

SAC METAL ŞEKİLLENDİRME KALIPLARINDA KULLANILAN BİZMUT-KALAY DÖKÜM ALAŞIMLARININ MEKANİK ÖZELLİKLERİNİN İNCELENMESİ

*İsmail DURGUN**
*Kurtuluş YİĞİT***
*Hakan AYDIN***
*Ali BAYRAM***

Alınma: 08.06.2016; düzeltme: 20.07.2017; kabul: 15.09.2017

Öz: Bu çalışmada, prototip sac metal kalıplılığında kullanıma uygun ötektik ve ötektik civarı (ötektikaltı ve ötektiküstü) Bi-Sn alaşımlarının mekanik özellikleri incelenmiştir. Üretilen bu alaşımların mekanik özelliklerini belirlemek üzere alaşımlara sertlik, çekme ve basma testleri uygulanmıştır. Ötektiküstü alaşımlarda Bi artışı ile sertlik artarken, ötektikaltı alaşımlarda sertlik Bi artışı ile azalmıştır. Maksimum sertlik değeri %60 Bi içeren ötektikaltı alaşımda elde edilmiştir. Alaşımların çekme mukavemetleri ise genel itibariyle Bi artışıyla azalmıştır. En yüksek çekme mukavemeti değeri, %51 Bi oranındaki ötektiküstü alaşımda elde edilmiştir. Ötektiküstü alaşımların uzama oranları genel itibariyle ötektikaltı alaşımlardan daha yüksektir. Maksimum uzama oranı ise ötektik alaşımda elde edilmiştir. Diğer taraftan, alaşımların basma mukavemetleri Bi oranı ile azalmıştır. En yüksek basma mukavemeti değeri de, %51 Bi oranındaki ötektiküstü alaşımda elde edilmiştir.

Anahtar Kelimeler: Sac Metal Şekillendirme Kalıpları, Bizmut-Kalay Alaşımları, Mekanik Özellikler.

Investigation of Mechanical Properties of Bismuth-Tin Cast Alloys Used In Sheet Metal Forming Dies

Abstract: In this study, mechanical properties of eutectic and near eutectic (hypoeutectic and hypereutectic) Bi-Sn alloys for use in prototype sheet metal die were investigated. In order to determine the mechanical properties of these alloys, hardness, tensile and compression tests were performed. Hardness in hypereutectic alloys increased with increasing the amount of Bi while hardness in hypoeutectic alloys decreased with increasing the amount of Bi. Maximum hardness was obtained in the hypoeutectic alloy containing 60% (wt.) Bi. Tensile strength of the alloys generally decreased with increasing the amount of Bi. The highest tensile strength was obtained in the hypereutectic alloy containing 51% (wt.) Bi. Elongation values of the hypereutectic alloys are generally higher than that of the hypoeutectic alloys. Maximum elongation was obtained in the eutectic alloy. On the other hand, the compression strength of the alloys decreased with increasing the amount of Bi. The highest compression strength was also obtained in the hypereutectic alloy containing 51% (wt.) Bi.

Key Words: Sheet Metal Forming Dies, Bismuth-Tin Alloys, Mechanical Properties.

* TOFAŞ Türk Otomobil Fabrikası A.Ş., 16369, Osmangazi-Bursa, Türkiye

** Uludağ Üniversitesi, Mühendislik Fakültesi, Makine Mühendisliği Bölümü, 16059, Görükle-Bursa, Türkiye

İletişim Yazarı: Hakan Aydın (hakanay@uludag.edu.tr)

1. GİRİŞ

Otomotiv endüstrisinde sac şekillendirme kalıpları, kesme, delme, bükme, derin çekme gibi çeşitli sac metal uygulamaları için kullanılmaktadır. Sac metal kalıp ve takım yapımı, çok yüksek hassasiyet gerektiren mühendislik çalışmalarından biridir. Bu süreç, yüksek hassasiyete sahip takım tezgâhları ve deneyimli iş gücü gerektirir. Sac metal kalıp üretimi, tasarım çalışmasından başlayarak kalıp tasarımı, ön talaşlı imalat, ısıtma işlemi, son talaşlı işlem ve kalıp montajı gibi aşamaları içerir. Talaşlı işlem süreci, döküm ve/veya plastik deformasyon sonrası malzeme kesimi, delme, şekil verme, frezeleme, tormalama, taşlama ve honlama gibi modern CNC takım tezgâhları işlemlerini içerir. Kısacası, otomotiv sanayinde kullanılan sac metal kalıplarının üretimi yüksek maliyetleri yanında uzun bir zaman da gerektirir. Bu durumun, yeni model otomobillerin geliştirilmesi safhasında firmaları küresel rekabetin olduğu bir ortamda olumsuz etkileyeceği açıktır. Günümüzde bu olumsuz etkiler ürün geliştirme aşamasında prototip çalışmalarında belirli ölçülerde ortadan kaldırılmaktadır. Prototip üretiminin amacı imalat öncesi, tasarımın doğruluğunun, estetikliğinin ve işlevsel yönden yeterliliğinin değerlendirilmesi, tasarlanan modelin üretilebilirliği, montaj edilebilme ve sökülebilme olanaklarının değerlendirilebilmesidir (Çelik ve ark. 2013, Özüğür 2006)., Prototip çalışmaları ortaya çıkabilecek dizayn hatalarını kısa zamanda ortaya koyar ve geliştirilen yeni ürünün başarılı bir şekilde piyasaya sunmaya olanak tanır.

