

DOI: 10.11779/CJGE2021S1025

含节理黄土的微生物灌浆因素分析

刘小军^{1,2}, 崔瀚霆¹, 王铁行^{1,2}, 郭宏超³

(1. 西安建筑科技大学土木工程学院, 陕西 西安 710055; 2. 陕西省岩土与地下空间工程重点实验室, 陕西 西安 710055;

3. 西安理工大学土木建筑工程学院, 陕西 西安 710048)

摘要:在自行建立的含节理黄土微生物灌浆模型的基础上,通过有限元仿真软件 COMSOL 进行数值建模及求解,通过考虑初始脲酶活性、胶结液浓度、节理开度等因素,计算分析 3 种灌浆因素影响下的节理与孔隙的填充率以及黄土体的有效加固范围,对节理 - 黄土体的微生物灌浆加固效果进行研究。结果表明:初始脲酶活性是影响灌浆效果的重要因素;对于胶结液浓度,为同时考虑加固效果和减少废液量,应选用适宜的胶结液浓度;节理开度对加固深度的影响较明显,与节理水流入渗规律一致。综合分析 3 种灌浆因素发现,距灌浆口有限深度处的含节理黄土加固效果较好,灌浆均匀性有待提高。

关键词:节理;黄土;微生物灌浆;灌浆因素

中图分类号:TU443 文献标识码:A 文章编号:1000-4548(2021)S1-0138-05

作者简介:刘小军(1983—),男,博士,副教授,主要从事岩土及地下工程方面的教学与研究工作。E-mail: Liuyu8345@163.com。

Microbial grouting factors for loess with joints

LIU Xiao-jun^{1,2}, CUI Han-ting¹, WANG Tie-hang^{1,2}, GUO Hong-chao³

(1. School of Civil Engineering, Xi'an University of Technology, Xi'an 710055, China; 2. Shaanxi Key Laboratory of Geotechnical and Underground Space Engineering, Xi'an 710055, China; 3. School of Civil Engineering and Architecture, Xi'an 710048, China)

Abstract: On the basis of the established biogrout model for loess with joints, numerical modeling and solution are carried out by means of the finite element simulation software COMSOL. Considering the initial urease activity, cement concentration and joint aperture, the filling rates of joints and porosity as well as the effective reinforced area of loess mass under three grouting factors are calculated and analyzed. The reinforcement effect of joint-loess mass is studied. The results show that the initial urease activity is an important factor affecting the grouting effect. For the concentration of cement liquid, in order to consider the reinforcement effect and to reduce the amount of waste liquid at the same time, the appropriate concentration of cement liquid should be selected. The effect of joint aperture on the depth of reinforcement is more obvious, which is consistent with the law of water infiltration for the joints. The comprehensive analysis of the three grouting factors shows that the reinforced effect of loess with joints at a limited depth from the grouting port is better, and the grouting uniformity needs to be improved.

Key words: joint; loess; biogrout; grouting factor

0 引言

黄土节理在气候相对干燥的黄土高原地区普遍发育,是黄土地区工程建设中的不利因素。为了更好的满足工程建设所需土体的强度和渗透性,有必要开展黄土节理灌浆加固方面的研究。节理本身作为一条天然的灌浆通道,结合微生物溶液低黏滞性和高流动性特点^[1],微生物溶液用于黄土节理的灌浆加固成为潜在的可能。

微生物诱导碳酸钙固化土体的过程是微生物溶液进行生化反应生成碳酸钙填充土体孔隙,胶结土体颗粒,以此改善土体强度和渗透性的过程^[2]。由于微生物溶液本身需要生物酶(巴氏芽孢杆菌)催化尿素水

解来进行酶促反应,相比于传统的水泥或化学注浆, MICP 灌浆加固岩土体有其独特的灌浆参数和灌浆影响因素^[3],具体体现在影响生物化学反应的因素方面,主要包括脲酶活性、胶结液浓度、灌浆速率、温度、pH 和土体的颗粒级配等。尹黎阳等^[4]系统分析了上述灌浆因素对岩土固化效果的影响,给出了微生物灌浆所需的适宜环境条件。李捷等^[5]研究了不同脲酶活性对珊瑚砂矿化效果的影响,找到了最佳的脲酶活性。赵志峰等^[6]在常规的温度、pH 影响因素中考虑了土体

