(2) T.C. 後の引張変形挙動は、T.C. 前のものと比較して、

- (i) 繊維破断による応力低下量(セレーション)の増大,
- (ii) 繊維破断総数の減少,
- (iii) 複合材の全体の破断歪の減少,

が認められた。

(iv) T.C. 後の試料の破断面には、著しい繊維の引き抜けが認められた。

以上の諸結果は、T.C. に起因する界面でのボイド形成により接着面積が減少するため、界面強度の劣化が生ずることから説明される。

(3) 熱ラチェット変形の原因となる界面すべりは、ボイド形成による界面接着力の劣化により、容易になるものと考えられる。

なお、T.C. に起因したボイドの形成機構については明らかではなく、今後の検討を要する問題である。

最後に、AE 測定に関して、実験装置を提供していた東京工業大学精密工学研究所 布村成具助教授と、実

験遂行にあたり熱心に御協力戴いた高島和希氏(現東京工業大学大学院)に対して、心から謝意を表する。

文 献

- (1) H.Bibring : *Proc. of Conf. on In Situ Composites*, **II**(1973), 1, National Academy of Science-National Academy of Engineering, Washington.
- (2) G.Garmong : *Met. Trans.*, **5**(1974), 2199.
- (3) G.Garmong : *Met. Trans.*, **5**(1974), 2183.
- (4) M.A.Wright : *Met. Trans.*, **6**(1975), 129.
- (5) K.K.Chawla : *J. Mater. Sci.*, **11**(1976), 1567.
- (6) S.Yoda, N.Kurihara, K.Wakashima and S.Umekawa : *Met. Trans. A*, **9A**(1978), 1229.
- (7) S.Umekawa, K.Wakashima and S.Yoda : *Proc. of the 1978 Inter. Conf. on Composite Mater.*, Ed. by B.Noton, AIME, April, 16-20, (1978), Tronto Canada, 828.
- (8) K.K.Chawla : *Phil. Mag.*, **28**(1973), 401.
- (9) K.G. Kreider, L.D. Dardi and K. Prew : AFML-70-193, (1970).
- (10) H.F. Volk, H.R. Nara and W.H. Chang : AFML-66-310, 1(1971), pt. V.
- (11) A. Kelly and W.R. Tyson : *High Strength Materials*, John Wiley & Sons, (1965), 578.

超高压電顕弱ビーム法による転位バーガスベクトルの決定

石 田 洋 一* 石 田 秀 信**
市野瀬 英 喜*** 高 良 和 武****

Yoichi Ishida, Hidenobu Ishida, Hideki Ichinose and Kazutaka Kohra : Determination of the Burgers Vector of a Dislocation by Weak-Beam Image in HVEM.

Exact determination of the Burgers vector of the dislocation is performed by the weak-beam "fringe counting" technique. Both the magnitude and the sense of the Burgers vector are determined exactly from the number of the terminating thickness fringes at the exit of the dislocation from the wedge shaped foil. The number is equal to the inner product of the Burgers vector and the diffracting vector. Thickness fringes in the foil of Al-Mg and Fe-Mn alloys were examined by an 1 MV electron microscope for diffractions up to {211} in BCC and {220} in FCC crystals. A complete determination of the Burgers vector is achieved when three weak-beam micrographs with the diffraction vectors not sharing a plane are compared in the same area. When the possibility of the Burgers vector is limited within basic lattice vectors, the identification can be made with little tilting of the specimen. The small tilt angle and the narrowness of the dislocation image are helpful in the analysis of relatively dense dislocation structure.

It is concluded that the present technique may be utilized as the standard technique for the determination of the Burgers vector in metals and alloys, in place of the conventional ones.

