

О НАЧАЛЬНОЙ СТАДИИ СПИНОДАЛЬНОГО РАСПАДА

Ю. В. Шикина

*Институт проблем технологии микроэлектроники и особо чистых материалов Российской академии наук
142432, Черноголовка, Московская обл., Россия*

*В. Б. Шикин**

*Институт физики твердого тела Российской академии наук
142432, Черноголовка, Московская обл., Россия*

Поступила в редакцию 13 августа 2004 г.

Предложена последовательная теория спиноподального распада двухкомпонентной системы на ранней стадии развития неустойчивости. Показано, что в этих условиях зависимость структурного фактора $S(q, t)$ от волнового числа содержит два максимума. Основной максимум q_+ подвижен со временем t , двигаясь сперва от q_{saddle} (22) к q_m (12), а затем меняя направление своего движения в момент времени (26). Второй максимум локализован в окрестности $q \approx 0$ с амплитудой, практически не зависящей от времени. Характеристики основного максимума чувствительны к существованию дополнительного нулевого пика. Имеющиеся эксперименты подтверждают предсказания теории.

PACS: 05.70.Fh, 05.70.Ln, 11.30.Pb, 64.70.Kb

Эксперименты по определению деталей структурного фактора $S(q, t)$ спиноподального распада различных систем, если они выполнены в широком интервале волновых чисел q и на ранних стадиях распада, указывают на существование у него двух максимумов с разными свойствами (см. [1–4]). Основной максимум, традиционный для кинетики спиноподального распада, сдвинут относительно начала координат в q -пространстве и меняет свое положение в зависимости от времени t развития неустойчивости. Второй из них, менее заметный, расположен в зоне $q = 0$ и практически не меняется со временем.

Причины существования неподвижного максимума не обсуждаются вообще [1, 2], либо трактуются как инструментальные помехи [3]. Но в последнем случае наличие паразитного пика в области $q = 0$ не должно сказываться на свойствах основного, подвижного максимума $S(q, t)$, что не соответствует действительности.

В настоящей работе предлагается сценарий, связывающий неподвижный нулевой максимум в структуре $S(q, t)$ с влиянием начальных условий, присутствующих в любой задаче о спиноподальном распа-

де. Сохранение индивидуальности такого максимума длительное время на фоне экспоненциально растущего основного пика возможно, во-первых, благодаря их локализации в разных областях на q -оси и, во-вторых, в связи со специальными свойствами времени релаксации. Это время аномально велико в области малых волновых чисел, ибо $\tau^{-1}(q \rightarrow 0) \propto q^2$.

Традиционно теория спиноподального распада определяет свойства $S(q, t)$, стараясь избежать влияния начальных условий (см. [5–10]). При этом основной причиной «запуска» распада в линейной по амплитуде $S(q, t)$ области считаются ланжевенские флуктуационные силы, правильное определение которых для спиноподальной части фазовой диаграммы требует специальных усилий (см. [5–7]). Формально при этом возникает уравнение типа (6) с неоднородным членом $L(t)$, учитывающим наличие сил Ланжевена

$$\frac{\partial S(q)}{\partial t} = 2R(q)S(q) + L(t).$$

Решение этого уравнения без начальных условий

*E-mail: shikin@issp.ac.ru

$$S(q, t) = \exp \left(- \int_0^t 2R dp \right) \times \\ \times \int_0^t ds L(s) \exp \left(+ \int_0^s 2R d\sigma \right)$$

