UDC 621.785.616.011

鋼の焼入性予測

金 沢 正 午*

Estimation of Hardenability of Steels

Shogo KANAZAWA

1. 結 言

材料研究委員会は、鉄鋼メーカーに共通する日常的な問題を共同してその解決にあたることを目的に、昭和 46 年に発足した。初回は「鋼の焼もどし脆性」に関する問題を取り上げて共同研究を行い、昭和 50 年に終了した。次いで「鋼の焼入性予測」について共同研究を行って来たが、本報告はその研究結果の概要を述べたものである（詳細報告は鉄鋼協会から別途発刊される）。

鋼の焼入性については Grossmann の基本式が広く用いられて来ている。しかし、実際の鋼に対する適合度は必ずしもよくない。この原因としては、焼入性倍数を得るために用いられた従来のデータの多くが不純物や前処理条件が明確でないこと、Grossmann の式が合金元素間の相互作用を無視していること、などが考えられる。

そこで当委員会は、とくにこれらの点に留意して鋼の焼入性予測法の見直しを行った。委員会の構成は次のとおりである。

材料研究委員会	委員長	金沢正午	(新日本製鉄)
	幹事長	鈴木信一	(新日本製鉄)
	幹事	鎌田晃郎	(川崎製鉄)
	〃	山田 真	(日本鋼管)
	〃	大山高司	(鉄鋼協会)

委員	井上正文	(三菱製鋼)
〃	上原紀興	(大同特殊鋼)
〃	大谷泰夫	(住友金属工業)
〃	沢田 進	(日本製鋼所)
〃	高田 寿	(神戸製鋼所)
〃	松田昭一	(新日本製鉄)

2. 実験方法

Table 1 に示す成分系の試料、265 チャージを各社分担して溶製し、それぞれの試験片の条件をできるだけ同じにするために、主原料である電解鉄の銘柄は 1 種類とし、供試材の製造も Fig. 1 のごとく統一した。これら供試材について主としてジョミニ試験より焼入性をし、Grossmann 法による予測性を検討するとともに、いくつかの方法で重回帰分析し、これらの結果を比較検討した。

3. 従来法による検討（住友金属工業）

理想臨界直径 (D_I) の推定には、Grossmann 型 ($D_I = D_0 \Pi f_i$) の計算を行った。ここで D_0 は C 含有量とオーステナイト粒度で決定される。 f_i は焼入性倍数で i は Si, Mn, Ni, Cr, Mo に対応する。AISI (1946)¹⁾ の表を用いた場合の計算値と実測値の比較を Fig. 2~4 に

Table 1. Alloy series used and their range of alloy addition investigated.

Numbers of alloying element	Range of alloy addition					
	C	Si	Mn	Ni	Cr	Mo
Binary alloy	0.2/0.6	—	—	—	—	—
Ternary alloy	0.2/0.6	0/1.5	0/2	0/10	0/10	0/2
Quaternary alloy	0.2/0.6	0/1.5	0/2	—	—	0/2
Quinary alloy	0.2/0.6	0/1.5	0/2	0/5	0/2	0/2

Impurities : B≤0.0004, P<0.003, S<0.005

昭和 55 年 5 月 16 日受付 (Received May 16, 1980)

* 本会材料研究委員会委員長
新日本製鉄(株)製品技術研究所 (Products R & D Laboratories, Nippon Steel Corp., 5-10-1 Fuchinobe Sagamihara 229)

Fig. 2. Comparison of observed hardenability with calculated hardenability. (Fe-C and Fe-C-i alloys)

示す。この計算に用いた D_0 と f_i の値は、後述の実験値と比較すると、 D_0 は小さく、 f_i が大きいので、合金元素の少ない単純系では、実験値が計算値より大きい。合金元素が増加すれば D_I は 30~100 mm 近傍で比較

Fig. 3. Comparison of observed hardenability with calculated hardenability. (Fe-C-i-j alloys)

Fig. 4. Comparison of observed hardenability with calculated hardenability. (Fe-C-i-j-k alloys)

的良好的な推定値が得られるが、低炭素系の方が大きい。これらの計算に用いた D_0 、 f_i が中、高炭素低合金鋼の実験に基づいて得られた数値であるので当然と言えるかもしれない。Grossmann 型の推定式を用いる限り、 D_0 と f_i の組み合わせにより^{1)~3)}、ある程度の推定は可能であるが、適用成分が限られ、単純系、合金系のいずれかで、実験値とのずれを生じる。他に実験結果から得られた問題点として、構成元素数が少ない場合の D_I は D_0 が主な因子であり、Fig. 5 に示すように単純系で得られた f_i は、多元系より求めた f_i より小さいこと、 D_I のオーステナイト粒度依存性は成分系により異なることが判明した。これは 50% マルテンサイトの残余の組織如何に大きく依存しない。以上のことから、 D_I の推定には Grassmann 型の式では種々問題があり、少な

Fig. 5. Multiplying factor derived from various alloys.

