

90° импульсное намагничивание пленок ферритов-гранатов с анизотропией типа „легкая плоскость“

© Е.И. Ильяшенко, О.С. Колотов, А.В. Матюнин, О.А. Миронец

Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова,
119899 Москва, Россия

E-mail: physphak@mail.ru

(Поступила в Редакцию 10 марта 2005 г.)

Исследован процесс 90° импульсного намагничивания пленок ферритов-гранатов, в которых наряду с анизотропией типа „легкая плоскость“ в самой плоскости проявляется двухосная анизотропия (с эффективным полем $H_{K2} \cong 40-55$ Ое). На кривой импульсного намагничивания выделяются два участка, разделенных точкой излома, наблюдаемой при амплитуде импульса намагничивающего поля $H_p = H_p^* \cong 16-18$ Ое. Анализ сигналов намагничивания показал, что в полях $H_p \geq H_p^*$ преодолевается тормозящий момент, в основном создаваемый силами двухосной анизотропии, и обсуждаемый процесс полностью совершается вращением намагниченности. В полях же $H_p < H_p^*$ поворот вектора намагниченности возможен лишь на начальной стадии процесса, причем на угол $\varphi_{in} < 25-26^\circ$. Проведены расчеты полей H_p^* и углов φ_{in} . Результаты расчетов подтверждены экспериментальными данными. В полях $H_p > H_p^*$ намагничивание сопровождается колебаниями намагниченности. В отличие от свободных колебаний намагниченности эти колебания нелинейны, частота их первой гармоники значительно меньше ($\approx 5 \cdot 10^8$ Hz против $(7-12) \cdot 10^8$ Hz для свободных колебаний) и возбуждаются они при длительности фронта импульса поля ≈ 6 ns.

PACS: 75.70.Ak, 75.50.Dd

Одно из возможных применений пленок ферритов-гранатов с анизотропией типа „легкая плоскость“ связывают с разработкой импульсных устройств интегральной оптики: скоростных модуляторов, управляемых рециркуляторов, изоляторов и т.д. [1,2]. В связи с этим необходимо изучение переходных процессов, вызываемых магнитными полями, ориентированными в плоскости пленки и, прежде всего, 90° импульсного намагничивания, при использовании которого можно обеспечить наибольшее быстродействие перечисленных и других возможных устройств. Исследование 90° импульсного намагничивания в пленках ферритов-гранатов имеет и самостоятельный физический интерес, поскольку этот переходный процесс исследовался всего лишь в двух магнетиках: пермаллоевых пленках [3-8] и монокристаллах бората железа [9,10]. В этих условиях изучение каждого нового магнитного материала должно существенно расширить информацию о закономерностях поведения намагниченности и характере их зависимости от анизотропии и других свойств магнетиков. Что касается обсуждаемых пленок ферритов-гранатов, то к настоящему времени в них исследовались только свободные колебания намагниченности, возбуждаемые наложением небольшого (4-6 Ое) перепада плоскостного магнитного поля, перпендикулярного исходному направлению намагниченности [11,12]. Здесь обсуждаются результаты более детального исследования режима 90° импульсного намагничивания, проведенного в широком интервале амплитуд импульса магнитного поля.

1. Методика эксперимента

Известно [11-13], что в реальных пленках ферритов-гранатов наряду с плоскостной анизотропией, удержива-

ющей намагниченность в плоскости пленки, также проявляется заметная анизотропия в этой плоскости. Выявляются две оси легкого намагничивания (ОЛН), перпендикулярные друг другу. В табл. 1 приведены основные данные исследованных пленок: состав, толщина d , поле технического насыщения H_{sat} , намагниченность насыщения M_S , значение эффективного поля плоскостной анизотропии H_{pl} и поля двухосной анизотропии H_{K2} . Для пленки 2, характеризующейся заметной неэквивалентностью осей анизотропии, указаны соответствующие им два эффективных поля H'_{K2} и H''_{K2} . Для определения величин H_{pl} и H_{K2} использовался метод, основанный на анализе свободных колебаний намагниченности [11,12]. Метод обеспечивает точность измерения $\approx 10-12\%$.

