

Al-2.5wt%Li 합금의 시효거동과 인장성질에 미치는 δ' 상의 영향

유창영 · 이민상*

국립중앙과학관

*전북대학교 공과대학 금속공학과

Effect of δ' Phase on the Aging Behavior and the Tensile Property of Al-2.5wt%Li Alloy

Chang-Young Yoo and Min-Sang Lee*

National Science Museum, Taejeon, 305-338

* Dept. of Metallurgical Engineering, Chonbuk National University, Chonju 561-756

(1997년 6월 4일 받음, 1997년 7월 5일 최종수정본 받음)

초 록 Al-2.5wt%Li 합금을 시효처리하여 시효거동과 인장성질에 미치는 δ' 상의 영향을 조사하였다. δ' 상의 입자 반경은 시효 시간의 1/3승에 비례하여 조대화하였다. δ' 상과 기지상과의 계면에너지는 0.0073 J/m^2 , 확산계수는 $1.42 \text{ cm}^2/\text{sec}$, 성장속도 상수는 $29.24 \times 10^{-24} \text{ cm}^3/\text{sec}$ 였으며, R_0 값은 91.52 \AA 이었다. δ' 상의 조대화속도비 $k(\delta)/k(\delta_0)$ 는 6.32이므로 δ' 상의 조대화 거동은 MLSW 이론에 부합됨을 알 수 있었다. 미세하고 균일하게 분포한 δ' 상은 전반적으로 인장강도의 상승을 가져왔으며, 평형상인 δ 상의 석출과 이로 인한 무석출물대의 존재로 과시효시 강도가 감소하였다. 인장변형시 전위는 초전위로 아시효와 피크시효시에는 δ' 상을 전단하지만 과시효시에는 δ' 상을 전단하지 못하고 우회하여 전위루우프를 형성한다.

Abstract To examine the effect of δ' phase on aging and dislocation movement in Al-2.5wt%Li alloy, this study was accomplished. With aging time, the radius of δ' phase particle became coarsener in proportion to $\bar{R} \propto t^{1/3}$. The interfacial energy between δ' and matrix phase was 0.0073 J/m^2 and its diffusion coefficient was $1.42 \text{ cm}^2/\text{sec}$. The growth rate constant was $29.24 \times 10^{-24} \text{ cm}^3/\text{sec}$ and its initial radius was 91.52 \AA . The coarsening of δ' phase in this study was found to be coincided with the MLSW theory, because the ratio between theoretical and experimental coarsening rate constants($k(\delta)/k(\delta_0)$) was calculated 6.32. The tensile and yield strength of peak aged condition were higher but elongation was lower than those of under and over-aged condition. It is due to interruption of dislocation movement by precipitates. Fine and unstable δ' phase which precipitated in initial aging stage were cut by dislocation. But, as δ' phase were coarsened, the dislocation movement was started to interrupt and then super-dislocations were curved. Therefore, in the over-aging condition, dislocation loops were formed around δ' phase.

1. 서 론

Al 합금은 최근 환경오염이 심각한 문제로 대두되기 시작하면서 타금속에 비해 재활용이 가능하고 그의 경한 특성 때문에 사용이 증가되고 있는 추세이다¹⁾. 그중 상온에서 비중이 0.53 g/cm^3 이고 Al의 비중의 1/5 정도인 Li와 합금화하면서 얻어지는 저비중, 고탄성을 및 고강도의 재료특성을 가지고 있는 Al-Li 합금은 각종 구조용 재료와 항공우주용 재료로서 실용화되고 있으며, 용체화처리 후 시효처리하면 과포화용체의 분해로 $L1_2$ 상인 Al_3Li (δ')의 중간상이 균일하게 구형으로 석출되고 성장하기 시작한다²⁻⁴⁾. 그 후 모상의 용질원자의 농도는 평형값에 가까워지고 석출물 입자들의 총체적은 거의 일정해진다. 이 단계가 되면 입자 조대화 이론에 따라 조대화된다.

입자 조대화 이론은 1900년에 Ostwald가 작은 입자들은 용해되고 보다 큰 입자들이 성장하여 제 2상의 표면적의 합을 감소시키는 Ostwald 성장 이론을 발표한 이래 LSW 이

론^{5,6)}, 이 이론을 수정한 MLSW 이론⁷⁾, 용질원자의 확산을 고려한 A.D.Brailsford와 P.Wynblatt의 이론⁸⁾ 및 입자 성장시 계면의 거동을 고려한 LSEM 이론⁹⁾ 등 많은 연구가 진행되어 왔다.

