# УСПЕХИ ФИЗИЧЕСКИХ НАУК

621.039.5

# ЕСТЕСТВЕННЫЙ ЯДЕРНЫЙ РЕАКТОР ОКЛО

### Ю. В. Петров

#### СОДЕРЖАНИЕ

1.	Введение	473
2.	История открытия естественного реактора	475
3.	Параметры реактора	477
	а) Возраст (477). б) Продолжительность цепной реакции (479). в) Нейтрон-	
	ный поток (479). г) Мощность (480). д) Нейтронный баланс и регулиро-	
	Bahne (481).	100
4.	Следствия открытия феномена Окло	482
	а) Хранение радиоактивных отходов (482). 6) Связь с геологией и биологией	
	(483). в) Неизменность фундаментальных констант во времени (483).	105
Цı	итированная литература	485

#### 1. ВВЕДЕНИЕ

Открытие естественного ядерного реактора в Габоне (Западная Африка) было, пожалуй, одним из самых захватывающих событий в реакторной физике, с тех пор как Энрико Ферми с сотрудниками в 1942 г. получил самоподдерживающуюся цепную реакцию деления искусственным путем.

В наше время вероятность случайного образования в природных условиях ядерного реактора пренебрежимо мала. Для развития цепной реакции необходимо, чтобы коэффициент размножения k — отношение числа вторичных нейтронов к первичным — был больше или равен единице. Для больших реакторов  $k = k_{\infty}P$ , где P — вероятность нейтрону избежать утечки из реактора при замедлении и диффузии, а  $k_{\infty}$  — коэффициент размножения в бесконечной среде, величина, не зависящая от геометрических размеров системы. Из условия  $k \ge 1$  следует, что по крайней мере  $k_{\infty} > 1$ , чего даже целенаправленным путем не так-то легко добиться.

Дело в том, что естественный уран содержит всего лишь 0,72% делящегося изотопа<sup>235</sup>U. Остальное составляет <sup>238</sup>U, способный только на радиационный захват замедляющихся нейтронов деления. Правда, в области тепловой энергии нейтронов малое содержание <sup>235</sup>U компенсируется большим сечением деления (табл. I). Если вычислить число вторичных нейтронов η, образующихся в результате захвата одного теплового нейтрона в естественном уране:

$$\eta = \frac{\nu \zeta \sigma_f^{U5}}{\sigma_a^U}, \qquad \sigma_a^U = (1 - \zeta) \, \sigma_{\gamma}^{U8} + \zeta \, (\sigma_{\gamma}^{U5} + \sigma_f^{U5}) \tag{1.1}$$

(здесь  $\zeta = \zeta_0$  — современная доля <sup>235</sup>U в изотопной смеси,  $\sigma_a^{\rm U}$  — среднее по изотопам сечение поглощения урана), то оказывается, что  $\eta = 1,34$ , т. е. больше единицы. Но, чтобы достичь тепловой энергии при замедлении от энергии деления ( $E_f = 2 \ M \mathfrak{I}_{\mathcal{B}}$ ), нейтрону еще необходимо избежать

О Главная редакция физико-математической литературы издательства «Наука», «Успехи физических наук», 1977 г.

Таблица I

Элемент	235U92	238U92	239Pu <sub>94</sub>					
$ar{ au}_i, \  extsf{net}\ ar{ au}_{\gamma}^i, \ eta  au\ ar{ au}_{f}^i, \ eta  au\ au  au\ au\ au  au\ au  au\ auu$	$1,03.10998,6\pm1,5582,2\pm1,3144\pm6275\pm52,412\pm0,008$	$ \begin{array}{c} 6,50 \cdot 10^9 \\ 2,70 \pm 0,02 \\ - \\ 275 \pm 5 \\ - \\ - \\ - \\ - \\ - \\ - \\ - \\ - \\ - \\ -$	$3,52 \cdot 10^{4}$ $268,8\pm 3$ $742,5\pm 3$ $200\pm 20$ $301\pm 10$ $2,871\pm 0,006$					
Обозначения: $\tau_i$ — период распада; $\sigma_{\gamma}^i$ и $\sigma_f^i$ — сечения радиационного захвата и деления нейтронов при тепловой энергии $E_{\text{th}} = 0.0253$ зе (скорость $v = 2200$ м/сек); $I_{\gamma}^i$ и $I^i$ — резонансные интегралы рационного захвата и це-								

щихся на один акт деления на тепловых нейтронах.

 $\sigma^i$  (E) dE/E;  $v_i$  — число вторичных нейтронов, приходя-

ления.

взятые по спектру надтепловых нейтронов:

захват в мощных резонансах сечения поглощения <sup>238</sup>U. Доля нейтронов деления, ставших тепловыми, должна быть не мала. Этого можно добиться, смешивая природный уран с замедлителем, помогающим нейтронам проскочить опасную область резонансного захвата. Однако, увеличивая вероятность избежать резонансный захват  $\varphi$ , замедлитель из-за наличия собственного поглощения тепловых нейтронов ( $\sigma_a^{sl}$ ) уменьшает  $\vartheta$  — долю тепловых нейтронов, захваченных непосредственно в уране. Существует оптимальное соотношение между концентрацией замедлителя  $N_{sl}$  и концентрацией урана  $N_{\rm U}$ , при котором  $k_{\infty}$  максимально:

$$k_{\infty} = \eta \varepsilon \varphi \vartheta, \qquad \vartheta = \sigma_a^{\mathrm{U}} N_{\mathrm{U}} \left( \sigma_a^{\mathrm{U}} N_{\mathrm{U}} + \sigma_a^{sl} N_{sl} \right)^{-1} \tag{1.2}$$

(є учитывает размножение на быстрых нейтронах деления в <sup>238</sup>U и в лучшем случае увеличивает  $k_{\infty}$  на несколько процентов). Чтобы уменьшить резонансный захват в <sup>238</sup>U, уран помещают в блоки, размер и расстояние между которыми оптимизируются (см., например, <sup>2</sup>). Только такие слабо поглощающие замедлители, как D<sub>2</sub>O, C, Be и BeO, позволяют получить  $k_{\infty} > 1$ . В природе концентрированная тяжелая вода отсутствует, а случайное образование смеси естественного урана с реакторно чистым графитом или бериллием, да еще в нужной блочной геометрии, вряд ли возможно.