基金项目:陕西省自然科学基础研究项目(2020JM-483);国家自然科学基金项目(51408464)

收稿日期:2020-12-15

中胶结阳离子含量和氯化盐含量, 通过试验证明土中胶结阳离子含量可以忽略不计, 氯化盐对脲酶活性有抑制作用。彭勘等^[7-8]研究了不同温度下 MICP 固化砂土的效果, 通过试验表明温度能够影响碳酸钙的生成速率。Wijngaarden 等^[9]通过数值模拟的方法探究不同灌浆速率下的饱和砂柱灌浆效果, 旨在解决微生物灌浆的均匀性问题。

综上所述, 微生物灌浆的生化反应过程比较复杂, 涉及的灌浆因素较多, 一般通过试验方法很难做到综合分析。现有的灌浆因素分析主要集中在完整的岩土体, 对包含节理裂隙岩土体的情况研究较少。本文在自行建立含节理黄土微生物灌浆模型的基础上, 利用 COMSOL 软件通过数值模拟的方法, 重点考虑初始脲酶活性、胶结液浓度、节理开度等因素, 动态模拟出微生物溶液在节理-黄土体中的扩散过程, 以此分析各灌浆因素对节理开度变化和黄土体有效加固范围的影响。

1 运移扩散方程的建立

1.1 渗流方程

节理黄土体渗流方程的建立依据裂隙岩土体双重介质模型^[10], 黄土体非饱和渗流的 Richards 方程为

$$\frac{\partial}{\partial x_i} \left(k_{ij}^m \frac{\partial h}{\partial x_j} \right) \pm Q = \frac{\partial \theta_m}{\partial t} \quad (i, j = 1, 2) \quad (1)$$

式中 k_{ij}^m 为黄土渗透系数张量; $k_{ij}^m = k_{ij}^m(\theta)$, 由土水特征曲线来描述; h 为总水头; θ_m 为黄土体体积含水率, $\theta_m = n \cdot S_m$; Q 为黄土体渗流的源汇项, 包含与节理的水交换。

节理假定为竖直, 且节理面光滑, 节理介质的非饱和渗流通常称为水流连续性的“立方定律”,

$$\frac{\partial}{\partial x_i} \left(b k_{ij}^f \frac{\partial h}{\partial x_j} \right) \mp Q = \frac{\partial (b S_f)}{\partial t} \quad (i, j = 1, 2) \quad (2)$$

式中 b 为节理开度, $b = b(x, y, t)$; k_{ij}^f 为节理渗透系数张量, $k_{ij}^f = k_{fw} \cdot k_{fr}$, k_{fw} 为节理饱和渗透系数, k_{fr} 为节理相对渗透系数; S_f 为节理饱和度; Q 为节理与黄土体的水交换量。

式(1)、(2)的求解都需要用到土水特征曲线, 通常采用的是 V-G 模型^[11]:

$$\theta = \theta_r + \frac{\theta_s - \theta_r}{[1 + |\alpha h_p|^a]^\eta} \quad (3)$$

式中, θ_r 为节理或黄土的残余体积含水率, θ_s 为节理或黄土的饱和体积含水率, h_p 为节理或黄土的吸力水头, α, a, η 为试验拟合参数, 且 $\eta = 1 - 1/a$ 。

节理介质的饱和渗透系数采用立方定律, 再乘以相应的折减系数值,

$$k_{fw} = \frac{1}{b_f} \cdot \frac{\rho g b^2}{12\mu} \quad (4)$$

式中, b_f 为折减系数值, ρ, μ 分别为溶液的密度和溶液动力黏度系数, 取水的参数, 忽略微生物溶液组分浓度的变化导致其参数的改变, g 为重力加速度。

裂隙性土体中裂隙的饱和渗透系数值大约比土体饱和渗透系数值高 2~6 个数量级, 土体中节理(裂隙)的渗透系数目前尚未给出具体表达式, 有待进一步研究。根据课题组前期开展的天然黄土节理水流入渗试验^[12], 典型节理开度下, 节理的饱和渗透比黄土体高大约 2 个数量级; 按照立方定律求解出节理饱和渗透系数以后, 乘以折减系数 b_f , 使得与已有试验结果保持同一数量级, 以此保证数值计算时参数的合理性。

