

# Анализ параметров размытого ориентационного перехода при 250–260 К в кристаллах $C_{60}$

© Г.А. Малыгин

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,  
194021 Санкт-Петербург, Россия

E-mail: malygin.ga@pop.ioffe.rssi.ru

(Поступила в Редакцию 29 января 2001 г.)

С помощью теории размытых фазовых переходов первого рода сделан анализ параметров ориентационно-структурного превращения в кристаллах  $C_{60}$  в области температур 250–260 К на основе анализа температурных зависимостей теплоемкости и скорости неупругой (сегнетоэластической) деформации, наблюдаемых на опыте в области перехода. В результате анализа определены величина элементарного объема превращения при коррелированном движении молекул  $C_{60}$  ( $11-83 \text{ nm}^3$ ) и величина спонтанной сдвиговой деформации решетки  $2.4 \cdot 10^{-2}$  при ее перестройке из простой кубической в гранецентрированную кубическую.

Настоящая работа выполнена в рамках Российской научно-технической программы "Фуллерены и атомные кластеры" (проект № 98065 "Кластер").

В результате ориентационного перехода гранецентрированная кубическая решетка кристаллов  $C_{60}$  превращается при температурах ниже 250–260 К в примитивную кубическую [1,2]. О существовании структурного превращения в  $C_{60}$  в указанном диапазоне температур свидетельствуют характерные пикообразные аномалии на температурных зависимостях теплоемкости [1], внутреннего трения [3,4] и механических свойств [5–7] этих кристаллов. Калориметрические исследования обнаруживают существование в  $C_{60}$  эндотермического пика при температуре 250–260 К [8,9].

Для ориентационных переходов (фазовых переходов второго рода) характерна в целом асимметричная,  $\lambda$ -образная форма пиков на температурных зависимостях их свойств в области фазового превращения. Но часто, в том числе и в кристаллах  $C_{60}$  [6,9], наблюдаются симметричные,  $\Lambda$ -образные формы пиков и разные промежуточные варианты между указанными формами. Колоколообразные пики характерны для размытых фазовых переходов первого рода [10]. Их наблюдают при ориентационных и структурных переходах в диэлектриках [11], сегнетоэлектриках и сегнетоэластиках [12] (например, в ВТСП керамике  $YBa_2Cu_3O_{6+\delta}$  [10,13]) и металлических сплавах с эффектом памяти формы [10]. Имеющиеся данные позволяют заключить, что ориентационно-структурный переход в  $C_{60}$  при 250–260 К является фазовым переходом первого рода [3,14]. Он сопровождается тепловым эффектом [8,9] и достаточно большим, порядка 1%, изменением объема кристалла [14,15].

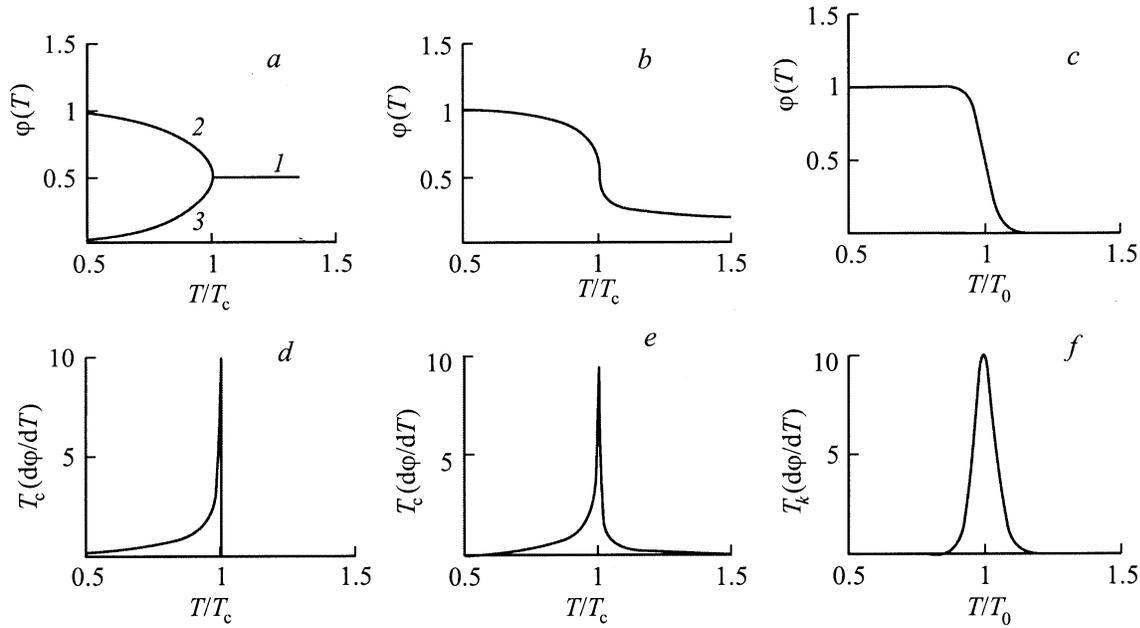
Сейчас имеется две точки зрения на причину возникновения размытых фазовых переходов. Согласно первой из них [16,17], размытие обусловлено влиянием флуктуаций состава или структурных дефектов в кристалле на критическую температуру превращения, в результате чего она приобретает флуктуирующий характер и распределена вблизи средней температуры перехода по некоторому случайному, например, гауссовскому закону [17]. Согласно второй, не столь формальной точке

