水素チャージした Fe-Ni 合金の内部摩擦

関 博 司* 浅 野 滋**

J. Japan Inst. Metals, Vol. 48, No. 7 (1984), pp. 694-699

Internal Friction in Hydrogen-Charged Fe-Ni Alloys

Hiroshi Seki* and Shigeru Asano**

Internal friction was measured at about 500 Hz from 160 K to 370 K in FCC Fe-Ni alloys subjected to electrolytic hydrogen charging. A relaxation peak of internal friction caused by hydrogen was found at 260 K in an Fe-54.0%Ni alloy and at 240 K in an Fe-72.8%Ni alloy, together with two small sub-peaks around 225 K and 265 K. The main hydrogen peak was always larger in the Fe-54.0%Ni alloy than in the Fe-72.8%Ni alloy. Their heights increased with the current density of electrolytic hydrogen charging and decreased with the hydrogen outgassing during repeated measurements. The activation energy of the hydrogen peak was estimated by the peak-shift method to be $E=43.2$ kJ/mol in the Fe-54.0%Ni alloy and $E=42.3$ kJ/mol in the Fe-72.8%Ni alloy. These values of the activation energy are comparable to recent data on hydrogen diffusion in the corresponding Fe-Ni alloys. Plastic deformation did not change the height and the shape of the hydrogen peak but affected considerably the higher-temperature sub-peak. Therefore, the hydrogen peak is independent of the presence of dislocations and might be a Snoek-type relaxation of dissolved hydrogen atoms, presumably being caused by the stress-induced ordering of hydrogen atom-pairs or clusters in the FCC lattice of Fe-Ni alloys. On the other hand, the higher-temperature sub-peak is a kind of the hydrogen cold work peak and might be caused by dislocation motion with hydrogen atmosphere.

(Received March 29, 1984)

Keywords : internal friction, hydrogen, iron-nickel alloys, Snoek peak, hydrogen diffusion, plastic deformation

I. ま え が き

金属中の水素は、侵入型不純物原子としては最小の格子欠陥である。一般に格子欠陥は金属材料の諸性質を著しく変化させるが、水素の場合は水素脆性の現象が知られている。格子欠陥の挙動を調べるための手法はさまざまであり、そのうちのひとつに内部摩擦法がある。内部摩擦の研究によって今までに金属中の水素に関して有益な情報が少なからずもたらされてきた。

金属中に侵入型不純物原子が存在することによって内部摩擦ピークが観測されることがある。BCC 金属の場合には一般に、侵入型不純物原子が異方性固溶歪をもつため、スネークピークと呼ばれる内部摩擦ピークが観測される。しかし今のところ、水素に関してはスネークピークが確認されていない。それに対し FCC 金属の場合には、侵入型不純物原子が単独に存在しても固溶歪は等方性であるため、BCC 金属のようなスネークピークは期待されない。しかし実際には、多くの FCC 金属で類似のスネーク型ピークが

報告されている⁽¹⁾⁻⁽⁸⁾。とくに水素に関しても例外ではなく、オーステナイト系ステンレス鋼においてスネーク型緩和とピークが観測されている⁽⁹⁾⁻⁽¹¹⁾。

オーステナイト系ステンレス鋼の場合の内部摩擦ピークは、固溶水素によるスネーク型緩和現象として特徴づけられ、水素原子対の応力誘起配向運動に起因するものではないかと考えられている⁽¹⁰⁾⁻⁽¹²⁾。この内部摩擦ピークに関しては、塑性変形によって導入される格子欠陥の影響を受けないとされている⁽¹²⁾⁽¹³⁾。一方、これと類似の現象が FCC の Fe-Ni 2 元合金においても見出された⁽¹⁴⁾⁽¹⁵⁾。この場合の内部摩擦ピークも、オーステナイト系ステンレス鋼の場合と同様にスネーク型緩和とピークとみなせるものである⁽¹⁵⁾。詳細な特性や水素以外の格子欠陥の影響については明らかにされていない。

そこで本研究では、Fe-54.0%Ni 合金および Fe-72.8%Ni 合金に対して、水素チャージを施して内部摩擦を測定し、とくに水素濃度に対する変化や時効挙動を詳細に調べた。また、水素以外の格子欠陥の影響を明らかにするため

* 名古屋工業大学大学院生 (Graduate Student, Nagoya Institute of Technology, Nagoya)

