

Al-Li합금의 항복응력에 대한 변형속도 및 온도의존성에 관한 연구

오창섭* · 한창석**,[†]

*한국과학기술정보연구원, **호서대학교 국방과학기술학과

A Study on the Strain Rate and Temperature Dependence of Yield Stress of Al-Li Alloy

Chang-Sup Oh*, Chang-Suk Han**,[†]

*Korea Institute of Science and Technology Information, Reseat Program, Daejeon, 305-806, Korea

**Dept. of Defense Science & Technology, Hoseo University, 165 Sechul-Ri, Baebang-Myun, AsanCity, Chungnam 336-795, Korea

Abstract The effect of strain rate on the yield stress of an Al-Li alloy has been investigated at temperatures between 77 and 523 K and over the strain rate range from $1.77 \times 10^{-4} \text{s}^{-1}$ to $1.77 \times 10^{-2} \text{s}^{-1}$. At testing temperatures below 373 K, the yield stress is almost independent of strain rate at any aging stage. At testing temperatures above 373 K, the yield stress increases linearly with the logarithm of strain rate, and the strain rate dependence increases with increasing testing temperature. The yield stresses of under-aged alloy at temperatures between 373 and 473 K at high strain rates are greater than the yield stress at 77 K. For the alloy under-aged or aged nearly to its peak strength, the temperature range within which the positive temperature dependence of yield stress appears expands to the higher temperature side with increasing strain rate. The strain rate dependence of the yield stress is slightly negative at this aging stage. The yield stress of the over-aged alloy decreases monotonically with decreasing strain rate and with increasing testing temperature above 373 K. The modulus normalized yield stress is nearly constant at testing temperatures below 373 K at any strain rate investigated. And, strength depends largely both on the aging conditions and on the testing temperature. The peak positions in strength vs. aging time curves shift to the side of shorter aging time with increasing testing temperature. For the specimens aged nearly to the peak strength, the positive temperature dependence of yield stress is observed in the temperature range. The shift of peak positions in the aging curves are explained in terms of the positive temperature dependence of cutting stress and the negative temperature dependence of by-passing stress.

(Received August 30, 2011; Revised September 15, 2011; Accepted October 4, 2011)

Key words: aluminum-lithium alloy, mechanical property, strain rate dependence, temperature dependence

1. 서 론

Al-Li합금은 높은 비강도·높은 비탄성율이 요구되는 항공·우주용 재료의 실용화를 목적으로 연구가 진행되고 있다[1-4]. 실용화를 실현하기 위해서 해결하여야 할 과제는 인성을 향상시키는 것으로서 Fe, Mg, Zr 등과 같은 제3원소 첨가, 제조방법의 개선, 가공열처리 등이며, 실온 이하의 온도부터 약 500 K 정도까지의 온도범위에서 충분히 강도를 유지하여야 한다. Al-Li 2원계 합금의 석출과정은 Silcock[5]이 X선을 이용하여 최초로 보고한 것과 같이 $\delta(\text{Al}_3\text{Li}) \rightarrow \delta(\text{AlLi})$ 의 과정을 거치며, δ 상의 석

출에 의하여 경화된다. δ 상은 모상과 완전정합인 L1_2 형 규칙구조를 갖는 구상의 준안정한 상이며, δ' 상은 $\text{B32}(\text{NaTi})$ 형 규칙구조인 조대한 안정상이다. Al-Li합금계의 강화상인 δ' 상과 같은 L1_2 형 규칙구조를 갖는 금속간화합물은 온도가 상승하는 것에 따라 강도가 상승하는 특이한 성질(역온도의존성)을 나타낸다[6]. 또한, Ni_3Al 을 기본으로 하는 화합물 상은 Ni기 초내열합금 조직의 기본적인 구성상으로 되어 있으며, δ' 상에도 동일한 효과가 기대된다. Tamura 등[7]은 Al-9.5 mol%Li 단결정합금의 강도를 77 K과 실온에서 측정된 값을 비교하여 항복응력에 역온도의존성이 나타나는 것을 보고하였다. 그러나 Noble 등

[†]Corresponding author. E-mail : hancs@hoseo.edu

[8]은 7 mol% Li합금에 대하여 실온에서 523 K에 대한 강도의 온도의존성을 측정하였지만, 역온도의존성은 나타나지 않았다. 이와 같이 Al-Li합금의 강도의 온도의존성에 관한 연구결과는 반드시 일치하지 않으며, 열처리조건에 대한 영향에 대해서도 정립되어 있지 않다. 따라서 본 연구는 Al-Li합금의 기본적인 변형특성을 파악하기 위하여 여러 시효상태의 Al-Li 2원계 다결정합금에 대하여 77 K~523 K의 온도범위에서의 항복응력, 변형속도와 온도의존성을 조사하는 것을 목적으로 한다.

