

2020  
No.659



# 潤滑経済

## ●特集 I / 潤滑油添加剤と合成潤滑油の動向

メタロセン触媒を用いたポリ $\alpha$ オレフィン合成油による低粘度化した潤滑油のトライボロジー的性能の紹介／カーエアコン、低温・空調機器分野における冷媒と冷凍機油の最新動向について／JAST 添加剤技術研究会の最近の活動－シンポジウム、企画講座の開催について－／実使用環境に適応した摺動面油の開発／船舶の排ガス規制と燃料および潤滑油の動向／硫黄系極圧添加剤の特長と最近の動向／合成繊維用紡糸油剤の技術動向

## ●特集 II / 機械状態監視診断技術者（振動・トライボロジー）資格制度



あなたの車をさらに先へ。

DRIVON™

高い燃費と排出ガス基準に基づくDRIVON™自動車潤滑技術は、パワートレイン全体で燃料消費を3-4%削減します。省燃費の節約はあなたの目の前にあります。

エボニック ジャパン様 オイルアディティブス部—Let it flow.  
[www.evonik.com/oil-additives](http://www.evonik.com/oil-additives)

 **EVONIK**  
POWER TO CREATE

# 潤滑経済 Contents

## 1 特集I 潤滑油添加剤と合成潤滑油の動向

- 1 メタロセン触媒を用いたポリ $\alpha$ オレフィン合成油による  
低粘度化した潤滑油のトライボロジー的性能の紹介

崇城大学 里永 憲昭, 竹田 雄祐

- 9 カーエアコン, 低温・空調機器分野における冷媒と冷凍機油  
の最新動向について

出光興産株式会社 高岸 尚也

- 14 JAST 添加剤技術研究会の最近の活動  
—シンポジウム, 企画講座の開催について—

一般社団法人日本トライボロジー学会 内藤 康司

- 20 実使用環境に適応した摺動面油の開発

コスモ石油ルブリカンツ株式会社 加藤 郁美

- 25 船舶の排ガス規制と燃料および潤滑油の動向

BASF ジャパン株式会社 柳原 章仁

- 28 硫黄系極圧添加剤の特長と最近の動向

DIC 株式会社 松枝 宏尚

- 34 合成繊維用紡糸油剤の技術動向

三洋化成工業株式会社 関藤 正剛

## ● トピックス

- 39 イグスが特別メディア会議を開催

編集部

## ● TOP INTERVIEW

- 40 ~新春インタビュー~中期計画のテーマは「共創」

出光興産株式会社 代表取締役社長 木藤 俊一 氏に聞く

資料請求No.[2002-A07]

## 僅かな費用で機械オイルの長寿命化を



ISO14000 認証取得  
JQA-EM1171  
KYB㈱相模地区  
JA㈱分析センター

機械のオイル分析は人間の血液検査と同じです。

オイル分析で機械潤滑系の故障予知診断を

オイル分析の

ジャパン・アナリスト株式会社

お問い合わせは TEL:03-3436-5660 ホームページ: <https://www.japan-analysts.com/>



ISO9001 認証取得  
JQA-QM5076

# メタロセン触媒を用いたポリ $\alpha$ オレフィン合成油による低粘度化した潤滑油のトライボロジー的性能の紹介

崇城大学 工学部 機械工学科

教授

里永 憲昭 \*

助教

竹田 雄祐

■著者連絡先 (\*)

〒860-0082 熊本県熊本市西区池田4-22-1

TEL 096-326-3195 FAX 096-323-1351

E-mail n-satonaga@mec.sojohu.ac.jp

## はじめに

日本国内ではグローバルな自動車用ガソリンエンジン油の規格であるILSAC規格およびAPI規格に適合している0W-20が広く普及している。しかし、0W-12以下の低粘度エンジン油の評価が難しく、新たな規格の制定要望が出されていた。最近では自動車技術会がJASO GLV-1 (Gasoline Low Viscosity-1) 規格を設定し0W-8, 0W-12なる超低粘度エンジン油の概要を発表した。新規格では低粘度かつ省燃費性に優れることが強調されている。一方、米国では自動車のエンジン油においては、現在5W-30もしくは5W-20が主力となっており、低粘度化に向けた要求が極めて高い。今後、2020年4月以降に米国石油協会(API)の新規格SPが施行予定である。この規格に適合する低粘度エンジン油に0W-16が設定された。

これらのエンジン油の性能に大きく寄与するものとして粘度指数向上剤 (Viscosity Index Improver, 以下、VIIと称す) がある<sup>1)</sup>。このたび合成油に広く用いられるVIIに替わるものとして新たにメタロセン触媒由来のポリ $\alpha$ オレフィン系 (以下、mPAOと称す) の合成油が開発された。このmPAOはVIIとは違いせん断力に強い特長を有している。そこで、VIIとmPAOの低粘度エンジン油による寿命延長効果や弹性流体潤滑 (EHL) 条件下における油膜などを観測し、せん断劣化による挙動の変化や省エネルギー的な観点を