(Received September 12, 1979)

* 東京大学生産技術研究所(Institute of Industrial Science, The University of Tokyo, Tokyo)

** 東京大学工学部総合試験所(Engineering Research Institute, Faculty of Engineering, The University of Tokyo, Tokyo)

*** 東京大学大学院(Graduate School, The University of Tokyo, Tokyo)

**** 高エネルギー研究所(National Laboratory for High Energy Physics, Tsukuba)

1. 緒 言

透過電子顕微鏡で試料薄膜の端部を観察すると、転位があるときその歪み場によって等厚干渉縞が曲る。弱ビーム条件では転位が薄膜表面に顔をだしているところで干渉縞があたかも途切れているようにみえる。この途切れ数により転位のバーガースベクトルを決定しようというのが本研究のねらいである。

転位のそばで等厚干渉縞が曲がるという現象自体は、ふろく透過電顕が転位の観察に用いられた初期の頃からすでに注目されており Bollmann⁽¹⁾がこれを用いてバーガースベクトルを決める方法を発表している。しかしその方法は当時のひくい電子線加速電圧を反映して試料のごく薄い部分で薄膜が湾曲する現象を利用しており、薄膜がたわむ方向によって符号が逆転するなど不便な点があつてあまり注目されず、かわりに強い二波回折条件で像が消失する条件をもとにする方法、いわゆる $g \cdot b = 0$ 法⁽²⁾が標準的手法として使われるようになった。像消失法はしかしバーガースベクトルの大きさや符号がきめられないし刃状成分の大きいとき像は完全には消失しないため紛わしい。また回折ベクトルが高次のときにはバーガースベクトルと直交に近いというだけで像がみえない場合がある⁽³⁾など数多くの難点をもっていた。Humble らによつてはじめられた計算像と写真と比較して判定する方法は⁽⁴⁾⁽⁵⁾これに対処するものであったが、計算に必要なパラメーターがあまりにも多くて実用的ではなかった。ところが最近石田⁽⁶⁾はX線トポグラフィに於て弱ビーム条件では転位による格子歪みが等厚干渉縞に対し単純な関係になり $g \cdot b = n$ のとき n 個の等厚干渉縞が転位の終端部で途切れることを見出した。これはバーガースベクトルの大きさも符号もわかる有力な方法である。電子線はX線とくらべて透過性がひくいが高圧電顕ならば試料の十分厚い領域まで等厚干渉縞を得ることができる。弱ビーム条件では転位像が細くなるので比較的高密度の転位組織でも解析が可能で転位バーガースベクトル決定の標準的手法として期待できそうである。そこで電子線透過性の良好なアルミニウム合金、実際の適用がもっとも期待される鉄合金の2種類を選び実験してみた。面心・体心両立方晶に対し効率よい解析法を編みだそうというわけである。

II. 解 析 方 法

1. 転位近傍における弱ビーム等厚干渉縞の湾曲と終端

等厚干渉縞は電子線の消費距離 $\xi_g^S = (\xi_g^{-2} + S^2)^{-1/2}$ できめられる⁽²⁾。このためブラッグ条件に近い回折のとき ($S \approx 0$) には転位の周辺で干渉縞の変化は少ない。ブラッグ条件から正の方向にずれても負の方向にずれた領域でも干渉縞の間隔は減少する。これに対して弱ビーム条件 ($S \gg 1$) では干渉縞がほぼ S に反比例して小さくなるため単調に

転位の歪み場と干渉する。このため転位の芯部分を除くと転位の歪み場 (R) を電子線に平行な方向 (z) で平均して近似することが可能となつて次式が成立⁽⁷⁾。

$$\langle g \cdot dR/dz \rangle = g/t \int_0^t (dR/dz) dz = g/t [R(t) - R(0)] \quad (1)$$

ただしここで z は電子線方向、 t は薄膜試料の厚さである。等厚干渉縞曲線は $t \cdot S_{\text{eff}} = \text{一定}$ という式で表現されるが S_{eff} はブラッグ条件からのずれで転位近傍では $S_{\text{eff}} = S + \langle g \cdot dR/dz \rangle$ 。したがつて

$$t \cdot S_{\text{eff}} = t \cdot S + g \cdot [R(t) - R(0)] \quad (2)$$

Fig.1 に示すような閉回路 L を転位のまわりに考え、これに沿った線積分 $\oint_L (dR/dl) \cdot dl = R|_L$ を考えると、バーガースベクトル b なる転位線に対して左まわりに L を一周するとき $R|_L = -b$ である。これを式(2)について考えると右辺の第1項 tS および第3項 $-g \cdot R(0)|_{L'}$ は投影

Fig.1 Termination of a thickness fringe at the exit of a dislocation PQ from a wedge shaped thin foil specimen. Displacement field $R(z)|_L = -b$ is conserved with a closed loop L (or L') around the dislocation. An excess in the number of fringes is equal to $-g \cdot b$.

