



СООБЩЕНИЯ
ОБЪЕДИНЕННОГО
ИНСТИТУТА
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

96-163

P13-96-163

С.П.Третьякова, О.М.Муньсс¹, В.А.Пономаренко, Т.Гюзель²

РЕГИСТРАЦИОННЫЕ СВОЙСТВА
СЛЮДЫ МУСКОВИТ

¹CEADEN, Гавана, Куба

²Стамбульский университет, Турция

Среди кристаллических детекторов слюда мусковит (СМ) находит широкое применение как низкочувствительный детектор в области ядерной физики, осколочной радиографии, дозиметрии и т.д.

СМ представляет собой кристалл моноклинной сингонии, совершенной спаянности по базису (001), достаточно прозрачный и эластичный. Минерал СМ легко расщепляется на слои различной толщины и может иметь большие площади.

Химический состав слюды мусковит следующий: K_2O - 11,8%,
 Al_2O_3 - 38,5%,
 O_2 - 45,2%,
 H_2O - 4,5%.

Химическая формула: $K_2Al_4(Si_6Al_2)O_{20}(OH)_4$.

Плотность СМ варьируется от 2,76 до 3,10 г/см³, может иметь примеси других элементов.

Изучение СМ из различных месторождений показало, что наиболее подходящей для использования в качестве детектора в физических экспериментах является индийская слюда. Она имеет сравнительно малый возраст жизни (~2 млн.лет), низкое ($\leq 10^{-8}$ г/г) и достаточно равномерное распределение примесных атомов урана.

Использованию СМ в качестве детектора осколков деления ядер посвящено достаточно большое количество работ. Они, в основном, касаются вопроса изучения возраста кристаллов СМ [1], определения периода полураспада спонтанно делящихся ядер [2,3], механизма образования латентного трека в СМ и его размера [4,5,6], изучения деления ядер ионами [7-9]. Изучение регистрационных свойств СМ по отношению к сепарированным осколкам деления ядер представлено в работе [10]. В основном более полное изучение регистрационных и особенно идентификационных свойств этого детектора проводится в ЛЯР ОИЯИ с использованием широкого спектра ионов по массам и энергии, ускоряемых на циклотронах многозарядных ионов, где этот детектор применяется в ядерно-физических экспериментах на пучках тяжелых ионов [11,12].

В данной работе представлены результаты исследования скорости травления слюды, порога и эффективности регистрации тяжелых ионов, определения дефицита пробега ионов в СМ, влияния ориентационных

свойств кристалла на травимую длину трека ионов и критический угол регистрации. Кроме того, известно, что СМ способна накапливать и достаточно долго (миллионы лет) сохранять латентные треки тяжелых заряженных частиц и осколков деления примесных делящихся ядер, которые могут являться фоном в физическом эксперименте. Более того, при проведении экспериментов на пучках тяжелых ионов, как правило, возникает высокий фон рассеянных ионов и детектируемых СМ продуктов реакции. В связи с этим в данной работе исследовалась термическая стабильность латентных треков ионов и осколков деления в зависимости от типа иона и его энергии, а также ориентационных свойств кристалла СМ с целью удаления фоновых треков перед экспериментом; сохранения треков от действия температуры во время длительного эксперимента с интенсивным пучком ионов и удаления фоновых треков рассеянных ионов и продуктов их взаимодействия с детектором.

Экспериментальная часть

Образцы СМ облучались осколками вынужденного и спонтанного деления $^{235,238}U$, а также ^{244}Cm , толщиной 12,5 мкг/см² и 1 мг/см²; ускоренными ионами ксенона и циркония с энергией 0,75-1,10 МэВ/а.е.м., ионами магния, алюминия, аргона, кальция, титана, хрома, марганца, железа, никеля с энергией от 0,5 до 5,6 МэВ/а.е.м. под углами к поверхности (плоскость спаянности) 10°, 30°, 45°, 60° и 90°.

При исследовании ориентационных свойств кристаллов СМ на образование и развитие треков использовалась методика ориентирования кристаллографических осей слюды относительно направления падения пучка ионов и осколков. Предварительно облученный осколками деления ядер или ионов и протравленный кусочек слюды, отрезанный от целой пластины, позволяет вырезать из этой пластины образцы с разной величиной азимутального угла, за начало отсчета которого принято направление, параллельное большой диагонали ромба входного отверстия протравленного трека на поверхности слюды мусковит. Угол между направлением большой диагонали ромба и плоскостью (010) в СМ равен 23°.