При оптимальной концентрации природного урана в легкой воде значение  $k_{\infty}$  меньше единицы, хотя и близко к ней. Поэтому в энергетических реакторах, где замедлителем и теплоносителем является обычная вода, используется уран, предварительно обогащенный изотопом <sup>236</sup>U. При изменении  $\zeta$  от 0,72 до 3% значение  $\eta$ , согласно (1.1), возрастает с 1,34 до 1,83. Величина  $\vartheta$  при этом также растет, поскольку  $\sigma_a^{U}$  увеличивается в три раза: с 7,6 до 23 *бн*. Так как  $\varphi$  практически не меняется, то в результате  $k_{\infty}$  увеличивается настолько, что становится возможным использовать внутри активной зоны в качестве конструкционного материала цирконий и даже умеренно поглощающую нейтроны нержавеющую сталь <sup>3</sup>.

В 1953 г. Везэрилл и Ингрэм <sup>4</sup> обратили внимание на тот факт, что в далеком прошлом уран был много богаче изотопом <sup>235</sup>U, благодаря меньшему, чем у изотопа <sup>238</sup>U, периоду распада (см. табл. I). Исходя из современной концентрации урана в урановой смоляной руде, они пришли к выводу, что около двух миллиардов лет назад, когда доля <sup>235</sup>U, превышала 3%, условия могли приближаться к критическим. Тремя годами позже Курода <sup>5</sup> показал, что если в далеком прошлом в подобных месторождениях присутствовала вода, то могло даже выполняться условие  $k_{\infty} > 1$  и возникнуть самопроизвольная цепная реакция. Однако до недавнего времени никаких следов работы естественного реактора не было обнаружено.

# 2. ИСТОРИЯ ОТКРЫТИЯ ЕСТЕСТВЕННОГО РЕАКТОРА

7 июня 1972 г. во время рутинного масс-спектрометрического анализа на заводе в Пьерлатте (Франция), производящем обогащенное топливо, Бузигу<sup>6,7</sup> обнаружил, что исходный гексафторид урана содержит 0,717% атомов <sup>235</sup>U вместо значения 0,720%, обычного для земных пород, метеоритов и образцов лунного грунта. Французский Комиссариат по атомной энергии (CEA) начал расследование причин этой аномалии.

Простейшая гипотеза о загрязнении урана обедненными «хвостами» разделительного процесса после проверки оказалась неправильной. Через многочисленные ступени производственного процесса аномалия была прослежена вплоть до рудообогатительной фабрики в Мунане вблизи Франсвиля (Габон). Исходная руда со средним содержанием урана 0,4—0,5% поступала туда из месторождения Окло.

Изотопный анализ богатых ураном образцов показал значительное обеднение изотопом <sup>235</sup>U, а также отклонение от природного распределения именно тех редкоземельных изотопов, которые являются продуктами деления <sup>6.8</sup>. Это и послужило доказательством существования в далеком прошлом самопроизвольной цепной реакции. На само доказательство ушло менее трех месяцев.

Из ретроспективного анализа документов и проб обогатительной фабрики в Мунане следовало, что в 1970—1972 гг. на переработку поступала руда, содержащая временами до 20% урана, обедненного до 0,64% изотопом <sup>235</sup>U<sup>9</sup>. Учитывая, что руда при добыче перемешивалась, концентрация урана в отдельных образцах могла быть еще выше, а обеднение сильнее. Всего обедненного урана, принявшего участие в цепной реакции, было добыто более 700 *m*, причем дефицит (незамеченный первоначально) составил примерно 200  $\kappa^2$  <sup>235</sup>U.

По соглашению с правительством Габона компания по разработке урановых руд Франсвиля (COMUF) согласилась приостановить добычу в районе расположения естественного реактора. Франко-габонская группа во главе с Р. Нодэ приступила к систематическому изучению феномена Окло. Многочисленные образцы, полученные бурением, были разосланы для анализа во многие лаборатории мира, в том числе и в СССР <sup>10</sup>. Результаты были сведены воедино на симпозиуме МАГАТЭ, состоявшемся в Либревиле (Габон) летом 1975 г. Они позволили воссоздать картину работы реактора в эпоху докембрия.

Месторождение Окло, согласно данным, полученным U/Pb-методом, сформировалось  $(1,81 \pm 0.05) \cdot 10^9$  лет тому назад <sup>11</sup>. В дельте древней реки образовался осадочный слой песчаника, богатого ураном, толщиной 4—10 м и шириной 600—900 м<sup>12</sup>. Слой покоился на базальтовом ложе, которое затем под действием тектонических процессов опустилось на глубину в несколько километров. При этом опускании урановая жила растрескивалась и в нее проникали грунтовые воды. Они-то и создали ситуацию, благоприятную для образования естественного реактора. Десятки миллионов лет назад произошло заключительное поднятие месторождения до современного уровня.

В руде со средней весовой концентрацией урана 0,5% содержатся глинистые линзы, в которых концентрация урана доходит до 20-40%



Рис. 1. Расположение активных зон реактора Окло.

1 — песчаник, 2 — граница добытой руды, 3 — склон карьера, 4 — дно карьера, 5 — уничтоженная часть реактора, 6 — разведанная часть реактора, 7 — участок, предназначенный для сохранения <sup>7,9</sup>.



Рис. 2. Схематический разрез карьера. 1 — богатая ураном жила, 2 — рудное тело, 3 — склон карьера, 4 — профиль карьера, 5 — дно карьера, 6 — добытая руда, 7 — зондаж 7.9.

и более. Линза представляет собой компактное рудное тело размером от 10 до 20 *м* и толщиной порядка метра. Образование линз со сверхвысокой концентрацией урана объясняется действием фильтрационных вод, хотя детальная картина их возникновения не ясна <sup>13</sup>. Именно в них и происходила цепная реакция. Всего на расстоянии несколько десятков метров было обнаружено шесть очагов реакции (рис. 1, 2) <sup>9</sup>. Два из них были частично выработаны, остальные четыре еще не вскрыты. Предполагается, что часть зоны Z2 будет сохранена в качестве природного памятника <sup>9</sup>, <sup>13</sup>.

#### 3. ПАРАМЕТРЫ РЕАКТОРА

# а) Возраст

Возраст реактора  $t_0$  можно определить, зная число сгоревших  $N_{\rm U5}^a$  (— $t_0$ ) и доживших до наших дней  $N_{\rm U5}$  (0) атомов <sup>235</sup>U.