Весьма существенно, что исследование анизотропии пленок и изучение их импульсных свойств выполнены на одной и той же индукционной установке [11,14,15]. Исследуемый образец помещался в намагничивающее устройство в виде короткозамкнутого отрезка полосковой линии. Его исходное состояние насыщения вдоль одной из ОЛН достигалось с помощью установочного поля H_0 . Изучаемый процесс вызывался наложением импульса магнитного поля H_p , перпендикулярного этой ОЛН.

Импульсы тока поступали в плосковую линию по коаксиальному кабелю, длина которого изменялась в зависимости от характера исследуемого процесса. При исследовании процессов с длительностью $\tau_m \leq 70$ ns использовался кабель длиной 7 м, не вносящий существенных искажений импульса тока с длительностью фронта $\tau_f \cong 0.3-0.4$ ns. Для формирования таких импульсов использовался искровой обстрелитель [15]. При исследовании процессов с большей длительностью применялись источники импульсов тока с $\tau_f \cong 5$ ns. Длина кабеля

Таблица 1. Основные данные исследованных пленок

Пленка	Состав	$d, \mu\text{m}$	$H_{\text{sat}}, \text{Oe}$	M_S, G	H_{pl}, Oe	K_{K2}, Oe	H'_{K2}, Oe	H''_{K2}, Oe
1	(LuBi) ₃ (Fe Ga) ₅ O ₁₂	6	3	16	700	50		
2	(YLuBi) ₃ (Fe Ga) ₅ O ₁₂	4	2	14	1300		32	40
3	(LuBi) ₃ (Fe Ga) ₅ O ₁₂	2.8	2.7	16	1000	55		

доводилась до 70 м. Потери в кабеле такой длины приводили к увеличению длительности фронта импульса до 6 нс.

Для регистрации изменения намагниченности использовался продольный съемный виток. В состав канала регистрации сигнала входили: стробоскопический преобразователь, устройство для автоматического вычитания электромагнитных помех, низкочастотный RC-фильтр и самописец. Собственное время установления напряжения канала регистрации сигнала 0.25 нс.

2. Экспериментальные результаты и их обсуждение

Одна из интересных особенностей исследуемых пленок состоит в том, что их время намагничивания τ_m изменяется в очень широких пределах: от 10^{-7} – 10^{-6} с в слабых полях до $\sim 10^{-9}$ с в сильных. На кривых импульсного намагничивания, представляющих собой

зависимость скорости намагничивания τ_m^{-1} от амплитуды импульса магнитного поля H_p , четко выделяются два участка. Пример кривой $\tau_m^{-1}(H_p)$ приведен на рис. 1. Кривая получена для пленки 2. Большинство экспериментальных точек получено при длительности фронта намагничивающего импульса $\tau_f = 6$ нс. Для уточнения формы сигналов намагничивания и хода кривых в больших полях использовались импульсы с $\tau_f = 0.4$ нс. Из рис. 1 видно, что переход от одного участка кривой к другому довольно резкий. Он сопровождается сильным изменением коэффициента переключения S_w (от 10–20 раз и более), а значение поля H_p^* , при котором наблюдается излом, определяется четко. Оно не изменяется заметным образом при изменении длительности фронта.

На рис. 2 приведены примеры осциллограмм продольных сигналов 90° импульсного намагничивания. Три из них, полученные соответственно в полях H_p 9, 12 и 14 Ое, относятся к первому участку кривой $\tau_m^{-1}(H_p)$ (рис. 1). Для каждого из сигналов характерно наличие начального пика с длительностью, близкой к длительности фронта намагничивающего импульса ≈ 6 нс. Амплитуда пика возрастает с увеличением поля H_p . В момент времени окончания пика t_1 напряжение сигнала уменьшается практически до нуля. Затем наблюдаются медленное его возрастание и последующее уменьшение.