加えて、低粘度化した合成油の性能を評価したので紹介する<sup>2)</sup>。

## 1. 添加剤であるVIIとmPAOの特徴

エンジン油やギヤ油などの潤滑油は、摩擦を低減して機械を円滑に動かすために欠かせないものである。潤滑油は、低温から高温(おおよそ-30~150°C)の広い温度領域で使用される。液体の粘度は一般的に高温で低く、低温で高くなる性質を示すが、潤滑油は粘度変化が小さいことが望まれる。この温度による粘度変化を小さくするために潤滑油に添加されるのがVIIであり、粘度変化が小さいほど燃費向上への効果が高い。VIIは、化学組成からオレフィンコポリマー (OCP) 系、ポリメタクリレート (PMA) 系の二つに大きく分類される<sup>1)</sup>。VIIの働きは、適正な範囲内で潤滑油の粘度を保持させることである。PMA系は温度変化による分子鎖の広がり、収縮の差が大きいことから粘度指数向上性能に優れている<sup>3, 4)</sup>。

一方、ポリ $\alpha$ オレフィン (PAO) は鉱油に近い組成でありながら、不純物である硫黄分を含まず、温度が変化しても粘度を保ち続けるという特徴がある。鉱物系基油と同様の添加剤を使用することができ、各種工業用潤滑油に多く利用されている。主な働きとして粘度指数が高く、高温下でも油膜を保持し、低温での流動性が良好でエンジンの始動性に優れている。しかし、従来型のPAOは異性化があり、容積がより大きかったため、メ

タロセン触媒により高粘度PAO性能の改善が設計された。これがmPAOである。異性化がないことによりコンパクトで規則的な分子構造になり、優れた粘度特性を示す。一般的に、せん断劣化をした合成油は新油に対して著しくトライボロジー性能が低下するが、mPAOの合成油は個性的な分子構造からせん断劣化を受けにくく、安定的な性能を維持するように設計されている。現在エンジン油は油膜の形成および維持が非常に重要となっており、mPAOは油膜の薄膜条件下での金属接触において強固な油膜維持が可能になっている。

ここで、鉱油にVIIとmPAOを各々添加した合成油の化学的物性を表1に示す。また、今回使用した合成油の添加剤であるVIIとmPAOの分子構造を図1に示す。VIIは一般的なオレフィンコポリマー(OCP)の構造である直鎖型になっており、mPAOは立体格子状の構造になっている。VIIの分子構造はmPAOに比べ分子量が大きく、また平面体に近いため、せん断性能は劣るが増粘性に優れている。粘度低下に対する耐性としてせん断安定性があるが、一般的なせん断安定性は

表1 VIIとmPAOの化学的物性

| 添加剤  | VII                      | mPAO  |
|------|--------------------------|-------|
| 動粘度  | 40°C mm <sup>2</sup> /s  | 36.91 |
|      | 100°C mm <sup>2</sup> /s | 7.294 |
| 粘度指数 |                          | 158   |
| 流動点  | °C                       | -37.5 |
| 引火点  | °C                       | 220   |
| 中和値  | mgKOH/g                  | 7.33  |

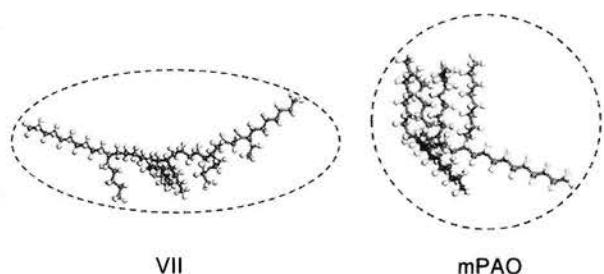


図1 VIIとmPAOの分子構造

分子量が多いほどせん断されやすくなる。ただ高温では粘度低下は起きにくいという利点がある。反対に分子量が少ないとせん断安定性は高くなるが粘度指数は低くなってしまう。VIIの分子量が20,000～50,000に対してmPAOの分子量は1,000～2,000と比較的に低分子であるため粘度低下しにくく、立体構造であるためせん断劣化にも強いという特徴がある。

## 2. 粘度指数向上剤を用いた軸受寿命評価

### 2.1 軸受寿命評価の方法

試験機は図2に示すスラスト玉軸受寿命評価試験機を用いた。試験片はスラスト玉軸受51104(外径35mm、内径20mm、高さ10mm、玉径5.56mm)を軸受の面圧を高めるために玉数を13個から3個に減じ、モーターによる回転をベルトにて伝達し油浴槽に設置した軸受の内輪(上輪)を回転させ、外輪(下輪)を固定した。軸受には圧縮バネによりスラスト荷重4.4kNを与える。軸回転数は1,000rpmとした。ただし、試験油の粘度低下による飛散が発生することで、実験の継続が困難な場合は750rpmに設定した。摩擦力は回転によるトルクを計測することにより把握することができる。実験上の安全を確保す