В момент цепной реакции справедливо уравнение баланса

$$\frac{dN_{\mathbf{U5}}}{dt} = -\left(\langle \sigma_a^{\mathbf{U5}} \Phi \rangle + \frac{1}{\tau_5}\right) N_{\mathbf{U5}} + \frac{N_{\mathbf{Pu9}}}{\tau_9},\tag{3.1}$$

где  $\langle \sigma_a^{U5} \Phi \rangle$  — усредненное по нейтронному спектру произведение сечения захвата <sup>235</sup>U на нейтронный поток  $\Phi$ , а  $\tau_5$  и  $\tau_9$  — периоды распада <sup>235</sup>U и <sup>239</sup>Pu. Последний член в (3.1) описывает поступление <sup>235</sup>U за счет  $\alpha$ -распада <sup>239</sup>Pu, образующегося в цепочке <sup>238</sup>U  $(n, \gamma) \rightarrow {}^{239}$ U  $(2\beta^{-}) \rightarrow {}^{239}$ Pu.

Предполагая, что продолжительность работы реактора *d* была много больше  $\tau_9$  и нейтронный поток слабо менялся за время *d*, можно считать, что концентрация плутония успевает прийти в равновесие:

$$N_{\mathrm{Pu}9} = \langle \sigma_{\gamma}^{\mathrm{U8}} \Phi \rangle \, \tau_9 N_{\mathrm{U8}} \, (1 + \langle \sigma_a^{\mathrm{Pu}9} \Phi \rangle \, \tau_9)^{-1}, \qquad \tau_9 \ll d. \tag{3.2}$$

Тогда из (3.1) для относительной концентрации <sup>235</sup>U в наши дни ζ приближенно следует

$$\zeta = \frac{N_{U5}(0)}{N_{U8}(0)} = \zeta_0 e^{-\langle \sigma_a^{U5} \psi \rangle} [1 + C (e^{\langle \sigma_a^{U5} \psi \rangle} - 1)],$$
  

$$C = \frac{\langle \sigma_{\gamma}^{U8} \Phi \rangle e^{-t_0/\tau_0}}{\langle \sigma_a^{U5} \Phi \rangle \zeta_0 [1 + \langle \sigma_a^{Pu9} \Phi \rangle \tau_9]}, \quad \frac{1}{\tau_0} = \frac{1}{\tau_5} - \frac{1}{\tau_8}, \quad (3.3)$$

где  $\zeta_0$  — современная концентрация <sup>235</sup>U в природном уране, а  $\psi = \int_0^d \Phi(t) dt - \phi$ люенс (интегральный поток нейтронов). Для доли сго-

ревших атомов <sup>235</sup>U получаем

$$\delta = \frac{N_{\rm U5}^a \, (-t_0)}{N_{\rm U8} \, (0)} = e^{t_0/\tau_5} \int_0^{\psi} \zeta \left(\psi'\right) \langle \sigma_a^{\rm U5} \rangle \, d\psi'. \tag{3.4}$$

Измеряя в одной и той же точке реактора три величины:  $\zeta$ ,  $\delta$  и  $\psi$  из (3.3), (3.4) можно найти две неизвестные: возраст  $t_0$  и коэффициент конверсии <sup>238</sup>U в <sup>235</sup>U, обозначаемый *C*. Приведенные формулы носят иллюстративный характер, в действительности обработка экспериментальных данных производилась путем решения уравнений на ЭВМ.

Концентрация  $\zeta$  определяется с хорошей точностью при изотопном анализе выгоревшего урана. Для нахождения  $\delta$  используются несколько независимых способов. Например,  $\delta$  можно определить, измерив относительную концентрацию <sup>232</sup>Th, образующегося в цепочке <sup>235</sup>U  $(n, \gamma) \rightarrow 2^{380}$ U  $(\alpha) \rightarrow 2^{322}$ Th <sup>14, 15</sup>.

Другой способ определения  $\delta$  заключается в измерении относительной концентрации какого-либо из осколков деления. При слабом выгорании изотопа *i* последняя равна  $\gamma_i \delta \langle \sigma_j^{U5} \rangle / \langle \sigma_a^{U5} \rangle$ , где  $\gamma_i$  — выход при делении. Для этой цели особенно удобен неодим, природное распределение изотопов которого сильно отличается от их выхода при делении <sup>235</sup>U тепловыми нейтронами (табл. II<sup>86</sup>). В частности, продукты деления не содержат изотопа <sup>142</sup>Nd, так что по его количеству можно определить содержание природного неодима в руде и исключить его. После внесения поправок изотопное распределение прекрасно согласуется с делительным выходом (см. последние две строки табл. II), что и послужило убедительным аргументом в пользу осуществления цепной реакции деления в Окло<sup>6</sup>. Наряду с Nd/U измерялись соотношения Sm/U, Eu/U, Rb/U и др.<sup>8, 14-16</sup>. В итоге значение δ удается определить с точностью от одного до нескольких процентов.

Т	a	б	л	и	п	a	II
	-	-		_	-	~	_

Изотопы Nd	142		143		144		
$\sigma^i_{\gamma}, \ \delta \mu^i$	18,7±0,7	7	325-	±10 *)	<b>3,6±</b> 0, <b>3</b>		
$I_{\gamma}^{i}$ , 6 $\mu^{1}$ Природное содержание, % Деление <sup>235</sup> U, % 95% делений <sup>235</sup> U+ +5% делений <sup>238</sup> U, % Пробы Окло, %	9 <u>+</u> 1 27,11 0 0		$\begin{array}{c ccccc} 140 \pm 30 & 5,0 \pm 0, \\ & 36,02 \\ & 55,18 \\ & 54,78 \\ & 54,95 \end{array}$			5,0 <u>+</u> 0,5	
Изотопы Nd	145	146		148		150	
$\sigma_{\gamma}^{i}$ , бн <sup>1</sup> $I_{\gamma}^{i}$ , бн <sup>1</sup> Природное содержание, % Деление <sup>235</sup> U, % 95% делений <sup>235</sup> U+ +5% делений <sup>238</sup> U, % Пробы Окло, %	$ \begin{array}{c c} 42\pm2 \\ 240\pm35 \\ 25 \\ 33 \\ 33 \\ 33 \\ 33 \end{array} $	1,4 3,5 ,52 ,53 ,65 ,46	4±0,1 2±0,5	$2,5\pm0,$ $19\pm1$ 5,73 8,16 8,28 8,25	2	$1,2\pm0,214\pm25,623,133,293,34$	
*) Усредненное по нейтронному спектру типичного легководного реактора экспериментальное значение (σ <sup>Nd3</sup> ) = 266 6n <sup>16</sup> .							

