

Коллекция

МИНИСТЕРСТВО КУЛЬТУРЫ СССР
— НИКФИ —

ТРУДЫ
ВСЕСОЮЗНОГО
НАУЧНО-ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКОГО
КИНОФОТОИНСТИТУТА

ВЫПУСК № 11 (21)

ЯДЕРНЫЕ ЭМУЛЬСИИ

МОСКВА — 1957

СОДЕРЖАНИЕ

ТРУДЫ
ВСЕСОЮЗНОГО
НАУЧНО-ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКОГО
КИНОФОТОИНСТИТУТА

ВЫПУСК № 11 (21)

ЯДЕРНЫЕ ЭМУЛЬСИИ

СО Д Е Р Ж А Н И Е

	Стр.
Предисловие	3
1. К. С. Богомолов. Теоретические основы изготовления высокочувствительных мелкодисперсных фотографических эмульсий. (Принцип однородности) . . .	6
2. В. М. Уварова, М. Ф. Родичева, К. М. Романовская. Исследование процесса перекристаллизации зерен галоидного серебра эмульсии для ядерных исследований	17
3. В. М. Уварова, М. Ф. Родичева. Исследование причин появления дихроической (цветной) вуали и черного налета, возникающих в процессе проявления толстослойных ядерных пластинок	30
4. В. М. Уварова, М. Ю. Дебердеев, Е. И. Щербакова. Исследование процесса сульфатного осаждения ядерных эмульсий	36
5. В. М. Уварова, Н. В. Аносова. Исследование набухаемости пластинок g — 5 Ильффорд и типа Р НИКФИ	43
6. А. А. Панкова, К. С. Богомолов. Влияние сенсibiliзирующего раствора на перекристаллизацию бромистого серебра и на фотографические свойства ядерной эмульсии	49
7. К. С. Богомолов, А. А. Сиротинская, М. Ю. Дебердеев, В. М. Уварова. Фотоматериалы НИКФИ для ядерных исследований типов А-2, Я-2 и К	58
8. А. А. Сиротинская, К. С. Богомолов. Фотопластинки типов Т-1, Т-2 и Т-3 для дискриминации следов однозарядных частиц и альфа-частиц	66
9. К. С. Богомолов, А. А. Сиротинская, М. Ю. Дебердеев, В. М. Уварова. Научные принципы рациональной рецептуры ядерных фотоэмульсий, регистрирующих следы частиц с минимальной ионизацией (тип Р)	73
10. К. С. Богомолов, М. Ю. Дебердеев, А. А. Сиротинская, В. М. Уварова. Фотоматериалы для микроавторадиографии типа МР и МК	87
11. К. В. Старинин. Применение радиоактивных изотопов для определения чувствительности фотопластинок, регистрирующих заряженные частицы с минимальной ионизирующей способностью	94
12. К. В. Старинин, Э. А. Груз. Определение чувствительности ядерных фотоэмульсий типа Р на бетатроне с выведенным электронным пучком	102

ПРЕДИСЛОВИЕ

Идея применения толстослойных фотопластинок для исследований в области ядерной физики и космических лучей и получение первых в мире фотопластинок для указанных целей является заслугой советских физиков Л. В. Мысовского и А. П. Жданова (1935 год). В послевоенное время ряд исследований в области изготовления эмульсий проводился многими советскими исследователями (А. П. Жданов, Н. А. Перфилов, Д. М. Самойлович, И. Р. Протас и др.).

Радиографическая лаборатория НИКФИ была основана в мае 1949 года по инициативе Президента Академии наук СССР С. И. Вавилова и члена-корреспондента АН СССР И. М. Франка в связи с необходимостью разработки и систематического производственного изготовления фотопластинок для ядерных исследований. К этому времени в НИКФИ К. С. Богомолым и А. А. Сиротинской уже был проведен ряд научных работ в этом направлении, причем были получены первые в Союзе опытные эмульсии, регистрирующие следы электронов энергии 80—100 кэв.

Объективные трудности разработки фотоэмульсий для ядерных исследований состояли в следующем:

- 1) специфичность фотографического действия заряженных частиц по сравнению с хорошо изученным механизмом действия света;
- 2) требование высокой концентрации галоидного серебра в слое, что связано с преодолением коллоидной нестабильности такой системы;
- 3) получение толстых слоев;
- 4) необходимость наличия крайне низкой вуали; число зерен вуали у ядерных эмульсий составляет тысячные доли процента от общего числа непроявленных микрокристаллов в слое (у обычных негативных эмульсий относительное число зерен вуали примерно в 10^3 раз больше);
- 5) требования к физико-механическим свойствам эмульсионного слоя в процессе хранения, выдерживания в высоком вакууме и при обработке; незначительная нелинейная деформация как условие, обеспечивающее возможность определения энергии частиц по углам многократного рассеивания;
- 6) требования к дискриминации тех или иных частиц для различных сортов эмульсии;
- 7) самое важное требование — совмещение перечисленных условий (1—5) с наличием очень высокой чувствительности всех микрокристаллов эмульсии, что необходимо для регистрации следов однозарядных частиц релятивистских энергий (эмульсия типа *P*).

Выполнение этих требований связано еще с рядом трудностей технологического характера: для изготовления ядерных фотоматериалов применяется аппаратура, отличная от аппаратуры, применяющейся для изготовления обычных фотоматериалов.

Настоящий сборник трудов радиографической лаборатории включает в себя часть работ лаборатории, имеющих отношение, в основном, к во-

просам изготовления ядерных эмульсий и к конкретному ассортименту эмульсий НИКФИ. Кроме того, здесь уделено внимание процессу обработки и некоторым методикам испытания ядерных фотоэмульсий. Вопросы механизма фотографического действия ионизирующих излучений в настоящем сборнике не рассматриваются; эти вопросы отражены в 6 статьях по материалам работ, выполненных под руководством К. С. Богомолова Е. П. Добросердовой, В. Н. Жарковым, И. Ф. Разореновой, Н. В. Маслениковой и другими сотрудниками, и теоретических работ К. С. Богомолова, опубликованных в 1956—1957 годах в Журнале Научной и Прикладной Фотографии и Кинематографии.

Первая статья настоящего сборника посвящена так называемому «принципу однородности» К. С. Богомолова. Она касается наиболее общих условий получения высокой чувствительности фотоэмульсии, рассматриваемой как множество микрокристаллов, различающихся по кинетике созревания. Этот принцип имеет отношение ко всем типам фотоэмульсий в том числе к ядерным.

Четыре последующие статьи относятся к проблеме коллоидной стабильности и получения высоких физико-механических свойств ядерных фотослоев, разрабатываемой под руководством В. М. Уваровой. Эти работы были выполнены с участием М. Ф. Родичевой, К. М. Романовской, Н. В. Аносовой, М. Ю. Дебердеева и Е. И. Щербаковой в 1952—1953 годах и сыграли значительную роль для разработки технологии изготовления ядерных эмульсий, поскольку на раннем этапе разработки и выпуска ядерных фотопластинок приходилось преодолевать грубые дефекты эмульсии. К такого рода дефектам относились склонность к перекристаллизации зерен при хранении во влажной среде, дихроическое окрашивание слоя, плохая диспергируемость эмульсии перед вторым созреванием и плохие механические свойства слоя. Кроме того, к ним относились и другие дефекты, сущность которых является предметом коллоидно-химических исследований, изложенных в упомянутой серии статей. В настоящее время работы в этом направлении успешно продолжают А. А. Панковой, В. А. Мыльцевой, Н. В. Аносовой и другими сотрудниками под руководством В. М. Уваровой.

Одна статья (А. А. Панкова и К. С. Богомолов) посвящена исследованию влияния известных сенсibiliзирующих веществ, с учетом результатов предыдущих сообщений.

В трех последующих статьях описан основной ассортимент ядерных фотоматериалов НИКФИ и основных физико-химических принципов изготовления входящих в этот ассортимент фотоэмульсий. В первой из этих работ (К. С. Богомолов, А. А. Сиротинская, М. Ю. Дебердеев, В. М. Уварова) описываются фотопластинки типов А-2, Я-2 и К, выпускаемые с 1952 года.

Статья А. А. Сиротинской и К. С. Богомолова посвящена сильно дискриминирующим фотопластинкам типов Т-1, Т-2 и Т-3, разработанным в 1955—56 годах. В ней дается также обзор методов повышения дискриминирующей способности фотоэмульсии.

Следующая статья, в которой описаны фотоэмульсии типа Р, регистрирующие следы частиц минимальной ионизации, и основные научные принципы получения таких эмульсий, содержит результаты важнейшей по своему значению научной разработки лаборатории. Хотя первые в Союзе опытные фотоэмульсии, регистрирующие следы релятивистских частиц, были получены К. С. Богомоловым и А. А. Сиротинской еще в 1950 году, вследствие больших научных и технологических трудностей разработку фотоэмульсий типа Р для производственного выпуска К. С. Богомолову, А. А. Сиротинской, М. Ю. Дебердееву и В. М. Уваровой удалось осуществить лишь в 1953 году с участием большого коллек-

тива сотрудников лаборатории. В 1955 году в содружестве с О. П. Новиковым, Н. П. Козловой и Л. С. Спиридоновой (Научно-исследовательский институт химического машиностроения) было достигнуто дальнейшее усовершенствование свойств эмульсии типа P на основе применения выделения твердой фазы методом тонкослойного сепарирования. К этому же времени относится начало выпуска бесподложечных слоев типа P для эмульсионных камер.

В настоящее время широкий ассортимент ядерных фотоэмульсий, включая эмульсии, регистрирующие следы релятивистских частиц, выпускается на Западе только английской фирмой Ильфорд и в Советском Союзе — радиографической лабораторией НИКФИ.

Есть основания предполагать, что методы изготовления этих двух типов эмульсии совершенно различны. Чувствительность фотоэмульсий НИКФИ (30—40 зерен на 100 *микрон* следа релятивистской частицы) несколько превышает чувствительность эмульсий $g-5$ Ильфорд (соответственно 20—30 зерен).

Следующая статья содержит характеристики разработанных в лаборатории фотоматериалов для микроавтордиографии и методики их применения. Эти фотоматериалы в настоящее время широко используются в металлургии, геологии, биологии, медицине и других областях науки и техники.

Последние две статьи этого выпуска посвящены актуальным вопросам контроля чувствительности фотоэмульсий типа P . В первой из них (К. В. Старинин) описывается методика применения для этой цели радиоактивных изотопов и бета-спектрографа. В последней статье (К. В. Старинин и Э. А. Груз) описывается более совершенная техника испытания, применяемая в настоящее время в радиографической лаборатории, с использованием бетатрона с выведенным пучком электронов энергии около 15 *мэв*.

Работы радиографической лаборатории НИКФИ проводятся в содружестве с потребителями фотоэмульсий — сотрудниками большого числа научных учреждений Академии Наук СССР, Объединенного Института Ядерных Исследований и других организаций. Кроме того, по линии изготовления и применения фотоматериалов для микроавтордиографии лаборатория связана со многими научными учреждениями и предприятиями, работающими в различных отраслях физики, химии, техники, геологии, биологии и медицины.

Научный руководитель радиографической лаборатории НИКФИ К. С. БОГОМОЛОВ

К. С. БОГОМОЛОВ

ТЕОРЕТИЧЕСКИЕ ОСНОВЫ ИЗГОТОВЛЕНИЯ ВЫСОКОЧУВСТВИТЕЛЬНЫХ МЕЛКОЗЕРНИСТЫХ ФОТОГРАФИЧЕСКИХ ЭМУЛЬСИЙ

(Принцип однородности)

Повышение светочувствительности фотоэмульсии в процессе ее получения лимитируется обычно образованием вуали при химическом созревании. Кроме того, синтез эмульсий высокой чувствительности связан с необходимостью получения крупного зерна, что является, по существу, недопустимым с точки зрения качества фотографического изображения.

Соблюдение излагаемого «принципа однородности» позволяет в значительной мере устранить этот дефект, свойственный высокочувствительным эмульсиям.

§ 1. ПОНЯТИЕ «КИНЕТИЧЕСКОЙ ОДНОРОДНОСТИ» ЭМУЛЬСИИ В ПРОЦЕССЕ ЕЕ ИЗГОТОВЛЕНИЯ

Под «однородностью» эмульсии мы подразумеваем наличие у всех эмульсионных зерен, входящих в данную эмульсию, более или менее одинакового хода изменения фотохимических характеристик в процессе химического созревания. Фотографическая эмульсия состоит из множества отдельных микрокристаллов, обладающих различной скоростью химического созревания. Поэтому к моменту достижения предельно допустимой вуали значительная часть зерен уже получает способность к вуалеобразованию, в то время как огромное большинство зерен еще не дозрело до сколько-нибудь значительной чувствительности.

Таким образом, при рецептуре синтеза современных эмульсий мы неизбежно получаем либо недостаточную высокую чувствительность, либо весьма высокую вуаль за счет кинетической неоднородности зерен.

В этом рассуждении мы исходим из теории созревания эмульсии, согласно которой центр вуалирования эмульсии есть ничто иное, как переросший в процессе химического созревания центр чувствительности. Если, например, центр вуалирования должен содержать не менее 10 атомов серебра, то наиболее чувствительным зерном явится зерно, имеющее центры созревания (центры чувствительности) содержащие 9 атомов серебра, так как для того, чтобы оно получило способность к проявлению требуется прирост лишь одного атома серебра к этому центру в процессе действия света. Эмульсии с однородными зернами, созревающими с одинаковой скоростью, легче довести до такого состояния, чтобы имелось много зерен с центрами из $n=8-9$ атомов серебра при наличии весьма немногих зерен с n выше 10 (вуаль) и относительно немногих зерен с $n=0, 1, 2... 7$.

Эмульсии с неоднородными зёрнами будут всегда иметь весьма различные степени созревания отдельных зёрен и, таким образом, значительная часть зёрен перешагнет порог вуалеобразования раньше, чем большинство зёрен достигнет требуемой чувствительности.

При создании рецептуры и техники изготовления новых сортов фотоэмульсий, в частности рентгеновских и ядерных, основной целью часто является достижение максимальной чувствительности при заданном допустимом значении величины вуали. Во многих случаях практической целью является получение минимальной вуали при заданной величине чувствительности к свету или к ионизирующим излучениям.

Исходя из этих целей, мы предлагаем положить в основу рецептуры эмульсии принцип однородности, заключающийся в следующем.

Для получения максимальной фотографической чувствительности при минимальной вуали процесс изготовления фотоэмульсии должен быть построен так, чтобы все микрокристаллы эмульсии имели максимально однородное распределение скоростей химического созревания на всех стадиях этого процесса.

§ 2. ФАКТОРЫ, ОПРЕДЕЛЯЮЩИЕ СТЕПЕНЬ ОДНОРОДНОСТИ ЭМУЛЬСИИ

Эмульсионные зёрна могут иметь различную форму и различные размеры. Однако эмульсии могут быть и в этом отношении однородными (монодисперсными) и неоднородными (полидисперсными). Нами было обнаружено, что относительно монодисперсные эмульсии имеют наиболее однородную кинетику созревания (см. § 3).

Всякая ли монодисперсная (гранулометрически однородная) эмульсия является кинетически однородной? Мы отвечаем на этот вопрос отрицательно по следующим соображениям.

Эмульсия, поступающая на второе созревание с окончательно стабилизированной зернистой структурой, уже обладает какой-то начальной степенью химического созревания (обычно сравнительно невысокой). Может оказаться, что зёрна эмульсии проходили кристаллизацию в резко различных условиях и уже приобрели различную начальную степень химического созревания несмотря на то, что конечные размеры всех этих зёрен стали более или менее одинаковы к концу стадии кристаллизации.

Кинетической неоднородности даже у монодисперсных эмульсий к концу первого созревания могут способствовать следующие факторы:

1. Дробная кристаллизация, при которой эмульсионные микрокристаллы образуются неодновременно.

2. Различная кинетика кристаллизации зёрен. Так, например, крупные зёрна, содержащие много иодида, растут медленнее, чем мелкие зёрна без иодида; размеры их выравниваются, но условия для химического созревания получаются разные. При этом следует учесть, что сильный рост степени химического созревания отмечается тогда, когда заканчивается рост данных групп микрокристаллов. В этом случае уже невозможно заращивание центров химического созревания галоидным серебром.

3. Высокая температура, отсутствие стабилизаторов, активность желатин и другие факторы, усиливающие химическое созревание при рекристаллизации.

В связи с этим попадают такие рецепты эмульсии, которые не дают никакого повышения чувствительности при втором созревании. К числу таких рецептов относится большинство рецептов 20-х годов, когда второе созревание еще вообще не применялось. Первое созревание было весьма длительным. В результате такие фотоматериалы были весьма неоднородны и в кинетическом и в гранулометрическом отношениях и имели весьма низкую чувствительность. Теперь мы знаем, что одной из главных причин их низкой чувствительности была неоднородность.

Для того, чтобы избавиться от возникновения кинетической неоднородности в процессе кристаллизации зерен практически монодисперсной эмульсии, в качестве основного, радикального способа, следует применять резкое снижение скорости химического созревания во время кристаллизации введением стабилизатора. Кроме того, из тех же соображений следует применять незначительное время рекристаллизации и избегать высоких температур. Необходимо использовать способ кристаллизации, исключающий возникновения новых кристаллов при дробной эмульсификации и обеспечивающий равномерный рост всех микрокристаллов (это контролируется микрофотографическим путем).

При соблюдении этих условий, удастся создать процесс первого созревания, обеспечивающий высокую степень кинетической однородности эмульсии. Однако это возможно только в том случае, если однородность не будет нарушена в последующих стадиях эмульсионного процесса.

Техника осуществления стадий процесса изготовления фотоэмульсий, являющихся переходными от первого созревания ко второму, имеет исключительно большее значение в отношении создания кинетически однородной эмульсии. При всех этих стадиях происходит в какой-то мере химическое созревание, причем регулирование его однородности связано с рядом технических затруднений.

Промывка эмульсии является одним из процессов, при которых весьма трудно обеспечить однородные условия для всего множества эмульсионных микрокристаллов как в отношении самого химического созревания застуженной эмульсии, так и в отношении распределения по микрокристаллам остаточных ионов брома, водорода и т. п., влияющих на скорость последующего второго созревания для отдельных групп микрокристаллов. Рациональное построение процессов студения и измельчения эмульсии также следует интерпретировать с точки зрения создания максимальной однородности всех микрокристаллов эмульсий. С этой же точки зрения не следует рекомендовать смешение эмульсии до проведения второго созревания, если нет абсолютной уверенности, что смешиваемые эмульсии требуют в точности одинаковую продолжительность созревания. Что касается местных перегревов эмульсии на любой стадии ее изготовления, то их вредность совершенно очевидна, что легко объясняется на основании приведенных рассуждений.

Применение принципа однородности к процессам выделения твердой фазы эмульсии, например при изготовлении фотоэмульсий для ядерных исследований, является довольно сложной технологической проблемой. Особенно трудно, в частности, создание однородного процесса коагуляции эмульсии раствором сульфата натрия. Применение принципа однородности к методам осаждения галлоидного серебра с использованием центробежных и иных ускорений представляет значительный интерес. Эти технологические задачи выходят из рамки настоящей статьи, целью которой является обоснование принципа однородности и его значения в наиболее широком, общем смысле.

§ 3. ГРАНУЛОМЕТРИЧЕСКАЯ ОДНОРОДНОСТЬ ФОТОЭМУЛЬСИИ

Одним из факторов, наиболее резко влияющих на скорость химического созревания, является размер эмульсионных микрокристаллов.

В предыдущем параграфе мы определили условия, при которых кинетическая однородность эмульсии в той или иной мере обеспечивается гранулометрической однородностью, т. е. условия, при которых зерна монодисперсной эмульсии обладают свойствами созревать с одинаковой скоростью.

Схема принципа монодисперсности, который является частным принципом, вытекающим из более общего «принципа однородности», приводится на рис. 1.

Верхняя часть схемы изображает кинетику химического созревания неоднородной эмульсии. Крупные зерна этой эмульсии созревают быстрее мелких. Уже в первоначальной стадии созревания наиболее крупные зерна находятся в перезревшем состоянии и дают при проявлении вуаль (см. крупное треугольное зерно на первом рисунке верхнего ряда). В этой стадии имеются как чувствительные так и незрелые нечувствительные зерна (последних большинство). В последующих стадиях крупные чувствительные зерна переходят в состав латентной вуали, а зерна меньших классов величины постепенно становятся чувствительными, чтобы пере-

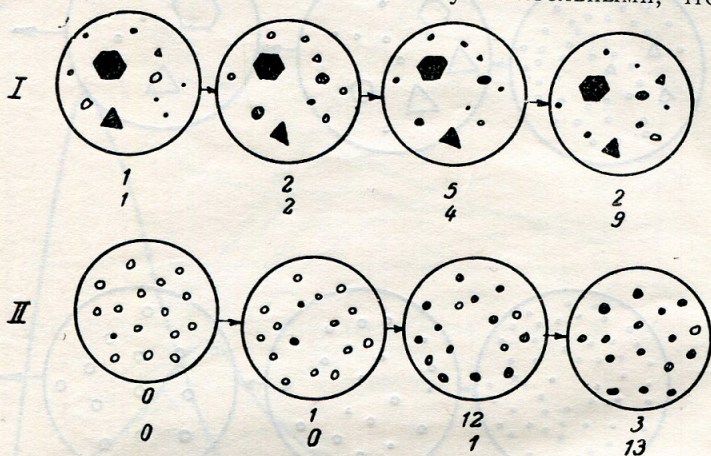


Рис. 1. Схема химического созревания для эмульсий с различной степенью полидисперсности.

○ — малочувствительное зерно, ● — высокочувствительное зерно,
 ▲ — вуалирующее зерно.

зреть в следующей стадии. В результате, за все время созревания нельзя найти такой момент, при котором подавляющее число зерен обладало бы высокой чувствительностью при одновременном присутствии малого количества вуалированных зерен.

Нижняя серия рисунков демонстрирует ход химического созревания однородной монодисперсной эмульсии. В начальной стадии перезревшие зерна практически отсутствуют. Все зерна созревают одновременно. Таким образом, мы получаем возможность прекратить созревание в такой момент, когда все зерна эмульсии, за незначительными исключениями, дозрели до высокой чувствительности и не дозрели до вуалеобразования.

Схема демонстрирует, насколько производительно используются в фотопроцессе все зерна однородной эмульсии и насколько непроизводительно используются зерна неоднородных эмульсий, часто встречающихся в практике.

Еще убедительнее становится преимущество однородных эмульсий, если представить себе более подробную схему, учитывающую градации чувствительности. Чувствительность эмульсионных зерен растет постепенно и обрывается при достижении порога вуалирования. Из схемы принципа однородности ясно, что в неоднородной эмульсии одновременно присутствуют все градации чувствительности от нуля до максимума, в то время как однородная эмульсия в принципе может иметь все зерна дозревшими до максимума.

созреванию при кристаллизации. Это явление необходимо было отметить в связи с тем, что чувствительность неоднородной эмульсии в данном случае весьма сильно возрастает во втором созревании по сравнению с

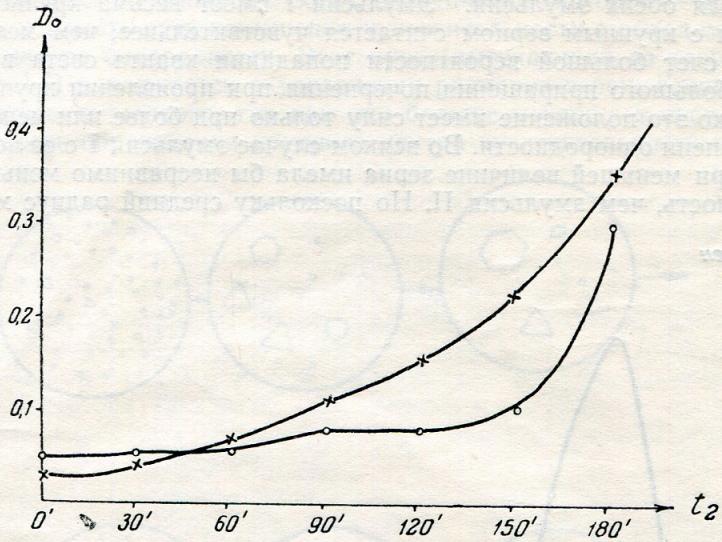


Рис. 4. Кривые роста вуали во втором созревании для эмульсий типа I и II.
x — тип I; o — тип II.

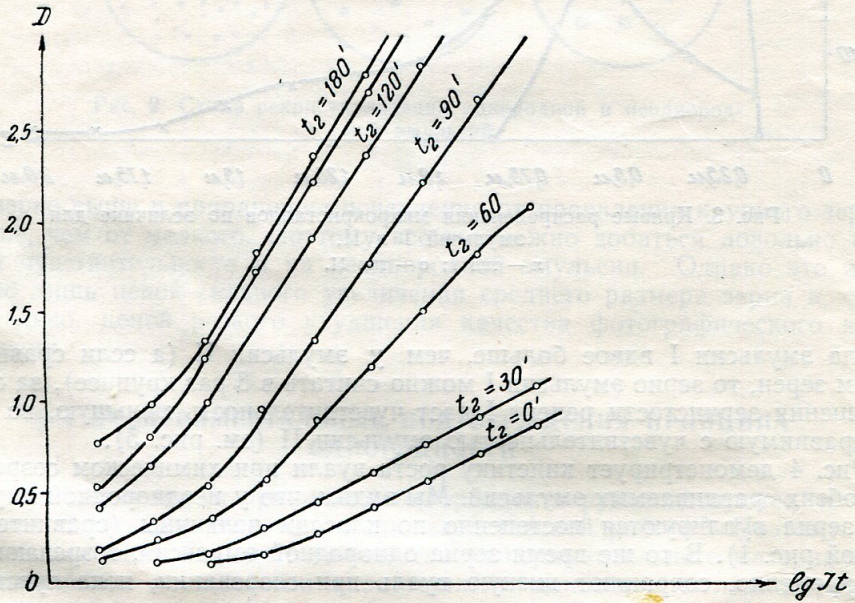


Рис. 5. Характеристические кривые однородных эмульсий (тип II) с переменным временем второго созревания.