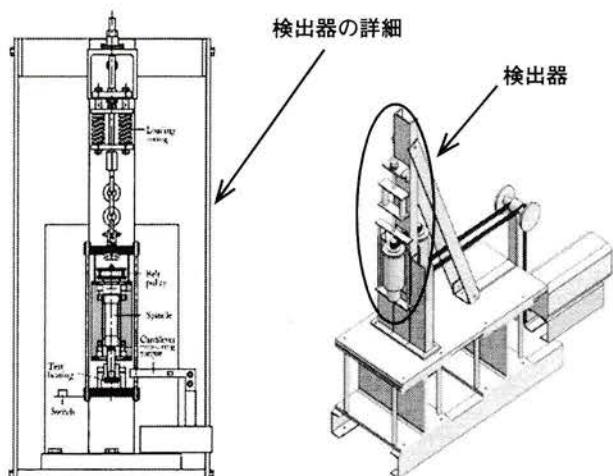


図2 スラスト玉軸受寿命試験機

るために軸受の破損による振動、または許容のトルク力を超えるような状況になった場合には安全装置が作動し、モーター電源が停止するように安全管理にも配慮した。

## 2.2 軸受寿命評価試験の結果

軸受に与える寿命延長効果についてスラスト玉軸受寿命評価試験機を用いて試験を行った。本実験はVIIならびにmPAOを添加した合成油を用いた。その実験結果を図3に示す。

VIIならびにmPAOを添加した合成油の最大運転時間は、理論寿命時間に対してともに10を超える、最大で18.9倍の時間経過後でも軸受に損傷が見受けられない結果となった。なお、スケジュールの関係もあり10倍で区切った。以上の結果から、従来の油よりもVIIとmPAOはともに優れた添加剤であると言える。

また、実験機のモーター出力を確認することによりエネルギー的な評価をした。ここで、実験開始後初期、中期、安定期としてLa/Lo=1.0, 4.0, 10.0に相当する時点でのVIIとmPAOの電力量の変化を求めた。評価方法は、VIIを添加した合成油La/Lo=1.0のモーター電力量を1.000としてVIIならびにmPAOの時間

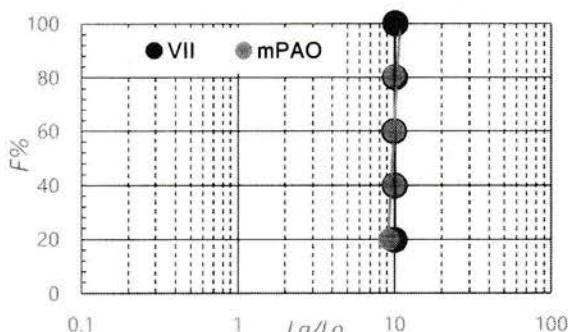


図3 VIIとmPAOのワイブル線図

表2 モーター電気量の変化率

| La/Lo | 1.0   | 4.0   | 10.0  |
|-------|-------|-------|-------|
| VII   | 1.000 | 0.994 | 0.984 |
| mPAO  | 0.976 | 0.976 | 0.971 |

(VIIのLa/Lo = 1.0を基準とした時の変化を割合で示す)

経過に対する電力量の変化を割合で示したものが表2である。合成油の比較としてmPAOはVIIに対して初期で2.4%、中期で1.8%、安定期で1.3%低いことが認められ、時間経過として初期から安定期までの経過で、VIIは1.6%、mPAOは0.5%の低下が認められた。

## 2.3 VIIとmPAOの動粘度変化

VIIとmPAOを添加した合成油の新油と軸受寿命評価試験後の合成油の動粘度変化を測定した。その粘度測定結果を表3に示す。

測定結果として40°C時のmPAOとVIIの新油に対して試験後の油の粘度はそれぞれ3%, 0.8%の低下だった。また、100°C時の粘度はそれぞれ4%, 0.9%低下した。SAEの高温粘度規格として新油で6.1~8.2mm<sup>2</sup>/sを規定しており、ともに範囲に収まっている。また、図4に示すように粘度低下の勾配から推定するとmPAOは長期間の使用でも規格の範囲を満足すると推察される。

表3 VIIとmPAOの動粘度

| 添加剤  | オイルの状態 | 温度    | 動粘度 [mm <sup>2</sup> /s] |
|------|--------|-------|--------------------------|
| VII  | 新油     | 40°C  | 36.91                    |
|      |        | 100°C | 7.294                    |
|      | 使用後油   | 40°C  | 35.97                    |
|      |        | 100°C | 6.997                    |
| mPAO | 新油     | 40°C  | 32.68                    |
|      |        | 100°C | 6.507                    |
|      | 使用後油   | 40°C  | 32.43                    |
|      |        | 100°C | 6.451                    |

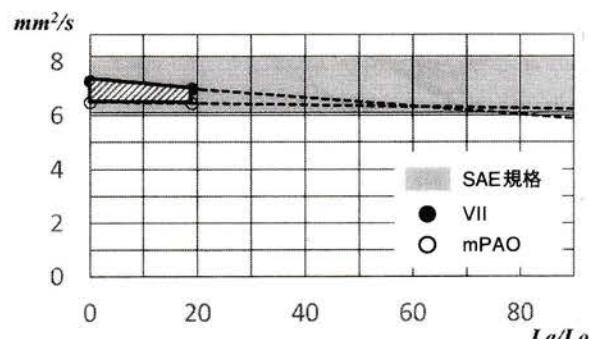


図4 稼働時間における動粘度の変化と外挿予測(100°C)

