XM23 胶的单轴拉伸试验及超弹性本构模型构建

罗 鹏^{1,2,3} 孙 亮^{1,3} 程伟华^{1,3} 陈怀军^{1,3} 罗海燕^{1,3} (1 中国科学院合肥物质科学研究院,安徽光学精密机械研究所,合肥 230031) (2 中国科学技术大学,合肥 230026)

(3 中国科学院通用光学定标与表征技术重点实验室,合肥 230031)

文 摘 XM23 胶广泛应用于航天光学遥感器,用于粘接光学透镜与金属结构件,可以起到减振作用。目前对XM23 胶的力学性能的研究都是基于线弹性理论,但XM23 胶是一种高聚合物,表现出非线性特征,无法使用线弹性材料的杨氏模量和泊松比进行准确地表征。本文首先通过XM23 胶的单轴拉伸试验测试出该胶的应力应变数据,基于超弹性理论,尝试运用3种超弹性本构模型进行数据拟合。分析发现,Mooney-Rivlin 3 参数本构模型最适于表征 XM23 胶的力学性能,其本构模型材料参数 C₁₀ 为-0.205 9 MPa、C₀₁ 为0.688 8 MPa、C₁₁ 为0.055 7 MPa。利用此本构模型使用有限元软件模拟了该胶的单轴拉伸试验,仿真得到应力应变数据在误差范围内与试验数据一致。XM23 胶的超弹性本构模型构建为 XM23 胶的胶接结构有限元建模提供了理论和数据支撑。

关键词 XM23 胶, 单轴拉伸, 超弹性本构模型, 有限元仿真 中图分类号: TH145.4+1 DOI: 10.12044/j.issn.1007-2330.2023.01.005

Uniaxial Tensile Test of XM23 Glue and Hyperelastic Constitutive Model Construction

LUOPeng^{1,2,3}SUNLiang^{1,3}CHENGWeihua^{1,3}CHENHuaijun^{1,3}LUOHaiyan^{1,3}(1Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Hefei Institutes of Physical Science, Chinese Academy of Sciences, Hefei230031)(2University of Science and Technology of China, Hefei230026)

(3 Key Laboratory of Optical Calibration and Characterization of Chinese Academy of Science, Hefei 230031)

Abstract XM23 glue was widely used in aerospace optical remote sensors for bonding optical lenses and metal structural parts, which could play a shock absorption role. At present, the research of the mechanical properties of XM23 glue was based on linear elastic theory. However, XM23 glue was a high polymer and exhibited nonlinear characteristics, which could not be accurately characterized by Young's modulus and Poisson's ratio of linear elastic materials. In this paper, the stress-strain data of XM23 glue was first tested by the uniaxial tensile test of XM23 glue. Based on the theory of hyperelasticity, three kinds of hyperelastic constitutive models were tried to fit the data. The analysis shows that the Mooney-Rivlin 3 parameter constitutive model is the most suitable for characterizing the mechanical properties of XM23 glue. In the constitutive model, the material parameters C_{10} is -0. 205 9 MPa, C_{01} is 0. 688 8 MPa and C_{11} is 0. 055 7 MPa. Using this constitutive model, the uniaxial tensile test of the adhesive is simulated with finite element software, and the simulated stress and strain data are consistent with the test data within the error range. The construction of hyperelastic constitutive model of XM23 glue provides theoretical and data support for the finite element simulation of XM23 glue bonded structures.

Key words XM23 glue, Uniaxial tension, Hyperelastic constitutive model, Finite element simulation

0 引言

XM23 胶是一种室温硫化聚硫密封剂,对金属、

收稿日期:2022-08-16

基金项目:高分辨率对地观测系统重大专项(民用部分)(No. 30-Y20A19-9007-15/17),王宽诚率先人才计划"卢嘉锡国际合作团队项目" (No. GJTD-2018-15)

