

تأثیر فرمولاسیون و دمای زینتر بر تغییر طول پایدار دیرگدازهای آلومینا-منیزیا-گرافیت با استفاده از طراحی آزمایش Box-Behnken

مهدی فیض پور^{۱*}، محمدعلی فیض پور^۲، رحیم نقی زاده^۳، فرهاد گلستانی فرد^۳، مجید نادرپور^۴ و مصطفی تامندی^۵

^۱دانشگاه آزاد اسلامی، واحد میبد، دانشکده مهندسی، گروه سرامیک

^۲دانشگاه یزد، دانشکده اقتصاد، مدیریت و حسابداری، گروه اقتصاد صنعتی

^۳دانشگاه علم و صنعت ایران، دانشکده مهندسی متالورژی و مواد

^۴مرکز تحقیق و توسعه شرکت فرآورده‌های نسوز پارس یزد

^۵دانشگاه ولی عصر (عج) رفسنجان، دانشکده علوم ریاضی و کامپیوتر، گروه آمار

تاریخ ثبت اولیه: ۱۳۸۷/۸/۲۰، تاریخ دریافت نسخه اصلاح شده: ۱۳۸۷/۱۱/۱۵، تاریخ پذیرش قطعی: ۱۳۸۸/۳/۵

چکیده در این مقاله تأثیر هم‌زمان نوع آلومینا، درصد پاداکسیدان و دمای زینتر، بر رفتار تغییر طول پایدار دیرگدازهای آلومینا-منیزیا-گرافیت بررسی می‌شود. به این منظور از درصدهای مختلفی از آلومینای ذوبی قهوه‌ای، بوکسیت کلسینه شده و پاداکسیدان آلومینوم برای تعیین ۱۳ فرمولاسیون و دمای زینتر هریکاز نمونه‌ها مطابق روش Box-Behnken استفاده شد. در ادامه با استفاده از مدل‌های اقتصادسنجی و تحلیل‌های آماری بر روی داده‌های به دست آمده از آزمایشات، سه مدل برای پیش‌بینی مقدار PLC ترکیبات مختلف ارائه گردید. بررسی‌های بیشتر نشان می‌دهد در بین این مدل‌ها، مدل رگرسیونی درجه-۳ به خوبی می‌تواند رفتار PLC نمونه‌ها را در تمامی نقاط پیش‌بینی نماید. نتایج بررسی‌های فازی نشان می‌دهد مقدار فاز اسپینل تشکیل شده با جایگزینی آلومینای ذوبی قهوه‌ای به جای بوکسیت کلسینه شده و با افزایش درصد پاداکسیدان آلومینوم در فرمولاسیون نمونه‌ها کاهش می‌یابد.

کلمات کلیدی دیرگدازهای آلومینا-منیزیا-گرافیت، انبساط خطی پایدار، طرح آزمایش Box-Behnken.

Effect of Composition and Sintering Temperature on Permanent Linear Change of Alumina-Magnesia-Graphite Refractories Using Box-Behnken Experimental Design

M. Feizpour^{*1}, M. A. Feizpour², R. Naghizadeh³, F. Golestani-Fard³, M. Naderpour⁴ and M. Tamandi⁵

¹Group of Ceramics, Department of Engineering, Maybod Branch, Islamic Azad University

²Group of Industrial Economics, Department of Economics, Management and Accounting, Yazd University

³Department of Metallurgy and Materials Engineering, Iran University of Science and Technology

⁴Research and Development R & D Center of Pars Refractory Co., Yazd

⁵Group of Statistics, Department of Mathematics and Computer Sciences, Vali-Asr University of Rafsanjan

Abstract In this paper attempt was made to study the simultaneous effects of alumina type, antioxidant wt% and sintering temperature on Permanent Linear Change (PLC) behavior of Alumina-Magnesia-Graphite refractories. Using Box-Behnken experimental design, by taking different weight percentages of brown fused alumina, calcined bauxite and Al-antioxidant into account, 13 compositions and sintering temperatures for different samples were prepared. Three different statistical and econometric models have been proposed to estimate the PLC of all different compositions. In addition, further investigations show that the cubic regression model can significantly estimate and forecast the PLC behavior of all tested and none tested samples. XRD results indicate that the amount of spinel phase has decreased with increasing the addition of brown fused alumina at the expense of calcined bauxite as well as increasing Al-antioxidant wt%.

Keywords Alumina-Magnesia-Graphite Refractories, Permanent Linear Change, Box-Behnken Experimental Design.

*عهده‌دار مکاتبات

نشانی: دانشگاه آزاد اسلامی، واحد میبد، گروه سرامیک، صندوق پستی: ۸۹۶۱۵-۱۷۵

تلفن: ۰۳۵۲-۷۷۸۰۱۶۱، دورنگار: ۰۳۵۲-۷۷۸۰۹۶۹، پیام‌نگار: feizpour@gmail.com

۱- مقدمه

پاتیل‌ها به علت هدایت حرارتی کربن موجود در این نسوزها، درصد کربن موجود در این نوع دیرگذاها اغلب کمتر از ۱۰٪ بود. پاره‌ای مشکلات در این نسوزها سبب شد شرکت‌های بزرگ تولیدکننده مواد نسوز به فکر بهبود و توسعه این دیرگذاها بیفتند. برخی از مشکلات این نسوزها به این شرح است [۲]:

۱. آجرهای دیرگذاز آلومینا-بالا: طول عمر کم به علت پوسته‌ای شدن ساختاری.
۲. آجرهای دیرگذاز آلومینا-گرافیت: خوردگی درزها به علت انبساط باقی‌مانده اولیه ناکافی و نداشتن انبساط خطی پایدار در ذوب‌های بعدی.
۳. آجرهای دیرگذاز منیزیا-گرافیت: خوردگی درزها، هدایت حرارتی بالا و مشکل کربن‌دهی به فولادهای کم‌کربن.

۱-۱- دیرگذاهای پیشرفته آلومینا-منیزیا-گرافیت (AMC)^۱

سال‌های آغازین دهه ۱۹۸۰ میلادی را می‌توان نقطه عطفی در تاریخ صنعت دیرگذا دانست. هم‌زمان با رقابت شدید شرکت‌های تولیدکننده فولاد برای تولید بیشتر و کیفیت بالاتر، نیاز اساسی برای معرفی نسوزهایی که شرایط جدید را بهتر و بیشتر تحمل کنند احساس شد. این سال‌ها، همچنین با دوران توسعه نسوزهای منیزیا-گرافیتی باند رزینی همراه بود که در آن دوره از بهترین نسوزهای مصرفی در اکثر قسمت‌های پاتیل‌های فولادسازی بودند. براین اساس، عده‌ای از محققان با تمرکز بر آجرهای منیزیا-گرافیتی و عده‌ای با ایده افزودن اکسیدهای دیرگذاز دیگر برای بالابردن کیفیت آجرهای منیزیتی، سعی در افزایش کارایی و بهبود خواص این نوع آجرها داشتند. تمام این عوامل سبب شد تا توسعه دیرگذاهای

مواد نسوز در صنایع مختلف کاربردهای فراوانی دارد و همواره صنعت پنهان و گلوگاه بسیاری از تولیدات صنعتی به شمار آمده‌اند. در این میان صنعت آهن و فولاد از مهم‌ترین صنایع مصرف‌کننده مواد نسوز است؛ به طوری که نزدیک به ۷۰٪ تولید نسوز دنیا را به خود اختصاص داده‌اند. در سال‌های اخیر تکنولوژی ساخت فولاد پیشرفت چشمگیری داشته و صنعت نسوز نیز نقش بسیار مهمی برعهده داشته است. در واقع پیشرفت صنایع فولاد و بهبود فرآیند فولادسازی همواره درگرو گسترش نسوزهایی بوده است که بتواند شرایط جدید را تحمل کند. اهدافی مانند افزایش سرعت تولید و تهیه انواع فولاد باعث روی آوردن تولیدکنندگان به تکنولوژی‌های جدید فولادسازی تصفیه ثانویه و استفاده از روش ریخته‌گری پیوسته شده است. لازمه این تکنولوژی‌ها، استفاده از فرآیند دمای بالا و تلاطم زیاد مذاب و در نتیجه ایجاد شرایط حاد برای نسوزهاست [۱].

