تاثیرعملیات نورد گرم بر مقاومت سایشی کامپوزیت تنگستن-۲۰٪ وزنی مس

هویار عطار[i]، نادر پروین[ii]

چکیده

کامپوزیت تنگستن-۲۰٪وزنی مس، بوسیله رخنه دهی مس مذاب به درون پودر تنگستن ساخته می‌شود. برای رسیدن به چگالش کامل، می‌توان علاوه بر بهینه سازی روشهای تولید از فرایند نورد نیز استفاده کرد. نورد این کامپوزیت به علت مقدار بالای تنگستن، انعطاف پذیری پایین آن وحلال نبودن تنگستن و مس دریکدیگر، در بیشترموارد با ترک خوردن قطعه همراه می‌باشد. اجرای عملیات نورد در دمای°C ۵۵۰، همراه با کاهش سطح مقطع ۵٪ درهرپاس، رسیدن به ۳۵٪ کاهش ضخامت را ممکن ساخت. مقاومت سایشی کامپوزیت بعد از عملیات نورد به علت کاهش میزان حفره ها و افزایش سطح تماس پین ساینده با سطح تماسی، به میزان ۴۶٪ بهبود یافت. همچنین دیده شد که مکانیزم سایش از نوع ساینده در بسیاری از سطوح بود. چگالش کامپوزیت بعد از نورد به میزان۱۲٪ افزایش یافت. اجرای عملیات نورد گرم در دماهای بالاتر برتری نداشت و فقط پدیده اکسیداسیون مس را تشدید کرد.

کلمات کلیدی

نورد گرم، کامپوزیت تنگستن- مس، مقاومت سایشی، چگالی

The Effect of Warm Rolling on the Wear Resistance of W-20 wt % Cu Composite

Hooyar Attar, Nader Parvin

ABSTRACT

W-20%wt Cu composite has been produced through infiltration technique, in which higher density may not be achieved since there are pores which are not filled by molten copper. Rolling may be performed to achieve full density; however, this may lead to initiation of cracks due to low formability of this composite and negligible solubility of W and Cu. This was achieved at 550 °C with 5% reduction in cross sectional area in each rolling pass. The treatments lead to an increase in wear resistance and density by 46% & 12% respectively. Rolling at higher temperatures was not beneficial, but promoted the oxidation of W and Cu.

KEYWORDS

Warm Rolling, W-Cu Composite, Wear Resistance, Density

[i] کارشناسی ارشد مهندسی متالورژی- دانشگاه صنعتی امیرکبیر- دانشکده مهندسی معدن و متالورژی، hooyarsite@yahoo.com

[ii] استادیار- دانشگاه صنعتی امیرکبیر- دانشکده مهندسی معدن و متالورژی، nparvin@aut.ac.ir

۱- مقدمه

کامپوزیتهای W-Cu گروهی از آلیاژ های سنگین تنگستن هستند که به علت خواص الکتریکی و حرارتی پایدار مس و نقطه ذوب و مقاومت سایشی بالای تنگستن به همراه فشار بخار پایین آن، کاربرد گسترده ای برای کنتاکتهای الکتریکی و سینکهای حرارتی دارند[۱]. خواص مکانیکی و فیزیکی مناسب کامپوزیت های W-Cu در بسیاری از کاربردها به چگالی زیاد و توزیع یکنواخت و ریز ذرات تنگستن درون زمینه مس، بستگی دارد [۱].

این نوع کامپوزیت ها با دو روش تجاری تفجوشی فاز مایع و رخنه دهی مذاب تولید می‌شوند[۲]. اما چگالی کامل با این دو نوع روش حاصل نمی‌شود و حفره های باقیمانده می‌توانند برای خواص فیزیکی و مکانیکی کامپوزیت زیان بار باشند. برای بهبود خواص فیزیکی و مکانیکی این نوع کامپوزیت ها می‌توان علاوه بر بهینه سازی شرایط تولید، از کار مکانیکی نیز استفاده کرد . کامپوزیت های W-Cu بر خلاف سایر آلیاژهای تجاری سنگین تنگستن (W-Ni-Cu

W-Ni-Fe) که در آنها حلالیت بین ذرات و زمینه وجود دارد، هیچگونه حلالیتی چه در حالت جامد و چه در حالت مایع ندارند. بنابراین استحکام فصل مشترک W/Cu به علت نداشتن حلالیت متقابل، کم است[۲].