Образцы СМ размером $1,0 \times 2,0$ см² вырезались так, чтобы направление длинной стороны полоски составляло точно известный угол с выбранным направлением в азимутальной плоскости (001). За базу взято направление большой диагонали ромба протравленного трека на поверхности детектора. Угол между направлением падения пучка ионов и поверхностью составлял 10°, 30°, 45° и 60°.

После облучения проводился отжиг, в течение которого температура изменялась в интервале от 300 до 700°C с шагом в 50°C и точностью поддержания температуры $\pm 2^\circ\text{C}$. Продолжительность отжига менялась от 1 до 16 ч.

После отжига детекторы травились вместе с контрольными образцами, не подвергавшимися нагреванию, в 40% HF при комнатной температуре разное время в зависимости от условий эксперимента.

Просмотр детекторов осуществлялся с помощью оптического микроскопа, а измерение параметров проводилось с помощью оптического анализатора изображения с точностью $\pm 0,15$ мкм.

Результаты эксперимента

1. Изучение регистрационных свойств СМ. Как известно, избирательность травления треков, критический угол регистрации и порог чувствительности связаны между собой. В кристаллических детекторах точное определение этих значений затруднено, т.к. необходимо учитывать анизотропию свойств детекторов, связанных с ориентационными эффектами кристалла. На рис.1 представлены температурные зависимости скорости травления поверхности СМ V_D и перпендикулярной ей V_M , которые определялись по изменению толщины слоя и изменению величины диагонали ромбического отверстия трека Хе с $E \sim 1$ МэВ/а.е.м., входящего перпендикулярно к поверхности СМ. Можно видеть, что с поверхности (плоскость спаянности) СМ травится слабее, чем в направлении, перпендикулярном ей. Как и ожидалось, увеличение скорости с ростом температуры носит экспоненциальный характер. Скорость травления латентных треков ионов сильно зависит от удельной ионизации ионов.

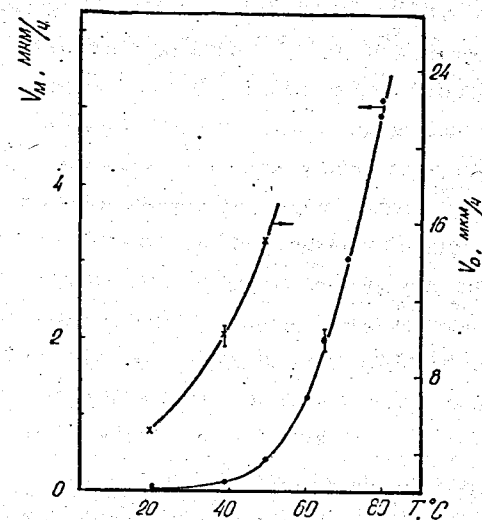


Рис.1. Температурная зависимость скоростей травления двух взаимоперпендикулярных плоскостей СМ:
 V_M - скорость направлена нормально к плоскости скольжения;
 V_D - скорость параллельна плоскости скольжения

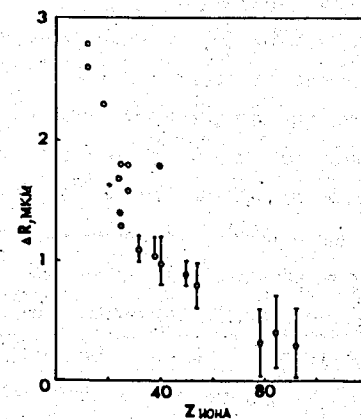


Рис.2. Зависимость дефицита пробега ионов ΔR в СМ от Z

В области порога регистрации следы ионов имеют форму мелких ромбических пирамидальных углублений низкого контраста. При увеличении удельной ионизации отношение длины углубления (трека) к его ширине возрастает, а угол раствора ромбического пирамидального углубления становится более острым. Здесь скорость травления вдоль следа сравнима со скоростью параллельной поверхности (V_D на рис.1). При некотором определенном значении ионизационных потерь энергии скорость травления вдоль следа резко увеличивается и во много раз превышает скорость травления вдоль поверхности слюды. В этой области след имеет форму ромбического пустотелого канала.

Значения критических потерь энергии были определены по величине энергии (dE/dx), при которой травлением выявляется трек. С этой целью образцы СМ и полиэтилентерефталата (ПЭТФ) были облучены вместе под углом 90° ионами Ne, Ar и осколками деления ^{244}Cm различной энергии с использованием Al-поглотителя.