Наиболее достоверное объяснение формы сигналов, наблюдаемых в полях $H_p < H_p^*$, состоит в следующем. При приложении импульса поля происходит поворот вектора намагниченности на начальный угол ϕ_{in} , отсчитываемый от ОЛН, после чего вращение тормозится полностью. Затем с некоторой задержкой появляются зародыши с новой фазой намагниченности и намагничивание завершается ростом зародышей и изменением их числа. Запомним, что при малой длительности фронта (≤ 0.3 нс) импульса вместо начального пика наблюдаются колебания напряжения сигнала с частотой $(7-12) \cdot 10^8$ Hz, затухающие за время $\sim 10-15$ нс [11]. Представляет самостоятельный интерес изучение вопроса о том, как свободные колебания намагниченности сменяются ростом зародышей. К сожалению, формирование импульсов с $\tau_f \sim 10^{-10}$ с и с требуемыми амплитудой и полной длительностью представляет собой трудную задачу [16].

При переходе в область полей $H_p > H_p^*$ форма сигнала сильно изменяется: резко увеличивается площадь под

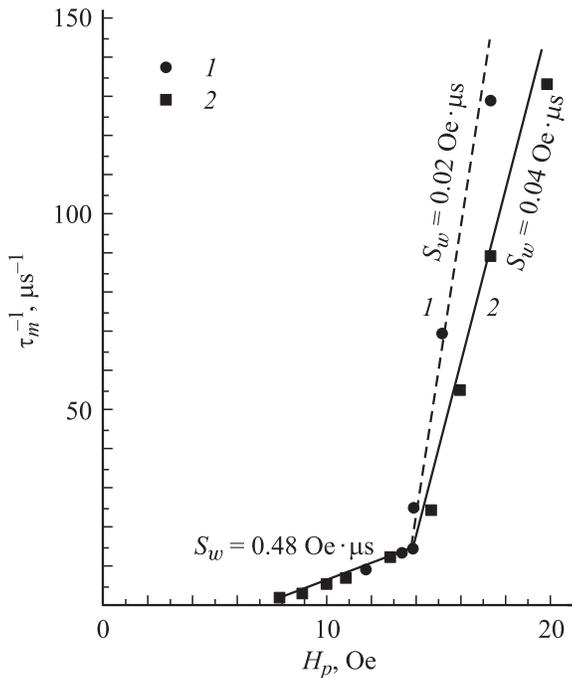


Рис. 1. Зависимости обратного времени намагничивания от амплитуды намагничивающего поля H_p , полученные при разной длительности фронта импульса: 1 — 0.3, 2 — 6 нс.

начальным пиком, так что ему соответствует основное изменение намагниченности, сокращается длительность сигнала и вслед за пиком появляются нелинейные колебания. Период первой гармоники колебаний слабо