исходной точкой. Однако это происходит лишь потому, что эта исходная точка очень низка.

Практическая чувствительность эмульсии I, которую можно вывести из характеристических кривых рис. 6 и кривой роста вуали (рис. 4), значительно уступает практической чувствительности эмульсии типа II

(рис. 5) за счет более благоприятной кинетики химического созревания у последней. Более подробное рассмотрение кривых рис. 5—6 приводит к следующим выводам:

1) У однородной эмульсии типа II максимальная плотность и контрастность (наклон характеристической кривой) достигают максимума уже при 90'. Это означает, что при 90' уже все зерна обладают светочувствительностью. Дальнейший сдвиг кривой, строго параллельной самой себе в сторону малых экспозиций, говорит о том, что у всех зерен чувствительность нарастает равномерно.

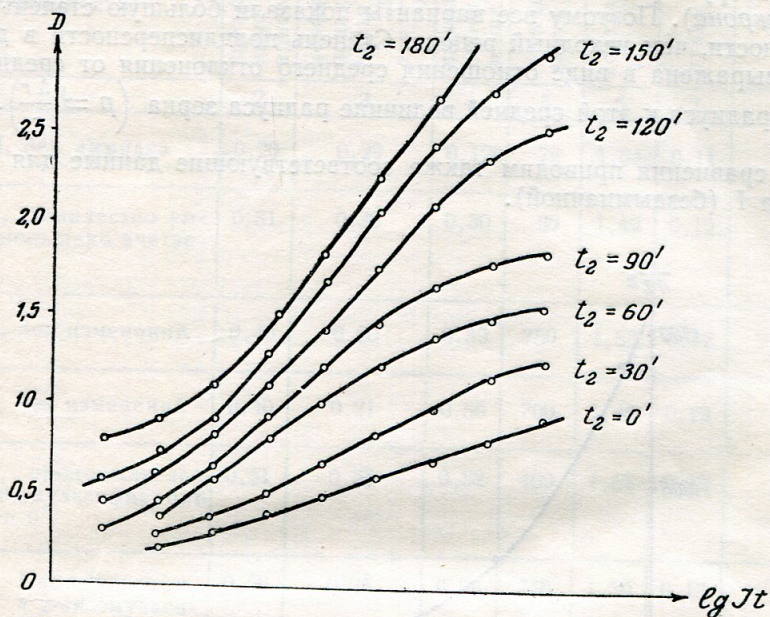


Рис. 6. Характеристические кривые неоднородных эмульсий (тип I) с переменным временем второго созревания.

2) У неоднородной эмульсии типа I максимальная плотность и гамма устанавливаются лишь к концу созревания при вуали порядка 0,2, когда эмульсия уже находится в перезревшем состоянии. Постепенный замедленный рост максимальной плотности говорит о том, что при 120' и 150', т. е. при высокой вуали, имеется еще много зерен с нулевой или чрезвычайно малой чувствительностью, которые даже при высоких экспозициях не могут войти в состав проявленного фотографического изображения. Таким образом, становится очевидным, что в момент достижения эмульсией предельно допустимой вуали, большинство зерен не успевает дозреть до высокой чувствительности. Приведенные данные подтверждают предложенную теорию однородности.

б) Сравнение фотосвойств эмульсий с различной степенью полидисперсности

Ниже описываются результаты одной серии опытов по определению влияния степени полидисперсности на фотосвойства эмульсий. Приводимые цифры относятся к оптимальным показателям вполне созревших эмульсий, сенсibilизированных золотом и панхроматическим красителем, причем показатели чувствительности взяты при приблизительно одинаковой вуали ($D_0=0,11-0,14$). Серия эмульсий была подобрана по

тод * для этой цели непригоден, так как он дает микрокристаллы неоднородные и по размерам и по форме. Последнее в применении к ядерным эмульсиям вообще недопустимо вследствие анизотропии такого фотослоя, в котором тормозная способность микрокристаллов и эмульсии в целом будет зависеть от угла прохождения частиц.

В случае ядерных эмульсий особое значение имеет однородность условий, влияющих на все множество микрокристаллов в процессе осаждения твердой фазы, промывки и диспергирования.

Приведенные взгляды на однородность фотоэмульсии, как на важнейшую характеристику качества проведения отдельных стадий процесса изготовления эмульсий, складывались в течение длительного времени, начиная с 1941 года. При этом систематически находились новые частные формы применения принципа однородности.

На основе исследований, проведенных сотрудниками радиографической лаборатории под руководством В. М. Уваровой⁵, можно в настоящее время смело утверждать, что коллоидная однородность эмульсионных микрокристаллов является одним из необходимых условий соблюдения принципа в целом. Влияние полимерной структуры макромолекул желатины и состояния защитных оболочек на кинетику процессов химического созревания, старения и регрессии отчетливо подтверждают это. Принцип коллоидной однородности в настоящее время прочно вошел в практику разработки и производства фотоматериалов НИКФИ для ядерных исследований^{6, 7, 8}.

ЛИТЕРАТУРА

1. Trivelli A. P. H. Smith W. F. Phot. J. 79, 330, 1939; Silberstein L. Phil. Mag., 5, 464, 1928.
2. Southworth. Brit. Journ. of Phot. 84, 611, 1937.
3. Антонов С. М., Зеликман В. Л., Мархилевич К. И. Кинопленка и ее обработка. М. Госкиноиздат, стр. 6, 1950.
4. Demers P. Phys. Rev., 70, 86, 1946.
5. Статьи 2—5 настоящего выпуска «Трудов» НИКФИ.
6. Богомолов К. С., Сиротинская А. А., Дебердеев М. Ю., Уварова В. М. Фотоматериалы НИКФИ для ядерных исследований типов А-2, Я-2 и К (См. статью 7 настоящего выпуска).
7. Сиротинская А. А., Богомолов К. С., Фотопластинки типов Т-1 Т-2 и Т-3 для дискриминации следов однозарядных частиц и альфа-частиц (См. статью 8 настоящего выпуска).
8. Богомолов К. С., Сиротинская А. А., Дебердеев М. Ю., Уварова В. М. Научные принципы рациональной рецептуры ядерных фотоэмульсий, регистрирующих следы частиц с минимальной ионизацией (тип Р). См. статью 9 настоящего выпуска.

* Здесь не имеется в виду капельный метод⁴, позволяющий существенно повысить однородность эмульсий без применения аммиака.

Зависимость между гранулометрическими и сенситометрическими показателями эмульсий с различной степенью полидисперсности

Эмульсии (в порядке возрастающей зернистости)	Гранулометрические показатели			Сенситометриче- ские показатели			Отношение чувстви- тельности к зернисто- сти $K = \frac{Sd}{\pi r^2}$
	средний ра- диус микро- кристалла r	коэффициент полидиспер- сности $p = \frac{\Delta r}{r}$	площадь проекции зерна πr^2	чувствитель- ность Sd	контрастность γ	вуаль D_0	
1	2	3	4	5	6	7	8
Тип II, без аммиака	0,20	0,29	0,126	70	1,64	0,11	550
Тип II, количество ам- миака уменьшено вчетве- ро	0,31	0,36	0,30	90	1,49	0,12	300
Тип II, без изменений	0,40	0,20	0,50	750	1,53	0,12	1500
Тип II, без изменений	0,40	0,21	0,50	700	1,45	0,12	1400
Тип II, продолжитель- ность 1-ой эмульсификации 10' вместо 0'	0,51	0,35	0,82	400	1,68	0,12	490
Тип II, 1-ая эмульсифи- кация 20' а 2-ая эмульси- фикация 20' вместо 0'	0,56	0,25	0,98	740	1,39	0,13	760
Тип II, 1-ая эмульсифи- кация 30'	0,60	0,28	1,13	560	1,33	0,12	500
Тип I, безаммиачная эмульсия с продолжитель- ностью эмульсификации 50'	0,81	0,36	2,61	600	1,35	0,14	230

§ 5. ПРИМЕНЕНИЕ ПРИНЦИПА ОДНОРОДНОСТИ ДЛЯ ИЗГОТОВЛЕНИЯ ЯДЕРНЫХ ФОТОЭМУЛЬСИЙ

Ядерные эмульсии отличаются от фотоэмульсий, предназначенных для действия видимого света, мелким зерном, высокой концентрацией галоидного серебра и весьма низкой допустимой величиной вуали. Количество зерен вуали в таких эмульсиях составляет тысячные доли процента от общего количества эмульсионных микрокристаллов. В то же время ряду сортов ядерных фотоэмульсий необходима высокая чувствительность каждого отдельного микрокристалла при весьма малом его размере, и потому соблюдение принципа однородности для обеспечения указанных свойств строго обязательно. По этой причине для изготовления ядерных фотоэмульсий был принят аммиачный метод, позволяющий при соответствующем регулировании параметров первого созревания получать эмульсии с однородными микрокристаллами. Простой безаммиачный ме-

тод * для этой цели непригоден, так как он дает микрокристаллы неоднородные и по размерам и по форме. Последнее в применении к ядерным эмульсиям вообще недопустимо вследствие анизотропии такого фотослоя, в котором тормозная способность микрокристаллов и эмульсии в целом будет зависеть от угла прохождения частиц.

В случае ядерных эмульсий особое значение имеет однородность условий, влияющих на все множество микрокристаллов в процессе осаждения твердой фазы, промывки и диспергирования.

Приведенные взгляды на однородность фотоэмульсии, как на важнейшую характеристику качества проведения отдельных стадий процесса изготовления эмульсий, складывались в течение длительного времени, начиная с 1941 года. При этом систематически находились новые частные формы применения принципа однородности.

На основе исследований, проведенных сотрудниками радиографической лаборатории под руководством В. М. Уваровой⁵, можно в настоящее время смело утверждать, что коллоидная однородность эмульсионных микрокристаллов является одним из необходимых условий соблюдения принципа в целом. Влияние полимерной структуры макромолекул желатины и состояния защитных оболочек на кинетику процессов химического созревания, старения и регрессии отчетливо подтверждают это. Принцип коллоидной однородности в настоящее время прочно вошел в практику разработки и производства фотоматериалов НИКФИ для ядерных исследований^{6, 7, 8}.

ЛИТЕРАТУРА

1. Trivelli A. P. H. Smith W. F. Phot. J. 79, 330, 1939; Silberstein L. Phil. Mag., 5, 464, 1928.
2. Southworth. Brit. Journ. of Phot. 84, 611, 1937.
3. Антонов С. М., Зеликман В. Л., Мархилевич К. И. Кинопленка и ее обработка. М. Госкиноиздат, стр. 6, 1950.
4. Demers P. Phys. Rev., 70, 86, 1946.
5. Статьи 2—5 настоящего выпуска «Трудов» НИКФИ.
6. Богомолов К. С., Сиротинская А. А., Дебердеев М. Ю., Уварова В. М. Фотоматериалы НИКФИ для ядерных исследований типов А-2, Я-2 и К (См. статью 7 настоящего выпуска).
7. Сиротинская А. А., Богомолов К. С., Фотопластинки типов Т-1 Т-2 и Т-3 для дискриминации следов однозарядных частиц и альфа-частиц (См. статью 8 настоящего выпуска).
8. Богомолов К. С., Сиротинская А. А., Дебердеев М. Ю., Уварова В. М. Научные принципы рациональной рецептуры ядерных фотоэмульсий, регистрирующих следы частиц с минимальной ионизацией (тип Р). См. статью 9 настоящего выпуска.

* Здесь не имеется в виду капельный метод⁴, позволяющий существенно повысить однородность эмульсий без применения аммиака.

В. М. УВАРОВА, М. Ф. РОДИЧЕВА, К. М. РОМАНОВСКАЯ

ИССЛЕДОВАНИЕ ПРОЦЕССА ПЕРЕКРИСТАЛЛИЗАЦИИ ЗЕРЕН ГАЛОИДНОГО СЕРЕБРА ЭМУЛЬСИЙ ДЛЯ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

Стабильность эмульсий для ядерных исследований, имеющих значительную концентрацию высокодисперсного галоидного серебра, в первую очередь определяется коллоидной устойчивостью системы. Известно, что коллоидная устойчивость золей зависит от состояния двойного электрического слоя на поверхности лиофобных коллоидных частиц. Адсорбирующиеся на поверхности коллоидных частиц ионы стабилизатора придают поверхности частиц электрический заряд. Несомненно, что стабильность системы будет нарушаться при снижении заряда коллоидных частиц и при определенных условиях может наступить процесс явной коагуляции частиц. Рост частиц при коагуляции может проходить, как рост компактного кристалла или путем увеличения размеров за счет агрегации первоначальных коллоидных частиц.

Исследования ряда авторов показали, что первоначальная коагуляция частиц проходит через агрегацию, а затем в системе начинается процесс перекристаллизации, т. е. рост более крупных частиц за счет мелких растворяющихся частиц. Безусловно, что большое влияние на свойства коллоидной системы имеет как переход частиц к компактному кристаллическому состоянию, так и образованию агрегатов из частиц. Естественно, что последние менее устойчивы и при определенных условиях диспергации могут дезагрегироваться. Компактные частицы пептизировать уже не удается.

Кроме стабилизации электролитами, лиофобные золи защищаются лиофильными коллоидами, которые адсорбируются на поверхности лиофобных частиц и тем самым предохраняют их от агрегации. По теоретическим представлениям П. А. Ребиндера¹ механизм защиты золей лиофильными коллоидами рассматривается в свете структурно-механических факторов стабилизации и образования структурной сетки. Можно предполагать, что образование структурной сетки в объеме ядерной эмульсии (по аналогии с механизмом стабилизации органозолей металлов, развитым Натансоном²), защищаемой желатиной, протекает следующим образом:

Молекулы желатины адсорбируются своими полярными группами на поверхности зерен галоидного серебра, причем адсорбционная оболочка на каждом отдельном зерне создается не одной макромолекулой желатины, а несколькими, адсорбированными на поверхности зерен галоидного серебра только частью своих полярных групп. Оставшиеся свободными полярные группы желатиновых макромолекул могут взаимодействовать с полярными группами других молекул либо адсорбироваться на поверхности других зерен галоидного серебра, тем самым создавая сетку. В такой структурной сетке коллоидные частицы галоидного серебра на-

ходятся во взвешенном состоянии, поддерживаемые сеткой желатиновых молекул. В большинстве случаев при защите зольей лиофильными коллоидами состояние двойного электрического слоя (заряда) на поверхности коллоидных частиц перестает быть тем существенным фактором, который определяет агрегативную устойчивость системы.

В случае же концентрированных эмульсий для ядерных исследований, можно предположить, что малая концентрация защитного коллоида не обеспечивает образования достаточно стабильных адсорбционно-защитных оболочек на поверхности зерен галоидного серебра, и структурная сетка макромолекул желатины, вследствие своей неодородности, находится в неравновесном, напряженном состоянии.

На основании этого присутствие электролитов в эмульсии должно оказывать большое влияние на коллоидную стабильность таких эмульсий. Так, например, изменение концентрации ионов избыточного бромида, заряжающих поверхность эмульсионных зерен, должно отражаться на коллоидном состоянии зерен галоидного серебра. Кроме того, большое влияние на коллоидную устойчивость частиц галоидного серебра ядерных эмульсий должны оказывать и другие вещества, обладающие избирательной адсорбцией на поверхности частиц и меняющие плотность заряда их поверхности например, метилокситриазоиндолизин, роданид, мочевины и др. В результате предварительного исследования было установлено, что в эмульсиях для ядерных исследований в процессе хранения в условиях высокой влажности и температуры происходило укрупнение зерен галоидного серебра за счет процесса перекристаллизации. На рис. 1 приведены

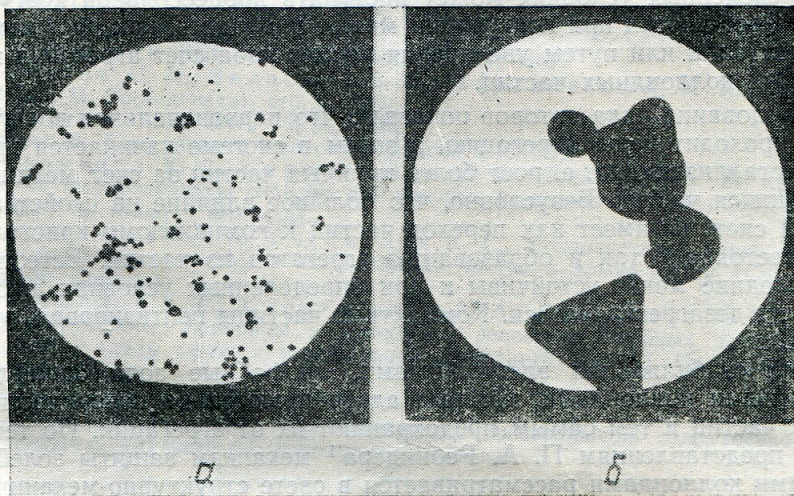


Рис. 1. Электронные микрофотографии непроявленных зерен эмульсии типа К для ядерных исследований. Увеличение 5000х.

а — готовая эмульсия; б — готовая эмульсия после термостатного хранения

микрофотографии зерен галоидного серебра эмульсии* до и после термостатного выстаивания. Как видно из рисунка, в процессе термостатного выстаивания произошла перекристаллизация зерен галоидного серебра.

Цель настоящей работы заключалась в выяснении причин, вызывающих процесс перекристаллизации эмульсионных микрокристаллов. Было исследовано влияние вышеуказанных веществ на перекристаллизацию зерен галоидного серебра ядерных эмульсий.

* Опытная эмульсия, изготовлявшаяся в процессе разработки типа К в 1951 году.

I. ИССЛЕДОВАНИЕ ПРОЦЕССА ПЕРЕКРИСТАЛЛИЗАЦИИ ПРИ ТЕРМОСТАТНОМ ВЫСТАИВАНИИ

Процесс перекристаллизации исследовался методом термостатного выстаивания. Эмульсионные слои толщиной 100 и 200 микрон выдерживались в термостате при температуре 36° и 100-процентной относительной влажности в течение 3—7 суток. Затем пластинки просушивались, экспонировались в контакте с урановой рудой и проявлялись. Оценка процесса перекристаллизации проводилась микроскопическим путем с помощью микроскопа МБИ-2 при увеличении 1300X. В каждом исследуемом случае определяли число полей зрения, содержащих 500 эмульсионных зерен измененной формы и увеличенного размера. Число измененных зерен пересчитывалось на объем $0,2 \cdot 10^{-7} \text{ см}^3$.

а) Влияние концентрации избыточного бромида

Изучение влияния концентрации избыточного бромида на процесс перекристаллизации зерен галоидного серебра эмульсии проводилось на двух эмульсиях, синтезированных на желатинах — Эвальд и Казанского желатинового завода. Обе эмульсии отмывались до полного удаления ионов аммония. Перед вторым созреванием каждая эмульсия делилась на три части, равные по объему. Введением 10%-ного раствора бромистого калия рВг в этих пробах доводился до значения 2,5—3,0 и 3,7. Во всех опытах рН эмульсий сохранялось постоянным: —4,9. Исследовалось влияние времени хранения эмульсии перед вторым созреванием и продолжительности второго созревания на перекристаллизацию зерен галоидного серебра.

Для этого одна часть эмульсии, с указанными концентрациями избыточного бромида, подвергалась второму созреванию в течение 5 часов, непосредственно после плавления коагулята, а другая — после 26-ти суток хранения в холодильнике.

Одновременно с исследованием процессов перекристаллизации проводилось измерение величины рВг эмульсий в процессе хранения. Результаты этих измерений приводятся в таблице 1.

Таблица 1

Изменение значения рВг эмульсий в процессе хранения

Время хранения эмульсии перед вторым созреванием	Величины рВг эмульсий					
	эмульсия, изготовленная на желатине КЖЗ			эмульсия, изготовленная на желатине Эвальд		
	I	II	III	I	II	III
Без хранения	2,5	3,0	3,7	2,5	3,0	3,7
26 суток	2,39	2,61	3,02	2,29	2,63	2,85
Уменьшение рВг	0,11	0,39	0,68	0,21	0,37	0,85

Экспериментальные данные, представленные в таблице 1, обнаруживают падение величины рВг эмульсий в процессе хранения, что свидетельствует о возрастании концентрации свободных ионов брома. Наибольшее возрастание концентрации ионов брома, происходит в эмульсиях, в кото-

рых первоначальная концентрация избыточного бромида была минимальна.

Результаты измерения числа эмульсионных зерен, подвергшихся перекристаллизации, приводятся в таблице 2.

Таблица 2

Влияние концентрации избыточного бромида на перекристаллизацию галоидного серебра эмульсии, изготовленной на желатине КЖЗ

Время второго созревания	0 дней хранения			26 дней хранения		
	pBr=2,5	pBr=3,0	pBr=3,7	pBr=2,5	pBr=3,0	pBr=3,7
	Число перекристаллизованных зерен в объеме $0,2 \cdot 10^{-7} \text{ см}^3$					
1 час	2,5	4,0	9,3	3,3	4,9	13,1
5 часов	0,9	2,4	6,5	3,1	2,7	12,6

Примечание: В случае применения желатины Эвальд в исходной контрольной эмульсии имеется большое число нерасплавленных агрегатов зерен галоидного серебра. В процессе термостатного хранения происходит перекристаллизация всей массы нерасплавленных агрегатов в виде отдельных компактных зерен. Это обстоятельство не позволило полностью выяснить роль защитных свойств желатины на процесс перекристаллизации зерен галоидного серебра.

Экспериментальные данные, представленные в таблице 2 и на рис. 2 и 3, свидетельствуют о том, что зерна галоидного серебра эмульсии бо-

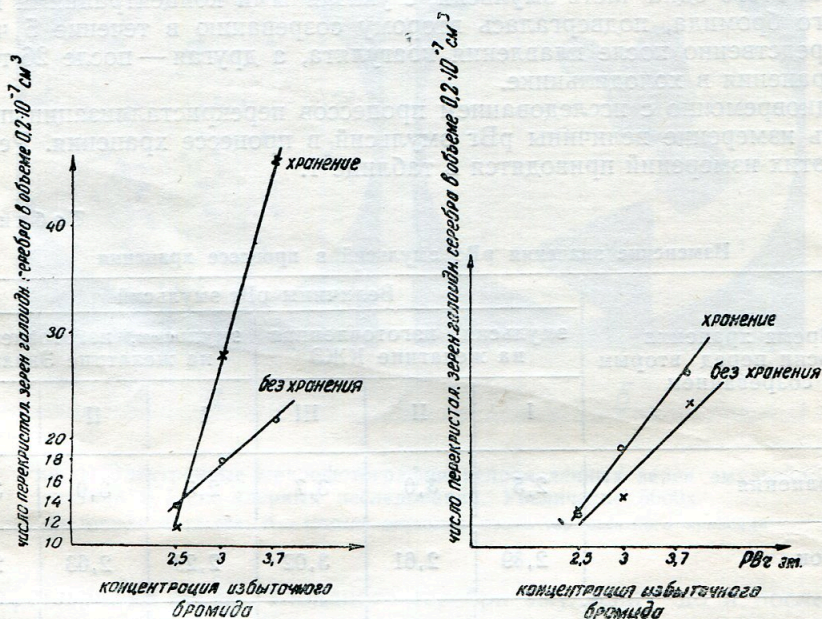


Рис. 2. Кривые зависимости числа перекристаллизованных зерен галоидного серебра от концентрации избыточного бромида в эмульсиях.

Эмульсия, синтезированная на желатине Эвальд, и эмульсия, синтезированная на желатине КЖЗ.

Без хранения — второе созревание эмульсии проводилось непосредственно после плавления коагулята.

Хранение — эмульсия перед вторым созреванием хранилась в холодильнике 26 суток.

лее склонны к перекристаллизации при уменьшенной концентрации избыточного бромида. Особенно это проявляется на эмульсиях, хранившихся длительное время перед вторым созреванием, и на эмульсиях с малой продолжительностью второго созревания.

Таким образом, было установлено, что концентрация избыточного бромида влияет на процесс перекристаллизации эмульсионных зерен ядерных пластинок. При концентрации избыточного бромида порядка $3,16 \cdot 10^{-3}$ м/л ($pBr=2,5$) он действует как стабилизатор, и процесс перекристаллизации протекает только в тех эмульсиях, которые не подвергаются второму созреванию. Уменьшенные концентрации избыточного бромида не обеспечивают должной стабилизации зерен галоидного серебра,



Рис. 3. Микрофотографии эмульсии с различной продолжительностью второго созревания. Увеличение 1500х.
а — 1 час второго созревания; б — 3 часа второго созревания; в — 5 часов второго созревания.

что и обуславливает их перекристаллизацию. Увеличение концентрации бромида до $6,3 \cdot 10^{-2}$ мол/л (pBr менее 2) ускоряет процесс перекристаллизации. В этом случае происходит растворение галоидного серебра под действием избыточного бромида, концентрация которого превышает концентрацию, необходимую для стабилизации.