зрения, причину размытия видят в кооперативном, коррелированном характере перемещения частиц (атомов, молекул) в твердом теле в процессе перехода. Кооперативный характер их перемещения (переориентации) связан с существованием и движением межфазных (двойниковых) границ, характерных для фазовых переходов первого рода. Взаимодействие границ со структурными дефектами в кристалле, ограничивающими подвижность границ, приводит к тому, что для их преодоления требуется дополнительное переохлаждение кристалла, что расширяет температурный диапазон превращения. Он становится чувствительным к концентрации структурных дефектов и приложенным к кристаллу (и межфазным границам) внешним полям (например, механическому, электрическому или магнитному), в результате чего критическая температура перехода смещается в ту или иную сторону. Развитая в [10,18] с учетом этих обстоятельств феноменологическая теория размытых фазовых переходов позволяет количественно описать  $\Lambda$ -образную форму пиков на температурных зависимостях свойств кристалла в области температур фазового перехода и проанализировать его основные параметры.

В настоящей работе эта теория будет использована для анализа параметров структурного превращения в кристаллах  $C_{60}$  на основе анализа температурных зависимостей его механических [6] и калориметрических [9] свойств в области структурного перехода при 250–260 К. Этому вопросу посвящен третий раздел работы. В первых двух разделах приводятся основные соотношения теории размытых переходов, необходимые для этого анализа.

## 1. Размытые фазовые переходы

В рамках термодинамического подхода изменение фазового состояния системы частиц (атомов, молекул) определяется изменением свободной энергии системы



**Рис. 1.** Температурные зависимости относительного объема низкотемпературной фазы  $\varphi$  (a–c) и производной  $d\varphi/dT$  (d–f) при фазовых переходах второго (a, d), первого (c, f) и промежуточного между ними (b, e) родов.

$\Delta F = \Delta U - T\Delta S$ , где  $\Delta U$  — изменение ее внутренней энергии,  $\Delta S$  — изменение энтропии,  $T$  — температура системы. Изменение внутренней энергии состоит из двух частей: изменения собственной энергии частиц и энергии взаимодействия частиц в разных состояниях. В модели самосогласованного поля [19] выражение для свободной энергии перехода имеет вид [10,18]

$$\Delta F(\varphi, T) = \Delta U_{12}\varphi + U_0\varphi(1 - \varphi) + kT \times [\varphi \ln \varphi + (1 - \varphi) \ln(1 - \varphi)], \quad (1)$$

где  $\varphi$  — относительное число частиц в новом фазовом состоянии,  $k$  — постоянная Больцмана. Первое слагаемое в правой части (1) описывает изменение энергии частиц, второе — энергию взаимодействия частиц в разных состояниях, третье — изменение энтропии при переходе. Параметры  $\Delta U_{12}$  и  $U_0$  задают количественный масштаб соответствующих слагаемых в (1).

