



# ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

ЛАБОРАТОРИЯ ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИИ

---

С.П. Алмазова, В.П. Перельгин

P - 979

РЕГИСТРАЦИЯ ДЕЛЕНИЯ ЯДЕР  
В УСЛОВИЯХ БОЛЬШОГО ФОНА

*ТТЖ, 1963, № 2, с 63-65.*

Дубна 1962 год

С.П. Алмазова, В.П. Перельгин

Р - 979

РЕГИСТРАЦИЯ ДЕЛЕНИЯ ЯДЕР  
В УСЛОВИЯХ БОЛЬШОГО ФОНА

Направлено в ПТЭ

Объединенный инстит  
ядерных исследований  
БИБЛИОТЕКА

Дубна 1962 год

### А н н о т а ц и я

Для измерения периодов спонтанного деления  $Np^{237}$ ,  $Pu^{238}$ ,  $Pu^{242}$  /1/ и идентификации актов спонтанного деления с аномально коротким периодом /2/ разработаны методики устранения фона от легких заряженных частиц и  $\gamma$ -лучей в фотоэмульсии при одновременной регистрации треков осколков деления ядер. С помощью методик окисления скрытого изображения и недопроявления удалось зарегистрировать следы осколков деления на пластинках Т-1 и П-8 в условиях фона до  $10^{10} - 10^{11}$  а/см<sup>2</sup> фотоэмульсии, а также на фоне  $\gamma$ -лучей до 100 тыс. рентген. Усиление проявленных треков с помощью физического проявления позволило повысить эффективность просмотра фотопластинок.

### A b s t r a c t

To measure the spontaneous fission periods of  $Np^{237}$ ,  $Pu^{238}$ ,  $Pu^{242}$  (1) and to identify the spontaneous fission acts with anomalously short lifetime (2), a technique has been worked out of removing the background due to light charged particles and  $\gamma$ -rays in emulsion. This technique allowed to record simultaneously the tracks of nuclear fission fragments.

Using the methods of latent image oxidation and underdevelopment we succeeded in recording the tracks of the fission fragments on the nuclear plates Т-1 and П-8 against the background of  $10^{10} - 10^{11}$  а/cm<sup>2</sup> of emulsions, as well as against that of  $\gamma$ -rays (about 100 thousand roentgen). The developed tracks were made thicker by the physical development what allowed to increase the scanning efficiency.

## 1. В в е д е н и е

Источниками фона, с которыми приходится иметь дело при регистрации деления ядер, чаще всего являются  $\alpha$ -частицы,  $\gamma$ -лучи и нейтроны. Гамма-лучи и нейтроны при взаимодействии с ядерной фотоэмульсией образуют вторичные частицы, главным образом, однозарядные /электроны, протоны отдачи/, которые и создают центры скрытого изображения в кристаллах бромистого серебра.

Поскольку действие всех этих источников фона сводится к ионизации, производимой частицами с  $z \leq 2$ , основное внимание было уделено разработке методики дискриминации следов осколков деления на фоне от  $\alpha$ -частиц. Эта дискриминация основана на очень большой разнице удельных потерь энергии для  $\alpha$ -частиц и осколков деления в веществе.

Действительно, на первых пяти микронах пробега в фотоэмульсии удельные потери энергии у осколка в 20-30 раз больше, чем у  $\alpha$ -частицы. Поэтому центры скрытого изображения, образованные осколками деления в кристаллах бромистого серебра фотоэмульсии, будут во много раз крупнее, чем центры, образованные  $\alpha$ -частицами.

Основными методами, обеспечивающими регистрацию следов осколков деления в фотоэмульсии на фоне частиц с меньшими удельными потерями энергии, являются разрушение слабых центров скрытого изображения и недопроявление.

Методика окисления слабых центров скрытого изображения для целей регистрации деления ядер была впервые разработана Н.А. Перфиловым еще в 1944 году /3/. Н.А. Перфилов использовал фотоэмульсии, изготовленные по методу А.П. Жданова со средним размером зерен около 1 мк. Для устранения фона от  $\alpha$ -частиц эти фотопластинки обрабатывались перед проявлением в растворах различных окислителей. Такая обработка обеспечила регистрацию следов осколков деления на фоне до  $10^8 \alpha / \text{см}^2$  при облучении от внешних препаратов.