не является «чистой» экспонентой (как, например, (12))

$$S(q, t) = S_0(q) \exp \left(+ \int_0^t 2R dp \right),$$

($S_0(q)$ — начальное распределение), наличие которой считается качественным признаком спиноподальности распада и непременно демонстрируется экспериментаторами [1–4] (см. по этому поводу комментарии к формуле (8)). Эти соображения дополнительно мотивируют внимание к начальным условиям задачи, гарантирующим экспоненциальное поведение линейной части спиноподального распада, и определяют конкретный вид экспериментов, позволяющих в полной мере проследить за их ролью. Речь идет об измерениях [1, 2] с «механическим запуском» спиноподального распада. Жидкий раствор имеет равновесные характеристики, «расположенные» в зоне спиноподальной неустойчивости. Его механическое перемешивание ведет к образованию квазиоднородного, неустойчивого состояния, которое начинает распадаться сразу после остановки миксера. Кинетика этого распада и исследована авторами работ [1, 2]. Ясно, что в данном случае силы Ланжевена, имеющие тепловое происхождение, а значит, и свои специальные масштабы, не должны оказывать заметного влияния на кинетику механически стимулированного распада на его начальной стадии. Детальное описание сценария из [1, 2] приводится ниже.

1. Исходное нелинейное уравнение для фурье-компоненты структурного фактора $S(q, t)$, предложенное в [7], выглядит так:

$$\frac{\partial S(q)}{\partial t} = -2Mq^2 \left\{ \left(Kq^2 + \frac{\partial^2 f}{\partial c_0^2} \right) S(q) + \right. \\ \left. + \frac{1}{2} \frac{\partial^3 f}{\partial c_0^3} S_3(q) + \frac{1}{6} \frac{\partial^4 f}{\partial c_0^4} S_4(q) + \dots \right\}, \quad (1)$$

$$S(q, t) \equiv \int d\mathbf{r} S(\mathbf{r}, t) \exp(i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}), \quad (2)$$

$$S(|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|) \equiv \langle u(\mathbf{r}, t) u(\mathbf{r}_0, t) \rangle, \\ u(\mathbf{r}, t) = c(\mathbf{r}, t) - c_0 \quad (3)$$

(c_0 — средняя концентрация раствора, угловые скобки означают усреднение с функцией распределения

ρ , сохраняющее трансляционную симметрию, M — феноменологическая величина, пропорциональная подвижности расслаивающихся компонент).

Функция $f(c)$ и кинетический коэффициент K возникают в уравнении (1) при его выводе с привлечением энергии Флори–Хаггинса для бинарного симметричного раствора

$$F\{c\} = \int dr \{0.5K(\nabla c)^2 + f(c)\},$$

$$f(c) = \frac{c}{N_1} \ln c + \frac{1-c}{N_2} \ln(1-c) + \chi c(1-c), \quad (4)$$

где χ — параметр взаимодействия, $R_g^2 = a^2 N/6$ — радиус гиратации. В (1) полагается, что $N_1 = N_2 \equiv N$, и $a_1 = a_2 \equiv a$, (a — элементарная длина).

Величины, обозначенные через S_n , суть фурье-компоненты высших корреляционных функций

$$S_n(|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|) \equiv \langle u^{n-1}(\mathbf{r}) u(\mathbf{r}_0) \rangle. \quad (5)$$

Уравнение (1) является первым в иерархии уравнений движения для корреляционных функций разного порядка, возникающих при вычислении более высоких моментов соответствующего «мастер-уравнения» (см. [7]). Если в (1) пренебречь всеми нелинейностями, то возникает линейное уравнение Кана [8] для S :

$$\frac{\partial S(q)}{\partial t} = 2R(q) S(q), \quad (6)$$

где

$$R(q) = -Mq^2 \left(Kq^2 + \frac{\partial^2 f}{\partial c_0^2} \right). \quad (7)$$

Для отрицательных значений $\partial^2 f / \partial c_0^2$, т.е. в окрестности c_0 , отвечающих спиноподальной неустойчивости, фактор $R(q)$ положителен в области $q < q_c$, где

$$q_c = \left(\frac{1}{q} \left| \frac{\partial^2 f}{\partial c_0^2} \right| \right)^{1/2} \quad (8)$$

и проходит через максимум при $q = q_m = q_c / \sqrt{2}$. Флуктуации с q вблизи q_m в этом приближении нарастают во времени экспоненциально, образуя квазипериодическую структуру с периодом $\lambda_m = 2\pi/q_m$. Стандартный анализ данных о рассеянии сводится к построению логарифмической производной по времени от интенсивности рассеяния как функции q^2 . Если возникающая зависимость имеет вид прямой линии, то предположение об экспоненциальном характере развития начальной стадии распада оправдано, и соответствующий график дает информацию о $R(q)/q^2$.