В случае чисто ориентационных переходов (переходов второго рода) изменения собственной энергии частиц не происходит ( $\Delta U_{12} = 0$ ). Упорядочивание частиц по ориентациям является результатом взаимодействия частиц, а разупорядочивание — результатом действия энтропийного слагаемого. Состояние равновесия определяется условиями

$$\frac{\partial \Delta F}{\partial \varphi} = 0, \quad \frac{\partial^2 \Delta F}{\partial \varphi^2} \geq 0. \quad (2)$$

В результате получаем температурную зависимость для числа ориентационно упорядоченных частиц в неав-

ном виде

$$\frac{T}{T_c} = \frac{2(2\varphi - 1)}{\ln\left(\frac{\varphi}{1-\varphi}\right)}, \quad T_c = \frac{U_0}{2k}. \quad (3)$$

Она показана на рис. 1, a. При температурах выше критической  $T_c$  вследствие теплового движения число частиц разных ориентаций равно друг другу ( $\varphi = 1/2$ ). Это означает, что частицы ориентационно разупорядочены (прямая 1). При температурах ниже критической взаимодействие частиц оказывается достаточным, для того, чтобы вызвать их упорядочивание по ориентациям. Видно, что по мере снижения температуры число таких частиц возрастает (кривая 2), а число неупорядоченных частиц уменьшается (кривая 3).

В случае, когда в (1) доминирует слагаемое, описывающее изменение собственной энергии частиц при переходе,  $|\Delta U_{12}| \gg U_0$ , т.е. при фазовом переходе первого рода, согласно первому условию (2), имеем [10,20]

$$\varphi(T) = \left[ 1 + \exp\left(\frac{\Delta U_{12}}{kT}\right) \right]^{-1}. \quad (4)$$

Изменение энергии частиц при переходе равно  $\Delta U_{12} = \omega \Delta u$ , где  $\omega$  — элементарный объем превращения,  $\Delta u$  — изменение энергии частиц на единицу объема кристалла

$$\Delta u = q \frac{T - T_0}{T_0} - \xi_{ik} \tau_{ik} - \delta_0 P. \quad (5)$$

Здесь  $q$  — теплота превращения,  $\xi_{ik}$  — спонтанные сдвиговые деформации решетки при ее перестройке в менее симметричную форму,  $\delta_0 = \Delta V/V$  — относительное изменение объема кристалла при такой перестройке,

$\tau_{ik}$  и  $P$  — приложенные к кристаллу механическое напряжение и гидростатическое давление,  $T_0$  — критическая (характеристическая) температура превращения в отсутствие внешних полей и дефектов.

В отсутствие внешних воздействий температурная зависимость  $\varphi$ , согласно (4) и (5), имеет вид

$$\varphi(T) = \left[ 1 + \exp\left(B \frac{T - T_0}{T}\right) \right]^{-1}, \quad B = \frac{\omega q}{kT_0}. \quad (6)$$

На рис. 1, *c* показана эта зависимость при значении параметра  $B = 40$ . Как видно, по сравнению с чисто ориентационным переходом (рис. 1, *a*) она имеет другие характеристики и содержание. Соотношение (6) описывает переход системы частиц из одного упорядоченного состояния в другое упорядоченное состояние (например, превращение одного типа решетки в другой) в отличие от фазового перехода второго рода, когда при критической температуре происходит переход из неупорядоченного в упорядоченное состояние.

В случае фазового перехода первого рода критическая температура, как видно из рис. 1, *c*, не столь четко определена, как в случае чисто ориентационного превращения, поскольку переход размыт, т. е. происходит в интервале температур [10]

$$\Delta T = \frac{4T_0}{B} = 4 \frac{kT_0^2}{\omega q}, \quad (7)$$

величина которого зависит от величины элементарного объема превращения  $\omega$  и теплоты превращения  $q$ . Вместо четко определенной критической температуры имеем характеристическую температуру  $T_0$ , при которой, как видно из (6),  $\varphi = 1/2$ . В случае действия внешних полей (сил) характеристическая температура, соответствующая условию  $\Delta u = 0$ ,  $\varphi = 1/2$ , согласно (5), равна

$$T_k = T_0 + \frac{T_0}{q} (\varepsilon_{ik} \tau_{ik} + \delta_0 P). \quad (8)$$

Очевидно, что (8) является обобщенным соотношением Клаузиуса–Клапейрона для фазовых переходов первого рода.

Из (4), (5) и (8) следует, что при  $\Delta u > 0$  ( $T > T_k$ ) в кристалле преобладает высокотемпературная фаза, а при  $\Delta u < 0$  ( $T < T_k$ ) — низкотемпературная. Соотношения (4) и (6) описывают, таким образом, фазовое равновесие в кристалле. Необходимо заметить, что условие термодинамической устойчивости этого равновесия (второе из условий (2)) не выполняется для фазовых состояний (4) и (6). Вместо этого имеет место механическое (кинетическое) равновесие между фазами вследствие взаимодействия межфазных границ со структурными дефектами в кристалле [10,20].