くとも、合金元素間の相互作用を考慮した実験式の導入が必要と考えられる。

4. 重回帰分析による解析

前章に述べたように Grossmann 法により焼入性を評価することには問題がある。その最大の原因は Grossmann の式に元素間の相互作用がとり入れられていないことにありと考えられる。そこで重回帰分析により相互作用をとり入れた新しい評価式を導き出すことを試みた。

4.1 重回帰分析(I) (川崎製鉄)

4.1.1 データ解析方針

焼入性の指標としては実用上の見地から 50% マルテンサイト硬さを示すジョミニ距離 (D_J) を選んだ。

解析にあたって、2, 3 元系においてまず合金元素の主効果を求め、その主効果で説明できないところを合金元素間の相互作用として解析する。そして単純系で決定された係数を固定して、5 元系におけるその他の合金元素間の相互作用の解析に進むという手順をとることにした。

まず Fe-C-Mn 系について D_J は因子の効果が乗法的に

$$D_J = A_1 \cdot f_C \cdot f_r \cdot f_{\text{Mn}} \cdot \text{Error} \quad (1)$$

f_C : C による焼入性への寄与 $f_C = e^{a_1[C]}$

f_r : オーステナイト粒度による寄与 $f_r = e^{a_2[7\text{G.S. No.}]}$

f_{Mn} : Mn による寄与 $f_{\text{Mn}} = e^{a_3[\text{Mn}]}$

で表されると仮定して、式の両辺、それぞれ対数を取り計算機により重回帰分析し、 f_C , f_{Mn} , f_r を決定した。また Error 項については

$$\text{Error} = D_J / f_C \cdot f_{\text{Mn}} \cdot f_r = A_1 \cdot f_{\text{C-Mn}} \quad (2)$$

とし、 $f_{\text{C-Mn}}$ は次式で表されるものと仮定して重回帰分析した。

$$\begin{aligned} \log f_{\text{C-Mn}} = & \log b_1[C \cdot \text{Mn}] + \log b_2[C^2 \cdot \text{Mn}] \\ & + \log b_3[C^3 \cdot \text{Mn}] + \log b_4[C \cdot \text{Mn}^2] \\ & + \log b_5[C \cdot \text{Mn}^3] \quad (3) \end{aligned}$$

このようにして得られた f_C , f_{Mn} , f_r , $f_{\text{C-Mn}}$ を用いて Fe-C-Si, Fe-C-Si-Mn 系のデータを同様に解析し、 f_{Si} , $f_{\text{C-Si}}$, $f_{\text{Si-Mn}}$ を得た。

Fe-C-X系, Fe-C-Si-Mn-X系 (X=Ni, Cr, Mo) についても同様に

$$\begin{aligned} D_J / A_1 \cdot f_C \cdot f_r \cdot f_{\text{Si}} \cdot f_{\text{Mn}} \cdot f_{\text{C-Mn}} \cdot f_{\text{C-Si}} \cdot f_{\text{Si-Mn}} \\ = A_4 \cdot f_X \cdot \text{Error} \quad (4) \end{aligned}$$

として f_X を求める。そして Fe-C-X 系, Fe-C-Si-Mn 系, Fe-C-Si-Mn-X 系について

$$\begin{aligned} D_J / A_1 \cdot f_C \cdot f_r \cdot f_{\text{Si}} \cdot f_{\text{Mn}} \cdot f_X \cdot f_{\text{C-Si}} \cdot f_{\text{C-Mn}} \cdot f_{\text{Si-Mn}} \\ = A_5 \cdot f_{\text{C-X}} \cdot f_{\text{Si-X}} \cdot f_{\text{Mn-X}} \quad (5) \end{aligned}$$

Fig. 6. Main effect of alloying elements on hardenability.

