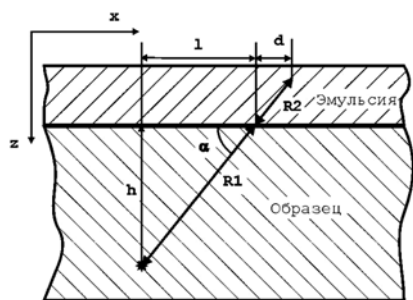


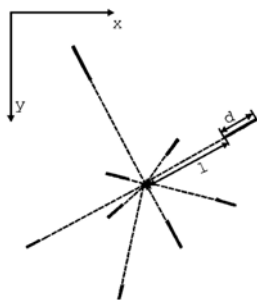
## 1.4 Анализ автордиограмм

Обычно анализ автордиограмм проводят для идентификации радиоактивного изотопа или определения его количества в исследуемом образце. Схема образования трека  $\alpha$ -частицы в фотоэмульсии представлена на **Рис. 3**. Если ядро изотопа, испустившего  $\alpha$ -частицу находится на глубине  $h$ , то  $\alpha$ -частица



проходит в материале образца путь  $R_1$ , а в фотоматериале – путь  $R_2$ , при этом под микроскопом мы видим проекцию трека на плоскость фотоматериала, длина которой  $d$ , начало проекции трека находится на расстоянии  $l$  от источника излучения. Трек входит в эмульсию под углом  $\alpha$ . Если источник излучения достаточно активен, то на автордиограмме фиксируется характерное скопление треков – «звезда».

**Рис. 3.** Схема образования отдельных треков и звёзд, фиксируемых фотопластинкой.



Объектом исследования в микроавтордиографии являются треки (следы) отдельных заряженных частиц в фотослое. При просмотре автордиограммы под микроскопом определяют длину треков, которая рассчитывается как среднее из нескольких десятков значений. По полуденной длине следа определяют, например, энергию  $\alpha$ -частицы, что вполне идентифицирует изотоп. Иногда при просмотре фотопластинки определяют число проявленных зерен серебра на единицу длины следа или на единицу площади фотослоя. Расстояние между кристаллами серебра

позволяет установить тип исследуемой частицы, так как плотность проявленных зерен зависит от степени ионизации, произведенной частицей в зернах галоидного серебра, и от чувствительности эмульсии. Установлено, например, что плотность следа  $\alpha$ -частицы (число проявленных зерен AgBr на единицу длины пути) приблизительно равна половине максимально возможной плотности эмульсии. По числу треков, приходящихся на единицу площади фотоэмульсии, при известной продолжительности экспонирования можно рассчитать концентрацию изотопа в исследуемом образце.

Достоверные результаты получаются только при наличии большого числа измерений, поскольку величина погрешности (ошибка) резко уменьшается при увеличении общего числа выполненных измерений. Большой объем полученных данных вызывает необходимость статистической обработки, при которой учитывается как статистический характер процесса радиоактивных превращений, так и статистический разброс результатов измерений.

Сведения, которые получают при просмотре фотопластинки, позволяют решить следующие вопросы: имеется ли один изотоп или их смесь; если имеется смесь, то из каких изотопов она состоит; каковы количественные соотношения содержания присутствующих изотопов в первоначальном растворе; сколько имеется примесей других изотопов и какие именно.

Проведение большого числа отсчетов требует длительной работы с микроскопом.

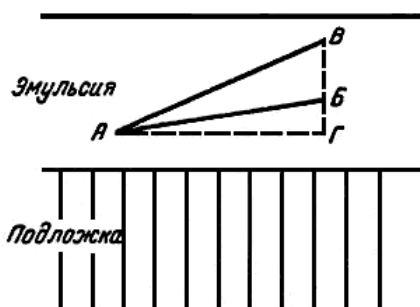
Чтобы идентифицировать неизвестный изотоп с помощью ядерной фотоэмульсии, необходимо сначала получить кривые, отражающие зависимость величин пробега  $\alpha$ -частиц в эмульсии от их пробега в воздухе или от их энергии. Обычно для этого готовят растворы радиохимически чистых изотопов, которые затем вводят в фотоэмульсию; после экспозиции фотопластинку проявляют и исследуют. Затем в тех же условиях получают автордиограмму неизвестного изотопа, исследуют ее и, используя полученные калибровочные кривые, идентифицируют неизвестный изотоп. Таким образом, работа по идентификации изотопа состоит из двух этапов.

