

# コロイドプロセッシング法によるSi-C-O繊維／アルミナ複合材料の作製と機械的特性

窯業部 神野好孝, 國生徹郎, 田畑一郎, 平田好洋\*  
機械金属部 浜石和人, 森田春美

## Colloidal Processing for Preparation and Mechanical Properties of Si-C-O Long Fiber / Alumina Matrix Composite

Yoshitaka KAMINO, Tetsuro KOKUSHO, Ichiro TABATA, Yoshihiro HIRATA\*  
Kazuto HAMAISHI and Harumi MORITA

Si-C-O 繊維 (20vol%) / アルミナマトリックス複合材料を、アルミナサスペンションに繊維シートを浸せきするコロイドプロセッシング法で成形し、大気中、真空中 (0.01Pa) 及び加圧下 (39MPa) の 1000 ~ 1400 °C で焼結して作製した。アルミナ単体及び複合材料は真空中焼結より大気中焼結の方が焼結性が良かった。複合材の強度は真空中 1300 °C 焼結のものが最も高く 300MPa を示した。真空中 1200 ~ 1300 °C で焼結した複合材料は、破壊の応力-歪曲線において、マトリックスからの繊維の引き抜けに基づく著しい非線形破壊挙動を示した。焼結温度が 1400 °C まで上昇すると線形破壊挙動を示した。これは密度上昇により繊維とマトリックスの界面強度が上昇したためと推察される。空气中で焼結した複合材料では、アルミナマトリックスと酸化された Si-C-O 繊維間で、SiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 系による中間層が生成した。SiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 系が生成することにより、複合材料は線形破壊となり、強度が低下した。BN 微粒子で処理した Si-C-O 繊維を用いた複合材料は、1200 °C の加圧焼結により強度が 420MPa に上昇し、非線形破壊挙動を示した。

### 1. 緒言

構造用セラミックスは熱的・化学的安定性に優れているので、高温領域での利用が一部では進められている。しかし高温雰囲気中での材料の劣化状況の把握については、高い信頼性のある手法が確立されていない。そこで繊維で補強した複合セラミックス材料を開発し、高温雰囲気中での材料劣化を検出することにより、材料の寿命予測を可能とするような手法の開発を目指した。

一般的に、セラミックスには高強度、耐熱性、高剛性、耐摩耗性、耐食性などの特性があり、各種の産業分野で今後盛んに使用される可能性がある。しかし通常のセラミックスは一旦どこかで破壊が始まれば、それは止まることなく破滅的に進行する。この対策として材料の破壊靱性を向上させ破壊に対する抵抗性を高めることが試みられている。セラミックスの強度及び靱性を向上させる手段としては、粒子分散強化、繊維強化、積層強化などの方法が用いられている。

アルミナは機械的強度や硬度が高く、物理的・化学的安定性に優れており、最も普及したファインセラミックス材料である。しかし、耐熱衝撃性、靱性、高温強度が小さいので用途に限界がある。アルミナをマトリックスとするセラミックス複合材料では、粒子分散強化<sup>1) 2) 3)</sup>、ウィスカ強

化<sup>4) 5)</sup>、積層強化<sup>6) 7)</sup>が報告されており、長繊維強化<sup>8)</sup>の例は少ない。

本研究はマトリックスにアルミナを用い、強化長繊維として Si-C-O 繊維を加えることで、繊維の橋かけ、引き抜きによる複合材料の非線形破壊挙動を実現する。複合化は Si-C-O 繊維をアルミナサスペンションに浸せきし、これを積重するコロイドプロセッシング法によった。焼結法には空气中での常圧焼結、0.01Pa での真空焼結及び 39MPa の加圧焼結を用いた。

### 2. 実験方法

#### 2.1 原料の性状

マトリックスに用いたアルミナ粉体は、住友アルミ精錬製 α-アルミナ粉体であり、平均粒径 0.5 μm、化学組成 99.95mass%Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、0.05mass%MgO、Fe14ppm、Si7ppm、Na48ppm、BET 比表面積 7.2m<sup>2</sup>/g である。

強化に用いた長繊維は日本カーボン製の直径 15 μm の非晶質 Si-C-O 繊維であり、化学組成は 57.6mass%Si、30.1mass%C、11.8mass%O、0.3mass%H である。この繊維の特性は引張強度 2.744GPa、引張弾性率 176.4GPa、伸び率 1.6%、密度 2.30g/cm<sup>3</sup>、熱膨張係数 3.1 × 10<sup>-6</sup>/K、電気比抵抗 10<sup>6</sup> ~ 10<sup>7</sup> Ω cm である。サイジング剤を使用

\*鹿児島大学工学部応用化学工学科

して500本のフィラメントを束ねてヤーンに成形しており、織度(テックス)は210g/1000mである。Si-C-O繊維の被覆に用いた六方晶窒化ホウ素は電気化学工業製で、密度 $2.26\text{g/cm}^3$ 、粒度 $1\sim 5\mu\text{m}$ 、 $\text{BN} > 99.5\text{mass}\%$ である。図1に原料のX線回折図、図2にSEM写真を示す。

