

# Cu クラスティング過程の LMC シミュレーション

(平成13年11月26日 原稿受付)

機械知能工学専攻 福田 忠生  
機械知能工学科 赤星 保浩  
機械知能工学科 黒島 義人  
機械知能工学科 原田 昭治

## Lattice Monte Carlo Simulation of Copper Clustering Process

by Tadao Fukuta

Yasuhiro Akahoshi

Yoshihito Kuroshima

Shoji Harada

### Abstract

In this study, we simulate nanoscale copper precipitation process based on the vacancy jump model using Lattice Monte Carlo (LMC) method, where an activation energy is calculated from the first neighboring interaction model. We confirmed that status of copper clustering at temperature 300K is different from those of 600K and 900K at the same potential energy decrease, and copper clusters are formed more rapidly at higher temperature. We obtained a fact that process of copper clustering consists of the two phases which are formation phase and coalescence and/or absorption phase.

### 1. 緒 言

原子炉圧力容器の寿命は原子力発電所の寿命を決定づける主因の1つである。この容器の寿命は、使用中に高温下で強い中性子照射を受けることで生じる中性子照射損傷による延性-脆性遷移温度の上昇で決定される。中性子照射損傷とは、例えば、降伏強さおよび引張強さが上昇する照射硬化特性を表すことと関連する。すなわち降伏強さの増加量に比べて、引張強さの増加量は少ないので、その分だけ加工硬化係数が小さくなるとともに、破断伸びが減少する。高温下では若干じん性が低下するだけであるが、この性質は延性-脆性遷移温度にも影響し、室温で脆性域となる可能性がある。周知のように、低合金鋼など体心立方晶の金属材料では、室温から温度が低下するにしたがって、破断強さは比較的ゆるやかに上昇し、一方、降伏強さは急激に大きくなる。このため、室温ではある程度まで塑性変形した後破断、すなわち延性破断するが、低温では降伏後、塑性変形することなく脆性破断する。この延性から脆性への遷移する温度は、通常、材質（化学成分、粒径等）で決定され、室温以下の低温となる。しかしながら前述した照射損傷は、この

延性-脆性遷移温度を上昇させ、室温を越えるまでとなる。原子炉圧力容器材では、このような遷移温度の上昇が寿命を決定する。最近の研究では、TEM (Transmission Electron Microscope), SPM (Scanning Probe Microscope) などの高性能顕微鏡の発達により、ナノレベルでの材料表面の直接観察が可能となっている。このような観察によると中性子損傷の進行に伴い容器の鋼に含まれる Cu 原子がクラスタとして析出していることが判明している。そして、この析出物と転位が相互作用することが硬化の原因の一つである可能性が高いことがわかってきた<sup>(1)</sup>。

$\alpha$ -鉄母材中の Cu 原子の固溶限度は 973K で 0.4wt%, 最高でも 1123K で 1.8wt% と高く、通常では固溶状態であると考えられる<sup>(2)</sup>。そのような、圧力容器材料中に固溶していた Cu 原子が徐々に析出してくるメカニズムは、中性子照射による「原子ジャンプ」が考えられる。

「原子ジャンプ」とは、中性子照射により結晶中の原子が弾き飛ばされると、そこに空孔を生じ、その周辺の原子の位置が不安定な状態となり、原子が他の場所に飛び移っていく現象である。Cu 原子のクラスタはこの原子ジャンプが繰返される過程で次第に Cu 原子同士が結合

することにより形成されるものと考えられており、事実、多くの場合、空孔を介して起こることが知られている<sup>3)</sup>。また、M.L. Jenkins らの実験によると、Cu 原子を 1.5% 含む Fe-Cu 系合金に 568K で 2.5MeV ( $1.4 \times 10^3$  dpa,  $2.0 \times 10^{-9}$  dpa s<sup>-1</sup>) の電子線照射を行った結果、ナノスケールレベルの Cu 析出物が多く形成されることが確認されている<sup>4)</sup>。本研究では、Fe-Cu 系合金における Cu 析出物の析出過程のメカニズムを明らかにすることを目的とする。

原子ジャンプを空孔のジャンプで置き換え、LMC (Lattice Monte Carlo) 法による Cu 析出物の成長過程のシミュレーションモデルの構築し、定量的評価を行った。これらの結果を以下に報告する。

## 2.1 LMC 法

分子シミュレーション法に用いられる手法として、MD 法と MC 法の二つが代表的である。MD 法が分子の運動方程式を連立して解く決定論的方法であるのに対し、MC 法はある確率法則の下に乱数を用いて分子の配置を決定していく確率論的方法である<sup>5)</sup>。