第一作者简介:罗鹏,1996年出生,硕士研究生,主要从事光机结构设计及仿真的研究工作。E-mail:luopengah@163.com

通信作者:孙亮,1979年出生,副研究员,主要从事偏振遥感与航天遥感工程技术等方面的研究工作。E-mail:sunleon@aiofm.ac.cn

玻璃等具有良好的粘接性能,耐湿热和淡水浸泡,无 毒、不易燃烧,能够防止冲击损伤和机械松动,起到 减振、阻尼、防腐和阻燃等作用。

XM23 胶已广泛地应用于航天光学遥感器,例如 用于粘接光学透镜与金属结构件,形成柔性安装结 构,既有利于保证透镜的面形精度,又可以在航天器 的发射阶段起到减振作用。为定量评估 XM23 胶的 减振能力,需要充分掌握其力学性能,运用适当的理 论模型进行建模和仿真分析。高超[1]通过试验测定 了 XM23 胶的杨氏模量,该试验将 XM23 胶作为弹性 材料来处理,仅适用于小变形下的近似处理。在有 限元仿真分析时,使用弹性理论中的杨氏模量和泊 松比两个参数,不能很好地定义XM23 胶的力学性 能。XM23胶作为一种橡胶,属于聚合物材料,其存 在弹性势能函数,在卸载时应变能够自动恢复,应力 和应变不再是线性对应的关系,而是以弹性势能函 数的形式一一对应的关系,所以XM23胶属于一种超 弹性材料^[2]。本文尝试基于招弹性理论,采用招弹性 本构模型描述XM23胶的力学性能。

1 超弹性基本理论

根据超弹性理论的不同可以将橡胶的超弹性本 构模型分为两种:基于统计热力学理论的统计模型 和基于连续介质理论的系统模型。前者的超弹性理 论模型有高斯统计和非高斯统计两种;后者的模型 主要有多项式和Ogden形式的模型^[3]。XM23胶的变 形可以视为超弹性材料的均匀变形,且XM23胶具备 各项同性的性质,故选取基于连续介质理论的超弹 性本构模型来表征XM23胶的力学性能。

以连续介质力学理论^[4]为基础的方法中,用变形 张量的三个不变量来表征应变能密度函数 W。应变 能密度函数可以分为偏差项和体积项两部分,其多 项式形式为:

$$W = \sum_{i,j=0}^{N} C_{ij} (I_1 - 3)^i (I_2 - 3)^j + \sum_{k=1}^{N} \frac{1}{D_k} (I_3^2 - 1)^{2k} (1)$$

式中,i,j,N,k为多项式中的项数,可取1,2,3,…; C_{ij},D_{k} 为材料参数; I_{1},I_{2},I_{3} 为三个主方向的变形张量 不变量。

把一个质点邻域的变形后坐标x看成变形前坐标X的函数,则变形梯度F如下式(2),它反映了该质 点邻域的变形和运动状态。

$$F = \frac{\partial x}{\partial X} \tag{2}$$

变形梯度能表征刚体转动和纯变形,将变形梯 度分解为先变形后转动,可以得到左Cauchy-Green 变形张量B:

宇航材料工艺 http://www.yhclgy.com 2023年 第1期

$$\boldsymbol{B} = \boldsymbol{F} \cdot \boldsymbol{F}^{\mathrm{T}} = \begin{bmatrix} \lambda_{1} & 0 & 0 \\ 0 & \lambda_{2} & 0 \\ 0 & 0 & \lambda_{3} \end{bmatrix}^{2} = \begin{bmatrix} \lambda_{1}^{2} & 0 & 0 \\ 0 & \lambda_{2}^{2} & 0 \\ 0 & 0 & \lambda_{3}^{2} \end{bmatrix}$$
(3)

式中, λ_1 、 λ_2 、 λ_3 为三个主方向的伸长比。

依据变形张量不变量与左Cauchy-Green变形张 量的关系,可以推导出三个主方向变形张量不变量 与三个主伸长比的关系表达式,如下式:

$$\begin{cases} I_1 = \operatorname{tr} \boldsymbol{B} = \lambda_1^2 + \lambda_2^2 + \lambda_3^2 \\ I_2 = \frac{1}{2} \Big[(\operatorname{tr} \boldsymbol{B})^2 - \operatorname{tr} (\boldsymbol{B}^2) \Big] = (\lambda_1 \lambda_2)^2 + (\lambda_2 \lambda_3)^2 \\ + (\lambda_3 \lambda_1)^2 \\ I_3 = \operatorname{det} (\boldsymbol{B}) = (\lambda_1 \lambda_2 \lambda_3)^2 \end{cases}$$
(4)