б) Влияние метилокситриазоиндолизина (стабилизатора)

Исследовалось влияние метилокситриазоиндолизина на перекристаллизацию зерен галоидного серебра ядерных эмульсий по методике, изложенной в предыдущем разделе. С этой целью были синтезированы две эмульсии того же типа. В первой эмульсии (таблица 3) концентрация стабилизатора равнялась $0,53 \cdot 10^{-2}$ г/м на 1 кг, а во второй эмульсии — $5,3 \cdot 10^{-2}$ г/м на 1 кг.

Для выяснения влияния времени хранения на процесс перекристаллизации зерен галоидного серебра эмульсии до начала второго созревания хранились в холодильнике в течение 10 и 20 суток. Величина рН эмульсии равнялась 4,9.

Из экспериментальных данных, представленных в таблице 3 и на рис. 4 и 5 можно сделать следующие выводы: увеличение концентрации метилокситриазоиндолизина в 10 раз по сравнению с обычной, используемой в фотографической практике, увеличивает степень перекристаллизации эмульсионных зерен, более чем в 2 раза в случае эмульсий без хранения и в 20 раз в случае 20-дневного хранения перед вторым созреванием.

Влияние концентрации метилокситриазоиндолизина на процесс перекристаллизации зерен галоидного серебра ядерных эмульсий типа К

Время второго созревания в часах	Время хранения эмульсии перед вторым созревaniem					
	0 дней		10 дней		20 дней	
	Концентрация метилокситриазоиндолизина в г/м на 1 кг эмульсии					
	$0,53 \cdot 10^{-2}$	$5,3 \cdot 10^{-2}$	$0,53 \cdot 10^{-2}$	$5,3 \cdot 10^{-2}$	$0,53 \cdot 10^{-2}$	$5,3 \cdot 10^{-2}$
Число перекристаллизованных зерен в объеме $0,2 \cdot 10^{-7}$ см ³						
1	0,2	0,9	0,4	2,6	0,8	21
5	0,3	0,6	0,4	1,5	0,5	10

Кристаллы галоидного серебра эмульсий с малой продолжительностью второго созревания (0—1 час) более склонны к перекристаллизации, нежели кристаллы галоидного серебра эмульсий подвергшихся продолжительному второму созреванию (5 часов).

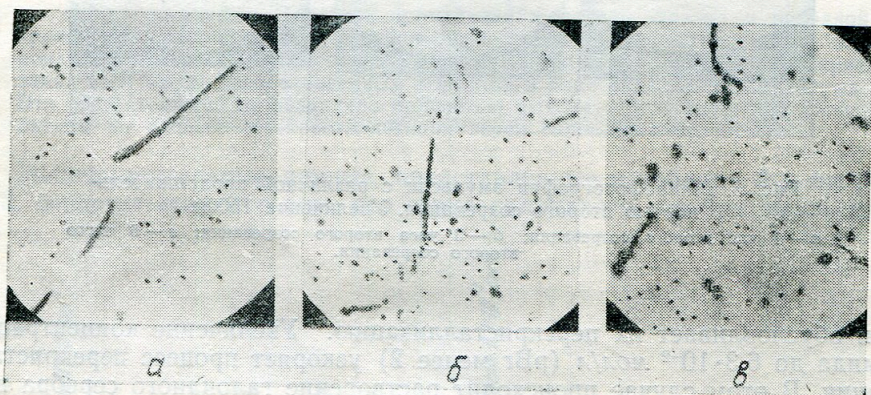


Рис. 4. Микрофотографии эмульсии, в которой содержится $0,53 \cdot 10^{-2}$ моля метилокситриазоиндолизина. Увеличение 1230х. Второе созревание эмульсии проводилось:

а — непосредственно после плавления коагулята; б — спустя 10 дней хранения эмульсии в холодильнике; в — спустя 20 дней хранения эмульсии в холодильнике.

Таким образом, десятикратное увеличение концентрации метилокситриазоиндолизина не только не предохраняет кристаллы галоидного серебра от перекристаллизации, но, наоборот, ускоряет этот процесс.

Действие метилокситриазоиндолизина на процесс перекристаллизации идентично действию избыточного бромида. В интервалах концентраций, принятых в фотографической практике (10 мл 1%-го раствора на 1 кг эмульсии = $0,53 \cdot 10^{-2}$ г/м), метилокситриазоиндолизин предохраняет зерна галоидного серебра от растворения. Сущность стабилизации подобного рода может быть объяснена образованием на поверхности эмульсионных зерен мало растворимой серебряной соли стабилизатора. Произведение растворимости такой соли $L = 2,82 \cdot 10^{-11}$.

Увеличение концентрации метилокситриазоиндолизина в 10 раз вызывает увеличение перекристаллизации, т. е. увеличение растворимости галоидного серебра. Это может быть объяснено возросшей концентрацией ионов брома вследствие ионнообменной адсорбции метилокситриазоиндо-

лизина с ионами брома⁴, а также повышенной растворимостью серебряной соли метилокситриазоиндолизина в кислой среде, что было показано нашими работами за 1954 год⁵. Аналогичные данные по растворимости метилокситриазоиндолизина в кислой среде были получены Бирром и его сотрудниками.

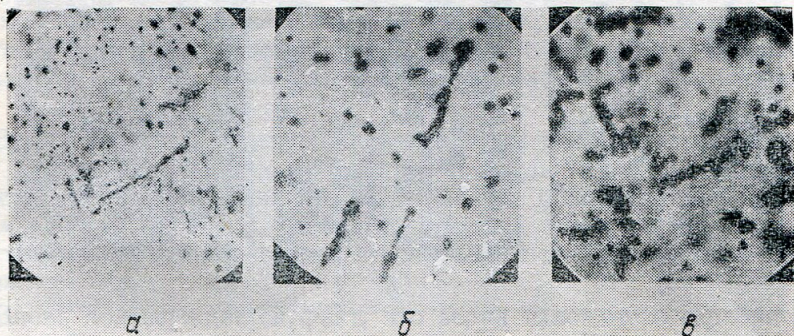


Рис. 5. Микрофотографии эмульсии, в которой содержится $5,3 \cdot 10^{-2}$ моля метилокситриазоиндолизина. Увеличение 1230х.

Второе созревание эмульсии проводилось:

а — непосредственно после плавления коагулята; б — спустя 10 дней хранения эмульсии в холодильнике; в — спустя 20 дней хранения эмульсии в холодильнике.

в) Влияние мочевины

Представлялось целесообразным выяснить вопрос о возможности применения мочевины в эмульсионном слое в присутствии больших концентраций метилокситриазоиндолизина. Для этого эмульсии с концентрацией стабилизатора $0,53$ и $5,3 \cdot 10^{-2}$ г/м/кг перед химическим созреванием делились на четыре части. В три части каждой эмульсии вводилась мочевина, четвертая часть являлась контрольной (без мочевины).

Концентрации мочевины в эмульсии были следующие:

- 1) $0,35$ г/м на 1 кг эмульсии
- 2) $1,9$ г/м на 1 кг эмульсии
- 3) $3,6$ г/м на 1 кг эмульсии

Методика эксперимента такая же, как и в предыдущих опытах. Экспериментальные данные представлены в таблице 4.

Таблица 4

Влияние концентрации мочевины на процесс перекристаллизации зерен галоидного серебра ядерных эмульсий с различным содержанием метилокситриазоиндолизина

Концентрация метилокситриазоиндолизина г/м/кг	Время второго созревания в часах	Время хранения эмульсии перед вторым созреванием в сутках								
		Концентрации мочевины г/м на 1 кг								
		0	0,36	3,6	0	0,36	3,6	0	0,36	3,6
		Число перекристаллизованных зерен в объеме $0,2 \cdot 10^{-7}$ см ³								
$0,53 \cdot 10^{-2}$	1	0,2	0,6	1,4	0,4	0,8	2,5	0,3	4,3	10,2
	5	0,3	0,6	0,9	0,4	0,8	1,0	0,4	1,2	4,8
$5,3 \cdot 10^{-2}$	1	1,6	5,1	16,2	2,1	9,1	12,3	8,1	12,0	
	5	0,6	6,4	6,4	1,5	3,7	7,9	1,0	5,2	15,3

Из данных, представленных в таблице 4 и на рис. 6 и 7, можно сделать следующие выводы:

1. Склонность к перекристаллизации зерен галоидного серебра эмуль-

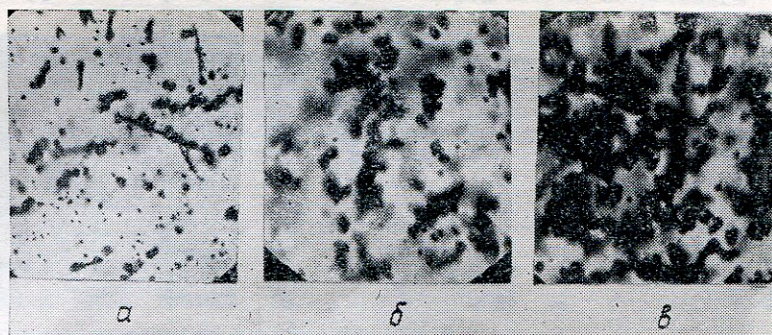


Рис. 6. Микрофотография эмульсии, в 1 кг которой содержится $5,3 \cdot 10^{-2}$ моля метилокситриазониндолизина и 3,6 моля мочевины. Увеличение 1230х.

а — непосредственно после плавления коагулята; б — спустя 10 дней хранения эмульсии в холодильнике; в — спустя 20 дней хранения эмульсии в холодильнике

сии, синтезированной с малым количеством стабилизатора, возрастает с увеличением концентрации мочевины в слое.

Свойство мочевины вызывать перекристаллизацию зерен галоидного серебра становится легко объяснимым, если провести аналогию между

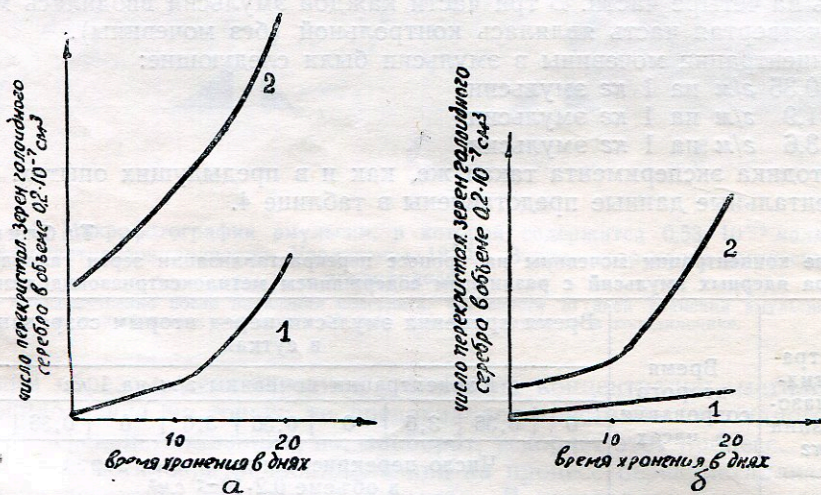


Рис. 7. Кривые зависимости числа перекристаллизованных зерен галоидного серебра от времени хранения эмульсий, синтезированных с различным содержанием мочевины.

В первом случае эмульсия содержит $5,3 \cdot 10^{-2}$ моля метилокситриазониндолизина, а во втором — $0,53 \cdot 10^{-2}$ моля метилокситриазониндолизина. Кривые 1 — в 1 кг эмульсии введено 0,35 моля мочевины. Кривые 2 — в 1 кг эмульсии введено 3,6 молей мочевины

мочевинной и аммиаком или избыточным бромидом. Мочевина имеющая две группы NH_2 , легко адсорбируется на поверхности эмульсионных зерен с образованием комплексных соединений, подобных комплексным соединениям бромистого серебра с аммиаком. Естественно поэтому, что она

должна играть в процессе перекристаллизации роль, подобную аммиаку, или избыточному бромиду, повышая растворимость кристаллов галоидного серебра⁷.

2. Скорость перекристаллизации зерен галоидного серебра в эмульсии с увеличенной концентрацией метилокситриазоиндолезина при введении мочевины значительно больше, чем в эмульсии с малым содержанием стабилизатора, вследствие того, что в кислой среде метилокситриазоиндолизин теряет способность стабилизировать зерна галоидного серебра.

3. Время хранения эмульсии перед вторым созреванием существенно влияет на процесс перекристаллизации. В эмульсиях с малой продолжительностью второго созревания и высокой концентрацией мочевины (3,6 г/м на 1 кг), после 20-дневного хранения, зерна галоидного серебра полностью перекристаллизованы, что вызывает почернение слоя при проявлении.

4. Вновь подтверждается факт, что зерна галоидного серебра эмульсий с малой продолжительностью второго созревания более склонны к перекристаллизации. Это свидетельствует о высокой растворимости галоидного серебра таких эмульсий. Данное обстоятельство может объяснить склонность этих эмульсий к вуалированию в процессе проявления. Можно предположить, что кристаллы галоидного серебра, полученные методом сульфатного осаждения, в начале второго созревания имеют недостаточно прочную адсорбционную оболочку, чем и обуславливается их высокая растворимость и легкая проявляемость.

Можно предположить также, что во время второго созревания создается защитная оболочка из ионов брома и молекул желатины, предохраняющая зерна от растворения. Создание адсорбционных оболочек на зернах галоидного серебра зависит от длительности процесса созревания и только 4—5-часовая продолжительность второго созревания создает условия повышения стабильности зерен галоидного серебра.

II. ИССЛЕДОВАНИЕ ПРОЦЕССА ПЕРЕКРИСТАЛЛИЗАЦИИ ПОТЕНЦИОМЕТРИЧЕСКИМ МЕТОДОМ, МЕТОДОМ ПРОСМОТРА НЕОДНОСЛОЙНЫХ ПРЕПАРАТОВ И ОПТИЧЕСКИМ МЕТОДОМ

В данной части работы изучалось влияние на перекристаллизацию зерен галоидного серебра различных веществ: мочевины, роданистого натрия, щелочи, аммиака и гипосульфита. Вопросы исследования решались тремя самостоятельными путями: использованием метода потенциометрических измерений концентраций ионов серебра в эмульсии, метода микроскопического просмотра тонких (неоднослойных) препаратов и, наконец, оптического метода.

Опыты проводились на двух эмульсиях, чувствительных к электронам, синтезированных на желатинах Эвальд и КЖЗ. В целях исключения влияния бромида коагуляты эмульсий после сульфатного осаждения диспергировались без бромистого калия. Величина r_{Ag} таких эмульсий менялась от опыта к опыту в интервале 7,9—8,1. Исходная величина pH эмульсии во всех опытах сохранялась равной 4,9.

Методика испытания

Обе эмульсии делились на одинаковое число проб, равных по объему. В каждую из проб вводилось одно из испытываемых веществ в следующих количествах:

На 1 кг эмульсии

$\text{CO}(\text{NH}_2)_2$	— $2 \cdot 10^{-1}$ г/м
Na_2CO_3	— $1 \cdot 10^{-2}$ г/м
NH_4OH	— $1,8 \cdot 10^{-1}$ г/м
NaCNS	— $0,3 \cdot 10^{-2}$ г/м

Сода и аммиак вводились в концентрациях, рассчитанных на установление одной и той же величины $\text{pH}=8,5$. Пробы выстаивались в термостате при температуре 36°C в герметически закрытых бюксах.

Одновременно в термостате выстаивались эмульсии без добавок, что служило контрольным опытом.

Через 2, 4, 7, 10 суток проводилось потенциометрическое определение pAg в пробах.

Параллельно на стекло наносились тонкие (неоднослойные) препараты. При этом 0,05 мл хорошо расплавленной эмульсии разбавлялись 5 мл дистиллированной воды. Разбавленный раствор в количестве 0,5 мл смешивался с одной каплей 2% раствора сапонина и поливался на стекло без подложки размером $6 \times 9 \text{ см}^2$. Эта методика обеспечивает хорошую растекаемость и относительную равномерность распределения зерен по поверхности стекла.

Кроме того, исследовались оптические свойства коллоидных систем путем наблюдения опалесценции растворов. С этой целью растворы испытываемых эмульсий одинаковой степени прозрачности, приготовленные после определенного срока термостатного хранения сравнивались по окраске конуса Тиндала с растворами тех же эмульсий, хранившимися в холодильнике. Наблюдение опалесценции раствора эмульсии проводилось как в проходящем, так и в боковом свете. Интенсивность рассеянного пучка не измерялась.

В таблице 5 приведены величины pAg для всех испытанных веществ перед термостатным выстаиванием и после него.

Таблица 5

Изменение значения pAg в процессе термостатного выстаивания в течение 10 суток

Вводимые вещества	Эмульсия, синтезированная на желатине КЖЗ					Эмульсия, синтезированная на желатине Эвальд				
	контрольный образец	мочевина	аммиак	сода	роданистый натрий	контрольный образец	мочевина	аммиак	сода	роданистый натрий
Значение pAg перед термостатным выстаиванием	8,1	8,0	8,4	8,16	8,7	7,9	7,6	8,15	8,0	8,7
Значение pAg после 240 часов термостатного выстаивания	8,35	8,5	8,6	8,38	9,05	8,3	8,3	8,4	8,3	9,3

Как видно из таблицы, наибольшее изменение величины pAg дает мочеви́на, а затем роданид. Аммиак и сода приводят к практически одинаковому результату. Значительное возрастание pAg характерно также для эмульсии, синтезированной на желатине Эвальд (контрольный образец).

Для всех испытанных веществ изменение величины r_{Ag} во времени имеет линейный характер.

Таким образом, потенциметрическое измерение величины r_{Ag} для всех исследованных объектов показывает, что процессы, идущие в эмульсии в течение термостатного выстаивания, сопровождаются уменьшением концентрации ионов серебра.

Микроскопический просмотр тонких (неоднослойных) препаратов тех же объектов, обнаруживает перекристаллизацию зерен галоидного серебра

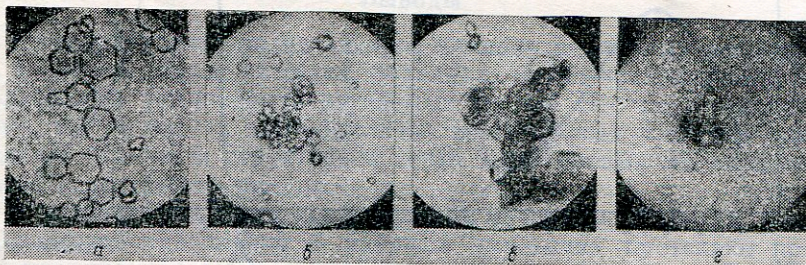


Рис. 8. Микрофотографии тонких (неоднослойных) препаратов эмульсии, синтезированной на желатине Эвальд, после термостатного выстаивания в течение 10 суток. Увеличение 1450х.

а — контрольный образец после термостатного выстаивания; б — образец с роданистым натрием; в — образец с мочевиной; г — образец с содой.

ра в эмульсии, синтезированной на желатине Эвальд, без добавок (контрольный образец), а также возросшую перекристаллизацию в присутствии мочевины, роданида и соды. Изменение кристаллической формы зерен для всех указанных веществ идет по-разному. Так, в двух случаях — эмульсии на желатине Эвальд без добавок и при введении роданида — наблюдается многообразие кристаллических форм зерен. На микрофотографиях (рис. 8—9) этих образцов виды пластинчатые зерна круглой, треугольной и шестигранной форм.

Микрофотография показывает, что в случае мочевины и соды процесс перекристаллизации идет дальше и наблюдается объемный рост зерен.

На рис. 10 приводятся кривые распределения перекристаллизованных зерен по размерам для контрольного образца и для эмульсий с мочевиной, содой и роданидом. В каждом случае просчитывалось около 500 перекристаллизованных зерен. В случае введения роданида максимум кривой распределения смещается в сторону меньших размеров зерен, а для мочевины и соды — в сторону больших размеров.

Смещение максимума кривой распределения зерен галоидного серебра в присутствии роданида в сторону меньших размеров зерен является следствием пептизации агрегатов под действием ионов CNS^- при сплавлении коагулята эмульсии. В процессе же термостатного выстаивания происходит интенсивная перекристаллизация пептизированных зерен. Аналогичное действие вызывают ионы NH_4^+ .

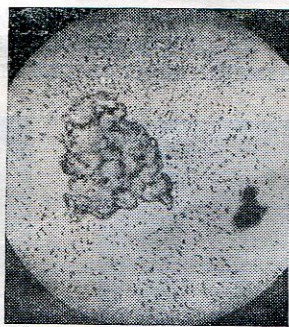


Рис. 9. Микрофотография тонкого (неоднослойного) препарата эмульсии, синтезированной на желатине Эвальд, до термостатного выстаивания. Увеличение 1450х.

Препараты контрольной эмульсии на желатине Эвальд до термостатного выстаивания имеют непептизированные агрегаты зерен галоидного серебра больших размеров (см. рис. 9).

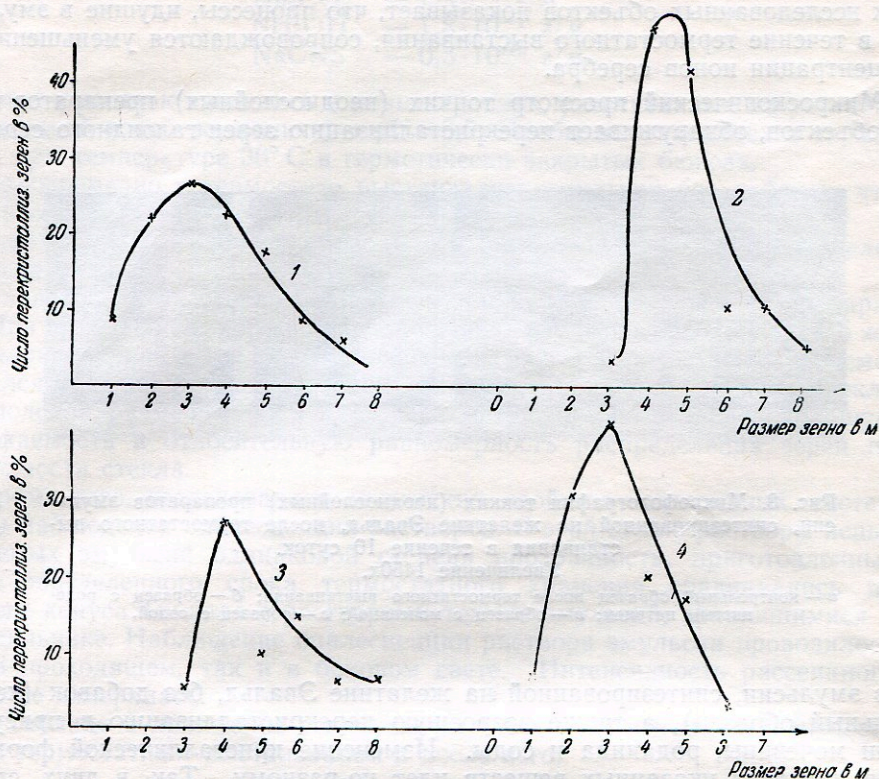


Рис. 10. Суммарное распределение зерен по размерам.

Кривая 1 — контрольная эмульсия; кривая 2 — эмульсия с мочевиной; кривая 3 — эмульсия с содой; кривая 4 — эмульсия с роданистым натрием.

Это говорит о том, что коагулят эмульсии на данной желатине плохо диспергируется в нормальных условиях плавления. В процессе термостатного хранения происходит перекристаллизация нерасплавленных агрегатов до отдельных компактных кристаллов. Этим и объясняются большие размеры перекристаллизованных зерен в препаратах исходной эмульсии.

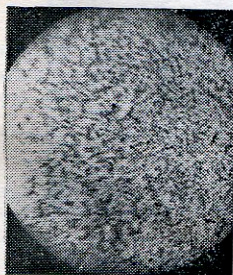


Рис. 11. Микрофотографии тонких (неоднослойных) препаратов эмульсий, синтезированных на желатине КЖЗ.

Образец сплавленного коагулята эмульсии до термостатного выстаивания и образец с роданистым натрием после термостатного выстаивания.

В образцах эмульсии, синтезированной на желатине КЖЗ, имеют место все указанные закономерности, но процесс перекристаллизации микросталлов галоидного серебра протекает в них с меньшей интенсивностью (рис. 11).

Исследование опалесценции показало, что растворы эмульсий с различными добавками до термостатного выстаивания имеют в проходящем свете интенсивную красную окраску, а в отраженном — голубую.

Для растворов эмульсий, хранившихся в термостате в течение 10-ти суток, окраска опалесценции меняется; в проходящем она становится бледно-голубой, а в отраженном — красной. Это говорит об уменьшении степени дисперсности эмульсионных микрокристаллов.

Таким образом, результаты, полученные оптическим методом, качественно согласуются с результатами, полученными ранее описанными методами.

Выводы

1. Установлен факт значительного влияния различных веществ (бромид, мочевины, соды, аммиака, роданида, метилокситриазоиндолизина) на коллоидную устойчивость изучаемых систем. Это дает основание заключить, что прочность адсорбционных желатиновых оболочек на зернах галоидного серебра и структурной сетки желатиновых молекул ядерных эмульсий недостаточно высока.

2. В условиях больших концентраций мочевины, бромида, роданида, метилокситриазоиндолизина в ядерных эмульсиях протекают процессы перекристаллизации зерен галоидного серебра.

3. Зерна галоидного серебра эмульсий с малой продолжительностью второго созревания практически более склонны к перекристаллизации. Интенсивность перекристаллизации возрастает со временем хранения эмульсии.