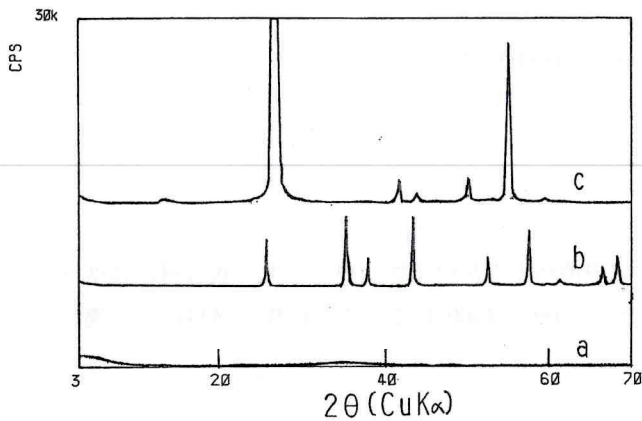


図1 原料のX線回折図

a: Si-C-O 繊維 b: アルミナ粉末 c: 窒化ほう素

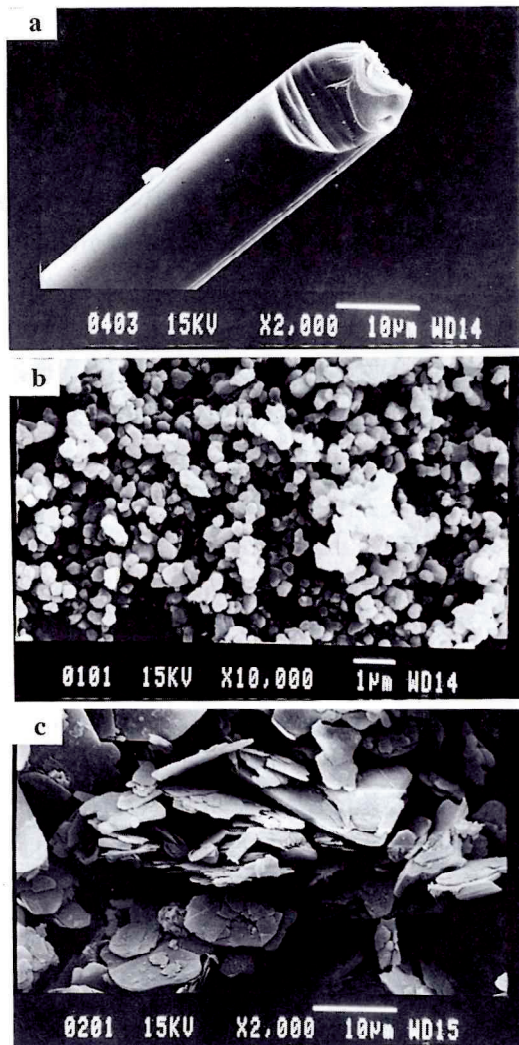


図2 原料のSEM写真

a: Si-C-O 繊維 b: アルミナ粉末 c: 窒化ほう素

## 2. 2 サスペンションの調製とレオロジーの測定

### 2. 2. 1 ゼータ電位

マトリックスに用いたアルミナ粉体について、PenKem社全自動界面動電現象解析装置 System3000を使用してゼータ電位を測定した。アルミナ粉体を $\text{KCl}$ の $10^{-3}\text{M}$ 水溶液に分散し、 $\text{pH}$ を調製したのち、装置に導入して測定した。

図3に結果を示す。これよりアルミナは $\text{pH}8$ 付近で電位が0の等電点となっている。このため中性及び弱アルカリ性の $\text{pH}$ 領域では粒子の反発力は小さく、サスペンションの凝集が起これらと考えられる。また $\text{pH}5$ 以下の酸性領域では大きなゼータ電位を示すので、サスペンション中では大きな粒子の静電反発のため、良好な分散状態が得られると推定される。

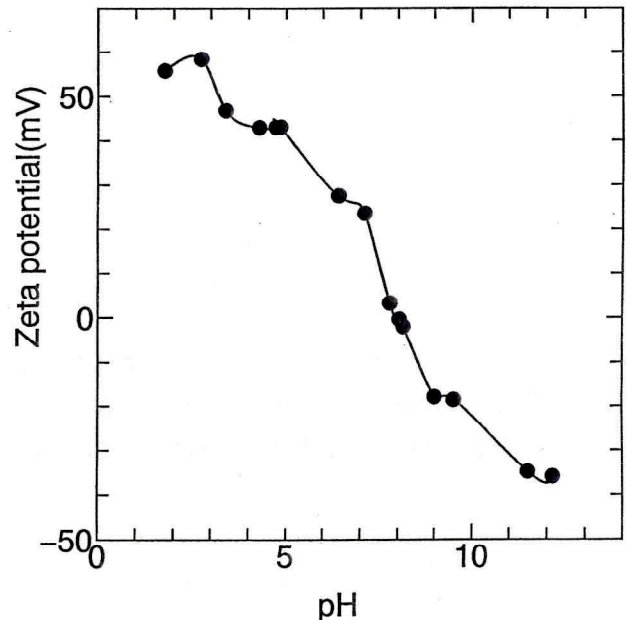


図3 アルミナ粉体の $\text{pH}$ とゼータ電位の関係

### 2. 2. 2 サスペンションの分散とレオロジー

塩酸とアンモニア水により $\text{pH}1$ から $\text{pH}12$ までのそれぞれ異なる水溶液を調製し、アルミナ粉体を5, 10, 20 vol%投入し、超音波で1時間分散して、沈降状況および $\text{pH}$ を観察した。図4に結果を示す。分散前の $\text{pH}2\sim 8$ の範囲の溶液では分散後はいずれも $\text{pH}9$ 付近の値を示した。 $\text{pH}2.3$ のサスペンションの上澄み液を分析した結果、 $\text{Mg}$ が検出されたことより、添加した塩酸がアルミナに粒成長抑制剤として添加してある $\text{MgO}$ を溶解したものと推定される。

次に、5, 10, 20 vol%のサスペンションを $\text{pH}9$ 付近で調製し、東京計器製の有段変速式回転粘度計を使用して粘度を測定した。ロータの回転速度を0.5, 1, 2.5, 5, 10, 20, 50, 100 rpmと上昇/下降させ、回転速度切り替え直前の指示値よりずり応力とずり速度を算出した。