### 3. 軸受接触面における流動状態の観測

#### 3.1 軸受接触面流動状態観測コンセプト

VIIとmPAOの性能向上に関するメカニズムを解明するため、接触面における流動状態を図5に示す観測装置により接触面を直接的に観察する。

本装置は玉軸受の金属レースとボールを想定して、スラスト玉軸受の上輪を透明なオプティカルガラスに置き換え、この下面に転動体となる鋼球と油浴槽を設置し、直接接触面に形成される油膜を観察する仕組みとなっている。接触面に形成される油膜は、転動体が静止時には同心円形の干渉縞を示し、回転を与えることにより流れの入り口側に開いた形状の馬蹄形を呈する形状に変化する。その時の縞次数を観測することにより油膜厚さを求めることができる。

#### 3.2 油膜厚さの理論値算出

油膜厚さの理論値算出においては、弾性流体潤滑(EHL)理論に基づいて算出する<sup>5~7)</sup>。

可視化装置では、球と平面間の点接触となり、転がり軸に平行な方向に膜厚が変化するだけでなく、有効な負荷領域が円形状になる。

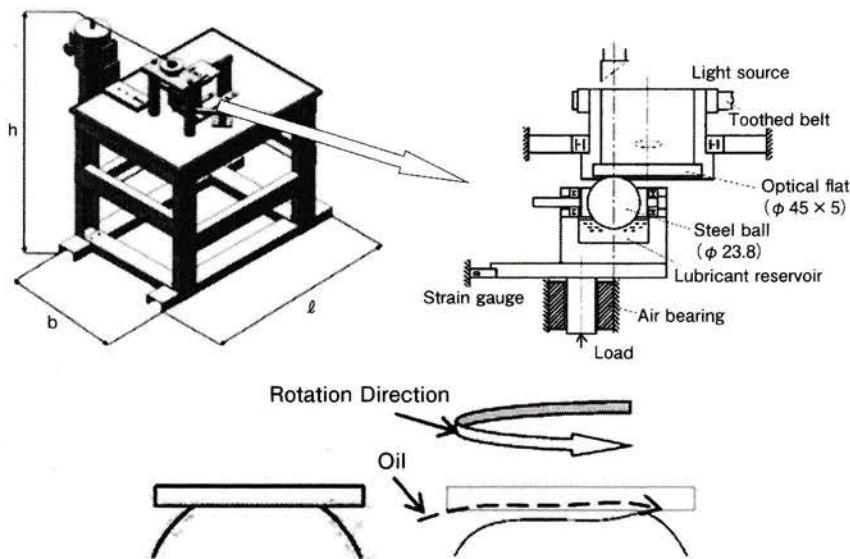


図5 玉軸受接触表面の観察概要

Hamrock-Dowsonが示した中心膜厚、最小膜厚の式は以下の通りである。

$$H_c = \frac{h_c}{R} = 4.31 U^{0.68} G^{0.49} W^{-0.073} \left( 1 - e^{-1.23k} \right) \quad \dots \dots \dots (1)$$

$$H_{min} = \frac{h_{min}}{R} = 3.68 U^{0.68} G^{0.49} W^{-0.073} \left( 1 - e^{-0.67k} \right) \quad \dots \dots \dots (2)$$

式(1)、(2)から理論膜厚を算出した。

#### 3.3 実験方法

試料油としてVIIならびにmPAOを添加した合成油の新油と軸受寿命試験後の油を用いた。試験油温は40°C近傍にて油膜厚さの比較観察を実施した。観測においては連続的に周速を変更した。

その後、これらの油の結果のみでは判断が困難であることから比較のために汎用性の高いギヤ油(VG320)とエンジン油(5W-30)を使用して、油膜を観測した。この結果を用いて、mPAOの成分が油膜の維持に与える効果を考察するものである。

実験装置は、顕微鏡による観測を行うために直径φ=45mm、厚さ5mmのパイレックスガラス(ポアソン比: ν=0.25、縦弾性係数: E=63.7GPa、粗さ5.6mm)を使用する。鋼球

は直径φ=23.8mm(ポアソン比: ν=0.3、縦弾性係数: E=208GPa、粗さ6.1mm)である。そこに光源を当てることで干渉縞が現れる。現れた干渉縞をハイスピードカメラで撮影して油膜厚さを求めた。

