese)
- [3] 尹思慈. 聚乙二醇处理木材的研究——II. 保存古木的试验[J]. 南京林业大学学报,1985(3):51-60.  
YIN S C. A study on polyethylene glycol treatment of wood (II) a test on preserving ancient wood[J]. Journal of Nanjing Institute of Forestry,1985(3):51-60. (in Chinese)
- [4] 李筱莉,岳翠银. 马尾松、麻栎、江南桉木用聚乙二醇改性的研究[J]. 木材工业,1994,8(2):17-20.  
LI X L, YUE C Y. A study on the modification of Masson's pine, oak and Jiengnan alder with polyethylene glycols[J]. China Wood Industry Magazine,1994,8(2):17-20. (in Chinese)
- [5] KANG H Y, LEE W H, JANG S S, *et al.* Polyethylene glycol treatment of han-ok round wood components to prevent surface checking[J]. Bioresources,2017,12(2):4229-4238.
- [6] 李筱莉,岳翠银. 聚乙二醇处理的木材尺寸稳定性研究[J]. 安徽农业大学学报,1993,20(4):353-358.  
LI X L, YUE C Y. A Experimental Study of the Dimensional Stability of Wood Treated with Polyethylene Glycols[J]. Journal of Anhui Agricultural University,1993,20(4):353-358. (in Chinese)
- [7] 翟冰云,杨丽,杨玲. 聚乙二醇改性木材药剂抗流失试验[J]. 林业科技,2002,27(5):40-42.
- [8] 徐康,吕建雄,李贤军,等. 高温热处理对杨木 PF 浸渍材尺寸稳定性的影响[J]. 北京林业大学学报,2015,37(9):70-77.  
XU K, LÜ J X, LI X J, *et al.* Effect of heat treatment on dimensional stability of phenolic resin impregnated poplar wood [J]. Journal of Beijing Forestry University,2015,37(9):70-77. (in Chinese)
- [9] HONG S H, KIM C H, LIM H M, *et al.* Measuring PEG retentions and EMCs of PEG impregnated softwood specimens after heat-treatment[J]. Journal of the Korean Wood Science and Technology,2013,41(3):173-180.
- [10] RALPH J, EDWARDS S J. PEG penetration in three commercially important Tasmanian Eucalyptus[J]. Wood and Fiber Science,2004,36(4):611-619.
- [11] RALPH J. PEG penetration and the effects of PEG pretreatment in air-dried Eucalyptus regnans[J]. Wood & Fiber Science Journal of the Society of Wood Science & Technology,2006,38(1):139-143.
- [12] GB/T1931-2009, 木材含水率测定方法[S]. 北京:中国标准出版社,2009.
- [13] GB/T1933-2009, 木材密度测定方法[S]. 北京:中国标准出版社,2009.
- [14] GB/T 1934. 2-2009, 木材湿胀性测定方法[S]. 北京:中国标准出版社,2009.
- [15] XU J Q, YANG T T, XU X, *et al.* Processing solid wood into a composite phase change material for thermal energy storage by introducing silica-stabilized polyethylene glycol[J]. Composites Part A: Applied Science and Manufacturing,2020,139(1):106098.
- [16] ALMA M H, HAFIZOLU H, MALDAS D. Dimensional stability of several wood species treated with vinyl monomers and polyethylene glycol-1000[J]. International Journal of Polymeric Materials,1996,32(1/4):93-99.
- [17] 尹思慈. 木材学[M]. 北京:中国林业出版社,1996:123-125.