2. 실험방법

합금소재는 고순도 Al(99.99%)과 Li(99.8%)을 사용하였으며, 도가니로부터의 오염을 피하기 위하여 비소모전극형 Ar-arc 용해로를 사용하여 용해하여 Li의 농도가 11.1 mol%의 잉고트를 제작하였고, 마크로 편석을 없애기 위하여 5회 이상 반복하여 용해하였다. 불순물 농도를 분석한 결과 Fe 0.0032 mol%, Si 0.026 mol%, Mg 0.0046 mol%이었다. 잉고트를 열간압연 및 냉간압연으로 3 mm 두께인 판으로 가공하여 3 mm×3 mm×5 mm의 크기인 압축시험편을 제작하였다. 시편을 823 K에서 1.08×10⁴s(3 h) 용체화처리하여 얼음물에 급랭한 후, 각각의 시편을 423 K~523 K의 온도에서 등온시효처리를 실시하였다. 시효처리 후, 77 K~523 K의 온도에서 Instron-type 시험기를 이용하여 변형속도 3.5×10⁻⁴s⁻¹ 및 1.77×10⁻⁴~1.77×10⁻²s⁻¹의 범위에서 약 4% 변형까지 압축시험을 하여 항복응력($\sigma_{0.2}$)을 측정하였다. 77 K 및 213 K에서의 압축시험은 액체질소 및 드라이아이스를 혼합한 메틸알콜 속에서 실시하였다. 실온 이상에서의 시험은 장치에 부착되어 있는 heating-system을 이용하여 실시하였으며, 변형시킨 시편은 얼음물에 급랭하였다.

3. 실험결과 및 고찰

3.1 항복응력에 대한 변형온도의 영향

Fig. 1(a)~(c)는 423 K, 473 K 및 523 K에서 시효처리한 Al-11.1mol%Li합금을 77 K~523 K에서 변형속도 3.5×10⁻⁴s⁻¹로 압축시험을 실시하였을 때의

0.2% 내력($\sigma_{0.2}$)에 대한 시효처리 시간 및 변형온도와의 관계이다. 밑면에 수직하고 시험온도 축에 평행한 면에 의한 단면이 각 시효상태에 대한 항복응력의 온도의존성을 나타낸다. 또 시효시간 축에 평행하고 각 시험온도에서의 단면이 시효곡선이다. 그러나 시효시간이 짧고 시험온도가 높은 영역의 항복응력값은 압축시험 도중에 시효경화가 진행되는 영향을 강하게 받고 있다는 점에 주의하여야 한다. 이 영향은 Fig. 1(a)에 나타난 423 K의 시효처리에서 가장 강하게 나타났다. 시험온도가 실온인 경우, 423 K 시효(Fig. 1(a))에서는 2×10⁶s에서도 최대값을 나타내지 않으며, 473 K 시효(Fig. 1(b))에서는 약 10⁵s에서 285 MPa인 최대값을 나타낸 후 과시효연화 한다. 523 K 시효(Fig. 1(c))에서는 5×10³s에서 250 MPa인 최대값을 나타내지만 473 K에서 시효처리한 합금에 비하여 작으며, 과시효연화현상도 뚜렷하다. 시험온도를 변화시킨 경우, 항복응력이 최대값을 나타내는 시효시간은 시험온도가 상승하는 것에 따라 시효시간이 짧은 쪽으로 이동한 것을 알 수 있다. 즉 473 K 시효합금(Fig. 1(b))의 77 K 시험에서는 약 6×10⁵s 시효부근에서 최대값을 나타내지만, 473 K 시험에서는 약 6×10⁴s 시효부근에서 최대값을 나타낸다. 이와 같은 시험온도는 시효온도보다 낮고, 시험시간도 시효시간보다 훨씬 짧기 때문에 이와 같은 현상은 시험 중에 시효진행의 영향은 거의 받지 않았다고 생각할 수 있다. 따라서 변형기구가 온도와 함께 변화하는 것을 알 수 있다.