4. Методом потенциометрических измерений установлено возрастание величины pAg эмульсии в процессе термостатного выстаивания для всех испытывавшихся веществ, вводимых в эмульсию. Такое изменение величины pAg эмульсии указывает на уменьшение концентрации свободных ионов серебра и непосредственно подтверждает факт растворения галоидного серебра в процессе термостатного выстаивания.

5. Методом микроскопического просмотра тонких (неоднослойных) препаратов показано, что в эмульсии для всех испытанных веществ в процессе термостатного выстаивания происходит изменение кристаллической формы зерен.

6. Если после диспергации коагулята в эмульсии остаются непептизированные агрегаты зерен галоидного серебра, то в процессе термостатного хранения идет интенсивная перекристаллизация этих агрегатов.

7. Оптический метод показал, что в процессе термостатного выстаивания эмульсии происходит уменьшение степени дисперсности коллоидных частиц, что также косвенно указывает на перекристаллизацию зерен галоидного серебра.

ЛИТЕРАТУРА

1. Арон и Ребиндер П. А. ДАН 52, 235, 1946.
2. Натансон Г. Л. Труды Всесоюзной конференции по коллоидной химии. Киев, 1952 г.
3. Варшавер Б. Г. Исследование влияния поверхностно-активных, в фотографическом смысле, веществ на галоидное серебро желатиновых эмульсий. Кандидатская диссертация, НИКФИ, 1953.
4. Фаерман Г. П. Цитируется по кандидатской диссертации Б. Варшавер (Л-3).
5. Уварова В. М. и Родичева М. Ф. Исследование причин появления дисхронической (цветной) вуали и черного налета, возникающих в процессе проявления толстослойных ядерных пластинок (см. следующую статью настоящего выпуска).
6. Birr I. M. L. Wiss. Phot., 49, № 7—12, 1954.

В. М. УВАРОВА и М. Ф. РОДИЧЕВА

ИССЛЕДОВАНИЕ ПРИЧИН ПОЯВЛЕНИЯ ДИХРОИЧЕСКОЙ (ЦВЕТНОЙ) ВУАЛИ И ЧЕРНОГО НАЛЕТА, ВОЗНИКАЮЩИХ В ПРОЦЕССЕ ПРОЯВЛЕНИЯ ТОЛСТОСЛОЙНЫХ ЯДЕРНЫХ ПЛАСТИНОК

Повышение температуры и продолжительности сухой стадии проявления вызывало на толстослойных пластинках (регистрирующих следы релятивистских частиц и изготовлявшихся по обычной методике сульфатного осаждения¹⁾ образование дихроической (цветной) вуали. Это делало невозможным использование наиболее жестких режимов проявления для увеличения плотности зерен в релятивистских следах.

Известно, что дихроическая вуаль состоит из металлического высокодисперсного серебра. Условием образования дихроической вуали является повышенная способность зерен галоидного серебра к растворению в процессе проявления под влиянием растворителей, входящих в проявитель (сульфита и бромистого калия). Растворение зерен галоидного серебра происходит через образование комплексов галоидного серебра с бромистым калием и сульфитом. Ионы серебра, входящие в состав комплексов, восстанавливаются далее до металлического серебра, которое осаждается как в толще желатинового слоя, так и на зернах металлического серебра изображения, укрупняя последние. Этот процесс носит название физического проявления. Металлическое серебро, образовавшееся в толще желатинового слоя, вызывает появление дихроической вуали. Цвет дихроической вуали зависит от степени дисперсности металлического серебра и может меняться с уменьшением степени дисперсности от желтого до синего. Это явление обусловливается рассеиванием света коллоидными частицами металлического серебра. Для возникновения дихроической вуали необходимы определенные условия: большая растворимость эмульсионных зерен; присутствие в растворах, применяемых при обработке, веществ, способных растворять галоидные соли, и длительность процессов проявления.

Естественно, что большой растворимостью обладают зерна галоидного серебра малых размеров.

При использовании толстослойных пластинок имеются самые благоприятные условия для образования дихроической вуали: мелкозернистые концентрированные эмульсии, толстые слои и длительные процессы обработки.

Из сравнения кривых распределения зерен галоидного серебра опытных эмульсий с чувствительностью к релятивистским частицам * и $g-5$ Ильфорд (рис. 1)** видно, что размер зерен в этих эмульсиях примерно одинаков. Как в эмульсии Ильфорд $g-5$, так и в опытной эмульсии

* Изготовление 1952 года.

** Электронные микрофотографии выполнены В. Н. Жарковым.

НИКФИ, отсутствуют зерна, наиболее склонные к растворению — диаметром меньше 0·10 микрон. Значения среднего диаметра эмульсионных зерен этих эмульсий близки друг к другу. Поэтому различие в растворимости этих эмульсий может быть объяснено только различной склонностью эмульсионных зерен к растворению. Хотя Герцом² в 1952 году и было показано, что в эмульсионном слое пластинок *g* — 5 Ильффорд в процессе фотографической обработки образуется мелкодисперсное металлическое серебро, увеличивающее мутность слоя, однако, этот процесс, видимо, протекает с незначительной скоростью и не приводит к образованию цветной вуали в слое.

Повышенная склонность к растворению зерен галоидного серебра эмульсии НИКФИ (1952 год) может быть объяснена как наличием веществ, вызывающих перекристаллизацию зерен галоидного серебра (например мочевины), так и недостаточной коллоидной стабильностью.

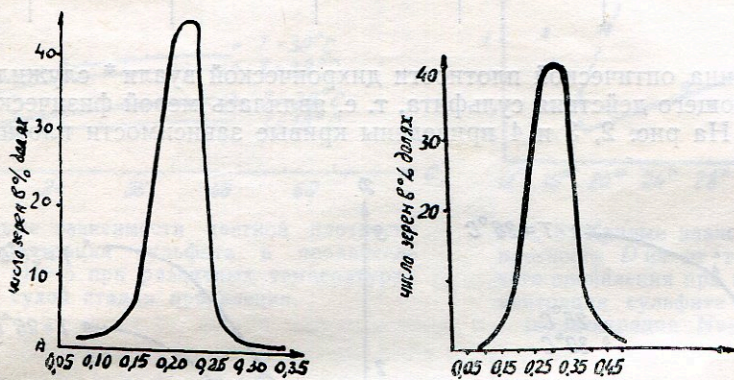


Рис. 1. Кривые распределения непроявленных зерен эмульсии *g*—5 Ильффорд и опытной эмульсии НИКФИ по размерам.

зерен галоидного серебра данной эмульсии³. То обстоятельство, что эмульсия *g* — 5 Ильффорд обладает незначительной склонностью к образованию цветной вуали в процессе проявления, указывает на возможность стабилизации эмульсионных зерен малых размеров.

Такая малая растворимость зерен галоидного серебра эмульсий *g* — 5 Ильффорд в процессе проявления безусловно достигается хорошей коллоидной защитой зерен и отсутствием в самой эмульсии веществ, повышающих растворимость галоидного серебра. Действительно, исключение из эмульсий НИКФИ мочевины, уменьшение концентрации свободных электролитов (уменьшение величины электропроводности эмульсии путем промывки) резко снизило склонность эмульсионных слоев к цветному вуалированию.

В настоящей работе исследовалась зависимость плотности дихроической вуали от концентрации сульфита в проявителе и от температуры сухой стадии проявления. Температура сухой стадии проявления менялась в интервале от 18 до 30° С. Были исследованы проявители, концентрация сульфита в которых менялась от 50 до 6 г на 1 литр. Концентрация амидола в растворе проявителя менялась от 6 до 2 г на 1 литр. Естественно, что величина рН таких проявителей была различной (рН > 6) и обуславливала различную скорость проявления. Для избежания этого проявители оттитровывались лимонной кислотой в одном случае до значения рН = 6 и в другом — до рН = 5. Это обеспечивало проявление пластинок до одинаковой плотности зерновой вуали, которая про-

считывалась в объеме 10^{-9} см^3 . Результаты просчетов приводятся в таблице 1.

Таблица 1

Зависимость числа зерен вуали от изменения концентрации сульфита в проявителе при постоянном значении $\text{pH}=6$

Концентрация сульфита г/литр	50	25	18	12	6
pH раствора проявителя	6	6	6	6	6
Число зерен вуали в объеме 10^{-9} см^3	2,8	2,8	2,9	2,9	2,6

Величина оптической плотности дихроической вуали * служила мерой растворяющего действия сульфита, т. е. являлась мерой физического проявления. На рис. 2, 3 и 4 приведены кривые зависимости плотности ди-

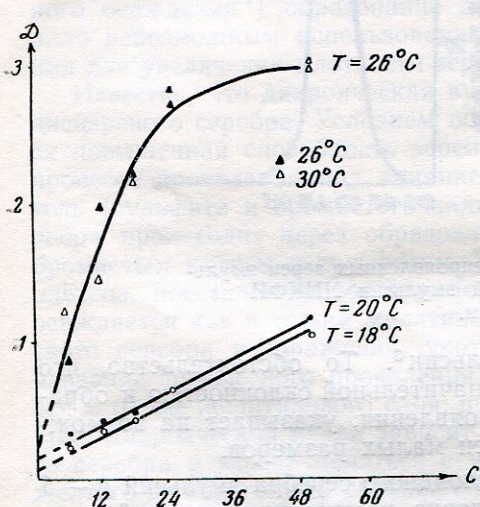


Рис. 2. Кривые зависимости цветной плотности $D_{цв}$ от концентрации сульфита в проявителе для случая $\text{pH} > 6$ при различных температурах сухой стадии проявления.

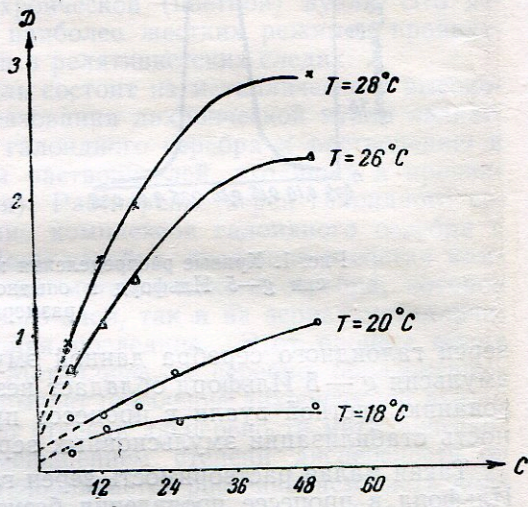


Рис. 3. Кривые зависимости цветной плотности $D_{цв}$ от концентрации сульфита в проявителе для случая $\text{pH}=6$ при различных температурах сухой стадии проявления.

хроического окрашивания от концентрации сульфита в проявителе для случаев различных значений pH ($\text{pH} > 6$, $\text{pH}=6$, $\text{pH}=5$). Как видно из рисунков, все кривые характеризуются участками пропорционального возрастания цветной плотности с концентрацией сульфита в проявителе. При определенном значении концентрации сульфита, pH раствора и температуры наступает насыщение, характеризующееся постоянством величины цветной плотности при возрастании содержания сульфита в проявителе.

В интервале температур от 18 до 24°C при использовании проявителей, в которых pH не выравнивался, у кривых нет области насыщения.

* Оптические плотности измерялись с помощью цветного денситометра ЦДФ-2.

Кривые для случая $pH=5$ практически не имеют участка пропорционального возрастания, что объясняется малой растворимостью зерен галоидного серебра в данных условиях. Следует отметить, что эти закономерности характерны для всех температур интервала $18-30^\circ C$. На рис. 5,

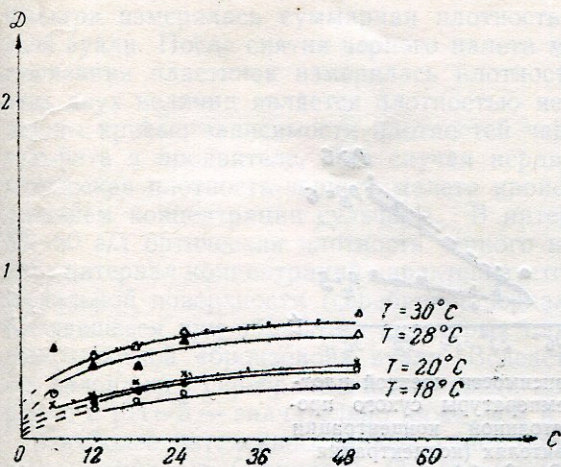


Рис. 4. Кривые зависимости цветной плотности $D_{цв}$ от концентрации сульфита в проявителе для случая $pH=5$ при различных температурах сухой стадии проявления.

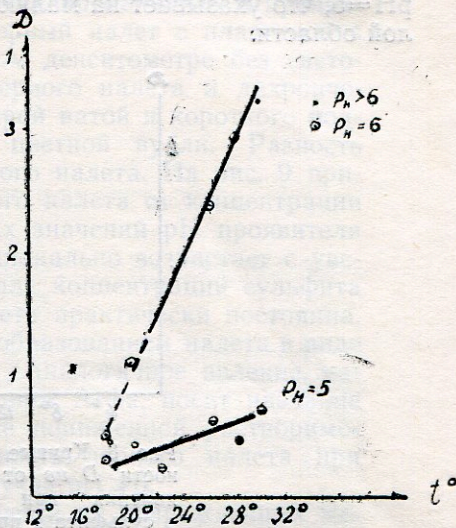


Рис. 5. Кривые зависимости цветной плотности $D_{цв}$ от температуры сухого проявления при постоянной концентрации сульфита в проявителе (концентрация $Na_2SO_3=50$ г/л).

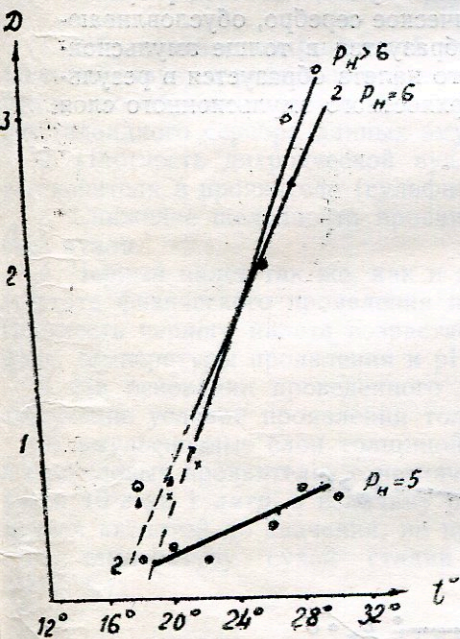


Рис. 6. Кривые зависимости цветной плотности $D_{цв}$ от температуры сухого проявления при постоянной концентрации сульфита в проявителе (концентрация $Na_2SO_3=25$ г/л).

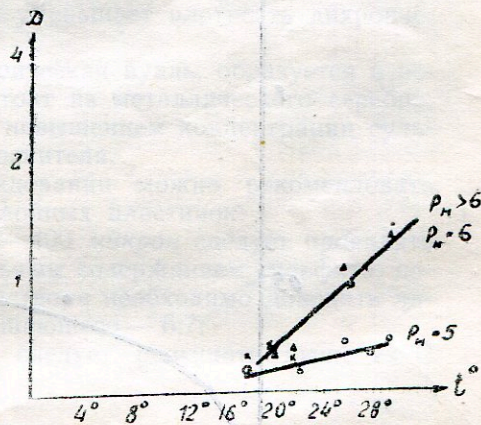


Рис. 7. Кривые зависимости цветной плотности $D_{цв}$ от температуры сухого проявления при постоянной концентрации сульфита в проявителе (концентрация $Na_2SO_3=12$ г/л).

6, 7 и 8 приводятся кривые зависимости цветной плотности от температуры в сухой стадии проявления при условии постоянства концентрации сульфита для случаев $pH > 6$, $pH = 6$ и $pH = 5$. Приращение цветной плотности с температурой для $pH > 6$ и $pH = 6$ значительно больше, чем для $pH = 5$, что указывает на малую растворимость галоидного серебра в кислой области.

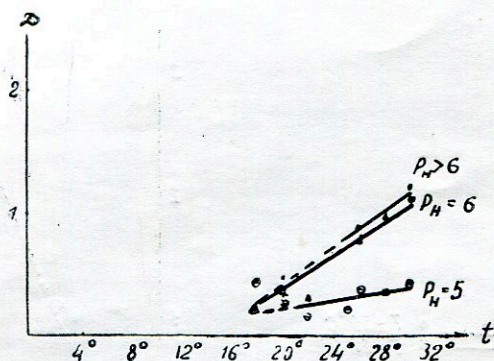


Рис. 8. Кривые зависимости цветной плотности $D_{цв}$ от температуры сухого проявления при постоянной концентрации сульфита в проявителях (концентрация $Na_2SO_3 = 6$ г/л).

Исследование черного налета

Черный налет так же, как и дихроическая вуаль, является результатом физического проявления. Если металлическое серебро, обуславливающее возникновение дихроической вуали, образуется в толще эмульсионного слоя, то металлическое серебро черного налета образуется в результате растворения галоидного серебра поверхностного эмульсионного слоя

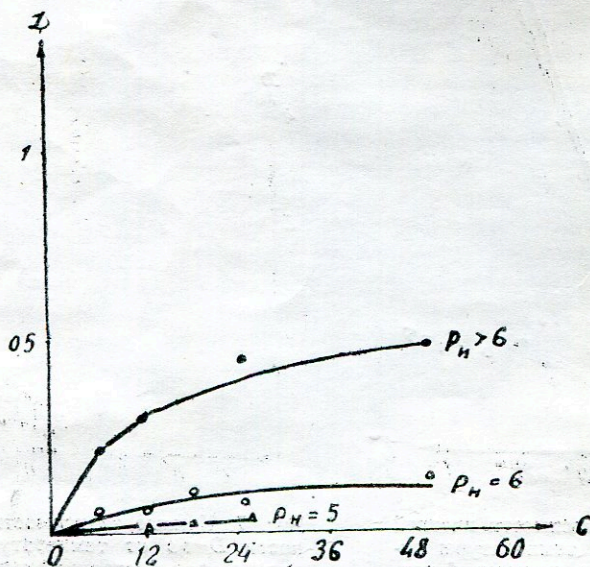


Рис. 9. Кривые зависимости плотности черного налета от концентрации сульфита в проявителе.

пластины. В этом случае восстановление ионов серебра из комплексов протекает непосредственно над поверхностью.

Методика исследования черного налета аналогична методике исследования дихроического окрашивания. Пластинки проявлялись в проявителе с различным содержанием сульфита. Черный налет с пластинок в процессе обработки не снимался. На цветном денситометре без светофильтра измерялась суммарная плотность черного налета и дихроической вуали. После снятия черного налета мокрой ватой и короткого подсушивания пластинок измерялась плотность цветной вуали. Разность этих двух величин является плотностью черного налета. На рис. 9 приведены кривые зависимости плотностей черного налета от концентрации сульфита в проявителе. Для случая неравных значений рН проявителя оптическая плотность черного налета пропорционально возрастает с увеличением концентрации сульфита. В интервале концентраций сульфита 30—50 г/л оптическая плотность черного налета практически постоянна. Этот интервал концентраций характеризуется образованием налета в виде зеркальной поверхности (серебряное зеркало). Аналогичное явление, наблюдавшееся при обработке некоторых пластинок Агфа, носит название поверхности «бронзовой» вуали. Вследствие пониженной растворимости галлоидного серебра в кислой среде плотность черного налета при рН=6 и рН=5 — значительно ниже, чем в случае рН>6.

Наиболее интенсивно черный налет образуется на поврежденных местах поверхности (фрикции). Одновременно, но в меньшей степени, идет образование налета на остальных частях поверхности. При высоких концентрациях сульфита черный налет сплошным слоем покрывает поверхность.

Выводы

1. Образование дихроической вуали на толстослойных пластинках свидетельствует о протекании физического проявления во время их обработки, что обуславливается повышенной растворимостью микрокристаллов галлоидного серебра данных эмульсий.

2. Плотность дихроической вуали является функцией концентрации растворителя в проявителе (сульфита) и температуры.

3. Снижение щелочности проявителя уменьшает плотность дихроической вуали.

4. Черный налет так же, как и дихроическая вуаль, образуется в результате физического проявления и состоит из металлического серебра. Плотность черного налета возрастает с повышением концентрации сульфита, температуры проявления и рН проявителя.

5. На основании проведенного исследования можно рекомендовать следующие условия проявления толстослойных пластинок:

а) эмульсионные слои толщиной 200—400 микрон следует проявлять в амидоловых проявителях с незначительным содержанием сульфита, порядка 10 г на 1 литр, а величину рН раствора необходимо доводить лимонной кислотой до значения, не превышающего — 6,7;

б) температуру сухой стадии не следует повышать выше 24° С ($\pm 0,5^\circ$ С).

ЛИТЕРАТУРА

1. Уварова В. М., Дебердеев М. Ю., Щербакова Е. И. Исследование процесса сульфатного осаждения ядерных эмульсий (см. следующую статью настоящего выпуска).

2. Herz A. J. J. Sci. Instr. 29, 2, 60—62, 1952.

3. Уварова В. М., Родичева М. Ф., Романовская К. М. Исследование процесса перекристаллизации зерен галлоидного серебра эмульсии для ядерных исследований (см. статью 2 настоящего выпуска).

В. М. УВАРОВА, М. Ю. ДЕБЕРДЕЕВ, Е. И. ЩЕРБАКОВА

ИССЛЕДОВАНИЕ ПРОЦЕССА СУЛЬФАТНОГО ОСАЖДЕНИЯ ЯДЕРНЫХ ЭМУЛЬСИЙ

Путем предварительного исследования было установлено, что в эмульсионном слое ядерных пластинок с высокой концентрацией галоидного серебра в процессе длительной сушки в условиях повышенной влажности и температуры возникает неравномерное распределение зерен галоидного серебра в объеме, приводящее к образованию агрегатов в местах с большой плотностью. Явление коагуляции эмульсионных зерен может быть объяснено недостаточной коллоидной стабильностью таких систем. Высокая концентрация галоидного серебра в исследованных ядерных фотоэмульсиях достигалась методом осаждения галоидного серебра и частично желатины в результате введения концентрированного раствора сульфата натрия¹ в эмульсию после первого созревания.

Известно, что коллоидная устойчивость эмульсий зависит не только от адсорбционной оболочки желатины и ионов брома на поверхности эмульсионных зерен. В такой же степени она зависит и от структуры геля желатины. Естественно предположить, что в процессе сульфатного осаждения меняется взаимодействие между молекулами желатины, т. е. нарушается структура геля желатины. Поэтому причину коллоидной нестабильности необходимо искать в сульфатном осаждении. Изучение процессов сульфатного осаждения проводилось путем исследования достаточно концентрированных тонких неоднослойных препаратов коагулята на различных стадиях его получения.

Методика получения неоднослойных препаратов заключалась в следующем: коагулят эмульсии после промывки расплавлялся в дистиллированной воде, и 6 капель расплавленного коагулята вводились в 10 мл дистиллированной воды. Раствор коагулята наносился на стекло без подслоя, а избыток сливался со стекла. Остающиеся на стекле тонкие слои сушили в вертикальном положении.

Получающиеся неоднослойные, но достаточно тонкие препараты служили моделями, воспроизводящими распределение зерен галоидного серебра в эмульсионном слое ядерных пластинок, и рассматривались при помощи микроскопа с целью установления однородности распределения зерен галоидного серебра. Обычные однослойные препараты, в которых зерна галоидного серебра удалены на большие расстояния друг от друга, не могут служить моделями концентрированного эмульсионного слоя, так как при изготовлении однослойных препаратов эмульсии сильно разбавляются раствором желатины, обеспечивающим хорошую пептизацию зерен галоидного серебра и стабилизацию таких систем. Следовательно, однослойный препарат представляет собой новую систему, качественно отличную от концентрированного эмульсионного слоя, и потому процессы коагуляции зерен будут протекать в таком слое со значительно меньшей скоростью.

Методом просмотра неоднослойных препаратов исследовалось распределение зерен галоидного серебра в коагулятах, сульфатное осаждение которых проводилось по различным методикам (I и II). В таблице 1 приводятся условия сульфатного осаждения эмульсии и плавления коагулята.

Таблица 1

Условия сульфатного осаждения

Методика сульфатного осаждения	Удельный вес раствора сульфата	Соотношение объемов эмульсии и раствора сульфата	Продолжительность плавления коагулята (после промывки)	Температура плавления коагулята	Перемешивание
I	1,26	1 : 1	15 минут	46°	Ручное
II	1,22	1 : 0,63	1 час	55°	Механическое 120 об/мин

На рис. 1 приведены микрофотографии неоднослойных препаратов расплавленных коагулятов. Нетрудно заметить, что методика сульфатного осаждения I не обеспечивает однородного распределения зерен галоидного серебра в объеме эмульсии. Уменьшение концентрации и объема раствора сульфата, а также интенсификация условий плавления коагулята приводят к более однородному распределению зерен галоидного серебра в объеме эмульсии.

Для выяснения связи между распределением зерен галоидного серебра в неоднослойном препарате и в самом эмульсионном слое ядерных пластинок одновременно с неоднослойными препаратами исследовались эмульсионные слои 100-микронной толщины. Коагуляты эмульсии с различной продолжительностью плавления поливались толстым слоем (толщиной 100 микрон) в расчете на сухой слой. Слои выдерживались в термостате при 36° С и 100% относительной влажности 7 суток, а затем просушивались и проявлялись. На рис. 2 и 3 приводятся микрофотографии эмульсионных слоев до и после термостатного выстаивания. Как видно из рисунков, эмульсии, в которых сульфатное осаждение проводилось по методике I, более склонны к коагуляции, и в процессе термостатного выстаивания в таких слоях происходит образование агрегатов зерен галоидного серебра.