本来の MC 法では、まず系の粒子をランダムに一つ選び出し、その粒子を乱数によって移動させ、その操作を繰り返すという方法がとられるが、本研究では、実際に合金中の原子の移動は多くの場合、空孔を介して起こることが知られていることから、次節で述べるように移動させる粒子を空孔のみに限定した。

## 2.2 解析方法

### 2.2.1 空孔ジャンプモデル<sup>6)</sup>

本章では、簡単のために、原子間ポテンシャルは最近接原子のみにはたらくと仮定し、系全体のポテンシャルエネルギーを次のように定義した。

$$E = N_{aa}e_{aa} + N_{bb}e_{bb} + N_{ab}e_{ab} + N_{av}e_{av} + N_{bv}e_{bv} \quad (1)$$

ここで、a は Fe 原子、b は Cu 原子、v は空孔を表し、 $N_{ij}$  は最近接する原子または空孔の結合の数であり、 $e_{ij}$  は原子間または原子-空孔間にはたらく相互作用のエネルギーである。

一般に、系が遷移するためには、活性化状態と言われるあるエネルギーの高い状態を経由しなければならず、反応は中でも最もエネルギーが低い経路を通して進行する。原子 i がジャンプする時も同様に、原子 i はできるだけポテンシャルエネルギーの低い経路をたどりながら鞍点 (saddle point) でポテンシャルエネルギーの山をこえて別の安定位置へ移る。そこで、原子 i と空孔が入れ替わることによってエネルギー的に影響を受けるのは、原子 i と空孔のそれぞれを中心とする格子のみであるから、こ

の系の熱活性化状態を考え、原子 i が移動する前と原子 i が鞍点にある時のこの系のポテンシャルエネルギーをそれぞれ  $E_i$ ,  $E_s$  とすれば、原子 i の活性化エネルギー  $\Delta E_a$  は、

$$\Delta E_a = E_s - E_i = E_s - \left\{ \sum_{j \in nn(i)} e_{ij} + \sum_{j \in nn(v)} e_{vj} \right\} \quad (2)$$

と書くことができる<sup>4)</sup>。 $nn(i)$  と  $nn(v)$  はそれぞれ原子 i と空孔の最近接原子集合を表す。また、合金中の Cu 濃度は低いため  $E_s$  は一定値と仮定している。

空孔のジャンプは熱活性化過程であり、その単位時間当たりの頻度は次式で与えられる。

$$\Gamma_v = \nu \exp\left(-\frac{\Delta E_a}{k_b T}\right) \quad (3)$$

ここで、 $\nu$  はデバイの振動数、 $k_b$  はボルツマン定数、 $T$  は温度を表す。統計力学によると、粒子 i がエネルギー E 以上のをもつ確率は  $\exp(-E/k_b T)$  に比例する。式(3)は、温度 T の熱浴に接している粒子が、ポテンシャルエネルギーの谷の中で格子の熱振動によってゆらいでいるうちに、ある確率で大きなエネルギーを得てジャンプに成功するという理論によるものである<sup>3)</sup>。つまり、式(3)は、 $\Delta E_a$  が大きいほど、また温度 T が低いほど、ジャンプの起こり得る確率は低いということを表している。空孔のジャンプは最近接原子に向かって起こると仮定し、式(3)から相対頻度を求めることにより空孔がそれぞれの場所に移り得る確率を求めた。

### 2.2.2 メトロポリスの方法<sup>6)(7)</sup>

熱力学の第 2 法則から、ただちに反応が起こるためには、系のエネルギーが減少しなければならない。つまり、

$$\Delta E_{1 \rightarrow 2} = E_2 - E_1 < 0 \quad (4)$$

でなければならない。しかし、式(4)は必要条件なので、シミュレーションにおいては必ずしも満足されない。そこで、 $\Delta E_{1 \rightarrow 2} > 0$  となる場合、遷移確率  $\exp(-\Delta E_{1 \rightarrow 2}/k_b T)$  が乱数  $R$  ( $0 \leq R \leq 1$ ) よりも大きくなければ次のステップに進めないようにした。 $\Delta E_{1 \rightarrow 2} \leq 0$  ならば  $\exp(-\Delta E_a/k_b T) \geq 1$  であるため確率 1 で遷移するが、 $\Delta E_{1 \rightarrow 2} > 0$  ならば  $\exp(-\Delta E_a/k_b T) < 1$  となり容易にはこの状態に移ることができない。この方法はメトロポリスの方法と呼ばれ、MC シミュレーションにおいて広く用いられている。