Fig. 1(a)~(c)의 항복응력에 대한 온도의존성은 as-quench.상태 또는 시효초기단계에서는 시험 중 시효진행에 의해 이상한 온도의존성을 나타내기 때문에 시효진행에 따른 영향이 적은 장시간 시효처리한 시편의 강도에 대하여 살펴보면, 최고강도를 나타내는 부근의 시효단계에서는 모두 항복응력에 대하여 (+)의 온도의존성을 나타낸다. 즉 473 K에서 1.8×10⁵s 시효처리한 합금(Fig. 1(b))의 0.2% 내력은 77 K의 260 MPa에서 423 K의 290 MPa로 시험온도 상승에 따라 약 13% 증가한다. 따라서 L1₂형 합금에서 나타나는 (+)온도의존성이 본 합금에서도 나타나는 것을 알 수 있다.

Fig. 2는 온도의존성을 더욱 명확하게 나타내기 위하여 시험이 진행되는 동안에 온도를 급격하게 변화

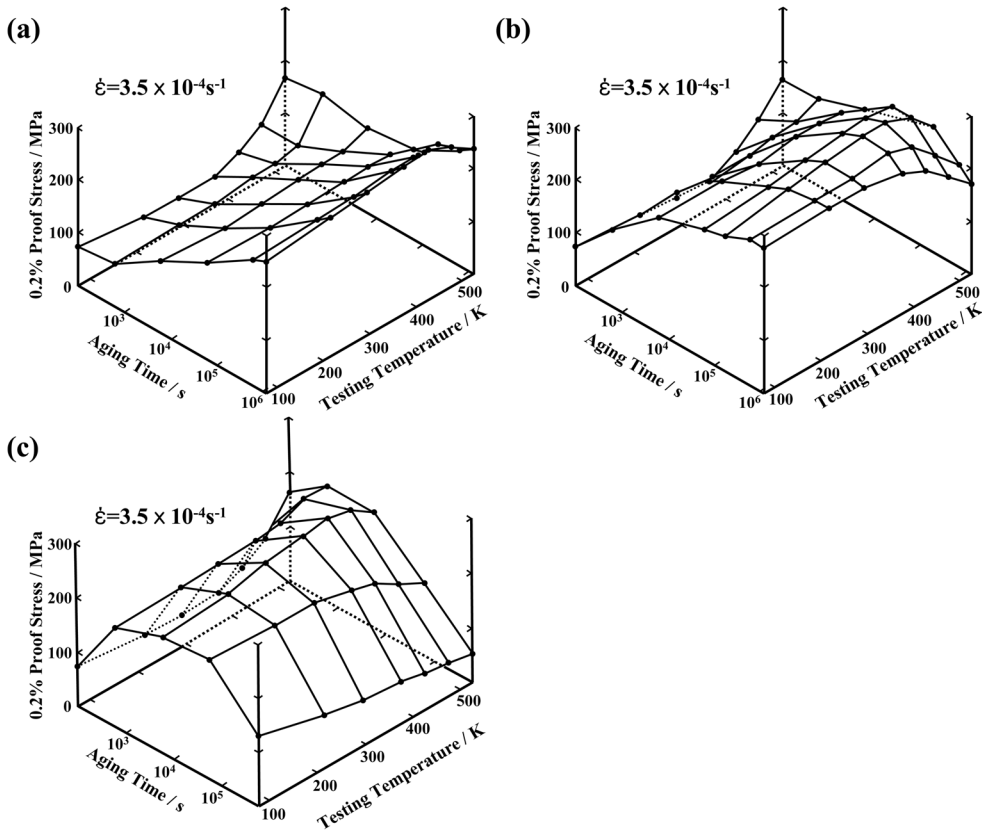


Fig. 1. 0.2% proof stress-aging time-testing temperature diagram of Al-11.1 mol%Li alloy aged at (a) 423 K, (b) 473 K and (c) 523 K, respectively.

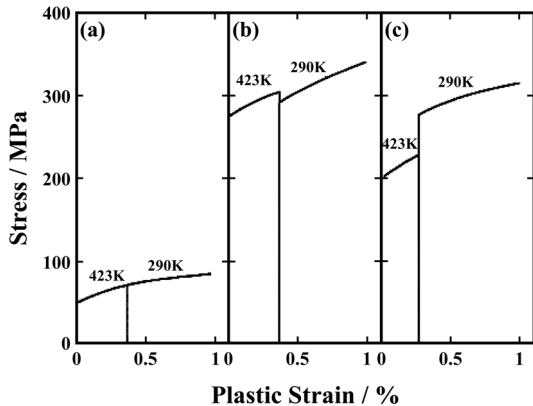


Fig. 2. Variation of stress-strain curves of Al-11.1 mol%Li alloy by temperature change from 423 K to 290 K during testing. (a) as-quenched, (b) aged at 473 K for 1.8×10^5 s and (c) aged at 473 K for 1.2×10^6 s.