석출물 입자가 성장하면 단위체적당 석출물 입자수가 감소하게 되어 재료의 기계적 성질에 영향을 미치게 되며, 임계크기 이상으로 성장하면 재료의 강도는 저하된다. 따라서 본 연구에서는 Al-2.5wt%Li 합금의 시효특성에 따른 중간상 δ' 상의 조대화 과정을 연구하고 인장시험시 δ' 상과 전위와의 관계를 토대로 인장성질의 변화요인을 규명하고자 한다.

2. 실험 방법

Al-2.5wt%Li 합금은 99.98% Al과 99.9% Li을 그림 1의 진공 용해로에서 용해 및 주조하였다.

Al 주괴를 예열한 후 phosphorizer에 Li을 장입하고 로터리 펌프로 진공도를 $1 \times 10^{-3} \text{ torr}$ 까지 유지한 다음 상승

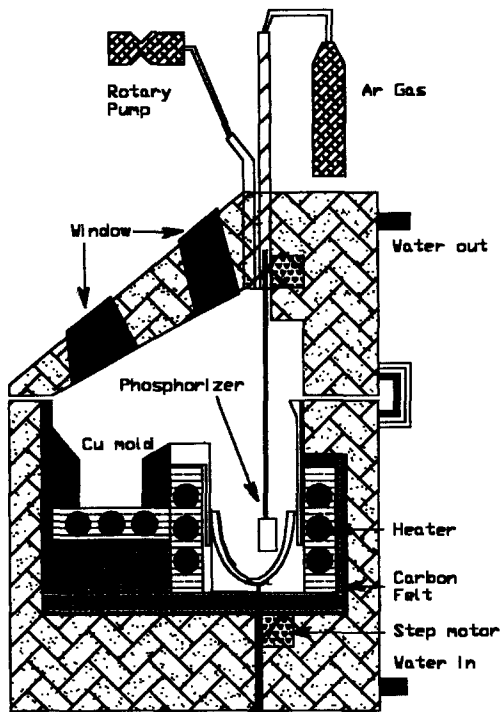


Fig. 1. Schematic diagram of vacuum heating furnace.

Table 1. Chemical Compositions of Al-2.5wt% Li Alloy.(wt%)

Li	Si	Mg	Cu	Fe	Al
2.527	0.049	0.047	0.038	0.008	bal

온도를 20°C/분으로 하여 750°C까지 상승하였다. 도가니 안쪽 하단면에 위치한 열전대의 온도지시가 안정된 후 스텝 모터(step motor)를 이용하여 Ar 가스관이 연결된 phosphorizer를 용탕으로 하강 이동시켜 Li를 첨가하였다. Li의 편석을 방지하기 위하여 Ar 가스를 30kgf/cm²의 압력으로 불어 넣어 용탕이 강제 교반되도록 하였다. 용해시 발생하는 가스를 배출시키기 위하여 도가니 상단에 배기관을 연결시켜 배기하였다. 고온 강화유리로 이루어진 창을 통하여 가스가 모두 배기된 것을 확인한 후 도가니 하단에 위치한 스텝 모터를 이용하여 도가니를 상승시켜 200°C로 예열되어 있는 구리 몰드에 주조하여 잉곳을 얻었으며, ICP-AES 습식분석에 의한 조성은 표 1과 같다.

잉곳내의 미세 편석을 제거하기 위해 1×10⁻³ torr, 450°C에서 24시간 균질화처리하였으며, 두께 2.5 mm까지 냉간압연 한 후 10×10×2 mm 크기로 가공 절단하여 시험편을 만들었다. 과포화용체를 얻기 위하여 1×10⁻³ torr에서 540°C에서 30분 동안 용체화처리 후 액체질소에 소입하였다. 용체화처리 후 즉시 190°C에서 1/2시간에서 480시간동안 실리콘 유욕에서 시효처리 하였다. 시효처리한 시편을 두께 1.5 mm가 되도록 경면 연마한 후 마이크로 비커스 경도기를 이용하여 하중 200g, 시간 15초로 경도 측정하였다.