Нелинейности (1) можно упростить с использованием развитого в [7] приближения «среднего поля». В рамках этого формализма все нечетные корреляции зануляются, а четные (ограничимся S_4) компоненты принимают вид

$$S_4(q) \approx 3\langle \delta u^2 \rangle S(q), \quad \langle \delta u^2(t) \rangle = \langle u^2(t) \rangle - \langle u^2(0) \rangle \quad (9)$$

с

$$\langle u^2 \rangle = \frac{1}{(2\pi^3)} \int d\mathbf{q} S(q, t). \quad (10)$$

Результирующее уравнение для $S(q, t)$ (с точностью до S_4) снова (как и (6)) линейно, но константа $\partial^2 f / \partial c_0^2$ в нем модифицирована,

$$\frac{\partial^2 f}{\partial c_0^2} \left(1 + \frac{1}{2} \frac{\partial f^4 / \partial c_0^4}{\partial f^2 / \partial c_0^2} \langle \delta u^2(t) \rangle \right), \quad (11)$$

теперь она зависит от времени.

2. Анализ свойств уравнения (1) удобно начать, используя его линейную форму (6). Принимая во внимание начальные условия и выбирая подходящие безразмерные переменные, получаем

$$S(x, t) = \frac{S_0}{1 + x^2/2x_0^2} \exp \left\{ \frac{t}{\tau} x^2 \left(1 - \frac{x^2}{2x_m^2} \right) \right\}, \quad (12)$$

$$x^2 = q^2 R^2, \quad x_m^2 = q_m^2 R^2, \quad x_0^2 = q_0^2 R^2, \\ q_m^2 = \epsilon / 2R^2, \quad \epsilon = (\chi - \chi_s) / \chi_s.$$

Здесь x — волновое число в безразмерной форме, x_m — положение «линейного» максимума, x_0 — дисперсия в начальных условиях, τ — время релаксации, пропорциональное коэффициенту M из (1). Используемая в (12) форма начальных условий отвечает флуктуациям Орнштейна–Цернике при тепловом способе перехода в спиноподальную область, как это делалось в [3, 4], или механическому приготовлению начального состояния (примерно в форме распределения Лоренца), находясь исходно в зоне спиноподальной неустойчивости [1, 2]. Величины χ и χ_s соответствуют взаимодействию Флори–Хиггинса соответственно в переходной и равновесной областях (предлагаемые расчеты носят достаточно общий характер, но имеющиеся эксперименты, обсуждаемые ниже, взяты из полимерной деятельности), R — типичный размер. Для примера, в случае механического приготовления начального состояния [1]

$$R^{-1} = q_0, \quad (12a)$$

где q_0 — характерное волновое число при механической подготовке начального состояния. Согласно [1] $q_0 \approx 10^{-3}$ нм⁻¹.

Зная $S(x, t)$ (12), нетрудно найти экстремумы этой функции. Их положение на оси x следует из требования

$$dS(x, t)/dx = 0, \quad (13)$$

определяющего три корня. Один из них равен нулю,

$$x_1 = 0. \quad (14)$$

Этот экстремум не чувствителен ко времени.

Два других, x_{\pm} , равны

$$x_{\pm}^2 = (0.5x_m^2 - x_0^2) \pm \left\{ (0.5x_m^2 - x_0^2)^2 - (x_m^2 \tau/t - 2x_0^2 x_m^2) \right\}^{0.5}. \quad (15)$$

Корни (15) имеют смысл при выполнении двух условий:

$$(0.5x_m^2 - x_0^2) > 0, \\ (0.5x_m^2 - x_0^2)^2 > (x_m^2 \tau/t - 2x_0^2 x_m^2). \quad (16)$$

Второе из неравенств (16) определяет минимальное время t_{min} , необходимое для появления сдвинутого максимума на зависимости $S(q, t)$:

$$t \geq t_{min}, \quad \frac{\tau}{t_{min}} = 2x_0^2 + \frac{(x_0^2 - 0.5x_m^2)^2}{x_m^2}. \quad (17)$$

Имеется также время t_{max} , возникающее из требования

$$x_m^2 \tau / t_{max} - 2x_0^2 x_m^2 = 0 \quad (18)$$

и определяющее момент исчезновения нулевого максимума.