Травились детекторы из СМ в 48% HF 3 часа при 20°C , а ПЭТФ - в 20% NaOH 60 мин. при 60°C . Эффективность регистрации СМ составила 1/4 ПЭТФ. Нижняя граница чувствительности по $(dE/dx)_{\text{Ne}}$ оказалась $\sim 12 \text{ МэВ}\cdot\text{мг}^{-1}\cdot\text{см}^2$, а верхняя - $\sim 13 \text{ МэВ}\cdot\text{мг}^{-1}\cdot\text{см}^2$. Пороговые значения регистрации осколков находятся в районе 5 - 8 МэВ. Эти данные хорошо согласуются с результатами работы [10].

Как известно из работы [2], в некоторых низкочувствительных диэлектрических детекторах не удается до конца пробега протравить латентный трек и определить полный пробег ионов в СМ по измеряемым параметрам протравленного трека. Возникает некоторый дефицит пробега ΔR , который связан с тем, что в связи с высоким порогом чувствительности не выявляются травлением нарушения структуры латентного трека, возникающие за счет ядерной составляющей ионизационных потерь энергии. Можно было ожидать, что величина ΔR меняется в зависимости от Z ионов. На рис.2 представлена эта зависимость. Можно видеть, что для легких ионов ΔR достигает $\sim 3 \text{ мкм}$, а для тяжелых не превосходит $\sim 0,5 \text{ мкм}$. Полученные значения необходимо учитывать при регистрации ионов малых энергий и определении пробега ионов через травимую длину трека. Некоторый разброс точек связан с анизотропией свойств СМ, о чем будет сказано дальше.

В связи с высоким порогом чувствительности существует ограничение на травимость с другой стороны кривой Брэгга, т.е. со стороны больших энергий (рис.3). Поэтому, к примеру, ионы фосфора могут создать полностью травимые треки толщиной не более 11 мкм; серы - $\sim 17 \text{ мкм}$, хлора - 22 - 23 мкм, аргона - 30 - 32 мкм и кальция - 42-43 мкм [11].

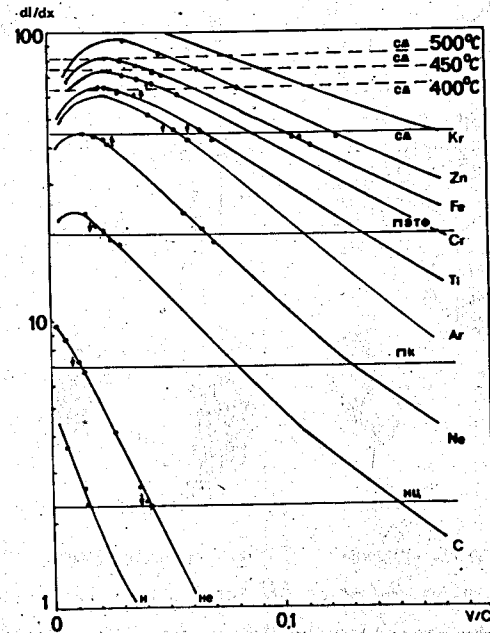


Рис.3. Радиационное нарушение (в относительных единицах первичных потерь энергии dI/dx) материала детекторов из нитрата целлюлозы (НЦ), поликарбоната (ПК), полиэтилентерефталата (ПЭТФ) и слюды мусковит (СМ) как функция относительной скорости ионов [2].

Горизонтальные линии и стрелки соответствуют порам чувствительности выбранных типов детекторов; штриховые линии показывают изменение порога чувствительности СМ в результате отжига при 400, 450 и 500°C ; черные кружки показывают области энергии, где наблюдались травимые латентные треки, а белые - их отсутствие