Окисление скрытого изображения для целей дискриминации может быть проведено также в парах воды /4/, с помощью перекиси водорода /5/.

Альбуи и Фарагжи предложили следующий механизм разрушения скрытого изображения /6/. Под влиянием влаги и кислорода воздуха серебро скрытого изображения переходит в ионное состояние:

$$4 \text{Ag} + \text{O}_2 + 2 \text{H}_2\text{O} \rightarrow 4 \text{Ag}^+ + 4 \text{OH}^-$$

Устранение фона, производимого заряженными частицами было достигнуто также обработкой фотопластинок перед проявлением в разбавленных кислотах /7/.

Методика недопроявления для целей дискриминации следов частиц с разными удель-

ными потерями энергии основана на том, что времена проявления кристаллов бромистого серебра с крупными и мелкими центрами скрытого изображения очень различны из-за автокаталитичности процесса проявления. Для целей дискриминации следов осколков деления эта методика была применена Де-Карвальо и Да-Сильвой /8/, которым удалось устранить фон до  $10^{12}$   $\alpha$  /см<sup>3</sup> эмульсии и  $\gamma$  -лучей до 1000 рентген.

Задача регистрации следов осколков деления в условиях очень большого фона  $\alpha$  -частиц была поставлена в работе /9/. Существуют две возможности повышения предельно допустимых доз облучения фотоэмульсий.

Первая возможность состоит в использовании фотоэмульсий с малыми размерами кристаллов бромистого серебра, что уменьшает вероятность многократного прохождения треков через один и тот же кристалл.

Вторая возможность связана с большой разницей удельных потерь энергии осколков деления и  $\alpha$  -частиц в веществе. Она состоит в регулировании режима устранения фона таким образом, что даже те зерна бромистого серебра, через которые прошло несколько  $\alpha$  -частиц, не будут проявлены. В работе /9/ использовались наиболее мелкозернистые стандартные фотоэмульсии Т-1 и П-8 со средним размером зерен 0,2 и 0,08 мк и были подобраны режимы окисления скрытого изображения, обеспечившие регистрацию следов осколков деления на фоне  $10^{10}$   $\alpha$  /см<sup>2</sup> для эмульсий Т-1 и до  $10^{11}$   $\alpha$  /см<sup>2</sup> для П-8.

## 2. Методика окисления

Методика окисления скрытого изображения была применена нами при измерении периодов спонтанного деления изотопов  $Pu^{238}$ ,  $Pu^{242}$ ,  $Np^{237}$ . Задача измерения периодов полураспада требует определения числа актов распада при известном количестве вещества за определенный промежуток времени. Поэтому при определении периодов спонтанного деления с помощью фотоэмульсий необходимо было обратить особое внимание на надежность проведения таких количественных опытов. В настоящих опытах нами применялись фотопластинки П-8, изготовленные НИКФИ, в качестве окислителя был выбран железосинеродистый калий. Окисление проводилось в течение 30 мин. при температуре  $15^\circ \pm 0,1^\circ C$ . Нами специально исследовалась зависимость числа проявленных следов осколков деления от концентрации окислителя /рис. 1/. Как видно из рисунка, предельная допустимая концентрация окислителя составляет  $1,2 \cdot 10^{-4}$  г/литр. В работе /1/ использовались концентрации не свыше  $4 \cdot 10^{-5}$  г/литр, что обеспечило устранение фона треков до  $10^{11}$   $\alpha$  /см<sup>2</sup>. Облучения фотопластинок производились от нанесенных на подложку препаратов. Зазор между препаратом и фотопластинкой составлял 0,2 мм. Облучения проводились при  $18^\circ C$  и относительной влажности около 60%. Надежность регистрации следов осколков деления наиболее существенна при длительных экспозициях, которые требовались в опытах по определению периода спонтанного деления такого относительно долгоживущего ядра, как  $Np^{237}$ .

Для осуществления такого контроля до и после экспозиции фотопластинки у препарата  $\text{Pr}^{237}$  она маркировалась в определенных местах осколками деления  $\text{U}^{235}$  тепловыми нейтронами.

Хотя от начала до конца облучения проходило до 50 дней, а фон  $\alpha$ -частиц достигал  $5.10^{10}$   $\alpha$  /см<sup>2</sup>, следы осколков деления в этих местах маркировки не отличались ни визуально, ни по распределению длин.