因为橡胶是不可压缩材料,故体积项为0,即:

$$I_3 = \left(\lambda_1 \lambda_2 \lambda_3\right)^2 = 1 \tag{5}$$

则根据式(1)应变能密度函数为:

$$W = \sum_{i+j=1}^{N} C_{ij} (I_1 - 3)^i (I_2 - 3)^j$$
(6)

对于均匀的应变,应力、应变和应变能密度函数 之间有如下关系:

$$\begin{cases} \frac{t_1 - t_2}{\lambda_1^2 - \lambda_2^2} = 2\left(\frac{\partial W}{\partial I_1} + \lambda_3^2 \frac{\partial W}{\partial I_2}\right) \\ \frac{t_1 - t_3}{\lambda_1^2 - \lambda_3^2} = 2\left(\frac{\partial W}{\partial I_1} + \lambda_2^2 \frac{\partial W}{\partial I_2}\right) \\ \frac{t_2 - t_3}{\lambda_2^2 - \lambda_3^2} = 2\left(\frac{\partial W}{\partial I_1} + \lambda_1^2 \frac{\partial W}{\partial I_2}\right) \end{cases}$$
(7)

式中,*t*₁、*t*₂、*t*₃为三个主方向的真实应力,其值受到变形后尺寸的影响。

三个主方向的真实应力 t_i 、伸长比 λ_i 及工程应变 ε_i 存在如下关系:

$$t_i = \sigma_i \lambda_i \tag{8}$$

$$\lambda_i = 1 + \varepsilon_i \tag{9}$$

式中, t_i 、 σ_i 、 λ_i 中的i为项数,取值为1,2,3。

2 单轴拉伸试验

单轴拉伸试验具有试验方法简单、价格低廉和 效率高等优点,在工程上和科研中被广泛采用,用来 测量材料的力学性能。本文通过单轴拉伸试验来获 取XM23胶超弹性模型的材料参数^[5]。

2.1 原材料

XM-23 胶由北京航空材料研究院研制,由4个 组分按一定比例混合而成:具体包括基膏(聚硫橡 胶)、F-44 增黏剂、28 号硫化剂和促进剂D。

2.2 XM23 胶试样制备

XM23 胶试样的成分占比和含量如表1 所示,制 作试样,尺寸如图1 所示,固化时间为3 d^[6]。

2.3 试验过程

-39 -

Tab. 1	Component content of	XM23 glue
组分名称	配比	实际质量/g
基胶	100	100
28号硫化剂	7	7
F-44 增黏剂	1.5	1.5
促进剂D	0.5	0.5





图 1 XM23 胶试样尺寸 Fig. 1 Size of XM23 glue sample

采用INSTRON6800系列多功能电子万能材料力学性能实验机进行,试验规范依据 CB/T 528—2009 硫化橡胶或热塑性橡胶 拉伸应力应变性能的测定^[7],装夹方式如图2所示,试验拉伸速率为10 mm/min,直到试样被拉断为止,每隔0.1 s采集一次数据,获取试样一端面的载荷和位移数据,进一步计算拉伸应力和拉伸应变的关系,得到的数据如图3所示。



图 2 XM23 胶的装夹方式 Fig. 2 Fixing method of XM23 adhesive



图 3 试验数据及 3 种不同超弹性本构模型拟合曲线 Fig. 3 Experimental data and fitting curves of three different hyperelastic constitutive models

3 单轴拉伸条件下三种超弹性本构模型参数的确定 3.1 单轴拉伸条件下的基本关系

— 40 —

假定单轴拉伸试验的拉伸方向为方向1,由于该 试验中试样只有一个拉伸方向,所以 $\lambda_2 = \lambda_3$,而对于 中等程度伸长率,令 $\lambda_1 = \lambda$,代入式(5),得:

$$\lambda_3^2 = \lambda_2^2 = \lambda^{-1}$$
(10)
将式(10)代人式(4),得:

$$\begin{cases} I_1 = \lambda^2 + 2\lambda^{-1} \\ I_2 = \lambda^{-2} + 2\lambda \end{cases}$$
(11)