面に考える閉回路 L' に対して値の変化はゼロであり、転位を含んでいる第2項 $g \cdot R(z)|_{L'} = -g \cdot b$ だけが一般にゼロにならない。このため電顕写真上で閉回路 L' にそつて干渉縞の数をかぞえたと $t \cdot S_{\text{eff}}|_{L'} = -g \cdot b$ だけ干渉縞の数に過不足が生ずる。Pのまわりに $n = g \cdot b$ 本の数の余分な干渉縞を観測できる。転位線の方向は常にPに流れ込む向きに選ぶものとし、Pの回りの閉回路 L' を左まわりにまわるとする。このとき $-g \cdot b = -n$ 本、 $n > 0$ ならば転位線の端点Pから薄膜端に向う線の右側に余分な干渉縞が写真上であらわれ、 $n < 0$ のときは左側に余分になる。この性質はPが試料の上表面に顔を出していてもかわらない。なぜなら、この場合は第(2)式の第3項 $-g \cdot R(0)|_{L'}$ に対する線積分だけがゼロでなく、 $t \cdot S_{\text{eff}}|_{L'} =$

$\mathbf{g} \cdot \mathbf{b}$ となる. ところが L を転位線 の方向に対して左まわり にまわることは L が試料の裏面上にあったときのまわり方と逆になってみえる. このため写真上で, みかけの左まわり回路 L' を考えるかぎり $t \cdot \text{Seff}|L'$ の周回後の値は常に $-\mathbf{g} \cdot \mathbf{b}$ で与えられることになる.

2. 薄膜湾曲の等厚干渉縞に対する影響

試料薄膜が湾曲しているとき式(2)の S 値は場所により変化するので干渉縞は試料の縁に平行とならず曲って竹の子模様と通称される形状を示す (Photo. 1). このとき干渉縞の間隔が最大の場所はブラッグ回折条件になっている. 解析したい転位がたまたまそこにあるときは試料を傾けて弱ビーム領域にして解析すればよい. 他種の強い回折が重畳している領域でも干渉縞が乱されるので薄膜を傾け転位の終端部からはなしてやる. 本解析法では転位線と干渉縞とが平行になると解析がむづかしいが, この湾曲を利用すると解析しやすい干渉縞方向を選べるので都合がよい. ただし微小領域回折により S の正負を確かめておく必要がある. 試料の湾曲を利用する点では Bollmann の方法も同じであるが彼的方式はブラッグ条件の領域自体が転位と交叉する場所で湾曲する条件を調べており弱ビーム条件とくらべ解析は単純でない.

3. バーガースベクトルの決定

転位のバーガースベクトルを完全に決定するには3種類の回折条件で弱ビーム写真を撮影し, 3ケの $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} = n$ 式を連立させて解けばよい.

$$\left. \begin{aligned} g_{1x} \cdot b_x + g_{1y} \cdot b_y + g_{1z} \cdot b_z &= n_1 \\ g_{2x} \cdot b_x + g_{2y} \cdot b_y + g_{2z} \cdot b_z &= n_2 \\ g_{3x} \cdot b_x + g_{3y} \cdot b_y + g_{3z} \cdot b_z &= n_3 \end{aligned} \right\} \quad (3)$$

ただし3つの $\mathbf{g}$ が同一面上にあると式(3)の解はきまらないので試料薄膜を傾けて撮影する必要がある.

バーガースベクトルが基本的なものに限られている場合には解析はずっと簡単で, Table 1, 2 に面心・体心両立方結晶に対して例示したように n が特別な場合には1対の写真からもバーガースベクトルが判定される場合がある. 回折面としては対称性のわるい高次の面が判別に有利であるが干渉縞の数が減ってしまうので低次の回折ベクトルに限定される. 面心立方晶では $\{220\}$, 体心立方晶では $\{211\}$ が主役である. 超高圧電顕を用いるのはこの両者に十分な数の干渉縞を生じさせるためである. これらの回折面が2つ以上交叉する結晶軸に電子線の入射方向を近ずけると試料薄膜を殆ど傾けることなく転位のバーガースベクトル

Table 1 Number of terminating fringes at the exit of the dislocation in BCC crystal for diffracting planes parallel to $[102]$.