인장시험을 위하여 압연한 관재시료를 ASTM sub-size로 가공한 후 아시효, 피크시효와 과시효조건으로 열처리하여 상온까지 급냉하였다. 인장시험 후 파괴된 부분을 절단

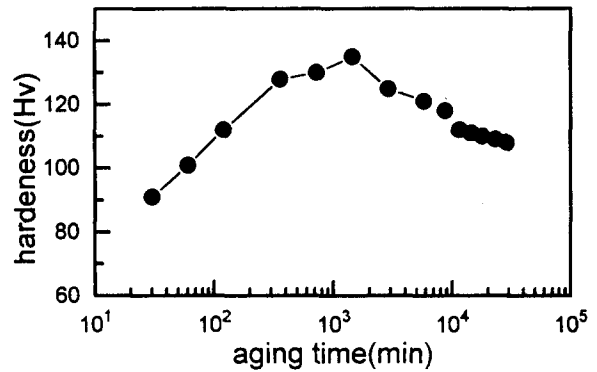


Fig. 2. Micro-vickers hardness with aging time in Al-2.5wt% Li alloy aged at 190°C.

하여 주사전자현미경으로 파면을 그리고 조직과 전위는 투과전자현미경으로 관찰하였다. δ 상을 관찰하기 위한 시편은 연마지로 100 m까지 연마하고 0°C의 트리클로로에틸렌에 보관하였다. 시편은 지름 3mm로 편칭한 후 double jet electro polisher를 사용하여 -40°C로 유지되는 40% HNO₃와 60% C₂H₅OH의 전해액에서 12~20V의 전압으로 thin foil을 만들어 투과전자현미경으로 석출상을 관찰하였다. δ 상의 크기는 투영기를 이용하여 각 시효 조건에서 관찰한 투과전자현미경 필름으로부터 직접 구하였다. 각 조건에서 크기를 측정할 δ 상의 수는 100~150개였으며 구형에서 벗어난 δ 상의 크기는 $D_{eff} = (D_{max} \cdot D_{min})^{1/3}$ 으로 부터 구하였다. 또한 δ 상의 체적분율은 $2N_i / \pi N_A = 3N_v / 4N_L$, δ 상의 밀도는 $N_v = \pi N_A / 4N_L$ 의 관계로부터 결정하였다¹⁰⁾. 여기서 D_{eff}는 δ 상의 유효직경, D_{max}는 최대직경, D_{min}는 최소직경이며, N_i은 단위길이당 δ 상의 intercept 수, N_A는 단위면적당 총 수, N_v는 단위체적당 총 수이다.

3. 결과 및 고찰

시효거동과 δ 상의 조대화

190°C에서 항온 시효처리한 Al-2.5wt% Li 합금의 시효시간에 따른 경도변화를 그림 2에 나타내었다. 시효가 진행됨에 따라 경도치는 점차 상승하여 시효 개시 24시간 후에서 135Hv의 최고치를 나타냈다가 감소하는 경향을 보인다. 이처럼 시효로 인하여 경도치가 변하는 원인은 시효시 석출하는 δ 상과 관련이 있는 것으로 사료되며, 시효와 δ 상과의 관계를 규명하기 위하여 투과전자현미경으로 관찰한 결과 사진 1과 같았다.

최고경도치가 나타나는 피크시효의 경우 사진 1(a)에서 보는 바와 같이 매우 미세한 δ 상이 기지에 거의 균일하게 분포하고 있는 것이 관찰된다. 240시간 후에는 사진 1(b)처럼 주변의 δ 상과 결합하여 조대화가 진행되는 것이 관찰된다. 이 경우 큰 입자가 작은 입자를 흡수하여 성장하기 때문에 성장하는 δ 상의 주변에서는 입자의 소멸이 이루어져 밀도는 낮아지게 된다. 480시간 시효 후에는 사진 1(c)처럼 δ 상은 성장을 계속하여 완전 구형에 가까운 조대한 입자를 형성하고 있으며, δ 상의 밀도도 매우 낮아졌다. 그러나 아직도 δ 상의 성장은 계속되고 있