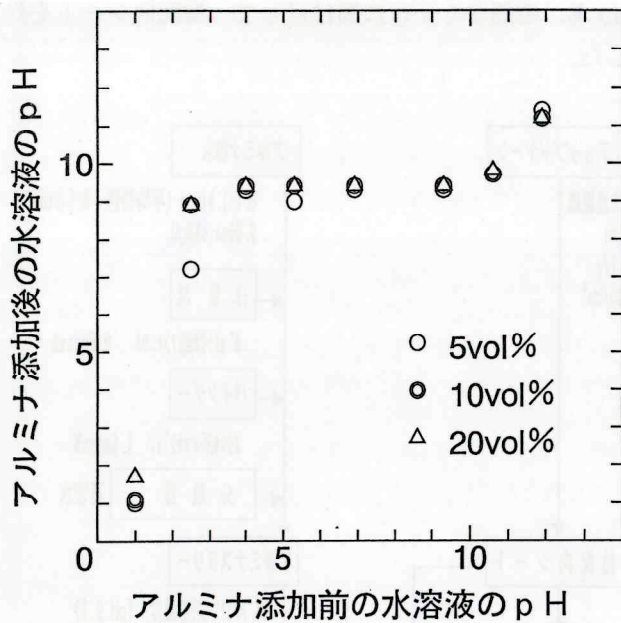


図4 アルミナ添加前後のサスペンションの pH

測定時間は各回転数で3分間とした。結果を図5に示す。粘性曲線はずり応力の小さいところ、すなわち回転速度の小さな所での立ち上がり大きいことから、この部分では凝集構造が作られていることを示している。20vol%でも凝集を示し、良好なサスペンションは得られない。このため pH の調製のみで良好なサスペンションを作ることには困難なため分散剤を添加した。

### 2. 2. 3 分散剤の添加効果

分散剤は協和産業のポリアクリル酸アンモニウム塩及び東亜合成化学のポリカルボン酸アンモニウム塩を検討したが、ポリアクリル酸アンモニウム塩が粘度が低く、分散特性に優れていたため、以降はポリアクリル酸アンモニウム塩を用いた。

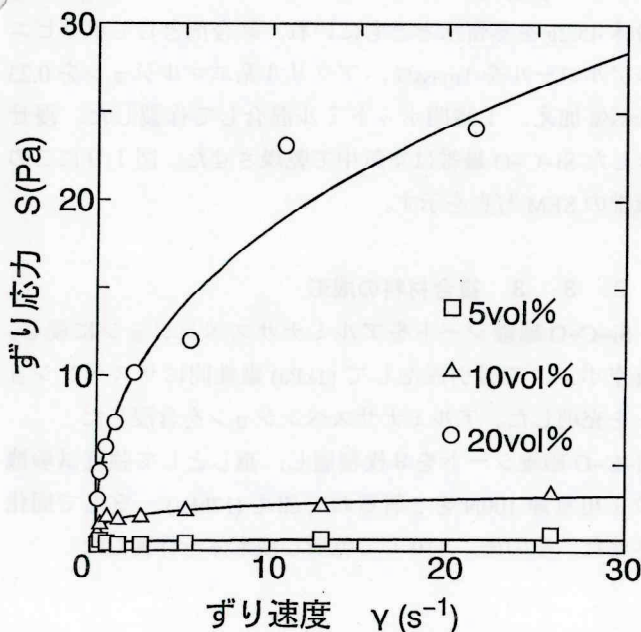


図5 ずり速度とずり応力の関係

分散剤としてポリアクリル酸アンモニウム（固形分 40 mass%）をサスペンションに対して 0.5～0.8mass% の範囲で添加し、ずり速度  $2.59\text{s}^{-1}$  におけるサスペンションの粘度を比較した。図6に結果を示す。これより 0.6mass% 付近が最も粘度が低いことが判る。以降の実験では分散剤の添加量は 0.6mass% とした。

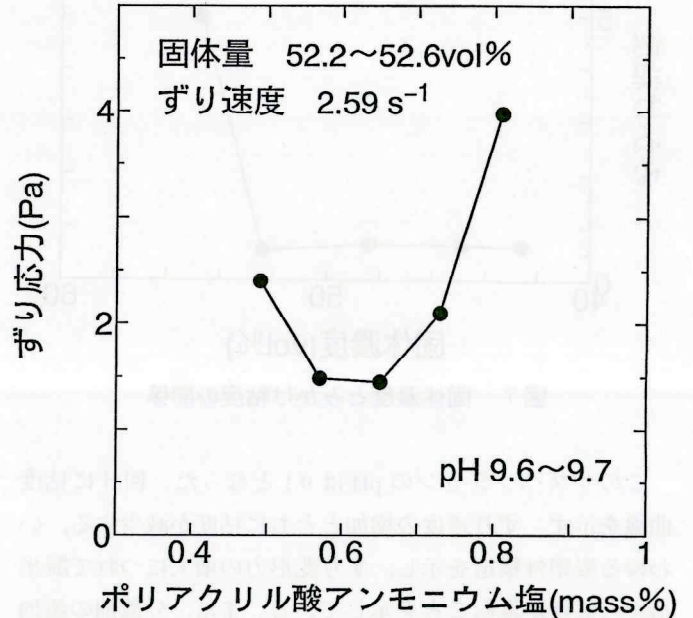


図6 ポリアクリル酸アンモニウム塩の添加量とずり応力の関係

### 2. 2. 4 固体濃度の影響

鋳込み成形法及びディッピング法により、密度の高い成形体を作製することを目指した。このためには出来るだけ固体濃度の高いサスペンションを調製する必要がある。分散剤の量を 0.6mass% とし、水の添加量を変えて固体濃度とずり速度  $2.59\text{s}^{-1}$  におけるみかけ粘度の関係を調べた。結果を図7に示す。固形濃度 52vol% 付近までは粘度の変化は小さいが、54vol% では急激に粘度の立ち上がりが見られる。このため実用的には 50vol% 以下でサスペンションを調製することとした。