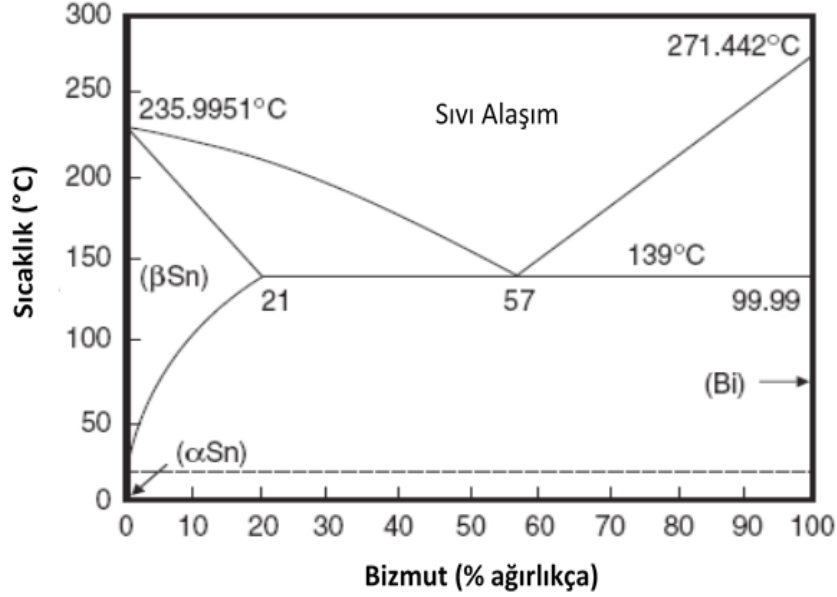
Prototip sac parça üretiminde düşük ergime sıcaklığına sahip bizmut (Bi), kadmiyum (Cd), kalay (Sn), kurşun (Pb) gibi demir dışı metal alaşımlarından kalıplar üretilebilmektedir. Düşük ergime sıcaklığına sahip (271,4 °C), kaba kristalli ve ağır bir metal olan bizmut, su ve antimon gibi katılaştığında genleşme gösterir (bu oran yaklaşık hacimce %3,3). Bizmut metali, kurşun, kalay ve kadmiyum gibi metallerle alaşımlandırıldığında bu genleşme oranı bizmut ve diğer metallerin yüzde bileşimlerine bağlı olarak değişmektedir. Genel bir kural olarak, yaklaşık olarak %50 Bi içeren alaşımlar katılma esnasında hacimce en az değişim gösterir. Bizmut alaşımlarında Bi oranı %50'den fazla ise alaşım katılma esnasında genleşme, az ise büzülme eğilimindedir.

Katılma esnasında çoğu metal, kalıptan çekilir ve büzülür ve bu sebeple parçanın ince detayları oluşturulamaz. Katılma sırasında genleşme gösteren düşük ergime sıcaklıklı alaşımlar (Bi-Sn gibi), genleşmeleri nedeniyle kalıp detaylarına doğru itilirler ve kalıptan kusursuz bir parça elde edilmesine imkân tanır. Bu alaşımların, genleşme karakteristikleri ve/veya büzülme göstermemeleri ile birlikte düşük ergime sıcaklıkları yaygın kullanımlarının ana sebebi olarak gösterilebilir. Bu çalışmada, prototip sac metal kalıp üretiminde kullanılacak döküm özellikleri iyi ve yüksek boyutsal kararlılığa sahip ötektik ve ötektik bölgesi (ötektik noktaya yakın kompozisyondaki alaşımlar) Bizmut-Kalay alaşımlarının üretilmesi ve bu alaşımların mekanik özelliklerinin incelenmesi amaçlanmaktadır.