これを新油と試験後の油に行い評価した。今回の無次元評価について標準的な鉱物油の測定結果も比較として示した。

転動体の接触荷重は19.6N、最大ヘルツ圧は0.277GPa、接触円直径は0.30mmである。

### 3.4 観測結果

VIIならびにmPAOを添加した合成油において周速一定時の観測写真を図6, 7, 10, 11に示す。図6, 7, 10, 11の左側が新油、右側が試験後の油の転動時である。観測写真から縦次数を数えて算出した油膜厚さを表4に示す。VIIを主成分とした油で観測した場合、新油の油膜厚さは0.395μm、試験後の油の場合は0.295μmとなり新油時の80%程度の油膜厚さになっていた。一方、mPAOを主成分とした油で観測した場合、新油と試験後の油どちらにおいても油膜厚さは0.395μmと変化

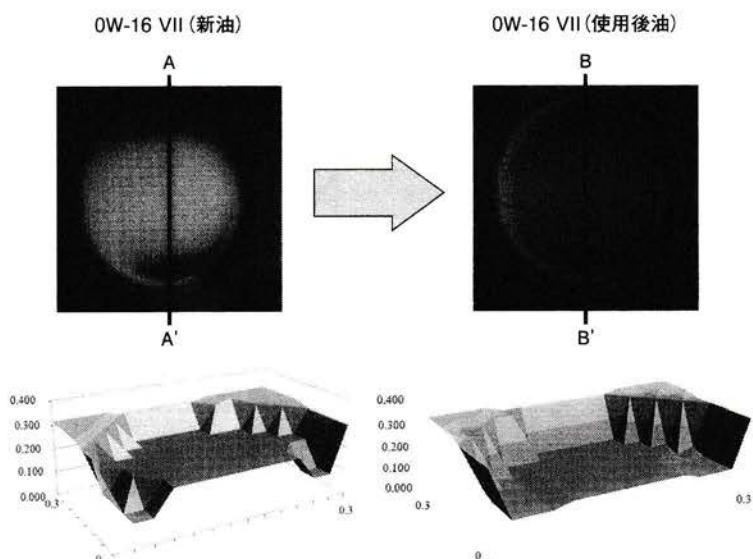


図6 VIIの観測結果 (40°C)

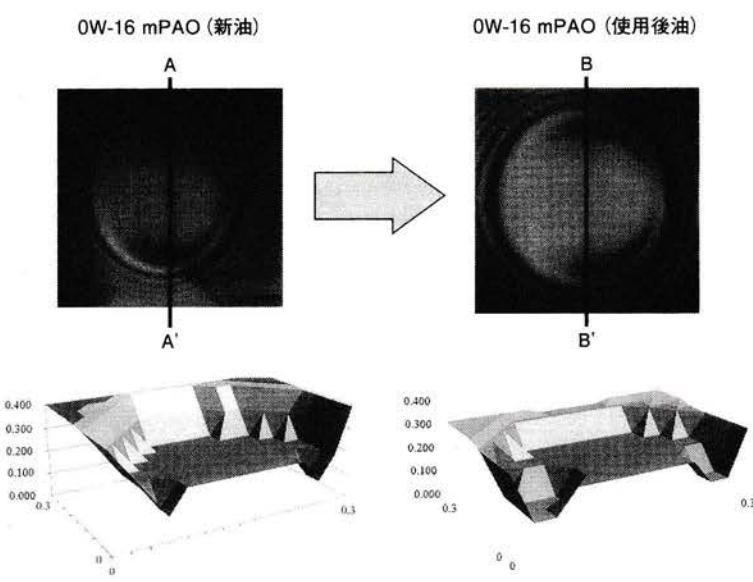


図7 mPAOの観測結果 (40°C)

がない結果となった。

また、周速を変化させながら油膜厚さを測定し、測定した油膜厚さを無次元膜厚で評価した。その結果を図8, 9に示す。縦軸が無次元膜厚で、横軸は無次元速度パラメータである。

無次元膜厚での評価で、VIIを添加した合成油の無次元速度パラメータ  $1.3 \times 10^{-11}$  時における膜厚は、試験後の油と新油の膜厚を比較したところ試験後の油の膜厚が20%減少していた。一方、mPAOを添加した合成油の場合、無次元速度パラメータ  $1.13 \times 10^{-11}$  時の膜厚は、試験後の油と新油の膜厚を比較したところ膜厚は変化がなかった。

本実験では、さらに観測した画像を基にして立体的に油膜厚さを作成し、最も薄い油膜厚さを断面から違いを考察してみた。今まででは無次元膜厚に換算し、速度との関係を見てきた。今回新たな試みとして、油膜厚さを断面的に表現することにより違いを検討した。撮影した画像を基にAA'断面とBB'断面を作成した。その点を座標化しその点における油膜厚さを算出した。その結果のグラフを画像の下部に載せる。色が変化している箇所が油膜厚さを表現しており、グラフ中の平面の軸は観測画像の接触円径を示し、縦軸は油膜厚さを表している。油膜厚さを断面で作成してみた結果、VIIを添加した合成油においては最薄部における油膜は新油と比べ接地面積が広範囲になっていた。これは時間経過とともにせ

表4 エンジン油の油膜厚さ (実測値)

| 添加剤  | オイルの状態 | 油膜厚さ [μm] |
|------|--------|-----------|
| VII  | 新油     | 0.395     |
|      | 使用後油   | 0.296     |
| mPAO | 新油     | 0.395     |
|      | 使用後油   | 0.395     |