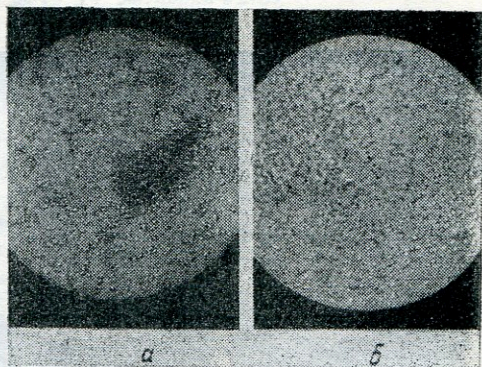


Рис. 1. Микрофотографии неоднослойных препаратов ядерных фотоэмульсий. Увеличение 1400X.

а — сульфатное осаждение проводилось по I-ой методике; б — сульфатное осаждение проводилось по II-ой методике.

Выше говорилось, что коллоидная устойчивость эмульсии зависит не только от адсорбционной оболочки на поверхности эмульсионных зерен, но и от структуры геля желатины. На основании экспериментальных дан-

ных можно утверждать, что в процессе сульфатного осаждения образуется прочная сетчатая структура. Это позволяет отнести коагулят эмульсии к типичным концентрированным студням. Из литературы известно^{2,3}, что состояние концентрированного студня определяется связями между реакционно способными (полярными) группами желатиновых молекул.

Наличие большого количества связей обуславливает прочность таких систем. Усиление межмолекулярного взаимодействия в концентрированных студнях приводит к смещению температуры плавления таких систем в сторону ее повышения. Поэтому естественно предположить, что, если в процессе плавления коагулята не

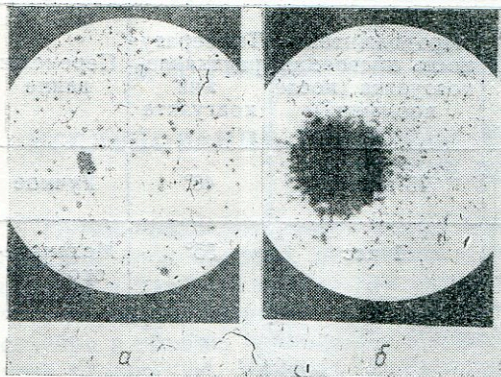


Рис. 2. Микрофотография ядерной фотоэмульсии, изготовленной по I-ой методике. Увеличение 1400X.

а — готовая эмульсия; б — готовая эмульсия после термостатного хранения.

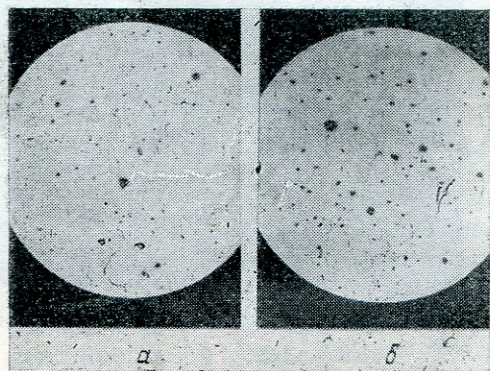


Рис. 3. Микрофотографии ядерной фотоэмульсии, изготовленной по II-ой методике. Увеличение 1400X.

а — готовая эмульсия; б — готовая эмульсия после термостатного хранения.

удается полностью разрушить прочную сетчатую структуру желатины, должны создаваться предпосылки для неравномерного распределения зерен галоидного серебра в объеме. Неоднородное распределение зерен галоидного серебра при неоднородной структуре макромолекул желатины вызывает образование скоплений зерен. Отсутствие достаточно устойчивых и однородных защитных оболочек на поверхности зерен приводит к слипанию незащищенных участков зерен с возникновением агрегатов зерен.

В условиях высокой влажности, при сорбции паров воды слоем, возникают возможности к миграции зерен, а в местах с большей плотностью, где зерна находятся на близком расстоянии друг от друга, возможен дальнейший рост агрегатов зерен.

Кроме того, при условии большой влажности и температуры макромолекулы желатины будут стремиться занять энергетически наиболее устойчивое положение, что также повлечет за собой изменение положения зерен галоидного серебра в слое и увеличит возможность их агрегации.

Недостаточно однородная адсорбционно защитная оболочка на поверхности зерен галоидного серебра не обеспечивает защиты зерен от вуалирования как при термостатном выстаивании, так и в процессе проявления.

Для обеспечения условий более полной пептизации после сульфатного осаждения требовалось создание менее вязкого коагулята, т. е. системы с менее прочными связями. Это достигалось снижением применяемого количества и концентрации раствора сульфата. Улучшение пептизации было

достигнуто также интенсификацией процесса плавления (повышением температуры и продолжительным и интенсивным перемешиванием).

Таким образом, причина наблюдаемых ранее явлений вуалирования и агрегирования эмульсионных зерен ядерных эмульсий в процессе длительной сушки заключается в неоднородном распределении зерен галогенида серебра в объеме и в неоднородной структуре желатиновой среды вследствие плохой пептизации коагулята эмульсии после сульфатного осаждения.

Помимо указанных обстоятельств происходит, по-видимому, снижение плотности заряда поверхности в процессе сульфатного осаждения зерен галоидного серебра, обусловливаемой ионами брома.

Было сделано предположение, что предварительная диспергация коагулята в растворе бромистого калия сможет обеспечить создание необходимой плотности заряда поверхности частиц, а электростатические силы отталкивания заряженных поверхностей облегчат последующую диспергацию частиц.

В случае пептизации коагулята непосредственно в растворе желатины ее молекулы адсорбируются на поверхности агрегатов зерен и увеличивают прочность агрегатов, что препятствует их диспергации.

Проверка условий диспергации исследовалась на опытных эмульсиях типов Р и К*. Коагуляты эмульсий обоих типов получались согласно I-ой и II-ой методикам сульфатного осаждения.

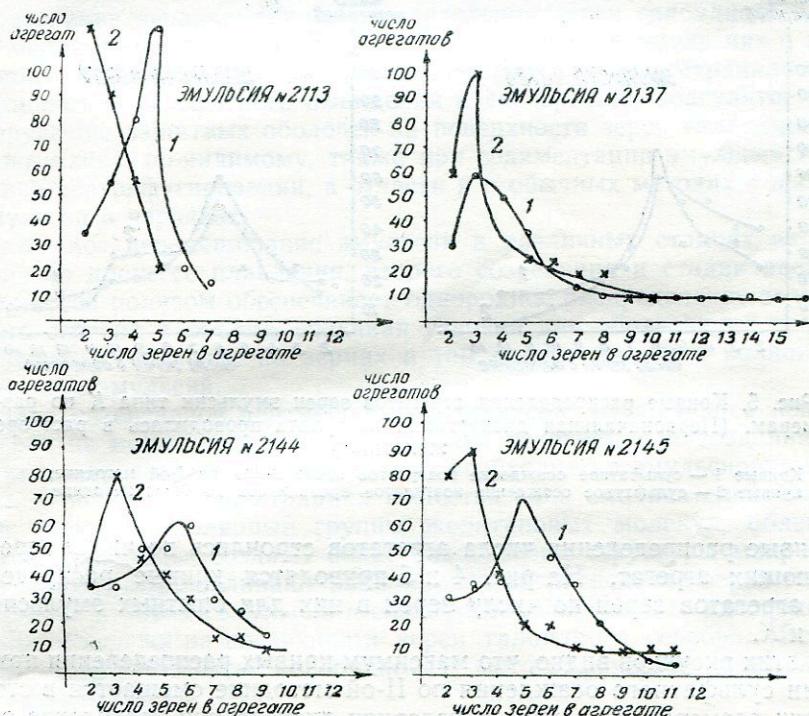


Рис. 4. Кривые распределения агрегатов зерен эмульсии типа Р по размерам. (Первоначальная диспергация коагулята в растворе бромистого калия).

Кривые 1 — сульфатное осаждение проводилось согласно I-ой методике; кривые 2 — сульфатное осаждение и плавление коагулятов проводилось согласно II-ой методике

* Опытные эмульсии изготовлены в процессе разработки типов Р и К в период 1951—1952 годов.

Диспергация коагулятов проводилась различными путями: коагулят эмульсий типа *K* диспергировался непосредственно в растворе желатины, а коагулят эмульсий типа *P* диспергировался предварительно в растворе бромистого калия.

Эмульсии поливались слоем толщиной 100 микрон в расчете на сухой слой. После проявления в каждом эмульсионном слое просчитывалось по 300 агрегатов (агрегатом считается сочетание эмульсионных зерен, состоящее из двух или более зерен).

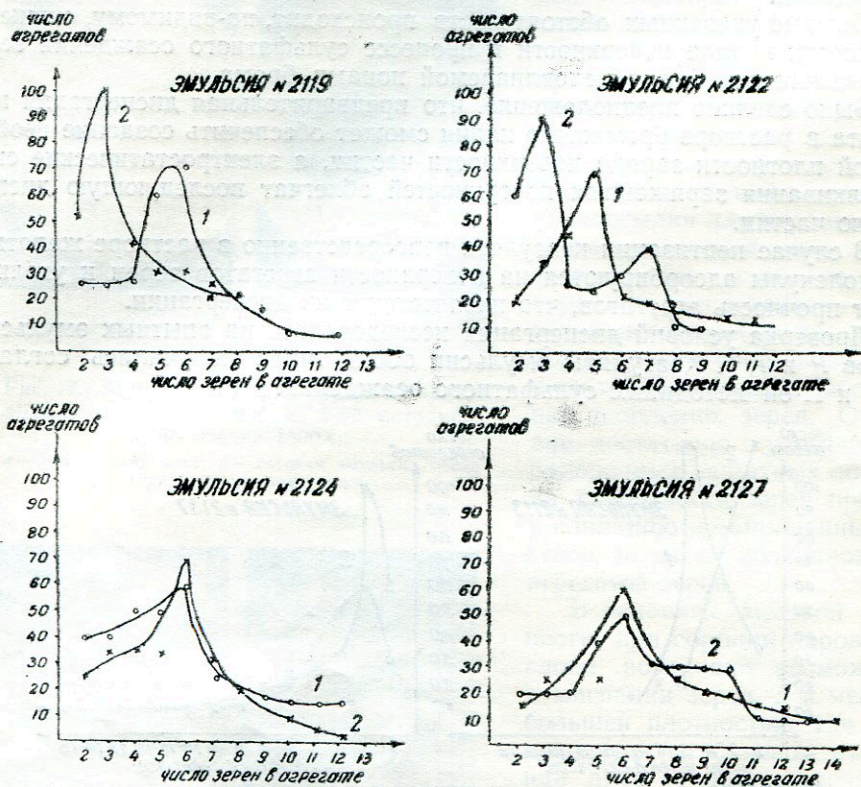


Рис. 5. Кривые распределения агрегатов зерен эмульсии типа *K* по размерам. (Первоначальная диспергация коагулята проводилась в растворе желатины)

Кривые 1 — сульфатное осаждение коагулятов проводилось по I-ой методике; кривые 2 — сульфатное осаждение коагулятов проводилось по II-ой методике.

Кривые распределения числа агрегатов строились по числу зерен, составляющих агрегат. На рис. 4 и 5 приводятся кривые распределения числа агрегатов зерен по числу зерен в них для опытных эмульсий типов *P* и *K*.

Из этих рисунков видно, что максимум кривых распределения при проведении сульфатного осаждения по II-ой методике смещается в сторону меньших размеров. Различие в условиях диспергации коагулятов эмульсий типов *P* и *K* вызывает различие и в степени пептизации зерен галоидного серебра этих эмульсий в объеме. Эмульсионные слои пластинок типа *K*, коагулят которых диспергировался непосредственно в желатиновом растворе, сохраняют большее число зерен в агрегатах, нежели эмульсионные слои пластинок типа *P*.

Таким образом, более полной пептизации коагулята способствует проведение процесса диспергации в растворе бромистого калия с последующим введением желатины.

Ядерные эмульсии, в которых не обеспечивалась хорошая пептизация коагулята, не обладали необходимой эластичностью слоя, плохо смачивали стекло в процессе полива и не выдерживали длительного пребывания в вакууме. Недостаточная пептизация не устраняла гидрофобность коагулята и полярные группы макромолекул желатины находились в этом случае в связанном состоянии.

Дубление фотографической эмульсии, в которой не обеспечивалось равновесное состояние желатиновых макромолекул, усугубляло связи этих молекул и увеличивало механические напряжения системы, приводящие к ухудшению их физико-механических свойств.

Возрастание степени задубливания такого слоя резко увеличивало его хрупкость, поэтому применение быстродействующих дубителей (в частности флоро-формалина), когда процесс задубливания предшествовал процессу релаксации напряжений, ухудшало механические свойства системы.

Увеличение степени пептизации эмульсии, наоборот, улучшало смачиваемость и держание слоя на подложке, так как смачиваемость обусловливается взаимодействием полярных групп желатины с поверхностью стекла, а при пептизации эти группы освобождаются от связей в узлах сетки.

Освобождение полярных групп при пептизации улучшает условия адсорбции желатины на галоидном серебре, увеличивая тем самым защитные свойства желатиновых оболочек.

Образование неравномерного распределения зерен галоидного серебра при сушке толстых слоев, наблюдавшееся ранее на эмульсиях с недостаточной степенью пептизации, в значительной степени устранялось новой технологией сульфатного осаждения и диспергации коагулята.

Разрушение защитных оболочек на поверхности зерен галоидного серебра возможно, по-видимому, также при седиментации эмульсий и особенно при центрифугировании, а отчасти и в обычных методах с промывкой эмульсии в червяках.

Тщательное перемешивание эмульсии в различных стадиях ее изготовления (в процессе плавления, второго созревания и стадии введения добавок перед поливом обеспечивает однородное распределение зерен галоидного серебра в объеме, создавая условия для образования прочных адсорбционных оболочек на зернах и тем самым повышая коллоидную стабильность эмульсий.

Однако интенсивное перемешивание эмульсий, улучшающее пептизацию зерен не может являться достаточным условием для создания идеально пептизированных систем. Поэтому необходимо в эмульсионные слои вводить в больших концентрациях вещества типа смачивателей. Эти вещества, блокируя полярные группы желатиновых молекул, облегчают плавление желатины, создают более равновесные структуры макромолекул желатины, обуславливают равномерное распределение зерен галоидного серебра в объеме эмульсии и создают дополнительные адсорбционно-защитные оболочки на поверхности зерен галоидного серебра. Все это обуславливает повышение коллоидной и фотографической стабильности фотоэмульсий.

Заключение

В проведенном исследовании была показана зависимость зерен готовых фотоэмульсий к агрегации от условий проведения методики сульфатного осаждения.

Коллоидная неустойчивость высококонцентрированной эмульсии была объяснена, недостаточной пептизацией зерен галоидного серебра вследствие образования прочной структуры геля желатины в процессе суль-

фатного осаждения. Рассмотрение коагулята эмульсии с точки зрения теории концентрированных студней дало возможность понять природу таких систем и объяснить их прочность наличием большого количества связей между полярными группами желатиновых молекул. Для создания равновесной структуры желатиновых молекул, а также для обеспечения условий полной пептизации зерен галоидного серебра в объеме готовой эмульсии требовалось создание маловязкого коагулята и изменение условий диспергации коагулята в сторону повышения температуры, увеличения продолжительности перемешивания и проведения диспергации коагулята в растворе бромистого калия с последующим введением желатинины.

На основании проведенного исследования была рекомендована новая методика сульфатного осаждения и диспергации коагулята, обеспечивающая достаточную пептизацию коагулята. Новая методика осаждения твердой фазы эмульсии типов *P* и *K* обеспечила возможность изготовления толстослойных фотопластинок без существенной потери чувствительности при их сушке и хранении.

ЛИТЕРАТУРА

1. Макаров Н. В. Труды НИКФИ. Выпуск 7, стр. 83 М., Госкиноиздат, 1947.
2. Зубов П. И. Механизм образования белковых студней. Докторская диссертация. Институт физической химии им. Карпова, 1949.
3. Каргин В. А., Слонимский Г. Л. ЖФХ, 9, 1092, 1941.

В. М. УВАРОВА и Н. В. АНОСОВА

ИССЛЕДОВАНИЕ НАБУХАЕМОСТИ ПЛАСТИНОК $g-5$ ИЛЬФОРД И ТИПА P НИКФИ

В процессе работы с пластинками типа P НИКФИ и $g-5$ Ильфорд было установлено, что последние менее склонны к набуханию в процессе обработки, т. е. обладают более прочным эмульсионным слоем.

Для выявления причин, обеспечивающих большую прочность эмульсионного слоя пластинок Ильфорд $g-5$, были поставлены сравнительные опыты по исследованию набухаемости пластинок НИКФИ и Ильфорд в различных растворах.

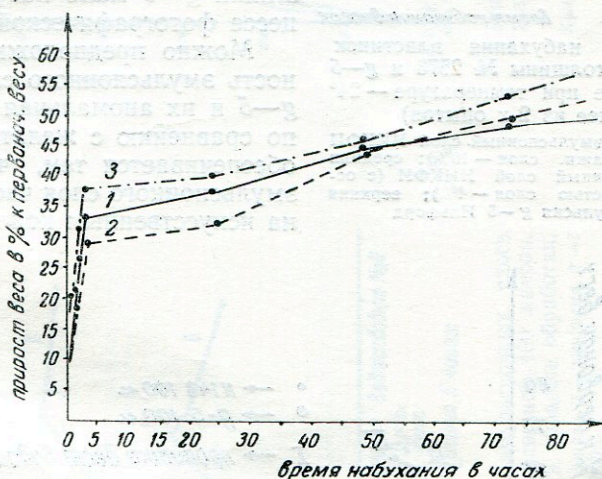


Рис. 1. Кривые набухаемости пластинок 100-микронной толщины НИКФИ и $g-5$ Ильфорд в воде при температуре 0° .

Кривая 1 — эмульсионный слой НИКФИ; кривая 2 — эмульсионный слой НИКФИ (с остаточной влажностью слоя — 4%); кривая 3 — эмульсия $g-5$ Ильфорд.

Методом исследования являлось определение прироста веса пластинок при набухании их в растворах с различными значениями рН. Пластинки через определенное время вынимались из раствора, высушивались фильтровальной бумагой и взвешивались. Продолжительность процесса набухания в воде — 3 суток, температура $0, 10$ и 24°C . В первые сутки взвешивание производилось каждый час. Кроме того, исследовалось набухание слоев в процессе фотографической обработки.

Из приведенных рисунков 1 и 2 видно, что резкое увеличение веса наблюдается в первые часы набухания в воде. При температуре 0° различие в скорости набухания пластинок НИКФИ и $g-5$ незначительно, а

при температуре 24° С большей скоростью набухания обладают пластинки *g*—5 Ильфорд.

Исследование набухания пластинок, толщиной 100, 200 и 400 микрон, в процессе обработки (до стадии фиксирования) установило (см. рис. 3)

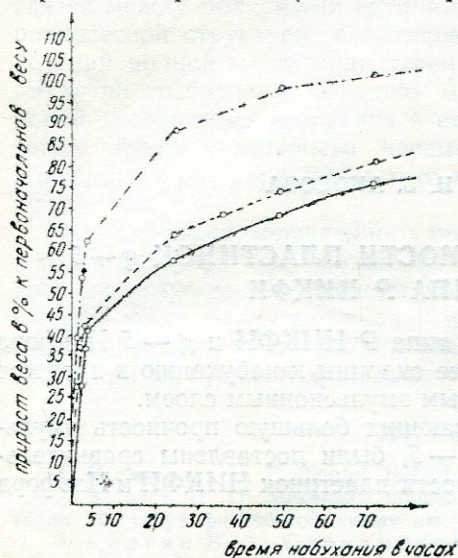


Рис. 2. Кривые набухания пластинок 100-микронной толщины № 2573 и *g*—5 Ильфорд в воде при температуре — 24° (среднее из 2-х опытов)

Нижняя кривая — эмульсионный слой НИКФИ (с остаточной влажн. слоя — 10%); средняя кривая — эмульсионный слой НИКФИ (с остаточной влажностью слоя — 4%); верхняя кривая — эмульсия *g*—5 Ильфорд

что пластинки *g*—5 любой толщины набухают в дистиллированной воде несколько больше, чем пластинки типа Р. Прирост веса пластинок в амидоловом проявителе одинаков для обоих типов. При перенесении пластинок в раствор уксусной кислоты вес пластинок Ильфорд резко уменьшается, а у пластинок НИКФИ — возрастает.

Исследование набухаемости пластинок 400-микронной толщины в процессе обработки (рис. 4) установило, что в первой стадии обработки (до фиксирования) воспроизводятся приведенные на рис. 3 результаты. Кривая набухания пластинок *g*—5 имеет плавный характер; пластинки *g*—5 мало набухают в процессе фотографической обработки.

Можно предположить, что прочность эмульсионного слоя пластинок *g*—5 и их аномальная набухаемость по сравнению с желатиновым слоем обеспечивается тем, что желатина эмульсионного слоя частично заменена искусственным коллоидом, напри-

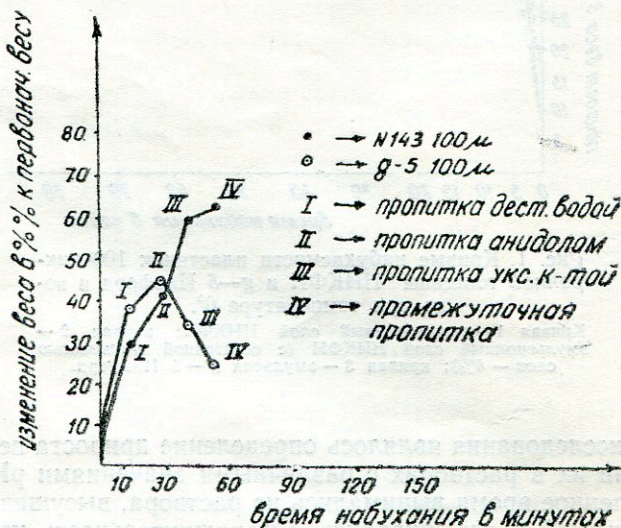


Рис. 3. Кривые набухания пластинок 100 микронной толщины НИКФИ и *g*—5 Ильфорд в процессе обработки.

Кривая 1 — эмульсия НИКФИ; кривая 2 — эмульсия *g*—5 Ильфорд; отрезок кривой I — пропитка в дистиллированной воде; отрезок кривой II — пропитка в амидоловом проявителе; отрезок кривой III — пропитка в уксусной кислоте; отрезок кривой IV — промежуточная промывка.

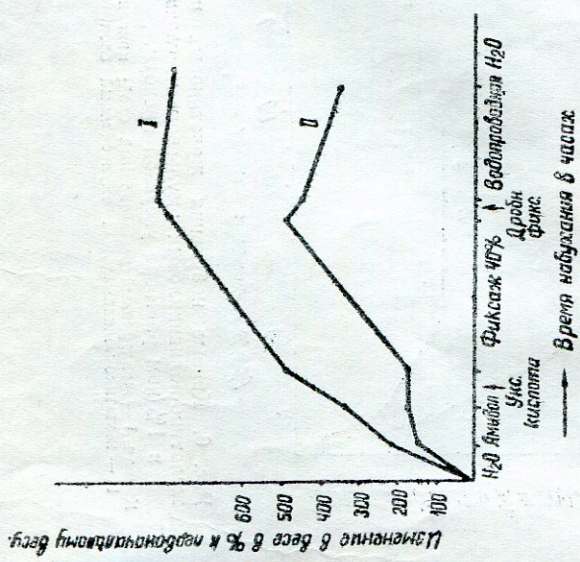


Рис. 4. Кривые набухания эмульсионных слоев на твердой подложке, толщиной 400 микрон, НИКФИ и g-5 Ильфорд в процессе обработки. Кривая I — эмульсия НИКФИ; кривая 2 — эмульсия g-5 Ильфорд.
 До 4-х часов набухания — пропитка в дистиллированной воде и амидоном проявление. От 4-х до 6 часов набухания — пропитка в уксусной кислоте. От 6 часов до 45 часов набухания — фиксирование. После 45 часов набухания — дробное фиксирование и промывка в водопроводной воде.

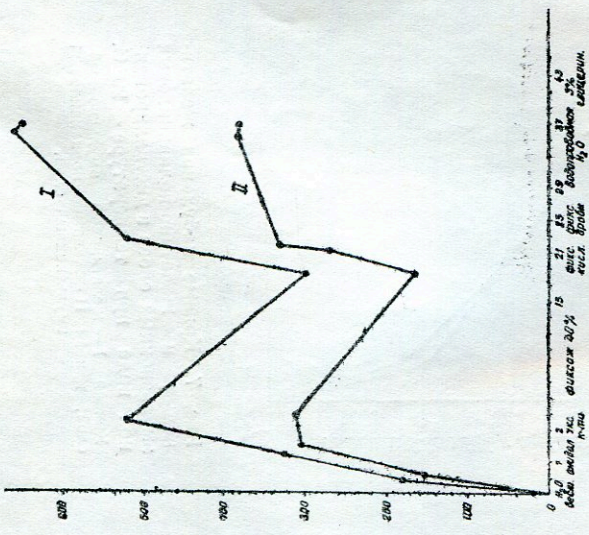


Рис. 5. Кривые набухания желатиновых и желатино-подвижных бесподложечных слоев в процессе обработки.
 Кривая I — желатина; кривая II — желатина + поливиниловый спирт

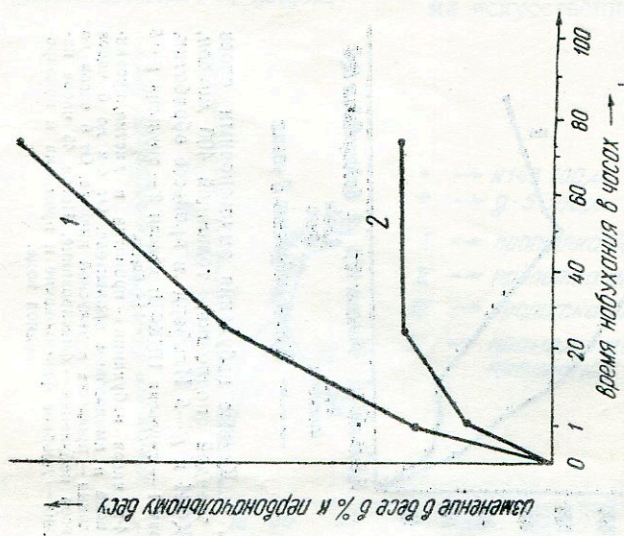


Рис. 6. Кривые набухания желатиновых и желатино-поливиниловых эмульсионных слоев в 1%-ном растворе уксусной кислоты. Кривая I — желатиновый эмульсионный слой; кривая II — желатино-поливиниловый эмульсионный слой.