节理的相对渗透系数采用 Van Genuchten 给出的相应表达式:

$$k_{fw} = \frac{\{1 - |\alpha h_p|^{|\eta-1|} + |\alpha h_p|^{a-\eta}\}^2}{[1 + |\alpha h_p|^a]^{\eta/2}} \quad (5)$$

式(5)的参数同式(3)。

1.2 溶质运移方程

黄土体微生物溶液运移扩散方程采用的是对流-扩散-反应方程, 反应项包含孔隙率变化^[9]:

$$\frac{\partial (n S_m C^i)}{\partial t} = \square (D_m \square C^i) - \square (v_m C^i) + n S_m m_i r \quad (6)$$

式中 n 为孔隙率; C^i 为微生物溶液中反应物离子的浓度; ∇ 为哈密尔顿算子; D_m 为水动力弥散系数, $D_m = \beta v_m + D_0$, β 为弥散度, v_m 为渗流速度, D_0 为分子扩散系数; m_i 为化学计量数, $m_{urea} = m_{Ca^+} = -1$ 反应物中尿素和钙离子; 生成物铵根离子 $m_{NH_4^+} = 2$; r 为尿素水解速率。

r 的表达式是由米氏方程演化而来:

$$r = \frac{C_{urea} v_{max}}{K_m + C_{urea}} \left(1 - \frac{t}{t_{max}} \right) \quad (7)$$

式中, v_{max} 为初始脲酶活性, K_m 米氏常数, t_{max} 为灌浆时长。

节理介质中的反应性溶质运移扩散方程与黄土类似, 此时反应项包含节理开度变化:

$$\frac{\partial (b S_f C^i)}{\partial t} = \square (b D_f \square C^i) - \square (v_f C^i) + m_i r b, \quad (8)$$

式中, D_f 为节理中水动力弥散系数, v_f 为节理中溶液的流速, 其余参数同式(6)。

1.3 介质变化方程

碳酸钙沉淀填充黄土孔隙导致孔隙率减小:

$$\frac{\partial n}{\partial t} = - \frac{1}{\rho_{CaCO_3}} \frac{\partial C^{CaCO_3}}{\partial t} = - \frac{m_{CaCO_3}}{\rho_{CaCO_3}} n r \quad (9)$$

式中, ρ_{CaCO_3} 为碳酸钙的密度。

节理开度变化方程借助节理孔隙率^[13],参照黄土孔隙率的变化方程来推导,节理中碳酸钙沉淀的控制方程:

$$\frac{\partial C_f}{\partial t} = m_{\text{CaCO}_3}(\gamma b)r \quad (10)$$

式中, γ 为土体单位长度的节理数,假定为 1 m^{-1} 。

碳酸钙沉淀填充节理导致节理开度减小:

$$\frac{\partial b}{\partial t} = -\frac{m_{\text{CaCO}_3}}{\rho_{\text{CaCO}_3}}rb \quad (11)$$

联立式(6),(8),(9),(11),结合相应的物理场参数和边界条件,可对此偏微分方程组进行求解。

1.4 模型求解与定解条件

本文计算模型为宽度 120 cm ,高度 100 cm 的矩形区域,节理位于中间深度贯穿模型;假定节理竖直,且表面光滑。物理场中非饱和渗流场参数参考文献^[14],溶质运移参数参考文献^[15]。黄土的干密度取 1.43 g/cm^3 ,质量含水率为 20.4% ,暂不考虑黄土渗透系数的各向异性问题。模型上部边界:溶液沿节理灌浆口饱和下渗,孔隙水压力水头为 0 ;给定具体浓度值,采取细菌菌液和胶结液混合注入的方式。模型左右两侧为不透水边界且无溶质流出。模型底部边界:溶液可以自由流出,非饱和渗流场设为“流出”边界,浓度场设为“通量”边界。