برای سیستم W-Cu تفاوتهای بزرگی از لحاظ مدول الاستیک و سختی تنگستن با مس وجود دارد که در حین تغییر فرم می تواند تأثیر گذار باشد. به علاوه دماهای ذوب تنگستن (۳۴۱۰ °C) و مس (۱۰۸۳ °C) خیلی متفاوت هستند و بنابراین دمای کاری تغییر فرم می‌تواند بالای دمای تبلور دوباره مس (۴۰۰ °C) و زیر دمای تبلور دوباره تنگستن (۱۰۰۰ °C) باشد. یکی از راههای تغییر فرم مکانیکی برای کاهش حفره ها، استفاده از عملیات نورد می‌باشد. چگالی نسبی اندازه گیری شده حاصل از روشهای تجاری تولید کامپوزیت W-Cu (۸۵٪ - ۷۵٪) را می‌توان با استفاده از این روش به مقدار ۱۰۰٪ رساند[۴-۳].

تلاشهایی برای نورد کامپوزیت های W-۲۰٪Cu صورت گرفته است که در اکثر موارد به علت انعطاف پذیری پایین، مقدار بالای تنگستن و ترک خوردگی قطعه بعد از کاهش سطح مقطع، ناموفق بوده است [۵]. البته Belk و همکارانش[۴] تحقیقی از کامپوزیت تنگستن- مس با در صدهای وزنی مختلف از تنگستن را در دمای اتاق گزارش کرده اند[۴].

به طور کل فاکتورهای مؤثر در نورد کامپوزیت های W-Cu؛ روش ساخت کامپوزیت، در صد وزنی تنگستن، استحکام فصل مشترک ، توزیع یکنواخت ذرات تنگستن در زمینه مس، تعداد پاسهای نورد، کاهش سطح مقطع در هر پاس، دمای نورد و سایر عوامل مرتبط می‌باشند .

با کاهش درصد میزان حفره ها توسط عملیات نورد، علاوه بر افزایش سختی و استحکام می‌توان مقاومت سایشی را نیز افزایش داد که می‌تواند کاهش هزینه ها را در جاهایی که از کامپوزیت به عنوان ماده مقاوم به سایش استفاده می شود، در بر داشته باشد.

هدف از این تحقیق بررسی تأثیر عملیات نورد گرم روی کامپوزیت W-۲۰٪Cu با هدف بررسی تغییرات مقاومت سایشی و چگالی می‌باشد.

۲- روش انجام آزمایش

از پودر تنگستن(Merck) با ابعاد (۸-۷ μ m) و با خلوص (۵٪ / ۹۹) برای تهیه اسکلت تنگستن متخلخل و از ورقه های کاتدی مس برای رخنه دهی نمونه ها و از کبالت(۰/۸ درصد وزنی) به عنوان بهبود دهنده تفجوشی استفاده شد . نمونه ها در فشار ۲۵۰ MPa پرس شده و در دمای ۱۴۰۰ °C و به مدت ۲ ساعت برای تهیه اسکلت تنگستنی در اتمسفر احیایی هیدروژن تحت تفجوشی قرار گرفته سپس قطعات در دمای ۱۳۰۰ °C تحت عملیات رخنه دهی قرار گرفتند. نمونه های رخنه دهی شده تا رسیدن به دمای محیط، در کوره با اتمسفر کنترل شده و شیب دمای ۱۰ °C/min سرد شدند و در پایان نمونه هایی با ترکیب شیمیایی W-۲۰٪Cu و چگالی نسبی ۸۳/۲٪ برای انجام عملیات نورد گرم بدست آمدند .

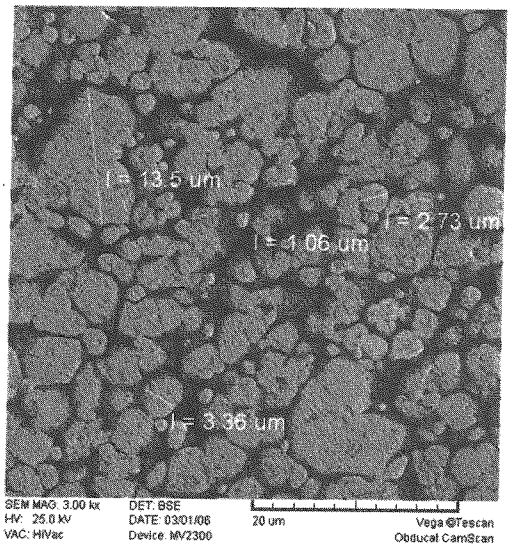
نمونه هایی به صورت صفحه ای شکل(۳mm × ۲۰/٤ × ۹۸) و با ضخامت اولیه ۳ mm تهیه شده و در کوره پیش گرم تحت محیط آرگون در دماهای ۵۵۰°C، ۶۵۰ °C، ۷۵۰ °C و۸۵۰ °C پیش گرم و در پاسهایی با کاهش سطح مقطع ۵٪ نورد شدند.