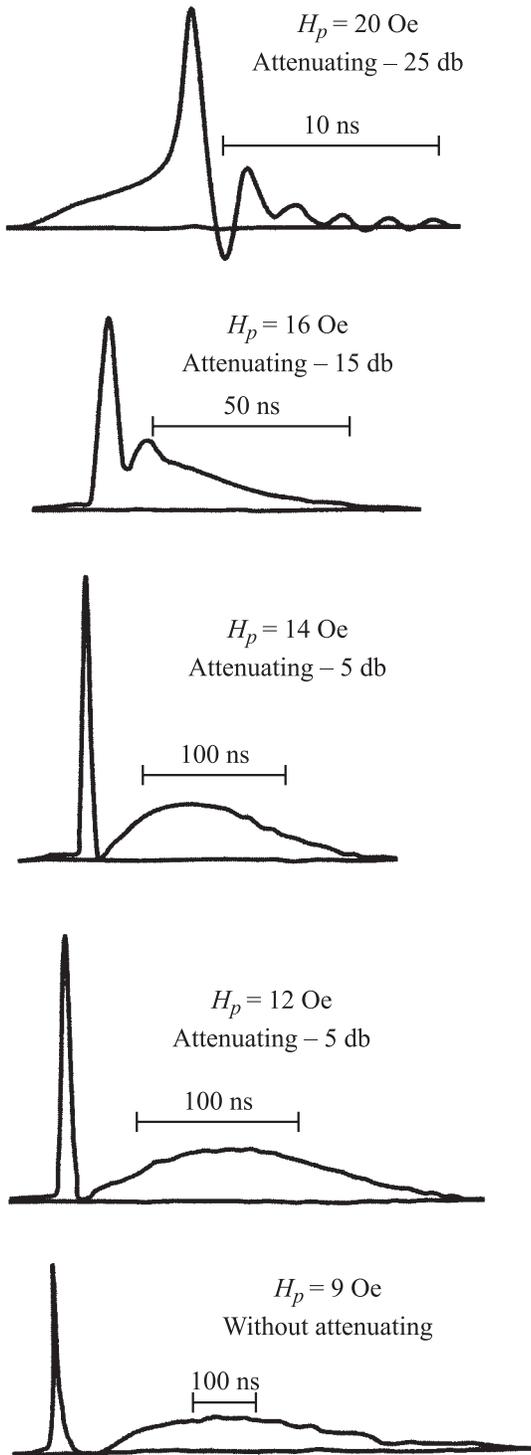


Рис. 2. Осциллограммы продольных сигналов намагничивания, полученные при разной амплитуде импульса магнитного поля H_p для пленки 2. $H_0 = 4$ Ое. По мере увеличения поля H_p в канал регистрации сигнала вводились делители напряжения с приведенными значениями коэффициента ослабления.

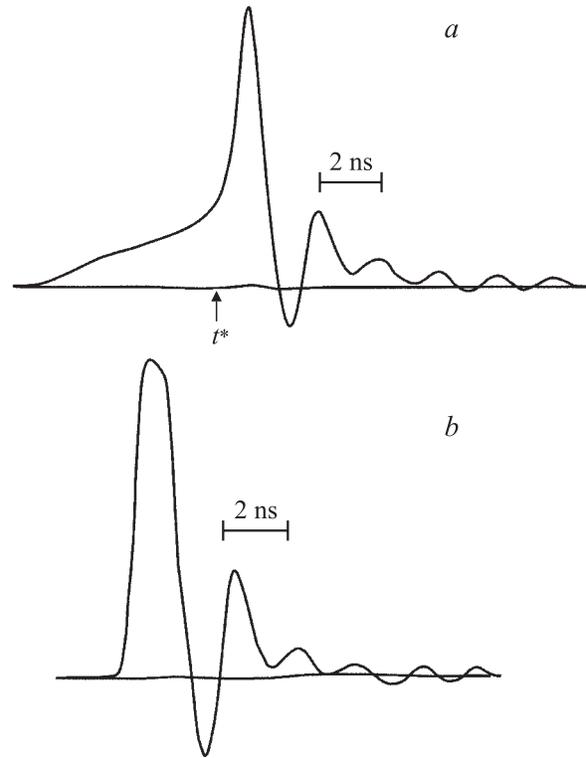


Рис. 3. Осциллограммы сигналов, полученных при различной длительности фронта намагничивающего импульса: *a* — 6 ns, *b* — 0.4 ns.

зависит от амплитуды поля H_p и толщины пленок и для всех исследованных образцов близок к 2 ns.

На рис. 3 приведены сигналы, полученные при использовании импульсов, имеющих одну и ту же амплитуду $H_p = 20$ Ое, но разную длительность фронта: 6 и 0.4 ns. Как и следовало ожидать, снижение длительности фронта привело к уменьшению длительности переходного процесса. Изменилась и форма сигнала: на нем исчезает медленный участок, связанный с изменением намагниченности на фронте импульса магнитного поля. Нетривиальным является следующий результат: при использовании импульсов с довольно большой длительностью фронта (≈ 6 ns) возбуждаются колебания намагниченности с периодом 2 ns. Например, в обсуждаемых здесь пленках ферритов-гранатов свободные колебания наблюдаются, если длительность фронта импульса в 2–3 раза меньше периода колебаний [11]. То же самое имеет место и при намагничивании пермаллоевых пленок [3–5,17].