### 2.2.3 停留時間演算法<sup>8)</sup>

本研究では、物理的な時間スケールを得るために、以下に述べるような実時間 ( $\tau_{mc}$ ) を計算した。

$\Gamma_v$  は単位時間当たりの頻度であるから、その逆数をとれば 1 ステップにかかっている時間を求めることができる。ここで、本シミュレーションでの空孔濃度は 4.0

$\times 10^{-6}$ であるがこの値は実際よりもかなり大きい。つまり、実際よりも空孔が多い状態であるため速く析出するということになり、正しい析出時間を得ることができない。そこで、照射下での時効として  $C_v^0/C_v^{eq}$  で再スケールしなければならない。平衡状態での空孔濃度は空孔形成エネルギーによって与えられるため

$$C_v^{eq} = \exp\left(\frac{-\Delta E_{iv}}{kT}\right) \quad (5)$$

となる。

また、照射を受けない場合の空孔濃度は  $1.0 \times 10^{-14}$  のレベルであるが、炉内においては、数秒で上記の平衡値に達することが知られているため無視してよいと思われる。

この方法は、1回のジャンプにかかる時間、つまり現在の位置に留まっている時間を求める方法であることから、「停留時間演算法」とよばれる。

本論文の結果および考察で述べる時間はすべてこの停留時間演算法から求められる  $t^{mc}$  である。

また、この時間に伴う析出の進行度は、

$$\xi(t) = \frac{C_{Cu}(t=0) - C_{Cu}(t)}{C_{Cu}(t=0) - C_{Cu}(\infty)} \quad (6)$$

で与えられる。ここで、全原子数を  $N$ 、時刻  $t$  においてクラスター化していない Cu 原子の数を  $n_t$  とすると、

$$C_{Cu}(t) = \frac{n_t}{N} \quad (7)$$

である。  $C_{Cu}(\infty)$  は固溶の限界値であり、

$$C_{Cu}(\infty) = \exp\left(\frac{\omega}{k_b T}\right) \quad (8)$$

で与えられる。  $\omega$  は Fe 原子と Cu 原子を入れ替える時の混合エネルギーである。  $t$  が  $\infty$  の時、銅の濃度は  $C_{Cu}(\infty)$  に近付く傾向がある。そのため、  $\xi(t)$  は  $t=0$  のとき 0 で  $t$  が大きくなるにつれて 1 に近付いていくという性質をもっている。本研究では、この値を使って、銅原子の析出の程度を調べた。

## 2.2.4 等価球置換法

解析によって得られた析出物をより詳しく考察するために、本研究では、析出物を体積が等価な球に置き換えることとした。

析出物の体積  $V_{precipitate}$  は、  $n$  個の Cu 原子の合計であるから以下の式で表される。

$$V_{precipitate} = nV_{atom} = n \frac{4}{3} \pi r_{atom}^3 \quad (9)$$

ここで、本研究ではモデルに BCC 構造を採用しているの

で、  $r_{atom}$  は、

$$r_{atom} = \frac{\sqrt{3}}{2} a \quad (10)$$

である。ここで、  $a$  は BCC 構造の格子定数である。よって、式(9)は以下ようになる。

$$V_{precipitate} = n \frac{\sqrt{3}}{2} \pi a^3 \quad (11)$$

よって、析出物の直径  $d_{precipitate}$  は、

$$d_{precipitate} = \sqrt[3]{n} \sqrt{3} a \quad (12)$$

となる。これにより、析出物を形成する Cu 原子の構成数を計測すれば、その析出物の体積と等価な球の直径を知ることが出来る。

## 2.3 解析モデル

本研究では母材を  $\alpha$  鉄とする Fe-Cu 合金系の BCC 構造を考えるにあたり、以下に述べるような単結晶の 3 次元モデルを作成した。今回のシミュレーションでは  $\alpha$ -Fe の完全 BCC 構造を仮定しており、原子間距離は変化させない。そこで、演算効率を向上させる目的で整数座標系を導入し格子定数に 2 を割り当てた。そして、結晶学的方位  $[100]$  方向を  $x$  軸方向として  $X$  個、結晶学的方位  $[010]$  方向を  $y$  軸方向として  $Y$  個、結晶学的方位  $[001]$  方向を  $z$  軸方向として  $Z$  個の原子を順番をつけて並べた単純立方格子を 2 個作成し、一方の 1 番目の位置にある原子を原点にとって、もう一方の座標を  $(1, 1, 1)$  だけずらして重ね合わせることで BCC 構造とした。また、この格子は原子の移動によって変形せず、BCC 構造から構造遷移しないものとしている。このような座標系上での MC 計算を LMC 計算と読んでいく