物理方程的求解采用有限元仿真软件 COMSOL,对耦合的物理场进行求解。

2 灌浆因素分析

微生物灌浆模型最重要的求解因变量是溶液中离子的浓度。本节重点对初始脲酶活性、胶结液浓度、节理开度 3 个影响因素进行数值模拟分析,模拟时,依据单一变量原则,只改变要分析的某一因素的取值,其余因素取值不变。灌浆因素研究方案见表 1,初始脲酶活性(水解速率) r 与 v_{max} 的关系式参考文献^[16]。

表 1 灌浆因素研究方案

Table 1 Research program of grouting factors

v_{max}/r $(\text{kmol} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1})$	C_{in} $(\text{kmol} \cdot \text{m}^{-3}) \cdot \text{M}^{-1}$	b_0 $/\text{mm}$
9×10^{-5}	1	0.5

通过求解不同影响因素下的各离子浓度扩散情况及碳酸钙生成的扩散范围,可以对不同工艺下的灌浆效果进行评价,优化灌浆工艺,进一步了解节理黄土体微生物灌浆机制。

2.1 初始脲酶活性

细菌溶液中的脲酶活性对于微生物灌浆起决定作用,因为微生物灌浆的实质就是在脲酶的催化下,尿素

与氯化钙的混合溶液反应产生碳酸钙沉淀的过程。如果细菌溶液中的脲酶活性很低或者细菌死亡导致无脲酶活性,即电导率为 0 ,尿素无法水解,混合溶液的生物化学反应就不会发生,无法对节理黄土体进行加固。学者们对于脲酶活性的分析大致分为两类:①直接分析不同脲酶活性的值对加固效果的影响^[3];②通过脲酶分解尿素产生的铵根离子来间接反映脲酶的活性^[16]。

考虑初始脲酶活性分别为 1.5 倍,2.0 倍,2.5 倍,其余参数保持不变。模拟计算得到的灌浆口碳酸钙生成情况如图 1 所示。

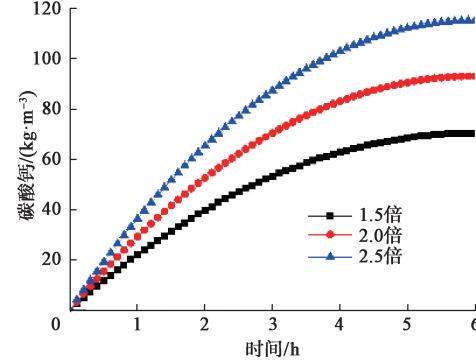


图 1 碳酸钙随时间的变化曲线

Fig. 1 Variation curves of joint aperture and calcium carbonate with time

从图 1 可以看出,碳酸钙的生成量随着尿素活性的增大而逐渐增大。说明在有限的注浆加固时间内,适当的提高酶促反应速率,加快尿素溶液的分解,加大碳酸钙的生成,可以更加有效地减小节理开度值。

铵根离子浓度间接反映了微生物灌浆过程中尿素水解速率的大小。图 2 给出了节理沿伸方向上不同脲酶活性所对应的浓度锋前端铵根离子浓度的变化曲线。

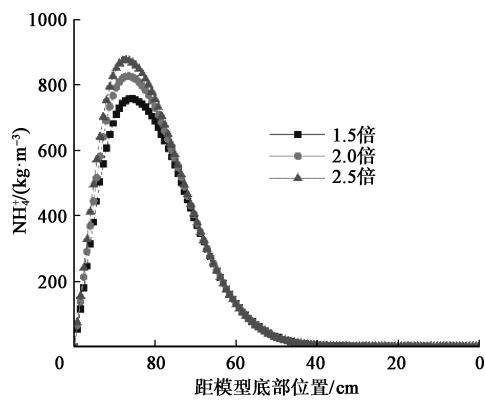


图 2 不同节理位置的铵根离子浓度

Fig. 2 Ammonium ion concentrations at different joint positions

曲线分为两种变化趋势:在距灌浆口 18 cm 范围内,铵根离子浓度的变化曲线呈现上升趋势,反映出该部分尿素水解速率较快,是节理的主要封堵加固区域;后部分由于尿素水解速率的降低,反应生成的铵根离子浓度逐渐变小,也间接的说明脲酶的活性逐渐在节理加