برای سالیان متمادی نسوزهای منیزیا-گرافیتی نسوزی مدرن و پیشرفته با مقاومت خوردگی بالا در برابر سرباره‌های فولاد بوده است. همچنین در برابر شوک حرارتی و فرسایش مکانیکی مقاومت دارد؛ بنابراین عالی‌ترین نوع نسوز برای پوشاندن جداره پاتیل‌های مذاب، کوره‌های قوس الکتریک و مبدل‌های BOF^۱ است. با استفاده از این نسوزها امکان افزایش دما تا ۱۶۵۰°C فراهم شد و خوردگی نسوز در خط سرباره کاهش و عمر دیواره‌ها افزایش یافت. در دهه ۱۹۷۰ میلادی، به منظور یافتن نسوزهایی برای استفاده در پاتیل‌های تصفیه فولاد، مطالعاتی بر روی آجرهای منیزیا-گرافیتی برای استفاده در خط سرباره آغاز شد. همچنین مطالعاتی بر روی آجرهای آلومینا-گرافیتی و منیزیا-گرافیتی به منظور استفاده در منطقه تماس با فولاد مذاب آغاز شد. اما با توجه به افت درجه حرارت در

1. Basic Oxygen Furnace.

2. Alumina-Magnesia-Carbon.

فولادسازی را به صورت زیر برشمرد [۶]:

۱. انبساط خطی پیوسته و کنترل شده به هنگام کار در اثر تشکیل اسپینل درجا، بسته شدن درزهای میان آجرها و در نتیجه کاهش نفوذ مذاب به درون آجرها.
۲. عدم نیاز به استفاده از ملات در هنگام نصب آجرها.
۳. مقاومت عالی به بازه گسترده ای از ترکیب سرباره های فولادسازی.
۴. هدایت حرارتی کمتر و در نتیجه کاهش افت حرارتی پاتیل.
۵. مقاومت در برابر پوسته ای شدن ساختاری و حرارتی بهتر.
۶. مقاومت به ضربه بالاتر و استحکام مکانیکی گرم خوب.

در کاربردهای واقعی آجرهای AMC در پوشش دیواره پاتیل ها، تأثیر منفی تشکیل اسپینل در طول عمر آجرها نیز باید در نظر گرفته شود. تشکیل کنترل نشده اسپینل می تواند سبب ایجاد تنش های مکانیکی - به علت افزایش حجم ناشی از تشکیل اسپینل (۷-۵٪) - در آجر شود [۷].

گرچه تاکنون فعالیت های زیادی برای بهبود کیفیت آجرهای دیرگداز AMC صورت گرفته است، اما مسائل فنی بسیاری چه در فرآیند تولید و چه هنگام نصب و استفاده از این نوع آجرها وجود دارد. با توجه به سخت و پیچیده تر شدن فرآیند ساخت فولاد و نیاز به استفاده از نسوزهایی با طول عمر بالاتر و همچنین با توجه به سیر نزولی مصرف ویژه مواد نسوز در دنیا، به نظر می رسد کارخانه های تولید مواد نسوز به منظور حفظ جایگاه خود در این صنعت راهی جز توسعه نسل جدید دیرگدازهای پیشرفته نداشته باشند.

AMC که اولین مقاله در مورد آنها به حدود سال ۱۹۸۷ برمی گردد، نزدیک به ده سال به تأخیر بیفتد و با توجه به حجم وسیع کار در سایر زمینه های دیرگداز، تعداد محققانی که در این زمینه فعالیت می کردند چندان زیاد نباشد.

با آغاز قرن بیست و یکم، توسعه و کاربرد دیرگدازهای AMC نیز وارد مرحله جدیدی شد. شاید بتوان مقالات گوپتا^۳ [۳]، رزند^۴ [۴] و ناندی^۵ [۵] را در زمره اولین مقالات AMC دانست که در مجلات معتبر سرامیکی چاپ شد. در این مقالات، طراحی و ساخت آجرهای AMC بر پایه آجرهای Al_2O_3-C انجام گرفته است؛ بدین صورت که انواع مختلف منیزیا با خلوص و دانه بندی های متفاوت به عنوان افزودنی به سامانه آلومینا-گرافیت اضافه شده و در نهایت نقش آن در پارامترهایی مانند میزان و نحوه تشکیل فاز اسپینل، انبساط اولیه آجرها، انبساط آجرها در پخت های بعدی و همچنین خوردگی و طول عمر آجرها در مناطق مختلف پاتیل بررسی شده است. نتایج این تحقیقات نشان می دهد افزودن منیزیا به دیرگدازهای آلومینا-گرافیت، سبب افزایش انبساط خطی و بهبود مقاومت به خوردگی این دیرگدازها می شود. از سوی دیگر تشکیل اسپینل درجا به همراه ویژگی های بی نظیر کربن، مانند تر نشدن آن توسط سرباره و مقاومت به شوک حرارتی، سبب ایجاد دیرگدازی با توانایی تحمل چرخه های سرمایش و گرمایش پی در پی و مقاومت عالی در برابر سرباره می شود. به علاوه، به علت حضور کربن در ترکیب، احتمال نفوذ مذاب به درون تخلخل ها بسیار کاهش می یابد. این مسئله می تواند سبب جلوگیری از تشکیل ساختار چگال در پشت سطح گرم آجر و در نتیجه افزایش مقاومت به کندگی در اثر شوک های حرارتی شود.

در مجموع می توان مزایای استفاده از آجرهای AMC نسبت به آجرهای منیزیا-گرافیت و آلومینا-گرافیت در ناحیه تماس با مذاب و همچنین در خط سرباره پاتیل های