Первый этап - получение калибровочной кривой для данного типа ядерной фотоэмульсии - может выполняться на предварительно приготовленных фотопластинках, в которые вводились различные изотопы. Второй этап - идентификация неизвестного изотопа - включает введение радиоактивного изотопа внутрь фотоэмульсии, а затем проявление и исследование полученной микроавтордиограммы для идентификации изотопа.

В ходе исследования на предметный столик микроскопа помещают эмульсией сверху проявленную фотопластинку, в которую введен радиоактивный изотоп; пластинку закрепляют в препаратодителе. На револьверной оправе микроскопа устанавливают объектив 90 X или 60 X. В соответствующий окуляр вставляют окуляр-микрометр, цена деления которого известна для данного увеличения микроскопа. Выбирают произвольную точку на фотопластинке и считают ее началом измерения. На поверхность пластинки наносят каплю иммерсионного масла, погружают в него объектив и, наблюдая в микроскоп, медленно поднимают тубус винтом грубой наводки. Внимательно следят за появлением в поле зрения первых признаков изображения. Дальнейшую, наводку на резкость производят с помощью микрометрического винта.

Измерение треков осуществляют двумя способами: если трек расположен под углом к горизонтальной плоскости, то необходимо измерить две его проекции - горизонтальную и вертикальную - и затем рассчитать длину трека; если трек лежит в горизонтальной плоскости, то измерение одной его проекции - горизонтальной - сразу дает его длину.

**Нахождение длины трека по двум проекциям.** Рассмотрим общий случай образования трека  $\alpha$ -частицы в эмульсии.



**Рис. 4.** Схема образования трека в ядерной фотоэмульсии и влияние явления усадки фотослоя.

Радиоактивный атом, находящийся в точке А (Рис. 4), при распаде выбросил  $\alpha$ -частицу под углом к горизонтальной плоскости, например в направлении АВ. Так как после фотографической обработки толщина фотослоя пластинки уменьшается (явление «усадки»), то в проявленной эмульсии трек займет положение АБ. При просмотре пластинки невозможно непосредственно измерить длину трека АБ, лежащего под углом к горизонтальной плоскости. Чтобы определить длину такого трека, измеряют две его проекции - горизонтальную АГ и вертикальную БГ - с помощью окуляр-микрометра и шкалы микрометрического винта наводки.

Когда трек находится в поле зрения микроскопа, совмещают , шкалу окуляр-микрометра и трек так, чтобы направление трека было параллельно изображению шкалы. Сначала фокусируют объектив микроскопа на один конец трека, например А, и отмечают показание шкалы. Затем, регулируя микровинтом, фокусируют объектив на другой конец трека Б; снова отмечают показание шкалы. Разность этих двух показаний дает величину горизонтальной проекции трека, выраженную в делениях окулярной шкалы. Зная цену деления шкалы, определяют размер проекции в микронах. Вертикальную проекцию определяют как разность двух показаний шкалы микрометрического винта наводки микроскопа при фокусировании объектива на два конца трека.

Если, например, в процессе измерений трека получены результаты:

Показания шкалы		
окуляр-микрометра	60 (точка А)	74 (точка Г)
микрометрического винта	30 (точка Б)	35 (точка Г)
Цена деления, мкм		
Окуляр-микрометра	1,4	
Микрометрического винта	2	

тогда длина трека АБ (в мк) равна

$$AB = \sqrt{[(74 - 60) \cdot 1,4]^2 + [(35 - 30) \cdot 2]^2} = \sqrt{384,16 + 100} = 22,0$$

Мы получили значение АБ, т. е. величину трека в проявленной эмульсии. Данная величина не является истинной величиной пробега  $\alpha$ -частицы, так как не было учтено явление усадки, которое характеризуют коэффициентом усадки, определяемым отношением толщины эмульсии до и после проявления.