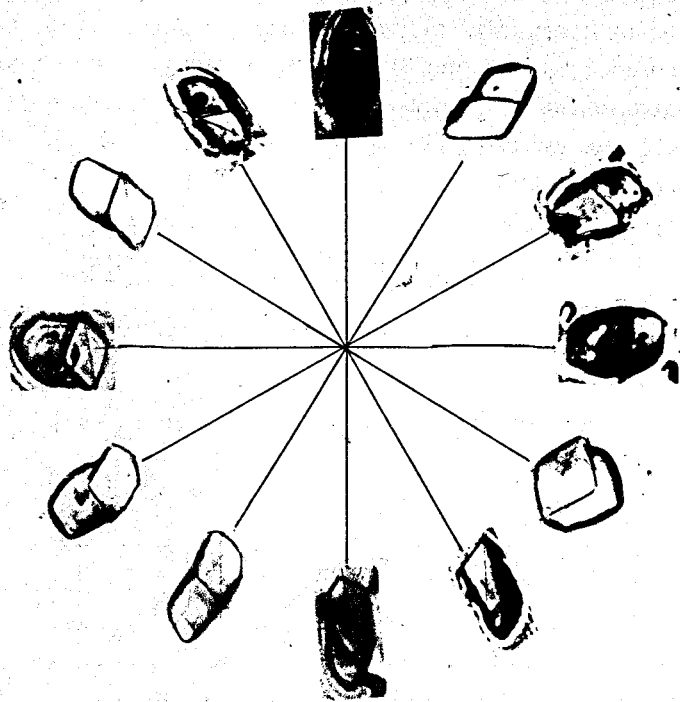


Рис.4. Микрофотографии формы треков ионов ^{129}Xe с $E=124$ МэВ, входящих в детектор под углом 10° и 60° в поверхность детектора и различными азимутальными углами

Изучение зависимости длины треков Хе от азимутального угла и угла входа в плоскость скольжения показало, что различие может достигать $\sim 20\%$ (табл.1). Полученные результаты достаточно хорошо согласуются с данными работы [10], где исследовалась ориентационная зависимость для сепарированных осколков деления (см.рис.4).

Критический угол регистрации $Q_{кр}$ также оказался чувствительным к азимутальному углу. Его величина меняется от 4 до 8° . Увеличение $Q_{кр}$ совпадает с уменьшением длины треков, что, возможно, связано с уменьшением плотности кристалла в этих направлениях и некоторым снижением избирательности травления.

На рис.5, для примера, представлены распределения длин треков ионов ^{55}Mn и ^{76}Fe , входящих в детектор под углом 45° и 60° с энергией $4,72$ и $6,8$ МэВ/а.е.м. соответственно, в направлении вдоль большой диагонали ромба.

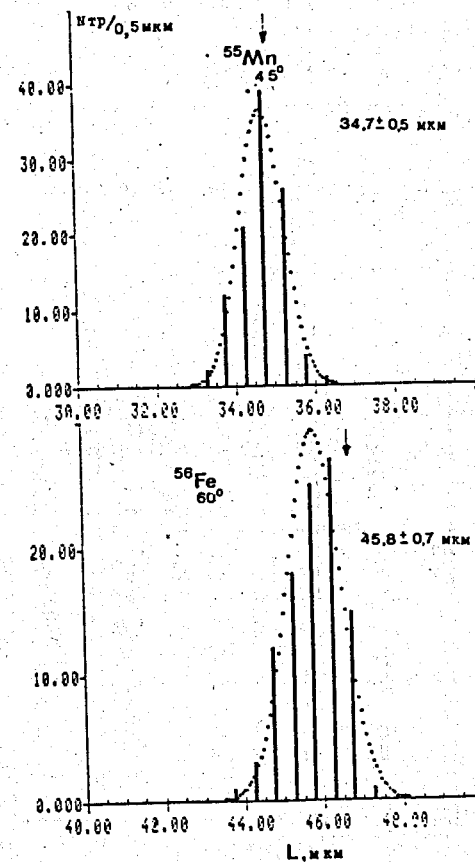


Рис.5. Спектральное распределение протравленных длин треков ионов ^{55}Mn и ^{56}Fe (с энергией $4,72$ и $6,8$ МэВ/а.е.м.), входящих в СМ под углом 45° и 60° соответственно, в направлении вдоль большой диагонали ромба входного отверстия

Средняя длина протравленных треков ионов ^{129}Xe (124 МэВ), входящих в СМ под разными азимутальными углами (0° - 360°) и углами входа (10° , 30° , 45° , 60°) к поверхности детектора, для контрольных и отожженных при 420°C в течение 6 часов после облучения образцов