시켜 측정된 응력-변형곡선이다. 423 K에서 약 0.3% 까지 소성변형 시킨 후, 시편을 실온까지 급냉하여

실온에서 다시 압축시험을 실시한 것이다. Fig. 2에서 항복응력의 (+)온도의존성은 as-quench.상태 및 과시효상태의 시편에는 나타나지 않고, 최고강도에 가까운 시효처리합금에만 나타나는 것을 알 수 있다. 과시효단계 시편의 항복응력은 (+)온도의존성을 나타내지 않고, 77 K부터 고온까지 단순히 저하하는데, 이것은 동일한 시료에 의한 온도급변시험결과(Fig. 2)뿐만 아니라 Fig. 1(b) 및 (c)에서도 뚜렷하게 나타나며, 과시효단계에서의 소성변형기구는 최고강도를 나타내는 이전 상태와는 다르다는 것을 알 수 있다.

Al-Li 2원계 합금에 대한 항복응력의 (+)온도의존성의 존재는 Tamura 등[7]이 Al-9.5 mol%Li 단결정합금의 항복응력을 77 K과 실온에서 측정된 결과가 보고되었으며, $L1_2$ 구조를 갖는 결정의 특이한 원인에 의한 것이라고 설명하고 있다. Noble 등[8]은

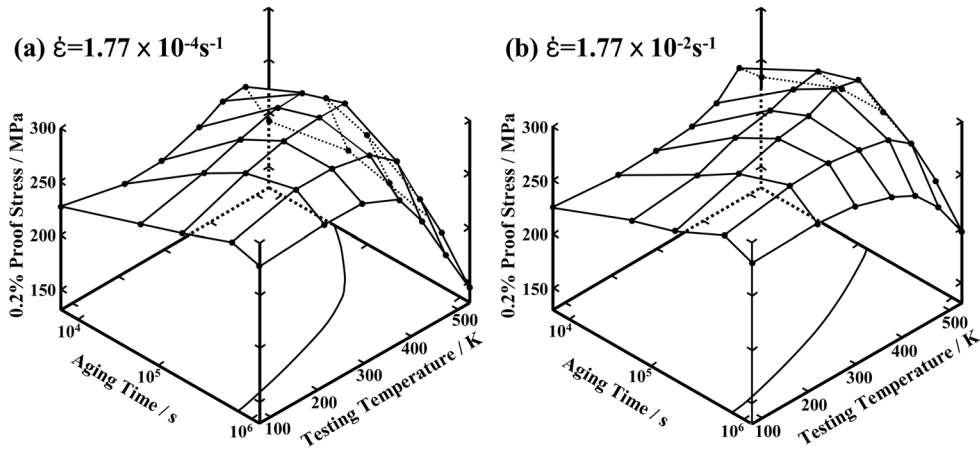


Fig. 3. 0.2% proof stress-aging time-testing temperature diagrams of Al-11.1 mol% Li alloy aged at 473 K and tested in compression at normal strain rates of (a) $1.77 \times 10^{-4} \text{s}^{-1}$ and (b) $1.77 \times 10^{-2} \text{s}^{-1}$.

7 mol%Li합금에 대하여 실온~523 K의 온도영역에서 항복응력을 측정하였지만, (+)온도의존성은 나타나지 않았다. 그러나 사용한 시료가 7 mol%Li로 작기 때문에 $L1_2$ 규칙상인 δ' 상의 석출량이 적은 것을 고려하면, 실온~423 K의 온도범위에서 항복응력이 거의 일정한 값을 나타내는 것은 오히려 본 실험에서 사용한 합금의 항복응력에 대한 (+)온도의존성의 영향을 나타낸다고 생각할 수 있다. 본 실험결과로부터, 항복응력에 대한 (+)온도의존성은 시효상태에 강하게 의존하며, Li 함유량이 많으며 최고강도를 나타내는 부근까지 시효처리한 합금에서만 나타나는 것을 알 수 있다. 항복응력에 대한 (+)온도의존성이 나타나는 온도범위는 77K~423 K로 광범위 하며, 온도상승에 따른 항복응력의 상승은 Ni_3Al 등 $L1_2$ 단상합금[9]에 비하여 완만하다. 473 K 이상의 시험온도에서의 항복응력은 온도상승에 따라 급격하게 저하한다.