$\begin{matrix} \nearrow \\ b \end{matrix} \backslash \begin{matrix} g' \end{matrix}$	$(\bar{2}\bar{1}1)$	(211)	(020)
$a/2[\bar{1}11]$	-1	0	1
$a/2[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]$	1	0	-1
$a/2[\bar{1}1\bar{1}]$	-2	-1	1
$a/2[\bar{1}\bar{1}1]$	2	1	-1
$a/2[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]$	0	-1	-1
$a/2[\bar{1}11]$	0	1	1
$a/2[\bar{1}\bar{1}1]$	1	2	1
$a/2[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]$	-1	-2	-1
$a[\bar{1}00]$	-2	-2	0
$a[\bar{1}00]$	2	2	0
$a[\bar{0}10]$	-1	1	2
$a[\bar{0}\bar{1}0]$	1	-1	-2
$a[\bar{0}01]$	1	1	0
$a[\bar{0}0\bar{1}]$	-1	-1	0

Photo.1 A typical "bamboo" image taken in $\{211\}$ reflections. (a) bright field and (b), (c) dark field micrographs of an Fe-0.75%Mn alloy. Two fringes terminated at a dislocation d .

Table 2 Number of terminating fringes at the exit of the dislocation in FCC crystal for diffracting planes parallel to $[111]$.

$b \backslash g$	(220)	(022)	(202)
$a/2[110]$	0	1	1
$a/2[\bar{1}\bar{1}0]$	0	-1	-1
$a/2[\bar{1}10]$	2	-1	1
$a/2[\bar{1}\bar{1}0]$	-2	1	-1
$a/2[011]$	-1	0	1
$a/2[0\bar{1}\bar{1}]$	1	0	-1
$a/2[011]$	-1	2	-1
$a/2[0\bar{1}\bar{1}]$	1	-2	1
$a/2[101]$	1	-1	0
$a/2[\bar{1}0\bar{1}]$	-1	1	0
$a/2[\bar{1}01]$	1	1	2
$a/2[101]$	-1	-1	-2
$a[100]$	2	0	2
$a[\bar{1}00]$	-2	0	-2
$a[010]$	-2	2	0
$a[0\bar{1}0]$	2	-2	0
$a[001]$	0	-2	-2
$a[00\bar{1}]$	0	2	2

を判定できる。転位が高密度のときこれはとくに有利で、弱ビーム転位像の細いこととあわせて比較的密度のたかい転位網解析への利用が期待される。

III. 試料と実験方法

使用したのは Al-4.4 wt% Mg 合金および Fe-0.75 wt% Mn 合金である。いずれも冷間圧延して厚さ 0.2 mm の薄板としてから Al-Mg 合金は 723 K, Fe-Mn 合金は 1073 K で焼鈍し再結晶させた。両試料ともに空冷後電解研磨し薄膜とした。透過観察に用いたのは東大工学部総合試験所の JEM 1250 超高圧電子顕微鏡である。±π/6 rad 傾斜できる回転傾斜装置により試料を傾け、直接倍率を 10000 倍に固定し、弱ビーム条件 ($S \cdot \epsilon_g \geq 1.8$) で暗視野像を撮影

し厚み干渉縞の変化を調べた。いずれの場合も対物絞りを移動させるだけで暗視野像を撮影している。ここにも超高圧電顕の利点がある。{220} や {211} の解析が主体となるからである。干渉縞のコントラストには収差や入射電子線の集束角度がひびくので電子線をひろげ露光時間を長くして撮影した。

IV. 実験結果

1. ブラッグ条件からのずれと干渉縞の形状

Photo.2 は Fe-Mn 合金試料の縁部分で薄膜表面に顔を出した転位の {110} 暗視野像の一例である。ブラッグ条件 ($S=0$) では等厚干渉縞は転位周辺の格子の歪みに鈍感になるため転位芯付近でのみ乱れを示すにすぎない。斜め右下りにみえる線は転位がすべったあとで試料の表面被膜にのこった歪みの残存による像である。ブラッグ条件では像のコントラストがよいのでこのようなすべり線の残像がみえる。ブラッグ条件からのずれが大きくなるにしたがいこのような像はみえなくなる。等厚干渉縞の湾曲は転位の左右で非対称となり、転位の像が狭くなると、あたかもゆっくりと湾曲した等厚干渉縞が転位の左右でつながっているかのようにみえてくる。この結果、転位が薄膜表面に顔を出しているところで、あたかも等厚干渉縞が一本途絶えているようにみえる (Photo.2)。S が大きく干渉縞の間隔がせまいほどこの判定は容易になる。ただし全体のコントラストは低下し、電解研磨の際に生じた薄膜表面の凹凸が干渉縞を波状にしてしまうので本実験では $S \cdot \epsilon_g \approx 2 \sim 3$ が適当であった。