NN пп	Угол входа в детектор → Азимутальный угол, °	10°		30°		45°		60°	
		К	420°C	К	420°C	К	420°C	К	420°C
1.	0	9,71±0,43	6,73±0,35	8,80±0,41	6,71±0,27	9,33±0,44	6,34±0,38	8,24±0,27	8,01±0,45
2.	30	10,2±0,46	6,95±0,39	10,2±0,54	7,37±0,29	9,9±0,41	7,07±0,48	8,88±0,27	7,49±0,41
3.	60	9,05±0,47	6,18±0,4	8,51±0,50	6,97±0,32	10,31±0,53	7,04±0,41	8,67±0,38	7,12±0,43
4.	90	8,24±0,46	5,39±0,24	7,71±0,38	6,04±0,36	8,63±0,49	5,9±0,46	8,04±0,45	7,61±0,27
5.	120	10,07±0,42	7,01±0,36	9,88±0,43	6,31±0,29	9,12±0,41	6,11±0,40	9,19±0,44	7,86±0,28
6.	150	10,05±0,52	6,52±0,22	9,87±0,30	7,23±0,30	9,8±0,51	6,37±0,46	8,85±0,44	7,32±0,33
7.	180	9,54±0,48	6,64±0,29	10,33±0,33	6,74±0,29	9,62±0,49	6,96±0,40	8,81±0,41	7,59±0,34
8.	210	10,02±0,39	6,55±0,31	10,3±0,33	6,72±0,34	10,2±0,44	6,60±0,72	8,44±0,46	7,55±0,31
9.	240	9,82±0,41	6,31±0,46	9,33±0,42	6,51±0,26	10,8±0,54	6,41±0,53	8,46±0,30	7,50±0,34
10.	270	8,92±0,42	4,90±0,37	8,58±0,47	5,9±0,37	9,48±0,40	6,45±0,38	8,56±0,29	7,56±0,29
11.	300	9,46±0,52	5,64±0,23	10,1±0,43	6,42±0,26	10,6±0,52	7,01±0,47	8,58±0,30	6,72±0,35

2. Термостойкость латентных треков осколков деления ядер и тяжелых ионов. Изучалось влияние температуры и продолжительности отжига на сохранность латентных треков осколков деления и тяжелых ионов с разными Z и E.

На рис.6 представлены результаты исследований продолжительности отжига при разных температурах на среднюю длину треков коллимированного пучка осколков деления, входящих под углом 30° в детектор. Можно видеть, что при всех температурах треки быстрее укорачиваются в первые часы отжига, чем в последующие. Укорочение треков осколков деления подчиняется закону Аррениуса и может быть определено из уравнения

$$\bar{L}_T / \bar{L}(20^\circ\text{C}) = A e^{-E_a/kt}, \text{ где}$$

$\bar{L}(20^\circ\text{C})$ и \bar{L}_T - средняя длина неотожженных и отожженных треков осколков, T - температура отжига (K), K - постоянная Больцмана, t - время отжига в мин., A - постоянная, E_a - энергия активации отжига дефектов. Для двух последних параметров использовались значения 18 и 0,36 эВ,

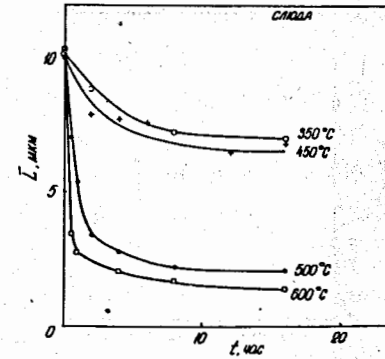


Рис.6. Зависимость средней длины \bar{L} треков коллимированных осколков деления $^{244}\text{См}$, входящих в детектор под углом 30° , от продолжительности отжига СМ при температурах 350, 450, 500 и 600°C . Травление образцов в 40% HF, 30 мин. при комнатной температуре



Рис.7. Микрофотография трека осколка деления (ff), отожженного при 600°C в течение 6 ч и сильно растравленного 72 ч в 40% HF при 22°C, и слабо растравленных треков рассеянных ионов Ag (в 40% HF, 1 ч, 22°C), которыми была облучена слюда после предварительного отжига (600°C) и длительного травления (72 ч)

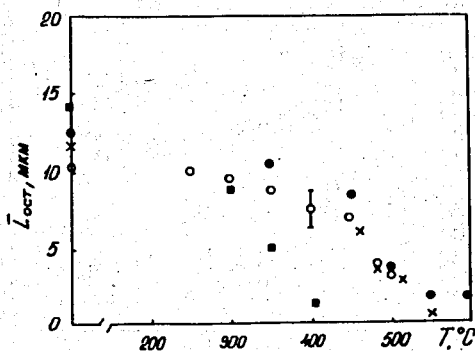


Рис.8. Остаточная длина протравленных треков осколков деления ядер ^{244}Cm и ионов Ag, Fe и Xe в зависимости от температуры 6-часового отжига СМ.