** 名古屋工業大学金属工学科 (Department of Metallurgical Engineering, Nagoya Institute of Technology, Nagoya)

に、焼鈍材とともに塑性変形材についても同様の測定を行なって、水素による内部摩擦ピークにおける転位の役割を検討した。

II. 実験方法

実験に用いた材料は、純度 99.9% の電解鉄と純度 99.95% の電解ニッケルを真空溶解して作製した 2 種類の Fe-Ni 2 元合金であり、その組成は Fe-54.0%Ni 合金 (52.8at% Ni) および Fe-72.8%Ni 合金 (71.8at%Ni) である。試料は 80 mm × 10 mm × 1 mm に成形し、真空中 1323 K で 1.8 ks の溶体化処理を行なった後、氷水中へ急冷した。このような試料作製条件のもとでは、マルテンサイト相や規則格子相 (FeNi₃) の生成をさけることができ、試料は FCC 単相状態となる。表面酸化物をエメリー研磨によって除去し、さらに試料表面を約 0.1 mm 以上化学研磨してから測定に用いた。

試料への水素チャージは陰極電解法により行なった。電解液としては 1.3 mol/m³ の As₂O₃ を含む 500 mol/m³ の硫酸水溶液を用い、試料をカソード、白金電極をアノードとして、液温約 290 K、電解時間 72 ks で定電流電解を行なった。電流密度は 500 A/m² を標準としたが、固溶水素濃度の影響を調べるために 5 A/m², 50 A/m² の条件でも測定を行なった。

このような水素チャージ条件のもとでは、試料内部まで固溶水素が均一に分布するにはいたらず、試料表面層にのみ高濃度の水素が存在する状態となっている⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾。そのため、大きな電流密度の場合には、試料表面層に水素化物が形成されることがある。しかし、このような水素化物は、純ニッケルにくらべて Fe-Ni 合金ではきわめて不安定であって、水素チャージの終了後には速やかに分解してしまう⁽¹⁶⁾。したがって、室温以上にわたる内部摩擦測定において時効挙動を追跡することにより、水素化物の効果を消去することは可能である。なお、本研究においても小さな電流密度の場合 (5 A/m²) には、X 線回折で観測するかぎりは水素化物の形成が認められなかった。試料表面層における水素濃度は本研究では実測されていないが、佐賀と宮田⁽¹⁶⁾の水銀置換法の結果によれば、室温における拡散性水素の濃度は電流密度 500 A/m² の場合は 30 at% 程度と考えられる。

また、塑性変形の影響を調べるために、水素チャージ前に引張歪を与えた試料についても測定を行なった。この場合は長さ約 110 mm の試料を引張試験機によって約 9% の引張変形をした後、両端を切断して一様変形部分の 80 mm を測定に用いた。

内部摩擦の測定は約 500 Hz の自由端横振動で自由減衰法により行なった。水素チャージ後の試料を室温で約 20 分以内に装置へ取りつけ、真空排気して冷却した後に、昇温速度 0.017 K/s により 160 K~370 K の温度範囲で測定を行なった。また、活性化パラメーターを評価するため

に、試料の寸法を調整して 200 Hz~1500 Hz の範囲で振動数を変化させた。なお、内部摩擦は試料の最大歪振幅を約 2×10^{-7} として無磁場中で測定したものである。

III. 実験結果

1. Fe-54.0%Ni 合金の場合

まずはじめに水素濃度依存性をみるために、電流密度を大幅に変化させて水素チャージした場合の測定結果を Fig.1 に示す。水素チャージ前には内部摩擦ピークはまったくみられなかったが、水素チャージ後は約 500 Hz の振動数で、つねにはば 260 K の温度位置に 1 個の内部摩擦ピークが観測された。この図から明かなように、この内部摩擦ピークの高さは電流密度に強く依存しており、水素濃度とともに増加することがわかった。ピークの位置は電流密度によらずほぼ一定とみなせるが、電流密度が極めて低い場合にはやや高温側にずれるようであった。なお、以下においてはいずれの測定結果も、電流密度 500 A/m²、チャージ時間 72 ks の条件で水素チャージを施したものである。