۲-۱- معرفی روش Box-Behnken

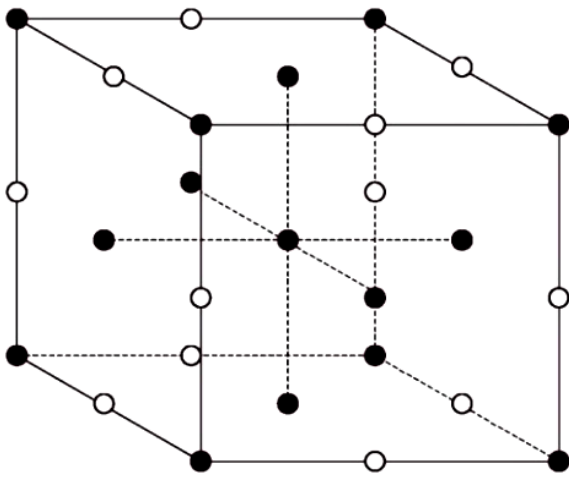
در این تحقیق برای کاهش تعداد نمونه‌گیری‌ها از یک روش آماری برای انتخاب فرمولاسیون و دمای زیتر هریک از نمونه‌ها استفاده شد که به روش Box-Behnken معروف است. این روش، مبتنی بر تعیین سه فاکتور مستقل و یک متغیر وابسته به آنها در تعیین شرایط آماده‌سازی و تهیه نمونه‌هاست. برای هریک از فاکتورهای مستقل، سه سطح مختلف در نظر گرفته می‌شود که به ترتیب کمترین، حد متوسط و بیشترین مقدار فاکتور مورد نظر را دارد. حال اگر هریک از متغیرهای مستقل را متناظر با هریک از محورهای مختصات در یک دستگاه مختصات سه‌بعدی در نظر بگیریم و مکعبی که این سه محور یال‌های آن را تشکیل می‌دهد رسم نماییم، با توجه به اینکه هر محور به سه منطقه کم، متوسط و زیاد تقسیم‌بندی شده است، ۲۷ نقطه در گوشه‌ها، درون مکعب و وسط وجوه و یال‌ها قابل تصور است. می‌توان از تمامی این نقاط برای دستیابی به فرمولاسیون و دمای زیتر نمونه‌ها استفاده کرد؛ اما روش Box-Behnken تعداد این نقاط را به نحو چشمگیری کاهش می‌دهد. از مزایای استفاده از این روش، کاهش تعداد نقاط مورد آزمایش از ۲۷ به ۱۵ نقطه است. ۱۲ نقطه از این نقاط، نقاط واقع بر وسط یال‌های مکعب هستند و ۳ نقطه‌ی دیگر، همان تک نقطه مرکزی مکعب است که باید سه بار آزمایش شود.

البته روش‌های دیگری نیز وجود دارد؛ اما تمامی آنها به بیش از ۱۵ نقطه نیاز دارند. برای مثال، طرح FCC شامل تمام گوشه‌های مکعب و مرکز تمام وجوه آن می‌شود. با توجه به اینکه نقطه مرکزی در این روش ۶ بار تکرار می‌شود، در کل ۲۰ نقطه در این روش آزمایش می‌شود که ۵ نقطه بیشتر از روش Box-Behnken است. مقایسه بین دو طرح Box-Behnken و FCC در شکل ۱ آمده است. [۸-۱۱]

۲- نحوه انجام آزمایش

در این مقاله، آلومینای ذوبی قهوه‌ای و بوکسیت کلسینه‌شده برای تأمین آلومینا استفاده شد. دانه‌بندی هر دو ماده نیز در محدوده ۰/۶mm-۰/۱۸۵mm انتخاب شد. همچنین منیزیای ذوبی چینی استفاده شد که دانه‌بندی آن در دو محدوده ۰/۴۲۵mm-۰/۱۸۵mm و زیر ۱۸۵µm (به صورت برابر) انتخاب گردید. در انتخاب دانه‌بندی آلومینا و منیزیا از اندازه‌های ریز و متوسط استفاده شده است تا امکان بررسی فاز زمینه به‌خوبی فراهم شود.

گرافیت پولکی چین با ۹۶٪ کربن به صورت منبع تأمین کننده کربن در نمونه‌ها به کار رفت. از پاداکسیدان آلومینیوم با خلوص بالای ۹۸٪ و اندازه ذرات زیر ۴۵µm، رزین فنولیک از نوع رزول ساخت کشور ترکیه به منزله بایندر و از هگزامین در نقش سخت‌کننده رزین در نمونه‌ها استفاده شد. آنالیز شیمیایی مواد اولیه این تحقیق در جدول ۱ آمده است.



شکل ۱. نمایش نقاط مورد آزمایش در دو طرح Box-Behnken (○) و FCC (●).

در این تحقیق برای ارائه فرمولاسیون، سه حالت در نظر گرفته شد:

حالت اول: تمام آلومینا از بوکسیت کلسینه شده تأمین می شود.

حالت دوم: نیمی از آلومینا از بوکسیت کلسینه شده و نیم دیگر از آلومینای ذوبی قهوه‌ای تأمین می شود.

حالت سوم: تمام آلومینا از آلومینای ذوبی قهوه‌ای تأمین می شود.

درصدهای آلومینای ذوبی قهوه‌ای، بوکسیت کلسینه شده و منیزیای ذوبی متناسب با این سه حالت در جدول ۲ لیست شده است. درصد منیزیا بر اساس میزان و نوع آلومینا و

بدر نظر گرفتن امکان تشکیل اسپینل استوکیومتری در نمونه‌ها محاسبه شده است. با توجه به آنالیز شیمیایی مواد اولیه در جدول ۱، چنانچه درصد آلومینای ذوبی قهوه‌ای (BFA)^۷ معلوم باشد، با استفاده از روابط ۱ و ۲ می توان درصدهای متناسب از بوکسیت کلسینه شده (CB)^۸ و منیزیای ذوبی (FM)^۹ را برای رسیدن به فرمولاسیونی با ترکیب اسپینل استوکیومتری محاسبه نمود. درصد وزنی Al_2O_3 و MgO در اسپینل استوکیومتری به ترتیب $71/80$ و $28/20$ است.

$$\% CB = -1/0.227 * \% BFA + 69/200 \quad \text{رابطه (۱)}$$

$$\% FM = +0/0.227 * \% BFA + 24/257 \quad \text{رابطه (۲)}$$

جدول ۱. آنالیز شیمیایی آلومینای ذوبی قهوه‌ای، بوکسیت کلسینه شده و منیزیای ذوبی استفاده شده در این تحقیق.

LOI	Na ₂ O+K ₂ O	CaO	Fe ₂ O ₃	TiO ₂	SiO ₂	MgO	Al ₂ O ₃	آنالیز شیمیایی [%]
-	-	۱	۰/۴	حداکثر ۲/۸	۱	-	حداقل ۹۳	آلومینای ذوبی قهوه‌ای
حداکثر ۰/۲	حداکثر ۲/۵	حداکثر ۰/۲	۲	حداکثر ۴	۳-۶	حداکثر ۰/۲	حداقل ۸۶	بوکسیت کلسینه شده
حداکثر ۰/۵	-	حداکثر ۲	حداکثر ۰/۶	-	حداکثر ۰/۷	حداقل ۹۶	۰/۵	منیزیای ذوبی

جدول ۲. درصد وزنی آلومینای ذوبی قهوه‌ای، بوکسیت کلسینه شده و منیزیای ذوبی در سه حالت مختلف.

حالت	آلومینای ذوبی قهوه‌ای [%]	بوکسیت کلسینه شده [%]	منیزیای ذوبی [%]
اول	۰	۶۹/۲۰	۲۴/۲۵
دوم	۳۴/۲۱	۳۴/۲۱	۲۵/۰۳
سوم	۶۷/۶۶	۰	۲۵/۷۹

7. Brown Fused Alumina.

8. Calcined Bauxite.

9. Fused Magnesia.

حرارتی قرار گرفتند.

باتوجه به فرمولاسیون نهایی جدول ۴ دمای زینتر نمونه‌ها نیز مشخص است. نمونه‌ها ۴ ساعت در دمای موردنظر و در بستر ککی زینتر شدند.

چنانچه L_1 و L_2 به ترتیب قطر اولیه (پس از تمپر) و قطر نهایی نمونه‌ها (پس از زینتر) باشد درصد تغییر طول پایدار (PLC) آنها از رابطه ۳ محاسبه می‌شود:

$$\text{رابطه (۳)} \quad \% \text{ PLC} = \frac{L_2 - L_1}{L_1} \times 100$$

برای بررسی فازهای تشکیل شده در برخی نمونه‌ها، از دستگاه پراش اشعه ایکس (XRD) با تشعشع Cu-K α و طول موج 1.54 \AA استفاده شد.