Для пластинок типа А-2, толщина эмульсионного слоя которых составляет 50 мкм, величина коэффициента усадки колеблется от 2,3 до 2,5. Очевидно, чтобы получить величину пробега  $\alpha$ -частицы в непроявленной эмульсии, поправку на усадку следует вводить только в значение вертикальной проекции.

Описанный способ измерения длины трека особенно ценен при малом числе образовавшихся треков, т. е. когда должна быть измерена длина каждого встречающегося трека.

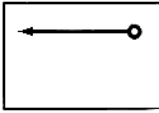
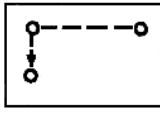
**Нахождение длины трека измерением только горизонтальных треков.** Возможность подсчета только горизонтальных треков основана на равной вероятности испускания ядром  $\alpha$ -частицы в любом направлении. Поэтому в горизонтальной плоскости всегда будет расположена определенная доля треков  $\alpha$ -частиц. Наиболее подходящими объективами для измерения горизонтальных треков являются объективы с большим собственным увеличением (90X и 60X), которые к тому же обладают весьма высокой разрешающей способностью. (Трек считают горизонтальным, если он лежит в одной плоскости на всем своем протяжении в поле зрения и при повороте микрометрического винта вертикального хода тубуса микроскопа грек по всей своей длине одновременно становится нерезким).

Совмещают изображение горизонтального трека с изображением окулярной шкалы; отмечают число делений, перекрываемых треком. Зная цену деления шкалы, рассчитывают размер трека в микронах. Записывают координаты первого трека (получают так называемую «узловую точку»), Координаты сосчитывают с двух шкал препаратоводителя, каждая из которых имеет нониус. Для одного изотопа измеряют 30—40 треков. Если в фотопластинке присутствовал только один изотоп, то достаточная точность при расчете средней величины пробега  $\alpha$ -частиц получается уже при измерении 30—40 треков. Если же в эмульсию вводили смесь изотопов, то при желании сохранить ту же точность необходимо измерять гораздо

большее число треков (100 и более). Результаты измерений сводят в таблицу (как пример, см. Табл. 2). Ввиду статистического характера распределения пробега  $\alpha$ -частиц в эмульсии необходимо вычислить среднее значение, получающееся из большого числа измерений, которое называют средним пробегом  $\alpha$ -частиц данной энергии.

**Табл. 2.** Форма записи результатов измерений горизонтальных треков  $\alpha$ -частиц.

Препарат № \_\_\_\_\_, изотоп \_\_\_\_\_, Микроскоп типа \_\_\_\_\_, № \_\_\_\_\_,  
год \_\_\_\_\_, Увеличение \_\_\_\_\_, Цена одного деления окуляр-микро-  
метра: \_\_\_\_\_ мк.

№ трека	Координаты узловых точек движения пластинки	Длина горизонтального трека		Примечание *
		в делениях окулярной шкалы	мк	
1	$x = 80,8; y = 24,1$	18	14,4	
2		20	16,0	
3		17	13,6	
...	.....	...	...	
31	$x = 86,1; y = 23,7$	21	16,8	
32		16	12,8	
...	.....	...	...	

В примечании приведены рисунки пластинки, на которых стрелкой показывают направление просмотра пластинки. Начало просмотра фиксируют в графе «Координаты узловых точек движения пластинки».