3.2 항복응력에 대한 변형속도의 영향

Fig. 3은 473 K에서 시효처리한 Al-11.1 mol%Li합금의 항복응력(0.2% 내력; $\sigma_{0.2}$)에 대한 시효처리 시간 및 변형온도와의 관계이다. (a)는 변형속도 $\dot{\epsilon} = 1.77 \times 10^{-4} \text{s}^{-1}$, (b)는 변형속도 $\dot{\epsilon} = 1.77 \times 10^{-2} \text{s}^{-1}$ 이다. 항복응력은 시효처리 시간에 따라 상승하며, 77 K 시험에서 (a), (b) 모두 약 $6 \times 10^5 \text{s}$ 정도에서 최대값을 나타내고, 이후 과시효에 의해 연화한다. 그래프의 밑면에 투영된 시효곡선의 피크위치는 시험

온도가 상승하는 것에 따라 단시간 쪽으로 이동하는 경향이 있다. 또한 피크위치는 시험온도가 373 K 이하에서는 변형속도에 영향을 받지 않고 거의 동일하지만, 373 K 이상에서는 변형속도가 빠를수록 장시간 쪽으로 이동하는 것을 알 수 있다.

Fig. 4는 473 K에서 (a) $6 \times 10^4 \text{s}$ (불완전 시효상태), (b) $1.8 \times 10^5 \text{s}$, (c) $6 \times 10^5 \text{s}$ (b),(c)는 최대강도를 나타내는 완전 시효상태) 및 (d) $1.2 \times 10^6 \text{s}$ (과시효상태) 동안 시효처리한 합금의 항복응력에 대한 변형속도의 영향을 나타낸 것이다. 모든 조건에서 시험온도가 373 K 이하에서는 변형속도에 의한 항복응력의 변화는 매우 작지만, 423 K 이상에서는 변형속도가 증가하는 것에 따라 항복응력이 뚜렷하게 상승하며, 항복응력과 변형속도는 직선관계에 있는 것을 알 수 있다.

Fig. 5는 각 시험온도에 대한 직선구배를 473 K에서의 시효시간의 함수로 나타낸 것이다. 항복응력에 대한 변형속도 의존성은 시험온도에 따라 다르며, 시험온도가 높을수록 변형속도 의존성이 크다. 그리고 시험온도가 423 K~523 K의 범위에서는 최대강도에 도달하는 $1.8 \times 10^5 \text{s}$ 시효까지는 시효가 진행함에 따라 항복응력에 대한 변형속도 의존성이 커지는 경향을 알 수 있다. 523 K에서는 시효 진행과 함께 변형속도 의존성은 최대값을 나타낸 후 감소하는 경향을 나타낸다. Al-Li합금의 특징은 Fig. 4(a), (b)에서 알 수 있듯이, 각 온도에 대한 항복응력의 변형속도 의존성을 나타내는 직선이 교차하며, 고온에서의 강