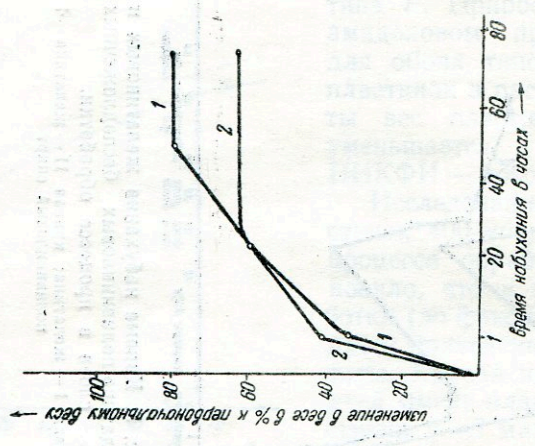


Рис. 7. Кривые набухания желатиновых и желатино-поливиниловых эмульсионных слоев в дистиллированной воде при температуре 20°C . Кривая I — желатиновый эмульсионный слой; кривая II — желатино-поливиниловый эмульсионный слой.

мер поливиниловым спиртом или его производными, а также тем, что в слое, возможно имеются в большом количестве поверхностно активные вещества типа смачивателей.

Для выяснения правильности высказанных предположений было проведено исследование набухаемости слоев с частичной заменой желатины на поливиниловый спирт, а также набухание эмульсионных слоев с большой концентрацией поверхностно активных веществ.

Проведенные опыты по исследованию процесса набухания слоев в воде, в кислых растворах и в процессе фотографической обработки показали, что набухание желатинового слоя имеет отличный характер от характера набухания желатино-поливинилового слоя (рис. 5, 6, 7).

Из рис. 5 видно, что в дистиллированной воде и амидоловом проявителе скорость набухания желатиновых и желатино-поливиниловых слоев, примерно одинакова. В уксусной кислоте наблюдается значительно более высокое набухание желатинового слоя по сравнению с желатино-поливиниловым. В стадии промывания слоев после фиксирования желатиновые слои набухают почти в 2 раза больше, чем слои желатино-поливиниловые.

Из рисунков 6 и 7 видно, что кривые набухания желатино-поливинилового слоя в воде и в кислых растворах имеют тождественный характер с кривыми набухания эмульсионных слоев $g-5$ Ильффорд.

Был проведен опыт по исследованию набухаемости эмульсионных слоев, в которых желатина была частично заменена смачивателем.

Исследовалось набухание слоев, в которых содержание желатины колебалось в пределах 9—6 г на 100 г эмульсии, а количество смачивателя оставалось постоянным: 13,5 мл 10%-ного раствора на 100 г эмульсии.

Из приведенных данных (рис. 8) видно, что вводимый в слой смачиватель, даже при больших концентрациях желатины, уменьшает набухаемость слоя в кислых растворах.

При уменьшении концентрации желатины в слое, резко уменьшается набухаемость не только в растворах уксусной кислоты, но и в воде.

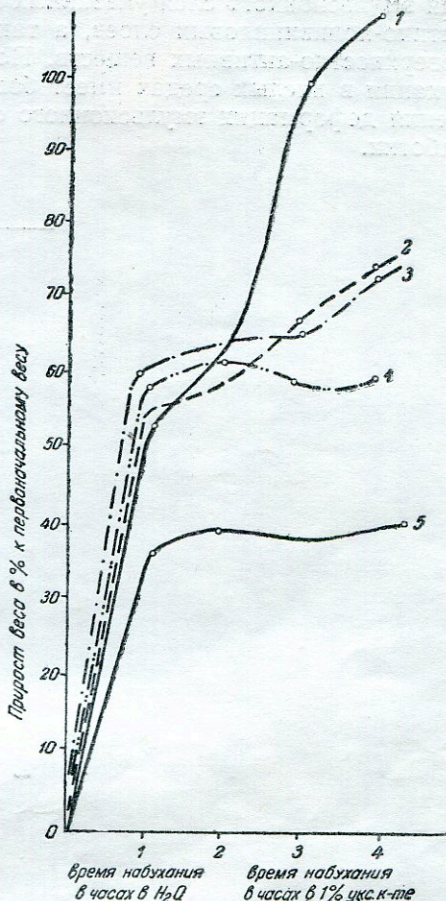


Рис. 8. Кривые набухания пластинок, толщиной 100 микрон, в воде и в 1%-ном растворе уксусной кислоты.

Кривая I — эмульсия с содержанием 9% желатины без смачивателя; кривая II — эмульсия с содержанием 9% желатины + 13,5 мл 10% раствора смачивателя на 100 г эмульсии; кривая III — эмульсия с содержанием 8% желатины + 13,5 мл 10% раствора смачивателя на 100 г эмульсии; кривая IV — эмульсия с содержанием 7% желатины + 13,5 мл 10% раствора смачивателя на 100 г эмульсии; кривая V — эмульсия с содержанием 6% желатины + 13,5 мл 10%-ного раствора смачивателя на 100 г эмульсии;

до 2-х часов набухания — в дистиллированной воде. После 2-х часов набухания — в уксусной кислоте.

Выводы

Исследования набухаемости пластинок $g-5$ Илфорд и типа Р НИКФИ установили аномальную набухаемость эмульсионного слоя пластинок $g-5$ по сравнению с желатиновыми слоями. Характер набухания эмульсионного слоя указанных пластинок аналогичен набуханию желатино-поливиниловых слоев, а также слоев с высокой концентрацией поверхностно-активных веществ. Получение слоев с малой степенью набухания в кислых средах имеет большие перспективы в отношении снижения деформации эмульсионного слоя в процессе фотографической обработки.



Рис. 8. Кривые набухаемости эмульсионного слоя пластинок Илфорд и типа Р в кислых средах. Показано, что эмульсионный слой пластинок Илфорд и типа Р набухает сильнее, чем желатиновый слой.

Исследования набухаемости эмульсионного слоя пластинок Илфорд и типа Р установили аномальную набухаемость эмульсионного слоя пластинок $g-5$ по сравнению с желатиновыми слоями. Характер набухания эмульсионного слоя указанных пластинок аналогичен набуханию желатино-поливиниловых слоев, а также слоев с высокой концентрацией поверхностно-активных веществ. Получение слоев с малой степенью набухания в кислых средах имеет большие перспективы в отношении снижения деформации эмульсионного слоя в процессе фотографической обработки.

А. А. ПАНКОВА и К. С. БОГОМОЛОВ

ВЛИЯНИЕ СЕНСИБИЛИЗИРУЮЩЕГО РАСТВОРА НА ПЕРЕКРИСТАЛЛИЗАЦИЮ БРОМИСТОГО СЕРЕБРА И НА ФОТОГРАФИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА ЯДЕРНЫХ ЭМУЛЬСИЙ

1. Цель работы

Эмульсии для регистрации следов слабо ионизирующих частиц можно сенсibilизировать раствором роданистого золота в состоянии комплекса с избытком роданида натрия и тиосульфатом натрия.

Золото является весьма эффективным сенсibilизатором по отношению к действию заряженных частиц. Образующиеся при сенсibilизации центры чувствительности, содержащие металлическое золото лучше, чем серебряные центры, улавливают медленные электроны, возникающие под действием первичной быстрой заряженной частицы.

Роданид является комплексообразователем, обеспечивающим возможность применения для сенсibilизации растворимого соединения одновалентного золота.

Назначение же тиосульфата натрия состоит в получении сенсibilизирующих веществ желатины, недостаток которых обусловлен применением весьма малого количества желатины, что является спецификой высококонцентрированных эмульсий для ядерных исследований.

В работе по исследованию коллоидной стабильности эмульсии¹ В. М. Уваровой, М. Ф. Родичевой и К. М. Романовской было установлено, что ядерные эмульсии могут обладать нестабильностью, характеризующейся укрупнением эмульсионных зерен за счет агрегации и перекристаллизации бромистого серебра в процессе хранения в условиях высокой влажности и температуры. Процесс перекристаллизации эмульсионных зерен, как показали исследования, проходит через стадию растворения галоидного серебра под влиянием различных вводимых в эмульсию добавок.

Целью настоящей работы является исследование влияния на свойства фотоэмульсии золота, роданида и тиосульфата натрия в различных концентрациях.

Исследования показали, что роданистые соли приводят к перекристаллизации галоидного серебра в процессе старения и тем в большей степени, чем больше концентрация роданида в эмульсии. Для устранения тенденции эмульсионных зерен к перекристаллизации были исследованы фотографические свойства эмульсии при различных концентрациях роданистого золота и тиосульфата натрия и установлены их новые оптимальные концентрации эмульсии.

2. Метод исследования

При исследовании процессов перекристаллизации использован метод ускоренного старения в термостатных условиях жидкой эмульсии и готовых пластинок¹.

Готовые пластинки с толщиной сухого эмульсионного слоя 100 микрон помещались в эксикатор с водой и выдерживались в термостате при 36° и 100% влажности в продолжении 7 суток. После термостатного старения пластинки облучались электронами, обрабатывались в амидоловом проявителе и подвергались визуальному микроскопическому исследованию (получение микрофотографий перекристаллизованных зерен).

Методика исследования перекристаллизации зерен бромистого серебра.

Жидкая эмульсия с испытуемыми сенсibiliзирующими компонентами в закрытых пробирках выдерживалась в термостате при 36° и 100% влажности до 15 суток. С целью выявления перекристаллизации через каждые трое суток производились поливы неоднослойных препаратов, которые подвергались микроскопическому исследованию.

Методика приготовления. Неоднослойные препараты готовились следующим образом:

4—5 капель хорошо размешанного опытного образца эмульсии разбавлялись до 10 мл дистиллированной водой. Разбавленная эмульсия размешивалась и равномерно распределялась на неподслоенной стороне стекла размером 6×9 см. Излишек эмульсии сливался. Политые неоднослойные препараты высушивались и подвергались микроскопическому исследованию.

В качестве источников излучения были использованы препарат урановой руды и источник релятивистских электронов. При облучении релятивистскими электронами чувствительность эмульсии определялась по плотности следа релятивистского электрона в пересчете на длину 100 микрон. Зерновой фон вуали определялся в объеме 10^{-9} см³.

При оценке сохраняемости пластинок определялась различимость криволинейных следов электронов до и после термостатного старения, что являлось комплексным показателем фотографических свойств эмульсии: зерновой вуали, степени агрегации и чувствительности.

3. Влияние сенсibiliзирующего раствора на перекристаллизацию бромистого серебра

Влияние золотохлористоводородной кислоты, роданистого натрия и тиосульфата натрия на перекристаллизацию эмульсионных зерен исследовалось в готовых пластинках и жидкой эмульсии. Были получены следующие результаты:

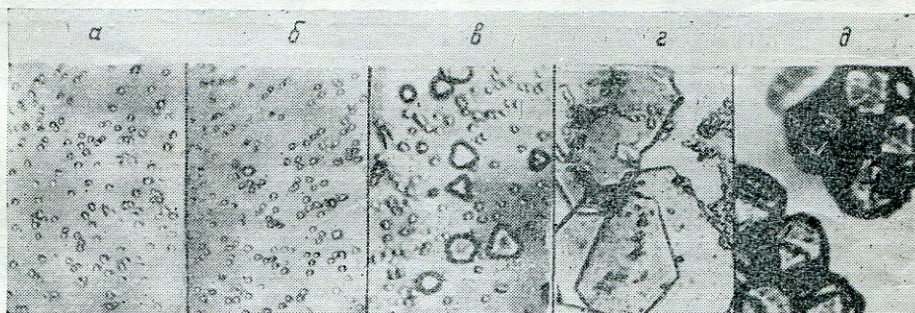


Рис. 1. Микрофотографии не проявленных зерен бромистого серебра после 10-ти суток термостатного старения (увеличение 1650х). Концентрация роданида на 1 кг эмульсии:

а — без роданида; б — $0,13 \cdot 10^{-2} M$; в — $0,26 \cdot 10^{-2} M$; г — $1,3 \cdot 10^{-2} M$; д — $2,6 \cdot 10^{-2} M$.

Золотохлористоводородная кислота в пределах исследованных концентраций от 0 до $2 \cdot 10^{-4}$ г/м на кг эмульсии и тиосульфат натрия в пределах исследованных концентраций от 0 до $2 \cdot 10^{-5}$ м/кг перекристаллизацию бромистого серебра не вызывают. Что же касается роданистого натрия, то в пределах исследованных концентраций от 0,2 до

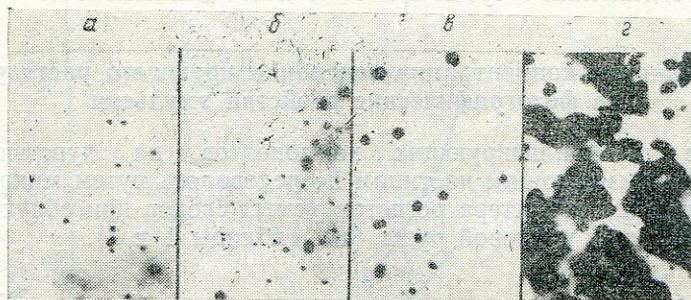


Рис. 2. Микрофотографии проявленных зерен бромистого серебра в эмульсионном слое после 7-ми суток термостатного старения. (Увеличение 1650х). Концентрация золота $0,4 \cdot 10^{-4}$ М в кг эмульсии. Концентрации роданида: а — $0,13 \cdot 10^{-2}$ М в кг эмульсии; б — $0,26 \cdot 10^{-2}$ М в кг эмульсии; в — $0,65 \cdot 10^{-2}$ М в кг эмульсии; г — $1,3 \cdot 10^{-2}$ М в кг эмульсии.

$2,6 \cdot 10^{-2}$ м/кг он обладает способностью вызывать сильную перекристаллизацию бромистого серебра в процессе старения.

Чем больше концентрация роданида в эмульсии и чем больше время старения, тем больше степень перекристаллизации бромистого серебра.

Микрофотографии (см. рис. 1) дают наглядное представление о пе-

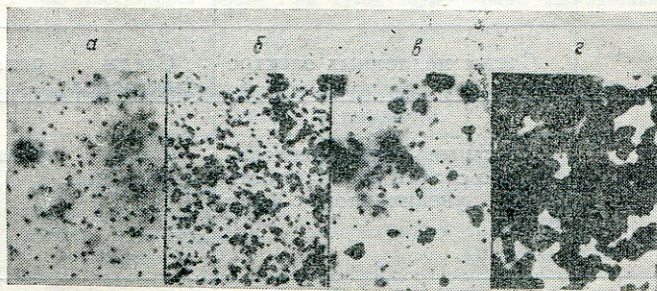


Рис. 3. Микрофотографии проявленных зерен бромистого серебра в эмульсионном слое после 7-ми суток термостатного старения. (Увеличение 1650х). Концентрация золота $2 \cdot 10^{-4}$ М в кг эмульсии. Концентрация роданида: а — $0,13 \cdot 10^{-2}$ М в кг эмульсии; б — $0,26 \cdot 10^{-2}$ М в кг эмульсии; в — $0,65 \cdot 10^{-2}$ М в кг эмульсии; г — $1,3 \cdot 10^{-2}$ М в кг эмульсии.

рекристаллизации непроявленных зерен бромистого серебра в течение 10 суток термостатного старения при различных концентрациях роданистого натрия в эмульсии: с увеличением концентрации роданида от $0,13 \cdot 10^{-2}$ м/кг до $2,6 \cdot 10^{-2}$ м/кг наблюдается резкое увеличение степени перекристаллизации зерен бромистого серебра. При концентрации рода-

нида $1,3 \cdot 10^{-2}$ м/кг и выше пластиночная форма кристаллов переходит в компактную, достигая огромных размеров (до 6—8 микрон).

Микрофотографии, приведенные на рис. 2 и рис. 3, дают представления о характере перекристаллизации зерен бромистого серебра в эмульсионном слое толщиной 100 микрон после термостатного старения пластинок в продолжении 7 суток при 36°C и 100% влажности.

4. Влияние концентрации сенсibiliзирующего раствора на фотографические свойства эмульсии

Влияние сенсibiliзирующих компонентов на чувствительность эмульсии к ионизирующим частицам исследовалось путем микроскопического наблюдения характера регистрируемых следов при облучении пластинок препаратом урановой руды (см. таблицы 1 и 2).

Таблица 1

Влияние концентрации золотохлористоводородной кислоты на характер регистрируемых следов ионизирующих частиц в эмульсии

Концентрация золотохлористоводородной кислоты м/кг	Регистрируемые следы в отсутствии роданида и тиосульфата	Регистрируемые следы в присутствии роданида и тиосульфата
0	Плотные следы альфа-частиц Следов электронов нет	Следы медленных электронов
$0,2 \cdot 10^{-4}$	Следы медленных электронов	Следы релятивистских электронов
$0,4 \cdot 10^{-4}$	Следы медленных электронов	Следы релятивистских электронов
$1 \cdot 10^{-4}$	Следы медленных электронов, но слабая различимость из-за увеличенного фона вуали	Следы релятивистских электронов
$2 \cdot 10^{-4}$	Следы неразличимы вследствие большой вуали	Следы неразличимы вследствие большой вуали

Примечание: При сенсibiliзации золотом в присутствии роданида и тиосульфата концентрация роданистого натрия составляла $0,26 \cdot 10^{-2}$ м/кг, а концентрация тиосульфата — $0,04 \cdot 10^{-2}$ м/кг эмульсии.

Влияние концентрации золота на величину зернового фона вуали показано на рис. 4.

Из данных таблицы 1 и рис. 4 следует, что концентрация золотохлористоводородной кислоты в эмульсии выше $0,4 \cdot 10^{-4}$ м/кг приводит к увеличению зернового фона вуали, так как центры чувствительности, адсор-

бирующие на своей поверхности большое количество золота, проявляются без воздействия источников облучения.

Уменьшение концентрации золота до $0,2 \cdot 10^{-4}$ м/кг эмульсии приводит к уменьшению зернового фона вали без снижения чувствительности.

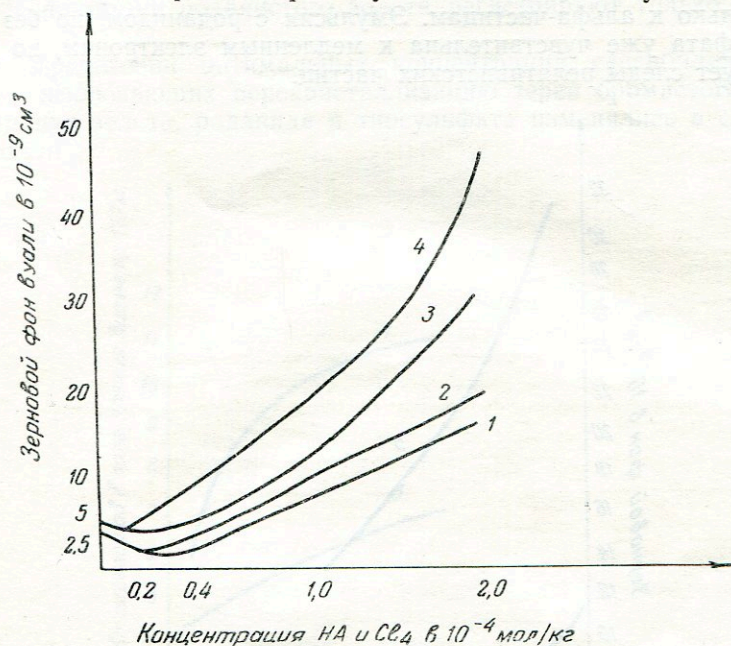


Рис. 4. Кривые зависимости величины зерновой вали от концентрации золота в эмульсии.

Кривая 1 — эмульсия с роданидом и тиосульфатом после изготовления; кривая 2 — эмульсия без роданида и без тиосульфата после изготовления; кривая 3 — эмульсия с роданидом и тиосульфатом после 7-ми суток термостатного выстаивания; кривая 4 — эмульсия без роданида и без тиосульфата после 7-ми суток термостатного выстаивания.

Таблица 2

Влияние концентрации роданида на характер регистрируемых следов ионизирующих частиц в эмульсии

Концентрация роданистого натрия м/кг	Регистрируемые следы в присутствии золота и тиосульфата	Регистрируемые следы в присутствии золота и тиосульфата			
		концентрация золотохлористоводородной кислоты м/кг			
		0,2 · 10 ⁻⁴	0,4 · 10 ⁻⁴	1 · 10 ⁻⁴	2 · 10 ⁻⁴
0	Плотные следы альфа-частиц. Следов электронов нет	Следы медленных электронов	Следы релятивистских электронов	Следы неразличимы из-за большого фона зерновой вали	
0,13 · 10 ⁻²	Следы медленных электронов	Следы релятивистских электронов	Следы релятивистских электронов	„	
0,26 · 10 ⁻²	„	„	„	„	
0,65 · 10 ⁻²	„	„	„	„	
1,3 · 10 ⁻²	„	„	„	„	

Примечание: Концентрация тиосульфата натрия составляла $0,04 \cdot 10^{-5}$ м/кг эмульсии.

Влияние концентрации роданида на величину зернового фона вуали и на количество агрегатов при различных концентрациях золота в эмульсии показано на рис. 5 и 6.

Из таблицы 2 следует, что несенсибилизированная эмульсия чувствительна только к альфа-частицам. Эмульсия с роданидом, но без золота и тиосульфата уже чувствительна к медленным электронам, но еще не регистрирует следы релятивистских частиц.

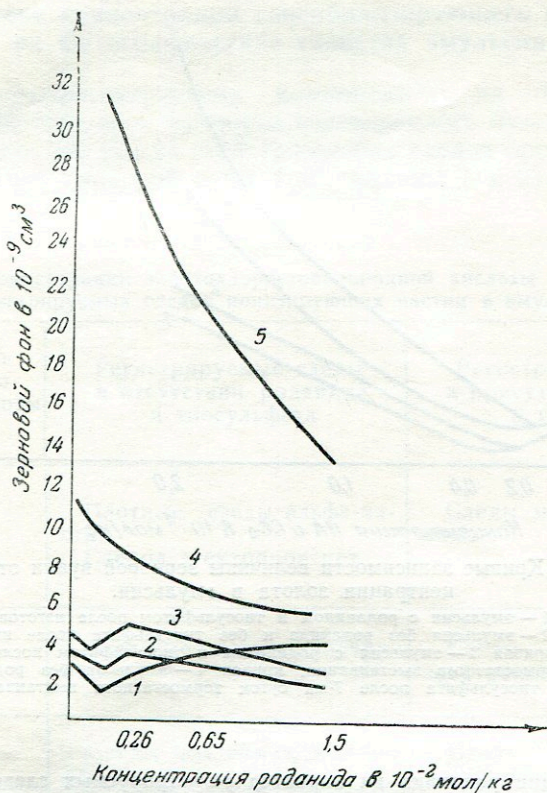


Рис. 5. Кривые зависимости величины зерновой вуали от концентрации роданида в эмульсии.

Кривая 1—без золота; кривая 2— $0,2 \cdot 10^{-4}$ М HAuCl_4 в кг эмульсии; кривая 3— $0,4 \cdot 10^{-4}$ М HAuCl_4 в 1 кг эмульсии; кривая 4— $1,0 \cdot 10^{-4}$ М HAuCl_4 в 1 кг эмульсии; кривая 5— $2,0 \cdot 10^{-4}$ в HAuCl_4 1 кг эмульсии.

Эмульсия, сенсибилизированная золотом, роданидом и тиосульфатом, чувствительна к релятивистским электронам. При концентрации золота $1 \cdot 10^{-4}$ м/кг и выше следы электронов становятся неразличимы вследствие большого зернового фона вуали.

Кривые, приведенные на рис. 5 и 6, показывают, что существенное увеличение концентрации роданида приводит к увеличению коагуляции в результате способности роданида перекристаллизовывать зерна бромистого серебра за счет растворения мелких кристаллов. С увеличением концентрации роданида в эмульсии это сказывается на уменьшении фона зерновой вуали.

Заслуживают внимания более высокие показатели фотографических свойств эмульсии при уменьшении концентрации золота до $0,2 \cdot 10^{-4}$ м/кг эмульсии.

Эмульсионные слои с различными концентрациями тиосульфата натрия и в отсутствие роданистого золота регистрируют только альфа-частицы.