2. 等厚干渉縞の観察される領域

Photo.3 は Al-Mg 合金について比較的ひろい領域にわ

Photo.2 The effect of the deviation parameter S on the {110} dark field image of a dislocation near the edge of a Fe-Mn foil. The fringe termination became apparent at $S \cdot \epsilon_g \geq 2$.

Photo.3 A {200} dark field image of an Al-4.4% Mg alloy. The number of terminating fringes at the exit of each dislocation is denoted.

たって干渉縞を観察した例である。S・ $\xi_g=4.4$ で(200)干渉縞が約60本観察されている。この写真には数多くの転位がみえており同一の視野で写真を一組撮れば、この領域の転位分布をひときに調べることができる。{211}のような高次の回折ではPhoto.1に示されたように干渉縞の数は減り、試料薄膜の湾曲に敏感になるので、解析しようと

する転位の終端部が判定の容易な領域にくるよう薄膜を傾けてやる必要であった。

3. バーガースペクトルの決定

Photo.4はFe-Mn合金で転位のバーガースペクトルをきめた例である。4枚の写真のうち3枚は電子線が[113]軸に平行に近く、それぞれ少し傾いた二波弱ビーム条件で写真を撮ったものである。上述したように回折ベクトルが同一面内にあるときバーガースペクトルを決定できないから試料を傾けて電子線が[101]に平行に近くなったところで($\bar{1}$ 01)弱ビーム暗視野像を撮り、前者の写真3枚のうちの2枚と連立方程式をたてた。

Photo.4	g	n	$g \cdot b = n$
(a)	($\bar{1}$ 21)	2	$-b_x - 2b_y + b_z = 2$
(c)	($\bar{1}$ $\bar{1}$ 0)	0	$b_x - b_y = 0$
(d)	($\bar{1}$ 01)	1	$-b_x + b_z = 1$

この3式より $b(b_x, b_y, b_z) = a(-\frac{1}{2}, -\frac{1}{2}, \frac{1}{2})$ すなわち $a/2$ [$\bar{1}\bar{1}1$]転位であることが決定された。写真(c)の場合転位の像はほとんどみえない。上部の2個の凹みの位置を手がかりに、よく見るとわかる程度でしかない。刃状成分が大きい転位の場合は像がみえていることが多い。写真が良好であればあるほどこれは問題となるが干渉縞で判定する方式では問題でない。逆に写真(d)のように弱ビームであるため転位像があまりよくみえないときも干渉縞の中断があるためかなり容易に転位の位置を見付けることができる。問題は(a),(b),(c)にみられる高次回折の干渉縞の重畳であるが、解析に用いる干渉縞が乱されているPhoto.1のような場合をのぞけば判定にはあまり障害とならない。

Photo.4 An example of the Burgers vector determination. Three micrographs (a), (b) and (c) are taken with the electron beam nearly parallel to [113]. An exact determination is made by choosing two of the three micrographs and (d).

V. 考 察

1. 面心・体心立方晶における解析

転位のバーガースペクトルは面心立方結晶の $a/2\langle 110 \rangle$ 、体心立方結晶の $a/2\langle 111 \rangle$ に限定されない。Hirth 転位⁽⁸⁾、 $a\langle 100 \rangle$ その他 Shockley, Frank などの部分転位の存在がこれまで報告されている。このうち部分転位に関しては一般に対をなしてその間隔が大きくないし、その間に積層欠陥の干渉縞が生ずるので容易に見分けがつく。弱ビーム条件でみると干渉縞が転位の両側で連続にならないことがある。n が整数とかぎらないからである。完全転位として問題とされるのは $a\langle 100 \rangle$ であるが、これも面心・体心立方結晶ともにサブ粒界転位網目のような特殊な場合をのぞき殆ど存在しないことが Al 合金⁽⁸⁾や鉄合金⁽³⁾で報告されている。従ってバーガースペクトルを体心立方結晶では $a/2\langle 111 \rangle$ 、面心立方晶では $a/2\langle 110 \rangle$ だけと仮定して解析する方法も有意義である。