Затем аналогичным путем находят величины среднего пробега  $\alpha$ -частиц других изотопов (всего для 5 - 6) и строят калибровочные кривые для ядерной фотоэмульсии данного типа, т. е. кривые зависимости среднего пробега  $\bar{R}_{эм}$   $\alpha$ -частиц в эмульсии от энергии  $E$   $\alpha$ -частиц

$$\bar{R}_{эм} = f(E) \quad (3)$$

или среднего пробега  $\bar{R}_{эм}$   $\alpha$ -частиц в эмульсии от пробега  $R_{возд}$   $\alpha$ -частиц в воздухе

$$\bar{R}_{эм} = f(R_{возд}) \quad (4)$$

При исследовании препарата, содержащего неизвестный  $\alpha$ -излучатель, решают обратную задачу: по калибровочным кривым определяют энергию или пробег  $\alpha$ -частиц в воздухе, что позволяет идентифицировать изотоп.

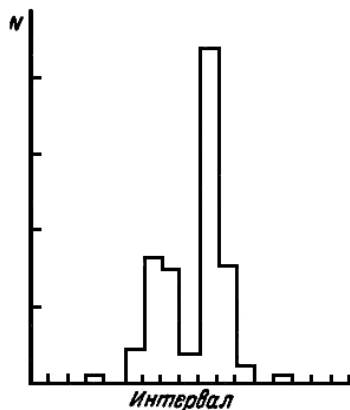
**Обработка результатов измерений.** Оценку среднего значения длины трека производят на основе учета статистического характера распределения длин треков, так как треки всегда имеют некоторый разброс по величине.

Причины разброса следующие: горизонтальность трека не идеальна; концентрация галоидного серебра в разных местах фотографического слоя имеет флуктуационные отклонения; возможны отдельные случаи, когда концевые зерна трека не проявляются; четкое совмещение линий измерительной шкалы с началом и концом трека затруднено и т. п. По этим причинам приходится измерять несколько десятков треков для одного изотопа, чтобы рассчитать среднюю величину пробега  $\alpha$ -частиц в эмульсии как среднее взвешенное значение измеренных величин. Так как разрешающая способность ядерных фотоэмульсии не превышает 0,2 МэВ, то можно считать, что каждому изотопу соответствует одна группа частиц со средней энергией  $E \pm 0,2$  МэВ.  $\alpha$ -Частицы другого изотопа с энергиями, лежащими внутри этого интервала, могут быть различимы лишь при использовании специальных приемов анализа.

В общем случае для какого-либо изотопа, выполнив сравнительно большое число измерений, получают ряд значений величин горизонтальных треков, причем из общего числа измеренных треков:

Треки длиной $R_1$ мкм встретились $N_1$ раз
Треки длиной $R_2$ мкм встретились $N_2$ раз
.....
Треки длиной $R_i$ мкм встретились $N_i$ раз
----- $\Sigma N_i = N_s$

Чтобы наглядно представить характерные особенности полученного распределения длин треков, его изображают графически в виде гистограммы. Другими словами, гистограмма наглядно показывает, измерялась одна или несколько групп  $\alpha$ -частиц, а следовательно, имеется один изотоп или смесь изотопов.



**Рис. 5.** Общий вид гистограммы.

Для построения гистограммы диапазон изменения длин  $R_i - R_l$  делят на нечетное число интервалов (обычно на 7 - 11) и отмечают число (частоту) треков, длина которых лежит внутри каждого интервала. Величину интервала можно также выбрать произвольно, например равную 1 мкм или цене деления окулярного микрометра и т. п. Считается, что все значения длин треков, лежащие внутри интервала, распределены равномерно. Поэтому каждый

интервал изображают прямоугольником, основание которого равно ширине интервала, а высота - соответствующей частоте треков. Общий вид гистограммы приведен на **Рис. 5**. По оси абсцисс отложены интервалы, равные 1 мкм, а по оси ординат - число частиц  $N$ .