В формулы (3.3), (3.4) входит флюенс ψ. Его можно измерить, используя пару изотопов, один из которых сильно поглощает нейтроны, а другой слабо. Накопление стабильного изотопа *i* описывается уравнением типа (3.1):

$$\frac{dN_i}{dt} = -\langle \sigma_a^i \Phi \rangle N_i + \langle \sigma_a^{i-1} \Phi \rangle N_{i-1} + \gamma_i \langle \sigma_f^{U5} \Phi \rangle N_{U5}.$$
(3.5)

Если  $\langle \sigma_a^i \psi \rangle \ll 1$ , то выгоранием изотопа *i* можно пренебречь. В обратном предельном случае  $\langle \sigma_a^i \psi \rangle \gg 1$  в (3.5) можно пренебречь производной и успевает установиться равновесная концентрация, которая следит за изменением во времени  $N_{\rm U5}$ . Поэтому при  $\langle \sigma_a^i \psi \rangle \ll 1 \ll \langle \sigma_a^k \psi \rangle$  имеем

$$\frac{N_k}{N_i} = \frac{\gamma_k \zeta}{\gamma_i \bar{\zeta} \langle \sigma_a^k \psi \rangle} , \qquad (3.6)$$

где  $\overline{\zeta}$  — средняя за время реакции концентрация <sup>235</sup>U. Оказывается, что в активной зоне  $\langle \sigma_a^{U5}\psi \rangle \sim 1$  (это соответствует флюенсу  $\psi \sim \sim 10^{21} \ \mu/cm^2$ ) и условие  $\langle \sigma_a^k\psi \rangle \gg 1$  можно заменить на  $\sigma_a^k \gg \sigma_a^{U5}$ . Этому требованию удовлетворяют изотопы <sup>113</sup>Cd, <sup>149</sup>Sm, <sup>151</sup>Eu, <sup>155</sup>Gd и <sup>157</sup>Gd, сильно поглощающие тепловые нейтроны. Благодаря большому знаменателю в формуле (3.6) их вывод резко (на порядок и больше) уменьшается по сравнению с остальными. Одновременно концентрация следующего (k + 1)-го изотона, согласно (3.5), возрастает. Это явление наблюдалось на опыте <sup>16, 17</sup>а (рис. 3). Само по себе оно сразу же указывает на протекание цепной реакции именно на тепловых нейтронах.

Для определения у использовались также и изотопы с сечением, сравнимым с  $\sigma_a^{US}$ , например, <sup>143</sup>Nd <sup>16</sup> (см. табл. II). Результаты обработки данных по многим пробам дают для возраста значение  $t_0 = (1,84 \pm 0.07) \cdot 10^9$ реактора 2,0 лет <sup>15</sup>.

Существенную погрешность при вычислении to вносит ошибка в определении доли <sup>235</sup>U, образовавшегося за счет распада <sup>239</sup>Pu (член, содержащий С в формуле (3.3)). Эта доля составляет для ряда проб около 50% и зависит от полного времени работы реактора. Вообще формулы типа (3.3), (3.4) справедливы, если: 1) не менялось во времени отношение резонансных нейтронов к тепловым; 2) уран в процессе реакции дополнительно не поступал и не терялся после ее окончания; 3) осколки деления существенным образом не мигрировали за прошедшие два миллиарда лет. На величину to может также оказать влияние уточнение температуры



3. Выгорание <sup>113</sup>Cd в Рис. реакторе Окло. 1 — выход изотопов Cd относительно 116Cd при делении, 2 — то же для пробы и з Окло <sup>17</sup>.

разных участков активной зоны. Группа ученых США считает, что, наиболее вероятно, t<sub>0</sub> лежит между 1,7 и 1,9 млрд. лет <sup>15, 16</sup>. Французская группа приводит также значение 2 млрд. лет <sup>14</sup>. Эта величина уменьшается до 1,8 млрд. лет, если при обработке экспериментальных данных использовать принятое американской группой значение сечения поглощения <sup>143</sup>Nd:  $\langle \sigma_{a}^{\text{Nd3}} \rangle = 266 \ \bar{6} \mu$  вместо  $325 \ \bar{6} \mu$  (см. примечание к табл. II).

# б) Продолжительность цепной реакции

Продолжительность работы реактора d может быть определена по количеству образовавшегося <sup>239</sup> Ри. При  $d \gg \tau_9$  равновесная концентрация плутония определяется нейтронным потоком Ф (см. (3.2)). Если для одной и той же пробы известны  $\psi$  и  $\Phi$ , то среднее время работы реактора d ==  $\psi/\Phi$ . Отделить разделившийся плутоний от урана можно по относительному выходу изотопов неодима 150/(143 + 144). Для <sup>239</sup>Ри он составляет 0,1175, а для <sup>235</sup>U — 0,0566 <sup>16</sup>. К сожалению, доля делений <sup>239</sup>Pu от полного числа делений составляет всего лишь несколько процентов и сравнима с долей делений <sup>238</sup>U на быстрых нейтронах, для которого упомянутое изотопное отношение равно 0,1336<sup>16, 18</sup>. В результате d определяется с гораздо худшей точностью, чем t<sub>0</sub>. Совместная с t<sub>0</sub> подгонка по методу наименьших квадратов дает для простейшей модели (без поступления и потерь урана) значение  $d = (0.23 \pm 0.07) \cdot 10^6$  лет <sup>16</sup>. Однако сами авторы расценивают его скорее как нижнюю границу из-за недостаточно точного учета делений <sup>238</sup>U на быстрых нейтронах. Учет этого вклада приводит к оценке:  $d \sim 0.6$  млн. лет <sup>18</sup> и даже 0.8 млн. лет <sup>176</sup>.

### в) Нейтронный поток

На рис. 4 приведено одно из многочисленных распределений интегрального нейтронного потока у по активной зоне, полученных в результате комплексного анализа проб (главным образом изотопного отношения <sup>144</sup>Nd/<sup>143</sup>Nd). Усы показывают пределы изменения ф в зависимости от предположения о моменте загрязнения естественным неодимом: до начала цепной реакции или после ее конца <sup>19</sup>. Как и следовало ожидать, пространственный ход выгорания урана, приведенный на том же рисунке, связан с распределением ψ.