2. Bi-Sn ALAŞIMLARI

Bizmutun ergime sıcaklığı yaklaşık 271 °C, kalayın ergime sıcaklığı ise yaklaşık 236 °C'dir. Bizmut, ötektik sıcaklıkta (139 °C) dahi çok az miktarda Sn eritebilirken, Sn ise aynı sıcaklıkta %21 Bi eritebilmektedir. Oda sıcaklığında ise Sn bir miktar Bi eritebilirken, Bi ise hiç Sn eritememektedir. % 57 Bi ve %43 Sn alaşımı 139 °C'de bir ötektik oluşturmaktadır (Şekil 1). Bilindiği gibi, ötektik alaşım saf metaller gibi sabit bir sıcaklıkta katılır ve kendisini meydana getiren bileşenlere göre daha düşük bir sıcaklıkta ergimektedir (Demirci 2004). Bu nedenlerle, ötektik alaşımlar özellikle döküm sanayinde kalıp doldurma kabiliyetinin yüksek olması ve katılma aralığı göstermemesi nedeniyle tercih edilen bir alaşımdır. Ayrıca, bu alaşımlar, katılma aralığı göstermemesi nedeniyle de mikro segregasyonlar gözlenmemektedir. Bu nedenle ötektik alaşımlar genel itibarıyla gerek fiziksel gerekse mekanik özellikler açısından homojen özellikler sergiler. Ayrıca, ötektik alaşımlar genellikle çok ince tanelidir ve iç yapıyı oluşturan fazlar arasında karakteristik bir düzen vardır. Bu düzenli yapı genellikle lamel veya spiral şekilde kendini gösterir.

Ötektik veya ötektik bölgesi Bi-Sn alaşımlarının viskozitelerinin düşük (yüksek akışkanlık) olması nedeniyle bu alaşımların sıvı haldeki yüzey gerilimleri de çok düşüktür (Yin ve ark. 2006, Yost ve ark. 1998). Bu özelliklerinden dolayı, bu alaşımların kalıp doldurma kabiliyetleri yüksektir. Böylece, döküm sonrası herhangi bir talaşlı imalata ihtiyaç duyulmaksızın bile istenen boyut toleransları dahilinde döküm parçalar üretebilmek mümkün hale gelir. Şayet, döküm sonrası boyut problemleri ile karşılaşılırsa, yukarıda belirtildiği gibi yüzey gerilimini düşürme yoluna gidilebilir. Yüzey gerilimini düşürmek içinse, döküm sıcaklığını yükseltmek bir çözüm yolu olarak düşünülebilir.



Şekil 1:
Bi-Sn Denge Diyagramı (Baker 1992).

3. MATERYAL VE METOT

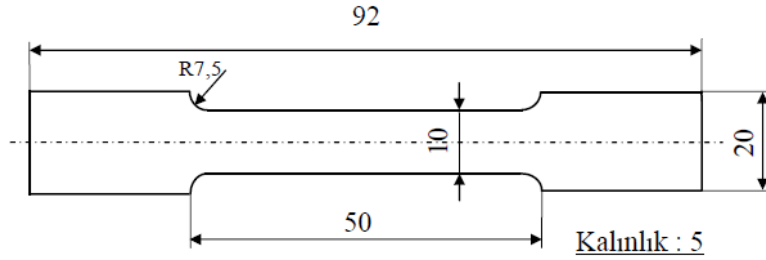
Bu çalışmada; akışkanlığı, kalıp doldurma yeteneği yüksek ve çok düşük yüzey gerilimi gösteren, katılaşıma esnasında da yüksek boyut kararlılığına sahip prototipleme çalışmaları için uygun optimum özelliklerdeki ötektik ve ötektik civarı (ötektikaltı ve ötektiküstü) Bi-Sn alaşımları elde edilmiştir. Sıvı halde Bi ve Sn atomlarının homojen bir şekilde dağılabilmesi için oldukça yüksek sıcaklıklara çıkılmış, sonrasında belirli bir eritme sırası ile ilave edilen Bi ve Sn parçacıkları bu sıcaklıkta alaşım miktarına bağlı olarak belirli bir süre bekletilmiştir. Erimeyen tamamen gerçekleşmesini müteakiben fırından çıkartılan sıvı alaşımlar mekanik olarak karıştırılarak bir kalıba dökülüp katılaştırılmıştır. Farklı oranlara sahip ötektik bölge civarındaki Bi-Sn alaşımlarının mekanik özelliklerini belirlemeye yönelik üretilen Bi-Sn alaşımları Tablo 1’de verilmiştir.