По-видимому, регрессия следов осколков деления идет значительно медленнее, чем следов, образованных  $\alpha$ -частицами.

Для того, чтобы определить эффективность регистрации актов спонтанного деления в условиях опыта, были измерены углы погружения следов осколков деления /рис. 2/. Из рис. 2 видно, что следы осколков деления надежно регистрируются в интервале углов  $30^\circ$ - $70^\circ$ . Поправка на пропуск следов вводится для углов  $0$ - $30^\circ$ , где часть треков не регистрировалась из-за конечной толщины препарата, слоя воздуха, ограниченной площади просмотра фотопластинок и удаления верхнего слоя засвеченных при экспозиции зерен. Для интервала углов  $70^\circ$ - $90^\circ$  пропуск следов имел место из-за большой крутизны погружения следов в эмульсии. Согласно рис. 2, регистрировалось  $66 \pm 5\%$  от полного числа актов спонтанного деления, имевших место в препарате за время экспозиции.

На рис. 3 приведены распределения по пробегам в эмульсии осколков спонтанного деления  $\text{Pu}^{238}$  /Б/ и осколков от деления  $\text{U}^{235}$  тепловыми нейтронами /А/. Эти фотозэмульсии были обработаны окислителем с концентрацией  $2.10^{-5}$  г/см<sup>3</sup> ферроцианида калия. Фон  $\alpha$ -частиц на фотопластинках, облученных у препарата  $\text{Pu}^{238}$ , достигал  $6.10^{10}$   $\alpha$  /см<sup>2</sup>.

С целью расширения границ применимости методики окисления мы предприняли опыты по регистрации следов осколков деления в условиях  $\gamma$ -фона. Источником  $\gamma$ -фона служил препарат кобальта с активностью, эквивалентной 6 кюри радия. Фотопластинки типа П-8, предварительно облученные осколками от деления  $\text{U}^{235}$  тепловыми нейтронами, помещались на несколько суток на расстоянии 5-7 см от этого препарата. Затем фотопластинки обрабатывались в обычных режимах окисления. Согласно этим опытам, режим окисления в ферроцианиде калия с концентрацией  $2.10^{-5}$  г/см<sup>3</sup> в течение 30 мин. при  $15^\circ$  обеспечивает устранение фона свыше 100 тыс. рентген при одновременной регистрации треков осколков деления.

Недостатком методик, основанных на частичном разрушении скрытого изображения, является фон треков, возникающий от распада  $\alpha$ -активных ядер в фотозэмульсии в процессе вымывания окислителя в воде и проявления. Это обстоятельство заставило нас избегать всякого загрязнения фотозэмульсии  $\alpha$ -активными препаратами. Естественная радиоактивность фотоматериалов также может привести к появлению треков, облученных  $\alpha$ -частицами.

### 3. Методика недопроявления

Разработка методики недопроявления для целей дискриминации следов осколков деления при большом фоне была предпринята в связи с проведением опытов по регистрации редких актов спонтанного деления трансурановых ядер /2/. Методика недопроявления была выбрана нами потому, что она позволяет полностью устранить фон треков, обязанных загрязнению эмульсии  $\alpha$ -активными препаратами. Разработка этой методики производилась на фотопластинках Т-1 и П-8. Облучения фотопластинок  $\alpha$ -частицами и осколками от деления  $U^{285}$  тепловыми нейтронами осуществлялись от нанесенных на поверхность препаратов. Фотопластинки затем обрабатывались в различных проявителях в режимах недопроявления. Были опробованы амидоловый, глициновый, гидрохиноновый, метол-гидрохиноновый и железooksалатный проявители. Наиболее удовлетворительные результаты были получены с глициновым и железooksалатным проявителями.

Использовавшийся нами глициновый проявитель имел следующий состав:  $Na_2SO_8$  безводный - 12,5;  $K_2CO_3$  - 25,0 г; глицин - 5,0 г; вода - до 1 литра.