固区域被消耗掉。铵根离子浓度整体上随着脲酶活性的增大逐渐增大, 曲线斜率表示尿素的水解速率^[3]。

2.2 胶结液浓度

采用 3 种微生物胶结液浓度, 分别为 0.5, 0.7, 1 mol/L。为了探究相同胶结液用量下的含节理黄土微生物灌浆效果, 3 组模拟计算的时间分别为 6, 4, 3 h。不同胶结液浓度下不同节理位置处铵根离子变化曲线如图 3 所示。

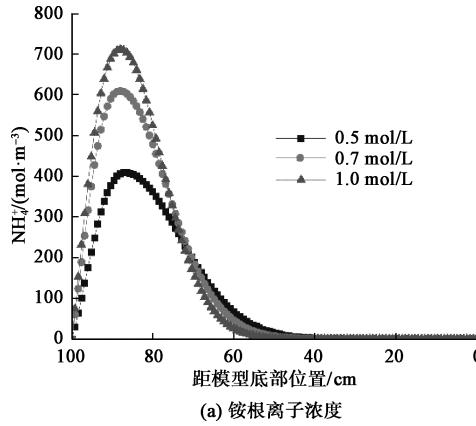


图 3 不同胶结液浓度的铵根离子浓度变化曲线

Fig. 3 Variation curves of ammonium ion concentration with different cement solution concentrations

由图 3 可知, 在距离节理灌浆口 25 cm 范围内, 胶结液浓度越高对应的产生铵根离子的浓度越高, 表明该尿素水解速率越高; 在 25 cm 范围之外, 出现了相反的情况: 胶结液浓度越高尿素的水解速率降低, 可能原因为在于在持续灌浆过程中, 胶结液中高浓度的钙离子可能会抑制尿酸的水解; 但对于节理裂隙中的尿素水解速率影响不大。高浓度的胶结液尿素水解速率高, 导致瞬间产生更多的碳酸钙, 近而堵塞了后续微生物溶液沿节理的下渗。但由于胶结液浓度低, 注入的微生物溶液需要更长的时间, 意味着注入的总微生物溶液的体积在增加, 相应的化学反应产生的废液量也再增加, 废液沿节理流向两侧土体的总流量增多, 会加大对土体强度的损伤。

2.3 节理开度

根据目前已有的含节理黄土的渗流研究结论可知, 节理开度是影响节理渗流的主要因素。由立方定律表示的节理饱和渗透系数值可知, 节理开度影响饱和渗透系数的大小, 进而影响微生物溶液沿节理的下渗, 最终影响节理-黄土体的加固效果。因此有必要分析节理开度对节理-黄土体微生物灌浆效果的影响。考虑节理开度分别为 0.5, 1, 1.5 mm, $b_f = 5 \times 10^{-5}$, 其余各物理参数见表 1。