Üretilen alaşımların mekanik özelliklerini belirlemek üzere alaşımlara sertlik, çekme ve basma testleri uygulandı. Sertlik ölçümleri Vickers sertlik ölçme cihazında 100 g yük uygulanarak 10 saniye süre ile gerçekleştirilmiştir. Her bir numune için 5 adet sertlik ölçümü yapılmıştır. Numunelerin sertlik değerleri ise bu 5 ölçümün ortalama değeri olarak alınmıştır. Üretilen alaşımların çekme özelliklerini belirlemek için Şekil 2’de ölçüleri verilen çekme test numuneleri kullanılmıştır. Çekme testleri, tamamen bilgisayar kontrollü 25 ton kapasiteli UTEST-7014 çekme cihazında laboratuvar koşullarında 5 mm/dak’lık çekme hızı kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Basma testlerinde ise 15 mm çapında 25 mm boyunda test numuneleri

kullanılmıştır. Basma testleri yine laboratuvar koşullarında 4 ton kapasiteli Zwick test cihazı ile 10 mm/dak basma hızlarında gerçekleştirilmiştir.

Tablo 1. Üretilen Bi-Sn alaşımları.

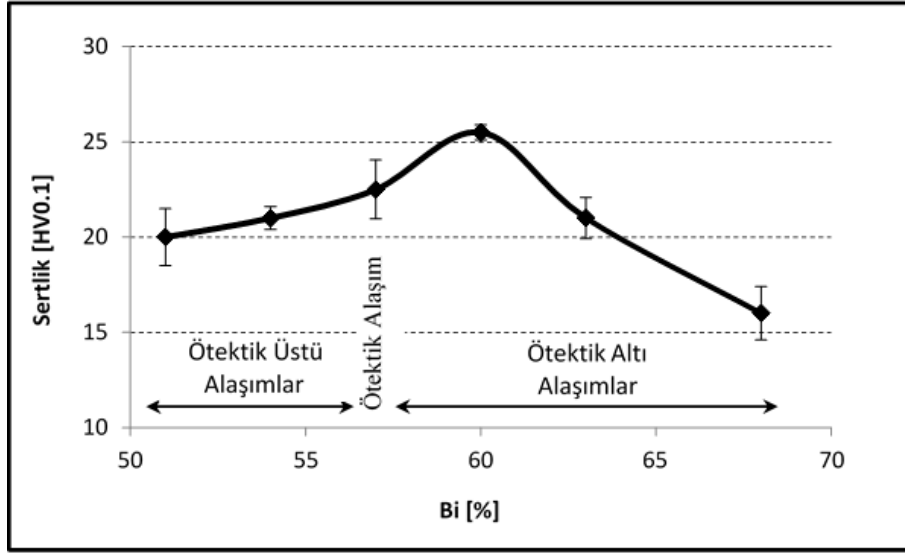
Alaşım	Bi [% ağırlıkça]	Sn [% ağırlıkça]
1 (Ötektik üstü)	51	49
2 (Ötektik üstü)	54	46
3 (Ötektik)	57	43
4 (Ötektik altı)	60	40
5 (Ötektik altı)	63	37
6 (Ötektik altı)	68	32



Şekil 2:
Çekme test numunesi.