单轴拉伸三个主方向的工程应力为: $\sigma_1 = \sigma$, $\sigma_2 = \sigma_3 = 0$,工程应变为 $\varepsilon_1 = \varepsilon$,又由式(8),有 $t_1 = \sigma_1 \lambda_1, t_2 = t_3 = 0$,代入式(7)中,得:

$$\frac{\sigma\lambda}{\lambda^2 - \lambda^{-1}} = 2\left(\frac{\partial W}{\partial I_1} + \lambda^{-1}\frac{\partial W}{\partial I_2}\right)$$
(12)

$$\sigma = 2\left[\left(1 + \varepsilon\right) - \left(1 + \varepsilon\right)^{-2}\right] \left[\frac{\partial W}{\partial I_1} + \left(1 + \varepsilon\right)^{-1} \frac{\partial W}{\partial I_2}\right]$$
(13)

基于连续介质理论超弹性本构模型有多种,如 Neo-Hooken超弹性本构模型^[8]、Mooney-Rivlin 3参 数超弹性本构模型^[9-10]和Yeoh 三阶超弹性本构模 型^[11],利用式(13),推导出3种超弹性本构模型的应 力和应变之间的关系式,利用XM23胶的单轴拉伸试 验数据进行拟合,计算出其材料参数及拟合的和 方差。

3.2 Neo-Hooken 超弹性本构模型

若设在 $j \neq 0$ 时,所有 $C_{ij} = 0$,根据式(6)得到多项式模型^[8],其应变能表达式如下:

$$W = \sum_{i=0}^{N} C_{i0} (I_1 - 3)^i$$
(14)

当 N=1 时,根据式(14)可得到 Neo-Hooken 超弹 性本构模型,其应变能表达式如下:

$$W = C_{10}(I_1 - 3) \tag{15}$$

式中, $C_{10} = \frac{1}{2}\mu,\mu$ 为初始剪切模量。

将式(15)对 I_1 、 I_2 求偏导数,得:

$$\begin{cases} \frac{\partial W}{\partial I_1} = \frac{1}{2} \mu \\ \frac{\partial W}{\partial I_2} = 0 \end{cases}$$
(16)

把式(16)代入式(13)中,得:

$$\sigma = \mu \left[\left(1 + \varepsilon \right) - \left(1 + \varepsilon \right)^{-2} \right] \tag{17}$$

3.3 Mooney-Rivlin 3参数超弹性本构模型

当*N*=2时,根据式(6)得到Mooney-Rivlin 3参数 超弹性本构模型^[9-10],其应变能表达式如下:

$$W = C_{10}(I_1 - 3) + C_{01}(I_2 - 3) + C_{11}(I_1 - 3)(I_2 - 3)$$
(18)

将式(18)对I₁和I₂求偏导数,得:

宇航材料工艺 http://www.yhclgy.com 2023年 第1期

$$\begin{cases} \frac{\partial W}{\partial I_1} = C_{10} + C_{11} (I_2 - 3) \\ \frac{\partial W}{\partial I_2} = C_{01} + C_{11} (I_1 - 3) \end{cases}$$
(19)

 $\sigma = 2\left[(1+\varepsilon) - (1+\varepsilon)^{-2} \right] \left\{ C_{10} + C_{11} \right] \left\{ C_{10} + C_{11} \right\} \left[(1+\varepsilon)^{-2} \right] \left\{ C_{10} + C_{11} \right] \left[(1+\varepsilon)^{-2} \right] \left[(1+\varepsilon)^{-2}$

$$= \left\{ C_{10} + C_{11} \left[\left(1 + \varepsilon \right)^{-2} + 2 \left(1 + \varepsilon \right) - 3 \right] + \left(1 + \varepsilon \right)^{-1} \left\{ C_{01} + C_{11} \left[\left(1 + \varepsilon \right)^{2} + 2 \left(1 + \varepsilon \right)^{-1} - 3 \right] \right\} \right\}$$

3.4 Yeoh超弹性本构模型

当 N=3 时,根据式(14)可得到 Yeoh 超弹性本构 模型^[11],其应变能表达式如下:

$$\begin{split} W &= C_{10} \big(I_1 - 3 \big) + C_{20} \big(I_1 - 3 \big)^2 + C_{30} \big(I_1 - 3 \big)^3 \mbox{ (21)} \\ 将式(21) 对 I_1, I_2 求偏导数, 得: \end{split}$$

$$2\left[(1+\varepsilon) - (1+\varepsilon)^{-2}\right] \left\{ C_{10} + 2C_{20} \left[(1+\varepsilon)^{2} + 2(1+\varepsilon)^{-1} - 3\right] + 3C_{30} \left[(1+\varepsilon)^{2} + 2(1+\varepsilon)^{-1} - 3\right]^{2} \right\}$$
(23)