### 2. 2. 5 サスペンションのみかけ粘度

鋳込み成形法及びディッピング法で試料を作製する際は、最適の分散剤と、結合剤を少量添加することで最も粘度の低いサスペンションを調製する必要がある。

サスペンションは、1リットルのポリエチレン製容器に 17mm φ のアルミナボール 500g と原料のアルミナ粉体 1000g を蒸留水とともに入れ、分散剤としてポリアクリル酸アンモニウムを 0.6mass%、結合剤としてアクリル系エマルジョン（三井東圧化学製、固形分 42mass%）を 1.6 mass% 加え、2時間ポットミル混合して作製した。

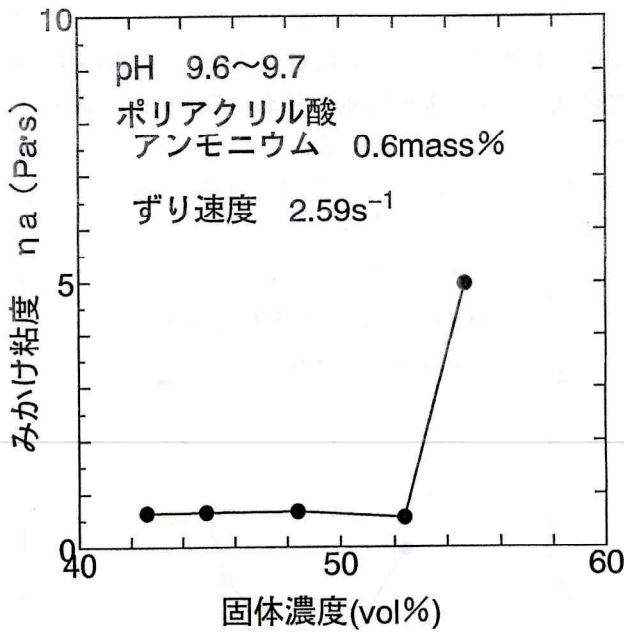


図7 固体濃度とみかけ粘度の関係

このサスペンションの pH は 9.1 となった。図 8 に粘度曲線を示す。ずり速度の増加とともに粘度が減少する、いわゆる擬塑性構造を示し、ずり変形力の増大につれて凝集構造の破壊が進むことを示している。また、分散剤の添加はみかけ粘度を増大させるが、ずり速度依存性を変化させるものではない。

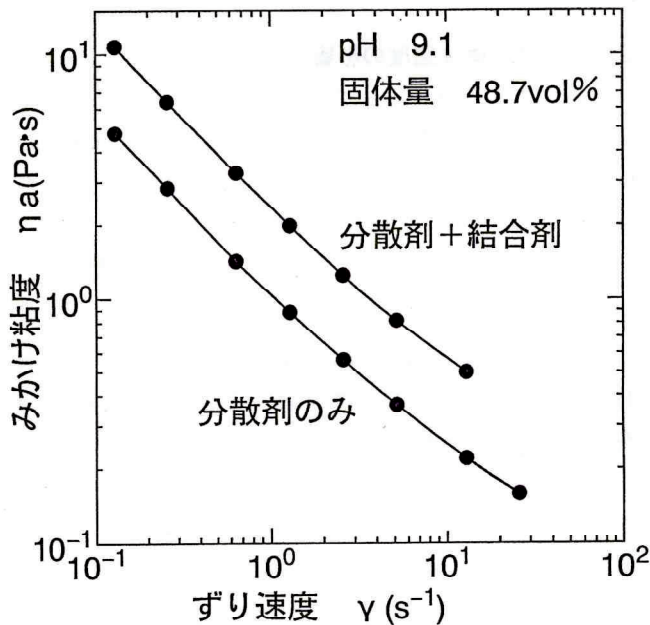


図8 サスペンションのみかけ粘度

分散剤：ポリアクリル酸アンモニウム (0.6mass%)  
 結合剤：アクリル系エマルジョン(1.6mass%)

2. 3 複合材料の作製

2. 3. 1 一軸配向シートの作製

複合材料の作製方法を図9に示す。ポリプロピレン製のシートを長さ 115mm, 幅 75mm に切り取り、枠を作った。この枠の窓の部分に長さ 85mm のチョップにしたヤーン