- - осколки деления ядер ^{244}Cm ;
- - ионы Xe с $E=1$ МэВ/а.е.м.;
- x - ионы Fe с $E=2,25$ МэВ/а.е.м.;
- - ионы Ag с $E=2,0$ МэВ/а.е.м.

Угол входа ионов в детектор 10°

полученные при изучении отжига сепарированных по массам и энергиям осколков деления ядер [10]. Расчетные данные хорошо согласуются с экспериментальными. При температуре отжига 500°C глубина треков составляет 2,5 - 3 мкм, а при 600°C их глубина не более 1-1,5 мкм. Однако при этом фигуры травления треков отчетливо видны и хорошо отличимы от дислокаций и других дефектов структуры. Это означает, что при температуре $\geq 500^\circ\text{C}$ остается дефект структуры в области трека осколков, который отличается более высокой термостойкостью, и он сохраняется вплоть до температуры слюды ($\sim 700^\circ\text{C}$). Поэтому эффективность регистрации осколков до отжига и после него для различных режимов, вплоть до температуры термического разложения слюды, в пределах статистической ошибки, остается неизменной. Отсюда следует, что СМ можно использовать для регистрации осколков деления в условиях высоких температур.

Изменение фигур травления после отжига было использовано для идентификации фоновых событий, накопившихся в слюде за время ее существования за счет распада примесных ядер урана. Для наглядности на рис.7 представлена микрофотография отожженного при 600°C и сильно растравленного (72 ч в 40% HF при 22°C) трека осколка деления примесного ядра урана (ff). После этой процедуры детектор был облучен рассеянными ионами Ag и протравлен (1 ч в 40% HF при 22°C). Треки Ag на микрофотографии видны как черные узкие треки ("палочки") различного размера. Наблюдается хорошая идентификация треков Ag и осколка деления.

Однако при проведении ядерно-физических экспериментов необходимо проводить идентификацию продуктов реакции, рассеянных ионов, осколков деления, которые регистрируются одновременно.

Из рис.8 можно видеть, что треки ионов Ag можно отжечь полностью при температуре $>420^\circ\text{C}$; треки ионов Fe, Xe и осколков деления отжечь полностью не удастся даже при $T \geq 500^\circ\text{C}$. Это означает, что уже ионы с $Z \geq 26$ и $E \leq 2$ МэВ/а.е.м. производят достаточно термостойкие радиационные дефекты.

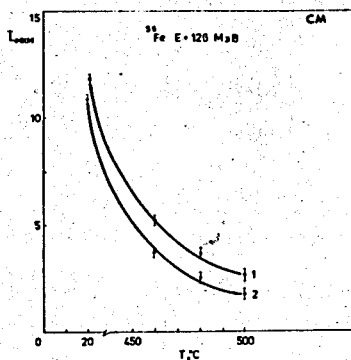


Рис.9. Температурная зависимость средней длины треков ионов ^{56}Fe , входящих в детектор с $E=126$ МэВ. Время отжига 6 часов. Кривая 1 - пучок ионов ориентирован вдоль большой оси ромба входного отверстия трека, кривая 2 - вдоль малой оси ромба

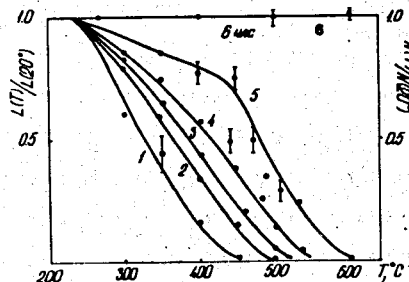


Рис.10. Зависимость относительных средних значений длин треков $\bar{L}(T)/\bar{L}(20^\circ\text{C})$ ионов ^{40}Ar (кривая 1); ^{48}Ti (2); ^{54}Cr (3); ^{56}Fe (4) и осколков деления ядер ^{244}Cm (5). Прямая 6 - относительная плотность треков осколков деления ядер кюрия $N(T)/N(20^\circ\text{C})$ как функция температуры отжига. Угол входа в детектор 30°

Результаты, представленные на рис.9, показывают, как изменяется длина треков ионов Fe в зависимости от азимутального угла. Можно видеть, что разница в длине трека практически сохраняется при всех температурах отжига СМ. Характер изменения длины треков ионов в зависимости от продолжительности отжига (до 16 ч) аналогичен такой же зависимости для треков осколков деления (рис.6).