Фотопластинки предварительно отмачивались в воде при  $10^\circ C$  в течение 15 мин. Затем они помещались в глициновый проявитель, разбавленный 1:1 для пластинок П-8 и 1:3 для Т-1, с добавлением 2 г/литр КВг в обоих случаях. Время проявления составляло 20 мин, температура -  $12^\circ C$ . Такой режим проявления обеспечил устранение фона  $3 \cdot 10^9 \alpha / \text{см}^2$  для фотопластинок Т-1 и  $2 \cdot 10^{10} \alpha / \text{см}^2$  для фотопластинок П-8. Опыты с менее активным проявителем показали, что следы осколков деления становятся слишком тонкими /рис. 4а/, а поиски этих следов необходимо проводить при увеличениях свыше 1000X.

Аналогичные результаты по устранению фона  $\alpha$ -частиц были получены с помощью железooksалатного проявителя. Рецепт этого проявителя приведен в работе /10/. По сравнению с глициновым, железooksалатный проявитель обеспечивает лучшую воспроизводимость результатов и дает более плотные следы осколков деления, что позволяет вести просмотр при увеличении 450-630X.

С помощью этого проявителя можно наиболее простым способом регулировать порог проявления зерен бромистого серебра в зависимости от суммарной ионизации, произведенной заряженными частицами в каждом из них. В связи с этими обстоятельствами железooksалатный проявитель применялся нами при проведении опытов по регистрации спонтанного деления с аномально коротким периодом полураспада. Специфика работ с фотоэмульсиями внутри циклотрона /2/ потребовала проведения контрольных опытов по устранению фона от  $\gamma$ -лучей и нейтронов, образующихся при взаимодействии ускоренных частиц с материалом мишени и коллектора тока. Нам удалось добиться четкой регистрации следов осколков деления на фотопластинках П-8, облученных нейтронами  $/10^{12}$  нейтр. / $\text{см}^2$ / и  $\gamma$ -лучами  $/ \sim 30$  тыс. рентген/.

Кроме того, поскольку следовало опасаться нагревания фотопластинок во время экспозиции, были предприняты контрольные опыты по определению влияния нагревания на

чувствительность фотоэмульсии. Фотопластинки, предварительно обработанные в глицерине и облученные осколками от деления  $U^{235}$  тепловыми нейтронами и  $\alpha$ -частицами, заключались в вакуумную кассету и на три часа помещались в термостат. В этих условиях фотопластинки типа П-8 выдерживали нагревание до  $60^{\circ}$ - $80^{\circ}$ С без заметного изменения чувствительности. При  $100^{\circ}$ С поверхность фотослоя начинала растрескиваться, возникала вуаль, но следы осколков деления были еще четко видны. При  $150^{\circ}$ С фотослой растрескивался на мелкие участки, а вуаль сделала регистрацию следов осколков деления невозможной.

Перед облучением на циклотроне фотопластинки маркировались осколками от деления  $U^{235}$  тепловыми нейтронами.

Проявление облученных на циклотроне фотопластинок Т-1 и П-8 проводилось в железноксалатном проявителе на температуре  $15^{\circ}$ С в течение 40-60 мин. соответственно. Для уменьшения коэффициента усадки фотопластинки перед сушкой помещались в смесь равных частей воды, глицерина и спирта. Эта процедура облегчила поиски треков спонтанного деления при малом увеличении. Часть фотопластинок перед облучением маркировалась осколками деления на всей площади, но никаких локальных изменений чувствительности, а также вуали или трещин, обязанных нагреванию фотослоя, не было обнаружено. На облученных внутри циклотрона и обработанных таким образом фотопластинках производились поиски следов осколков спонтанного деления. Эффективность их регистрации равнялась 50%. Распределения пробегов осколков спонтанного деления и осколков от деления  $U^{235}$  тепловыми нейтронами хорошо совпадают /2/.

#### 4. Усиление проявленных треков

Поскольку средний размер проявленных зерен эмульсий типа П-8 около 0,3 мк, а увеличение скорости просмотра связано с переходом к малому увеличению, нами были предприняты опыты по усилению следов осколков деления с помощью физического проявления. Методика физического усиления треков осколков аналогична ранее описанной в работе Я.М. Веприка и др. /11/.

Фотопластинки, проявленные одним из описанных выше трех способов, после фиксирования и длительного отмывания фиксирующего раствора помещались в кислый глицериновый проявитель с  $AgNO_3$ . Режим усиления менялся в зависимости от предыдущих стадий. Обычно время проявления было 30 мин. при  $20^{\circ}$ С. Треки осколков деления до усиления, усиленные нормально и перепроявленные, показаны на рис. 4.