4 结果与讨论

 $\sigma =$

根据上述对单轴拉伸条件下应力和应变关系的分 析,应用3种超弹性本构模型的应力-应变关系式,使用

$$(+\varepsilon)^{-1} - 3] + 3C_{30} [(1+\varepsilon)^2 + 2(1+\varepsilon)^{-1} - 3]^2 \}$$
 (23)
Matlab软件对单轴拉伸试验数据进行拟合,求解出这3
种超弹性本构模型的材料参数和拟合的和方差,如表

把式(4)、式(9)和式(22)中代入(13)中,得:

 $\frac{\partial W}{\partial I_1} = C_{10} + 2C_{20}(I_1 - 3) + 3C_{30}(I_1 - 3)^2$

把式(4)、式(9)和式(19)代入式(13)中,得:

(20)

(22)

2所示, Matlab软件中的拟合曲线如图3所示。

	表 2	3 种超弹性本构模型的材料参数和拟合的和方差
Tab. 2	Material paramete	rs and fitting sum variances of the three hyperelastic constitutive models

超弹性本构模型形式	本构模型中的材料参数	拟合的和方差
Mooney-Rivlin3参数模型	C_{10} =-0.205 9 C_{01} =0.688 8 C_{11} =0.055 7	0.003 7
Neo-Hooken 模型	μ =0.565 4	0.423 9
Yeoh三阶模型	C_{10} =0.372 3 C_{20} =0.068 5 C_{30} =0.014 3	0.036 3

比较这3种模型拟合和方差发现,Neo-Hooken 模型的和方差较大,Yeoh 三阶模型和方差较小, Mooney-Rivlin 3参数模型的和方差接近于零,故使 用 Mooney-Rivlin 3参数超弹性本构模型表征 XM23 胶的力学性能。此外,在小应变下(0~0.1%),XM23 胶的应力-应变呈线性关系(图3),斜率约为2.51,即 XM23 胶的杨氏模量约为2.51 MPa,这与高超^[1]测得 的 XM23 胶的杨氏模量在误差范围内一致。

5 有限元模型验证

基于以上试验和拟合,可知利用 Mooney-Rivlin 3参数超弹性本构模型来表征 XM23 胶的力学性能, 使用 Ansys 有限元软件模拟单轴拉伸试验,单轴拉伸 试验试样如图 1 所示,由于试验试样两端为夹持部 分,对模型进行简化,在模拟时忽略,得到的有限元 仿真模型如图 4 所示。

试样采用3D四面体进行网格划分,单元尺寸为



0.5 mm。试样的材料属性定义为 Mooney-Rivlin 3参数超弹性本构模型,其参数为: C₁₀=-0.2059 MPa、C₀₁=0.6888 MPa、C₁₁=0.0557 MPa。在试样一端固定约束,在试样的另一端施加位移,位移速率为单轴拉伸试验的速率,其值为10 mm/min。施加时间为210 s。其仿真得到的应力云图和应变云图如图5所示,应力和应变分布比较均匀。



得到施加位移一端面的拉伸力和拉伸位移,将 拉伸力除以试样初始的横截面积,将拉伸位移除以 初始试样的长度,得到拉伸应力和应变,利用 Mooney-Rivlin3参数模型进行拟合,得到的拟合曲线 如图3所示,其材料参数及误差如表3所示,三个材 - 41料参数的误差均小于工程应用中的10%误差数值, 利用试验的应力和应变数值作为基准,计算仿真数 据拟合和试验数据拟合的应力误差,将不同应变下 的应力误差绘制成曲线,如图6所示。单轴拉伸试验 数据点几乎落在Ansys仿真的应力-应变曲线附近, 验证了XM23 胶超弹性本构模型的正确性。

	simulation data
Tab. 3	Material parameters fitted with test data and
表3	使用试验数据合和仿真数据拟合的材料参数