Table 2. Results of regression analysis.

Alloy series	Regression equation
Fe-C	$D_I = 4.272 \cdot (\%C)^{0.1078} \cdot d^{0.3240}$ $= 27.688 \cdot (\%C)^{0.1078} \cdot \exp\{-0.1123 \cdot (\text{GSN})\}$
Fe-C-Si	$D_I = D_0 \cdot \exp\{0.5297 \cdot (\%C) (\%Si)\}$
Fe-C-Mn	$D_I = D_0 \cdot \exp\{0.3661 \cdot (\%Mn) + 0.1326 \cdot (\%Mn)^2\}$ $\cdot \exp\{0.1329 \cdot (\%C) (\%Mn)\}$
Fe-C-Ni	$D_I = D_0 \cdot \exp\{1.7697 \cdot (\%Ni) - 0.4665 \cdot (\%Ni)^2\}$ $\cdot \exp\{-0.4740 \cdot (\%C) \cdot (\%Ni)\}$ $\cdot \exp\{-0.0417 \cdot (16.143 - (\text{GSN}))\}$
Fe-C-Cr	$D_I = D_0 \cdot \exp\{1.5350 \cdot (\%Cr) - 0.3952 \cdot (\%Cr)^2\}$ $\cdot \exp\{0.6691 \cdot (\%C) \cdot (\%Cr)\}$ $\cdot \exp\{-0.0291 \cdot (16.643 - (\text{GSN}))\}$
Fe-C-Mo	$D_I = D_0 \cdot \exp\{0.9379 \cdot (\%Mo) - 0.3767 \cdot (\%Mo)^2\}$ $\cdot \exp\{1.3309 \cdot (\%C) \cdot (\%Mo)\}$
Fe-C-Si-Mn	$D_I = D_0 \cdot \exp\{0.2865 \cdot (\%Si) - 0.1615 \cdot (\%Si)^2\}$ $\cdot \exp\{0.6600 \cdot (\%C) \cdot (\%Si)\}$ $\cdot \exp\{0.2301 \cdot (\%Mn) + 0.1756 \cdot (\%Mn)^2\}$ $\cdot \exp\{0.8651 \cdot (\%C) \cdot (\%Mn)\}$ $\cdot \exp\{-0.0148 \cdot (16.643 - (\text{GSN}))\}$
Fe-C-Si-Mn-Ni	$D_I = D_I(\text{Fe-C-Si-Mn}) \cdot \exp\{0.7789 (\%Ni)\}$ $\cdot \exp\{-1.0281 \cdot (\%C) \cdot (\%Ni)\}$ $\cdot \exp\{0.0148 \cdot (16.643 - (\text{GSN}))\}$
Fe-C-Si-Mn-Cr	$D_I = D_I(\text{Fe-C-Si-Mn}) \cdot \exp\{1.0103 \cdot (\%Cr) - 0.2698 \cdot (\%Cr)^2\}$ $\cdot \exp\{1.3082 \cdot (\%C) \cdot (\%Cr)\}$ $\cdot \exp\{0.1325 \cdot (\%Mn) \cdot (\%Cr)\}$ $\cdot \exp\{-0.0148 \cdot (16.143 - (\text{GSN}))\}$
Fe-C-Si-Mn-Mo	$D_I = D_I(\text{Fe-C-Si-Mn}) \cdot \exp\{2.0767 \cdot (\%Mo) - 0.9829 \cdot (\%Mo)^2\}$ $\cdot \exp\{2.0943 \cdot (\%C) \cdot (\%Mo)\}$ $\cdot \exp\{-0.2559 \cdot (\%Si) \cdot (\%Mo)\}$ $\cdot \exp\{0.0202 \cdot (16.643 - (\text{GSN}))\}$

(GSN) : Grain size number

Fig. 8. Effect of grain size on the ideal critical diameter of Fe-0.4%C steel.