4. SONUÇLAR VE TARTIŞMA

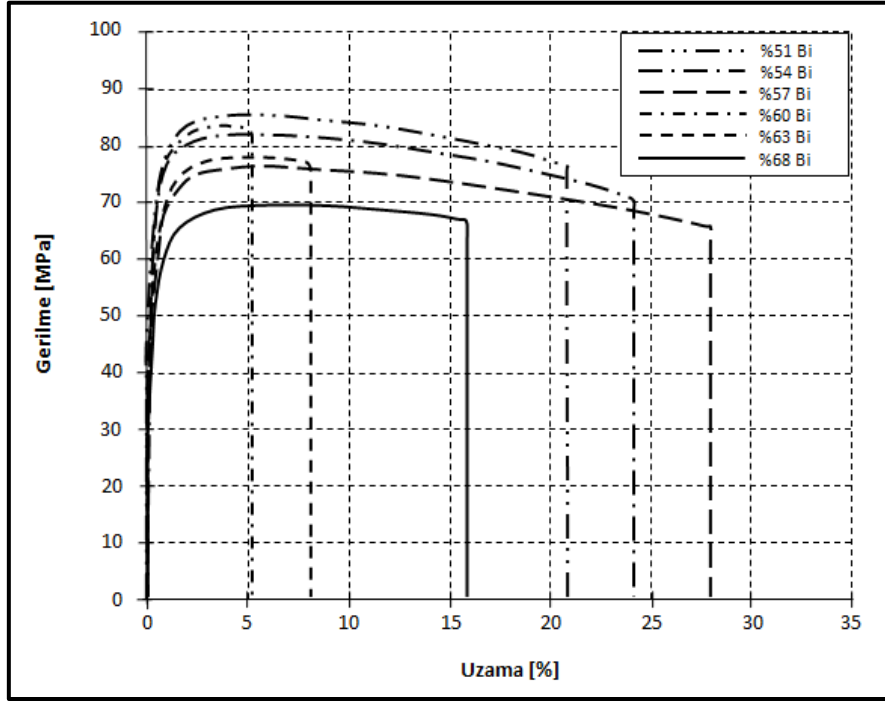
Bu çalışma kapsamında üretilen alaşımların sertlik değerleri Şekil 3'te verilmiştir. Ötektik üstü alaşımlarda artan Bi oranı ile sertlik değerleri artmıştır ve maksimum sertlik değeri %60 Bi içeren hemen ötektiğe komşu ötektikaltı alaşımda elde edilmiştir. Alaşımdaki Bi oranının %51'den %60'a çıkmasıyla sertlik değerinde %28'lik bir artış meydana gelmiştir. Bu artışın en önemli sebepleri; Bi oranının artması (Sn'a göre daha sert ve gevrek olması), ince ötektik tane yapısı (Hall-Petch bağıntısına istinaden) ve ötektiğe çok yakın bölgelerde primer fazların azalması olarak gösterilebilir (Morris ve ark. 1993, Silva ve ark. 2015, Osório ve ark. 2013, Ichikawa ve Ishizuka 1990). Ötektikten her iki yönde de uzaklaştıkça primer fazların büyümesine istinaden sertlik düşüşü beklenen bir sonuçtur (Silva ve ark. 2015). Bi oranının daha da artırılması ile katılma aralığının artmasına bağlı olarak primer Bi-fazının büyümesine karşın sertlik önemli ölçüde düşmüştür. Burada gözden kaçırılmaması gereken önemli bir nokta da, Bi metalinin Sn metalinden daha sert olmasına rağmen Bi artışı ile (ötektikaltı alaşımlarda) sertlik düşüşünün daha hızlı gerçekleşmesidir. Bu da, Sn metalinin yüksek sıcaklıklarda önemli oranda Bi metalini eritebilmesi ve denge diyagramının Bi tarafında (ötektikaltı alaşımlarda) katılma aralığının daha geniş olmasıyla açıklanabilir (Silva ve ark. 2015, Braga ve ark. 2007). Böylece, denge diyagramının Sn tarafında (ötektiküstü alaşımlarda) Bi-fazları tane sınırlarına çökelerek hareket halindeki dislokasyonları tane sınırlarında engellemeleri mertebesinde sertliğin düşüşünü yavaşlattığı düşünülebilir. Diğer taraftan, Bi tarafında katılma aralığının daha fazla olması Bi-primer fazlarının daha hızlı büyümesine neden olur ki, bu da sertliğin daha hızlı düşmesine neden olarak gösterilebilir (Morris ve ark. 1993, Silva ve ark. 2015, Osório ve ark. 2013).



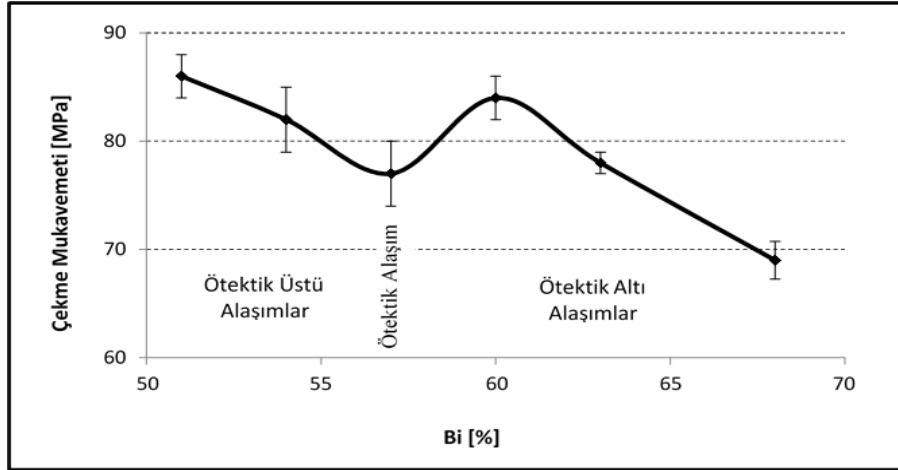
Şekil 3:

Üretilen alaşımların Bi oranına bağlı olarak sertlik değerlerinin değişimi.