Table 2 に例示されたように体心立方晶では $\{211\}$ 回折で干渉縞が中断しない場合と 2 本中断する場合とがそれぞれ $1/4$ の確率で存在し、両者あわせると半分の転位につきそのタイプを判別することができる。2 本中断する場合はその符号もわかる。残りの転位も、 $\{200\}$ 、 $\{110\}$ 、 $\{211\}$ のどれか 1 つを回折条件として選んで弱ビーム像を撮れば判別することができる。転位密度がたかくて試料薄膜を大角度に傾斜させると個々の転位の見分けができなくなるときには $[012]$ 、 $[113]$ 、 $[011]$ 、 $[111]$ のように $\{211\}$ と、もうひとつの低次回折とが交叉する方向に電子線が平行になるよう試料を斜けて弱ビーム写真対を撮影すればよい。

面心立方結晶の場合、 $a/2\langle 110 \rangle$ バーガースペクトルは 6 種類もあるので判定はもうすこし手間がかかる。Table 1 に示されたように、回折ベクトルを $\{111\}$ 、 $\{200\}$ 、 $\{220\}$ の 3 種類に限定するとき試料を殆ど傾けずにバーガースペクトルを判定できるのは入射電子線が $[111]$ に平行に近い場合に限られる。ほかに回折面の重なる $[001]$ 、 $[011]$ 、 $[112]$ はいずれも上述の 3 種類の回折だけではバーガースペクトルを判定できない。 $\{220\}$ 回折は干渉縞をあ

まり沢山は生じないので、むしろ $\{200\}$ $\{111\}$ の 2 種類に限って試料薄膜を $[001]$ から $[112]$ 、あるいは $[001]$ から $[011]$ へ傾けて 3 個の回折ベクトル、前者なら (200) 、 (020) 、 $(11\bar{1})$ 、後者なら (020) 、 $(11\bar{1})$ 、 $(1\bar{1}1)$ 弱ビーム暗視野像を撮影し厳密にバーガースペクトルを決定してしまうほうが望ましい。Hirth 転位のような他種類の転位があったとしても測定されてしまう。

VI. 結 論

以上、弱ビーム等厚干渉縞が転位の終端部で途切れてみえる現象を利用して転位のバーガースペクトルを決定する方法を Al-4.4%Mg 合金と Fe-0.75%Mn 合金の薄膜に対し試みた。この結果、超高压電子顕微鏡は体心立方晶の $\{211\}$ 、面心立方晶の $\{220\}$ など比較的高次の回折に対しても十分ひろい視野領域に対して干渉縞を生成させ、容易に、かつ厳密に転位のバーガースペクトルが決定できることが示された。従来の標準的手法である像消失法⁽²⁾や計算像との比較による方法⁽⁵⁾のもつ数多くの欠点を克服しているので、今後は、これらにかかわってバーガースペクトル決定の標準的手法として採用できると結論された。

文 献

- (1) W. Bollmann : *Phil. Mag.*, **13**(1966), 935.
- (2) P. B. Hirsch, A. Howie, R. B. Nicholson, D. W. Pashley and M. J. Whelan : *Electron Microscopy of Thin Crystals*, Butterworths, London, (1965), 176.
- (3) M. H. Lorretto and L. K. France : *Phil. Mag.*, **19**(1969), 141.
- (4) A. K. Head, P. Humble, L. M. Clarebrough, A. J. Morton and C. T. Forwood : *Computed Electron Micrographs and Defect Identification*, North Holland, Amsterdam, (1973).
- (5) Y. Ishida, M. Mori and F. Iida : *Acta Met.*, **25**(1977), 815.
- (6) H. Ishida, N. Miyamoto and K. Kohra : *J. Appl. Cryst.*, **9**(1976), 240.
- (7) F. W. Schapink : *Phys. Status Solidi*, (a), **29**(1975), 623.
- (8) H. M. Miekko-Oja and V. K. Lindroos : *Surface Science*, **31**(1972), 422.