Возникновение колебаний затрудняет измерение длительности переходного процесса τ_m в полях $H_p > H_p^*$, поскольку ни одно из обычно используемых определений момента времени t_{fin} [14], соответствующего условному концу процесса, неприменимо. Здесь момент времени t_{fin} определялся следующим образом. Через максимумы и минимумы сигнала проводились две вспомогательные линии, затем проводилась третья линия, точки которой

находились на одинаковом расстоянии от каждой из первых двух линий. Наконец, на третьей линии находилась точка, для которой среднее напряжение сигнала снижалось до 0.1 от его амплитудного значения A_m . Начало процесса, как обычно [14], сопоставлялось с моментом времени, для которого напряжение сигнала достигало величины $0.1A_m$. Понятно, что измерение τ_m в полях $H_p > H_p^*$ связано с большой ошибкой, и поэтому мы ограничились исследованием импульсного намагничивания в полях $H_p \leq 25$ Ое.

Поведение пленок ферритов-гранатов существенно отличается от поведения упоминавшихся выше пленок пермаллоя и монокристаллов бората железа. Как известно, пермалловые пленки характеризуются наличием одноосной анизотропии в их плоскости с эффективным полем $H_{K1} \sim 3-5$ Ое. Основные результаты исследования пермалловых пленок состоят в следующем [3-8]: длительность процесса 90° намагничивания мала ($\sim 1-2$ ns), переходной процесс сопровождается быстрозатухающими нелинейными колебаниями магнитостатической природы, изменение намагниченности осуществляется однородным вращением. Из-за большой скорости переходного процесса кривая $\tau_m^{-1}(H_p)$ не исследовалась.

Борат железа — слабый легкоплоскостной ферромагнетик, характеризующийся большой величиной эффективного поля анизотропии H_{Kpl} (~ 60 кОе), незначительным проявлением анизотропии в плоскости кристалла и сильным влиянием магнитоупругого взаимодействия. Импульсное намагничивание [9,10] сопровождается магнитоупругими колебаниями, период которых определяется толщиной монокристалла d и скоростью V волны сдвиговых деформаций, распространяющихся вдоль нормали к поверхности монокристалла, $T = 2d/V$, причем скорость этой волны зависит от внешнего поля. Для монокристаллов толщиной 20–130 μm период колебаний лежит в пределах 12–75 ns при длительности основной стадии переходного процесса не более 25 ns. На кривой $\tau_m^{-1}(H_p)$ выделяется два участка, разделенных точкой излома, наблюдаемой в поле $H_p = H_p^* = 3.2-3.5$ Ое при характерном времени $\tau_m = \tau_m^* = 15 \pm 2$ ns, которое практически не зависит от толщины монокристалла. Во всем исследованном интервале полей H_p намагничивание происходит за счет однородного вращения намагниченности. Причиной резкого возрастания скорости намагничивания в полях $H_p > H_p^*$ является отставание упругой подсистемы кристалла от магнитной, которое заметно сказывается при временах $\tau_m < \tau_m^*$. Это приводит к уменьшению интенсивности магнитоупругих колебаний и связанных с ними потерь энергии.

Разницу в поведении намагниченности в указанных магнетиках и пленках ферритов-гранатов следует искать в отличии сил, действующих на намагниченность и, прежде всего, сил анизотропии. Рассмотрим силы, действующие на начальной стадии намагничивания. Пусть длительность фронта импульса достаточно велика (например, близка к 6 ns) и свободные колебания намагниченности отсутствуют. Тогда анализ сил существенно

облегчается тем обстоятельством, что вблизи момента времени t_1 скорость изменения намагниченности временно близка к нулю. Это позволяет ограничиться рассмотрением одной азимутальной составляющей вращающего момента, действующего на намагниченность

$$T_\varphi = -\frac{\partial W}{\partial \varphi}, \quad (1)$$

где W — плотность свободной энергии, φ — угол между ОЛН и мгновенным направлением намагниченности. Допустим, что согласно [18], плотность энергии двухосной анизотропии может быть представлена в виде

$$W_2 = -K_2 \cdot \cos 4\varphi, \quad (2)$$

где K_2 — константа двухосной анизотропии. Также, согласно [18], предположим, что неэквивалентность двух ОЛН может быть объяснена проявлением одноосной анизотропии в плоскости пленки. Для плотности энергии последней выберем обычный вид

$$W_1 = K_1 \cdot \sin^2 \varphi, \quad (3)$$

где K_1 — константа одноосной анизотропии. Учтем также энергию намагниченности во внешних полях H_p и H_0 . В итоге получим

$$W = K_1 \cdot \sin^2 \varphi - K_2 \cdot \cos 4\varphi - M_S \cdot H_0 \cdot \cos \varphi - M_S \cdot H_p \cdot \sin \varphi. \quad (4)$$