При определении оптимальных концентраций сенсibiliзирующего раствора, исключающих перекристаллизацию зерен бромистого серебра, концентрации золота, роданида и тиосульфата изменялись в следующих пределах:

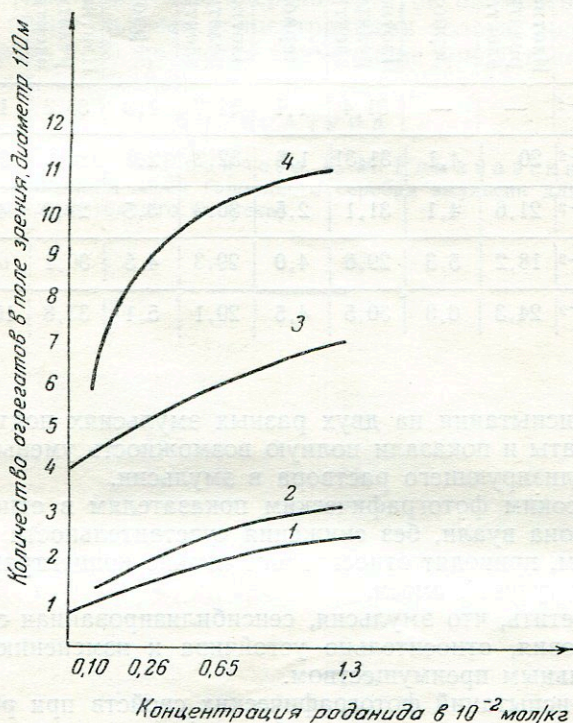


Рис. 6. Кривые зависимости степени агрегации от концентрации роданида в эмульсии.

Кривая 1— $0,2 \cdot 10^{-4}$ М HAuCl_4 в 1 кг эмульсии; кривая 2— $0,4 \cdot 10^{-4}$ М HAuCl_4 в 1 кг эмульсии; кривая 3— $1,0 \cdot 10^{-4}$ М HAuCl_4 в 1 кг эмульсии; кривая 4— $2,0 \cdot 10^{-4}$ М HAuCl_4 в 1 кг эмульсии.

Золотохлористоводородная кислота $0,08 \cdot 10^{-4}$ — $0,4 \cdot 10^{-4}$ м/кг.

Роданид натрия $0,05 \cdot 10^{-2}$ — $0,26 \cdot 10^{-2}$ м/кг.

Тиосульфат натрия $0,02 \cdot 10^{-5}$ — $0,04 \cdot 10^{-5}$ м/кг.

Более высокие концентрации, как показали вышеприведенные исследования, приводят к снижению качества фотографических показателей. Чувствительность эмульсии определялась при облучении пластинок источником релятивистских электронов по плотности зерен в следе на длине 100 микрон (см. таблицу 3).

Результаты, представленные в таблице 3, позволяют сделать вывод, что снижение концентрации золота, роданида и тиосульфата не уменьшает чувствительность эмульсии к релятивистским электронам.

Концентрация тиосульфата натрия в эмульсии выше $0,04 \cdot 10^{-5}$ м/кг не является целесообразной ввиду роста зернового фона вуали.

Влияние концентрации сенсibiliзирующего раствора на фотографические свойства эмульсии

Концентрация золотохлористоводородной кислоты на 1 кг эмульсии в М	Концентрация роданистого натрия на 1 кг эмульсии в М	Концентрация тиосульфата натрия м/кг									
		0		0,02·10 ⁻⁵		0,05·10 ⁻⁵		0,8·10 ⁻⁵		0,16·10 ⁻⁵	
		Плотность следа релятивистского электрона	Зерновой фон	Плотность следа релятивистского электрона	Зерновой фон	Плотность следа релятивистского электрона	Зерновой фон	Плотность следа релятивистского электрона	Зерновой фон	Плотность следа релятивистского электрона	Зерновой фон
0,08·10 ⁻⁴	0,05·10 ⁻²	—	—	31,4	1,1	31,7	1,3	33,3	1,4	—	—
0,16·10 ⁻⁴	0,10·10 ⁻²	20	4,1	31,31	1,6	32,3	2,0	32,0	3,0	32,2	4,5
0,24·10 ⁻⁴	0,15·10 ⁻²	21,6	4,1	31,1	2,5	30,3	3,5	29,2	4,6	—	4,8
0,32·10 ⁻⁴	0,20·10 ⁻²	18,2	5,3	29,6	4,0	29,3	4,5	30,1	6,8	30,0	7,2
0,4·10 ⁻⁴	0,26·10 ⁻²	24,3	6,3	30,5	4,5	29,1	5,1	33,8	10,3	31,1	12,3

Повторные испытания на двух разных эмульсиях подтвердили полученные результаты и показали полную возможность уменьшения концентрации сенсibiliзирующего раствора в эмульсии.

К более высоким фотографическим показателям в отношении чистоты зернового фона вуали, без снижения чувствительности к релятивистским электронам, приводят относительно низкие концентрации компонентов сенсibiliзирующей смеси.

Следует отметить, что эмульсия, сенсibiliзированная с соблюдением указанного условия, относительно устойчива к изменению рН, что является значительным преимуществом.

Результаты испытаний фотографических свойств при различных значениях рН эмульсии приведены в таблице 4.

Таблица 4

Влияние рН эмульсии на фотографические свойства

рН эмульсии	Оптимальное время 2-го созревания в часах	Плотность следа релятивистского электрона	Максимальная длина хорошо различимого следа электрона		Зерновой фон вуали	
			до старения	после старения	до старения	после старения
4,00	8	26,5	495	550	2,86	3,2
5,17	7—8	31,9	990	930	2,88	2,8
6,00	6—7	31,4	825	770	1,44	2,0
6,50	5—6	29,2	825	710	3,77	5,0
7,25	4—5	31,5	850	750	3,88	5,1

Выводы

1. Исследовано влияние компонентов сенсibiliзирующего состава эмульсии в широких пределах концентрации этих веществ.
2. При повышении концентрации золота (более $0,24 \cdot 10^{-4}$ м/кг) как правило, наблюдается ухудшение фотографической стабильности. Увеличение концентрации роданида до $0,2 \cdot 10^{-2}$ м/кг и выше вызывает увеличение степени перекристаллизации в условиях повышенной влажности. Увеличение концентрации тиосульфата связано с ростом вуали.
3. Поскольку фотографическая чувствительность к действию однозарядных частиц релятивистских энергий требует применения сенсibiliзации золотом, оптимальными концентрациями золота, роданида и тиосульфата (согласно п. 2) являются наименьшие концентрации, способные сенсibiliзировать эмульсии.

ЛИТЕРАТУРА

1. В. М. Уварова, М. Ф. Родичева, К. М. Романовская. Исследование процесса перекристаллизации зерен галоидного серебра эмульсии для ядерных исследований (см. статью 2 настоящего выпуска).

К. С. БОГОМОЛОВ, А. А. СИРОТИНСКАЯ, М. Ю. ДЕБЕРДЕЕВ,
В. М. УВАРОВА

ФОТОМАТЕРИАЛЫ НИКФИ ДЛЯ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ ТИПОВ А-2, Я-2 и К

Фотопластинки типа А-2 применяются в геологической разведке радиоактивных минералов. Они регистрируют альфа-излучение в виде плотных следов, позволяющих производить точное определение длин пробегов и соответствующих энергий альфа-частиц (см. рис. 1).



Рис. 1. Следы альфа-частиц в эмульсии типа А-2.

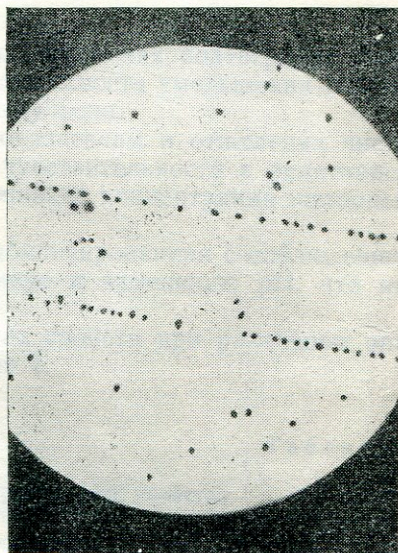


Рис. 2. Следы протонов энергии 150 мэв в эмульсии типа К.

Фотопластинки типа Я-2 регистрируют следы протонов энергии до 40—50 мэв. Эти фотопластинки применяются при изучении различных ядерных реакций, в том числе и фотоядерных, так как они обладают сравнительно небольшой чувствительностью к гамма-излучению.

Фотопластинки типа К регистрируют следы протонов с энергией приблизительно до 150—200 мэв. На микрофотографии рис. 2 приведены следы протонов энергии 150 мэв в эмульсиях типа К.

Фотопластинки указанных типов изготавливаются на экспериментальной установке радиографической лаборатории НИКФИ с 1952 года.

Опытные выпуски аналогичных фотопластинок использовались в физических исследованиях практически с 1949 года.

Исходная рецептура эмульсии для фотопластинок типов А-2, Я-2 и К, разработанная К. С. Богомоловым и А. А. Сиротинской в 1948—49 годах, является общей для всех трех типов фотопластинок. Эмульсии А-2, Я-2 и К изготавливаются по единой рецептуре и режиму первого созревания и различаются лишь по характеру сенсibilизации и по режиму второго созревания.

В основу рецептуры фотоэмульсий указанных типов положен принцип получения наибольшей однородности эмульсионных микрокристаллов эмульсии, являющийся частным положением более общего «принципа однородности» К. С. Богомолова¹.

Уже ранее нами была разработана техника подбора условий первого созревания, обеспечивающая сравнительно высокую однородность эмульсионных микрокристаллов применительно к аммиачному методу синтеза фотоэмульсий. Аммиачный метод принимался за наиболее целесообразный для изготовления ядерных эмульсий (кроме ультрамелкозернистых) по той причине, что он обуславливает однородную форму микрокристаллов (сфероидную), которая, в свою очередь обеспечивает изотропию свойств эмульсионного слоя. Последнее, безусловно, чрезвычайно важно ввиду того, что заряженные частицы могут проходить в фотослоях под любыми углами, а, как известно, пластинчатые микрокристаллы безаммиачных эмульсий ориентируются в горизонтальной плоскости при поливе эмульсии.

Однако известно, что получение весьма мелкозернистых эмульсий аммиачным методом представляет собой большие трудности из-за высокой растворимости галоидного серебра в аммиачной среде. Поэтому принципиальное направление разработки рецептуры фотоэмульсий А-2, Я-2 и К заключалось в нахождении условий получения наиболее мелкозернистых эмульсий в пределах возможностей, ограниченных применением аммиачного метода (с полным аммированием раствора нитрата серебра).

Указанная цель была достигнута в результате применения:

- а) сильного разбавления растворов нитрата серебра и бромида калия;
- б) избытка бромида, соответствующего точке минимальной растворимости галоидного серебра в присутствии аммиака;
- в) оптимального процента иодида (с точки зрения размеров и однородности микрокристаллов);
- г) весьма кратковременного первого созревания, прерываемого нейтрализацией аммиака уксусной кислотой и быстрой коагуляцией эмульсии высококонцентрированным раствором сульфата натрия;
- д) проведения сульфатного осаждения с образованием маловязкого коагулята с менее прочными желатиновыми связями;
- е) тщательной промывки коагулята эмульсии до необходимой величины электропроводности, обеспечивающей отсутствие электролитов, повышающих растворимость кристаллов галоидного серебра; растворители галоидного серебра приводят к образованию дихроического окрашивания слоя при обработке и могут вызывать при длительном хранении и повышенной влажности явление перекристаллизации эмульсионных микрокристаллов²;
- ж) интенсивного диспергирования коагулята с целью равномерного распределения микрокристаллов галоидного серебра в объеме и создания равновесного состояния желатиновых молекул;
- з) исключения в эмульсии веществ, повышающих растворимость микрокристаллов галоидного серебра; например мочевины, бензолсульфината натрия и т. д.

Электронная микрофотография непроявленных зерен эмульсии, полученной таким образом, приводится на рис. 3. Средний диаметр микрокристаллов эмульсии типа *A-2*, *Я-2*, *К* — всего 0,15 микрон, что для аммиачного метода изготовления эмульсии в настоящее время является практически нижним пределом.

Сульфатная коагуляция эмульсии в настоящее время не может считаться лучшим методом выделения твердой фазы фотоэмульсии. Однако она представляет некоторые удобства в применении к осаждению наиболее мелкозернистых эмульсий, для которых использование других методов требует значительного усложнения техники.

Опыт производственного изготовления данных типов эмульсий в 1952—56 годах приобретен в условиях применения сульфатной коагуляции. Полив фотоэмульсий производится на эмульсионно-поливной машине, модернизированной для полива ядерных эмульсий. Толстые слои (200—400 микрон) наносятся путем многослойного полива, причем эмульсия поливается на застуженные слои. Сушка производится в сушилке камерного типа.

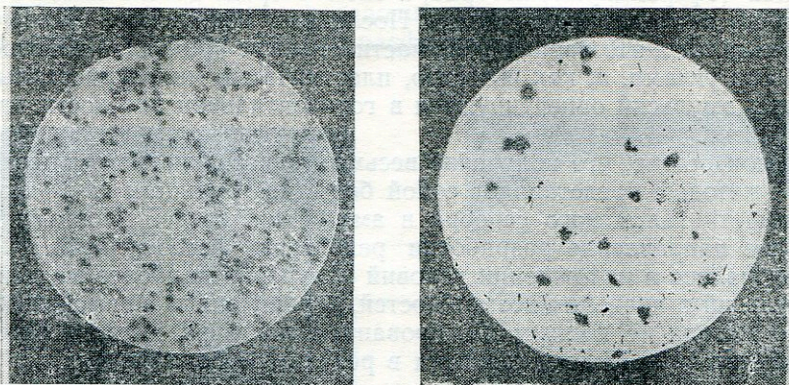


Рис. 3. Электронная микрофотография непроявленных и проявленных микрокристаллов эмульсии типа *К*.

Некоторые данные по фотографическим свойствам эмульсий типов *A-2*, *Я-2* и *К* приводятся ниже. Эти данные относятся к фотопластинкам, выпущенным в 1956 году.

Плотность следов альфа-частиц в интервале энергии от 0 до 5 мэв выражается следующими цифрами:

Тип *A-2* 248 ± 20 зерен/100 микрон

Тип *Я-2* 240 ± 25 » »

Тип *К* 270 ± 14 » »

Плотность следов протонов в интервале энергии от 5 до 7 мэв:

Тип *Я-2* 147 ± 26 зерен/100 микрон

Тип *К* 197 ± 26 » »

Приведенные цифры, выражающие колебания плотности зерен в следах альфа-частиц и протонов, характеризуют степень воспроизводимости свойств всех №№ партий фотопластинок, выпущенных в 1956 году.

Фотоэмульсии типа *Я-2* не регистрируют следы электронов. Электроны дают в этих эмульсиях фон из отдельных зерен, а также скопления по 2—3 зерна. В фотоэмульсиях типа *К* образуются сравнительно четкие следы электронов энергии примерно до ста киловольт.

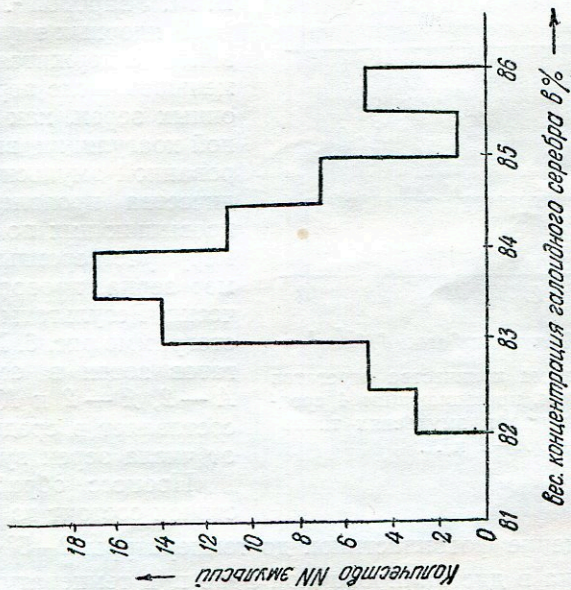


Рис. 4. Гистограмма концентраций галлоидного серебра в сухом эмульсионном слое фотоэмульсионных типов А-2, Я-2 и К выпуска 1956 года.

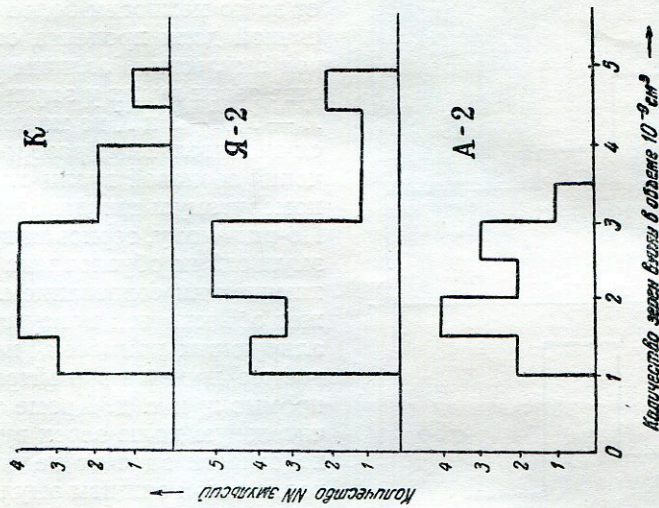


Рис. 5. Гистограмма значений зерновой вуали для фотоэмульсионных типов А-2, Я-2 и К.

Значения весовой концентрации галоидного серебра в сухом фотослое для эмульсий всех трех типов приведены на гистограмме рис. 4.

На гистограмме рис. 5 приведены значения количества зерен вуали в 1000 куб. микрон фотослоя. Интересно отметить, что общее число проявленных эмульсионных микрокристаллов составляет в этом объеме

$2,3 \cdot 10^5$. Таким образом, среднее количество зерен вуали составляет всего немногим более одной тысячной доли процента от всех зерен эмульсии. Различие в количестве зерен вуали у эмульсий типов А — 2, Я — 2 и К не может считаться значительным; разброс же значений зерновой вуали от номера к номеру эмульсии довольно велик. По-видимому, зерновая вуаль этих эмульсий не обусловлена обычным химическим созреванием. Она может объясняться присутствием вуализирующих примесей, неоднородностью процессов нейтрализации, промывки и т. д. Кроме того, значительную долю зерен вуали можно отнести за счет недостаточной коллоидной защиты эмульсионных зерен, в соответствии с коллоидо-химической концепцией эмульсионного процесса, предложенной В. М. Уваровой².

В ядерных эмульсиях, как правило, содержится большее или меньшее число агрегатов эмульсионных зерен, как результат местной коагуляции высококонцентрированной эмульсии. Контроль количества проявленных агрегатов, превышающих по линейному размеру учетверенный средний размер зерна, проводится систематически. Результаты его даны на гистограмме рис. 6. Количество агрегатов зерен в эмульсиях типов А — 2, Я — 2 и К невелико; оно составляет в среднем около 0,2% от числа зерен вуали.

Процесс обработки фотопластинок состоит из 14 стадий.

- 1) Охлаждение фотопластинок до температуры 2—5° С.
- 2) Пропитка в дистиллированной воде при температуре 2—5° С.
- 3) Пропитка в охлажденном амидоловом проявителе (температура 2—3° С) следующего состава:

амидол	2,5 г
сульфит б/в	10,0 г
лимонная кислота	до рН проявляющего раствора 6,7
вода	до 1 литра

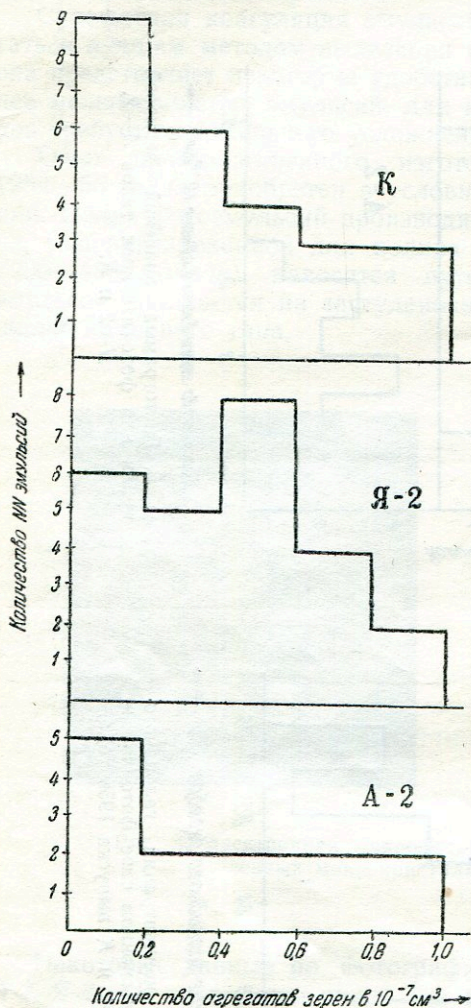


Рис. 6. Гистограмма количества агрегатов зерен с диаметром, превышающим 4 средних диаметра зерна в эмульсиях типов А — 2, Я — 2 и К.

Доведение рН проявляющего раствора до величины 6,8 осуществляется добавлением в проявитель необходимого количества лимонной кислоты (0,4—0,8 г). Контроль ведется по потенциометру.

Примечание: Если при растворении амидола в воде выпадает черный осадок, то при приготовлении проявителя необходимо брать большее количество амидола (до 3 г). Проявитель готовится непосредственно перед употреблением.

4) Проявление пластинок проводится сухим методом. Пластинки вынимаются из кюветы с охлажденным проявителем и накрываются запарафинированным стеклом, предварительно охлажденным до температуры 2—5° С. Эмульсионный слой, находящийся между двумя охлажденными стеклами, помещается в термостат на отполированную металлическую поверхность, обеспечивающую хороший приток тепла к стеклу.

Температура стадии сухого проявления: $22 \pm 1,0^\circ \text{C}$.

Примечание: При обработке фотопластинок типа А-2, Я-2 и К, толщиной слоя 100 микрон, стадия сухого проявления заменяется мокрым проявлением: проявитель того же состава (см. стадию 3) разбавляется в отношении 4 : 5. Время проявления — 20 минут.

5) Охлаждение фотопластинок до температуры 2—5° С и снятие запарафинированного стекла.

6) Стоп-ванна — 0,5% -ный раствор уксусной кислоты (рН=3,4) при температуре 2—5° С.

7) Удаление с поверхности эмульсионного слоя черного налета тампоном ваты, смоченным дистиллированной водой.

8) Фиксирование в растворе следующего состава:

гипосульфит кристаллический	400 г;
метабисульфит калия, 5%-ный раствор до рН=5,8 (~ 25 мл)	
вода	до 1 литра (температура — 5—7° С)

Контроль значения рН ведется по потенциометру.

Продолжительность фиксирования определяется временем просветления, к которому добавляется еще $\frac{1}{2}$ этого времени.

Смена фиксажа происходит через каждые 30 минут.

9) Фиксирование в растворе фиксажа, разбавленном дистиллированной водой в отношении 1 : 0,3 (30% -ный раствор гипосульфита) при температуре 5—7° С.

10) Фиксирование в растворе фиксажа, разбавленном дистиллированной водой в отношении 1 : 1 (20%), при температуре 5—7° С.

11) Фиксирование в растворе фиксажа, разбавленном дистиллированной водой в отношении 1 : 3 (10%), при температуре 5—7° С.

Примечание: При каждом разбавлении берется свежий исходный фиксажный раствор (см. стадию 8). В течение всего процесса фиксирования пластинки располагаются эмульсионным слоем вниз, на некотором расстоянии от дна кюветы, для лучшего удаления продуктов фиксирования из эмульсионного слоя.

12) Промывка пластинок водопроводной водой методом декантации при температуре 5—7° С.

13) Промывка заканчивается в 3% -ном водном растворе глицерина при температуре 5—7° С.

14) Сушка проводится без циркуляции воздуха, с постепенным понижением относительной влажности окружающего воздуха во избежание нежелательной деформации эмульсионного слоя.

Обработка пластинок ведется при неактивном желто-зеленом освещении со светофильтрами типа Агфа №№ 117 и 118, при лампочке мощностью в 25 ватт.

Продолжительность различных стадий обработки в зависимости от толщины эмульсионного слоя

№№ стадий	Продолжительность стадий обработки в минутах			
	толщина слоя 100 микрон	толщина слоя 200 микрон	толщина слоя 300 микрон	толщина слоя 400 микрон
1	3	6	12	15
2	13	25	45—60	75—100
3	13	25	45—60	75—100
4	20	25	30	35
5	3	6	12	15
6	13	25	45—60	75—100
7	1—2	1—2	1—2	1—2
8	До момента просветления эмульсионного слоя плюс $\frac{1}{2}$ времени просветления			
9	15	30	40	120
10	15	30	40	40
11	120	240	300	600
12	180	600	900	1200
13	15	30	60	120
14	Без циркуляции воздуха с понижением влажности; сушка медленная			

Кроме описанных трех типов фотопластинок, НИКФИ изготавливает фотоматериалы типа *P*, регистрирующие следы частиц с минимальной ионизацией³, а также фотопластинки типов *T-1*, *T-2* и *T-3* с повышенной дискриминацией следов однозарядных и двузарядных частиц⁴.

* *
*

В разработке методов испытания и контроля принимали участие Ю. Б. Королевич и К. М. Романовская. Испытания фотопластинок, результаты которых приводятся в настоящей статье, проводились под руководством К. М. Романовской.