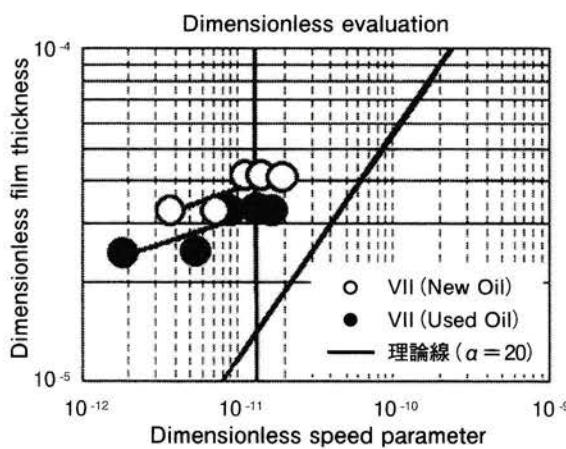


図8 VIIの無次元油膜厚さの評価

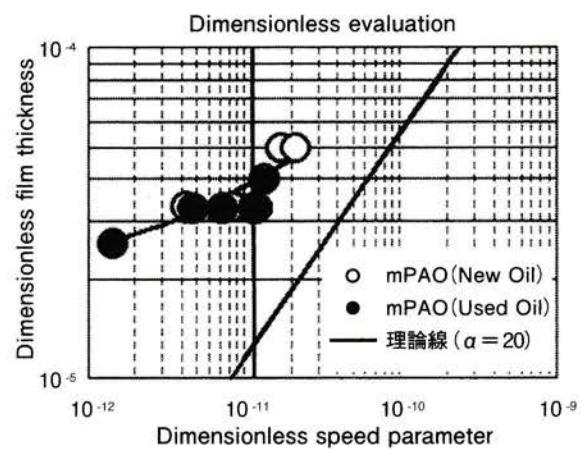


図9 mPAOの無次元油膜厚さの評価

ん断の影響を受け、新油時の油膜が次第に減少し面圧を受ける部分が狭い範囲で維持できていた範囲が広範囲でないと維持できなくなり、油膜厚さの減少につながっていると考えられる。

反対にmPAOを添加した合成油の場合、新油と試験後の油の比較を行うと最薄部の油膜厚さの範囲に大きな差がないと見受けることができた。この結果からmPAOの特長である時間経過の伴うせん断の影響を受けにくく、油膜厚さの維持が可能であると言える結果となった。

一般的な潤滑油の性能を比較するために、エンジン油（5W-30）とギヤ油（VG320）の観測結果を図10、11に、油膜厚さの無次元評価を図12、13に示す。また観測写真から縞次数を数え算出した油膜厚さを表5に示す。エンジン油（5W-30）で観測した場合、新油の油膜厚さは0.395μm、試験後の油の場合は0.296μmとなり新油時の75%程度になっていた。同様にギヤ油（VG320）で観測した場合、新油の油膜厚さは0.593μm、試験後の油の油膜厚さは0.395μmと新油時の67%程度となつた。