Используя это выражение, равновесное направление намагниченности в момент времени $t = t_1$ можно найти из уравнения

$$h_{K1} \cdot \sin \varphi \cdot \cos \varphi + \cos 2\varphi \cdot \sin \varphi \cdot \cos \varphi + h_0 \cdot \sin \varphi = h_p \cdot \cos \varphi, \quad (5)$$

где h_{K1} , h_p и h_0 — нормированные значения эффективного поля одноосной анизотропии H_{K1} , намагничивающего H_p и установочного H_0 полей

$$h_{K1} = H_{K1}/H_{K2}, \quad h_p = H_p/H_{K2}, \quad h_0 = H_0/H_{K2},$$

в которых эффективные поля одноосной и двухосной анизотропий соответственно равны: $H_{K1} = 2K_1/M_S$ и $H_{K2} = 16K_2/M_S$. Уравнение (5) представляет собой равенство моментов, создаваемых, с одной стороны, силами анизотропии и установочным полем, а, с другой стороны, импульсным намагничивающим полем. На рис. 4 приведены значения момента, создаваемого намагничивающим полем, и момента, создаваемого силами анизотропии и установочным полем. Значения моментов нормированы к величине $M_S \cdot H_{K2}$. Вычисление сделано для конкретной ситуации, реализуемой при намагничивании пленки 2. Установочное поле H_0 ($= 4$ Ое) прикладывалось вдоль ОЛН с наибольшим значением измеряемой величины эффективного поля анизотропии $H''_{K2} = 40$ Ое.

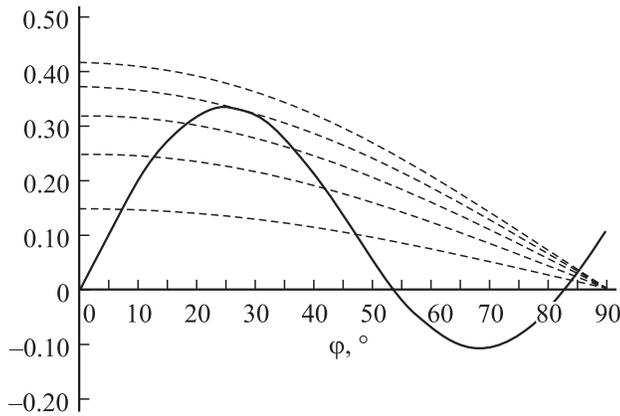


Рис. 4. Зависимости нормированных составляющих момента сил, действующих на вектор намагненности, от угла φ между этим вектором и ОЛН. Штриховые линии представляют действие импульсного поля для разных его значений $h_p = H_p/H_{K2}$, сплошная линия учитывает действие сил одноосной и двухосной анизотропии в плоскости пленки и установочного поля H_0 .

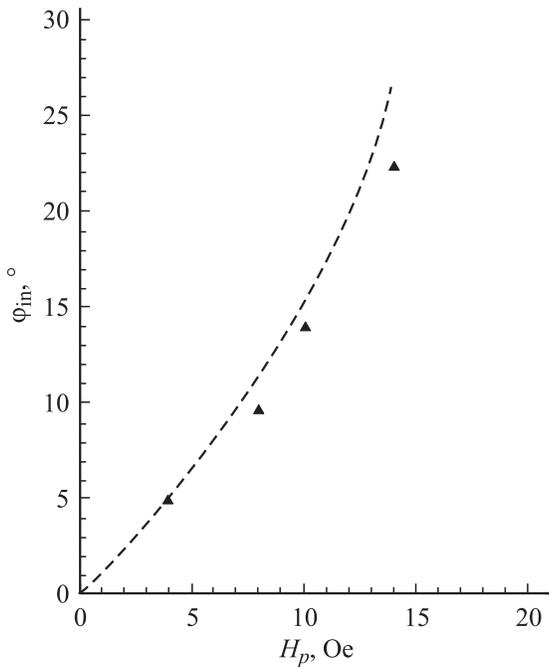


Рис. 5. Зависимость угла начального вращения от амплитуды магнитного поля H_p . Штриховая линия — расчетная зависимость, точки — экспериментальные значения φ_{in} .