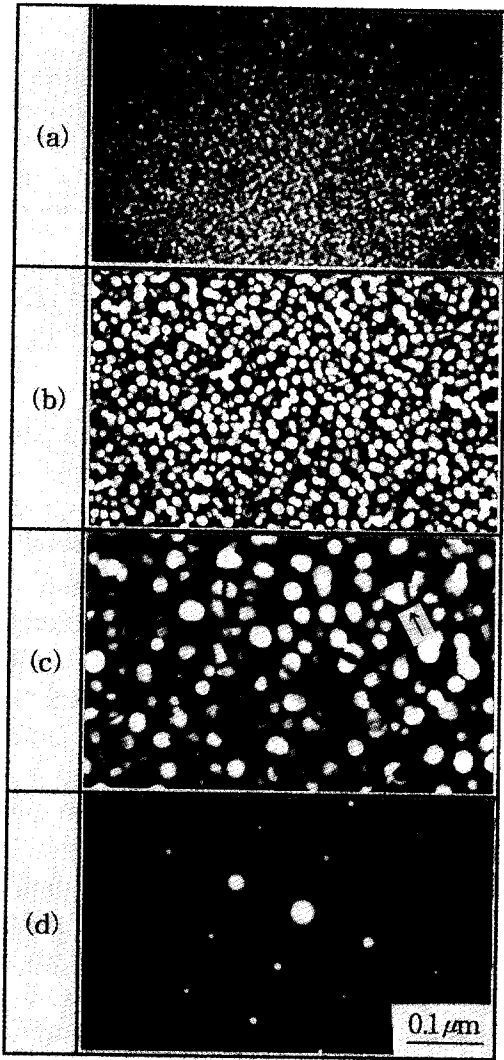


Photo. 1. TEM images of δ' phases in Al-2.5wt%Li alloy aged at (a) 190°C × 24hrs, (b) 190°C × 240hrs, (c) 190°C × 480hrs and (d) SADP.

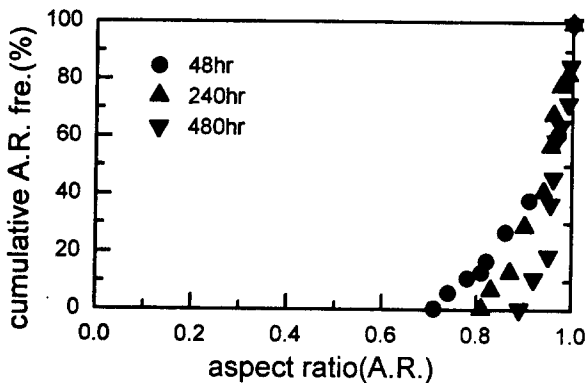


Fig. 3. Cumulative frequency versus the aspect ratio of δ' phases for Al-2.5wt% Li alloy.

는 것(사진의 ↓부분)이 관찰된다.

이를 정량적으로 확인하기 위하여 각 시효조건에 대한 aspect ratio와 cumulative frequency를 구하였으며 그림 3에 나타내었다. 시효초기에는 체적분율이 증가하게 되고 그 형태는 불규칙하지만 시효시간이 경과함에 따라 aspect ratio가 1에 가까워지는 형태, 즉 구형에 가까워 진

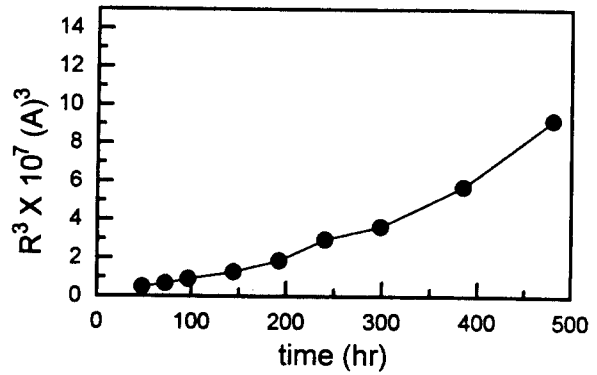


Fig. 4. Relative between \bar{R}^3 and aging time of Al-2.5wt% Li alloy aged at 190°C.

다. 응집기구 또는 encounter에 따라 크기가 같은 입자가 만나게 되면 그 순간의 aspect ratio는 0.5가 되고 계속 성장을 하게 되면 1.0에 가까워 짐을 알 수 있다.