Таким образом, функция $S(x, t)$ имеет два максимума, x_1 и x_+ , в интервале $t_{min} \leq t \leq t_{max}$, где t_{min} из (17) и t_{max} из (18). Для $t > t_{max}$ уравнение $dS/dq = 0$ имеет лишь два корня: минимум при $x = 0$ и максимум в точке

$$x_+^2 = (0.5x_m^2 - x_0^2) + \left\{ (0.5x_m^2 - x_0^2)^2 - (x_m^2 \tau/t - 2x_0^2 x_m^2) \right\}^{0.5}. \quad (19)$$

Из равенства (19) нетрудно видеть, что даже в области $t > t_{max}$ имеем $x_+ \neq x_m$. И только в пределе $\tau/t \rightarrow 0$ величина $x_+ \rightarrow x_m$.

Типичные картинки для $S(x, t)$ при разных отношениях между x_m и x_0 представлены на рис. 1.

3. Полученные результаты могут быть использованы для интерпретации данных [1, 2]. В этих экспериментах жидкий симметричный полимерный

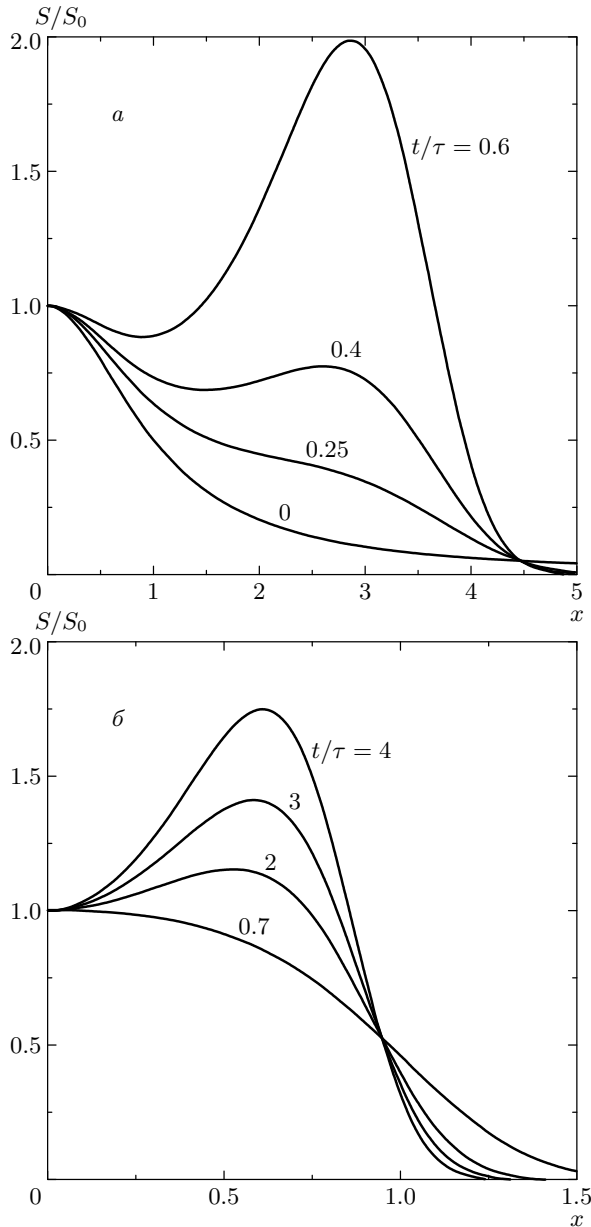


Рис. 1. Два варианта поведения $S(x, t)$: а) ситуация с двумя максимумами, когда выполнено второе из условий (16); $x_0 = 0.7$, $x_m = 3.16$, $t/\tau = 0, 0.25, 0.4, 0.6$, б) альтернативная возможность: $x_0 = 0.7$, $x_m = 0.67$, $t/\tau = 0.7, 2, 3, 4$