نمونه‌های حاصل از نورد، تحت آزمونهای سایش و چگالی سنجی قرار گرفتند. برای انجام آزمون سایش، از دستگاه پین روی دیسک استفاده شد، بدین صورت که ابتدا دیسکهایی به قطر ۲۳ mm توسط دستگاه برش وایرکات تهیه شد سپس سطوح آنها تا سنباده ۲۰۰۰، ساییده شدند و برای پاکسازی کامل سطوح از دستگاه اولتراسونیک استفاده شد و نمونه‌ها به صورت مجزا درون قالبی چرخان که برای نگهداری نمونه‌ها ساخته شده بود، قرار گرفتند. از پین‌هایی به قطر ثابت ۵mm و ارتفاع ۲٤mm و جنس مواد بلبرینگ (۵۲۱۰۰) با سختی ۶۵Rc استفاده شد. نیروی اعمالی در این آزمون مقدار ثابت ۵N، مسافت لغزشی در همه مراحل ۵۵۰m و سرعت حرکت قالب به دورپین ۷۲۳ rpm بود. گفتنی است که آزمون بدون روانساز

انجام شد. چگالی سنجی نمونه‌ها به روش ارشمیدس صورت گرفت.

۳- نتایج و بحث

شکل(۱) تصویر میکروسکوپ الکترونی (SEM) نمونه کامپوزیت W -٪۲۰Cu را قبل از نورد نشان می‌دهد. در تصویرSEM، مناطق سفید متمایل به خاکستری ذرات تنگستن و مناطق سیاه، مس هستند.



شکل(۱): تصویر ریز ساختار کامپوزیت تنگستن-۲۰٪مس قبل از نورد گرم در جهت افقی

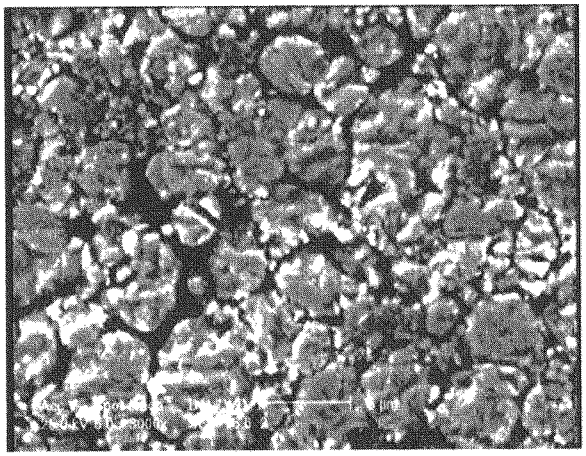
همانطور که از شکل مشخص است ذرات تنگستن، شکل شبه کروی دارند و توزیع ذرات مس در میان ذرات تنگستن در حین رخنه دهی مذاب حالت ایده‌آلی ندارد و همین مساله روی فرایند تغییر شکل نورد گرم، تأثیر منفی می‌گذارد.

به طور کل یکی از فاکتورهای مهم در افزایش میزان انعطاف‌پذیری کامپوزیتهای تنگستن – مس و بهینه سازی فرایند ساخت است. با اعمال شرایط مناسب تولید به گونه‌ای که توزیع ذرات یکنواخت تر باشد؛ می‌توان به انعطاف پذیری تا ۱۰٪ دست یافت.