本シミュレーションでは、  $X$  方向 50 格子、  $Y$  方向 50 格子、  $Z$  方向 50 格子として、合計 250,000 個の原子からなるモデルを使用した。Cu 濃度は M.L. Jenkins らの実験<sup>(8)</sup>と同じ 1.5% とし、Cu 原子の数は 3757 個とした。図 1 にその配置図を示す。

初期配置においては、Cu 原子は BCC 構造の中心原子の位置に均等に配置し、空孔はモデルの中心の位置にある鉄原子と入れ替えることで 1 個となるように配置した。

## 2.4 解析条件

PWR での出口温度が 605K であることを参照して<sup>(8)</sup>、シミュレーションの解析温度は室温である 300K、出口温度 600K、局所的な高温域 900K の 3 つを設定した。そして、空孔ジャンプ 1 回を 1 ステップとし、総ステップ数を 3

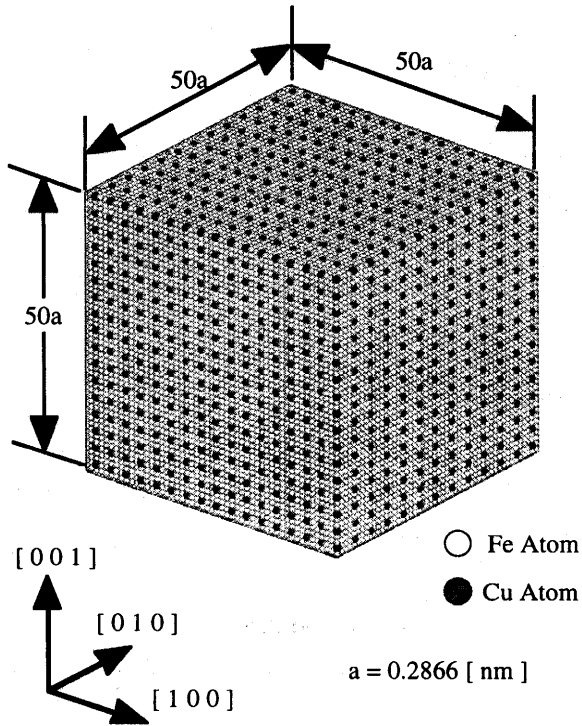


Fig.1 Initial Configuration of Cu Atoms in Fe-Cu System

$\times 10^9$ とした。Table 1に解析条件を、Table 2に解析パラメータを示す。

### 3. 解析結果

Fig. 2には各温度での最終ステップでの析出物の形成状態を式(1)により得られた直径を用いた等価な球に置き換えて示し、Fig. 3にステップ数に伴う系の全ポテンシャルエネルギーの変化を示す。Fig. 3よりステップ数を重ねるごとに全ポテンシャルエネルギーが減少、すなわち、Cuの析出が始まっていることがわかる。また、室温である300Kでは、析出の進行が遅くなっていると考えられる。また、Fig. 2から高温になるにつれて大きな析出物が形成されていることがわかる。

次に、各解析温度におけるCuの析出過程をFig. 4, 6, 8に、それらの半径の分布図をFig. 5, 7, 9に示す。(a)~(d)はそれぞれ系の総エネルギーが $-1.7108 \times 10^{-13}$ J,  $-1.7116 \times 10^{-13}$ J,  $-1.7124 \times 10^{-13}$ J,  $-1.7132 \times 10^{-13}$ J付近であり、考察するにあたって代表的なクラスタを形成しているエネルギーを選んでいる。

### 4. 考 察

Fig. 3から解るように、300Kの場合と600Kおよび900Kの場合では明らかポテンシャルエネルギーの変化の

Table 1 Analysis Conditions

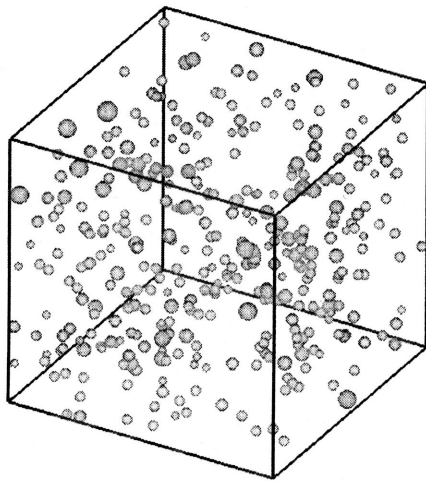
Model	BCC Structure using integer coordinate system		
	Temperature [ K ]	300	600
Number of Atoms	250,000		
Number of Cu Atoms	3,757		
Cu Concentration [ % ]	1.5		
Vacancy Concentration [ % ]	$4.0 \times 10^{-6}$		
Potential Function	F. Soison et al.		
Step Number of Simulation	$3 \times 10^9$		
Boundary Condition	Periodic Boundary Condition		