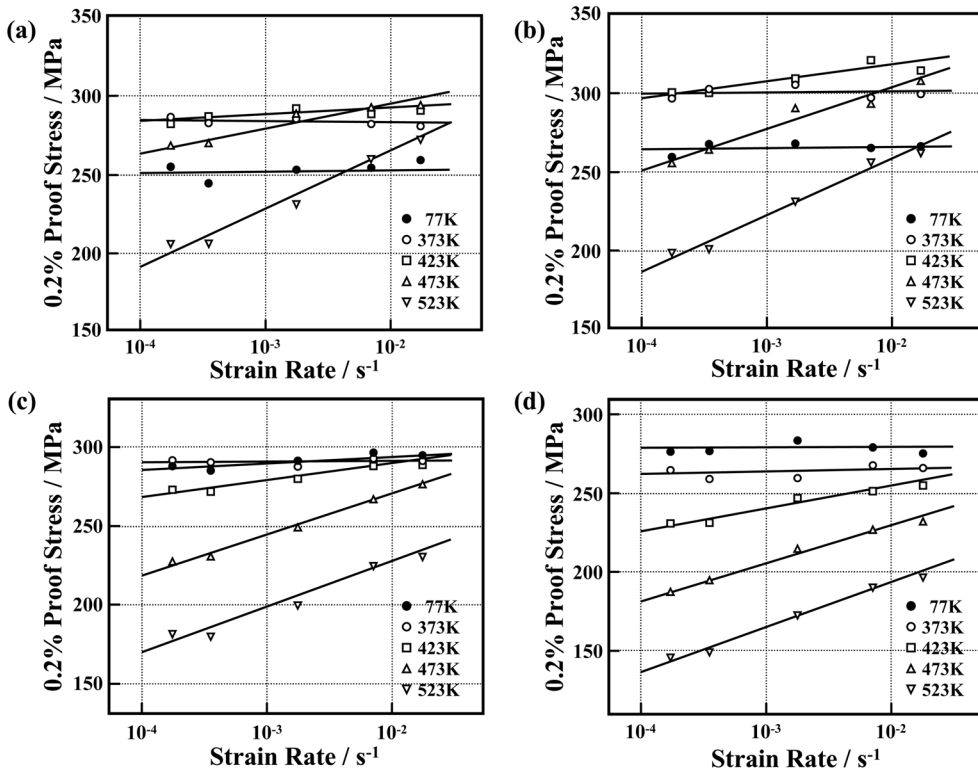


Fig. 4. The effect of strain rate on the 0.2% proof stress of Al-11.1 mol% Li alloy aged at 473 K for (a) 6×10^4 s, (b) 1.8×10^5 s, (c) 6×10^5 s and (d) 1.2×10^6 s.

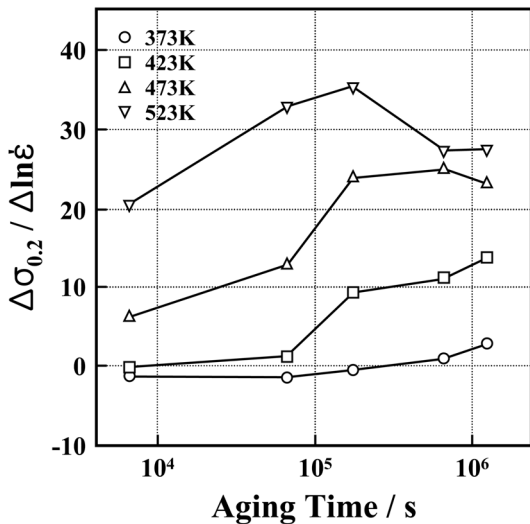


Fig. 5. The effect of aging time at 473 K on the strain rate sensitivity ($\Delta\sigma_{0.2} / \Delta \ln \dot{\epsilon}$).

도가 저온보다 높은 점으로, 이것은 $L1_2$ 형 규칙구조 인 석출상을 포함하는 Ni-base 초내열합금에서도 관

찰되는 특이한 현상이다. 이 현상은 불완전한 시효상태에서 변형속도가 빠를수록 뚜렷하게 나타나며, 과시효상태(d)에서는 소실된다.

Fig. 6(a)~(c)는 Fig. 2(a), (b) 및 (d)중에서 2개의 변형속도에 대하여 항복응력의 시험온도에 의한 변화를 나타낸 것이다. 점선으로 나타낸 것은 Al-Li 합금의 강성율에 대한 온도의존성으로 보정한 항복응력이다. 불완전 시효상태인 시료 (a)에서는 변형속도가 느린 경우($\dot{\epsilon} = 1.77 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$)는 77 K~373 K의 온도범위에서 항복응력의 (+)온도의존성이 나타나지만, 변형속도가 빠른 경우($\dot{\epsilon} = 1.77 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$)에는 항복응력의 (+)온도의존성이 나타나는 온도영역이 고온쪽으로 이동하며, 473 K 부근까지 이동한다. 이러한 경향은 (b)에 나타난 최대강도 부근까지 시효처리한 시료에서도 동일하다. 그러나 (c)의 과시효상태 시료에서는 강성율의 온도의존성을 보정하여도 항복응력의 (+)온도의존성은 나타나지 않고, 일반적인 Al합금에서 나타나는 강도의 온도의존성[10]과 같이