그림 4는 시효시간에 따른 입자반경의 변화를 나타내었다. 그림에서 알 수 있듯이 평균입자크기의 3승 \bar{R}^3 와 시효 시간 t의 관계는 직선적이기 때문에 δ' 상은 시효시간의 1/3승에 비례하여 성장함을 알 수 있다. 입자조대화 이론의 기본 식은

$$\bar{R}^3 - R_0^3 = kt \tag{1}$$

로서, R_0 는 시효초기의 입자의 반경이고 k는 성장속도 상수이다. as-quench 조건의 투과전자현미경 사진으로부터 구한 R_0 값은 91.52 Å이었으며, 그림 4의 기울기로부터 구한 성장속도 상수 k는 $29.24 \times 10^{-24} \text{cm}^3/\text{sec}$ 이었다. 성장속도 상수는 LSW 이론에 따르면

$$k = \frac{8D\sigma V_m^2 C_e}{9RT} \tag{2}$$

이며, 성장하는 입자 부근에서의 입자의 용해와 석출상의 부피분율을 고려한 MLSW 이론에서는

$$k_{(\phi)} = \frac{6D\sigma V_m^2 C_e \bar{\rho}_{(\phi)}^3}{RT \nu_{(\phi)}} \tag{3}$$

이고 합체(encounter)를 고려한 LSEM 이론에서는

$$k_{(\phi)} = \frac{6D\sigma V_m^2 C_e \bar{r}^3}{RT r_{(\phi)}} \tag{4}$$

이다. 여기서 D는 확산 계수, σ 는 석출상과 모상과의 계면에너지, V_m 은 석출물의 몰체적, C_e 는 단위부피내의 용질의 평형몰수, R은 기체상수, T는 절대온도, $\bar{\rho}_{(\phi)}$ 는 R/R_0 , R_0 는 임계입자크기, $\nu_{(\phi)}$ 는 체적분율에 관계된 함수, \bar{r} 는 \bar{R}/R_0 이며 $r_{(\phi)}$ 는 체적분율에 따라 변하는 상수이다. MLSW 이론에서 ϕ 가 0이면 $\nu = 27/4$ 가 되어 LSW이론과 같게 되고, ϕ 가 1이면 $\nu \rightarrow 0$ 이 되어 계면속 성장과 같게 된다. 또한 체적분율이 증가할수록 성장속도 상수는 증가한다. LSEM 이론에서 평균입자 크기의 성장은 역시 $t^{1/3}$ 에 비례하지만 속도상수와 PSD's(particle size distribution's)는 체적분율의 함수이다. 합체(encounter)의 영향은 비

Table 2. Thermodynamics Data and Calculated Values of σ , V_m and D in Al-2.5wt% Li Alloy.

C_0	C_a	C_s	ϕ	$C_s(\text{mol/cm}^3)$	$\sigma(\text{J/m}^2)$	$V_m(\text{cm}^3/\text{mol})$	$D(\text{cm}^2/\text{sec})$
0.91575	0.065	0.027	0.15	6.54×10^{-3}	0.0073	39.715	1.42×10^{-14}

Table 3. Variations of Tensile Property at Each Aging Condition.

	UA	PA	OA
Tensile Strength(MPa)	186	230	180
0.2% Offset Yield Strength(MPa)	160	211	152
Elongation(%)	4.8	2.5	7.1

*UA : under-aging, PA : peak-aging, OA : over-aging

특 적을지라도 성장속도를 변화시키고, 속도상수를 전 체적 분율에서 변화시키는데 이는 MLSW 이론과는 차이가 있으며 ϕ 가 0이면 $r=r_0=27/4$ 가 되어 LSW이론과 같게 된다. 이와 같이 성장속도 상수는 δ 상의 체적분율에 의하여 영향을 받는다. 일반적으로 조대화 과정에서는 기지상의 용질원자의 농도는 평형농도에 근접하기 때문에 확산유동에 영향을 미치는 인자는 계면에서의 용질원자의 농도구배이다. 그러므로 석출상의 체적분율이 이 농도구배에 영향을 미치며, 석출상의 형태와 입자분포는 농도구배에 영향을 미친다.

상태도¹¹⁾로 부터 구한 평형조성과 상율에 의해 구한 체적분율의 값 및 $D=4.5\exp(-16650/T) \text{ cm}^2/\text{sec}$ ¹²⁾을 이용하여 구한 확산계수 D 와 MLSW 이론식을 이용하여 실험값으로부터 구한 계면에너지 σ 와 석출물의 몰체적 V_m 을 표 2에 나타내었다.

여기서 C_0 는 합금의 조성, C_a 는 δ 상과 평형을 이루는 기지상의 조성, C_s 는 δ 상과 평형을 이루는 기지상의 조성, ϕ 는 체적분율이며, $C_s(\text{mol/cm}^3)$ 는 모상의 단위부피 내의 Li 원자의 몰수이다.