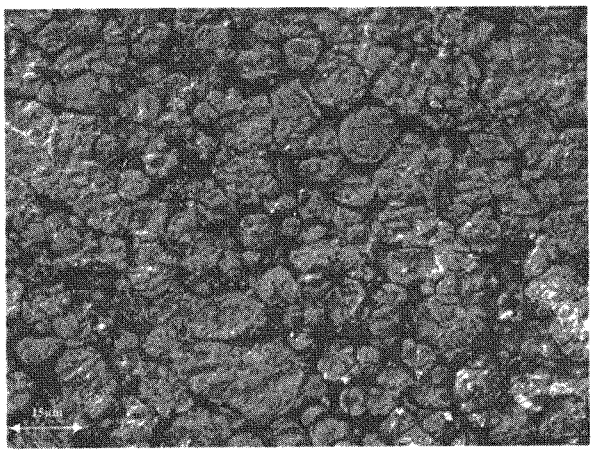
فرایند نورد گرم در ٤ دما انجام گرفت که بهترین کاهش سطح مقطع (۳۵٪) در دمای ۵۵۰°C حاصل شد. علت انتخاب دماهای بالاتر از ٤۵۰°C، شروع پدیده تبلور دوباره ذرات مس در حین تغییر فرم می‌باشد. در واقع در تمام گستره‌های دمایی کمتر از ۱۰۰۰°C و بالاتر از٤۵۰°C، مس کار گرم شده و تنگستن کارسرد می‌شود. انجام فرایند نیز در دمای بالا تراز °C ۱۰۰۰ (که دمای شروع آنیل تنگستن می‌باشد) به علت نزدیکی به نقطه ذوب مس و خمیری شدن آن نتیجهٔ دلخواهی را نمی‌دهد. انجام فرایند نورد گرم در دمای ۶۵۰°C و ۷۵۰°C، باعث شکست قطعه در کاهش سطح مقطع ۱۰٪ و ۱۷٪ شد و همچنین انجام فرایند در دمای ۸۵۰°C، نه تنها باعث بهبود میزان کاهش سطح مقطع نشد، بلکه باعث تشدید فرایند اکسیداسیون مس و تنگستن شد و در پایان قطعه در کاهش سطح مقطع ۲۰٪ شکسته شد. یکی از نکات قابل توجه در انجام فرایند، شروع دمای اکسیداسیون مس می‌باشد. با توجه به اینکه دمای اکسیداسیون مس از ۱۹۰°C شروع می‌شود[۶]، با افزایش دمای فرایند، اکسیداسیون مس زیاد می‌شود ولی از طرفی تا دمای ۵۵۰°C، که بالاترین کاهش سطح مقطع حاصل شد نیز باید دما را بالا برد که این دو مساله در تقابل با هم هستند. بلک[۴] در تحقیق خود می‌گوید که انجام فرایند در دماهای بالاتر از ۴۵۰°C، هیچ گونه مزیتی نسبت به ۴۵۰°C ندارد که در اینجا با توجه به نتایج بدست آمده، درست می‌باشد.

همانطور که دیده شد ذرات شبه کروی تنگستن توسط یک زمینه نرم مس، احاطه شده‌اند. ذرات تنگستن تنش سیلان بالاتر، چگالی بیشتر و نرخ کرنش سختی پایین‌تری نسبت به زمینه مس دارند. تنش سیلان کمتر زمینه، به آن اجازه می‌دهد که در آغاز تغییر فرم، زمینه تغییر فرم را در خود متمرکز کند و همزمان با تغییر فرم، تبلور دوباره مس نیز رخ می‌دهد و این موضوع تا میزان کاهش سطح مقطع ۲۵٪ رخ می‌دهد که ذرات تنگستن همچنان شکل شبه کروی خود را حفظ می‌کنند. شکلهای(۲) و(۳)، تصاویر الکترونی ریز ساختار قطعه پس از ۱۰٪ و ۲۵٪ کاهش سطح مقطع، را نشان می‌دهد. همانطور که از شکلها مشخص است تا مقدار ۲۵٪ همچنان حالت شبه کروی ذرات تنگستن حفظ شده است.