Рис. 4. Распределение интегрального потока нейтронов ψ, концентрации изотопа <sup>235</sup>U в уране (ζ) и содержания урана в руде. По оси абсцисс отложены номера проб в соответствии с нумерацией, принятой для Окло<sup>19, 20, 21</sup>

Штриховая кривая на рис. 4 показывает распределение весовой концентрации урана в руде<sup>20</sup>. Она резко меняется на расстоянии около 1,4 м.

Следовательно, толщина активной зоны (с учетом наклона пласта на 45°) составляет примерно 1 *м.* В районе 400—401 наблюдается всплеск нейтронного потока. Это происходит из-за того, что концентрация урана и, следовательно, макроскопическое сечение захвата тепловых нейтронов  $\Sigma_a^U = \sigma_a^U N_U$  в этом районе падают. Кроме того, как показывает химический анализ<sup>22</sup>, как раз в этом

же районе в 2-3 раза выше концентрация воды, что увеличивает плотность замедляющихся нейтронов q. Поскольку пространственная диффузия тепловых нейтронов мала по сравнению с их захватом, то  $\Phi \sim q/\Sigma_a$ и с ростом  $q/\Sigma_a$  возникает локальный всплеск  $\Phi$ . В результате образуется нейтронная ловушка, очень похожая на те, которые специально устанавливают на современных мощных исследовательских реакторах (таких, как СМ и ПИК) для получения высокого потока тепловых нейтронов <sup>23</sup>. Судя по концентрации воды и урана, подобная же ловушка должна была образоваться в районе 409, но значительное загрязнение природным неодимом (в 16 раз большее, чем в 400) <sup>21</sup>, <sup>22</sup> делает данные в этой области ненапежными.

### г) Мощность

Общее количество выработанной реактором энергии оценивается в 1,5 · 10<sup>4</sup> *Мет* · лет<sup>7</sup>. Два блока Ленинградской АЭС при 100%-ной загрузке вырабатывают такое же количество энергии за 2,3 года. Если принять среднюю продолжительность работы реактора Окло d = 0,6 млн. лет, то его средняя мощность составляла всего лишь 25 кет. Поэтому, несмотря на то, что флюенс в отдельных областях зоны достигал  $\psi = 1,5 \times 10^{21}$  нейтрон/см<sup>2</sup>, поток тепловых нейтронов  $\Phi = \psi/d$  не превышал 10<sup>8</sup> нейтрон/см<sup>2</sup> сек. д) Нейтронный баланс и регулирование

Хотя изучение физики реактора Окло находится еще в начальной стадии, картина протекания цепной реакции в общих чертах уже ясна. Подсчет нейтронного баланса показывает, что условия критичности для реактора Окло должны были выполняться <sup>24</sup>.

Как видно из рис. 4, концентрация урана в активной зоне значительна, а два миллиарда лет тому назад она была на 40% выше. Уран в руде связан в двуокись UO<sub>2</sub>. Главные компоненты остальной породы, исключая воду, приведены в табл. III.

Т	a	б	л	и	ц	a	III
---	---	---	---	---	---	---	-----

	$SiO_2$	$Al_2O_3$	FeO	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	MgO
%	41	24	13	4	10

Перечисленные в таблице элементы являются умеренными поглотителями нейтронов. Наибольшим сечением поглощения обладает железо ( $\sigma_{a}^{\text{re}} = 2,55 \, \text{ Gh}^{-1}$ ).

Вода в руде представлена в двух видах. Более половины составляет связанная вода, которая улетучивается при лабораторном нагревании минералов выше 500—600°. Другая часть является свободной и пропитывает руду, заполняя пустоты. Плотность молекул воды колеблется в интервале  $0,3-0,5 \ z/cm^3$ . При современной весовой концентрации урана 30%-отношение весов  $H_2O/UO_2$  в прошлом было 0,2 и выше. Это лежит как раз в диапазоне значений для водо-водяных энергетических реакторов (BBЭP), где также используется в качестве топлива  $UO_2$  примерно с тем же обогащением изотопом <sup>235</sup>U. Поскольку размеры активных зон Окло сопоставимы с зонами BBЭP, то еще до всяких расчетов можно ожидать, что условие k = 1 будет выполнимо.

Прямые вычисления  $k_{\infty}$  для различных участков активной зоны дают значения 0,9—1,1 в зависимости от концентрации воды и урана <sup>24</sup>. Относительно высокая температура и сравнительно жесткий спектр нейтронов снижают значения  $\eta$  с 1,83 (см. гл. 1) до 1,74—1,78. Величина  $\varepsilon$  (см. (1.2)) превышает единицу на 1,5—5%. Вероятность избежать резонансного захвата  $\varphi$  изменяется от 0,85 до 0,7 при изменении весовой концентрации урана от 20 до 50%.

Вероятность утечки из реактора 1 - P определяется его размерами и площадью миграции  $M^2$  — средним квадратом расстояния от точки рождения быстрого нейтрона до точки его захвата (уже тепловым). Активную зону реактора Окло можно считать плоским блином толщиной  $H \sim 1$  м. При постоянном по зоне распределении горючего и воды для вероятности избежать утечки из такого реактора приближенно справедлива формула  $P = (1 + B^2 M^2)^{-1}$ , где  $B = \pi H^{-1}$ . Значение  $M^2$  в основном определяется замедлением на водороде воды и составляет 50—60 см<sup>2</sup>, так что  $P \approx 0.95$ . Таким образом, расчет критичности показывает, что  $k = k_{\infty}P \approx 1$  и реактор Окло действительно должен был действовать.

Возникает вопрос: почему реактор не взорвался в первые же моменты работы? Ответ состоит в том, что реакторы такого типа имеют отрицательный температурный коэффициент и работает тот же механизм саморегулирования, который делает устойчивой и безопасной работу АЭС. Температура в реакторе Окло могла достигать 300 °С и более, так что вся кристаллически несвязанная вода обращалась в пар. Если временно выполнялось условие k > 1, то мощность и температура реактора росли и при постоянном внешнем давлении концентрация молекул водяного пара в зоне падала. Это снижало k за счет уменьшения  $\varphi$  и роста  $M^2$ . В результате вновь восстанавливалось условие k = 1 и цепная реакция стабилизировалась, но теперь уже на более высоком уровне мощности.