が見出された。なお C-Ni の相互作用は負の値をもつことがわかった。

(5) 合金元素間の相互作用

Mn-Cr と Si-Mo の相互作用だけが有意であつたが、その相互作用の大きさは小さい。

(6) 成分系による結晶粒度依存性の差違

一般に、多元系ほど Fe-C 系に比べて小さい粒度依存性を示す傾向がみられた。

4.3 重回帰分析(III) (日本鋼管)

4.3.1 データ解析方針

全実験データの重回帰分析を実施するにあたり、以下に示す方針に従つて解析を行った。

(1) 解析精度の向上

(1)-a 計算機を用いて重回帰分析を行う場合、適当な関数形を選択することが重要である。実験結果の解析から、要因 X の焼入性倍数 f_x が、 $f_x = \exp(a \times \%X)$ の形で表されることが明らかになり、理想臨界直径 D_I 、もしくは 50% マルテンサイト位置 D_J の対数が一次の多項式で表されることとなり、回帰分析が容易にな

Fig. 9. Multiplying factors for several elements in alloy steels containing 0.4% carbon.

Table 3. Results of multiple linear regression.

Regression coefficients		R ²	F-level(%)
A _O	1.34322		
B _G	-0.072819	0.025	0.000
B _C	0.39084	0.022	0.000
B _{Si}	0.39173	0.039	0.000
B _{Mn}	1.0359	0.430	0.000
B _{Ni}	0.60389	0.093	0.000
B _{Cr}	1.2843	0.120	0.000
B _{Mo}	1.9360	0.104	0.000
C _{Mn}	0.091104	0.006	0.000
C _{Ni}	-0.030573	0.012	0.000
C _{Mo}	-0.043268	0.031	0.000
D _{CSi}	0.061628	0.004	0.001
D _{CMn}	0.046986	0.003	0.002
D _{CNi}	-0.10792	0.014	0.000
D _{CCr}	0.076293	0.004	0.000
D _{CMo}	0.060088	0.004	0.001
D _{SiMn}	0.074959	0.005	0.000
D _{MnNi}	0.099795	0.004	0.000
D _{MnCr}	0.10876	0.003	0.002
D _{MnMo}	0.13000	0.006	0.000

N=614

R²_{TOTAL}

0.929

$$\log_e J_{50} = A_0 + B_G(\text{G.S.No.}) + B_C(\log_e \%C) + \sum B_i(\%X_i)$$

$$+ C_{GS}(\text{G.S.No.})^2 + \sum C_i(\%X_i)^2 + \sum D_{ij}(\%X_i)(\%X_j) + \sum E_{iG}(\%X_i)/(\text{G.S.No.})$$

$$^*C = (C - 0.3926)/0.1569 \quad ^*Ni = (Ni - 0.3085)/0.7620$$

$$^*Si = (Si - 0.4107)/0.4608 \quad ^*Cr = (Cr - 0.1480)/0.3801$$

$$^*Mn = (Mn - 0.7742)/0.6672 \quad ^*Mo = (Mo - 0.1581)/0.3217$$

$$\text{G.S.No.} = (\text{G.S.No.} - 4.5619)/2.2112$$

り、かつ精度の向上がはかれる。(Cの項は除外する.)

(I)-b 相互作用項の導入.

合金元素の二次の項, 合金元素間の相互作用項, およびオーステナイト結晶粒度と合金元素間の相互作用項を

Fig. 10. Scatter diagram between observed J_{50} and calculated J_{50} .

重回帰分析に導入する.

(2) 主作用項, および相互作用項の独立性の維持.

主作用項, 相互作用項の独立性を維持するため, 主作用項を除くすべての項で正規化を行い, 項どうしの単相関を低下させる.

(3) 主作用項, および相互作用項の有意性のチェック.

推定式の母集団に対する寄与率は, 推定式の要因数が増加すれば向上する. 各要因の有意性はF検定によりチェックすることとし, $F > 1.0\%$ の項を要因から削除することとする.

(4) 汎用性

広範囲の成分系にわたって利用できる推定式を得たる

めに、全成分系の結果を一括して重回帰分析を行う。

(5) 活用性

実際の熱処理を考慮して、冷却速度との対応が求めやすい D_J を焼入性評価の指標とする。

以上の方針に従って、(8)式に示す式を基本に重回帰分析を行った。

$$\ln D_J = A_0 + B_G(G, S, No) + B_C(\ln\%C) + \sum B_i(\%X_i) + C_{GS}(G, S, No)^2 + \sum C_i(\%X_i)^2 + \sum D_{ij}(\%X_i)(\%X_j) + \sum E_{iG}(\%X_i)/(G, S, No) \dots\dots\dots (8)$$