Очевидно, что между чистыми переходами первого и второго рода должны существовать промежуточные формы переходов. Если предположить, что в (1) следует учитывать одновременно и первое, и второе слагаемое,

получим следующую температурную зависимость относительной доли низкотемпературной фазы (в неявной форме):

$$\frac{T}{T_c} = \frac{B(T_k/T_c) + 2(2\varphi - 1)}{B + \ln\left(\frac{\varphi}{1-\varphi}\right)}. \quad (9)$$

Из нее при  $B = 0$  следует соотношение (3), а при  $T_c = 0$  — соотношения (4) и (6). На рис. 1, *b* показана зависимость (9) при  $B = 2$ ,  $T_k/T_c = 1.05$ . Как видно, по сравнению с чисто ориентационным переходом (рис. 1, *a*) зависимость  $\varphi(T)$  приобретает высокотемпературный ”хвост” при  $T > T_c$ .

## 2. Влияние фазовых переходов на свойства кристалла

На опыте при изучении свойств кристаллов часто определяются дифференциальные характеристики, такие, например, как теплоемкость  $c = dQ/dT$  [1,8,9] или скорость пластической деформации  $\dot{\varepsilon} = d\varepsilon/dt$  [6], где  $Q$  — тепловая энергия кристалла,  $\varepsilon$  — его неупругая деформация,  $t$  — время. Фазовый переход оказывает обычно сильное влияние на эти характеристики, в результате чего они приобретают специфический пикообразный характер.

Например, в случае фазового перехода первого рода вследствие выделения или поглощения тепла  $\Delta Q(T) = q\varphi(T)$  изменение теплоемкости кристалла и скорость выделения или поглощения тепла будут соответственно равны

$$\Delta c(T) = q \frac{d\varphi}{dT}, \quad \frac{d\Delta Q}{dt} = q \dot{T} \frac{d\varphi}{dT}, \quad (10)$$

где  $\dot{T} = \text{const}$  — скорость изменения температуры. Аналогично в случае фазового перехода в условиях действия, например одноосного напряжения  $\sigma = \tau/m$  неупругая (псевдоупругая) деформация кристалла (вследствие возникновения в нем при ориентационной перестройке решетки деформаций  $\xi_{ik} = \xi$ ) будет равна  $\varepsilon(T) = \varepsilon_m \varphi(T)$ , где  $\varepsilon_m = m\xi$ ,  $m$  — ориентационный фактор, зависящий от ориентации межфазных границ относительно оси растяжения или сжатия кристалла. Следовательно, скорость изменения неупругой деформации кристалла с температурой и скорость ее изменения со временем при  $\dot{T} = \text{const}$  будут соответственно равны

$$\frac{d\varepsilon}{dT} = \varepsilon_m \frac{d\varphi}{dT}, \quad \dot{\varepsilon}(T) = \varepsilon_m \dot{T} \frac{d\varphi}{dT}. \quad (11)$$

Таким образом, характер температурных зависимостей  $\Delta c(T)$  и  $\dot{\varepsilon}(T)$  определяется производной  $d\varphi/dT$ . Вычисление ее в общем случае уравнения (1) в соответствии с условием  $\partial\Delta F/\partial\varphi = 0$  дает следующее

выражение:

$$\frac{d\varphi}{dT} = - \frac{(B + \ln \frac{\varphi}{1-\varphi})^2 \varphi(1-\varphi)}{BT_k + T_c [2(2\varphi - 1) - 4\varphi(1-\varphi)(B + \ln \frac{\varphi}{1-\varphi})]} \quad (12a)$$

Из этого следует, что при фазовом переходе второго рода, т.е. при  $B = 0$ , эта зависимость имеет вид

$$\frac{d\varphi}{dT} = - \frac{(\ln \frac{\varphi}{1-\varphi})^2 \varphi(1-\varphi)}{T_c [2(2\varphi - 1) - 4\varphi(1-\varphi) \ln \frac{\varphi}{1-\varphi}]}, \quad (12b)$$

а при фазовом переходе первого рода ( $T_c = 0$ ) получаем

$$\begin{aligned} \frac{d\varphi}{dT} &= - \frac{B}{T_k} \left(1 + B^{-1} \ln \frac{\varphi}{1-\varphi}\right)^2 \varphi(1-\varphi) \\ &\approx - \frac{B}{T_k} \varphi(1-\varphi). \end{aligned} \quad (12c)$$

Приближенное выражение в (12с) справедливо при  $\ln \frac{\varphi}{1-\varphi} \gg B$ .