Çalışma kapsamında üretilen alaşımların çekme eğrileri Şekil 4'te görülebilir. Ayrıca, alaşımların çekme mukavemetlerinin ve uzama değerlerinin Bi oranına göre değişimleri de Şekil 5 ve 6'da verilmiştir. Alaşımların çekme mukavemetleri genel itibariyle Bi oranı ile düşüş içerisinde olduğu söylenebilir. En yüksek çekme mukavemeti değeri, %51 Bi oranındaki alaşımda (alaşımlar içerisindeki en düşük Bi oranı) elde edilmiştir. Bunun sebebi olarak Sn tarafındaki alaşımlarda (ötektiküstü alaşımlarında) Bi çökelti fazının oluşması gösterilebilir (Silva ve ark. 2015, Morris ve ark. 1993). Ayrıca, sertlik değerinin maksimum olduğu alaşımda (%60 Bi içeren alaşım) bir miktar mukavemet artışı da göze çarpmaktadır. Ancak, daha da artan Bi oranı ile çekme mukavemeti oluşan Bi-primer fazına istinaden daha da düşmektedir. En düşük sertlik değerine sahip alaşımda (%68 Bi içeren alaşım) en düşük çekme mukavemeti elde edilirken, genel itibariyle artan sertlik değerleri ile daha yüksek çekme mukavemeti değerleri elde edilmiştir (Şekil 3 ve Şekil 5). Ötektik üstü ve ötektik altı alaşımlar ayrı ayrı değerlendirildiğinde, her ikisinde de artan Bi oranı çekme mukavemetinin düşmesine sebep olmuştur. Çekme deneyi sonucundaki uzama değerlerinin Bi oranına bağlı olarak değişimlerinde ise, değişimin net olarak 2 farklı bölgeye ayrıldığı görülmektedir. Genel itibariyle bakıldığında ötektiküstü alaşımların uzama oranları ötektik altı alaşımlara göre daha yüksektir. Ayrıca, ilginç bir şekilde her iki bölge de uzama değerleri Bi oranı ile artmıştır. Ötektik noktadan sonra Bi oranı artışı ile (ötektikaltı alaşımlarda) alaşımların uzama değerlerinde çok önemli bir düşüş meydana gelmektedir (geçiş bölgesi). Sonrasında ise Bi artışı ile Bi-primer fazlarının irileşmesi mertebesinde uzama oranlarında artış meydana gelmektedir. Ancak, ötektik alaşıma komşu alaşımda meydana gelen küçük Bi-primer fazları önemli ölçüde uzama değerlerinin düşmesine neden olmuştur. En yüksek uzama değerinin ise ötektik alaşımda meydana gelmesi ötektik alaşımın ince tane yapısı sonucu olduğunu da vurgulamak gerekir. Sn tarafındaki alaşımlara (ötektiküstü alaşımları) bakıldığında ise Bi tarafındaki alaşımların (ötektik altı alaşımları) tersine uzama değerleri Sn artışı ile Sn-primer fazının irileşmesi mertebesinde düşüş gösterdiği söylenebilir. En yüksek sertlik değerine sahip alaşımların (%60 Bi içeren alaşım) en düşük uzama göstermiş olmasının da dikkat çekici olduğunu vurgulamak gerekir (Şekil 3 ve Şekil 6).



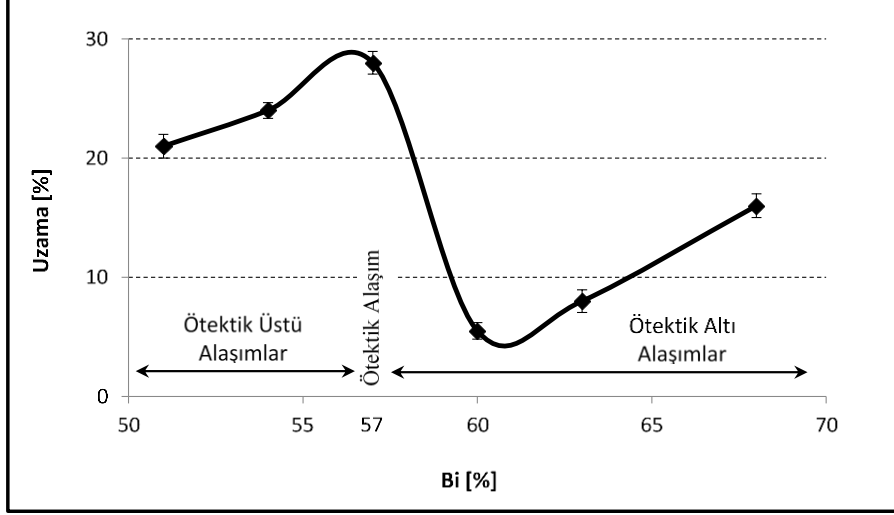
Şekil 4:
Üretilen alaşımların Bi oranına bağlı olarak çekme eğrileri.