4.3.2 重回帰分析結果

Table 3 に重回帰分析結果を、Fig. 10 に計算値と実測値の散布図を示す。計算値と実験値の間の相関係数は、0.929 となり、広い成分範囲内でかなり精度よく焼入性を推定できることが確認された。従来法による解析より大きく相関係数が向上しており、新たに導入された相互作用項の有意性が確認された。さらに、50% マルテンサイト位置の組織により、合金元素間の相互作用が若干異なることを確認した。

4.4 成分範囲の限定による重回帰分析精度の向上に関する検討 (神戸製鋼所)

4.4.1 データの解析方針

本材料研究委員会のデータをもとに、化学組成から焼入性を予測する重回帰式を求めるに、この予測精度を向上させる方法として①複数重回帰分析法による相互作用項の導入、②成分範囲の限定、について検討した。

①の方法は、まず Fe-C-X (X=Ni, Cr, Mo, Si, Mn) の3元素から理想臨界直径 (D_I) を成分Xの主効果の式として次式で解析する。

$$D_I = D_0 \cdot \prod e^{a_i X_i} \dots\dots\dots (9)$$

つぎにこの係数を用いて Fe-C-Si-Mn-X (X=Ni, Cr, Mo) の5元素の D_I を計算し、実測値と比較する。この D_I の予測値と実測値の誤差、すなわち3元素から5元素を予測しきれない部分は5元素で入ってくる合金元素間の相互作用と考えて、誤差を相互作用係数 K ($K = D_{obs}/D_{cal}$) とし、もう一度次式で重回帰分析を行う。

$$K = \prod e^{b_{ij} \cdot X_i \cdot X_j} \dots\dots\dots (10)$$

よって

$$D_I = D_0 \cdot \prod e^{a_i X_i} \cdot \prod e^{b_{ij} \cdot X_i \cdot X_j} \dots\dots\dots (11)$$

このようにして相互作用を Cross term ($b_{ij} \cdot X_i \cdot X_j$) の形で導入して予測精度を上げることができる。

②の方法は、①の方法によっても全供試材の広い範囲を一つの統一式で予測するときにはその精度に限界があるため、実用的な観点から、実用鋼レベルに成分を限定し ($Si \leq 0.6$, $Mn \leq 1.6$, $Ni \leq 2.0$, $Cr \leq 1.3$, $Mo \leq 0.6\%$) さらにCを0.2, 0.4, 0.6%に分割して予測式を求めるようとするものである。

Table 4. Regression coefficients of Eq. 10 in Fe-C-Si-Mn-X alloys.

R*	C*	C = 0.2%	C = 0.4%	C = 0.6%
Regression coefficient for main effect (a_i)	Si	-0.065	0.269	0.151
	Mn	0.569	0.494	0.534
	Ni	0.565	0.526	0.381
	Cr	0.597	1.091	1.014
	Mo	0.796	1.448	1.463
Regression coefficient for interaction effect (b_{ij})	Si·Mn	0.436	0.471	0.926
	Si·Ni	-0.352	-0.250	-0.311
	Si·Cr	-0.275	-0.798	0.163
	Si·Mo	-0.033	0.293	1.145
	Mn·Ni	0.253	-0.001	-0.058
	Mn·Cr	0.129	0.249	0.484
	Mn·Mo	0.413	0.625	0.668
Number of data		60	83	54

C* Content R* Regression coefficient

Fig. 11. Comparison of observed values with calculated values of D_I . (Fe-C-Si-Mn-X alloys C=0.6%)

4.4.2 解析結果

3元素については主効果だけを考えた(9)式でもかなり精度のよい予測ができるが、それらを5元素に用いたときには予測精度はきわめて悪い。相互作用項の導入と成分限定により予測精度は向上するが実用的には誤差が大きすぎる。結局C量、0.2~0.6%を統一式で表したときにはその精度には限度がある。C量を低(0.2%)、中(0.4%)、高(0.6%)に分割した式によつてほぼ満足すべき予測精度が得られた。最終的に得られた(11)式重回帰係数 (a_i および b_{ij}) をまとめて Table 4 に、また C=0.6% のときの予測値と実測値の比較を例として Fig. 11 に示す。