Table 2 Simulation Parameters

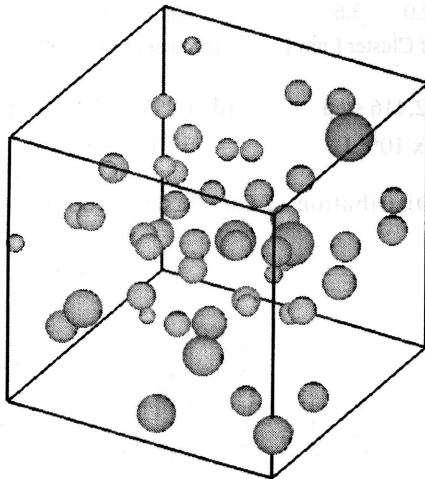
Symbol	Value	Symbol	Value
$e_{FeFe}$ [ eV ]	-1.07	$e_{CuV}$ [ eV ]	-0.28
$e_{CuCu}$ [ eV ]	-1.07	Es [ eV ]	-8.9
$e_{FeCu}$ [ eV ]	-0.98	$\nu$ [ s <sup>-1</sup> ]	$3.65 \times 10^{15}$
$e_{FeV}$ [ eV ]	-0.33	$\omega$ [ eV ]	-0.67
$e_{CuV}$ [ eV ]	-0.28		

仕方が大きく異なっており、300Kではエネルギーの変化が緩やかであると言える。これは、低温の場合、式(3)から求められるジャンプ頻度が低いためであると考えられる。実際、解析温度300Kでは解析全般に渡って析出過程の初期状態と思われる挙動を示しているが、空孔の運動は激しくなく、それに伴い、Cuのクラスタ化が徐々に進行していると考えられる。そのため、Fig. 2の解析終了時でも大きな析出物を形成していない。

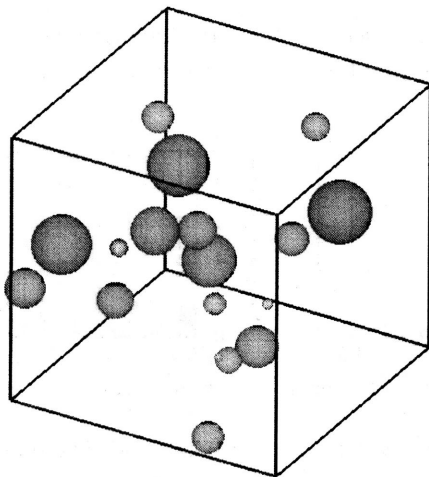
これと比べて、600Kでは $2 \times 10^8$  stepおよび900Kでは $1 \times 10^8$  stepまでは、急激なエネルギーの変化が見られ、その後、変化が緩やかになっている。直径1.6 nm以上のクラスタを析出物の核となりうるクラスタとすると600KではFig. 7(b)、900KではFig. 9(b)のクラスタ分布により確認できるため、それ以前はクラスタを形成し、析出物の核まで成長する過程であり、それ以降は、析出物が徐々に成長していく過程と考えられる。これは、エネルギーの変化において急激な変化から緩やかな変化へと移行している付近である。これに伴いFig. 10ステップ数に伴うCu原子のクラスタ形成率とエネルギーの関係を示す。300Kでは前述したように析出の初期段階と考えら



(a) 300 K



(b) 600 K



(c) 900 K

Fig.2 Cu Clusterer by  $3.0 \times 10^9$  step

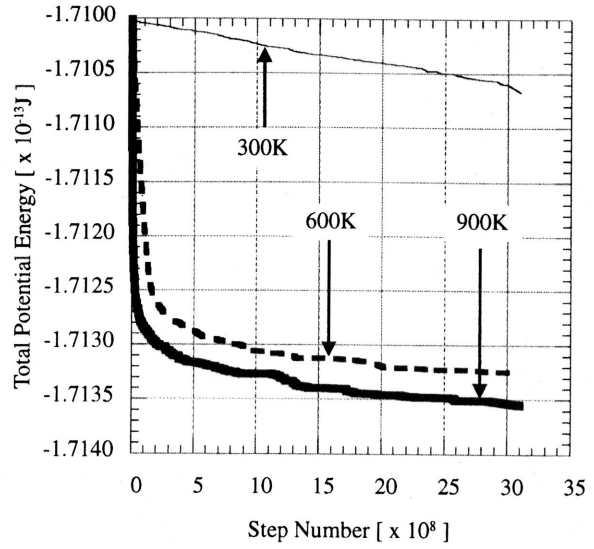
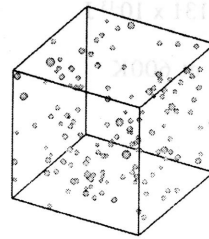
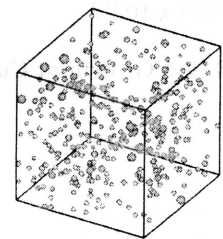