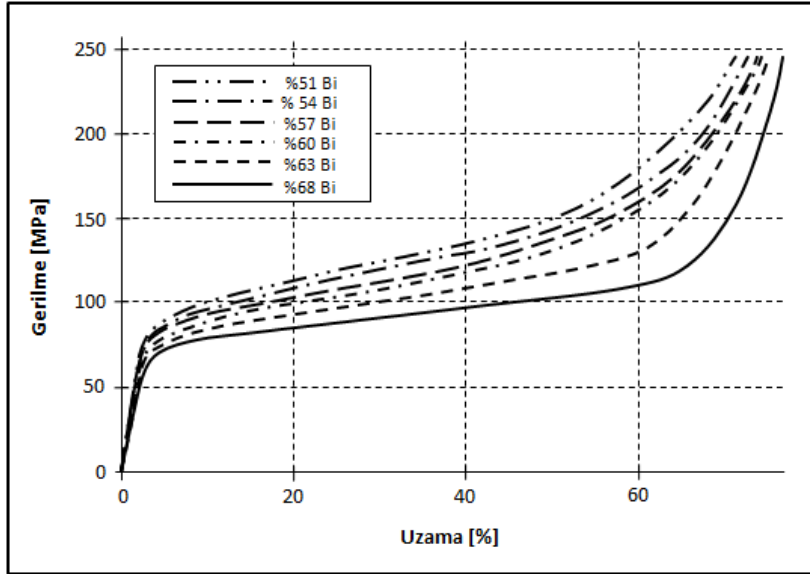
Şekil 5:
Üretilen alaşımların Bi oranına bağlı olarak çekme mukavemetlerinin değişimi.

Çalışma kapsamında üretilen alaşımların basma eğrileri Şekil 7'de verilmiştir. Ayrıca, alaşımların basma mukavemetlerinin Bi oranına göre değişimleri de Şekil 8'de görülmektedir. Alaşımların basma mukavemetleri Bi oranı artışıyla sürekli bir azalış içerisindedir. Ancak, Bi oranına bağlı bu azalış, ötektik alaşıma kadarki ötektiküstü alaşımlarda daha yavaş iken ötektikaltı alaşımlarda ise bu azalış hızı artmıştır. Böylece, ötektik üstü alaşımlardaki Sn-primer fazının basma mukavemeti üzerindeki etkisinin az olduğu, ötektik altı alaşımlardaki Bi-primer fazının basma mukavemeti üzerindeki etkisinin çok daha fazla olduğu sonucuna ulaşılabilir. Ayrıca, Sn-primer fazları nispeten de olsa basma mukavemeti üzerinde pozitif etkide

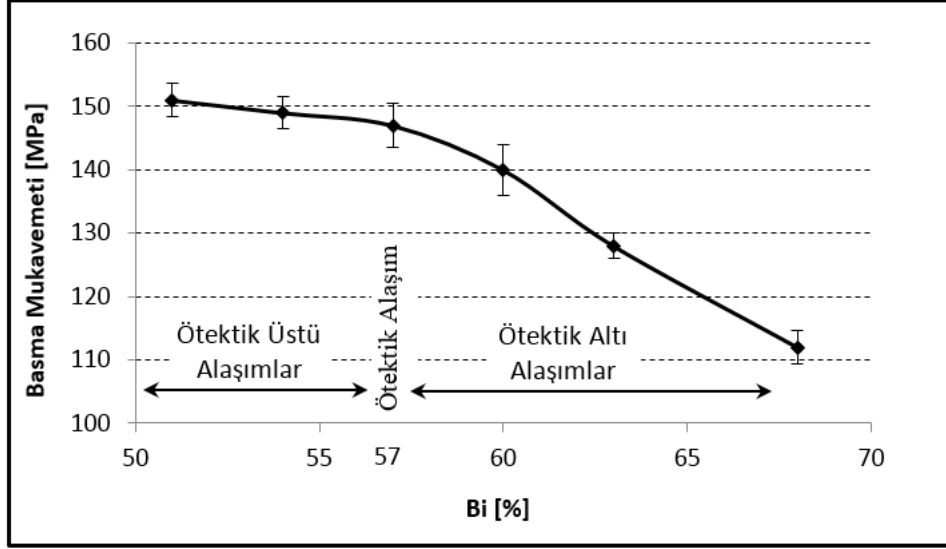
bulunurken Bi-primer fazları ise basma mukavemeti üzerinde belirgin bir negatif etkiye sebep olmuştur. Genel itibariyle bakıldığında, alaşımdaki Bi oranının %51'den %68'e çıkarılmasıyla basma mukavemetinde %26'lık bir azalış meydana gelmiştir.



Şekil 6:
Üretilen alaşımların Bi oranına bağlı olarak uzama değerlerinin değişimi.



Şekil 7:
Üretilen alaşımların Bi oranına bağlı olarak basma eğrileri.



Şekil 8:

Üretilen alaşımların Bi oranına bağlı olarak basma mukavemetlerinin değişimi.