раствор находился в неустойчивом состоянии (параметр ϵ из (12) здесь положителен). В начальный момент времени этот раствор тщательно перемешивается миксером до максимально однородного состояния. Затем перемешивание останавливалось и начинался процесс спиноподального расслоения, за развитием которого можно следить по данным о

рассеянии света. Авторы показали, что на ранних стадиях распада основной спиноподальный экстремум $S(q, t)$ растет экспоненциально (см. рис. 4 из [1]). Следовательно, имеется конечный интервал времен $0 \leq t < t_*$, где экспоненциальное представление $S(q, t)$ (12), характерное для линейного приближения в его описании, достаточно разумно.

Заметим теперь, что при $t \rightarrow 0$ экспериментальные данные для $S(q, t)$ имеют максимум в области $q \rightarrow 0$ (см. рис. 4 [1]). Такая зависимость $S(q, 0)$ может быть аппроксимирована распределением $S(x, 0)$ (12) с R из (12а). Результат подгонки дает оценку дисперсии x_0 в $S(x, 0)$ (1)

$$x_0 \approx 3.8. \tag{20}$$

Имеется возможность оценить и x_m :

$$x_m = 9.6, \quad x = q/q_0, \quad q_0 = 10^{-3} \text{ нм}^{-1}. \tag{21}$$

В определениях (20), (21) использована новая нормировка переменных. Вместо соотношений (12), удобных в общих рассуждениях, здесь и ниже введен новый характерный масштаб $q_0 = 10^3 \text{ нм}^{-1}$ в q -пространстве.

С учетом (20), (21) видно, что первое из требований (16) удовлетворяется, т. е.

$$0.5x_m^2 - x_0^2 > 0$$

и, следовательно, имеются условия для структуры $S(q, t)$ с двумя максимумами. Положение q «седловой» точки, отвечающей появлению пика x_+ , есть

$$x_{saddle}^2 = 0.5x_m^2 - x_0^2 = 31.64, \quad x_{saddle} \approx 5.62. \tag{22}$$

Этот результат согласуется с положением седловой точки для данных [1] (см. рис. 4 этой работы).

Используя (17), можно оценить и τ/t_{saddle} :

$$\frac{\tau}{t_{min}} \equiv \frac{\tau}{t_{saddle}} = 2x_0^2 + \frac{(0.5x_m^2 - x_0^2)^2}{x_m^2} = 39.7. \tag{23}$$

В экспериментах [1] это время $\tau = x_m^2/4R_m$, $R_m = = R(q_m) = 0.5q_m^2 D_{eff} \approx 3 \cdot 10^{-4} \text{ с}^{-1}$. Другими словами,

$$\tau \approx 7.9 \cdot 10^4 \text{ с}. \tag{24}$$

Рисунок 3 из работы [1] свидетельствует также, что $t_{saddle} \approx 33$ мин. Отношение τ/t_{saddle} из данных [1] есть

$$\tau/t_{saddle} \approx 39.9. \tag{23a}$$

Очевидно соответствие между (23а) и (23).