Fig.3 Total Potential Energy - Step Curves

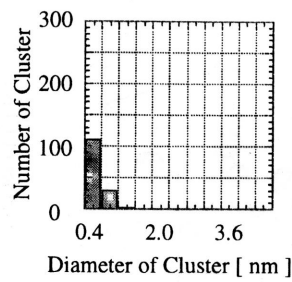


(a) 781,468,961 step  
-1.7102 x 10<sup>-13</sup> J

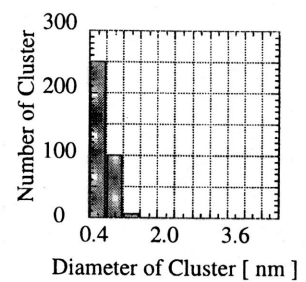


(b) 2,822,320,085 step  
-1.7105 x 10<sup>-13</sup> J

Fig.4 Growth of Cu Cluster at 300K

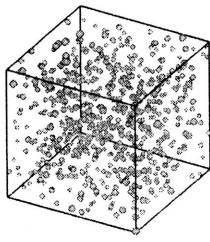


(a) 781,468,961 step  
-1.7102 x 10<sup>-13</sup> J

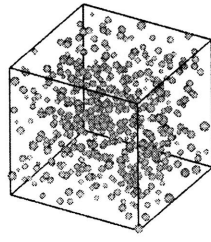


(b) 2,822,320,085 step  
-1.7105 x 10<sup>-13</sup> J

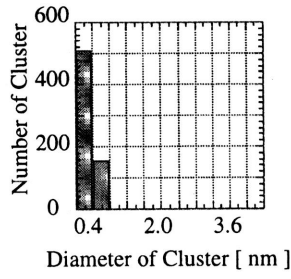
Fig.5 Distribution of Cu Cluster at 300K



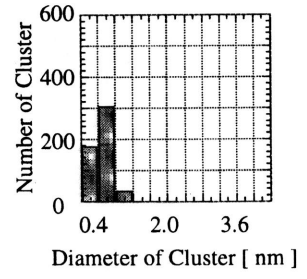
(a) 28,515,733 step  
-1.7107 x 10<sup>-13</sup> J



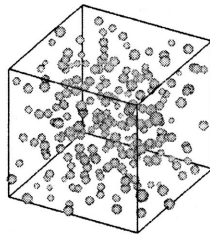
(b) 80,270,255 step  
-1.7116 x 10<sup>-13</sup> J



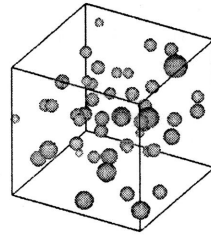
(a) 28,515,733 step  
-1.7107 x 10<sup>-13</sup> J



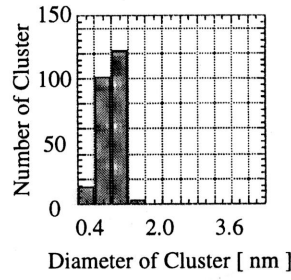
(b) 80,270,255 step  
-1.7116 x 10<sup>-13</sup> J



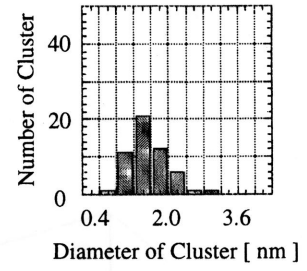
(c) 141,832,416 step  
-1.7123 x 10<sup>-13</sup> J



(d) 1,297,710,476 step  
-1.7131 x 10<sup>-13</sup> J



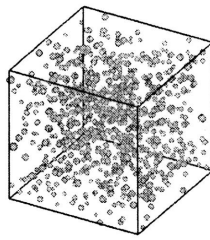
(c) 141,832,416 step  
-1.7123 x 10<sup>-13</sup> J



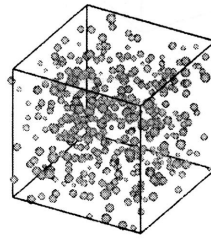
(d) 1,297,710,476 step  
-1.7131 x 10<sup>-13</sup> J