برای بررسی صحت و دقت معادلاتی که برای پیش‌بینی PLC پیشنهاد خواهند شد، سه نقطه (نمونه‌های شماره ۱۸، ۲۸ و ۳۸) خارج از نقاط طرح Box-Behnken در نظر گرفته شد. با اندازه‌گیری PLC این نقاط از طریق آزمایش و مقایسه آن با

جدول ۳. فاکتورهای مورد آزمایش به همراه سطح هریک مطابق روش Box-Behnken.

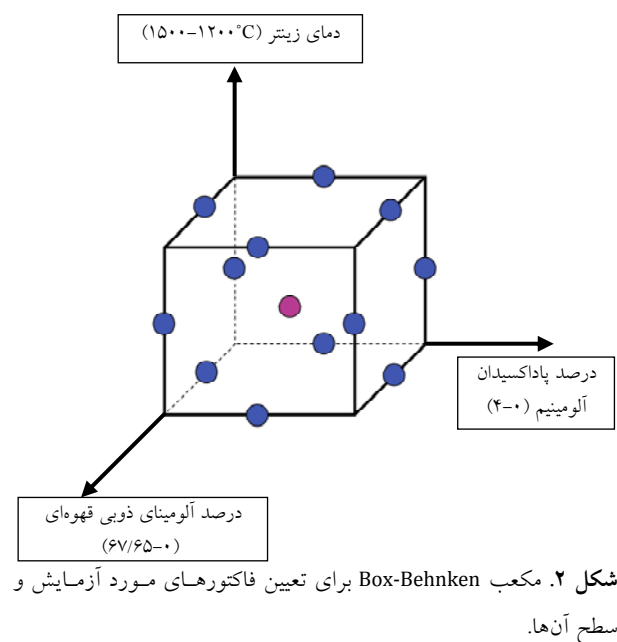
سطح فاکتورها	کم	متوسط	زیاد
درصد آلومینای ذوبی قهوه‌ای	۰	۳۴/۲۱	۶۷/۶۵
درصد پاداکسیدان آلومینیوم	۰	۲	۴
دمای زینتر [°C]	۱۲۰۰	۱۳۵۰	۱۵۰۰

درصد گرافیت و مجموع درصد رزین و هگزامین نیز در

تمام نمونه‌ها ثابت و به ترتیب برابر ۶/۵۵ و ۳/۳ است.

شکل ۲، مکعب فرضی است که در طرح Box-Behnken از آن برای تعیین فاکتورهای مورد آزمایش و سطح آنها در هر نقطه استفاده می‌شود. این فاکتورها و سطح آنها در جدول ۳ آمده است. جدول ۴ فرمولاسیون نهایی و دمای زینتر نمونه‌ها بر مبنای طرح آزمایش Box-Behnken را نشان می‌دهد.

پس از انتخاب مواد اولیه و تنظیم فرمولاسیون و دمای زینتر هریک از نمونه‌ها مطابق روش Box-Behnken، هر یک از آنها به مقدار لازم و بادقت ± 0.1 گرم توزین و برای مخلوط‌سازی آماده شد. از هریک از ۱۳ فرمولاسیون تهیه شده، سه نمونه برای زینتر در دمای موردنظر به کار رفت. عملیات شکل‌دهی با استفاده از دستگاه پرس هیدرولیک تک‌محوره و با فشار نهایی ۱۵۰ MPa انجام گرفت. در ادامه برای سخت شدن رزین و افزایش استحکام، نمونه‌ها در کوره تمپر صنعتی با دمای پیشینه 230°C و به مدت ۱۸ ساعت تحت عملیات



جدول ۴. فرمولاسیون نهایی و دمای زیتتر نمونه‌ها براساس روش Box-Behnken.

دمای زیتتر (°C)	پاداکسیدان آلومینیوم [%]	منیزیای ذوبی [%]	بوکسیت کلسینه‌شده [%]	آلمینای ذوبی قهوه‌ای [%]	نمونه‌ها
۱۳۵۰	۰	۲۴/۲۵	۶۹/۲۰	۰	۱
۱۲۰۰	۲	۲۴/۲۵	۶۹/۲۰	۰	۲
۱۵۰۰	۲	۲۴/۲۵	۶۹/۲۰	۰	۳
۱۳۵۰	۴	۲۴/۲۵	۶۹/۲۰	۰	۴
۱۲۰۰	۰	۲۵/۰۳	۳۴/۲۱	۳۴/۲۱	۵
۱۵۰۰	۰	۲۵/۰۳	۳۴/۲۱	۳۴/۲۱	۶
۱۲۰۰	۴	۲۵/۰۳	۳۴/۲۱	۳۴/۲۱	۷
۱۵۰۰	۴	۲۵/۰۳	۳۴/۲۱	۳۴/۲۱	۸
۱۳۵۰	۰	۲۵/۸۰	۰	۶۷/۶۵	۹
۱۲۰۰	۲	۲۵/۸۰	۰	۶۷/۶۵	۱۰
۱۵۰۰	۲	۲۵/۸۰	۰	۶۷/۶۵	۱۱
۱۳۵۰	۴	۲۵/۸۰	۰	۶۷/۶۵	۱۲
۱۳۵۰	۲	۲۵/۰۳	۳۴/۲۱	۳۴/۲۱	۱۳-۱ ^x
۱۳۵۰	۲	۲۵/۰۳	۳۴/۲۱	۳۴/۲۱	۱۳-۲ ^x
۱۳۵۰	۲	۲۵/۰۳	۳۴/۲۱	۳۴/۲۱	۱۳-۳ ^x
۱۳۵۰	۲	۲۴/۲۵	۶۹/۲۰	۰	۱۸
۱۴۰۰	۰/۵۰	۲۴/۳۷	۶۴/۰۹	۵/۰۰	۲۸
۱۴۵۰	۰/۵۰	۲۵/۲۸	۲۳/۱۸	۴۵/۰۰	۳۸

x نقاط واقع در مرکز مکعب.

مقادیر پیش‌بینی شده از معادلاتی که در مجموعه نقاط آزمایش برآزش خواهند شد، مدل‌ها ارزیابی می‌شوند.

۳. نتایج و بحث

با استفاده از اطلاعات از تغییر ابعاد نمونه‌ها قبل و بعد از

زیتتر، مقدار PLC برای هر سه نمونه‌ای که برای یک فرمولاسیون خاص (مطابق جدول ۴) ساخته شده بود اندازه‌گیری شد. برای پیش‌بینی PLC می‌توان از سه مدل رگرسیونی خطی^{۱۱}، درجه-۲^{۱۲} و درجه-۳^{۱۳} استفاده کرد. این مدل‌ها به ترتیب معادلات درجه اول، دوم و سوم برای پیش‌بینی مقدار PLC پیشنهاد می‌کنند. یافتن این مدل‌ها به معنی

11. Linear Regression Model.
12. Quadratic.
13. Cubic.

$$Z = \text{Quadratic} + \beta_{123}x_1x_2x_3 + \beta_{112}x_1^2x_2 + \beta_{113}x_1^2x_3 + \beta_{122}x_1x_2^2 + \beta_{133}x_1x_3^2 + \beta_{223}x_2^2x_3 + \beta_{233}x_2^2x_3^2 + \beta_{111}x_1^3 + \beta_{222}x_2^3 + \beta_{333}x_3^3$$

رابطه (۵)

جدول ۵. برآورد ضرایب مدل‌های خطی، درجه-۲ و درجه-۳.