Fe-Ni 合金中の水素は、室温以上の温度領域では時間経過とともに試料の外へ散逸していく⁽¹⁶⁾。そこで、370 K までの昇温測定の過程をくり返すことによって、この内部摩擦ピークの時効挙動を調べた結果を Fig.2 に示す。1 回目の測定結果は前図の 500 A/m² のピークと同じものであるが、2 回目の測定ではピーク高さが約 1/2 で急速に減衰し、それ以後は極めてゆるやかに減衰した。なお、以下の測定結果はすべて、3 回目と 4 回目の測定の間で約 1 週間の室温時効を行なったものである。ピーク位置については、水素チャージ直後は約 260 K の温度であったが、2 回目の測定ではやや高温側にずれて約 265 K の温度となり、それ以後は 4 回目の測定まではほぼ 265 K のまま不変だった。このような時効挙動から考えると、水素チャージ後にみられる内部摩擦ピークは、急速に減衰する主ピーク (260 K) と時効後も残存する副ピーク (265 K) とから構成されているようである。また 225 K 付近にも、遅い減衰過程

Fig.1 Current density dependence of the hydrogen-induced internal friction peak in the hydrogen-charged Fe-54.0%Ni alloy.

Fig.2 Repeated measurements of internal friction in the annealed Fe-54.0%Ni alloy charged with hydrogen at 500 A/m² for 72 ks.

を示す小さな副ピークがみられる。370 K までの測定中に急速に減衰するのは主ピークの方である。これは固溶水素の拡散散逸過程に対応するものと考えられる。そこで以下においては、固溶水素に直接的に関係づけられる主ピークを水素ピークと呼ぶことにする。固溶水素濃度が高い場合には、2 個の副ピークは水素ピークにおおひ隠されてしまう。この観点から Fig.1 の電流密度依存性をみると、内部摩擦ピークが 5 A/m² のときにやや高温側にずれていたのは、固溶水素濃度が低くて水素ピークが十分に発達していなかったために、265 K 付近の副ピークが姿を現わしていたものと考えられ、同時に 225 K 付近の副ピークもわずかに形跡を示している。

そこで、これらの内部摩擦ピークと他の格子欠陥との関係を調べるために、塑性変形材に水素チャージを施して測定を行なった。Fig.3 は、約 9% の引張歪を与えた場合とその後に水素チャージを施した場合の測定結果である。塑性変形のみ状態では加工ピークのようなものは明瞭にはみられなかった。水素チャージを施すことによって内部摩擦ピークが現われたが、ピークの位置および高さは焼鈍状態 (Fig.2) の水素ピークとほぼ同じであった。また、くり返し測定中の時効挙動もほぼ同様であって、2 回目の測定までは急速に減衰し、それ以後は極めてゆるやかに減衰するものであった。つまり水素ピークに関するかぎり塑性変形の影響はほとんど受けないものと考えられる。しかしながら、水素ピークより高温側においては内部摩擦が焼鈍状態にくらべやや高く、これは高温側の副ピークが塑性変形の影響を受けたことを示している。

次に、水素ピークの活性化パラメーターを評価し、実測されるピークの形状を検討した。Fig.4 は、いわゆるアレニウスプロットであって、試料の共振振動数 f の変化にともなうピーク温度 T_p の変化を調べたものである。図にみるように、測定値 (図中の○印) は直線上に並び、このピークがアレニウスの関係式 $f = f_0 \exp(-E/RT_p)$ で記述される緩和型内部摩擦であることがわかった。活性化パラメー

Fig.3 Repeated measurements of internal friction in the deformed Fe-54.0%Ni alloy charged with hydrogen at 500 A/m² for 72 ks.

Fig.4 Arrhenius plot of the peak temperature against the vibrational frequency.

ターとして、活性化エネルギー E および振動数因子 f_0 を求めたところ

$$E = 43.2 \text{ kJ/mol}, \quad f_0 = 3.0 \times 10^{11} \text{ s}^{-1}$$

という値を得た。また、この緩和ピークを単緩和理論曲線 (Debye curve) と比較したところ、やや広がった形状をしており、緩和時間の対数規格分布における広がりのパラメーター⁽¹⁷⁾は $\beta = 1 \sim 2$ であって、ピークの広がりも高温側よりも低温側の方がいくらか大きかった。また参考のために、高温側の副ピークについてのアレニウスプロットも Fig.4 (図中の●印) に示されている。この場合の活性化パラメーターとしては $E = 57.0 \text{ kJ/mol}$, $f_0 = 7.3 \times 10^{13} \text{ s}^{-1}$ という値が得られた。