Sonuçlar genel olarak değerlendirildiğinde, ötektik üstü Bi-Sn döküm alaşımları (düşük Bi oranına sahip) özellikle yüksek basma mukavemetleri yanında yüksek çekme dayanımı ve uzama değerlerine sahiptir. Bu bağlamda, bası kuvvetlerinin ön planda olduğu sac metal şekillendirme kalıpcılığında ötektik üstü Bi-Sn döküm alaşımlarının kullanımı daha uygun olacaktır.

5. SONUÇ

Yukarıdaki deneysel çalışmalar sonucunda elde edilen sonuçlar aşağıdaki gibi özetlenebilir:

- Ötektiküstü alaşımlarda Bi artışı ile sertlik artarken, ötektikaltı alaşımlarda sertlik Bi artışı ile azalmaktadır. Maksimum sertlik değeri %60 Bi içeren ötektikaltı alaşımda elde edilmiştir.
- Alaşımların çekme mukavemetleri genel itibariyle Bi oranı ile düşüş içerisindedir. En yüksek çekme mukavemeti değeri, %51 Bi oranındaki ötektiküstü alaşımda elde edilmiştir.
- Genel itibariyle ötektiküstü alaşımların uzama oranları ötektik altı alaşımlara göre daha yüksektir. Her iki bölgede de artan Bi oranı ile uzama artmıştır. Maksimum uzama oranı ötektik alaşımda elde edilmiştir.
- Alaşımların basma mukavemetleri Bi oranı artışıyla azalmıştır. Ancak, bu azalış ötektikaltı alaşımlarda çok daha hızlıdır. En yüksek basma mukavemeti değeri de, %51 Bi oranındaki ötektiküstü alaşımda elde edilmiştir.
- Sac metal şekillendirme kalıplarında ötektik üstü Bi-Sn döküm alaşımlarının (düşük Bi oranına sahip) kullanımı daha uygundur.

KAYNAKLAR

1. Baker, H., editor (1992) ASM Handbook—Volume 3: Alloy Phase Diagrams (Materials Park, OH: ASM Int.).
2. Braga M.H., Vizdal J., Kroupa A., Ferreira J., Soares D., Malheiros L.F. (2007) The experimental study of the Bi–Sn, Bi–Zn and Bi–Sn–Zn systems, *Computer Coupling of Phase Diagrams and Thermochemistry*, 31, 468–478. doi:10.1016/j.calphad.2007.04.004
3. Çelik İ., Karakoç F., Çakır M.C. & Duysak A. (2013) Hızlı Prototipleme Teknolojileri ve Uygulama Alanları, *Dumlupınar Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Dergisi*, 31, 53-70.

4. Demirci A.H. (2004) Malzeme Bilgisi ve Malzeme Muayenesi, Alfa Yayınevi.
5. Ichikawa K., Ishizuka S. (1990) Microstructures and Tensile Properties of Rheocast Al-Cu, Bi-Sn and Bi-Pb Eutectic Alloys, *Materials Transactions, JIM*, 1, 75-82. doi: 10.2320/matertrans1989.31.75
6. Morris Jr. J.W., Freer Goldstein J.L. & Mei Z. (1993) Microstructure and Mechanical Properties of Sn-In and Sn-Bi Solders, *JOM*, 45(7), 25-27. doi:10.1007/BF03222376
7. Osório W.R., Peixoto L.C., Garcia L.R., Manginck-Noël N., Garcia A. (2013) Microstructure and mechanical properties of Sn-Bi, Sn-Ag and Sn-Zn lead-free solder alloys, *Journal of Alloys and Compounds*, 572, 97-106. doi: 10.1016/j.jallcom.2013.03.234
8. Özüğür B. (2006) Hızlı Prototipleme Teknikleri ile Kompleks Yapıdaki Parçaların Üretilebilirliklerinin Araştırılması, *Yüksek Lisans Tezi, Gazi Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü*.
9. Silva B.L., Reinhart G., Nguyen-Thi H., Manginck-Noël N., Garcia A., Spinelli J.E. (2015) Microstructural development and mechanical properties of a near-eutectic directionally solidified Sn-Bi solder alloy, *Materials Characterization*, 107, 43-53. doi:10.1016/j.matchar.2015.06.026
10. Yin L., Murray B.T. & Singler T.J. (2006) Dissolutive Wetting in the Bi-Sn System, *Acta Materialia*, 54, 3561–3574. doi:10.1016/j.actamat.2006.03.032
11. Yost F.G., & O'toole E.J. (1998) Metastable and Equilibrium Wetting States in the Bi-Sn System, *Acta Materialia*, 46(14), 5143–5151. doi:10.1016/S1359-6454(98)00146-3