を 73 本、隙間なく平行に糊付けして一軸配向シートを製作した。

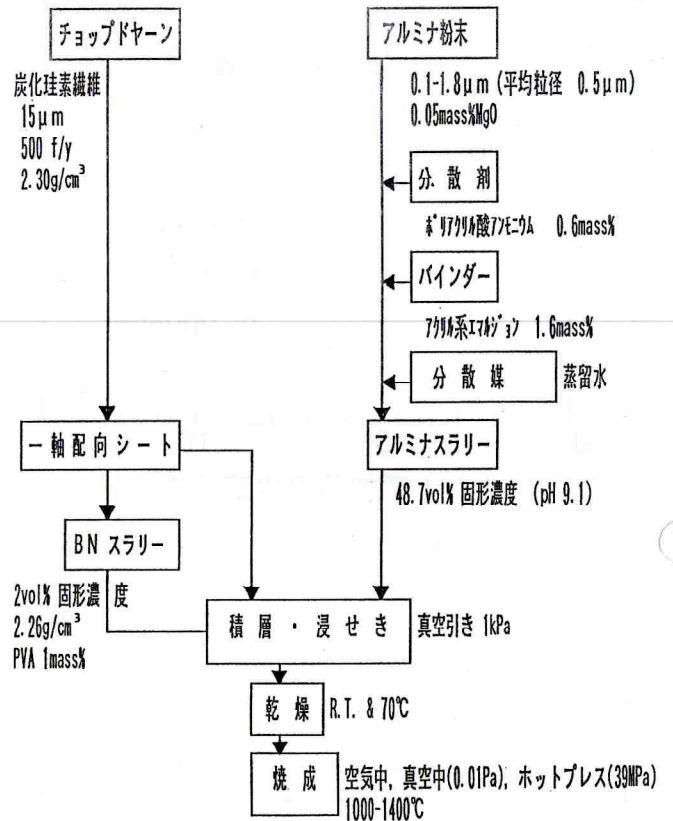


図9 複合材料の作製方法

2. 3. 2 BNの繊維被覆処理

Si-C-O 繊維シートを超音波で分散した 2vol% の h-BN の水性サスペンションに 1 分間浸し、繊維表面に BN 粉末を付着させた。BN サスペンションは、1 リットルのポリエチレン製容器に 17mm φ のアルミナボール 500g と BN 粉体 45.2g を蒸留水とともにいれ、結合剤としてポリビニルアルコールを 1mass%, アクリル系エマルジョンを 0.23 mass% 加え、1 時間ポットミル混合して作製した。浸せきした Si-C-O 繊維は空气中で乾燥させた。図 10 にこの繊維の SEM 写真を示す。

2. 3. 3 複合材料の成形

Si-C-O 繊維シートをアルミナサスペンションに浸し、真空ポンプで吸引脱泡して (1kPa) 繊維間にサスペンションを充填した。アルミナサスペンションを含浸した Si-C-O 繊維シートを 9 枚積層し、重しとして強度試験機校正用重錘 100N を 2 個重ねて加え (17kPa), 室温で固化させた。その後、110 °C で乾燥し成形体を作製した。

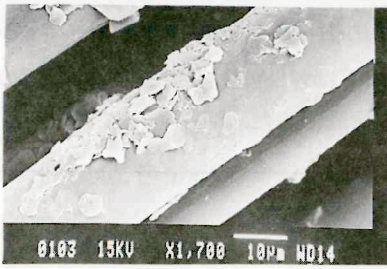


図 1 0 BN で被覆した Si-C-O 繊維表面

#### 2. 3. 4 脱バインダー

サスペンション成形時に加えた分散剤、結合剤を除去するために脱バインダーの加熱を行った。アルミナ製のさやにアルミナ粉末を敷き、試料を入れてアルミナ粉末で覆った。急速加熱昇温電気炉（アドバンテスト製）を用い、大気雰囲気中で  $2^{\circ}\text{C}/\text{min}$  で  $500^{\circ}\text{C}$  まで加熱し、この温度に時間保持し、その後放冷した。

#### 2. 3. 5 焼成

成形体は大気中及び真空中、 $5^{\circ}\text{C}/\text{min}$  で昇温し、 $1000\sim 1400^{\circ}\text{C}$  の各温度に 1 時間保持した。真空焼結は  $0.01\text{Pa}$  の減圧下で行った（日本ヘイズ製真空焼結炉、カーボンヒーター）。比較のため成形体に減圧雰囲気下 ( $26.7\text{Pa}$ )、 $1200^{\circ}\text{C}$  で  $39\text{MPa}$  の圧力を 1 時間加え加圧焼結を行った（富士電波工業製、高周波誘導雰囲気ホットプレス FVHP-5）。加圧には黒鉛ダイスをを用いた。

### 2. 4 複合材料の評価

#### 2. 4. 1 密度の測定と繊維体積分率の計算

焼成体の密度はケロシンを用いたアルキメデス法により測定した。繊維体積分率は繊維重量と焼結体の密度から計算により求めた。

#### 2. 4. 2 強度試験試料の作製

焼結体は岡本工作機械製作所製の平面研削盤を用い、 $100 \times 100 \times 10\text{mm}$  の鉄板に同サイズのカーボン板を樹脂で貼付け、その上に試料を貼付けたものを磁石で研削テーブルに固定した。ダイヤモンド砥石は #600(SD600P75B7) を用い  $1880\text{m}/\text{min}$  ( $3000\text{rpm}$ ) で回転させ、テーブルスピード  $10\text{m}/\text{min}$ 、前後送り量  $3\text{mm}/\text{回}$ 、切込み量  $5\mu\text{m}$  で湿式で研削した。両面を研削した後、マルチ切断砥石 (SDC 200B41) を用いて、 $1880\text{m}/\text{min}$  で回転させ、テーブルスピード  $40\text{mm}/\text{min}$  で  $4\text{mm}$  幅に繊維方向に平行に切断した。試料に付着した樹脂はエタノールで除去した後、水洗して乾燥した。

#### 2. 4. 3 曲げ試験

試料の強度をスパン間  $30\text{mm}$ 、クロスヘッド速度  $0.05\text{mm}/\text{min}$  の 3 点曲げ法で繊維に垂直に荷重をかけ、曲げ強度を測定した（島津製作所製、AG10TA）。5 本の試験片の強度から平均値を算出した。