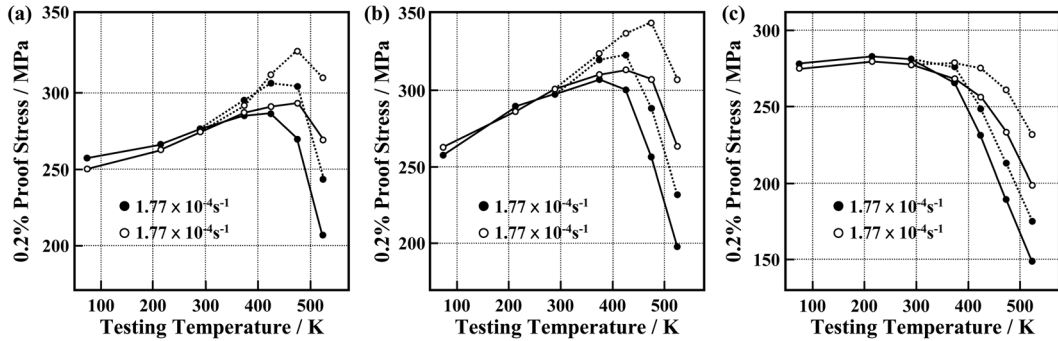


Fig. 6. The effect of strain rate on the temperature dependence of 0.2% proof stress of Al-11.1 mol% Li alloy aged at 473 K for (a) 6×10^4 s, (b) 1.8×10^5 s and (c) 1.2×10^6 s. Dotted lines indicate modulus normalized 0.2% proof stress.

항복응력은 온도상승에 따라 저하한다.

시효처리한 Al-11.1 mol%Li합금에서는 전단기구가 작용하는 합금에서도, Orowan의 by-pass기구[11]가 작용하는 합금에서도 373 K 이하의 시험온도에서는 항복응력의 변형속도의존성은 작다. 그러나 373 K 이상의 온도에서는 모든 시효상태에 대한 항복응력은 변형속도의 증가에 따라 상승하는 경향이 있으며, 항복응력과 변형속도는 직선관계에 있다.

항복응력이 변형속도에 거의 의존하지 않고 일정한 값을 갖는 현상은 γ 상이 석출한 Ni기 합금에서 변형온도가 낮고(약 0.6 Tm 이하, Tm은 합금의 용점), 변형속도가 빠른 경우(1.67×10^5 s⁻¹)에도 나타난다 [12]. 본 실험의 Al-11.1 mol%Li합금에서 항복응력의 변형속도의존성이 작은 온도영역은 0.4 Tm 이하이다. Ni기 합금을 0.6 Tm 이상에서 변형시킨 경우는 항복응력과 변형속도 사이에는 Al-Li합금의 경우와 같은 직선관계가 있지만, 직선의 기울기는 Al-Li합금의 경우와 다르게 시험온도에 관계없이 일정하다. 이와 같은 Ni기 합금은 0.6 Tm 이하에서는 γ 상이 버거스 벡터 $b=(a/2)\langle 110 \rangle$ 의 전위쌍에 의해 확산을 동반하지 않고 전단되며, 0.6 Tm 이상에서는 $b=(a/2)\langle 110 \rangle$ 또는 $b=(a/3)\langle 112 \rangle$ 전위의 확산을 동반하는 점성적 슬립에 의하여 전단된다.

한편, Orowan의 by-pass기구가 작용하는 SiO₂ [13], Al₂O₃[14] 및 BeO[14]를 분산시킨 Cu합금에서는 약 0.42 Tm 이하의 온도에서 강성율로 보정한 항복응력은 온도에 관계없이 일정한 값을 가지며, 그 이상의 온도에서는 온도상승에 따라 저하한다. 이 분산강화형 Cu합금의 경우도 0.64 Tm 이상에서는 항