На рис. 1, *d-f* показаны температурные зависимости  $d\varphi/dT$ , соответствующие выражениям (12) и кривым  $\varphi(T)$  на рис. 1, *a-c*. Видно, что в отличие от  $\lambda$ -образного пика в случае переходов второго рода (рис. 1, *d*) для переходов первого рода на температурных зависимостях свойств кристаллов в области фазового перехода должен наблюдаться размытый,  $\Lambda$ -образный пик (рис. 1, *f*).

### 3. Параметры размытого фазового перехода в $C_{60}$ при 250–260 К

$\Lambda$ -образные пики были зафиксированы на калориметрических кривых кристаллов  $C_{60}$  в области температур вблизи 250 К [6,9]. На рис. 2, *a* показан такой пик при исследовании тепловыделения и теплоемкости в относительно большом кристалле  $C_{60}$  [9]. Температурная зависимость теплоемкости, связанная с фазовым переходом, согласно (6) и (12с), имеет вид

$$\begin{aligned} \Delta c_p(T) &= \Delta c_m \frac{4 \exp(B(T - T_0)/T_0)}{[1 + \exp(B(T - T_0)/T_0)]^2}, \\ \Delta c_m &= \frac{qB}{4T_0}, \end{aligned} \quad (13a)$$

где  $\Delta c_m$  — максимальное значение теплоемкости при  $T = T_0$ .

Вводя обозначение  $R(T) = \Delta c_p(T)/\Delta c_m$ , эту зависимость можно представить также в виде

$$\ln \frac{1 \mp [1 - R(T)]^{1/2}}{1 \pm [1 - R(T)]^{1/2}} = B \frac{T - T_k}{T_0}, \quad (13b)$$

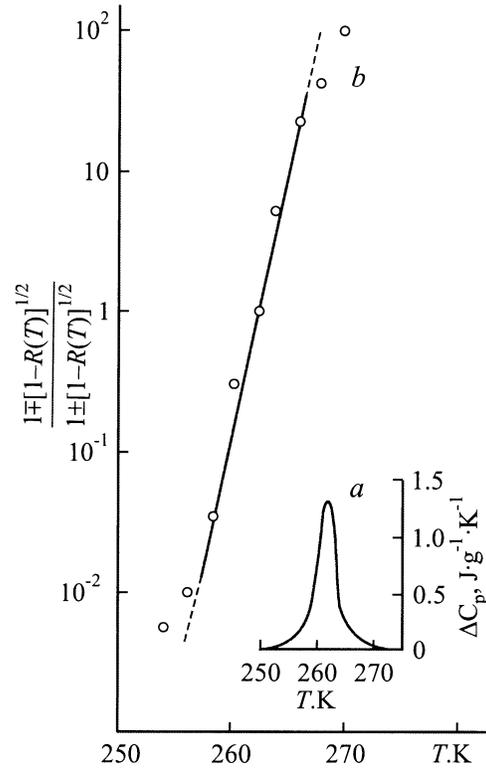
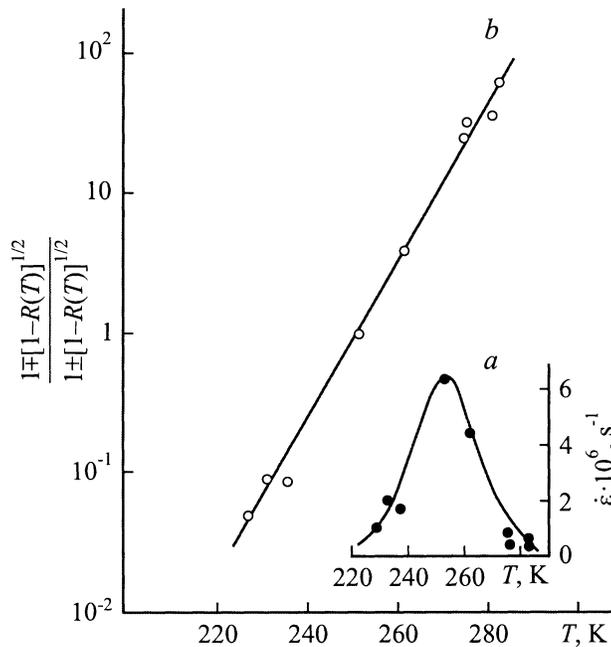


Рис. 2. Температурные зависимости теплоемкости  $\Delta c_p$  в кристаллах  $C_{60}$  согласно [6] (а) и в координатах (13b) (б).