Эта процедура в сочетании с пропиткой глицерином проявленных фотоэмульсий позволяет облегчить поиски следов осколков деления ядер при увеличении 450X и делает возможными поиски треков при увеличении 300X.

Итак, регистрация деления ядер в условиях большого фона достигалась с помощью методик окисления скрытого изображения и недопроявления. Действие окислителей сводится к разрушению мелких центров скрытого изображения, находящихся на поверхнос-



ти кристаллов бромистого серебра эмульсии. Поскольку при последующей обработке уцелевшие слабые внутренние центры, образованные  $\alpha$ -частицами, также приводят к проявлению кристаллов бромистого серебра, для метода окисления характерен фон зерен, который мешает просмотру при малом увеличении.

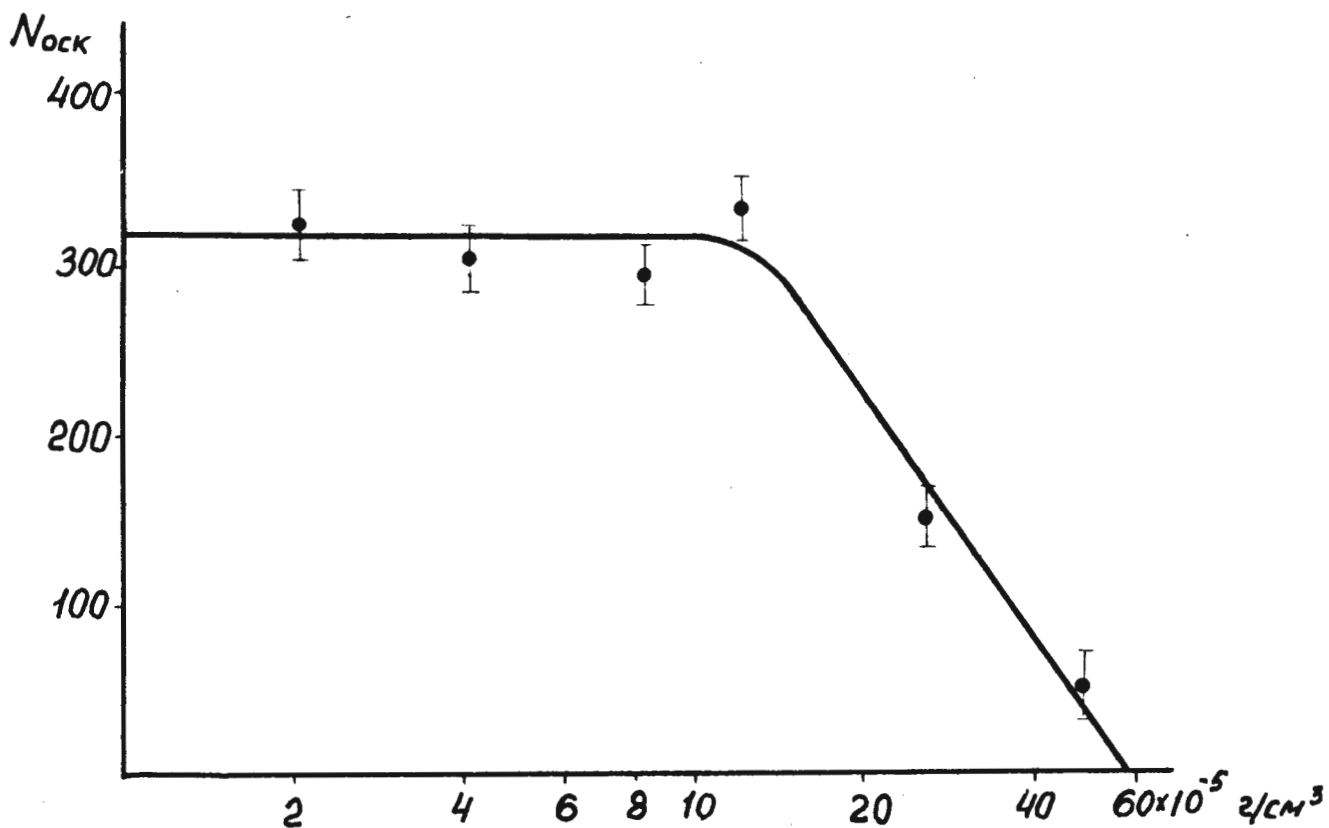
Методика недопроявления свободна от этого недостатка, однако, она не позволяет устранять очень большой фон от  $\alpha$ -частиц, когда существенны наложения треков. Поэтому дальнейшее развитие методики регистрации следов осколков деления в условиях очень большого фона должно идти по пути последовательного применения методик окисления, устраняющего большую часть слабых центров скрытого изображения, недопроявления, обеспечивающего устранение оставшихся слабых центров и проявление треков осколков деления, и физического усиления этих треков, позволяющего повысить эффективность просмотра.