Fig.6 Growth of Cu Cluster at 600K

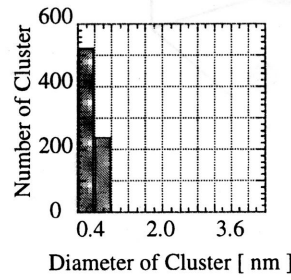
Fig.7 Distribution of Cu Cluster at 600K



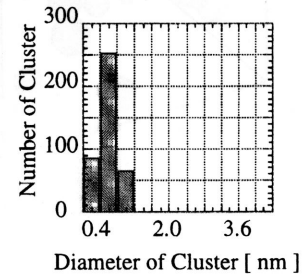
(a) 1,704,253 step  
-1.7108 x 10<sup>-13</sup> J



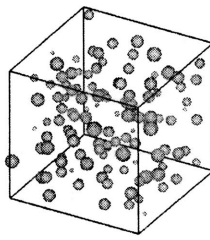
(b) 6,466,350 step  
-1.7118 x 10<sup>-13</sup> J



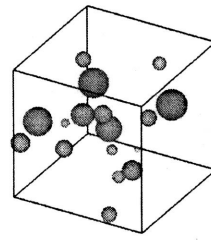
(a) 1,704,253 step  
-1.7108 x 10<sup>-13</sup> J



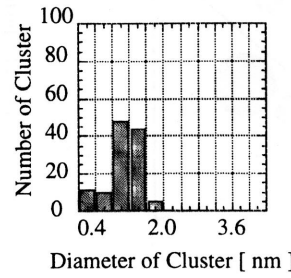
(b) 6,466,350 step  
-1.7118 x 10<sup>-13</sup> J



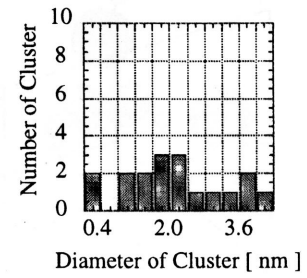
(c) 43,622,719 step  
-1.7126 x 10<sup>-13</sup> J