مدل	مدل خطی	مدل درجه-۲	مدل درجه-۳
β_0	-۱۰/۹۹۵	۴۷/۹۷۳	۳۷/۰۱۱
β_1	-۰/۰۳۳	۰/۳۳۰	۰/۲۶۶
β_2	-۰/۴۸۶	۵/۸۹۷	۲/۱۴۵
β_3	۰/۰۱۱	-۰/۰۹۶	-۰/۰۵۱
β_{12}	-	۰	۰
β_{13}	-	۰/۰۰۰	۰/۰۰۰
β_{23}	-	-۰/۰۰۵	۰
β_{11}	-	۰	۰
β_{22}	-	۰	۰
β_{33}	-	$۴/۶۴۶ \times ۱۰^{-۵}$	۰
β_{123}	-	-	$-۲/۲۲۱ \times ۱۰^{-۵}$
β_{112}	-	-	۰/۰۰۰
β_{113}	-	-	۰
β_{122}	-	-	۰/۰۰۵
β_{133}	-	-	۰
β_{223}	-	-	۰
β_{233}	-	-	$-۱/۴۸۰ \times ۱۰^{-۶}$
β_{111}	-	-	۰
β_{222}	-	-	۰
β_{333}	-	-	$۱/۴۴۴ \times ۱۰^{-۸}$

تعیین ضرایب رگرسیونی هریکاز آنهاست. با برآورد این ضرایب، مدل مورد نظر مشخص می‌شود و با استفاده از آن می‌توان هم PLC را در ۱۴ نقطه باقی مانده [از ۲۷ حالت کلی] حدس زد، هم آن را در مجموعه نقاط داخلی مکعب Box- Behnken (به صورت پیوسته) پیش‌بینی نمود.

در این قسمت به بررسی هریکاز این مدل‌ها می‌پردازیم. در این مدل‌ها، x_1 درصد جایگزینی آلومینای ذوبی قهوه‌ای به جای بوکسیت کلسینه‌شده، x_2 درصد پاداکسیدان آلومینیوم و x_3 دمای زیتتر نمونه‌ها و Z نیز معرف درصد PLC است.

۱-۳. مدل خطی

فرم کلی این مدل به صورت $Z = \beta_0 + \beta_1x_1 + \beta_2x_2 + \beta_3x_3$ است که ۴ ضریب دارد. برآورد ضرایب این مدل در جدول ۵ آمده است. پارامتر Adjusted R Square این مدل ۰/۵۴ است.

۲-۳. مدل درجه-۲

فرم کلی مدل به این صورت است:

$$Z = \beta_0 + \beta_1x_1 + \beta_2x_2 + \beta_3x_3 + \beta_{12}x_1x_2 + \beta_{13}x_1x_3 + \beta_{23}x_2x_3 + \beta_{11}x_1^2 + \beta_{22}x_2^2 + \beta_{33}x_3^2$$

رابطه (۴)

این مدل ۱۰ ضریب دارد که برآورد ضرایب آن در جدول ۵ آمده است. پارامتر Adjusted R Square این مدل نیز ۰/۸۴ است.

۳-۳. مدل درجه-۳

فرم کلی این مدل چنین است:

در درصد‌های کوچک PLC چندان مورد توجه نیست و عملاً در مقادیر بالاتر PLC است که امکان بروز تغییرات شدید ترمومکانیکی و تأثیرات مخرب آن بر طول عمر آجرهای دیرگداز وجود دارد.

با توجه به فراهم شدن امکان پیش‌بینی مقدار PLC در تمام نقاط، اکنون می‌توان نمودارهای وابستگی درصد PLC به درصد جایگزینی آلومینای ذوبی قهوه‌ای به جای بوکسیت کلسینه‌شده، درصد پاداکسیدان آلومینیوم و دمای زینتر نمونه‌ها را ترسیم کرد. اما نکته مهم این است که نشان دادن وابستگی PLC به هر سه فاکتور مورد آزمایش به‌طور هم‌زمان و در صفحه کاغذ امکان‌پذیر نیست. برای رفع این مشکل، ۲ راه‌حل وجود دارد: اول، کاهش تعداد فاکتورها از ۳ به ۲ و دوم، ترسیم منحنی‌ها در سطح مقطع ثابتی از این فاکتورها. همچنین می‌توان نحوه وابستگی PLC به هر سه فاکتور را به صورت یک انیمیشن کامپیوتری نشان داد؛ به این صورت که ابتدا تغییرات درصد PLC برحسب درصد جایگزینی آلومینای ذوبی قهوه‌ای و درصد پاداکسیدان آلومینیوم در دماهای ثابت از ۱۲۰۰ تا ۱۵۰۰°C در شکل‌های سه‌بعدی ترسیم می‌شود. سپس از به‌هم‌پیوستن این شکل‌ها، انیمیشنی ساخته می‌شود که هرچه زمان بیشتری از اجرای آن می‌گذرد، مانند آن است که تغییرات PLC در دماهای بالاتر تصویر می‌شود. روش کاهش تعداد فاکتورها از ۳ به ۲ در مقاله قبلی بررسی شده است [۱۲]. در اینجا به رسم منحنی‌ها در سطح مقطع ثابتی از دماهای ۱۲۰۰، ۱۳۵۰ و ۱۵۰۰°C می‌پردازیم.

۳-۴- ترسیم منحنی‌ها در سطح مقطع ثابتی از دما

برای ارائه یک دیدگاه کلی درمورد نحوه تغییر PLC با تغییرات درصد جایگزینی آلومینای ذوبی قهوه‌ای به جای بوکسیت کلسینه‌شده و درصد پاداکسیدان آلومینیوم، منحنی‌های سه‌بعدی در سطح مقطع دماهای ۱۲۰۰، ۱۳۵۰ و ۱۵۰۰°C

این مدل شامل مدل درجه-۲ نیز می‌شود و به‌جز آن، ۱۰ ضریب جدید دیگر هم دارد. تعداد کل ضرایب این مدل برابر ۲۰ است. برآورد ضرایب این مدل نیز در جدول ۵ آمده است. پارامتر Adjusted R Square مدل درجه-۳، ۰/۹۱ است. مشاهده می‌شود که هرچه به سمت مدل‌هایی با درجه بالاتر می‌رویم پارامتر Adjusted R Square آنها نیز به عدد یک نزدیک‌تر می‌شود که البته امری طبیعی است. نزدیک بودن این پارامتر به مقدار واحد یک در مدل درجه-۳، نشان‌دهنده کیفیت خوب این مدل در پیش‌بینی کلیه نقاط درون مکعب Box-Behnken است. پیش‌بینی این مدل از PLC نقاط مرجع در جدول ۶ آمده است. مشاهده می‌شود مدل درجه-۳ در پیش‌بینی PLC این نقاط نسبت به سایر مدل‌ها موفق‌تر بوده است. در جدول ۷، پیش‌بینی این مدل از خود نقاط آزمایش شده دیده می‌شود. مقادیر اندازه‌گیری شده PLC با درصد‌های به‌دست‌آمده از مدل درجه-۳ مطابقت خوب و پذیرفتنی دارد. البته در درصد‌های کم PLC انحراف بیشتری مشاهده می‌شود که این مطلب از نظر مباحث آماری محل تأمل است؛ اما در کاربردهای عملی در بحث انبساط خطی آجرهای دیرگداز، انحراف از مقادیر واقعی

جدول ۶. پیش‌بینی PLC نمونه‌های مرجع توسط هریک از مدل‌ها.