본 실험의 결과와 입자조대화 이론과 비교하기 위하여 조대화 속도비 $k(\phi)/k_0$ 를 계산하였다.

그 결과 본 실험에서의 조대화 속도비는 6.32로서 MLSW 이론의 6.48과 LSEM 이론의 1.29를 비교할 때 본 실험에서는 δ 상의 조대화 속도는 MLSW 이론에 더 잘 부합됨을 알 수 있다.

δ 상과 인장 성질과의 관계

표 3은 경도시험 결과 나타난 아시효(190°C × 12hrs.), 피크시효(190°C × 24hrs.), 과시효(190°C × 48hrs.)의 조건으로 열처리한 시편을 인장시험한 결과이다. 표에서 보는 바와 같이 아시효 상태의 인장강도 186MPa에서 44MPa가 증가한 230MPa의 최고 인장강도로 되었다가 과시효 상태의 인장강도는 오히려 감소하였다. 항복강도도 인장강도의 변화와 같은 양상을 보였으나 연신율은 인장강도와 항복강도와는 달리 과시효 상태에서 가장 높게 나타났으며, 시효에 따른 인장강도와 항복강도의 변화는 경도의 변화와 같은 경향을 보였다.

이와 같이 시효조건에 따라 강도가 변하는 원인은 시효과정 중에 석출하는 δ 상과 관계가 있다. 시효초기의 강도 상승은 준안정상인 δ 상이 기지에서 미세하고 균일하게

석출됨에 따라 기지의 강화로 인한 것으로 사료된다. 그러나 δ 상이 성장하기 시작하면 Li 원자의 소멸로 인한 무석출물대가 존재하게 되어 강도가 감소하는 원인이 된다. 이와 같은 조직의 변화는 반드시 시효의 파괴형태의 변화와 전위유동에 큰 영향을 미치게 될 것으로 예상된다.

사진 2는 각 시효조건에 따라 열처리한 후 인장시험한 파면사진이다. 아시효 상태의 파면조직은 사진 2(a)에서 보는 바와 같이 파면에 슬립밴드가 존재하는 입계파괴 형태를 보이고 있다. 이러한 현상은 δ 상이 모상과 정합을 이루고 있어 전위의 전단이 용이하기 때문에 그 면에 슬립이 집중된다. 따라서 이 슬립면과 입계의 교차부분에 전위가 집중되어 응력이 집중되기 때문에 파괴가 일어나기 때문에 파괴는 슬립밴드를 따라서 진행되었다는 사실이 사진의 파면에서 관찰된다. 그러나 일단 피크시효 조건에 도달하면 평형상인 상이 균일하게 분포하기 시작하고 그 결과 용질원자인 Li의 농도가 입계부근에서 저하하게 된다. 따라서 변형이 시작되면 입계의 삼중점에서 응력이 크게 집중되어 사진 2(b)처럼 입계파괴가 일어난다. 과시효 상태가 되면 무석출물대가 입계는 물론 입내에도 존재하게 되어 전반적으로 입계파괴와 입내파괴가 동시에 존재하여 사진 2(c)와 같은 파면조직을 보이게 된다.

사진 3은 각 시효조건으로 시효처리를 한 후 인장시험한 변형조직과 전위조직을 보여준다. 아시효 상태인 사진 3(a)는 석출된 δ 상이 균일하게 분포되어 있고 불완전한 구 형태를 보이고 있다. 이때의 전위는 초전위로 δ 상을 쉽게 전단하여 이동하기 때문에 전위는 거의 직선에 가깝다. 피크시효 상태가 되면 사진 3(b)와 같이 δ 상은 완전히 구 형태를 갖추게 되고, 체적분율이 증가하였으며 균일한 분포를 보이고 있다. 일부 δ 상에서는 아직도 조대화가 계속적으로 일어나고 있는 것이 관찰(A ↓부분)된다. 이때의 전위는 아시효 상태와 비교해 볼 때 약간 굴곡이 있기는 하지만 직선에 가까운 초전위로 거동하고 있으며, 변형조직에서도 δ 상이 전위에 의해 완전히 전단된 것(↓부분)이 관찰된다. 과시효 상태가 되면 사진 3(c)처럼 δ 상의 일부는 용해로 인하여 전체적으로 δ 상의 체적분율이 줄어들고 또한 δ 상의 소멸로 인한 무석출물대가 존재하게 된다. 그러나 일부 δ 상은 성장을 계속하여 석출물의 크기가 상당히 커졌으며, 일부는 아직도 성장을 계속하고 있는 것이 관찰된다(↓부분). 이때의 전위는 그 길이