В табл. 1 представлены результаты отжига при 420°C латентных треков ^{129}Xe , с $E=124$ МэВ, входящих в слюду под углами 10, 30, 45 и 60° к плоскости детектора, под различными азимутальными углами. Можно видеть, что сохраняется угловая анизотропия в длине отожженных треков в зависимости от угла.

На рис.10 показаны обобщенные результаты отжига образцов СМ, облученных ионами с различными Z и энергиями вблизи максимальной ионизации на кривой Брэгга (0,5-1,5 МэВ/а.е.м.), а также осколками деления ^{244}Cm (толщина источника ~ 1 мг/см 2). На рис.3, где приведена обобщенная зависимость $dI/dx=f(E)$, горизонтальными линиями показаны соответствующие определенному режиму отжига пороги чувствительности СМ. Ионы, имеющие удельные потери энергии ниже порога регистрации, не оставляли никаких следов после отжига.

Из рисунков следует, что с помощью избирательного отжига можно идентифицировать ионы с различными Z и E . Потери энергии (или плотность ионизации) вдоль трека иона и при входе его в детектор определяют масштаб повреждения в узком канале зоны трека и создание дефектов различной величины и плотности [13]. Существует пороговая величина потерь энергии, которая определяет создание термически стабильных поверхностных дефектов. Для СМ она соответствует району максимальной ионизации для ионов Fe на кривой Брэгга (рис.3).

Полученные результаты также свидетельствуют о том, что в кристаллических детекторах имеются области "пропорциональности" и области "насыщения" дефектов [14]. Осуществлять идентификацию возможно только в области пропорциональности.

Для наглядности метода идентификации с помощью отжига на рис.11 приведены микрофотографии, на которых представлены результаты отжига при 460°C рассеянных ионов ^{54}Cr и осколка деления ядер, полученных в реакции слияния $^{208}\text{Pb}+^{54}\text{Cr}$ [15]. Можно видеть, что этот метод позволяет надежно идентифицировать осколки деления на большом фоне ($\geq 10^{12}$ см $^{-2}$) рассеянных ионов.

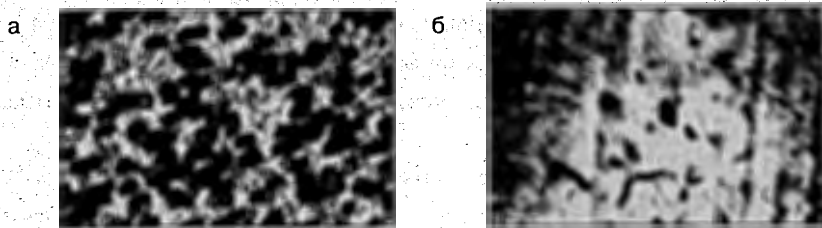


Рис.11. Микрофотографии рассеянного пучка ^{54}Cr и осколка деления до отжига (а) и после 6-часового отжига при 450°C (б), зарегистрированных СМ при проведении реакции синтеза $^{208}\text{Pb} + ^{54}\text{Cr}$ [16]

При одновременной регистрации синтезируемых составных ядер и их спонтанного деления интерес представляет поведение латентных треков составных ядер и осколков деления при отжиге. На рис.12 показано распределение измеренных длин треков ионов ^{86}Kr , ^{90}Zr , ^{129}Xe , ^{208}Pb , ^{238}U с низкой энергией ($\leq 1,1$ МэВ/а.е.м.) до (А) и после отжига при 400°C (Б). Эксперименты проводились при подготовке реакции синтеза $^{238}\text{U} + ^{40}\text{Ar}$ [16]. Температура отжига Ar была выбрана 400°C . При практически полном удалении рассеянных ионов Ar треки изучаемых ионов сохраняли достаточные для наблюдения и измерения длины. Можно видеть, что при этом режиме отжига ширина спектров длин треков на полувысоте практически не увеличивалась и составляла даже для коротких треков урана ~5%. Можно видеть, что для более тяжелых ядер укорочение треков ионов Zr и Xe меньше, чем для более тяжелых Pb и U.