Рост доли воды в активной зоне мог также частично компенсировать выгорание урана и обеспечить работоспособность реактора в течение длительного времени. Другой способ компенсации заключается в выгорании исходных сильнопоглощающих примесей. В частности, таким компенсатором мог быть бор, обнаруженный в руде Окло<sup>24</sup>. На начальном этапе работы вносили также свой вклад и изотопы редкоземельных элементов, имеющие гораздо бо́льшие сечения поглощения тепловых нейтронов, чем бор. В связи с этим Р. Нодэ предложил интересную модель работы реактора: по мере выгорания сильных поглотителей на одном краю активной зоны и урана на противоположном сама активная зона перемещается и цепная реакция, как огонь по мокрому полену, медленно двигается поурановой жиле<sup>25</sup>. В этом случае разные участки зоны работали неодновременно и, возможно, с разной продолжительностью.

Итак, вся совокупность данных о феномене Окло находит естественное объяснение в рамках реакторной физики.

### 4. СЛЕДСТВИЯ ОТКРЫТИЯ ФЕНОМЕНА ОКЛО

#### a) Хранение радиоактивных отходов

Удивительный факт сохранения до наших дней следов работы естественного реактора представляет большой интерес для изучения проблемы захоронения отходов атомной энергетики. Как показывают исследования, проведенные с этой точки зрения <sup>26, 27</sup>, сам реактор оказался прекрасным хранилищем радиоактивных отходов. Миграция в течение почти двух миллиардов лет тяжелых элементов: тория, урана и плутония была крайне мала. Остались на месте редкоземельные элементы и многие более легкие продукты деления. Они оказались в тех же самых зернах уранинита, чтои выгоревший уран, и не выходили в окружающую минералы глину<sup>28</sup>. Именно это обстоятельство и позволило проделать анализы, результаты которых изложены в предыдущем параграфе. Многие из легких осколков: пирконий, рутений, родий, палладий, ниобий, серебро также сохранились. почти полностью. Напротив, инертные газы, криптон и ксенон, почти полностью ушли, причем, судя по недостатку продуктов их распада, они покидали реактор еще в процессе его работы. Металлы, легко растворимые в воде, сохранились только частично. Однако, как показывает анализ распределения изотопа <sup>90</sup>Sr (т<sub>90</sub> = 41 год), около 95% которого успело распасться в <sup>90</sup>Zr внутри реактора, миграция их была невелика в течение времени порядка т<sub>90</sub><sup>29</sup>. Радиогенный свинец сохранился толькочастично из-за сильного изменения химических свойств в цепочке последовательных радиоактивных превращений.

Наибольший интерес для изучения миграции осколков представляет «зона загрязнения», расположенная на границе реактора и остальной руды. Окончательные выводы здесь еще впереди. Однако уже предварительное изучение результатов эксперимента, поставленного природой в течение почти двух миллиардов лет, позволяет надеяться на длительное безопасное хранение радиоактивных отходов атомной энергетики <sup>30</sup>.

# б) Связь с геологией и биологией

Цепная реакция возникла вскоре или почти одновременно с образованием месторождения Окло. Поэтому результаты датирования окружающей руды традиционными методами U/Pb, Rb/Sr, K/Ar можно сравнить с определенным, независимо, возрастом естественного реактора, что представляет интерес для геохронологии.

Другим очевидным следствием открытия реактора Окло является необходимость поиска новых реакторов. Как показывает опыт, делать это надо, тщательно анализируя изотопный состав урана масс-спектрометрическим методом.

Естественный реактор работал в важную с точки зрения биологической эволюции эпоху докембрия (> $6 \cdot 10^8$  лет). Возраст реактора совпадает с периодом перехода прокариотов — клеток без ядра — к более сложным одноклеточным, имеющим ядро, — эукариотам (1,7—2,1 \cdot 10<sup>9</sup> лет тому назад). Реактор Окло создавал повышенный уровень радиации и мог оказывать локальное влияние на частоту мутаций одноклеточных. Результаты предварительных исследований показывают заметно более высокую степень эволюции органической материи по мере приближения к реактору <sup>31</sup>.

#### в) Неизменность фундаментальных констант во времени

Реактор Окло является прибором, чувствительным к величине нейтронных сечений в далеком прошлом. Сравнивая их с современными значениями, можно оценить, в какой мере они, а значит, и фундаментальные константы постоянны во времени <sup>32</sup>.

В 1937 г. Дирак высказал гипотезу об изменении со временем гравитационной константы <sup>33</sup>. Причиной малости гравитационного взаимодействия двух протонов по сравнению с электромагнитным он считал уменьшение гравитационной постоянной обратно пропорционально времени существования Вселенной *Т*. Г. Гамов заменил гипотезу Дирака предположением о линейном росте электромагнитной константы:  $\alpha = e^2/\hbar c \sim$  $\sim T$ <sup>34</sup>. Не вдаваясь в существо аргументов этих и многих других работ на эту тему (см. обзор <sup>35</sup>), следует признать, что привычное убеждение в неизменности безразмерных констант различных фундаментальных взаимодействий нуждается в экспериментальной проверке <sup>36</sup>.

Отсутствие каких-либо аномалий в тонком расщеплении спектральных линий ионов О и Mg в излучении, приходящем из далеких галактик с красным смещением 0,17—0,5, приводит к ограничению  $\dot{\alpha}/\alpha < 2 \cdot 10^{-12} \text{ лет}^{-1} 37$ . Более жесткий предел получил Ф. Дайсон, анализируя β-распад долгоживущих ядер <sup>187</sup>Re  $\rightarrow$  <sup>187</sup>Os и <sup>40</sup>K  $\rightarrow$  <sup>40</sup>Ar:  $\dot{\alpha}/\alpha < 2 \cdot 10^{-14} \text{ лет}^{-1} 35$ . Время жизни  $\tau = 6 \cdot 10^{10}$  лет у <sup>187</sup>Re велико из-за малой энергии перехода ( $\Delta E = 2,5 \ \kappa 2\theta$ ), и небольшое изменение  $\alpha$ , приводящее к иной разности полных кулоновских энергий дочернего и материнского ядер, сильно меняет  $\Delta E$ и  $\tau$ . Этот же анализ дал для константы слабого взаимодействия ( $\beta = Gm_p^2 = 10^{-5}$ ) ограничение  $\dot{\beta}/\beta < 10^{-10} \ \text{лет}^{-1}$ . Дэвис рассмотрел дополнительную возможность изменения  $\Delta E$  за счет влияния на плотность. ядерной материи изменения константы сильного взаимодействия  $g_s^3$ (условно сильное взаимодействие характеризуется одной константой), и получил ограничения на ее вариацию со временем, по порядку величины, совпадающую с ограничения для  $\alpha^{38}$ . Недавно А. И. Шляхтер заметил, что чувствительность к изменениям ядерного потенциала возрастает на несколько порядков, если обратиться к нейтронному захвату<sup>32</sup>. Благодаря резким резонансам сечения поглощения ядро является остро настроенным приемником нейтронов. Резонанс на энергетической шкале сдвигается при изменении ядерного потенциала аналогично смещению частоты приема в обычном радиоприемнике при изменении параметров резонансного контура.