В заключение авторы выражают глубокую благодарность члену-корреспонденту АН СССР Г.Н. Флерову за предложение темы и помощь в проведении настоящей работы.

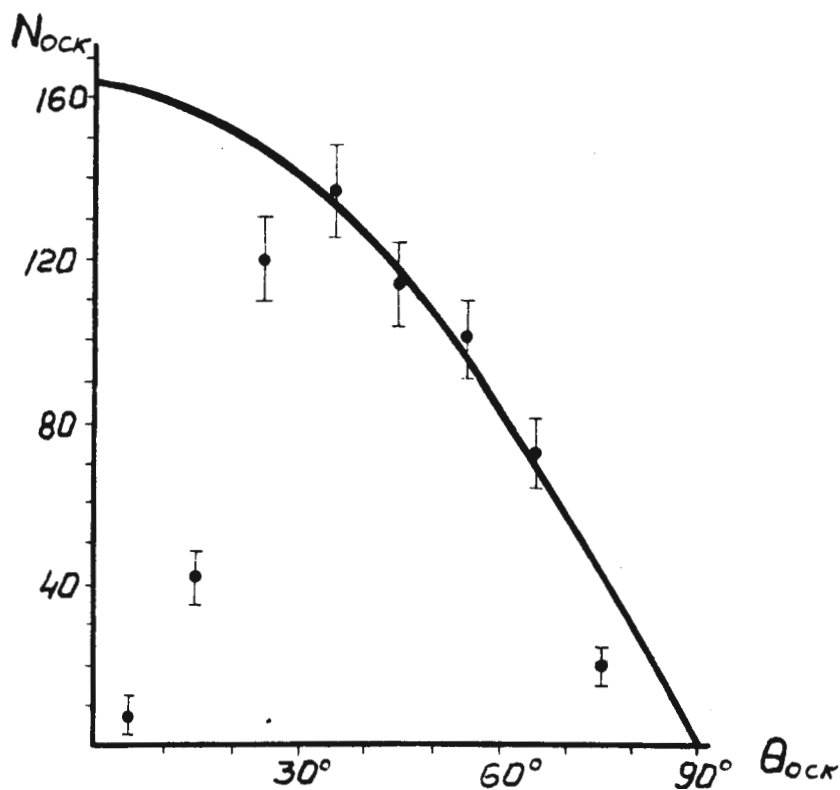
#### Л и т у р а т у р а

1. В.А. Друин, В.П. Перельгин, Г.И. Хлебников. ЖЭТФ, 40, 1296, 1961.
2. В.П. Перельгин, С.П. Алмазова, Б.А. Гвоздев, Ю.Т. Чубурков. Препринт ОИЯИ, Р-899, 1962 г.
3. Н.А. Перфилов. ДАН СССР, 42, 258 (1944).
4. F.H. Faraggi, Compt. Rend., 227, N 10, 527, (1948).
5. H. Yagoda, N. Kaplan. Phys. Rev., 71, 910 k (1947).
6. G. Albouy, H. Faraggi, Journ. Phys. Rad., 10, N 4, 105 (1949).
7. H. Ackermann, H. Faissner. Nucl. Instr. Met., 10, 339 (1961).
8. H. G. de Carvalho, A.G. de Silva. Suppl. del Nuov. Cimento, V. XIX, S X, N 1, 1961
9. А.М. Семчинова, Е.Д. Донец, В.П. Перельгин. Материалы III Международного совещания по ядерной фотографии. Издательство АН СССР, М. 1961 год.
10. H. Braun. Premier Colloque International de Photographie Corpusculaire, Strasbourg, Juillet, 1957, Centre National de la Recherche Scientifique, Paris 1958, p. 329.
11. Я.М. Веприк, С.П. Алмазова, Г.П. Фаерман. ПТЭ, № 3, 128, 1959 г.