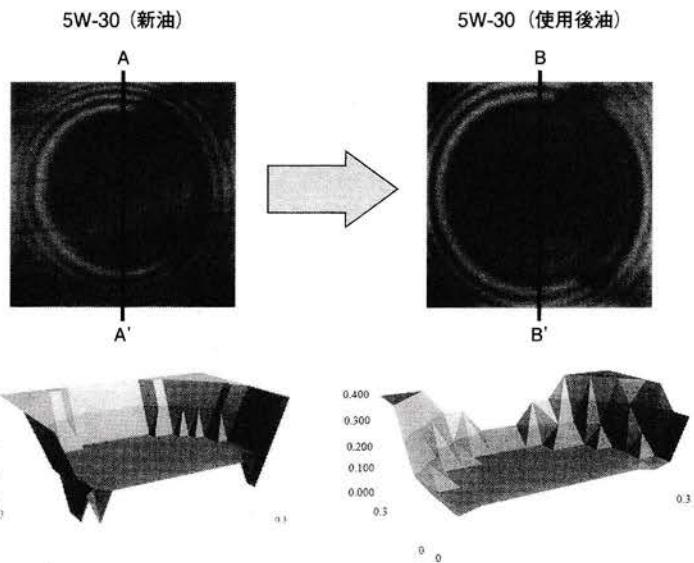


図10 5W-30の観測結果（40°C）

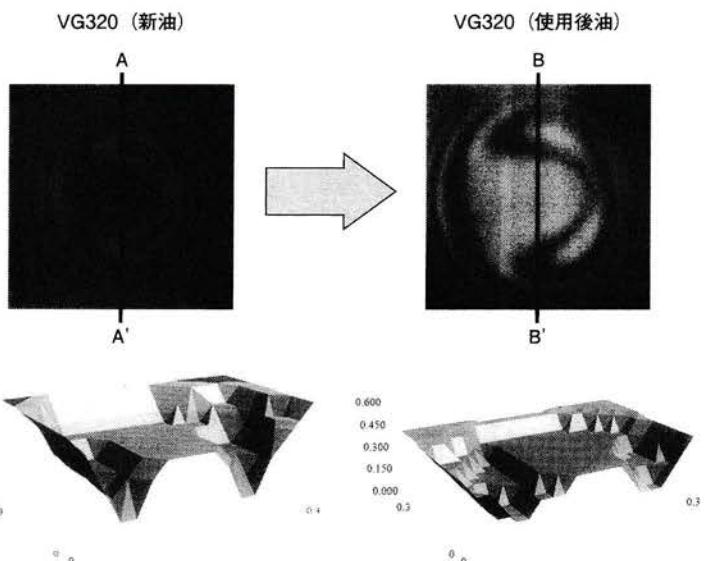


図11 VG320の観測結果（40°C）

エンジン油 (5W-30) における無次元膜厚は新油と試験後の油を無次元速度パラメータ  $7.0 \times 10^{-12}$  時において比較した場合、試験後の油の膜厚は 25% 減少しており、ギヤ油 (VG320) における無次元膜厚は新油と試験後の油を無次元速度パラメータ  $6.31 \times 10^{-11}$  時において比較した場合、試験後の油の膜厚は 33% 減少していた。

エンジン油 (5W-30)、ギヤ油 (VG320) はせん断劣化の影響を受けた場合、油膜厚さが

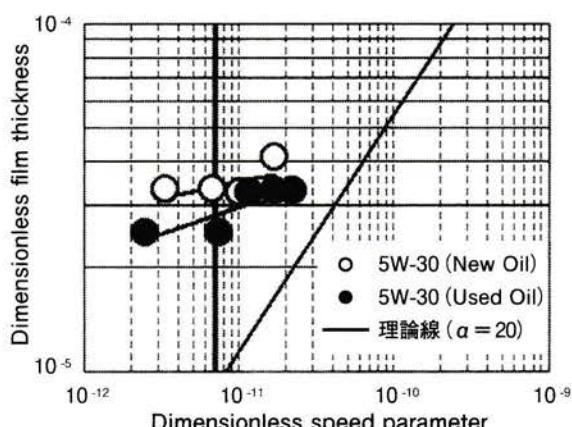


図 12 5W-30 の無次元油膜厚さの評価

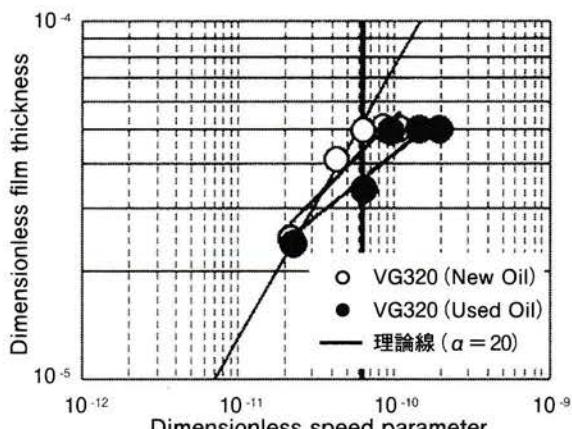


図 13 VG320 の無次元油膜厚さの評価

表 5 標準的な基油の油膜厚さ (実測値)

| 添加剤              | オイルの状態 | 油膜厚さ [μm] |
|------------------|--------|-----------|
| エンジン油<br>(5W-30) | 新油     | 0.395     |
|                  | 使用後油   | 0.296     |
| ギヤ油<br>(VG320)   | 新油     | 0.593     |
|                  | 使用後油   | 0.395     |

減少する結果となった。さらに立体的な評価からすると VII の時と似ており、最薄部における油膜は新油と比べ接触面積が広範囲になっていた。このことから mPAO を使用した観測結果である油膜厚さに変化がなかったことについては、主成分である mPAO が作用し油膜厚さが途切れることなく維持できているためと考えられる。

#### 4. これからの取り組み

これまで、新しい合成油の紹介をしてきた。ここで、研究室で新たに取り組み始めた実験の紹介をしたい。みなさんの興味に適えば幸いである。

一般的に潤滑油の粘度は JIS 規格に示される細管式などを用いた常圧下における物性で規定される。しかし、機械要素における歯車や、軸受などの接触面では非常に高い圧力を受けることから、実際とは異なっている。

そこで、接触面などを想定した高圧下における潤滑油の物性を観測することを考え、試験圧力 300MPa として図 14 に示す落球式高圧粘度計を製作し、高圧粘性の評価法の検証と、機械要素における高圧条件下の接触面での挙動について観測を開始した。このこと