2. Fe-72.8%Ni 合金の場合

Fig.5 は、焼鈍状態の試料およびそれに水素チャージを施した場合の測定結果である。水素チャージ条件は Fe-54.0%Ni 合金の場合と同一であって、電流密度は 500 A/m²、チャージ時間は 72 ks とした。水素チャージ前には内部摩擦にピークはみられなかったが、水素チャージ後には約 240 K の温度に内部摩擦ピークが観測された。図からわかるように、この場合の水素ピークは Fe-54.0%Ni 合金

Fig.5 Repeated measurements of internal friction in the annealed Fe-72.8%Ni alloy charged with hydrogen at 500 A/m² for 72 ks.

Fig.6 Repeated measurements of internal friction in the deformed Fe-72.8%Ni alloy charged with hydrogen at 500 A/m² for 72 ks.

の場合にくらべてやや低温側に位置しており、その高さは小さかった。水素ピークはくり返し測定による時効過程で減衰し、やはり高温側の副ピークが姿を現わしたが、その位置は Fe-54.0%Ni 合金の場合ほど明瞭ではなかった。

Fig.6 は、塑性変形の影響を調べるために約 9% の引張変形を施した試料に水素チャージしたものである。水素チャージ直後には Fe-54.0%Ni 合金の場合とは異なって、水素ピークと副ピークとが分裂して観測された。この場合、水素ピークが見かけ上 10 K ほど高温側に観測されたのは、副ピークが相対的に大きいためであり、副ピークの成分を差し引けば焼鈍状態と同じく 240 K 付近に位置することがわかった。くり返し測定による時効過程で水素ピークは急速に減衰したが、副ピークはゆるやかに減衰していった。したがって、水素ピークはやはり塑性変形の影響をあまり受けないものと判断できるが、高温側の副ピークは塑性変形により大きく変化した。この事実から、高温側の副ピークは水素だけでなく、転位の寄与も含むものと考えられる。

振動数の変化にともなうピーク温度の変化を調べた結

果、Fig.4 (図中の□印) に示されているように、Fe-72.8%Ni 合金についても水素ピークはアレニウスの関係式が成りたつものであった。活性化パラメーターとしては

$$E = 42.3 \text{ kJ/mol}, \quad f_0 = 6.9 \times 10^{11} \text{ s}^{-1}$$

が得られた。この場合も単緩和理論曲線よりやや広がっており、 β 値はほぼ 3 であった。

IV. 考 察

水素を吸収した Fe-Ni 合金についての内部摩擦を用いた研究は今のところ少ないようである。Carrard らは水素吸収した Fe-24.2%Ni-0.41%C 合金の内部摩擦をねじり振子法によって測定し、150 K に水素による内部摩擦ピークを見出した。Carrard らによれば、この内部摩擦ピークは BCC マルテンサイト中での水素と転位の相互作用によるものとされている⁽¹⁸⁾。また、Tanaka らは Ni-H 系合金の内部摩擦を測定した。Tanaka らによれば、塑性変形した場合のみ水素による内部摩擦ピークが観測され、この場合の内部摩擦ピークは水素と転位の相互作用による冷間加工ピークとされている⁽¹⁹⁾。

それに対して以前に報告したように、われわれは水素吸収した FCC の Fe-Ni 合金の内部摩擦を横振動法によって測定し、水素に起因する内部摩擦ピークを 240 K~260 K の温度領域に見出した⁽¹⁴⁾⁽¹⁵⁾。本研究の結果によれば、この内部摩擦ピークは現象的には次のような特徴を有することがわかった。

(1) 振動数が一定であるかぎりにはほぼ一定の温度に水素ピークが現われ、水素濃度とピーク高さは密接な関係にある。

(2) 水素ピークは典型的な緩和ピークであるが、高ニッケル組成の合金の方が低温側に現われ、その高さが小さい。

(3) 水素ピークは、焼鈍状態であろうと塑性変形状態であろうとほぼ同一温度に現われ、塑性変形の影響をあまり受けない。

(4) 副ピークは塑性変形の影響を受け、時効による減衰が著しく遅い。

われわれの知るかぎりでは、本研究の水素ピークおよび副ピークは Fe-Ni-H 系合金において今までに報告されていなかった種類の内部摩擦ピークである。Fig.4 には、本研究の結果とともに Carrard らの見出した内部摩擦ピークも示されている。Carrard らの内部摩擦ピークは、本研究で用いた横振動法では 200 K 付近に観測されるはずであるが、本研究ではそれに対応する内部摩擦ピークは観測されなかった。したがって、本研究の水素ピークは Carrard らとは異なった新しい緩和現象をとらえたものと考えられる。