복응력과 변형속도 사이에는 직선관계가 있으며, 직선의 기울기는 온도에 관계없이 일정하다. Cu합금의 0.64 Tm 이상에서의 항복응력의 온도 및 변형속도의존성은 파이프 확산지배[15], 파이프확산과 double-jog형성지배[14] 및 체적확산지배[16] 등에 의한 전위의 local climb기구에 의해 정량적으로 설명되어 있다. By-pass기구가 작용하는 과시효 Al-Li합금에서도 약 0.4 Tm을 경계로 그 이상의 온도에서는 강성율로 보정한 항복응력은 온도상승에 따라 저하하는 경향을 나타내지만, 항복응력과 변형속도의 대수 사이의 직선관계의 구배는 Fig. 5에 나타난 것과 같이 온도상승에 따라 커진다. 그 직선의 기울기가 커지는 온도범위는 373 K에서 본 실험의 최고시험온도, 결국 0.4 Tm~0.56 Tm 사이이다. 이 온도영역은 분산강화형 Cu합금에 대하여 강성율로 보정한 항복응력이 온도상승에 따라 저하하기 시작하는 온도 0.42 Tm과 항복응력과 변형속도의 대수를 나타내는 직선의 기울기가 온도상승에 따라 커지는 것은 변형의 활성화 에너지가 온도에 의해 변화하는 것을 의미하며, 변형기구가 과도적 단계에 있는 것을 나타낸다. 즉, 확산을 동반하지 않는 전위의 슬립운동으로부터 확산지배에 의한 전위의 local climb이 일어나는 과도적 단계에 있는 것을 나타낸다.

4. 결 론

각 조건에서 시효처리한 Al-11.1 mol%Li합금에 대하여 77 K~523 K의 온도범위에서 압축시험을 실시하여 항복응력, 변형속도와 온도의존성을 조사하여

다음과 같은 결과를 얻었다.

1. 최대강도를 나타내는 시효처리 합금에서 항복응력에 대한 (+)온도의존성이 나타나며, 과시효상태인 합금의 항복응력은 온도가 상승함에 따라 감소한다.
2. 강도와 시효처리 시간과의 관계를 나타내는 시효곡선은 시험온도에 의존하며, 항복응력이 최대값을 나타내는 시효시간은 시험온도가 상승하는 것에 따라 시효시간이 짧은 쪽으로 이동한다.
3. 373 K 이하의 시험온도에서 항복응력의 변형속도의존성은 작지만, 373 K 이상에서의 항복응력은 변형속도가 빨라짐에 따라 상승한다. 항복응력과 변형속도는 직선관계에 있으며, 직선의 기울기는 온도 상승에 따라 커진다.
4. 항복응력에 대한 (+)온도의존성을 나타내는 영역이 변형속도가 빨라짐에 따라 고온쪽으로 이동하며, 최대 강도값을 나타내는 위치는 확산의 영향이 없는 저온에서는 변형속도에 관계없이 동일하지만 고온에서는 변형속도가 빨라짐에 따라 장시간쪽으로 이동한다.
5. 과시효상태인 합금의 373 K 이하에서의 강성율로 보정한 항복응력은 일정하지만, 373 K 이상에서는 일정 변형속도 하의 항복응력은 온도상승에 따라 저하한다.

참고문헌

1. Y. L. Zhang, H. P. Guo and Z. Q. Li : Adv. Mat. & Manuf. Proc. 2011, (2011) 434.
2. X. M. Zhang, D. W. Zheng and L. Y. Ye : J. Central South University of Technology, **17** (2010) 659.
3. Z. Xinming, Y. Lingying and Z. Dawei : Aero. Manuf. Tech., **10** (2009) 82.
4. V. Rajendran, S. M. Kumaran and T. Jayakumar : J. Alloys and Compounds, **478** (2009) 147.
5. J. M. Silcock : J. Inst. Met., **88** (1959) 359.
6. S. Giribaskar, Gouthama and R. Prasad : Materials Science Forum, **584/586** (2008) 411.
7. M. Tamura, T. Mori and T. Nakamura : Trans. JIM, **14** (1983) 423.
8. B. Noble, S. J. Harris and K. Dinsdale : J. Mat. Sci., **17** (1982) 461.
9. Y. S. Choi, D. M. Dimiduk and M. D. Uchic : Phil. Mag., **87** (2007) 4759.
10. S. M. L. Sastry and R. N. Mahapatra : Mat. Sci. & Eng., **329/331** (2002) 872.
11. E. Orowan : Sympo. Internal Stresses in Metals, Institute of Metals, London, (1948) 451.
12. G. R. Leverant and K. S. Chan : Metall. Trans. A, **18** (1987) 593.
13. P. H. Davies and R. S. W. Shewfelt : ASTM special technical publication, **1295** (1996) 492.
14. P. B. Hirsch, R. W. Horne and M. J. Whelan : Phil. Mag., **86** (2006) 4553.
15. L. M. Brown and R. K. Ham : Strengthening Methods in Crystals, Ed. by A. Kelly and R. B. Nicholson, Elsevier, (1971) 9.
16. R. S. W. Shewfelt and L. M. Brown : Phil. Mag., **35** (1977) 945.