图 4 给出了不同节理开度下孔隙率等值线的变化范围和生化反应生成碳酸钙的等值线的范围。由此可得到不同节理开度的有效加固范围如表 2 所示。

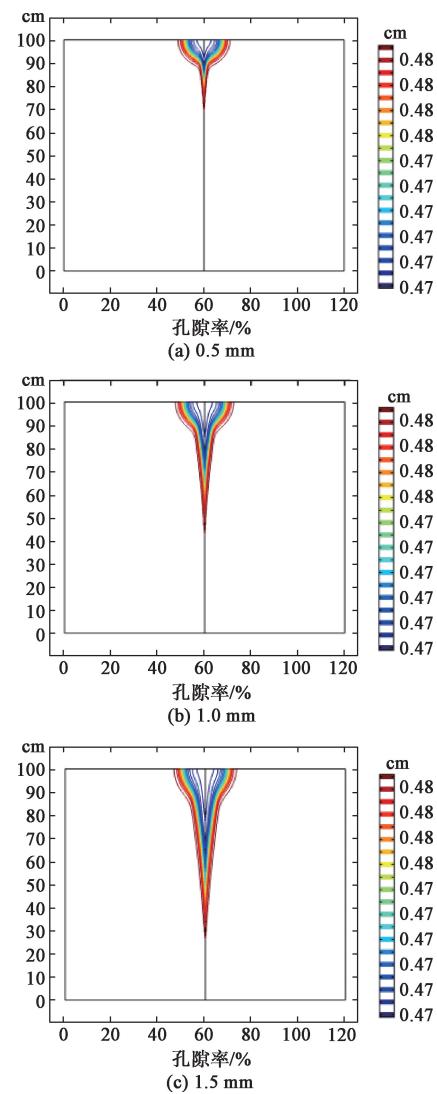


图 4 不同节理开度的孔隙率等值线图

Fig. 4 Contour diagram of porosity with different joint apertures
表 2 不同节理开度的有效加固范围

Table 2 Effective reinforcement areas with different joint apertures (cm)

节理开度	孔隙率		碳酸钙	
	减小深度	减小宽度	加固深度	加固宽度
0	22.16	8.59	30.67	11.17
10	44.40	9.68	57.51	12.44
15	60.34	10.43	74.00	13.37

由表 1 可知, 随着节理开度的逐渐增大, 黄土体的加固范围在逐渐增大。由于节理的开度较大, 单位时间内流经节理的微生物溶液增多, 导致微生物溶液沿节理向两侧土体扩散的范围增大, 进而在更大的范围反应产生碳酸钙沉淀, 相应的土体孔隙率减小的范围会逐渐增加。

3 结 论

本文在建立的含节理黄土微生物灌浆模型的基础上

上,利用有限元仿真软件 COMSOL 软件,通过考虑初始脲酶活性、胶结液浓度、节理开度等因素,动态模拟出微生物溶液在节理-黄土体中的扩散过程,以此分析各灌浆因素对节理开度变化和黄土体有效加固范围的影响,得到 3 点结论。

(1) 初始脲酶活性对于含节理黄土体的微生物灌浆起决定性作用,初始脲酶活性越高,单位时间内反应转化生成的碳酸钙越多,使得节理填充率越高。

(2) 在胶结液总量不变的情况下,不同胶结液浓度对黄土体有效加固区范围影响较小。但较高浓度的胶结液所产生的废液量较少。实际应用中,为兼顾加固效果和减少废液量,应选用适宜的胶结液浓度。

(3) 节理开度对于含节理黄土体在深度方向的加固效果要明显好于宽度方向,这与节理渗流规律接近。从不同灌浆因素的效果综合来看,靠近节理灌浆口位置处的加固效果优于其他位置,自由入渗加固含节理黄土体的深度有限。

参考文献:

- [1] DEJONG J T, MORTENSEN B M, MARTINEZ B C, et al. Bio-mediated soil improvement [J]. *Ecological Engineering*, 2010, **36**(2): 197–210.
- [2] WHIFFIN V S, VAN PAASSEN L A, HARKES M P. Microbial carbonate precipitation as a soil improvement technique [J]. *Geomicrobiology Journal*, 2007, **24**(5): 417–423.
- [3] 陈婷婷,程晓辉,郭红仙. 基于数值模拟的砂柱微生物注浆影响因素分析 [J]. *土木工程学报*, 2018, **51**(6): 111–119. (CHENG Ting-ting, CHENG Xiao-hui, GUO Hong-xian. Influence factors of bio-grouting precipitation in sand column based on numerical simulation analysis [J]. *China Civil Engineering Journal*, 2018, **51**(6): 111–119. (in Chinese))
- [4] 尹黎阳,唐朝生,谢约翰,等. 微生物矿化作用改善岩土材料性能的影响因素 [J]. *岩土力学*, 2019, **40**(7): 2525–2546. (YIN Li-yang, TANG Chao-sheng, XIE Yue-han, et al. Factors affecting improvement in engineering properties of geomaterials by microbial-induced calcite precipitation [J]. *Rock and Soil Mechanics*, 2019, **40**(7): 2525–2546. (in Chinese))
- [5] 李捷,方祥位,张伟,等. 菌液脲酶活性对珊瑚砂微生物固化效果的影响 [J]. *后勤工程学院学报*, 2016, **32**(6): 88–91, 96. (LI Jie, FANG Xiang-wei, ZHANG Wei, et al. Influence of urease activity of bacteria liquid on coral sand biocementation [J]. *Journal of Logistical Engineering University*, 2016, **32**(6): 88–91, 96. (in Chinese))
- [6] 赵志峰,孔繁浩. 土体环境对微生物诱导碳酸钙沉积加固海相粉土的影响研究 [J]. *防灾减灾工程学报*, 2018, **38**(4): 608–614, 692. (ZHAO Zhi-feng, KONG Fan-hao. Effects of soil environment on microbially induced calcite precipitation in marine silt [J]. *Journal of Disaster Prevention and Mitigation Engineering*, 2018, **38**(4): 608–614, 692. (in Chinese))
- [7] 彭劼,何想,刘志明,等. 低温条件下微生物诱导碳酸钙沉积加固土体的试验研究 [J]. *岩土工程学报*, 2016, **38**(10): 1769–1774. (PENG Jie, HE Xiang, LIU Zhi-ming, et al. Experimental research on influence of low temperature on MICP-treated soil [J]. *Chinese Journal of Geotechnical Engineering*, 2016, **38**(10): 1769–1774. (in Chinese))
- [8] 彭劼,冯清鹏,孙益成. 温度对微生物诱导碳酸钙沉积加固砂土的影响研究 [J]. *岩土工程学报*, 2018, **40**(6): 1048–1055. (PENG Jie, FENG Qing-peng, SUN Yi-cheng. Influence of temperature on MICP-treated soils [J]. *Chinese Journal of Geotechnical Engineering*, 2018, **40**(6): 1048–1000. (in Chinese))
- [9] WIJNGAARDEN W K V, VERMOLEN F J, MEURS G A M V, et al. Modelling biogrout: a new ground improvement method based on microbial-induced carbonate precipitation [J]. *Transport in Porous Media*, 2011, **87**(2): 397–420.
- [10] 卢刚,周志芳. 降雨入渗下互层状裂隙岩体非饱和渗流分析 [J]. *岩土工程学报*, 2008, **30**(9): 1399–1403. (LU Gang, ZHOU Zhi-fang. Analysis of unsaturated seepage in inter-bed layered fractured rock mass with rainfall infiltration [J]. *Chinese Journal of Geotechnical Engineering*, 2008, **30**(9): 1399–1403. (in Chinese))
- [11] VAN GENUCHTEN M T. A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils [J]. *Soil Science Society of America Journal*, 1980, **44**(5): 892–898.
- [12] LIU X J, LIN C, ZHANG X, et al. Model test study on seepage of jointed loess [J]. *Soil Mechanics And Foundation Engineering*, 2020, **57**(4): 316–321.
- [13] STEEFEL C I, LICHTNER P C. Multicomponent reactive transport in discrete fractures: I. Controls on reaction front geometry [J]. *Journal of Hydrology (Amsterdam)*, 1998, **209**(1/2/3/4): 186–199.
- [14] 王铁行,卢靖,岳彩坤. 考虑温度和密度影响的非饱和黄土土-水特征曲线研究 [J]. *岩土力学*, 2008, **29**(1): 1–5. (WANG Tie-hang, LU Jing, YUE Cai-kun. Soil-water characteristic curve for unsaturated loess considering temperature and density effect [J]. *Rock and Soil Mechanics*, 2008, **29**(1): 1–5. (in Chinese))
- [15] 霍吉祥,宋汉周,管清晨. 基于表面反应和扩散迁移控制的灰岩单裂隙渗流-溶解模型及其数值模拟 [J]. *四川大学学报(工程科学版)*, 2014, **46**(5): 42–48. (HUO Jixiang, SONG Han-zhou, GUAN Qing-chen. Model of coupled fluid flow and chemical dissolution controlled by surface reaction and mass transfer in a single limestone fracture and its numerical simulation [J]. *Journal of Sichuan University (Engineering Science Edition)*, 2014, **46**(5): 42–48. (in Chinese))
- [16] VAN WIJNGAARDEN W K, VAN PAASSEN L A, VERMOLEN F J, et al. A reactive transport model for biogrout compared to experimental data [J]. *Transport in Porous Media*, 2016, **111**(3): 627–648.