где верхние знаки перед корнем относятся к восходящему участку  $\Lambda$ -образного пика, а нижние — к нисходящему. На рис. 2, *b* экспериментальная зависимость  $\Delta c_p(T)$  (рис. 2, *a*) показана в координатах (13b). Видно, что в этих координатах она представляет собой прямую линию, за исключением самого нижнего и самого верхнего участков зависимости ( $R(T) \ll 1$ ,  $\varphi(T) \ll 1$ ), где приближенное выражение (12с) перестает выполняться. Согласно (13b), наклон прямой зависит от параметра  $B$  (6). В рассматриваемом случае  $T_0 = 262$  К имеем  $B = 224$ . Соответственно с помощью соотношения (7) находим, что размытие перехода по температуре составляет  $\Delta T = 4.7$  К.

Далее из приведенных на рис. 2, *a* данных следует, что величина  $\Delta c_m = 1.29 J \cdot g^{-1} \cdot K^{-1}$  и, следовательно, согласно (13a), теплота превращения  $q_0 \approx 6 J \cdot g^{-1}$ . Эта оценка находится в согласии с приводимыми в литературе данными [1,9]. При плотности кристаллов  $C_{60}$   $1.62 g \cdot cm^{-3}$  [5] находим, что  $q = 9.7 J \cdot cm^{-3}$ . Следовательно, согласно (6), элементарный объем превращения  $\omega = (kT_0/q)B = 83 \cdot 10^{-21} cm^3$ , т.е.  $\omega = 83 nm^3$ . При величине параметра решетки  $C_{60}$   $a = 1.41 nm$  число молекул, участвующих в коррелированном акте превращения, равно  $n = \omega/a^3 \approx 27$ . Эти величины согласуются с результатами нейтронных исследований ориентационного перехода в  $C_{60}$  [2,21], согласно которым элементарный объем превращения составляет  $64 nm^3$ , размытие перехода  $\approx 5$  К.



**Рис. 3.** Температурные зависимости скорости неупругой деформации  $\dot{\varepsilon}$  в кристаллах C<sub>60</sub> согласно [6] (a) и в координатах (13b) (b).

На рис. 3, a показана зависимость скорости деформации кристалла C<sub>60</sub> в области температуры ориентационного перехода при ступенчатом изменении температуры, соответствующем средней скорости ее изменения  $\dot{T} \approx 1 \text{ К} \cdot \text{мин}^{-1}$ , и приложенном к кристаллу сжимающем напряжении 6.7 МПа [6]. Видно, что зависимость  $\dot{\varepsilon}(T)$  имеет  $\Lambda$ -образный вид. При  $T_0 = 252 \text{ К}$  скорость деформации достигает максимального значения  $6.4 \cdot 10^{-6} \text{ с}^{-1}$ . Температурная зависимость скорости в области фазового перехода описывается выражением аналогичного (13a) вида

$$\dot{\varepsilon}(T) = \dot{\varepsilon}_{\max} \frac{4 \exp(B(T - T_k)/T_0)}{[1 + \exp(B(T - T_k)/T_0)]^2},$$

$$\dot{\varepsilon}_{\max} = \frac{\varepsilon_m B}{4T_0} \dot{T}, \quad (14a)$$

где, согласно (8),

$$T_k = T_0 + \frac{T_0}{q} \varepsilon_m \sigma. \quad (14b)$$

На рис. 3, b температурная зависимость скорости деформации приведена в координатах (13b), где  $R(T) = \dot{\varepsilon}(T)/\dot{\varepsilon}_{\max}$ . Видно, что в этих координатах экспериментальные точки укладываются на прямую линию, наклон которой соответствует величине параметра  $B = 32$ . Размытие перехода по температуре в рассматриваемом случае  $\Delta T = 31.5 \text{ К}$ . Элементарный объем превращения при  $q = 9.7 \text{ Дж} \cdot \text{см}^{-3}$  равен  $11.5 \text{ нм}^3$ , следовательно, число молекул, участвующих в коррелированном акте превращения,  $n = 4$ .