Из **Рис. 5** ясно, что для подсчета средней величины пробега  $\alpha$ -частиц данного изотопа в эмульсии нельзя брать все измеренные треки: левый максимум показывает наличие примеси в основном изотопе. При расчете  $\bar{R}_{эм}$  треки  $\alpha$ -частиц примеси следует исключить. Чтобы правильно рассчитать  $\bar{R}_{эм}$ , в полученном распределении определяют границы измеренных длин треков, принадлежащих данному изотопу.

Один из наиболее простых способов оценки границ состоит в графическом нахождении квадратичной ошибки отдельного измерения  $s\{R_{ij}\}$ , с помощью которой находят предельные значения длин треков данного распределения. Для этого на гистограмме проводят плавную кривую (кривая распределения); максимальную ординату, соответствующую  $\bar{R}_{эм}$ , делят пополам и через полученную точку проводят горизонтальную линию до пересечения с ветвями кривой распределения; из точек пересечения опускают на ось абсцисс перпендикуляры и получают величины  $s\{R_{ij}\}$ , которые при достаточно большом числе измерений должны быть равны. По найденной  $s\{R_{ij}\}$  оценивают границы данного распределения: все длины треков, лежащие внутри интервала  $[\bar{R}_{эм} - 2s\{R_{ij}\}; \bar{R}_{эм} + 2s\{R_{ij}\}]$ , принадлежат  $\alpha$ -частицам данного изотопа.

В **Табл. 3** дан пример записи результатов наблюдения и расчёта среднего арифметического значения длины пробега  $\alpha$ -частиц в эмульсии.

Чтобы рассчитать среднее арифметическое значение  $\bar{R}_{эм}$ , берут отношение суммы произведений  $R_i \cdot N_i$  к общему числу измеренных треков  $N_0 = \sum N_i$

$$\bar{R}_{эм} = \frac{\sum R_i \cdot N_i}{N_0} \quad (5)$$

Для оценки точности полученного среднего значения пробега сначала вычисляют дисперсию отдельного измерения  $s^2\{R_i\}$  по формуле:

$$s^2\{R_i\} = \frac{\sum (R_i - \bar{R})^2}{N_0 \cdot (N_0 - 1)} \quad (6)$$

**Табл. 4.** Пример записи результатов наблюдения и расчёта среднего арифметического значения длины пробега  $\alpha$ -частиц в фотоэмульсии.

Длина трека $R_i$ , мк	Число треков $N_i$ с длиной $R_i$	$R_i \cdot N_i$	$R_i^2$	$R_i^2 \cdot N_i$	Вычисление дисперсии $s^2\{R_i\}$ и квадратичного отклонения $s\{R_i\}$
18,4	3	55,2	338,56	1015,68	$s^2\{R_i\} = \frac{\sum_{i=1}^{N_0} R_i^2 - \frac{(\sum_{i=1}^{N_0} R_i)^2}{N_0}}{N_0 - 1} =$ $= \frac{50\,590,94 - \frac{(2523,6)^2}{126}}{125} =$ $= 0,3747$ $s\{R_i\} = \sqrt{0,3747} = 0,612$ $3s\{R_i\} = 1,83$
18,8	1	18,8	353,44	353,44	
19,2	19	364,8	368,64	7004,16	
19,6	6	117,6	384,16	2304,96	
20,0	62	1240,0	400,00	24800,00	
20,4	8	163,2	416,16	3329,28	
20,8	23	478,4	432,64	9950,72	
21,2	2	42,4	449,44	898,88	
21,6	2	43,2	466,56	933,12	
$N_0 = \sum N_i = 126$ $\sum R_i \cdot N_i = 2523,6$ $\bar{R}_{эм} = \frac{\sum R_i \cdot N_i}{\sum N_i} = \frac{2523,6}{126} = 20,03$ $\bar{R}_{эм} = 20,0 \text{ мк}$		$\sum R_i^2 \cdot N_i = 50590,94$		Границы 95%-ного доверительного интервала среднего арифметического: $\pm \frac{t \cdot s\{R_i\}}{\sqrt{N_0}} = \pm \frac{2 \cdot 0,612}{\sqrt{126}} = \pm 0,11$	