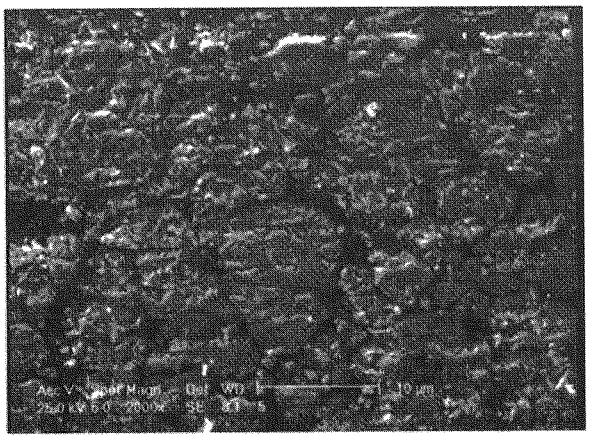
اگر به شکل (٤)،دقت شود مشخص می‌شود که در کاهش سطح مقطع ۳۵٪، ذرات تنگستن شروع به کشیده شدن در جهت نورد کرده‌اند. به نظر می‌رسد علت آن بدین صورت است که بعد از آنکه تغییر فرم اولیه در فاز زمینه مس متمرکز می‌شود برخلاف وقوع تبلور دوباره در فاز مس، میزان کار سختی در مس نسبت به آنیل شدن بیشتر است.



شکل(۲): تصویر ریز ساختار کامپوزیت تنگستن-۲۰٪مس بعداز ۱۰٪ نورد(جهت نورد: افقی).



شکل(۳): تصویر ریز ساختار کامپوزیت تنگستن-۲۰٪مس بعداز ۲۵٪ نورد(جهت نورد: افقی).



شکل(۴): تصویر ریز ساختار کامپوزیت تنگستن-۲۰٪مس بعد از ۳۵٪نورد گرم(جهت نورد: افقی).

فاکتور مهمی که می‌بایست در نظر داشت، انواع مختلف تغییر فرم می‌باشد. یعنی اینکه برای انجام یک تغییر شکل موفق، یک منطقه از ماده می‌بایست توانایی تحمل تغییر شکل را داشته باشد و این زمانی میسر است که ماده پنج سیستم لغزش مجزا را داشته باشد که هر کدام از سیستمهای لغزشی نیز یک صفحه و جهت لغزش دارد. حال، کمبود تعداد کافی سیستمهای لغزشی مجزا، دلیل اصلی برای شکست زود هنگام در مواد می‌باشد. در کامپوزیت تنگستن – مس نیز به نظر می‌رسد که وضعیتی مشابه رخ می‌دهد. با توجه به اینکه مس ساختار FCC دارد، به علت تقارن و وجود دوازده سیستم لغزش فعال، امکان انتخاب تعداد زیادی سیستم لغزشی در آن وجود دارد، از طرفی تنگستن ساختار BCC دارد و مشخص است که مهم ترین علت تردی آن، نبود تعداد کافی سیستم لغزشی می‌باشد. حتی در دما های بالا نیز این سیستمهای لغزشی فعال نمی‌شوند. پس می‌توان نتیجه گرفت که هنگام اعمال نیرو در فرایند نورد گرم، به علت تنش سیلان پایین‌تر و نرخ کار سختی بالاتر در زمینه مس، نیرو در آنجا متمرکز شده و فاز مس شروع به تغییر شکل می‌کند و خطوط لغزشی تولید شده در آن در سر راه خود به موانعی سخت همچون ذرات تنگستن و حتی ناخالصیها برخورد می‌کنند و از آنجا که تنگستن، حتی در دماهای بالاتر از ۵۰۰°C، سیستم‌های لغزشی فعال به اندازه کافی ندارد، نقش یک مانع سخت را بازی می‌کند و ترک شروع به جوانه زنی می‌کند و قطعه می‌شکند.

همانطور که درقسمت آزمایش، عنوان شد مقاومت سایشی نمونه های کامپوزیتی تنگستن-۲۰٪مس توسط دستگاه پین روی دیسک، اندازه گیری شد. معیار اندازه گیری مقاومت سایشی، کاهش وزن بود. جدول(۱)، مشخصات کامل میزان سایش(افت وزن) برای ۳ مقدار کاهش سطح مقطع نورد ۱۰٪، ۲۵٪ و ۳۵٪ و همچنین برای نمونه قبل از نورد را نشان می‌دهد.

جدول(۱): مشخصات قطعات ساییده شده.