(d) 2,083,346,966 step  
-1.7134 x 10<sup>-13</sup> J



(c) 43,622,719 step  
-1.7126 x 10<sup>-13</sup> J



(d) 2,083,346,966 step  
-1.7134 x 10<sup>-13</sup> J

Fig.8 Growth of Cu Cluster at 600K

Fig.9 Distribution of Cu Cluster at 600K

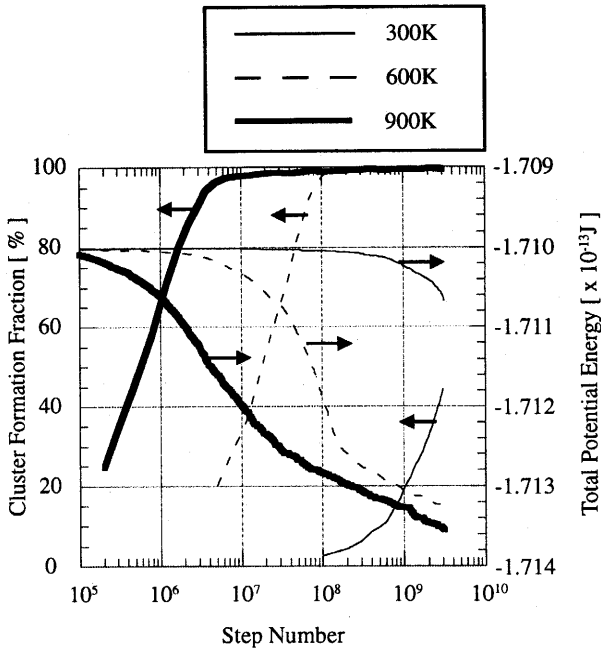


Fig.10 Variation of Cluster Formation Fraction

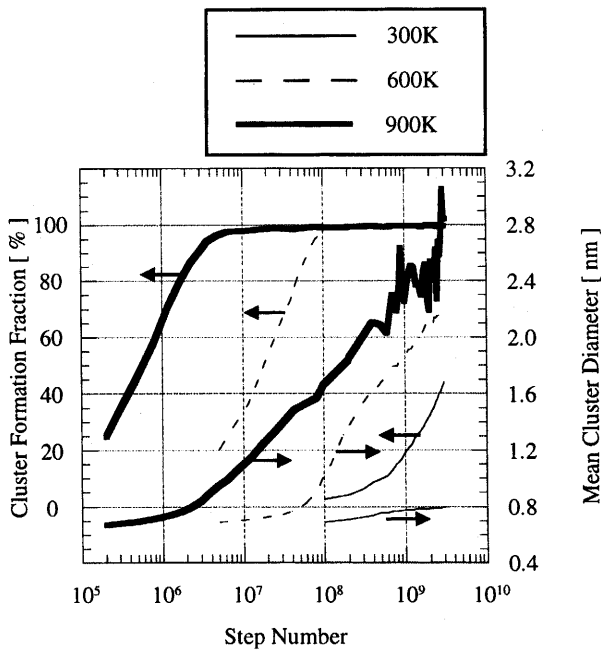


Fig.11 Variation of Mean Cluster Diameter

Table 3 Comparison of Monte Carlo Time

	300K	600K	900K
$t^{mc}$	3114 year ( $6.8 \times 10^{38}$ sec)	26 year ( $8.4 \times 10^{21}$ sec)	1 day ( $5.6 \times 10^{12}$ sec)

れるので考察できないが、600K および 900K において、クラスタ形成率がほぼ 100% となった付近からエネルギーの減少が緩やかになっている。このことから、エネルギーの減少の傾向によってクラスタの成長がおおよそ予測できると言える。

また、クラスタ形成率が 100% となった後もエネルギーが減少していることから、析出物の成長は、1つのクラスタが徐々に成長していくのではなく、多くのクラスタの合体によって析出物が形成され、成長していくと考えられる。そこで、Fig. 11 にステップ数に伴うクラスタの平均直径とクラスタ形成率を示す。この図において 900K の平均直径曲線が  $10^9$  step 付近から振動しているのは、クラスタの絶対数の減少によるものである。これより、形成率がほぼ 100% となった付近からクラスタの平均直径が急激に上昇しているのがわかり、クラスタの合体による成長を裏付けるものと考えられる。

最後に Table 3 に式(5)によって再スケールされた最終ステップの  $t^{mc}$  を示す。これによると、運転温度 600K では最終ステップが約 26 年となっており、圧力容器の設計対応年数 30 年に近いことがわかる。

## 5. 結 言

本研究において、以下の結論を得た。

- (1) LMC 法を用いた Cu 原子のクラスタリング過程を定量的に検討した。
- (2) クラスタ形成率, 平均直径などから考察する Cu クラスタは多数の小さなクラスタが形成され, それらが合体していくことで徐々に成長し, 最終的に大きなクラスタになると考えられる。

## 参考文献

- (1) 石野 葉, “軽水炉圧力容器鋼の照射脆化研究の課題”, (社) 日本原子力学会 「1996 春の年会」(1996), pp.475-476
- (2) G.Salge, R.C.Doole, M.Feller-Knipmeier, “High-Resolution Electron Microscopy Study of Copper Precipitation in Fe-1.5wt%Cu under Electron Irradiation”, J.appl.Phys, Vol.48, (1977), p.1833
- (3) 深井 有, “拡散現象の物理”, (1988), pp.81-127, 朝倉書店
- (4) H.A.Hardouin Duparc, R.C.Doole, M.L.Jenkins and A.Barbu, “High-Resolution Electron Microscopy Study of Copper Precipitation in Fe-1.5wt%Cu under Electron Irradiation”, Philosophical Magazine Letters, Vol.71, No.6 (1995), pp.325-333
- (5) 神山 新一, 佐藤 明, “モンテカルロシミュレーション”, (1997), pp.26-66, 朝倉書店
- (6) 北川 浩, 北村 隆行, 渋谷 陽二, 中谷 彰宏, “初心者のための分子動力学法”, (1997), 養賢堂
- (7) F.Soisson, A.Barbu, and G.Martin, “Monte Carlo Simulations of Copper Precipitation in Dilute Iron-Copper Alloys During Thermal Ageing and under Electron Irradiation”, Acta Material, Vol.44, No.9

- (1996), pp.3798-3800
- (8) 大澤 映二, 片岡 洋右, “分子動力学法とモンテカルロ法”, (1994), 講談社
  - (9) 秋山 守, “原子力熱工学”, (1978), 東京大学出版会
  - (10) 日本機械学会編, “原子・分子モデルを用いる数値シミュレーション”, (1996), コロナ社
  - (11) G.J.Ackland, G.Tichy, V.Vitek and M.W.Finnis, “Simple N-body Potentials for the Noble Metals and Nickel”, *Philosophical Magazine A*, Vol.56, No.6 (1987), pp.735-756
  - (12) P.J.Othen, et al, “Transmission electron microscope investigations the structure of copper precipitates in thermally-aged Fe-Cu and Fe-Cu-Ni”, *Philosophical Magazine Letters*, Vol.64, No.6 (1991), pp.383-391