شماره نمونه	درصد PLC اندازه‌گیری شده	درصد PLC پیش‌بینی شده		
		مدل درجه-۳	مدل درجه-۲	مدل خطی
۱۸	۲/۰۶	۲/۲۰	۲/۱۱	۲/۷۱
۲۸	۴/۳۹	۴/۱۵	۴/۰۸	۳/۸۱
۳۸	۲/۹۶	۳/۱۱	۳/۳۲	۳/۰۴
میانگین درصد خطا		۵/۸	۷/۲	۱۵/۸
پارامتر Adjusted R Square		۰/۹۱	۰/۸۴	۰/۵۴

جدول ۷. مقدار میانگین PLC به دست آمده از آزمایشات و مقایسه آن با مقادیر محاسبه شده با مدل درجه ۳.

شماره نمونه	۱	۲	۳	۴	۵	۶	۷	۸	۹	۱۰	۱۱	۱۲	۱۳ (میانگین)
اندازه گیری شده	۳/۰۲	۰/۵۰	۶/۳۸	۱/۱۱	۰/۴۵	۶/۶۶	۰/۴۰	۰/۹۳	۰/۶۰	۰/۲۶	۰/۶۸	۰/۵۳	۰/۳۳
محاسبه شده	۳/۳۰	۰/۴۵	۶/۴۵	۱/۱۰	۰/۳۱	۶/۴۰	۰/۵۶	۰/۹۵	۰/۸۰	۰/۲۹	۰/۸۴	۰/۴۳	۰/۲۵

آلومینای ذوبی قهوه‌ای به جای بوکسیت کلسینه شده، یا با افزایش درصد پاداکسیدان آلومینیوم، PLC عموماً کاهش می‌یابد. دلیل این امر نیز مستقیماً به درصد فاز اسپینل تشکیل شده در هریک از نمونه‌ها برمی‌گردد که در بخش «بررسی‌های فازی» شرح داده خواهد شد.

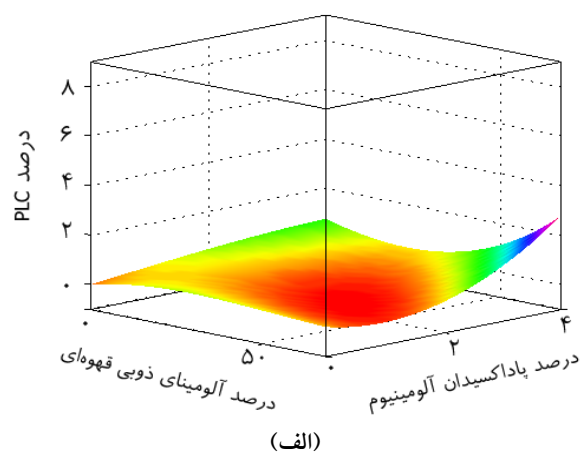
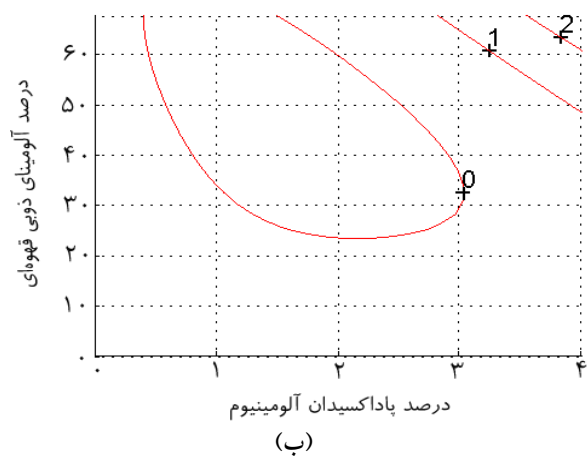
۳-۵. بررسی‌های فازی

این بخش به بررسی فازی نمونه‌های ۳، ۶، ۸ و ۱۱ می‌پردازد. دلیل انتخاب این نمونه‌ها از بین ۱۳ فرمولاسیون مختلف ساخته شده، بررسی اثر جایگزینی آلومینای ذوبی قهوه‌ای به جای بوکسیت کلسینه شده (نمونه‌های ۳ و ۱۱) و اثر افزودن پاداکسیدان آلومینیوم به فرمولاسیون (نمونه‌های ۶ و ۸) در تشکیل فاز اسپینل است. دمای زینتر هر چهار نمونه 1500°C بوده است. الگوی پراش اشعه X این نمونه‌ها در شکل ۶ آمده است. این الگوها، وجود فازهای پری‌کلاز، کوراندوم، گرافیت و اسپینل را در هر چهار نمونه اثبات می‌نماید. با مقایسه شدت پیک اصلی اسپینل در نمونه‌های ۳ و ۱۱ (به ترتیب تصاویرهای «الف» و «ب»)، مشاهده می‌شود که جایگزینی

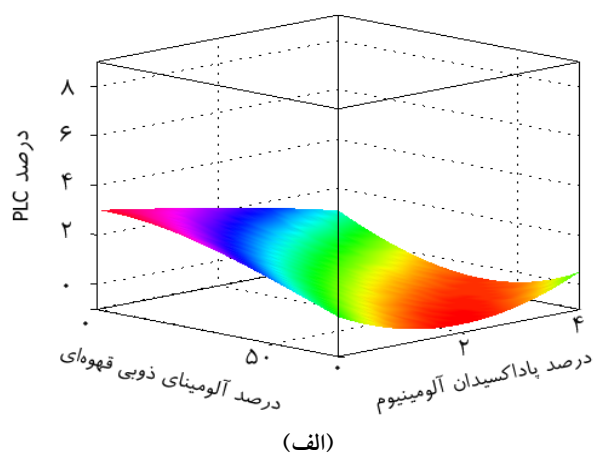
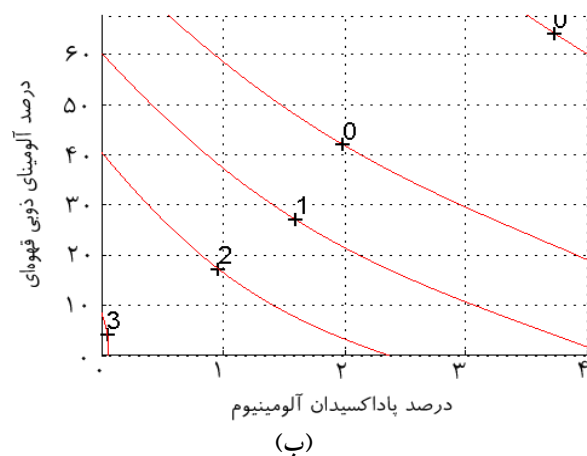
ترسیم شد. بدیهی است که می‌توان این منحنی‌ها را در درصد‌های ثابتی از آلومینای ذوبی قهوه‌ای یا پاداکسیدان آلومینیوم نیز ترسیم نمود؛ اما با توجه به آنکه دما تأثیر چشمگیری بر رفتار PLC دارد در این قسمت به ترسیم این منحنی‌ها در دماهای ثابت می‌پردازیم. دیاگرام‌های وابستگی PLC به درصد جایگزینی آلومینای ذوبی قهوه‌ای به جای بوکسیت کلسینه شده و درصد پاداکسیدان آلومینیوم در دماهای 1200 ، 1350 و 1500°C در شکل‌های ۳ تا ۵ آمده است.

در هریک از شکل‌های ۳ تا ۵، تصویر «الف» نشان‌دهنده تغییرات PLC با درصد جایگزینی آلومینای ذوبی قهوه‌ای و درصد پاداکسیدان آلومینیوم در دمای مشخص شده است. تصویر «ب» منحنی‌های هم‌تراز PLC است که در مقابل درصد جایگزینی آلومینای ذوبی قهوه‌ای و درصد پاداکسیدان آلومینیوم ترسیم شده‌اند. PLC روی هر کدام از این منحنی‌ها، مقدار ثابتی دارد که با فاصله‌های ۱٪ بر روی هریک از منحنی‌ها مشخص شده است.