У сильных поглотителей, перечисленных в предыдущем параграфе, резонанс расположен вблизи нулевой энергии нейтрона, а сама энергия резонанса порядка захватной ширины:  $E_{\Gamma} \sim \Gamma_{\gamma} \sim 0.1$  эв. Для них сечение захвата тепловых нейтронов резко меняется при сдвиге резонанса на величину порядка  $\Gamma_{\gamma}$ . Обработка экспериментальных данных для <sup>149</sup>Sm и <sup>151</sup>Eu по формуле (3.6) с учетом тройной стандартной ошибки и неопределенности в температуре показывает, что сдвиг резонансов  $\Delta E_{\Gamma}$  со времени работы реактора Окло не превышает 0,05 эв<sup>32</sup>. Заметим попутно, что можно обойтись без определения флюенса  $\psi$ , входящего в формулу (3.6), если для двух сильных поглотителей известны значения  $N_{\rm R}/N_{\rm U}$ , измеренные в одной и той же точке реактора. Для этого вместо (3.6) нужно воспользоваться соотношением

$$\frac{\langle \sigma_a^{\kappa_1} \rangle}{\langle \sigma_a^{\kappa_2} \rangle} = \frac{\gamma_{\kappa_2} N_{\kappa_2}}{\gamma_{\kappa_1} N_{\kappa_1}} , \quad \langle \sigma_a^{\kappa} \psi \rangle \, d \gg 1,$$
(4.1)

которое следует из уравнения (3.5). Сравнение отношения  $\langle \sigma_a^{k1} \rangle / \langle \sigma_a^{k2} \rangle$ , полученного из (4.1), с современным значением позволяет прямо прове-



Рис 5. Сравнение расчетных (1) и измеренных (2) концентраций осколков деления  $N_A$  относительно содержания <sup>143</sup>Nd для одной из проб Окло <sup>17</sup>6.

значением позволяет прямо проверить отсутствие сдвига резонанса одного поглотителя по отношению к другому.

Качественно отсутствие существенного сдвига околопороговых резонансов следует уже из того факта, что в реакторе Окло все современные сильные поглотители выгорели сильно, a слабые слабо. В дополнение к данным о кадмии (рис. 3) приведем еще результаты измерения концентраредкоземельных элементов ции относительно <sup>143</sup>Nd (правая ветвь массового распределения осколков деления) в одном из образцов Окло (рис. 5)<sup>17</sup>в. Провалы в распределении приходятся как раз на сильные поглотители:

<sup>149</sup>Sm, <sup>151</sup>Eu, <sup>155</sup>Gd, <sup>157</sup>Gd. Глубина выгорания, вычисленная с помощью современных значений сечения поглощения, вполне удовлетворительно согласуется с экспериментом, особенно если учесть, что нейтронный спектр, по которому следует усреднить сечение, известен недостаточно хорошо. Таким образом, за 1,8 млрд. лет, прошедших со времени работы реактора Окло, резонансы (или, иными словами, уровни составного ядра) сместились менее чем на  $\Gamma_{\gamma}/2$ , т. е. средняя скорость смещения не превышала  $3 \cdot 10^{-11}$  зе/год. Эта величина на три с лишним порядка меньше экспериментального предела на скорость изменения энергии перехода в распаде <sup>187</sup>Re <sup>35</sup>.

- Теоретических расчетов, надежно связывающих положение каждого нейтронного резонанса с параметрами ядерного потенциала, в настоящий момент нет. Однако уже предварительные качественные оценки позволяют существенно понизить предел на g<sub>s</sub>/g<sub>s</sub> и α/α <sup>32</sup>. Они подтверждают отсутствие степенной или логарифмической асимптотической зависимости от

времени существования Вселенной постоянных сильного и электромагнитного взаимодействий. Что же касается слабой и особенно СР-нечетной константы, то для них экспериментально возможность изменения с T еще не исключена. В связи с этим интересно было бы провести специальные измерения в различных точках активной зоны Окло и уточнить предел на  $\Delta E_{\Gamma}$  для различных изотопов. Кроме того, необходимы более аккуратные теоретические расчеты влияния вариаций фундаментальных констант на параметры нейтронных резонансов.

Открытие реактора Окло является значительным вкладом в различные области естественных наук. В заключение хочется подчеркнуть еще один аспект этого поразительного открытия: «оказалось, что в создании реакторов деления человек был не новатором, а невольным имитатором природы» <sup>7</sup>.

Автор благодарен И. А. Кондурову, Я. А. Смородинскому и А. И. Шляхтеру, предоставившим необходимые для обзора материалы.

Ленинградский институт ядерной физики им. Б. П. Константинова АН СССР

### ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

- S. F. Mughabghab, D. I. Garber, Neutron Cross Sections, v. 1, Resonance Parameters, 3rd ed., BNL-325, 1973.
   A. M. Weinberg, E. P. Wigner, The Physical Theory of Neutron Chain Reactors, Univ. of Chicago Press, 1959. (Имеется перевод, под ред. Я. В. Illebe-room Mult 4064) лева, М., ИЛ, 1961.) А. Д. Галанин, Теория ядерных реакторов на тепловых нейтронах, М., ИАЭ, 1959.