Важнейшим результатом проведенных исследований по изучению термостабильности латентных треков тяжелых ионов и осколков деления в СМ является возможность с помощью соответствующего отжига управлять порогом чувствительности детектора.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ, N 96-02-17975.

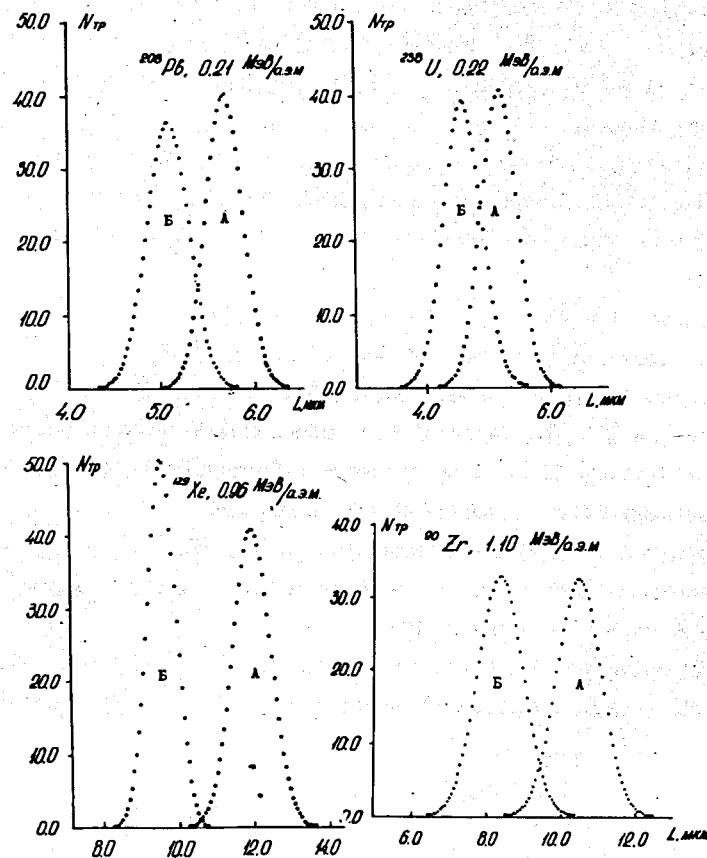


Рис.12. Спектр длин треков ускоренных ионов ^{208}Pb , ^{238}U , ^{129}Xe и ^{90}Zr , входящих в детектор под углом 45° до (А) и после (Б) отжига при 400°C в течение 6 часов облученной СМ

Литература

1. Durrani S.A., Bull R.K. In: Solid State Nuclear Track Detection: Principles, Methods and Applications (1987), Pergamon Books Ltd, p.174.
2. Fleisher R.L., Price P.B., Walker R.M. In: Nuclear Tracks in Solids: Principles and Applications, University of California Press, Berkeley (1975).
3. Тарантин М.И. и др., Препринт ОИЯИ, Р6-86-214, Дубна (1986).
4. Dartyge E. and Lambert M. Radiat.Effects (1974), N 21, p.71; J.de Phys.(1976) N 37, p.137.
5. Bean C.P., Doult M.V., Entine G. J.Appl.Phys. (1970) 41, p.1454.
6. Гегузин Я.Е., Воробьева И.В. ДАН СССР (1972) т.205, с.2.
7. Brandt R. et al. Nucl.Phys. (1967) A90, p.177; Nucl.Instr.Meth. (1980) 173, p.147.
8. Perelygin V.P. et al. Nucl.Phys. (1969) v.A127, p.577.
9. Debeauvais M. et al. Nucl.Tracks (1984), N 8, p.155.
10. Belyaev A.D. et al. Nuclear Tracks (1980), N4, pp.49-56.
11. Perelygin V.P., Tretyakova S.P., Shadieva N.H. In: Proc. 1st Intern.Conf. on Nucl.Tracks in Solids, Univ. of Clermout-Ferrand Press (1969), p.28.
12. Третьякова С.П. ЭЧАЯ (1992), т.23, с.364-429.
13. Dartyge E. et al. Radiat.Effects (1977), v.34, p.77.
14. Гангрский Ю.П. и др. В кн: Регистрация и спектрометрия осколков деления. М: Энергоиздат, 1981.
15. Tretyakova S.P. Nucl.Tracks Radiat.Meas. (1991), v.19, N1-4, p.665.
16. Tretyakova S.P. Radiation Measurements (1995), v.25, N1-4, p.283.