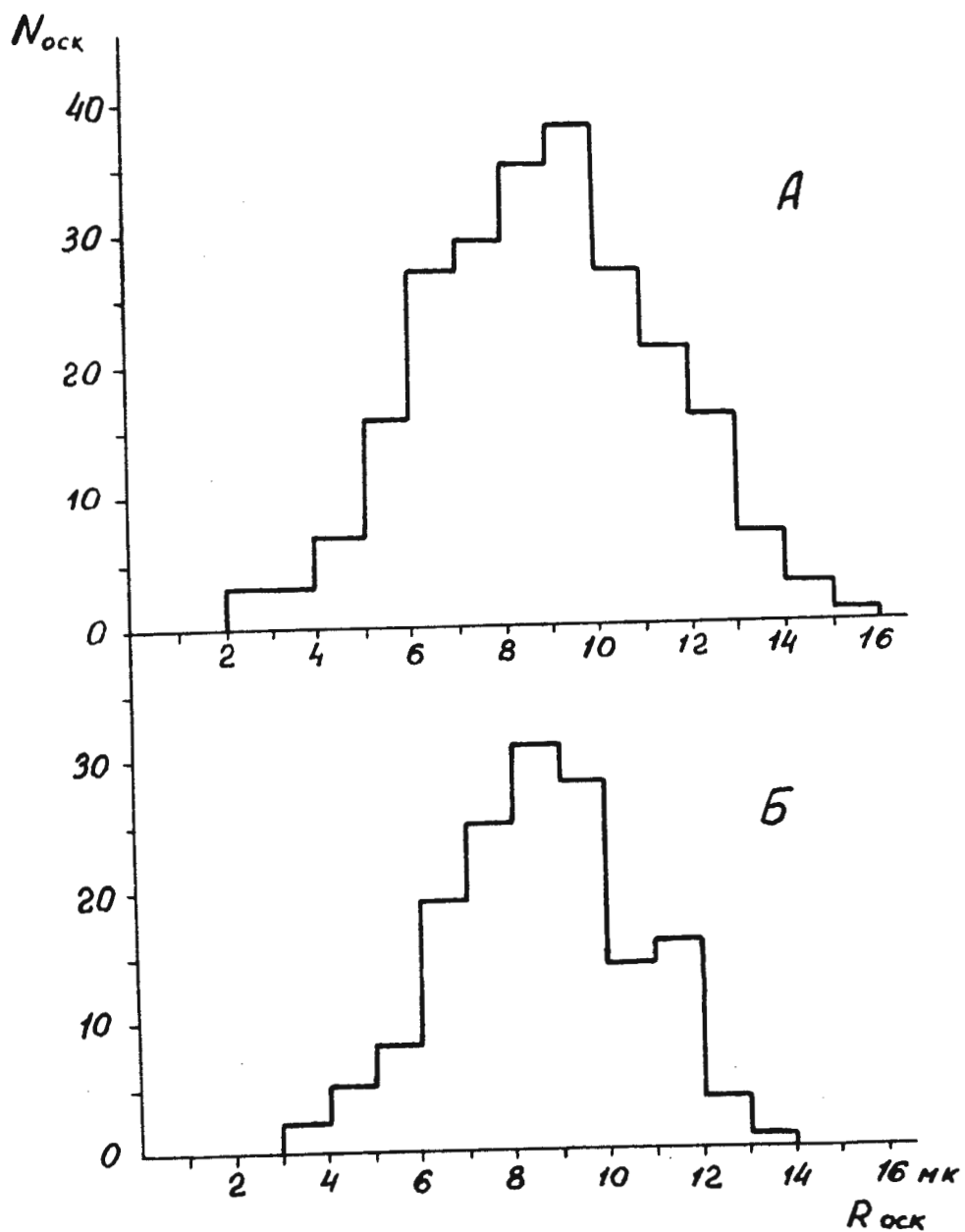
Рукопись поступила в издательский отдел  
4 мая 1962 года.