#### 2. 4. 4 切断面、破面の観察

試料の切断面及び破断面は金蒸着をしたのち、走査電子顕微鏡（日本電子製、JSM-840）を用いて観察した。

### 3. 結果と考察

図 1 1 にアルミナ単体の焼成温度と相対密度及び曲げ強度を示す。焼成温度の上昇にともない密度と強度は増加した。大気中での焼成では、真空中での焼成より密度、強度共に高い値を示した。空气中、 $1400^{\circ}\text{C}$  の焼結体では相対密度  $95\%$  に達し、平均強度は  $450\text{MPa}$  であった。アルミナ焼結体の応力-歪曲線は典型的な脆性破壊モードを示した。空气中、 $1400^{\circ}\text{C}$  で焼結したアルミナの破面観察より、構成粒子は  $0.5\sim 1.5\mu\text{m}$  で、粒界破壊が主であることがわかった。

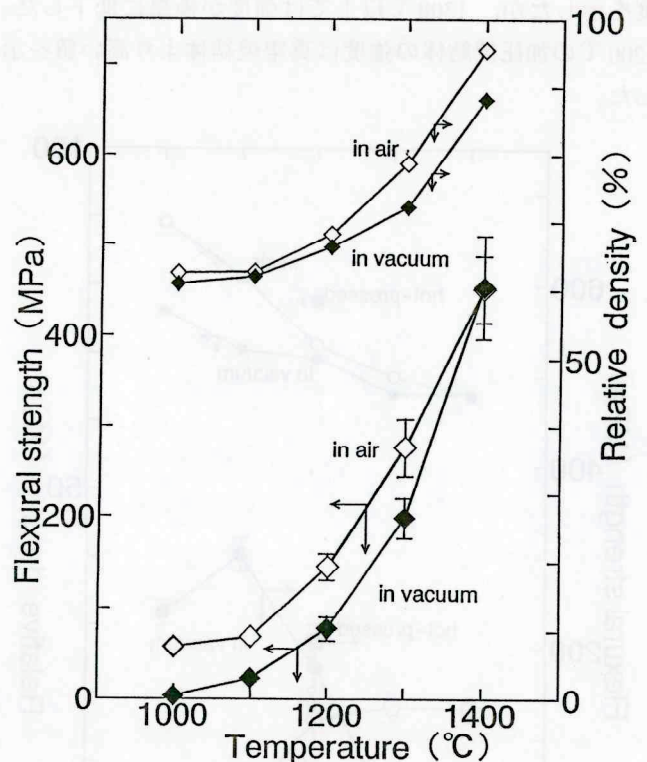


図 1 1 アルミナ単体の焼結温度と密度、強度の関係

図 1 2 に  $1400^{\circ}\text{C}$  の真空中で焼結した Si-C-O 繊維系複合材料の研磨面を示す。繊維の周囲はアルミナでよく充填されていることがわかる。Si-C-O 繊維の繊維体積分率（以下  $V_f$  と略す）は原料の重量と密度から計算され、 $20\text{vol}\%$  であった。

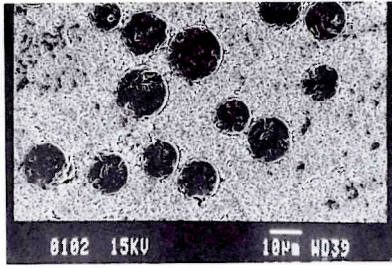


図1 2 1400°Cで真空焼結したSi-C-O繊維／アルミナ複合材料の断面

図1 3に複合材料の焼結温度と相対密度及び強度との関係を示す。焼結体の相対密度はアルミナ単体の場合と同様、真空中より空气中での焼成で高い値を示した。1200°Cでは、加圧が密度上昇に有効であることがわかる。1300°Cまでの焼結性はアルミナにSi-C-O繊維を加えるても大きな変化はないが、1400°Cでは複合材料の相対密度はアルミナ単体の相対密度より低い値を示した。真空焼結では温度の上昇とともに強度が上昇し、1300°C焼成では300MPaを示した。しかし、1400°Cでは250MPaに減少した。大気中、1000~1200°Cの焼結体では120~135MPaの強度を示したが、1300°C以上では強度が極端に低下した。1200°Cの加圧焼結体の強度は真空焼結体より高い値を示した。

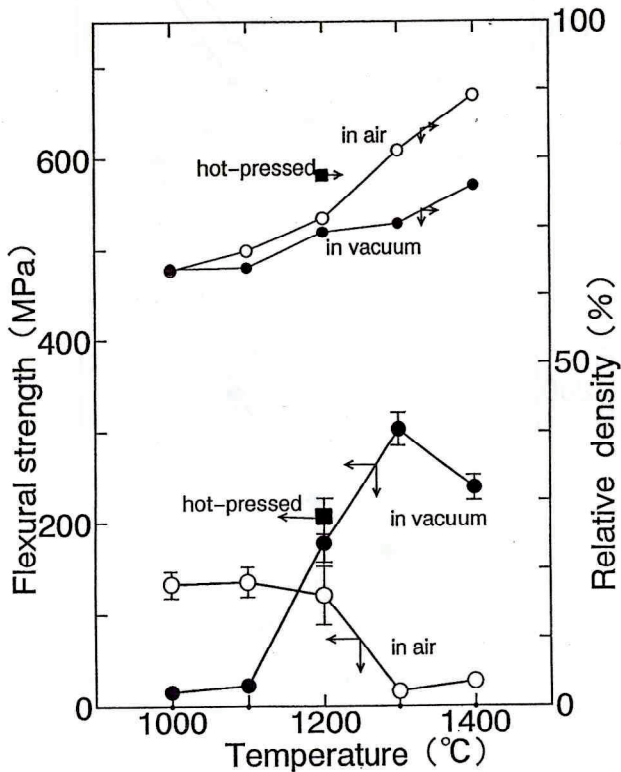


図1 3 複合材料の焼結温度と相対密度及び強度との関係

図1 4に真空中で焼成した試料の応力-歪曲線を示す。1000~1100°Cの焼結ではわずかな応力で歪みが大きくなる非線形現象が認められたが、強度は低く複合化の効果は