Далее с помощью выражения (14a) находим, что  $\varepsilon_m = 1.2 \cdot 10^{-2}$ . Следовательно, спонтанная сдвиговая деформация, связанная с перестройкой решетки из гранецентрированной в примитивную кубическую, равна  $\xi = 2.4 \cdot 10^{-2}$  при  $m = 0.5$ . Это величина того же порядка, что и дилатация решетки при таком превращении  $\delta_0 = \Delta V/V \approx 10^{-2}$  [14,15]. С помощью (14b) можно оценить величину сдвига характеристической температуры в результате приложения к кристаллу сжимающего напряжения  $\sigma = 6.7 \text{ МПа}$ . Оценка показывает, что этот сдвиг невелик, порядка 2 К.

Таким образом, теория размытых фазовых переходов позволяет количественно оценить параметры ориентационно-структурного перехода в кристаллах C<sub>60</sub> при 250–260 К и проанализировать влияние перехода на свойства этих кристаллов.

Автор признателен Б.И. Смирнову, В.В. Шпейзману и В.М. Егорову за обсуждение результатов работы.

### Список литературы

- [1] P.A. Heiney, J.E. Fisher, A.R. McGhie, W.J. Romanov, A.M. Denenstien, J.P. McCauley, A.B. Smith III, D.E. Cox. Phys. Rev. Lett. **66**, 22, 2911 (1991).
- [2] B. Sundquist. Adv. Phys. **48**, 1, 1 (1999).
- [3] S. Hoen, N.G. Chorpa, X.-D. Xiang, R. Mostovoy, J. Hou, W.A. Vareka, A. Zettl. Phys. Rev. **B46**, 19, 12 737 (1992).
- [4] Н.П. Кобелев, А.П. Моравский, Я.М. Сойфер, И.О. Башкин, О.Г. Рыбченко. ФТТ **36**, 9, 2732 (1994).
- [5] В.В. Шпейзман, Н.Н. Песчанская, В.М. Егоров, Р.К. Николаев, В.И. Николаев, Б.И. Смирнов. ФТТ **41**, 6, 1115 (1999).
- [6] В.В. Шпейзман, Н.Н. Песчанская, В.М. Егоров, Р.К. Николаев, В.И. Николаев, Б.И. Смирнов. ФТТ **42**, 9, 1721 (2000).
- [7] В.Д. Нацик, С.В. Лубенец, Л.С. Фоменко. ФНТ **22**, 3, 337 (1996).
- [8] G.A. Samara, J.E. Schirber, B. Morosin, L.V. Hansen, D Loy, A.P. Swlvester. Phys. Rev. Lett. **67**, 22, 3136 (1991).
- [9] В.М. Егоров, Р.К. Николаев, Б.И. Смирнов, В.В. Шпейзман. ФТТ **41**, 3, 550 (1999).
- [10] Г.А. Малыгин. УФН **171**, 2, 187 (2001).
- [11] А.Н. Цоцорин, С.А. Гриднев, С.П. Рогова, А.Г. Лучанинов. Изв. РАН. Сер. физ. **62**, 8, 1579 (1998).
- [12] Г.А. Малыгин. ФТТ **35**, 11, 2993 (1993).
- [13] С.А. Гриднев, О.Н. Иванов. СФХТ **5**, 7, 1143 (1992).
- [14] P.A. Heiney, G.B. Vaughan, J.E. Fischer, N. Coustel, D.E. Cox, J.R. Copley, D.A. Neumann, W.A. Kamitakahara, K.M. Greeting, D.M. Cox, J.P. McCauley, A.B. Smith III. Phys. Rev. **B45**, 8, 4544 (1992).
- [15] W.I. David, R.M. Ibberson, T. Matsuo. Proc. Roy. Soc. **A442**, 1914, 129 (1993).
- [16] V.V. Kirillov, V.A. Isupov. Ferroelectrics **5**, 1, 3 (1971).
- [17] R.L. Moreira, R.P. Lobo. J. Phys. Soc. Jap. **61**, 6, 1992 (1992).
- [18] Г.А. Малыгин. ФТТ **36**, 5, 1489 (1994).
- [19] М. Фишер. Природа критического состояния. Мир, М. (1968). 212 с.
- [20] Г.А. Малыгин. ЖТФ **66**, 11, 112 (1996).
- [21] L. Pintschovius, S.L. Chaplo, G. Roth, G. Heger. Phys. Rev. Lett. **75**, 15, 2843 (1995).