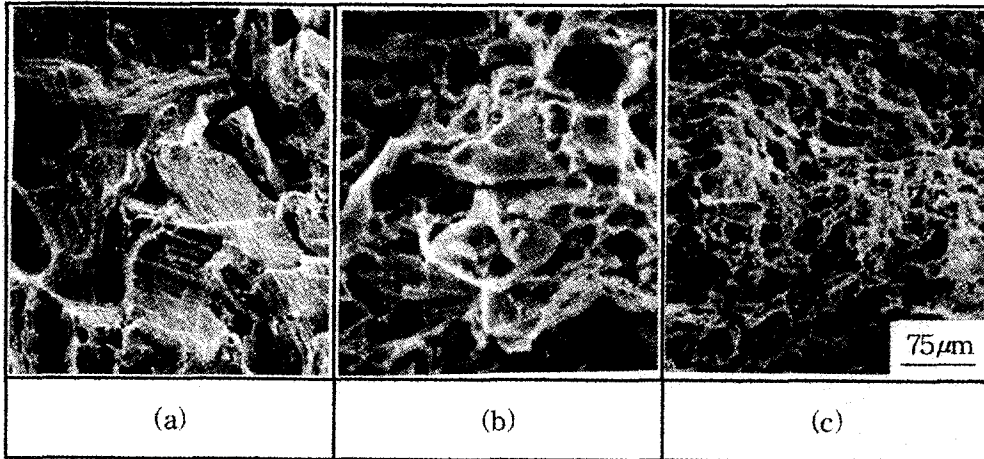


Photo. 2. Fractographs of Al-2.5wt%Li alloy aged at (a) 190°C × 12hrs, (b) 190°C × 24hrs and (c) 190°C × 48hrs.

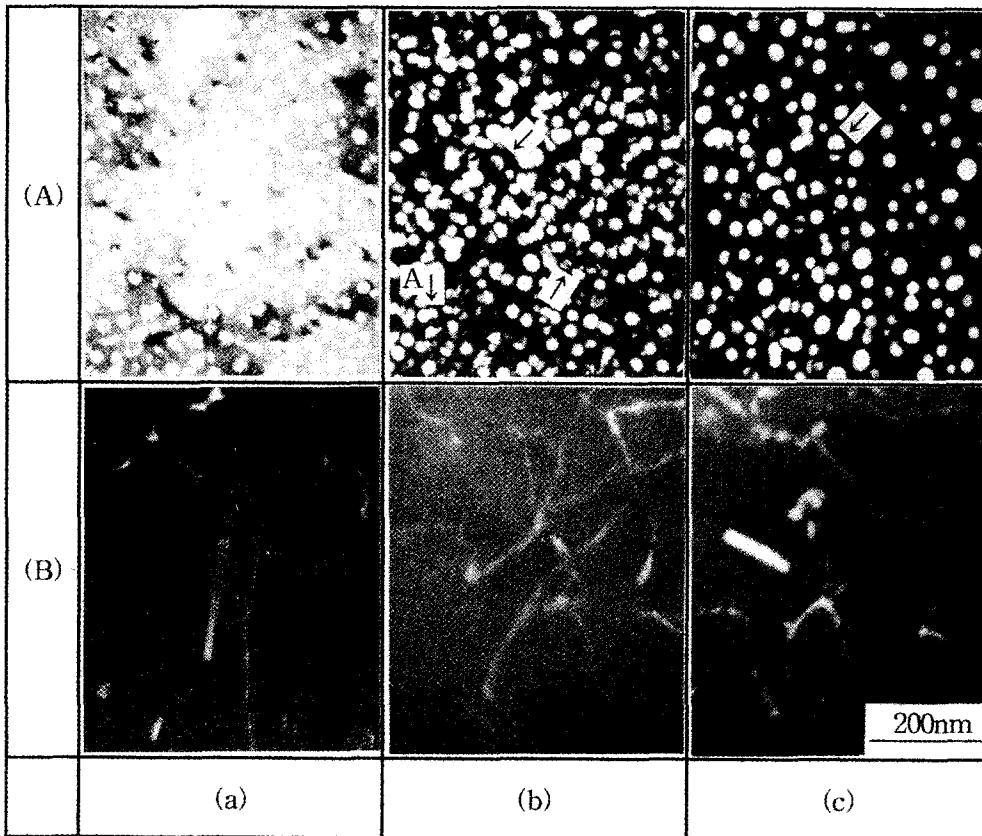


Photo. 3. TEM images of tensile deformed Al-2.5wt%Li alloy aged at (a) 190°C × 12hrs, (b) 190°C × 24hrs and (c) 190°C × 48hrs. (A) DF images of δ' phases, (B) DF images of dislocations.