そこで、水素ピークの成因について考えてみることにする。本研究では水素チャージは陰極電解法を用いているが、固溶水素の効果をとらえるために、できるかぎり表面

損傷の生成されない条件を設定した。Fig. 3, Fig. 6 に示したように、水素ピークは塑性変形の影響はあまり受けないので、転位とは直接的に関係づけられるものではなく、固溶水素のみに起因するものと考えられる。Fig. 1 は、水素ピークの緩和強度が固溶水素濃度と直接的に関係づけられることを示している。

一方、前報⁽¹⁵⁾で検討したように、水素ピークが固溶水素のみに起因することは水素拡散のデータと対比することによっても明らかになる。Fe-Ni 系合金については、マルテンサイト変態や規則格子形成の可能性があって、信頼性の高い水素拡散のデータを得ることが困難とされている⁽²⁰⁾。ところが最近になって、Yamanishi ら⁽²¹⁾は Fe-48.6%Ni 合金に対する水素拡散のデータとして $E_D=36.4$ kJ/mol, $D_0=37.6 \times 10^{-8}$ m²/s を報告している (E_D は水素拡散の活性化エネルギー、 D_0 は水素拡散の前指数因子)。それに対し、Fe-54.0%Ni 合金における水素ピークの活性化エネルギーは 43.2 kJ/mol であって、水素拡散の活性化エネルギーにかなり近いものである。このことは、本研究の水素ピークが固溶水素の拡散挙動をとらえたものであり、固溶水素によるスネーク型緩和に起因することを示唆する。さらに、水素ピークがスネーク型緩和ピークであると仮定すれば、水素ピークの f_0 値は D_0 への換算が可能となるが⁽¹¹⁾、Fe-54.0%Ni 合金および Fe-72.8%Ni 合金に対する換算値 D_0 は Yamanishi らの値とオーダー的に一致をみるものであった⁽¹⁵⁾。

このように内部摩擦ピークが固溶水素の拡散挙動に起因することは、オーステナイト系ステンレス鋼の場合⁽¹⁰⁾⁻⁽¹²⁾と同様である。オーステナイト系ステンレス鋼と本研究の Fe-Ni 合金とは合金組成は大いに異なるが、構造はどちらも水素を固溶する FCC 結晶である。一般に、FCC 結晶中に侵入型不純物原子が単独に存在しても、BCC 結晶の場合とは違って固溶歪に異方性がないためスネーク効果は期待できない。したがって、FCC 結晶でスネーク型緩和現象があるとすれば、固溶原子の複合体にその原因を求めなければならない⁽²²⁾⁽²³⁾。固溶原子の複合体の可能性としては、置換型原子と侵入型原子の複合体あるいは侵入型原子同士複合体の 2 種類が考えられる。このうち前者の可能性は本研究の高濃度組成の Fe-Ni 合金の場合は除外できる。前にも述べたように、本研究の場合は特に表面層に約 30 at% という高濃度の水素が存在することから⁽¹⁶⁾、後者の可能性が考えられる。実際、本研究の横振動方式の測定は、試料表面層の歪が最大となる条件であるため、特に表面層の水素を敏感に検出することが可能である。したがって、侵入型原子である水素原子同士の複合体の存在を仮定することによって、本研究の水素ピークを解釈することは合理的である。実測される水素ピークが半緩和理論曲線にくらべやや広がっていることから、水素原子同士の複合体としては単純な 1 種類の原子対ではなく、原子対の距離ま

たは結合の強さに分布のある原子対か、あるいはクラスターが考えられる。

副ピークについては今のところ詳細はわからないが、時効中の減衰の遅さから何らかの格子欠陥にトラップされた水素が関与していると考えられる。特に高温側の副ピークは、塑性変形によって転位密度が高くなるとピークの形状が変化することから、転位の関与も考えられる。したがって、この副ピークは水素によって誘起された冷間加工ピークの一種であろう。このような現象はオーステナイト系ステンレス鋼の場合にもみられ⁽¹²⁾、今のところわれわれは水素雰囲気をとまなう転位の運動によるものと考えている。一方、低温側の副ピークについては、本研究の条件では明確なデータが得られていないので、その機構の推測は現状では不可能である。