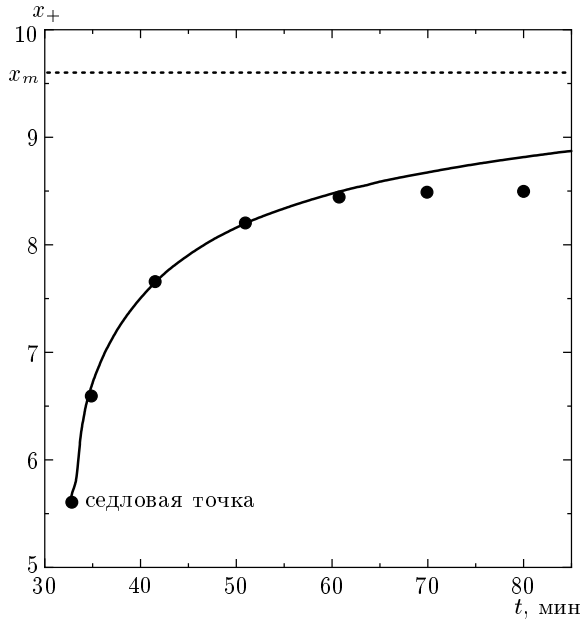


Рис. 2. Траектория $x_+(t)$ (сплошная линия) для данных [1] с подгонкой параметров $S(x, t)$ (12) в начальной стадии распада. Точки отвечают экспериментальному поведению этого максимума. После $t \geq 70$ –80 мин нелинейная коррекция зависимости $x_+(t)$ становится необходимой

Полезно обсудить поведение во времени подвижного максимума x_+ (19). В линейном представлении (19) этот максимум сдвигается от седловой точки x_{saddle} (22) к асимптотическому положению x_m на больших временах $t \rightarrow \infty$. Соответствующее поведение x_+ для данных [1] представлено на рис. 2. Такое поведение объясняет, в частности, парадокс, почему корень x_m , следующий из анализа экспоненциальной части $R(x)/x^2$, где $R(x) \sim x^2(1 - 0.5x^2/x_m^2)$ (в случае [1] этот анализ дает $x_m = 9.6$), не совпадает с корнем x_+ (19) из условия $dS/dx = 0$. Ответ очевиден: корень x_+ чувствителен к обоим величинам: x_m и x_0 .

Рисунок 2 демонстрирует также начало нелинейного поведения в развитии спинодального распада: после отметки $t > 70$ мин экспериментальные точки для $x_+(t)$ «уходят» вниз по отношению к предсказаниям линейной теории (сплошная линия). Соответствующие пояснения приведены ниже.

Общее поведение $S(q, t)$ для ситуации [1] представлено на рис. 3. Параметры S_0, x_0 выбраны, чтобы согласовать данные [1] рис. 3 в точке $t = 2.97$ мин и $t = 22.2$ мин с $q = 4 \text{ нм}^{-1}$. Это дает $S_0 = 66, x_0 = 3.8$. После такой нормализации формула (12)

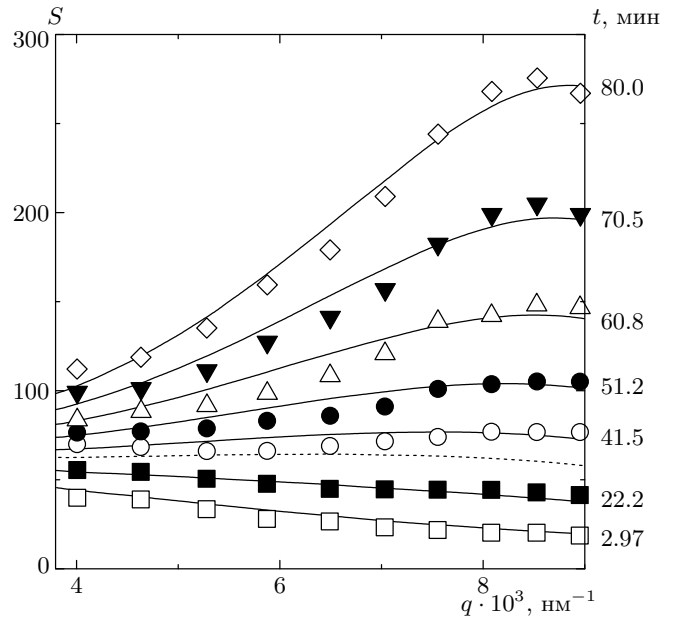


Рис. 3. Структура $S(q, t)$ (12) для различных времен с использованием нормировки этой функции на данные из [1] в момент времени $t = 2.97$ мин и $t = 22.2$ мин для $q = 4 \text{ нм}^{-1}$. Это дает $S_0 = 66, x_0 = 3.8$. После такой нормализации формула (12) для $S(x, t)$ (с $x = q/q_0, q_0$ из (12а)) представлена сплошными линиями для различных времен. Экспериментальные точки [1] обозначены разными символами. Пунктирная линия отвечает положению седловой линии с $t_{saddle} \sim 33$ мин и $x_{saddle} \sim 5.62$