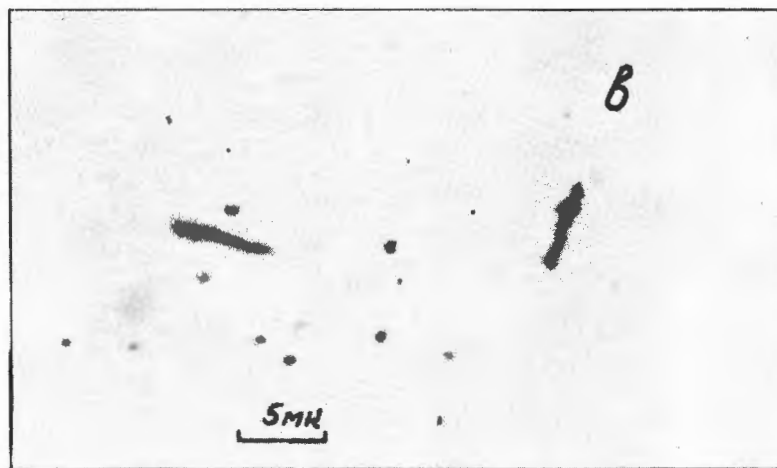
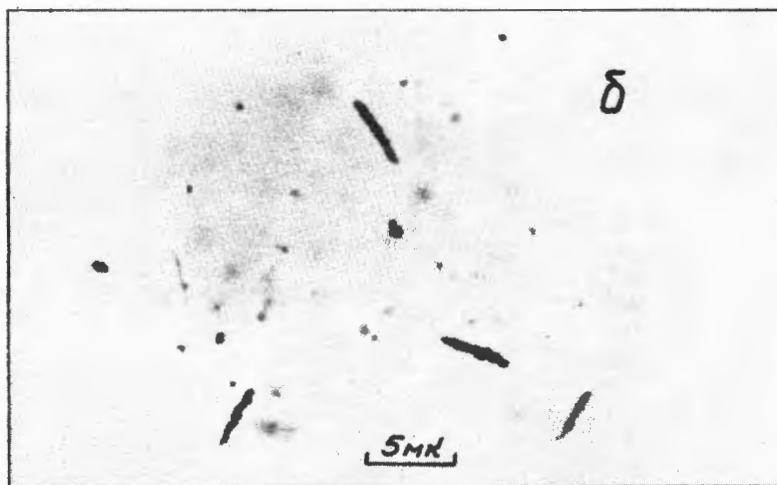
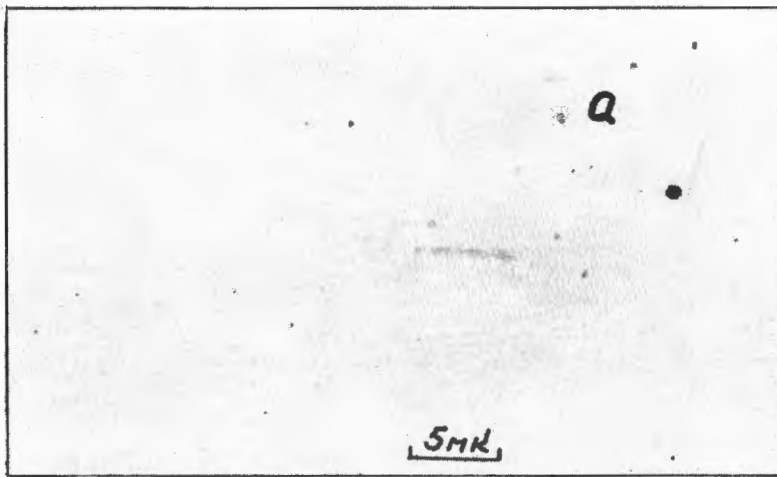
Р и с. 1. Зависимость числа проявленных треков осколков деления от концентрации  $K_3Fe(CN)_6$ .



Р и с. 2. Эффективность регистрации актов деления ядер в зависимости от угла погружения осколка в фотоэмульсии. Нормировка сплошной кривой проведена в интервале углов  $30-70^\circ$ .



Р и с. 3. А -распределение по пробегам осколков деления  $U^{235}$  тепловыми нейтронами в эмульсии.  
 В -распределение по пробегам осколков спонтанного деления  $Pu^{238}$



Р и с. 4. Следы осколков деления:

а/ недопроявленные; б/ усиленные нормально;  
в/ перепроявленные.