ほとんどない。これらの温度では、緻密化はほとんどおきおらず、繊維の引き抜けが主原因と推察される。1200~1300°Cの焼結では弾性変形の後、非線形破壊が進行し、本実験の目的を達成できた。

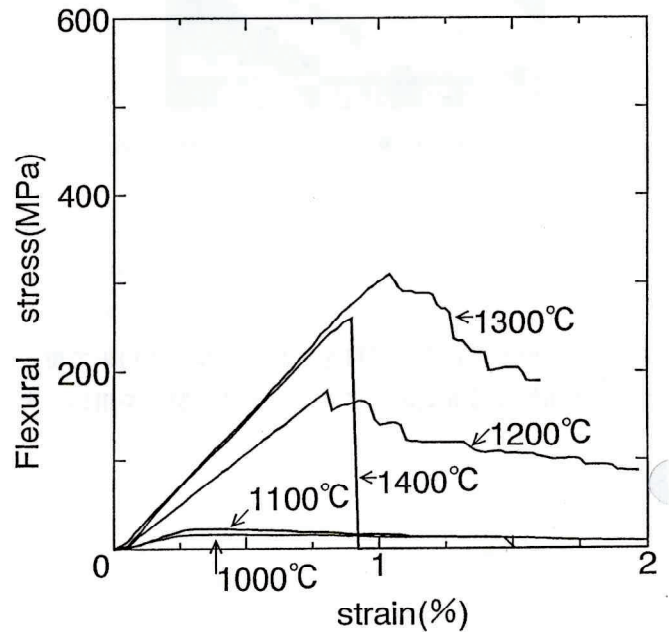


図1 4 真空中で焼成した試料の応力-歪曲線

図1 5には真空中1300°Cで焼結した試料の破面を示す。200~1000μmに及ぶ繊維の引き抜きが観察された。一方、1400°Cの焼結では、複合材は線形破壊挙動を示した。図1 4に示すように、1300°Cと1400°Cで焼結した試料の弾性変形部分の応力-ひずみ曲線に大差は認められない。このことは、複合材のマトリックスの強度は大きく変化していないことを示唆している。しかし、繊維架橋、引き抜き効果が1400°C焼結体で認められないのは、密度上昇により繊維とマトリックスの界面強度が上昇したためと推察される。



図1 5 真空中1300°Cで焼結した試料の破面

1200°Cの加圧焼結体の相対密度は真空中、1400°Cでの焼結体のそれと同程度であり(図1 3)、非線形破壊挙動を示し50~200μmの繊維の引き抜きが観察された。このことは密度とともに焼成雰囲気(真空度)がアルミナ/Si-C-O繊維の界面構造と界面強度に影響を与えていると考えられる。この点についてはさらに詳しく検討する予定である。

大気中、1000℃と1100℃で焼結した試料の応力-歪曲線は非線形を示したが、1200℃以上で焼結した試料では線形破壊を示した。前述したように密度の上昇が繊維/マトリックスの界面強度を増加させたため、高温焼成材料で線形破壊がおきたと考えられる。さらに後述するように、繊維の表面酸化の影響が考えられる。密度の低い低温焼成体においては、空气中焼成体の方が真空中焼成体より強度が高い。以上の原因として、空气中で焼成することにより Si-C-O 繊維表面が酸化され<sup>9)</sup>、形成されたシリカ層がアルミナマトリックスと反応し、界面強度が増加したことが考えられる。下尾らに<sup>9)</sup>よると、Si-C-O 繊維を空气中、600～1500℃で加熱すると、700～1200℃では非晶質のシリカが、1300℃以上ではクリストパライトが繊維表面に生成する。本実験の X 線回折結果では、1000～1400℃の焼結体中には  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> のみが同定されたことより、これらのシリカ-アルミナ層の量は少ないと考えられる。

図 1 6 に BN サスペンションで処理した Si-C-O 繊維を用いた複合材料の繊維と垂直方向の SEM 写真を示す。真空中で焼結した試料では繊維の周囲に BN 粒子が挟まっているが、均質には付着していないことがわかる。これは BN の平均粒径が 7.6  $\mu$ m と比較的大きかったためと思われる。

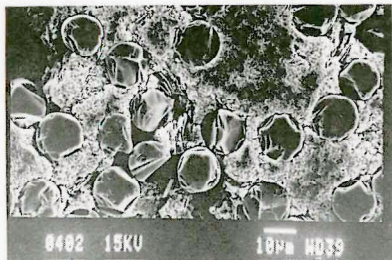


図 1 6 BN サスペンションで処理した Si-C-O 繊維/アルミナ複合材料の断面

図 1 7 にこの複合材料の焼成温度と相対密度及び強度の関係を示す。真空中焼結では、BN 無処理の繊維を用いた場合と同様の強度傾向を示し、1000～1300℃焼結体では非線形破壊挙動が認められた。1200℃の加圧焼結試料は 400MPa の強度を示し、BN 無処理の場合の強度 (200 MPa) より大きく増加した。破壊の様式は非線形であったことより、アルミナと Si-C-O 繊維の界面において BN 粒子の結晶構造に基づくすべり効果が発生したと考えられる<sup>10)</sup>。走査電子顕微鏡観察より、真空中での焼結体に比べ加圧焼結体においては、Si-C-O 繊維表面上の BN 粒子の C 面が加圧方向に垂直に配向していることが確認された。このことが BN 粒子の効果を高めた一因と考えられる。大気中焼成では BN 無処理より低温の 1200℃から強度低下が現れた。これは BN 粒子が酸化され酸化ほう素となり、