Эффективное поле одноосной анизотропии H_{K1} полагаюсь равным 4 Ое, а поле двухосной анизотропии H_{K2} — 36 Ое.

По точкам пересечения штриховых линий с нарастающим участком сплошной линии можно получить значения углов φ_{in} , достигаемые в результате начального вращения. На рис. 5 приведена рассчитанная таким образом зависимость угла φ_{in} от поля H_p . Расчеты, естественно, ограничивались значением угла φ ($\approx 26^\circ$ для рассматриваемой конкретной ситуации), при

котором на сплошной кривой на рис. 4 достигается максимум. Экспериментальные значения угла φ_{in} определялись сравнением площадей под начальными пиками на сигналах 90° намагничивания с площадью под сигналом 180° перемагничивания. Для повышения точности измерений скорость развертки выбиралась так, чтобы на одном листе самописца умещались сигнал 180° перемагничивания и обсуждаемые пики, причем последние имели возможно большую площадь. Из рис. 5 видно, что экспериментальные точки ложатся вблизи расчетной кривой. Из этого следует, что в полях $H_p < H_p^*$ намагничивание на своей начальной стадии действительно происходит поворотом вектора \mathbf{M}_S , а зависимость плотности энергии анизотропии от угла φ может быть представлена выражениями (2) и (3).

По величине минимального поля h_p , при котором одна из штриховых линий коснется сплошной кривой, можно определить критическое поле, начиная с которого скорость вращения намагненности не обращается в нуль на всем протяжении переходного процесса. Это поле можно рассматривать как поле излома кривых импульсного намагничивания H_p^* . В табл. 2 приведены расчетные и экспериментальные значения этого поля. Видно, что используемая методика расчета дает хорошее согласие с экспериментом.

С помощью кривых на рис. 4 можно определить ориентацию вектора намагненности в конце обсуждаемого процесса. Видно, что кривые, представляющие собой вращающие моменты, создаваемые намагничивающим полем, при любом его значении для выбранного установочного поля $H_0 = 4$ Ое пересекаются со сплошной кривой при углах $\varphi \geq 83^\circ$. При $\varphi = 83^\circ$ продольная составляющая намагненности близка к $0.99M_S$. Таким образом, в поле, существенно меньшем H_{K2} (но большем поля технического насыщения H_{sat}), должно происходить практически полное 90° намагничивание пленки. Этот вывод удалось подтвердить для полей $H_p \geq 9$ Ое (при котором длительность переходного процесса не превышала 700 ns). Оказалось, что площадь под сигналом 90° намагничивания действительно близка к половине сигнала 180° перемагничивания.

Обратимся к рис. 3, а, где изображен сигнал, полученный при длительности фронта импульса 6 ns. Из-за конечной длительности фронта начальной стадии намагничивания разница между внешним ускоряющим моментом и внутренним — тормозящим — невелика, так что намагничивание осуществляется относительно медленно. Однако после поворота намагненности на

Таблица 2. Расчетные и экспериментальные значения поля излома кривых импульсного намагничивания H_p^*

Пленка	Расчетное значение H_p^* , Ое	Экспериментальное значение H_p^* , Ое
1	16	18
2	13.7	15
3	17.6	17

угол $\varphi \approx 26^\circ$ разница между указанными моментами возрастает с дальнейшим увеличением этого угла, что должно приводить к резкому возрастанию скорости вращения намагниченности. Об этом, например, свидетельствует рис. 3, а, на котором видно, что в некий момент времени $t^* \approx 7$ ns действительно наблюдается сильное возрастание скорости изменения намагниченности. В спектральной функции, соответствующей поведению намагниченности при $t \geq t^*$, появляется составляющая с частотой, равной $5 \cdot 10^8$ Hz. Анализ площади под начальной частью сигнала показывает, что к моменту времени $t = t^*$ вектор \mathbf{M}_z поворачивается на угол $\varphi_{in} \approx 25-28^\circ$. Таким образом объясняется тот факт, что в пленках ферритов-гранатов удается возбудить колебания с периодом 2 ns, используя намагничивающие импульсы с существенно большей длительностью фронта.