Положительное значение квадратного корня из дисперсии есть квадратичное отклонение (ошибка) отдельного измерения

$$s\{R_i\} = \sqrt{s^2\{R_i\}} = 0,612 \quad (7)$$

Границы полученного распределения результатов определяются интервалом  $(\bar{R} \pm 3s\{R_i\})$ , так как в данном случае проводилось весьма тщательное измерение пробега  $\alpha$ -частиц данного изотопа. Этот интервал (18,20 - 21,86 мкм) охватывает все значения результатов измерений, а это значит, что при расчете среднего арифметического  $\bar{R}_{эм}$  необходимо учитывать все измеренные значения  $R_i$ .

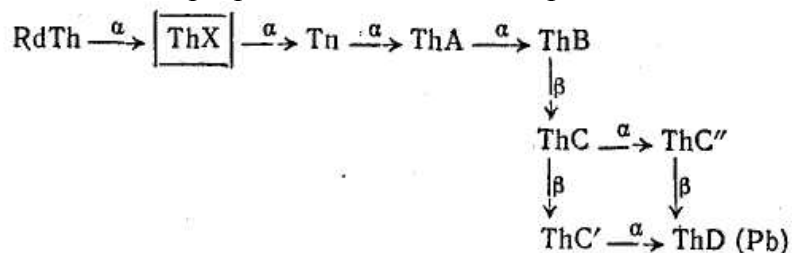
Пользуясь найденным значением  $s\{R_i\}$ , с помощью  $t$ -критерия находят 95%-ные доверительные границы среднего арифметического

$$\pm \frac{t \cdot s\{R_i\}}{\sqrt{N_0}} = \pm \frac{2 \cdot 0,612}{\sqrt{126}} = \pm 0,11 \quad (8)$$

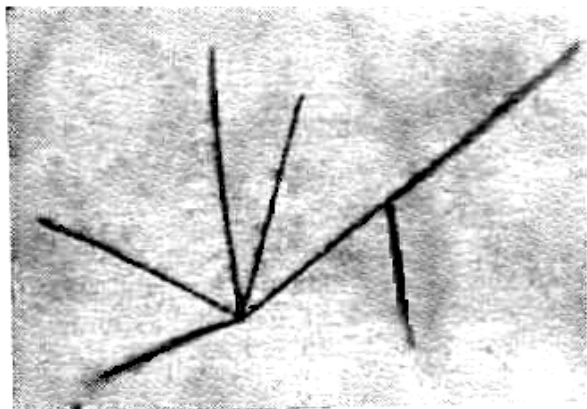
а затем выписывают окончательный результат, как это сделано в последней строке **Табл. 4**.

Другим примером применения трековой автордиографии является обнаружение короткоживущих промежуточных радионуклидов в рядах генетически связанных изотопов.

Если из препарата тория выделить соосаждением с барием изотоп радия ThX ( $^{224}\text{Ra}$ ) и ввести его в фотопластинку, то через несколько дней экспонирования можно подсчитать отношение в разветвлении при распаде ThC. Превращения атомов ThX происходят согласно схеме:



Так как периоды полураспада продуктов превращения ThX малы и не превышают 10,6 ч, то при продолжительности экспонирования в течение нескольких дней в пластинке можно наблюдать ряд «звезд». «Звездой» называют совокупность нескольких треков, выходящих из одной точки (**Рис. 6**). Наличие звезды означает, что зарегистрирован случай последовательного превращения изотопов какого-либо радиоактивного ряда, в данном случае ториевого.



**Рис. 6.** Звезда, образующаяся при последовательном превращении атома тория  $^{228}\text{Th}$  (RaTh).

Если измерить общее число встретившихся при просмотре четырехлучевых звезд  $A_1$  а также отметить число звезд  $A_2$  с наибольшим пробегом, который будет соответствовать распаду  $\text{ThC}'$  ( $E = 8,776$  МэВ), то величина разветвления в сторону  $\beta$ - $\alpha$ -превращения будет равна отношению  $A_2/A_1$ . Количественная обработка АРГ образцов с распадом  $\text{ThC}$  позволяет рассчитывать соотношение  $\alpha$ - $\beta$  и  $\beta$ - $\alpha$ -превращений.