以上の検討により、上記①、②の方法を利用した解析法により実用レベルの予測精度が向上することがわかった。

5. 特異現象

本研究中、1, 2の特異な現象がみられたので、それ

らを簡単に紹介する。

5% Ni 鋼の焼入性: 0.2%C, 0.4%C, 0.6%C と C 量の異なる 5% Ni 鋼において, D_J を比較すると, $A_{c3}+50^\circ\text{C}$ のとき, $0.2\%C > 0.6\%C > 0.4\%C$, 980°C のとき, $0.6\%C > 0.2\%C > 0.4\%C$ となり, オーステナイト化温度で多少変化するものの, C 量によつて D_J が逆転する。 $A_{c3}+50^\circ\text{C}$ 焼入れのとき, それぞれの D_J 位置の組織をみると, 0.2%C は $\text{Mr}+\text{B}$ であるのに, 0.6%C は $\text{Mr}+\text{P}$, 0.4%C は $\text{Mr}+\text{P}+\text{F}$ であつて, CCT 図とも一致し, この組織の差が原因と考えられる。

1 ~ 2% Cr 鋼のジョミニー曲線: これらのジョミニー曲線は水冷端からの距離とともに, 硬さが単調減少せず, 途中で山が現れる。この山に相当する部分の組織はいわゆる結節状トルースタイトがみられ, レプリカによる詳細観察の結果, 非常に微細なパーライトであることが明らかになつた。これが硬いために, ジョミニー曲線に山が生じたと考えられる。なお, この現象は Cr 鋼特有のものと思われる。

6. 総 括

本委員会で提案した焼入性予測の重回帰式は, C および C 以外の合金元素間の相互作用の有意性を確認し, それらの項を重回帰式にとり入れた点に, 最も大きな特徴がある。

相互作用の物理的意味については, 現在のところ明らかではないが, 相変態に関する従来理論に準拠して, その可能性を考えてみる。

合金元素の添加による焼入性の変化は, オーステナイトの分解過程, すなわち, フェライトあるいはパーライト変態の核生成と成長とに対して, 合金元素が如何に機能するかに依存する。

まず最初に, フェライト変態について考えてみると, Ni, Mn, Si, Cr, Mo などの合金元素は成長の段階でほとんど分配しないことが知られており, したがつて, これらの元素は, おもに核生成速度を遅らせることによつて, 焼入性に寄与していると考えられる。Ni, Mn 添加による核生成速度の減少は, 熱力学データから推定さ

れる理論値に比較的近い⁵⁾のに対して, フェライト安定化元素であり, かつ, 強力な炭化物形成元素である

Mo, Cr などの場合にはほとんど説明できないような核生成現象を示す。したがつて, 1つの仮説にすぎないが, 従来理論に従わない元素の組み合わせ, あるいは理論に従う元素とそうでない元素の組み合わせのような場合に, 相互作用が現れてくるのではないかと考えられる。

つぎにパーライト変態について考えてみる。この場合に最も重要な点は, Mn, Ni は Fe_3C に濃縮しないのに対して, Si, Cr, Mo は極めて多量に濃縮し, パーライトの成長を遅らせることである。したがつて, フェライト変態あるいはパーライト変態のいずれが支配的であるかによつて, C と C 以外の合金元素の組み合わせによる焼入性の関係に差が生じ, このことが, 相互作用として現われるのではないかと考えられる。

以上, 合金元素の相互作用について考察を加えたが, 相互作用を正しく理解するためには, 粒界偏析, 粒界析出などの観点から, 新しい理論の発展と実験的検証が強く望まれるところである。

なお実用鋼においてはこの研究で検討した以外の合金元素を含むことが多く, ここで得た結果は必ずしも直ちに実用するわけには行かないが, ここで用いた手法を適用することによつて実用鋼の焼入性予測を精度よく行えると考えられる。

文 献

- 1) AISI: "Calculation of the standard end-quench hardenability curve from chemical composition and grain size." AISI (1946)
- 2) I. R. KRAMER, S. SIEGEL, and J. G. BOOKS: Trans. AIME, 167 (1946), p. 670
- 3) G. D. REHRER, C. D. ARMSTRONG: Trans. ASM, 40 (1940), p. 1099
- 4) H. I. AARONSON and H. A. DOMIAN: Trans. AIME, 236 (1966), p. 781
- 5) J. S. KIRKALDY: Met. Trans, 4 (1973), p. 2327
- 6) D. E. COATES: Met. Trans, 4 (1973), p. 2317