가 짧아지고 석출물을 더 이상 전단하지 못하고 우회하여 전위루우프를 형성하기 때문에 변형조직에서 전단된 δ' 상은 관찰되지 않는다.

결과적으로 초기에 석출하는 δ' 상은 작고 미세하게 분산되어 재료내에 이동하는 전위에 의해 쉽게 전단이 되지만, 시효가 진행됨에 따라 δ' 상이 성장하게 되면 전위의 이동을 방해하게 된다. 이 δ' 상이 재료의 강도에 기여하며, 과시효로 δ' 상이 임계 크기를 벗어나게 되면 석출물의 밀도가 감소하므로 전위가 δ' 상을 전단하지 못하고

전위 루프를 형성하여 이동한다. 여기서 전위 이동에 필요한 힘은 석출물 입자의 크기에는 거의 무관하고 석출물 입자의 밀도에 의존하므로 과시효시로 인하여 입자가 조대화 되면 밀도가 감소하게 된다.

4. 결 론

Al-2.5wt% Li 합금을 190°C에서 1/2 시간부터 480시간 까지 시효처리하여 중간상 δ' 상을 투과전자현미경으로 관찰하여 조대화 과정을 조사하고 아시효, 피크시효 및

과시효 상태로 시효처리 후 인장시험하여 변형조직과 전위 조직을 관찰한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1) 최고 경도치는 24시간 등방시효에서 나타났으며, 석출상 δ' 상의 입자 반경은 시효 시간의 1/3승에 비례하여 조대화 하였다.

2) δ' 상과 기지상과의 계면에너지는 0.0073 J/m^2 , 확산계수 D 는 $1.42 \text{ cm}^2/\text{sec}$, 성장속도 상수 k 는 $29.24 \times 10^{-24} \text{ cm}^3/\text{sec}$ 였으며, R_0 값은 91.52 \AA 이었다.

3) δ' 상의 조대화 속도비 $k(\phi)/k(\phi_0)$ 는 6.32이므로 δ' 상의 조대화 거동은 MLSW에 부합됨을 알 수 있었다.

4) 미세하고 균일하게 분포한 δ' 상은 전반적으로 인장강도의 상승을 가져 왔으며, 평형상인 δ 상의 석출과 이로 인한 무석출물대의 존재로 과시효시 강도가 감소하였다.

5) 인장변형시 전위는 초전위로 아시효와 피크시효시에는 δ' 상을 전단하지만 과시효시에는 δ' 상을 전단하지 못하고 우회하여 전위루우프를 형성한다.

참 고 문 헌

1. Bulletin of Japan Inst. of Metal ; **33**, No. 1 (1994)
2. B.Noble and G.E.Thompson ; Met. Sci. Eng., **5**, 114 (1971)
3. D.B.Willams and J.E.Edington ; Met. Sci. Eng., **9**, 529 (1975)
4. T.H.Sanders,Jr et al ; Met. Sci. Eng., **43**, 247 (1980)
5. C.Wagner ; Z. Electrochem., **65**, 581 (1961)
6. I.M.Lifshitz and Slyozov ; J. Phys. Chem. Solids., **19**, 35 (1961)
7. A.J.Ardell ; Acta Met., **20**, 61 (1972)
8. A.D.Brailsford and P.Wynblatt ; Acta Met., **27**, 489 (1979)
9. C.K.L.Davies et al ; Acta Met., **28**, 179 (1980)
10. E.E.Underwood ; *Quantitative Streology*, Adison-Wesley Pub. Co., Philiphines Copyright, 90 (1970)
11. A.J.McAllister ; *Bull. Alloy Phase Diagram*, **3**, 777 (1982)
12. C.P.Costas ; U.S.Atomic Energy Comm. Report, DP-813 (1963)