Определение постоянной распада долгоживущего изотопа в тех случаях, когда приходится иметь дело с малым количеством радиоактивного изотопа, вызывает необходимость длительной стабильной работы регистрирующего устройства, что весьма трудно осуществить на практике. Авторадиографический метод позволяет значительно увеличить время регистрации излучения, а следовательно, и определить постоянную распада долгоживущего изотопа при работе со сравнительно малым количеством радиоактивного вещества.

В ходе анализа выделяют радиоактивный изотоп, определяют степени радиохимической чистоты изотопа и, если нужно, проводят дополнительную радиохимическую очистку и рассчитывают постоянную распада.

В ходе анализа раствор радиоактивного элемента подготавливают для авторадиографирования и затем вводят внутрь фотоэмульсию. Для этого можно использовать различные приемы, из которых самым простым по выполнению является метод пропитки. Оставляют фотопластинку на экспонирование, проявляют фотопластинку по стандартной методике и анализируют авторадиограмму - измеряют длину значительного (200 - 300) числа треков  $\alpha$ -частиц. Строят гистограмму, по которой судят о радиохимической чистоте препарата. В случае необходимости дополнительно очищают препарат и снова определяют его радиохимическую чистоту. Если радиохимическая чистота препарата оказалась достаточной, приступают к определению постоянной распада.

С этой целью на предметный столик микроскопа помещают авторадиограмму, соответствующую радиохимически чистому препарату радиоактивного изотопа. Определяют общее число треков, находящихся в поле зрения. При этом принимают во внимание все треки, которые имеют три и более проявленных зерен, расположенных на прямой линии. Всего анализируют 50—100 полей зрения. Рассчитывают среднее число  $B$  треков одного изотопа на поле зрения (без фона). Зная концентрацию применявшегося раствора  $c$ , коэффициент внедрения  $k$ , величину объема поля зрения микроскопа  $V$ , время экспозиции  $t$ , число Авогадро  $N_A$  и атомный вес исследуемого изотопа  $A$ , вычисляют постоянную распада  $\lambda$  по формуле:

$$\lambda = \frac{AB}{cN_A k V t} \quad (9)$$

Определение удельной активности изотопов, испускающих  $\alpha$ -частицы, служит дополнительным критерием оценки их радиохимической и химической чистоты. В качестве примера рассмотрим методику определения удельной активности урана.

Вводят уран в ядерную фотоэмульсию, например, пропитыванием фотослоя в растворе радиоактивного изотопа или другим способом. Рассчитывают продолжительность экспонирования. Ядерную фотоэмульсию подвергают фотографической обработке по стандартной методике. Анализируют авторадиограмму под микроскопом: в каждом поле зрения подсчитывают общее число треков, причем за трек принимают три и более проявленных зерна, расположенных на одной прямой. Просматривают 50—100 полей зрения. Рассчитывают среднюю величину числа треков  $B$ , приходящихся на одно поле зрения.

Измерив объем поля зрения микроскопа  $V$  при данном увеличении и, если необходимо, определив коэффициент внедрения изотопа  $k$ , вычисляют объемную удельную активность  $S_\alpha$  по формуле (1). Если найденная величина удельной активности значительно превышает табличное значение, то необходимо провести радиохимическую очистку примененного изотопа.

Соединения урана или тория, с которыми обычно приходится иметь дело, не являются радиохимически чистыми, так как включают в свой состав различные изотопы урана или тория и продукты их распада. В то же время для изготовления эталонов, определения удельной активности, выделения короткоживущих продуктов распада, изучения законов накопления продуктов распада, приготовления мишеней для облучения и других целей необходимы радиохимически чистые соединения урана и тория.