для $S(x, t)$ и R из (12а) соответствует данным [1] с хорошей точностью. К сожалению, данные [1] не захватывают области малых волновых чисел (начальными здесь являются $q \geq 4 \cdot 10^3 \text{ нм}^{-1}$), и, следовательно, отсутствует информация о неподвижном экстремуме $S(q \rightarrow 0, t)$. Тем не менее рис. 3 адекватно иллюстрирует ситуацию в окрестности седловой точки и развитие во времени основного максимума x_+ . Очевидно, что начальные условия играют заметную роль во временной кинетике основного максимума x_+ на ранних стадиях распада.

4. Несколько слов о поворотной точке рис. 2. В этой области начинают конкурировать два процесса: один из них, представленный на рис. 2, смещает подвижный корень $x_+(t)$ вверх, второй — нелинейного происхождения — начинает «двигать» $x_+(t)$ вниз. Конкуренция этих тенденций приводит к возникновению во временной зависимости подвижного корня поворотной точки, ясно обозначенной на рис. 2. Для ее описания воспользуемся решением общего урав-

нения (11). В этом случае имеем вместо (15)

$$\begin{aligned}
 x_+^2(t) &= \frac{1}{2}x_m^2 - x_0^2 - \frac{x_m^2}{2} \frac{\beta}{t} \int_0^t \langle \delta u_0^2(t) \rangle dt + \\
 &+ \left\{ \left(\frac{1}{2}x_m^2 - x_0^2 - \frac{x_m^2}{2} \frac{\beta}{t} \int_0^t \langle \delta u_0^2(t) \rangle dt \right)^2 - \right. \\
 &\left. - \frac{x_m^2}{t} + 2x_0^2 x_m^2 \left(1 - \frac{\beta}{t} \int_0^t \langle \delta u_0^2(t) \rangle dt \right) \right\}^{0.5}, \\
 \langle \delta u_0^2(t) \rangle &= \int_0^{\sqrt{2}x_m} \frac{x^2 dx}{1 + \frac{x^2}{2x_0^2}} \times \\
 &\times \left\{ \exp \left(tx \left(1 - \frac{x^2}{2x_m^2} \right) \right) - 1 \right\}. \quad (25)
 \end{aligned}$$

Здесь $\langle \delta u_0^2(t) \rangle$ вычисляется согласно (9), (10) с линейным выражением (12) для $S(x, t)$ под интегралом.

Следует отметить, что данные [1] для $S(q, t)$ относительны. Из них невозможно извлечь величину S_0 . В этих условиях величина $\langle \delta u_0^2(t) \rangle$ в $x_+(t)$ из (25) остается численно неопределенной. Приходится вводить множитель β , значение которого подгоняется к данным [1] в окрестности поворотной точки t_{turn} . Качество такой подгонки проверяется затем из сравнения теоретического положения x_{turn}^{calcul} и экспериментальных результатов [1] x_{turn}^{exp} (26):

$$\begin{aligned}
 x_0 = 3.8, \quad x_m = 9.6, \quad \frac{t_{turn}}{\tau} = 0.061, \\
 x_{turn}^{exp} = 8.5. \quad (26)
 \end{aligned}$$

Реализация этой программы дает

$$\beta = 0.00013. \quad (27)$$

Соответственно

$$x_{turn}^{calcul} = 8.35. \quad (28)$$

Очевидно, x_{turn}^{calcul} (28) согласуется с экспериментальной величиной x_{turn}^{exp} (26).

Поведение $x_+(t)$ вблизи t_{turn} с параметрами (26), (27) представлено на рис. 4. Точки отвечают данным [1]. Соответствие между расчетом и экспериментом удовлетворительно.