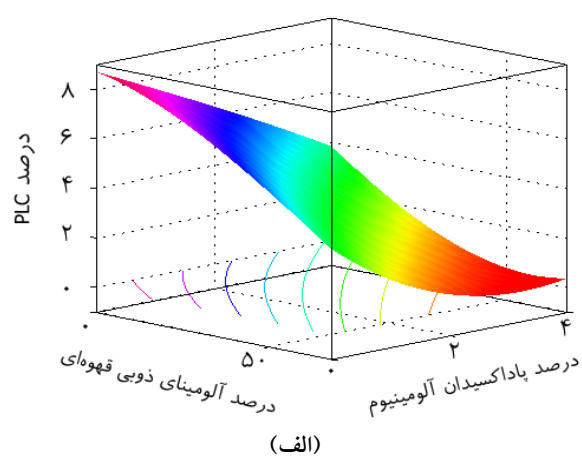
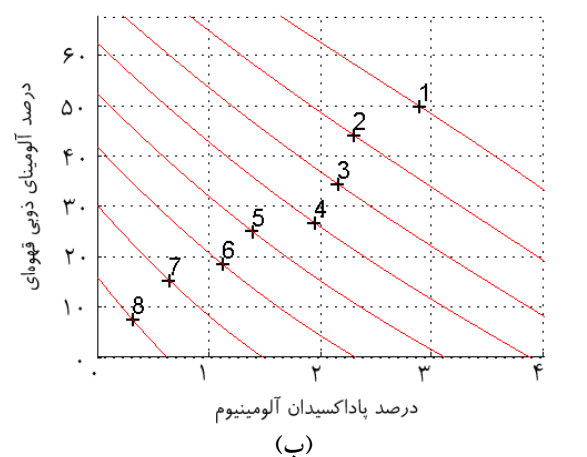
مطابق شکل‌های ۳ تا ۵، روند حاکم بر تغییرات PLC در بیشتر موارد مشابه و قابل پیش‌بینی است؛ به طوری که مثلاً با افزایش دما، PLC افزایش می‌یابد و با افزایش درصد جایگزینی



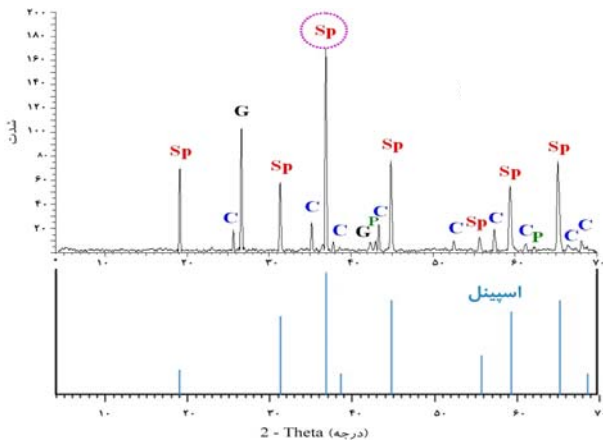
شکل ۳. الف. دیاگرام وابستگی PLC به درصد جایگزینی آلومینای ذوبی قهوه‌ای و پاداکسیدان آلومینیوم و ب. منحنی‌های هم‌تراز PLC در دمای ۱۲۰۰°C.



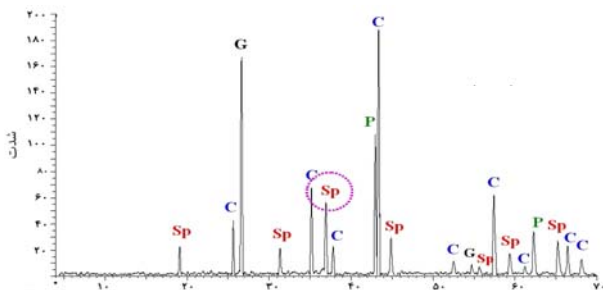
شکل ۴. الف. دیاگرام وابستگی PLC به درصد جایگزینی آلومینای ذوبی قهوه‌ای و پاداکسیدان آلومینیوم و ب. منحنی‌های هم‌تراز PLC در دمای ۱۳۵۰°C.



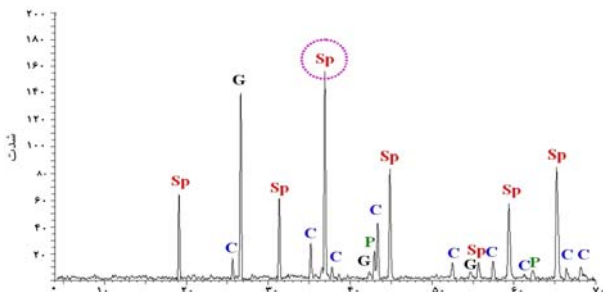
شکل ۵. الف. دیاگرام وابستگی PLC به درصد جایگزینی آلومینای ذوبی قهوه‌ای و پاداکسیدان آلومینیوم و ب. منحنی‌های هم‌تراز PLC در دمای ۱۵۰۰°C.



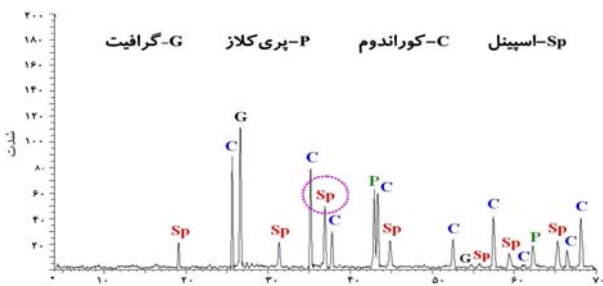
(الف)



(ب)



(ج)



(د)

شکل ۶. الگوی پراش اشعه X برخی نمونه‌های زیتترشده در دمای ۱۵۰۰°C. الف. نمونه ۳، ب. نمونه ۱۱، ج. نمونه ۶ و د. نمونه ۸.

آلومینای ذوبی قهوه‌ای به جای بوکسیت کلسینه‌شده در فرمولاسیون، سبب کاهش شدید مقدار فاز اسپینل شده است. از طرف دیگر، مقایسه اسپینل تشکیل شده در نمونه‌های ۶ و ۸ (به ترتیب تصویرهای «ج» و «د») نشان می‌دهد که با افزودن پاداکسیدان آلومینیوم به فرمولاسیون نمونه‌ها، مقدار این فاز بسیار کاهش یافته است. برای ارزیابی شدت هریک از پیک‌های اسپینل در تصویرهای «الف» تا «د»، الگوی پراش اشعه X فاز اسپینل خالص نیز در شکل ۶ آمده است.

کاهش تشکیل فاز اسپینل با افزایش درصد جایگزینی آلومینای ذوبی قهوه‌ای به جای بوکسیت کلسینه‌شده را می‌توان در توانایی بهتر بوکسیت در تشکیل اسپینل نسبت به آلومینای ذوبی قهوه‌ای دانست. چون بوکسیت کلسینه‌شده ناخالصی بیشتری نسبت به آلومینای ذوبی قهوه‌ای دارد، باعث کاهش دمای تشکیل اسپینل می‌گردد. حضور بیشتر فازهای سیلیکاتی مانند SiO_2 و همچنین حضور هم‌زمان Fe_2O_3 و TiO_2 در مقادیر بیشتر در بوکسیت سبب می‌شود امکان نفوذ یون‌های Mg^{2+} و Al^{3+} در زمینه‌ای با ویسکوزیته کمتر فراهم شود. تمام این عوامل در مجموع نفوذ متقابل یون‌های Al^{3+} و Mg^{2+} را می‌افزاید و سبب می‌شود با حضور بوکسیت فاز اسپینل بیشتری تشکیل شود. در صورتی که اگر آلومینای ذوبی قهوه‌ای تنها منبع تأمین کننده آلومینا باشد، نفوذ یون‌های Al^{2+} و Mg^{2+} به علت ویسکوزیته بالاتر زمینه در این حالت به کندی صورت خواهد گرفت و اسپینل کمتری تشکیل می‌گردد [۱۳].