مسافت لغزش(m)	وزن دیسک قبل از نورد(g)	وزن دیسک بعد از ۱۰٪	وزن دیسک بعد از ۲۵٪	وزن دیسک بعد از ۳۵٪
۰	۱۸/۵۱۴۵	۱۶/۲۴۵۶	۱۳/۰۶۴۴	۱۱/۹۶۷۶
۱۰۰	۱۸/۵۱۰۷	۱۶/۲۴۲۰	۱۳/۰۶۱۴	۱۱/۹۶۳۸
۲۵۰	۱۸/۵۰۵۶	۱۶/۲۳۸۴	۱۳/۰۵۶۹	۱۱/۹۶۰۵
۴۰۰	۱۸/۵۰۰۶	۱۶/۲۳۲۹	۱۳/۰۵۴۷	۱۱/۹۵۹۳
۵۵۰	۱۸/۴۹۵۹	۱۶/۲۳۱۲	۱۳/۰۵۲۴	۱۱/۹۵۷۶

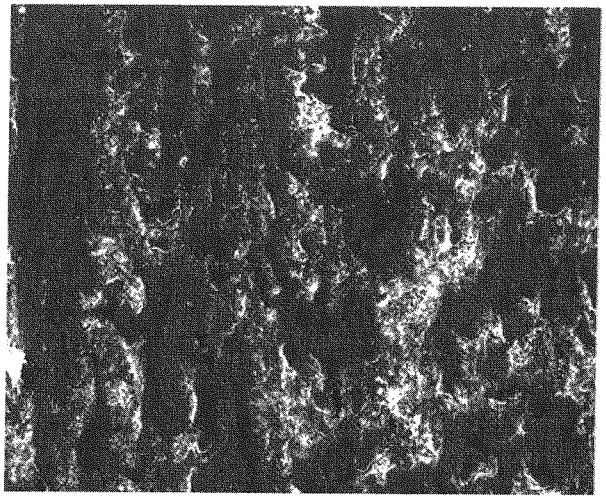
همانطور که از جدول مشخص است میزان افت وزن برای نمونه قبل از نورد، ٪۱۰، ٪۲۵ و ٪۳۵ نورد شده به ترتیب ۱۸/٦، ۱٤،۱۲/٤ و ۱۰ میلی‌گرم بوده است. همچنین میزان افت وزن پین در هر ٤ آزمون سایش کمتر از ۰/٤ میلی‌گرم بوده است، بنابراین سایش پین توسط دیسک، نسبت به سایش دیسک نامحسوس است.

چگالی نسبی اندازه گرفته شده کامپوزیت W-20%Cu برای نمونه قبل از نورد، ٪۱۰، ٪۲۵ و ٪۳۵ نورد، به ترتیب٪۸۳/۲، ٪۸۷/٤، ٪ ۹۱/۸ و٪ ۹۵/۲ بود. می‌توان موضوع را از یک دید دیگرنیز بررسی کرد که ٤ نوع کامپوزیت با ٪۱٦/۸، ٪۱۲/٦، ٪ ۸/۲ و٪٤/۸ حفره، تحت آزمون سایش قرار گرفته‌اند و تاثیر نورد را در نظر گرفته و اثر حفره بررسی شود.

در ابتدا می‌توان گفت که حفره در سطح سایش کامپوزیت، سطح تماس در برابر سطح ساینده مقابل را کم می‌کند و با توجه به اینکه نیروی اعمالی در آزمون مقدار ثابت 5N بود و همچنین سطح تماس سطح ساینده (پین) mm^2 ۷۸/۵ می‌باشد، پس می‌بایست تنش اعمالی در حین تماس MPa ۰/۰٦٤ باشد که این طور نیست. زیرا وجود حفره، تنش سایش خالص را که پین روی دیسک وارد می‌کند را افزایش می‌دهد و باعث افزایش نرخ سایش می‌شود.

یکی دیگر از فاکتورهای موثر در افزایش نرخ سایش، دما می‌باشد. هنگام اعمال نیرو، به خاطراصطکاکی که بین دو سطح پین و دیسک ایجاد می‌شود، دما افزایش می‌یابد و این افزایش دما می‌تواند منجر به کاهش بیشتراستحکام فصل مشترک بین زمینه(مس) و تقویت کننده(تنگستن) شود و باعث بیرون کشیده شدن ذرات در حین سایش شود. شکل(۵) مورفولوژی سطح ساییده شده کامپوزیتW -٪۲۰ Cu را برای حالت بعد از ٪۳۵ نورد برای نیروی 5N و مسافت ۵۵۰m نشان می‌دهد. شیارهای زیاد درجهت سایش در شکل، مشخصه سایش ساینده می‌باشند. این شیار ها، در تمام نمونه های سایش دیده شده است.