Итак, в пленках ферритов-гранатов можно возбудить две моды колебаний. Одна из них — квазилинейная — возбуждается в слабых полях на начальной стадии намагничивания при длительности фронта импульса $\leq 0.3-0.4$ ns. Частота колебаний $(7-12) \cdot 10^8$ Hz зависит от установочного магнитного поля. Другая — нелинейная — мода проявляется в полях $H_p \geq H_p^*$ после окончания основной стадии изменения намагниченности. Частота первой гармоники этих колебаний близка к $5 \cdot 10^8$ Hz.

В целом же поведение намагниченности при обсуждаемом здесь переходном процессе в реальных пленках ферритов-гранатов с анизотропией типа „легкая плоскость“ во многом определяется наличием двухосной анизотропии в их плоскости.

Авторы выражают благодарность Е.Н. Ильичевой за плодотворное обсуждение данной статьи.

Список литературы

- [1] R. Wolfe, V.J. Fratello, M.J. McGlashan-Powell. Appl. Phys. **63**, 3, 3099 (1988).
- [2] А.Ю. Топоров, М.В. Валейко. ЖТФ **65**, 7, 134 (1995).
- [3] P. Wolf. Z. Physik. **160**, 2, 310 (1960).
- [4] B.R. Hearn. J. Electron. Control **16**, 1, 33 (1963).
- [5] G. Matsumoto, T. Satoh, S. Iida. J. Appl. Soc. of Japan **21**, 2, 231 (1996).
- [6] Г.М. Родичев, Н.П. Ляховский, П.Д. Ким, В.Н. Пресняков. Изв. вузов. Физика **7**, 140 (1969).
- [7] Г.И. Руденко. Изв. вузов. Физика **8**, 108 (1971).
- [8] К.М. Поливанов, В.В. Кобелев, В.И. Ивашкин, Г.И. Руденко, А.Л. Фрумкин. ФМИ **34**, 3, 485 (1972).
- [9] О.С. Колотов, А.П. Красножон, В.А. Погожев. Письма в ЖЭТФ **62**, 5, 403 (1995).
- [10] О.С. Колотов, А.П. Красножон, В.А. Погожев. ФТТ **38**, 4, 1017 (1996).
- [11] Е.Н. Ильичева, Е.И. Ильяшенко, О.С. Колотов, А.В. Матюнин, В.В. Смирнов. ФТТ **45**, 6, 1037 (2003).
- [12] Е.И. Ильяшенко, Е.Н. Ильичева, О.С. Колотов, А.В. Матюнин, В.А. Погожев. J. Optoelect, Adv. Mater. **6**, 3, 931 (2004).
- [13] Е.Н. Ильичева, Ю.А. Дурасова О.С. Колотов, В.В. Рандошкин, М.Ю. Гусев, Ю.В. Козлов, Н.С. Неустроев. Завод. лаб.: Диагностика материалов **68**, 12, 44 (2002).

- [14] О.С. Колотов, В.А. Погожев, Р.В. Телеснин. Методы и аппаратура для исследования импульсных свойств тонких магнитных пленок. Изд-во МГУ, М. (1970).
- [15] О.С. Колотов, А.В. Матюнин. ПТЭ **3**, 88 (2003).
- [16] В.Н. Илюшинко, Б.М. Авдоченко, В.Ю. Баранов, В.С. Липин, В.П. Чураков. Пикосекундная импульсная техника. Энергоатомиздат, М. (1993).
- [17] В.И. Ивашкин, Г.И. Руденко, К.М. Поливанов, А.Л. Фрумкин. Изв. вузов. Физика **2**, 7 (1971).
- [18] И.С. Эдельман. Изв. АН СССР. Сер. физ. **30**, 1, 88 (1966).