همچنین کاهش تشکیل اسپینل در اثر افزایش درصد پاداکسیدان آلومینیوم در نمونه‌ها را می‌توان به دو صورت توجیه کرد [۱۴]:

۱. تشکیل زود هنگام کریستال‌های صفحه‌ای شکل کاربرد آلومینیوم و نقش آنها در ممانعت از تماس مستقیم ذرات آلومینا و منیزیا به عنوان اولین مرحله تشکیل اسپینل.

با ترسیم منحنی‌های سه‌بعدی وابستگی PLC به درصد آلومینای ذوبی قهوه‌ای و درصد پاداکسیدان آلومینیوم در سطح مقطع دماهای ۱۲۰۰، ۱۳۵۰ و ۱۵۰۰°C مشخص شد که با جایگزینی آلومینای ذوبی قهوه‌ای به جای بوکسیت کلسینه‌شده و همچنین با افزایش درصد پاداکسیدان آلومینیوم، PLC نمونه‌ها عموماً کاهش می‌یابد. در ادامه با بررسی‌های فازی صورت‌گرفته از برخی نمونه‌های زیت‌شده در دمای ۱۵۰۰°C، میزان تشکیل فاز اسپینل مهم‌ترین عامل تأثیرگذار بر روی درصد تغییر طول نمونه‌ها معرفی گردید.

تشکر و قدردانی

نویسندگان این مقاله از همکاری مدیریت و پرسنل زحمت‌کش شرکت فرآورده‌های نسوز پارس یزد و به‌ویژه مرکز تحقیق و توسعه و کنترل کیفیت آن در انجام هرچه بهتر این پژوهش صمیمانه قدردانی می‌نمایند. همچنین نویسنده‌ی اول مقاله، تشکر ویژه‌ی خود را به پاس هم‌صحبتی و راهنمایی‌های ارزشمند آقای مهندس آرش شجاعی در طول این تحقیق به ایشان تقدیم می‌نماید.

مراجع

1. Rigaud, M., "Trends in the Steel Industry and Developments of New Refractory Materials", *Tehran International Conference on Refractories*, (2004) 164-173.
2. Shikano, H., "Refractories Handbook", The Technical Association of Refractories, Japan, (1998).
3. Gupta, A.D., et. al., "Development of Resin-Bonded Alumina-Magnesia-Carbon Bricks for Steel Ladle Applications", *J. of Interacem*, Vol. 48 No. 5 (1999) 307-310.
4. Resende, W.S., et. al., "Key Features of Alumina-Magnesia-Graphite Refractories for Steel Ladle Lining", *J. of European Ceramic Society*, Vol. 20 No. 9 (2000) 1419-1427.

۲. تبدیل کاربید آلومینیوم به آلومینا در دماهای بالاتر و واکنش آلومینای تشکیل‌شده با منیزیا و تشکیل اسپینل اولیه؛ تشکیل این اسپینل از تماس بیشتر ذرات آلومینا با منیزیا جلوگیری می‌کند.

با بررسی الگوی پراش اشعه X این چهار نمونه، مشخص می‌شود که فازهای کاربیدی و نیتریدی ناشی از حضور پاداکسیدان آلومینیوم که در دماهای پایین زیت‌ر تشکیل می‌شوند در دماهای بالاتر به آلومینا یا اسپینل تبدیل شده‌اند؛ زیرا پیک‌های آنها در هیچ‌کدام از نمونه‌ها با درصدهای مختلفی از پاداکسیدان مشاهده نمی‌شود. مقایسه شدت پیک‌های کوراندوم و پری‌کلاز در نمونه‌های ۳ و ۶ (به ترتیب تصویرهای «الف» و «ج») که دارای بیشترین درصد فاز اسپینل هستند نیز نشان می‌دهد که به‌علت تشکیل بی‌رویه اسپینل در آنها، عملاً منزیای بسیار کمی برای تشکیل اسپینل در پخت‌های بعدی در آنها باقی مانده است.

۴- نتیجه‌گیری

در این تحقیق سعی شد تا با استفاده از طرح آزمایش Box-Behnken، تأثیر نوع آلومینا، درصد پاداکسیدان و دمای زیت‌ر بر روی رفتار انبساط خطی پایدار دیرگدازهای آلومینا-منزییا-گرافیت بررسی شود. با استفاده از ویژگی‌های منحصربه‌فرد روش Box-Behnken تعداد نمونه‌گیری‌ها تا نصف مقدار واقعی کاسته شد. برای پیش‌بینی PLC نقاطی که آزمایشی در آنها صورت نگرفته بود مدل‌های خطی، درجه ۲ و درجه ۳ پیشنهاد شد. با آنالیز آماری این مدل‌ها و در نظر گرفتن پیش‌بینی هریک از آنها از نقاط مرجع، مدل درجه ۳ با Adjusted R Square برابر ۰/۹۱ و میانگین خطای ۵/۸٪ در پیش‌بینی PLC نقاط مرجع، به‌منزله مدل برتر انتخاب شد.

11. Borkowski, J.J. and Valeroso, E.S., "Comparison of Design Optimality Criteria of Reduced Models for Response Surface Designs in the Hypercube", *Technometrics*, Vol. 43 No. 4 (2001) 468-477.
۱۲. فیض پور مهدی و دیگران؛ "بررسی تأثیر نوع آلومینا، درصد پاداکسیدان و دمای پخت بر رفتار انبساط خطی پایدار دیرگدازهای آلومینا-منیزیا-گرافیت"، *ششمین کنگره سرامیک ایران*، پژوهشگاه مواد و انرژی کرج (۱۳۸۶).
13. Okushima, S., et. al., "Improvement of Slag Resistance of Al₂O₃-MgO-C Brick", Report, *Taikabutsu Overseas*, Vol. 10 No. 3 (1990) 142-144.
۱۴. باوند-وند چالی محمد؛ "بررسی اثر افزودن آنتی اکسیدان Al بر خاصیت مقاومت اکسیداسیونی و ریزساختار نسوزهای منیزیا-گرافیتی"، پایان نامه کارشناسی ارشد، دانشگاه علم و صنعت ایران (۱۳۷۸).
5. Nandy, S.K., et. al., "Resin-Bonded Al₂O₃-MgO-C Brick for Steel Ladle", *American Ceramic Society Bulletin*, Vol. 79 No. 7 (2000) 67-70.
6. Koley, R.K., et. al., "Development and Application of Al₂O₃-MgO-C Refractory for Secondary Refining Ladle", *Unified International Technical Conference on Refractories*, 7th Biennial Worldwide Congress, Mexico (2001).
7. Schacht, C.A., (Ed), *Refractories Handbook*, Marcel Dekker Inc, New York, ISBN: 0824756541 (2004).
8. Mason, R.L., et. al., *Statistical Design and Analysis of Experiments*, 2nd Edition, Wiley and Sons, New York ISBN: 0-471-37216-1 (2003).
9. Web Site of Engineering Statistic Handbook, <http://www.itl.nist.gov/div898/handbook/>.
10. Akkurt, A., et al, "Corrosion of MgO-C Ladle Refractories", *American Ceramic Society Bulletin*, Vol. 82 No. 5 (2003) 32-40.