شکل(۵)، مشخصه سایش اکسیداسیونی نیز است. (قسمت سفید رنگ در تصویر) که دربیشترقسمتهای سطوح سایش نمونه های کامپوزیتی، دیده شد. همانطور که گفته شد سازوکارسایش، ساینده می‌باشد. علت پیدایش چنین سیمایی، شکستن یا کنده شدن قطعاتی از سطح وقرار گرفتن این ذرات جدا شده در بین سطوح در حال سایش می‌باشد که در نتیجه آن شیارهایی در جهت سایش شکل می‌گیرد ولی به نظر می‌رسد که پراکندگی و نیز عمق و پهنای کم این شیارها در سطح نمونه‌های آزمایش شده نشان از استحکام نسبی بالای کامپوزیت، بویژه ذرات تقویت کننده(تنگستن)، در شرایط آزمایش شده باشد.



شکل(۵): مورفولوژی سطح کامپوزیت تنگستن-۲۰٪مس ۳۵٪نورد شده بعد از سایش

٤- نتیجه گیری

با توجه به آزمایش های انجام شده و نتایج حاصل، می‌توان در چند بند، خلاصه نتایج گزارش داده شود.

۱- در فرایند نورد گرم کامپوزیت تنگستن-۲۰٪مس، کل تغییر فرم تا قبل از ۲۵٪در فاز مس محدود می‌شود وعلت آن عدم کشیدگی ذرات تنگستن تا قبل ازاین تغییر فرم می‌باشد. همچنین تنش سیلان پایین تر، نرخ کار سختی بالا تر و سختی کمتر مس نسبت به تنگستن به نظر می‌رسد که باعث تمرکز تغییر فرم اولیه در فاز مس می‌شود.

۲- در مطالعه میکروسکوپی کامپوزیت، بعد از ۳۵٪ نورد، نشانه هایی از کشیدگی ذرات تنگستن دیده شد که بعد از آن قطعه، دچار شکستگی شد که علت آن را می‌توان در نبودن سیستمهای لغزشی کافی در ذرات تنگستن بر خلاف فاز مس دانست که امکان تغییر فرم های بیشتر را با مشکل روبرو کرد.

۳- بیشترین مقدار تغییر فرم(۳۵٪) در دمای $550^{\circ}C$، حاصل شد که به نظر می‌رسید هر چه قدر دما بالاتر رود نه تنها تاثیر مثبت نداشت، بلکه باعث شکست سریع تر کامپوزیت شد که علت آن را می‌توان در افزایش سیلان فاز مس در اثر افزایش دما و سپس همراهی نکردن متقابل ذرات تنگستن با این تغییر شکل دانست که باعث شکست قطعه می‌شود. همچنین افزایش دما، اکسیداسیون فاز مس را بیشتر کرد.

۴- همانطور که از نتایج حاصل شد مقاومت سایشی و چگالی نسبی بعد از انجام عملیات نورد گرم، افزایش یافت.

۵- علت افزایش در مقاومت سایشی کامپوزیت را می‌توان در کاهش تعداد حفره ها بعد از نورد دانست که باعث افزایش سطح تماس بین پین و کامپوزیت در نیروی ثابت می‌شود.

۵- مراجع

[۱] Hyun-Ki Kang; "Tungsten/Copper composite plates prepared by a modified powder-in-tube method", Scripta Materiala, vol. 51, p.p. 473-477, 2004.

[۲] N.C.Kothari; "Factors Affecting Tungsten-Copper and Tungsten-Silver Electrical Contact Materials", Powder Metallurgy, vol. 14, No 3, p.p. 138-143, 1982.

[۳] E.Fortuna; W.Zielinski; "TEM characterization of the microstructure of a tungsten heavy alloy", Materials Chemistry and Physics, vol. 81, p.p. 469-471, 2003.

[۴] J.A Belk; M.R. Edwards; "Deformation behavior of tungsten-copper composites", Powder Metallurgy, vol. 36, No 4, p.p. 293-296, 1993.

[۵] D.L.Houck; J.R.Spencer; "Ductility of W/Cu Alloys", Proceedings of the Third International Conference on Tungsten and Refractory Metals, Princeton, p.p. 21-28, 1996.

[۶] N. Tachikawa;" Crack Propagation behavior of a tungsten-copper duplex structure subjected to thermal loading." Japan atomic Energy Research Institute, p.p. 663-665, 1989.