类型		C_{10}	C_{01}	C_{11}
试验拟合的	参数 -(0.205 9	0.688 8	0.055 7
仿真拟合的	参数 -(0.221 6	0.716 0	0.059 4
误差	7.0	625 1%	3.948 9%	6.642 7%
0.4 0.3 0.2 0.1 戦戦 0.0 	Mirin		试验数据拟合 — - 试验数据拟合	℃ 的误差曲线 的误差曲线
	0.0 0.2	0.4	0.6 0.8	1.0
		8/	1%	
	图 6	5 应力i	吴差曲线	
	Fig. 6	Stress	error curves	

6 结论

(1)应用超弹性本构模型能够更准确地表达 XM23 胶的力学性能, XM23 胶的应力与应变的关系 在小应变下呈线性关系,其杨氏模量为2.51 MPa;在 大应变下,呈非线性关系。

(2) 通过对比分析,发现 Mooney-Rivlin 3参数模 型拟合的和方差最接近于零,故选用 Moonev-Rivlin 3参数超弹性本构模型来表证 XM23 胶的力学性能。

(3)使用 Mooney-Rivlin 3参数超弹性本构模型 来表征 XM23 胶的力学性能,其材料参数为: Cu= -0.2059 MPa₂ $C_{01}=0.6888$ MPa₂ $C_{11}=0.0557$ MPa₂

(4)将得到的XM23胶的超弹性本构模型参数在 ansvs软件中进行单轴拉伸试验仿真,得到的应力-应 变曲线能够与单轴拉伸试验的应力应变数据吻合, 验证了XM23胶超弹性本构模型的正确性。

XM23 胶的力学行为复杂,用 Mooney-Rivlin 3参 数模型能够准确表达 XM23 胶的力学性能,为 XM23 胶的胶接结构力学分析提供了理论和数据支撑,可 以运用于相关部组件的建模和力学分析。

参考文献

[1] 高超,罗世魁,陈芳,等. 空间相机光学件用XM23 胶的 杨氏模量测定和选用[J]. 航天返回与遥感,2017,38(2):48-54.

GAO C, LUO S K, CHEN F, et al. Determination and selection
of Young's modulus of XM23 glue for space camera optics $[J].$
Aerospace Return and Remote Sensing, 2017, 38(2), 48–54.

[2] 何平笙. 高聚物的力学性能[M]. 合肥:中国科学技 术大学出版社, 2008.

HE P S. Mechanical properties of polymers [M]. Hefei: University of Science and Technology of China Press, 2008.

[3] 李晓芳,杨晓翔. 橡胶材料的超弹性本构模型[J]. 弹性体,2005(1):50-58.

LI X F, YANG X X. Hyperelastic constitutive model of rubber materials [J]. Elastomers, 2005(1):50-58.

[4] 匡震邦. 非线性连续介质力学基础[M]. 西安:西安 交通大学出版社,1989.

KUANG Z B. Basis of nonlinear continuum mechanics [M]. Xi'an: Xi'an Jiaotong University Press, 1989.

[5] 王登祥. 轮胎胶料有限元分析的实验基础及计算 [J]. 轮胎工业,1998(12):17-26.

WANG D X. Experimental basis and calculation of FE analysis of tire compound[J]. Tire Industry, 1998(12):17-26.

[6] 刘强,张峰,何欣,等. 航天光学遥感器用 XM-23 密 封剂的微应力使用工艺研究[J]. 红外,2012,33(7):11-15.

LIU Q, ZHANG F, HE X, et al. Study on micro-stress application process of XM-23 sealant for aerospace optical remote sensor[J]. Infrared, 2012, 33(7):11-15.

[7] GB/T 528-2009 硫化橡胶或热塑性橡胶 拉伸应力应 变性能的测定[S]. 北京:中国计划出版社,2009.

GB/T 528-2009 Determination of tensile properties of vulcanized rubber and thermoplastic rubber [S]. Beijing: China Planning Press, 1992

[8] OGDEN R W. Non-linear elastic deformations [M]. New York: Dover, 1997: 221.

[9] MOONEY M. A theory of large elastic deformation [J]. Journal of Applied Physics, 1940, 11(9): 582-592.

[10] RIVLIN R S. Large elastic deformations of isotropic materials. IV. Further developments of the general theory [J]. Philosophical Transactions of the Royal Society of London, Series A, 1948, 241: 379-397.

[11] YEOH O H. Some forms of the strain energy for rubber [J]. Rubber Chemistry and Technology, 1993, 66(5):754-771.