- А. М. Петросянц, А. П. Александров, Н. А. Доллежаль, А. И. Лейпунский, АЭ 31, 315 (1971).
   G. W. Wetherill, Phys. Rev. 92, 907 (1953).
   G. W. Wetherill, M. G. Inghram, in: Proc. of the Conference on Nuclear Processes in Geologic Settings, USA, Sept. 1953, p. 30.
   P. K. Kuroda, a) J. Chem. Phys. 25, 781, 1295 (1956); 6) The Oklo Phenomenon, Vienna, IAEA, IAEA-SM-204/4, 1975, p. 479.
   R. Bodu, H. Bouzigues, N. Morin, J.-P. Pfiffelmann, C. R. Ac. Sci. D275, 1731 (1972).
   H. Bouzigues, B. L. M. Boyer, C. Seyve, P. Taulieres, IAFA-

- Sci. D275, 1731 (1972).
  H. Bouzigues, R. J. M. Boyer, C. Seyve, P. Teulieres, IAEA-SM-204/36, цит. в<sup>56</sup> сборник, р. 237.
  7. G. A. Cowan, Scientific American 235 (1), 36 (1976).
  8. (a) M. Neuilly, J. Bussac, C. Frejacgues, G. Nief, G. Vendryes, J. Yvon, C. R. Ac. Sci. D275, 1847 (1972).
  6) J. F. Dozol, M. Neuilly, IAEA-SM-204/29, цит. в<sup>56</sup> сборник, р. 357.
  9. R. L. Boyer, R. Naudet, J.-P. Pfiffelmann, IAEA-SM-204/20, цит. в<sup>56</sup> сборник, р. 67.
  10. А. К. Круглов, В. А. Пчелкин, М. Ф. Свидерский. Ю. М. Дым-ков, Г. Н. Мощанская, О. К. Чернецов, IAEA-SM-204/8, цит. в<sup>56</sup> сборник, р. 303; АЭ 41, 3 (1976).
  10. А. Шуколюков, Г. Ш. Ашкинадзе, А. Б. Верховский, ibid., с. 53. c. 53.

- I. C. Devillers, J.-C. Ruffenach, J. Menes, M. Lucas, R. Hage-mann, G. Nief, IAEA-SM-204/26, цит. в <sup>56</sup> сборник, р. 293.

- G. A. Cowan, E. A. Bryant, W. R. Daniels, W. J. Maeck, IAEA-SM-204/2, цит. в<sup>56</sup> сборник, р. 341.
   W. J. Maeck, F. W. Spraktes, R. L. Trom p, J. H. Keller, IAEA-SM-204/2, цит. в<sup>55</sup> сборник, р. 319.
   a) J. R. De Laeter, K. J. R. Rosman, IAEA-SM-204/7, цит. в<sup>55</sup> сборник, 425
- p. 425.
- р. 425.
  б) J. C. Ruffenach, J. Menes, C. Devillers, M. Lucas, R. Ha-gemann, Earth Planet. Sci. Lett. 30, 94 (1976).
  18. R. Hagemann, C. Devillers, M. Lucas, T. Lecomte, J.-C. Ruf-fenach, IAEA-SM-204/28, цит. в<sup>56</sup> сборник, р. 415.
  19. M. Neuilly, J. F. Dozol, Bull. Inf. Sci. Tech. CEA (Paris), Nr. 193, 77 (1974).
  20. R. Naudet, C. Renson, IAEA-SM-204/23, цит. в<sup>56</sup> сборник, р. 265.
  21. M. Neuilly, R. Naudet, IAEA-SM-204/30, цит. в<sup>56</sup> сборник, р. 541.
  22. G. Branche, F. Chantret, A. Guillemaut, R. Pouget, IAEA-SM-204/17. р. 419. цит. в<sup>56</sup> сборник. р. 419.

- G. Branche, F. Chantret, A. Guillemaut, R. Pouget, IAEA-SM-204/17, p. 119, цит. в<sup>56</sup> сборник, p. 119.
   Г. А. Бать, А. С. Коченов, Л. П. Кабанов, Исследовательские ядерные реакторы, М., Атомиздат, 1972. А. Н. Ерыкалов, Д. М. Каминкер, К. А. Коноплев, Ю. В. Пет-ров, Препринт ФТИ АН СССР № 153, Ленинград, 1968.
   R. Naudet, A. Filip, IAEA-SM-204/38, цит. в<sup>56</sup> сборник, p. 527.
   R. Naudet, IAEA-SM-204/41, цит. в<sup>56</sup> сборник, p. 589.
   С. Frejacgues, C. Blain, C. Devillers, R. Наgemann, J.-C. Ruf-fenach IAEA-SM-204/24, цит. в<sup>56</sup> сборник, p. 509.
   R. D. Walton, Jr., G. A. Соwan, IAEA-SM-204/1, цит. в<sup>56</sup> сборник, p. 499.
   А. Havette, R. Naudet, G. Slodzian, IAEA-SM-204/13, цит. в<sup>56</sup> сборник, p. 463.

- ник, р. 463. 29. R. Hagemann, Panels, цит. в <sup>56</sup> сборник.
- 30. Н. А. Веthe, Scientific American 234 (1), 21 (1976) (имеется перевод: УФН 120, 455 (1976)).
- А. М. Cossou, J. Connan, M. Correia, J.-J. Orgeval, IAEA-SM-204/19, цит. в<sup>56</sup> сборник, р. 195.
   А. I. Shlyakhter, Nature 264, 340 (1976).
- А. И. Шляхтер, Препринт ЛИЯФ АН СССР № 260, Ленинград, 1976.
- P. A. M. D i r a c, a) Nature 139, 323 (1937); 6) Proc. Roy. Soc. A165, 199 (1938).
   G. G a m o w, Phys. Rev. Lett. 19, 759 (1967).
   F. J. D y s o n in: Aspects of Quantum Theory, Ed. A. Salam and E. P. Wigner,
- r. J. Dyson in: Aspects of Quantum Theory, Ed. A. Salam and E. P. Wigner, Cambridge, Univ. Press, p. 213, 1972.
   E. A. Milne, Relativity, Gravitation and World Structure, Oxford, Clarendon Press, 1935, p. 292.
   J. N. Bahcall and M. Schmidt, Phys. Rev. Lett. 19, 1294 (1967). A. M. Wolfe, R. L. Brown, M. S. Roberts, ibid. 37, 179 (1976).
   P. C. W. Davis, J. Phys. A5, 1296 (1972). B. H. Honor, M. M. Schmidt, Phys. Wolt 446, 687 (4075).

- В. П. Чечев, Я. М. Крамаровский, УФН 116, 687 (1975).