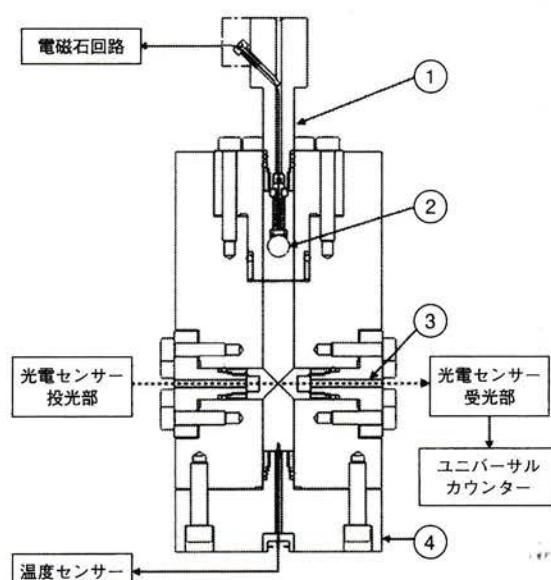


図 14 落球式高圧粘度計の概略図

は、オイルの分子構造の差異による影響も評価が可能となる。

ここで、高圧粘度の測定原理の概略を紹介する。試料油の高圧粘性を測定するには、一般的に落球式高圧粘度計を用いることが多い。測定原理は密閉した容器において万能試験機を使用して①のプランジャーを押すことにより加圧した試料油中に②の鋼球を落下させ、その落下速度からストークスの粘性抵抗を用いて粘度を測定するものである。

この試験機を用いて、一般的なエンジン油である5W-30における圧力と粘度の関係をまとめた例を図15に示す。グラフをご覧いただいてもわかるように、温度に関しても差異が認められ相関が明確になってきた。この実験を用いることにより、オイルの持つ特徴などが明らかとなり、油膜形成の根拠となる特性を追求できると考えている。この実験は、分子構造のほか、属性の区分などによる潤滑油の粘度の特徴を示す以外に、分子間力の違いなどから結晶化などの現象も追求できることを期待している。今後になるが、面白い結果を報告したい。

## おわりに

VIIならびにmPAOを添加した合成油の場合、最大運転時間は理論寿命時間に対して大幅に延長され双方とも優秀であることがわかった。また、VIIを添加した合成油の場合、時間とともに動粘度は低下し、油膜厚さも減少していた。一方、mPAOを添加した合成油は同一条件下でも動粘度は維持され、油膜厚さも変化を認めなかった。これはせん断劣化の抑制をもつ特長を示すものと考えられ、mPAOには安定的な性能を維持することができる。

その他、エネルギー的には微小な差であるので明確な断言は難しいが、mPAOはVIIに対して2%程度のメリットが期待できること、ならびに、時間経過による変化は微小で

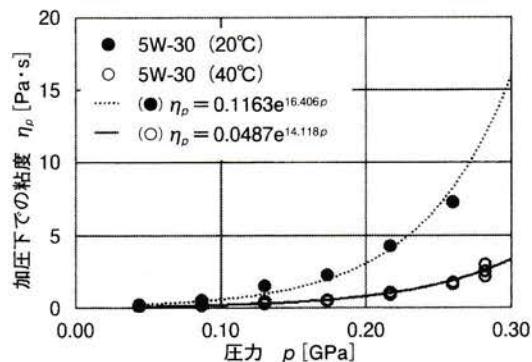


図15 圧力と加圧下での粘度（エンジン油例）

あることが推察できた。

今回の実験に用いたメタロセン触媒由来の低粘度化した潤滑油の定着により油膜形成の安定性から言えることとして、長寿命の信頼性と省エネルギー的効果という相反する追求の課題をブレイクスルーする可能性が期待できそうである。

## ＜参考文献＞

- 1) 阪口歩：省燃費型エンジン油用粘度指数向上剤、三洋化成ニュース、No.514 (2019)
- 2) 里永憲昭、竹田雄祐、奥田直史：メタロセン触媒を用いたポリ $\alpha$ オレフィン合成油におけるせん断劣化を受けた弾性流体潤滑条件下のトライボロジー特性、日本ケミカルズ販売主催自動車用潤滑油の低粘度化と合成油技術動向セミナー論文集 (2019) p.7
- 3) 平田昌邦：潤滑油の粘度特性と粘度指数向上剤、精密工学会 (1990) pp.50-53
- 4) 西田稔：高性能粘度指数向上剤、三洋化成ニュース No.455 (2009) pp.1-4
- 5) 竹田雄祐、里永憲昭、渡邊孝司、園田智之：転がり軸受の損傷に与える自動車と産業機械における潤滑油新還元添加剤 (SOD-1PN) の寿命効果に対する考察、日本設備管理学会誌、Vol.29、No.2 (2017) pp.37-41
- 6) 杉村丈一：EHL油膜計算式、トライボロジスト、Vol.49、No.10 (2004) pp.51-52
- 7) 佐々木信也ほか：数値解析と表面分析によるトライボロジーの解明と制御、テクノシステム (2018) pp.81-92
- 8) T. Mawatari, T. Harada, M. Yano, H. Shiomi, S. Obara, N. Ohno : Rolling Bearing Performance and Film Formation Behavior of Four Multiply-Alkylated Cyclopentane (MAC) Base Greases for Space, Application Tribology Transaction, 56, 4 (2013) pp.561-571