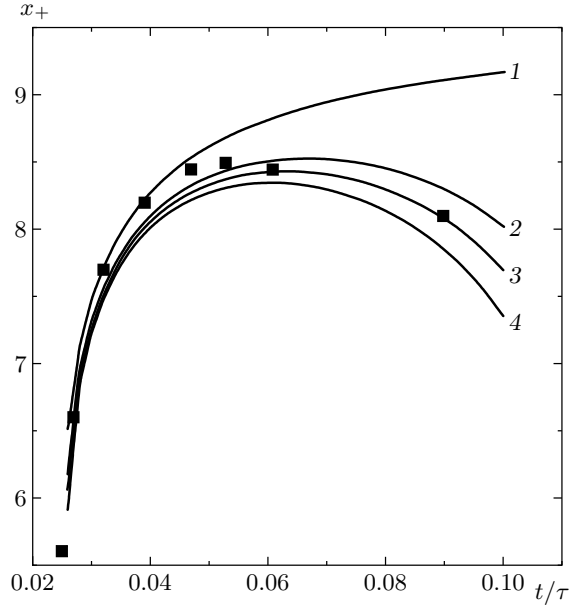


Рис. 4. Временная зависимость $x_+(t)$ (25) для разных параметров β : 1 — $\beta = 0$, 2 — $\beta = 0.0001$, 3 — $\beta = 0.000125$, 4 — $\beta = 0.00015$

Согласно рис. 2, 4, нелинейность задачи в условиях [1] начинает проявляться для времен $t/\tau \geq 0.06$. Эти цифры отражают требование малости нелинейных слагаемых (1) по сравнению с его линейной составляющей.

Подведем итоги. Учет начальных данных вносит заметный вклад в описание деталей кинетики спиноподального распада в ее начальной стадии. Прежде всего, становится качественно понятной двугорбая структура функции $S(x, t)$ и устойчивость экстремума в области нулевых значений волновых чисел (ибо $\tau^{-1}(q \rightarrow 0) \propto q^2$). Анализ данных [1] с учетом начальных условий отвечает также на вопрос, почему q -позиция основного экстремума x_+ линейной трактовки спиноподального распада не совпадает с величиной x_m , следующей из стандартного анализа экспоненциального поведения $S(x, t)$ на этой стадии. Оказывается, речь идет о разных величинах. Положение $x_+(t)$ не совпадает с x_m . В общем случае $x_+(t) < x_m$ и x_+ зависит от времени. Рисунок 2 иллюстрирует разницу между x_m (штриховая линия) и $x_+(t)$ (сплошная линия) для системы из [1]. Интересно также следующее из рис. 2 наличие поворотной точки во временном поведении $x_+(t)$. Детали этого нелинейного эффекта также исследованы в последней части работы (см. рис. 4).

ЛИТЕРАТУРА

1. T. Izumitani and T. Hashimoto, *J. Chem. Phys.* **83**, 3694 (1985).
2. M. Okada and Ch. C. Han, *J. Chem. Phys.* **85**, 5307 (1986).
3. P. Wiltzius, F. S. Bates, and W. R. Hefner, *Phys. Rev. Lett.* **60**, 1538 (1988).
4. F. S. Bates and P. Wiltzius, *J. Chem. Phys.* **91**, 3258 (1989).
5. I. M. Lifshitz and V. V. Slyozov, *J. Phys. Chem. Sol.* **19**, 35 (1961).
6. K. Binder, *J. Chem. Phys.* **79**, 6387 (1983).
7. J. S. Langer, M. Baron, and H. D. Miller, *Phys. Rev. A* **11**, 1417 (1975).
8. J. W. Chan, *Acta Metall.* **9**, 795 (1961); **10**, 179 (1962).
9. H. E. Cook, *Acta Metall.* **18**, 297 (1970).
10. A. I. Olemskoi and I. V. Kopyk, *Usp. Fiz. Nauk* **165**, 1105 (1995).