V. ま と め

Fe-54.0%Ni 合金および Fe-72.8%Ni 合金に対して、約 500 Hz の横振動法により内部摩擦の温度依存性を測定したところ、固溶水素に起因した新しい緩和ピークが観測された。ピーク温度は、Fe-54.0%Ni 合金では約 260 K であり、Fe-72.8%Ni 合金では約 240 K であった。ピーク高さは、水素チャージの電流密度とともに増加し、時効による水素散逸とともに減少した。この水素ピークは焼鈍状態でも塑性変形状態でも現われ、塑性変形の影響をあまり受けなかった。ピークシフト法により求めた活性化パラメーターは、Fe-54.0%Ni 合金に対しては $E=43.2$ kJ/mol, $f_0=3.0 \times 10^{11}$ s⁻¹ であり、Fe-72.8%Ni 合金に対しては $E=42.3$ kJ/mol, $f_0=6.9 \times 10^{11}$ s⁻¹ であった。この活性化パラメーターは水素の拡散データに対応するものであって、水素ピークの機構が固溶水素の拡散過程と密接に関係するものと考えられる。したがって水素ピークは、水素の原子対あるいはクラスターに起因したスネーク型緩和ピークではないかと推測される。

また、小さな副ピークが 225 K および 265 K 付近に観測されたが、このうち高温側の副ピークは、水素雰囲気をとまなう転位の運動による冷間加工ピークと考えられる。

文 献

- (1) T.S.Kê and C.T.Tsien : *Scientia Sinica*, **5** (1956), 625.
- (2) S.Diamond and C.Wert : *Trans. Met.Soc.AIME*, **239** (1967), 705.
- (3) J.M.Papazian and L.Himmel : *J.Met.*, **16** (1964), 79.
- (4) R.R.Arons, J.Bouman, M.Wijzenbeek, P.T.A.Klaase, C.Tuyn, R.Lefterink and G.De Vries : *Acta Met.*, **15** (1967), 144.
- (5) T.L.Wu and C.M. Wang : *Scientia Sinica*, **7** (1958), 1029.
- (6) M.G.Ulitschny and R.Gibala : *Met. Trans.*, **4** (1973), 497.
- (7) V.D.Verner : *Phys.Met.Metall.*, **14** (1962), No.6, 70.
- (8) V.D.Verner : *Soviet Phys. Solid State*, **7** (1966), 1874.

-
- (9) 浅野 滋, 後藤益弘, 大塚陸郎: 日本金属学会誌, **39**(1975), 1318.
- (10) 浅野 滋, 角田隆太郎, 大塚陸郎: 日本金属学会誌, **41**(1977), 338.
- (11) S.Asano, M.Shibata and R.Tsunoda: Scripta Met., **14**(1980), 377.
- (12) S.Asano and K.Oshima: Trans. JIM, **23**(1982), 530.
- (13) N.Igata, H.B.Chen and K.Miyahara: Scripta Met., **16**(1982), 169.
- (14) 関 博司, 浅野 滋: 名古屋工業大学学報, **34**(1982), 341.
- (15) S.Asano and H.Seki: Scripta Met., **18**(1984), 117.
- (16) 佐賀二郎, 宮田節男: 日本金属学会誌, **40**(1976), 1098.
- (17) A.S.Nowick and B.S.Berry: *Anelastic Relaxation in Crystalline Solids*, Academic Press, (1972), 94.
- (18) M.Carrard, C.Prioul, J.Plusquellec and P.Azou: J.de Phys., Supplément, **42**(1981), C5-187.
- (19) K.Tanaka, H.Ryonai and M.Yamada: J.Appl. Phys., **52**(1981), 3992.
- (20) R.Dus and M.Smialowski: Acta Met., **15**(1967), 1611.
- (21) Y.Yamanishi, T.Tanabe and S.Imoto: Trans. JIM, **24**(1983), 49.
- (22) R.de Batist: *Internal Friction of Structural Defects in Crystalline Solids*, North-Holland Pub. Co., (1972), 162.
- (23) A.S.Nowick and B.S.Berry: *Anelastic Relaxation in Crystalline Solids*, Academic Press, (1972), 284.
-