同じく酸化された Si-C-O 繊維表面のシリカと反応したことが原因と考えられる。図 1 8 に大気中、1200℃で焼結した試料の研磨面を示す。繊維の周辺に融着した反応生成物が確認できるが、X 線回折分析で  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 以外の結晶は確認されなかった。

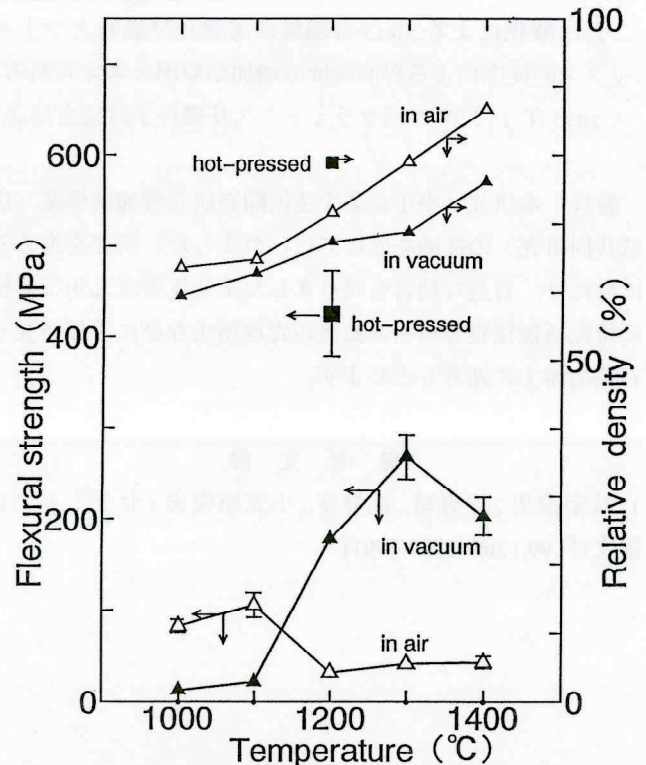


図 1 7 複合材料の焼成温度と相対密度及び強度

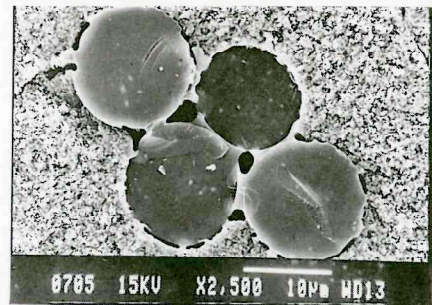


図 1 8 大気中 1200℃で焼結した試料の研磨面

#### 4. 結 言

アルミナマトリックスに Si-C-O 繊維を 20vol% 加えた複合材料を空气中及び真空中、1000～1400℃で焼成し、それらの破壊様式、強度、微構造について検討を行った。

- 1) アルミナ単体及び複合材料では、真空中より空气中において相対密度が高くなった。Si-C-O 繊維を加えることで 1400℃でのアルミナの焼結性は低下した。
- 2) 無処理の繊維、BN 粒子を付着させた繊維を加えたアルミナ複合材料は真空中、1300℃の焼結において最も高い強度を示した。1000～1300℃焼結体では繊維の引き抜き効果により非線形破壊がおり、1400℃焼結体では線形破壊が起こった。

- 3) 1200℃で加圧焼結した BN 付着 Si-C-O 繊維 / アルミナ複合材料では 400MPa 以上の強度と著しい非線形破壊が認められた。
- 4) 空気中の焼結では、焼結温度の上昇と共に複合材料の強度が低下した。また、高温焼結体は線形破壊を示した。これは酸化による Si-C-O 繊維の劣化及び繊維とマトリックスの反応による界面強度の増加が原因と考えられる。(1995年1月第33回セラミックス基礎科学討論会発表)

謝辞：本研究は中小企業庁技術開発研究費補助事業（広域共同研究）の援助を受けて行われました。研究を進めるに当たり、有益な助言を賜りました工業技術院九州工業技術研究所無機複合材料部長渡辺忠彦博士並びに主任研究官谷英治博士に謝意を表します。

#### 参 考 文 献

- 1) 秋宗淑男, 片野靖, 穂場亨, 小笠原俊夫: セラミックス論文誌, 99, 1265-1267(1991)

- 2) 安岡正喜, M.E.Brito, 平尾喜代司, 神崎修三: J.Ceram.Soc. Japan, 101, 889-894(1993)
- 3) 大塚淳, 飯尾聡, 多島容, 渡辺正一, 田中啓介: J.Ceram.Soc. Japan, 102, 29-34(1994)
- 4) 赤津隆, 田辺靖博, 松尾陽太郎, 安田榮一: J.Ceram.Soc. Japan, 100, 1297-1303(1992)
- 5) 玉利信幸, 近藤功, 田中隆裕, 勝木宏昭: J.Ceram.Soc. Japan, 101, 721-724(1993)
- 6) 武部博倫, 森永健次: セラミックス論文誌, 96, 1149-1156(1988)
- 7) 勝木宏昭, 一ノ瀬弘道, 白石敦則, 高木弘義, 平田好洋: J.Ceram.Soc. Japan, 101, 1068-1070(1993)
- 8) D.Shin and H.Tanaka, J.Am.Ceram.Soc., 77, 97-104(1994)
- 9) 下尾聰夫, 陳和民, 岡村清人: J.Ceram.Soc. Japan, 100, 929-935(1992)
- 10) B.A.Bender, T.L.Jessen and D.Lewis III: J.Am.Ceram.Soc., 75, 1628-35(1992)