ЛИТЕРАТУРА

1. Богомолов К. С. Теоретические основы изготовления высокочувствительных мелкозернистых фотографических эмульсий (Принцип однородности). См. статью 1 настоящего выпуска.
2. Уварова В. М., Родичева М. Ф., Романовская К. М. Исследование процесса перекристаллизации зерен галоидного серебра эмульсии для ядерных исследований. (См. статью 2 настоящего выпуска).
3. Богомолов К. С., Сиротинская А. А., Дебердеев М. Ю., Уварова В. М. Научные принципы рациональной рецептуры ядерных фотоэмульсий, регистрирующих следы частиц с минимальной ионизацией (тип *P*). См. статью 9 настоящего выпуска.
4. Сиротинская А. А., Богомолов К. С. Фотопластинки типов *T-1*, *T-2* и *T-3* для дискриминации следов однозарядных частиц и альфа-частиц. (См. статью 8 настоящего выпуска).

А. А. СИРОТИНСКАЯ и К. С. БОГОМОЛОВ

ФОТОПЛАСТИНКИ ТИПОВ *T-1*, *T-2* И *T-3* ДЛЯ ДИСКРИМИНАЦИИ СЛЕДОВ ОДНОЗАРЯДНЫХ ЧАСТИЦ И АЛЬФА-ЧАСТИЦ

1. Задача работы

Задачей настоящей работы явилось сравнительное изучение ряда методов повышения дискриминирующей способности фотоэмульсий для ядерных исследований, так как необходимо было найти условия, в которых целесообразно применение того или другого метода. На основе сравнения методов дискриминации в 1955—56 годах были разработаны три типа ядерных фотоэмульсий для трех различных назначений.

1) Фотопластинки типа *T-1* для регистрации редко встречающихся следов альфа-частиц в мощных пучках нейтронов, без возникновения существенного фона протонов отдачи. Фотопластинки типа *T-1* применяются, в частности, в работах по исследованию короткоживущих изотопов трансурановых элементов.

2) Фотопластинки типа *T-2* для наполнения литием, дающие практически полную дискриминацию следов альфа-частицы и тритона при расщеплении лития медленными нейтронами. Применяются для исследования нейтронноядерных реакций.

3) Фотопластинки типа *T-3*, регистрирующие протоны до 25 мэв с дискриминацией концов следов протонов и альфа-частиц, с пониженной чувствительностью к гамма-фону. Применяются для исследования фотоядерных реакций.

2. Основные методы повышения дискриминирующей способности фотоэмульсий

Основные методы повышения дискриминирующей способности фотоэмульсий можно классифицировать следующим образом:

1) Методы, основанные на изменении свойств эмульсии в процессе ее изготовления.

2) Методы, основанные на воздействии на скрытое изображение.

3) Методы, связанные с применением особых способов проявления.

Ниже дается краткая характеристика указанных методов, которые, в свою очередь, имеют ряд принципиально различных вариантов.

3. Методы, основанные на изменении свойств эмульсии

1. Подбор эмульсий требуемой чувствительности является наиболее простым способом получения дискриминации следов частиц в необходимом интервале ионизации. Для указанной цели можно изготавливать эмульсии, варьируя режим созревания или, лучше, сенсбилизации так, чтобы получать строго определенную чувствительность.

В настоящее время можно также производить подбор эмульсий требуемой чувствительности из существующих сортов. Так, например, для исследования фотоядерных реакций ранее применялись пластинки типа Я-2^{1,2}, регистрирующие протоны с энергией до 40—50 мэв. В настоящее время оказалось более целесообразным применять фотопластинки типа Т-3 с чувствительностью к протонам до 20—25 мэв, что позволяет увеличить дозу гамма-излучения при сохранении допустимого гамма-фона.

Однако указанный метод, т. е., вернее, правило подбора эмульсий по чувствительности, далеко не достаточно для разрешения всех задач дискриминации. Из трех конкретных задач, перечисленных в разделе 1, он обеспечивает разрешение лишь последней, третьей задачи (эмульсия для исследования некоторых фотоядерных реакций).

Метод подбора чувствительности, как правило, практически почти неприменим при требовании низкой чувствительности эмульсии (типы Т-1 и Т-2).

Ниже рассматриваются методы, связанные со снижением чувствительности эмульсии; эти методы с точки зрения дискриминации неравноценны.

2. Недозревшие эмульсии почти всегда имеют весьма неоднородное распределение чувствительности по микрокристаллам, поскольку возникновение чувствительности у них связано с неоднородностями в процессе первого созревания, выделения твердой фазы и сплавления. Другим недостатком незревших эмульсий является их повышенная склонность к регрессии скрытого изображения.

3. Эмульсии с искусственным торможением созревания имеют некоторое преимущество перед просто незревшими эмульсиями: во-первых стабилизация устраняет неоднородности химического созревания при сплавлении, а во-вторых, стабилизированные эмульсии более устойчивы по отношению к так называемому «нормальному старению», т. е. к продолжению созревания при хранении.

Следует отметить, что в этом случае целесообразно применять введение небольшого количества соли золота для уменьшения склонности эмульсии к регрессии.

4. Эмульсии, десенсибилизированные окислителями.

Такие эмульсии, как правило, нестабильны. Даже с трудом воспроизводится самый эффект десенсибилизации. Нам не удалось добиться какой-либо селективности для десенсибилизации этого рода. В частности, десенсибилизация пинакриптолом дает явно отрицательный результат с точки зрения дискриминации.

5. Эмульсии, десенсибилизированные растворителем центров чувствительности. Опыт показывает, что введение роданида аммония либо натрия резко увеличивает крутизну порога чувствительности эмульсий. Введение роданида приводит к общему снижению чувствительности с преимущественной десенсибилизацией малочувствительных микрокристаллов, т. е. главным образом растворяются мелкие центры чувствительности (см. таблицу 1).

Как показывают данные таблицы 1, роданид аммония позволяет практически полностью избавиться от следов протонов при достаточной плотности следов альфа-частиц. Следовательно, данный метод в принципе отвечает требованиям, предъявляемым к эмульсии типа Т-1. В дальнейшем пришлось отдать предпочтение роданиду натрия, поскольку аммонийная соль вызывала сильную дихроичку. Оптимальная концентрация роданида аммония для фотопластинок типа Т-1 оказалась равной 40—60 мг на кг эмульсии. Это соответствует приблизительно данным таблицы 1 (40—60 мг на кг соответствует 5,6—8,4 мг на 100 мг эмульсии).

Влияние концентрации роданида на чувствительность фотоэмульсий типа Т-3 к действию альфа-частиц и протонов

Десенсибилизатор	Количество мл вводимого 1% раствора на 100 мл эмульсии	Плотность следа альфа-частицы зерен (10 микрон)	Максимальная длина следа протона в микронах
Без десенсибилизации	—	26,8	300
Роданид натрия	2	20,8	80
	4	16,3	80
	6	11,2	40
Роданид аммония	2	18,1	180
	4	13,7	60
	6	11,4	следов нет

4. Методы, основанные на воздействии на скрытое изображение

Разрушение скрытого изображения следов заряженных частиц с различной ионизирующей способностью может осуществляться различными методами. В принципе процесс разрушения скрытого изображения (при достаточной однородности по отношению ко всему множеству облученных микрокристаллов во всем объеме фотослоя) приводит к увеличению дискриминации. Это основано, очевидно, на том, что с уменьшением размеров центров скрытого изображения увеличиваются индукционные периоды проявления. При этом подразумевается, что отдельные центры скрытого изображения состоят из дискретного числа атомов; по всей вероятности, в случае действия весьма сильноионизирующих частиц при проявлении действуют не одиночные центры, а их скопления.

Таким образом, поскольку проявление является автокаталитической реакцией, скорость которой еще в периоде индукции зависит от площади центров проявляемого скрытого изображения, пропорциональное уменьшение размеров таких центров должно вызвать суперпропорциональное увеличение продолжительности индукционного периода. Поэтому, чем сильнее разрушение скрытого изображения тем сильнее увеличение степени дискриминации.

Существует несколько способов разрушения скрытого изображения для достижения указанной цели.

1) Воздействие инфракрасного излучения дает в ряде случаев (П. Кюэр, Х. Херлин) положительный результат*. Применения этого способа для фотослоев большой толщины (свыше 200 микрон) недостаточно изучено.

2) Сильные окислители вызывают увеличение дискриминации. Из наиболее ранних работ, успешно выполненных в этом направлении, следует назвать исследование Н. А. Перфилова³.

3) Растворители скрытого изображения (ослабители) также дают положительный результат⁴. Способы (2) и (3) связаны с некоторыми экспериментальными трудностями, когда требуется равномерная обработка больших поверхностей и толщин фотослоя.

* Международная конференция по научной фотографии. Кёльн, 1956. Секция А-4. Вступительное сообщение и сообщение № 1.

4) Искусственная регрессия* дает весьма положительные результаты. Методика искусственной регрессии для облученных фотоматериалов идентична методике снятия фона до облучения. При условии применения специализированной эмульсии, содержащей растворитель серебра скрытого изображения, легко удается полностью разрушать скрытое изображение альфа-частиц, сохраняя следы осколков (см. раздел 6).

5. Методы, связанные с применением особых способов проявления

1) Метод недопроявления. Применяя те же рассуждения, что и в разделе 4, к методу повышения дискриминации (проявление прерывается на стадии, весьма отдаленной от полного проявления) можно представить себе механизм, являющийся основой этого метода.

Механизм дискриминации при недопроявлении заключается в том, что продолжительность индукционного периода проявления для крупных и мелких центров проявления, образованных соответственно сильно- и слабоионизирующими частицами, различается весьма сильно. Поэтому при недопроявлении, когда большое число зерен с центрами проявления остается в стадии индукционного периода, получается более сильный выигрыш в дискриминации по сравнению с полным проявлением.

Для осуществления недопроявления применяют различные медленные проявители. Так, например, Кюэром и др.** разработана целая гамма проявителей, дающих разные степени недопроявления и дискриминации.

Для обработки фотопластинок типа *T-2* применялся проявитель, рекомендованный для этой цели Ю. Л. Соколовым (см. раздел 7).

Недопроявление имеет особенно существенное значение в тех случаях, когда требуется не столько устранение фона, сколько четкая дискриминация следов частиц, неразличимых в обычных условиях, при совместном наблюдении этих частиц, например, альфатритоновых звезд при расщеплении Li^6 нейтронами (см. раздел 7).

Недостатком метода является сложность воспроизводимости степени недопроявления.

2) Метод физического проявления применялся в работах лаборатории Страсбургского университета, руководимой П. Кюэром***. В частности, была достигнута 80%-ная дискриминация следов альфа-частиц тритона. Методика физического проявления по мнению Л. Лонгшана имеет то преимущество, что она хорошо воспроизводится, так как проявление не обрывается, как в предыдущем случае, на его начальной стадии****.

6. Фотопластинки типа *T-1*

Назначение фотопластинок типа *T-1* состоит в регистрации следов альфа-частиц в условиях облучения фотоэмульсий мощным пучком нейтронов. Такие фотопластинки могут применяться, в частности, при изучении ядерных процессов, сопровождающихся испусканием большого количества нейтронов.

Задача по разработке фотопластинок типа *T-1* встала в 1955 году в связи с необходимостью регистрации альфа-излучения короткоживущих трансурановых элементов.

* Метод применен впервые Д. М. Парфановичем.

** Международная конференция по научной фотографии. Кёльн, 1956. Секция А-4. Сообщение № 2.

*** Международная конференция по научной фотографии. Кёльн, 1956. Секция А-4. Сообщение № 3.

**** В настоящей работе метод физического проявления не исследовался.

Фотоэмульсии типа *T-1* должны регистрировать редкие случаи альфа-излучения без проявления существенного фона протонов отдачи. Практически при полном проявлении на каждые 10 протонов получается один короткий редкий след, весьма резко отличающийся от следа альфа-частицы. Плотность следов альфа-частиц должна обеспечивать не только полную дискриминацию, но и возможность точного определения энергий альфа-частиц по пробегам. Разрешение следов должно быть порядка 0,5 мэв.

Фотопластинки типа *T-1* должны выдерживать высокий вакуум в камере ускорителя и не давать в этих условиях существенного электронного фона.

Разработка, усовершенствование и выпуск фотопластинок типа *T-1* производились в 1955—56 годах. С тех пор они систематически применяются в нескольких научных учреждениях страны.

С помощью фотопластинок *T-1* наблюдался альфа-распад изотопов, эйнштейния и фермия.

Рецептура эмульсии типа *T-1* имеет много общего с рецептурой эмульсий *A-2*, *Я-2* и *K*¹: аммиачный метод проведения первого созревания, применение нейтрализации аммиака, сульфатное осаждение и двухстадийное диспергирование коагулята в водном растворе бромистого калия, а затем в желатиновом. Существенным является то, что в эмульсию типа *T-1* не вводятся сенсibiliзирующие вещества, а, напротив, вводится растворитель центров чувствительности — роданистый натрий в количестве, оптимальном в отношении ликвидации чувствительности к протонам (см. таблицу 1). Преимущество такого метода повышения дискриминации в смысле устранения чувствительности к фоновым частицам были изложены в разделе 3.

Основные свойства фотопластинок типа *T-1*.

Средний диаметр непроявленного зерна 0,18 микрона.

Концентрация галоидного серебра $79 \pm 1\%$.

Толщина слоя в большинстве случаев 100 микрон.

Чувствительность к протонам — отсутствие следов.

Плотность следов альфа-частиц 10—12 зерен на 10 микрон.

Допустимая доза гамма-излучения (при получении плотности почернения 0,1) порядка 100 рентген.

Разброс энергий каждой группы альфа-частиц, излучаемых изотопами трансурановых элементов, измеряемых по длине пробега с помощью эмульсий *T-1*, не превышает 0,5 мэв.

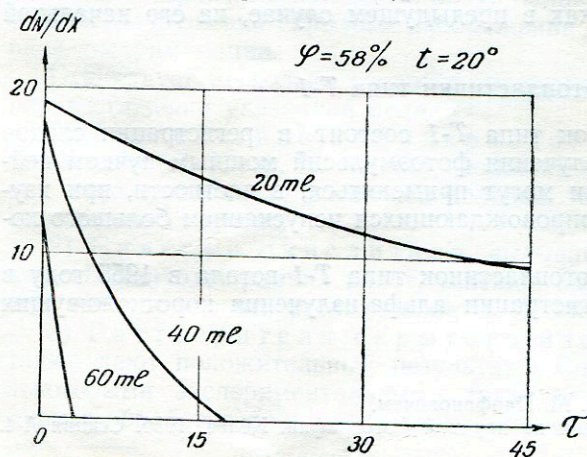


Рис. 1. Кривая кинетики регрессии для фотоэмульсии типа *T-1*.

Характерной особенностью эмульсии типа *T-1*, содержащей роданид натрия в качестве растворяющего вещества, является чрезвычайно высокая скорость регрессии скрытого изображения (см. кривую кинетики регрессии на рис. 1). При окислении серебряных центров ионы серебра образуют комплекс с ионами роданида и быстро уходят из сферы реакции, что, очевидно, ускоряет регрессию. Практически пластинки типа *T-1* ис-

пользуются при сравнительно непродолжительных экспозициях, после чего хранятся в холодильнике до момента проявления не более суток.

Склонность к регрессии позволяет использовать фотопластинки для регистрации осколков деления тяжелых ядер при полном устранении фона альфа-частиц. Идея такого применения фотопластинок типа *T-1* принадлежит Д. М. Парфановичу, любезно предоставившему НИКФИ облученные фотопластинки.

Режим искусственной регрессии: выдерживание в течение 3-х часов при температуре 25°C и относительной влажности 100%.

Проявление фотопластинок типа *T-1* обычное, до полноты проявления в ID-19.

7. Фотопластинки типа *T-2*

Назначение фотопластинок типа *T-2* состоит в регистрации следов двух- и однозарядных частиц при расщеплении лития нейтронами. Основное требование к фотопластинкам типа *T-2*, пропитанным литием, заключается в полной дискриминации следов альфа-частиц и тритона при расщеплении лития тепловыми нейтронами.

Получение столь высокой дискриминирующей способности эмульсии чисто «эмульсионными» методами (подбор рецептуры, смешение эмульсий и т. д.) оказалось практически невозможным. С другой стороны, весьма положительный результат дает методика недопроявления, предложенная и разработанная для этой цели Ю. Л. Соколовым в применении к фотопластинкам типа *E-1* Ильфорд, и типа *T-2* НИКФИ.

Рецептура фотоземлюсии типа *T-2* рассчитана на недопроявление; поэтому размер эмульсионных микрокристаллов до проявления у *T-2* несколько больше, чем у *T-1*, что достигнуто соответствующим изменением методики проведения первого созревания. С целью повышения дискриминирующей способности концентрация галоидного серебра при разработке эмульсии типа *T-2* была увеличена до 88,5%. Разрешение следов α - τ требует очень высокого качества диспергирования осадка. В связи с последними двумя требованиями выделение твердой фазы после первого созревания эмульсии типа *T-2* осуществляется посредством тонкослойного сепарирования⁵, позволяющего получать хорошо диспергируемые высококонцентрированные осадки галоидного серебра.

Основные свойства фотопластинок типа *T-2*.

Средний диаметр непроявленного зерна 0,23 микрона.

Концентрация галоидного серебра $88,5 \pm 0,5\%$.

Толщина слоя обычно 100 микрон.

Дискриминация α - τ практически полная (см. рис. 2).

Чувствительность к протонам (при недопроявлении) до 14—15 мэв.

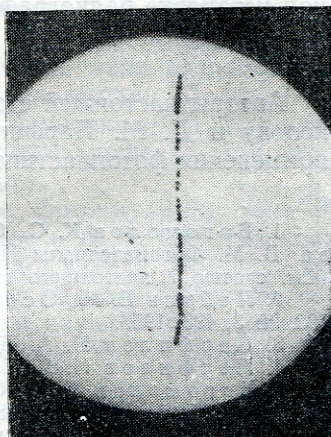


Рис. 2. Альфа-тритоновая звезда в эмульсии типа *T-2*.

8. Фотопластинки типа *T-3*

Назначение фотопластинок типа *T-3* состоит в регистрации следов тяжелых заряженных частиц в условиях повышенного фона гамма-излучения. Эти фотопластинки применяются, в основном, для исследования фо-

тоядерных реакций. Они менее чувствительны, чем эмульсии Я-2, к протонам и менее чувствительны к действию гамма-излучения. Дискриминация следов протонов и альфа-частиц достаточна для проведения исследований при совместном присутствии таких следов. При данном типе эмульсии требуемый результат достигается простым подбором рецепта, дающего оптимальную для данной физической задачи чувствительность.

Эмульсия типа Т-3 представляет собой эмульсию, изготовленную по исходной рецептуре Т-1, но не десенсибилизированную, а напротив, сенсibilизированную золотом до получения максимальной чувствительности для данной рецептуры эмульсии.

Основные свойства фотопластинок типа Т-3.

Средний диаметр непроявленного зерна 0,18 микрона.

Концентрация галлоидного серебра $79 \pm 1\%$.

Толщина слоя обычно 100 или 200 микрон.

Средняя плотность следов альфа-частиц 260 зерен/100 микрон.

Средняя плотность концов следов протонов (при $R=30$ микрон) 140 зерен/100 микрон.

Плотность следов протонов 15 мэв — 70 зерен/100 микрон.

Фотопластинки типов Т-1, Т-2 и Т-3 изготавливаются на экспериментальной установке радиографической лаборатории НИКФИ.

* *

*

Авторы настоящей статьи выражают свою признательность Ю. Л. Соколову и Д. М. Парфановичу, разработавшим оригинальные методики применения фотопластинок.

ЛИТЕРАТУРА

1. Богомолов К. С., Сиротинская А. А., Дебердеев М. Ю., Уварова В. М. Фотоматериалы НИКФИ для ядерных исследований типов А-2, Я-2 и К. (См. статью 7 настоящего выпуска).
2. Лейкин Е. М., Осокина Р. М., Ратнер Б. С. ДАН 102, № 2, 245, 1955; 102, № 3, 493, 1953.
3. Перфилов Н. А. ДАН, 42, 258, 1944.
4. Перфилов Н. А. ДАН, 43, 14, 1944.
5. Богомолов К. С., Сиротинская А. А., Дебердеев М. Ю., Уварова В. М. Научные принципы рациональной рецептуры ядерных фотоэмульсий, регистрирующих следы частиц с минимальной ионизацией (тип Р). См. статью 9 настоящего выпуска.

К. С. БОГОМОЛОВ, А. А. СИРОТИНСКАЯ, М. Ю. ДЕБЕРДЕЕВ,
В. М. УВАРОВА

НАУЧНЫЕ ПРИНЦИПЫ РАЦИОНАЛЬНОЙ РЕЦЕПТУРЫ ЯДЕРНЫХ ФОТОЭМУЛЬСИЙ, РЕГИСТРИРУЮЩИХ СЛЕДЫ ЧАСТИЦ С МИНИМАЛЬНОЙ ИОНИЗАЦИЕЙ (ТИП *P*)

Фотоэмульсии, регистрирующие следы релятивистских частиц, были впервые изготовлены Берриманом¹ в 1948 году. Такие эмульсии выпускались фирмой Кодак (тип *T-4*) с 1949 года. Наибольшее распространение с 1950 года получили фотоэмульсии типа *g-5* фирмы Илфорд, разработанные Доддом и Уоллером². В ряде стран были также разработаны ядерные эмульсии с релятивистской чувствительностью: Хельгом и Йенни³ в Швейцарии, Демерсом⁴ в Канаде и Маркоцким⁵ в Польше. Кроме того, некоторые ученые достигли почти полного решения этой проблемы (Ху Цзэ-хуэй и Лу Цзу-инь⁶ в Китае и др.).

Впервые в Советском Союзе релятивистские фотоэмульсии типа *P* были изготовлены в 1950 году К. С. Богомолым и А. А. Сиротинской. Производство таких фотоэмульсий осуществляется с начала 1953 года на специализированной экспериментальной установке радиографической лаборатории НИКФИ после длительной разработки научных основ технологического процесса, проведенной под руководством М. Ю. Дебердеева и В. М. Уваровой.

В решении отдельных задач, связанных с изготовлением и обработкой фотоэмульсии типа *P* участвовал ряд сотрудников НИКФИ, являющихся соавторами нескольких разделов настоящей статьи (О. П. Новиков, Н. П. Козлова, Л. С. Спиридонова — раздел 3; Т. И. Крестовникова и Л. В. Миклашевич — раздел 8; К. М. Романовская — раздел 9).

Некоторые другие советские исследователи также работали в направлении исследования методов изготовления релятивистских фотоэмульсий в лабораторных условиях. Большое исследование в этом направлении было проведено Д. М. Самойлович. Заслуживает большого внимания работа Н. А. Перфилова, Е. И. Прокофьевой, Н. Р. Новиковой и др.⁷ по получению эмульсии, регистрирующей следы релятивистских частиц и обладающей при этом весьма мелкими зернами.

В настоящей статье приводятся наиболее общие принципы, положенные в основу разработки фотоэмульсии типа *P*.

1. Рациональная форма и размер эмульсионных микрокристаллов. Выбор основного метода синтеза эмульсии

Изотропия эмульсионного слоя требует применения фотоэмульсий, обладающих микрокристаллами исключительно сферической формы. Эмульсии с пластинчатыми микрокристаллами, которые как известно, ориентируются в политом слое в горизонтальной плоскости, не могут применяться для регистрации следов ядерных частиц.

По этой причине очень распространенный обычный безаммиачный метод синтеза эмульсий для указанной цели не пригоден. Впрочем, это не относится к разновидности безаммиачного метода, связанной с «капельной» эмульсификацией. Такой метод вполне приемлем, в частности, при изготовлении весьма мелкозернистых эмульсий (Демерс, Перфилов). Для получения сфероидной формы эмульсионных микрокристаллов требуемого размера (см. раздел 3) был принят аммиачный метод синтеза эмульсии.

Влияние размера микрокристаллов на чувствительность фотоэмульсий к действию заряженных частиц исследовалось в процессе разработки фотоэмульсий типа *P*. Позднее этот вопрос был исследован в радиографической лаборатории НИКФИ подробнее^{8, 9, 10} и результаты выбора среднего размера микрокристаллов для эмульсии типа *P* (средний радиус = 0,14 микрона) получили теоретическое обоснование (К. С. Богомолов) с точки зрения оптимального соотношения числа зерен на единицу длины пути частицы и их размера.

Одним из важнейших требований, предъявляемых к фотоэмульсиям для ядерных исследований, является требование максимальной однородности микрокристаллов по их размерам. Повышение точности физического эксперимента с применением однородных эмульсий очевидно. Кроме того, однородность микрокристаллов эмульсии в отношении их размеров является одним из самых необходимых условий принципа однородности, (впервые сформулирован К. С. Богомоловым в 1941 году¹¹), согласно которому максимальная чувствительность фотоэмульсии достигается при однородности скорости созревания для всех микрокристаллов эмульсии.

Для выполнения этого условия необходимо, чтобы процесс физического, а также химического созревания на всех стадиях изготовления эмульсий протекал с практически однородной скоростью для всего множества микрокристаллов эмульсий.

Как уже было указано выше, аммиачный метод синтеза эмульсии позволяет получить требуемое однородное распределение эмульсионных микрокристаллов по форме.

Высказанные соображения подтверждают целесообразность проведения первого созревания фотоэмульсий по аммиачному методу. Создание рецептуры первого созревания связано с выполнением ряда более или менее сложных требований, излагаемых в следующем разделе.

2. Первое созревание эмульсий типа *P*

Построение процесса физического созревания высокочувствительных эмульсий для ядерных исследований преследует следующие цели:

1) Получение однородных по размерам микрокристаллов требуемой величины ($r=0,14$ микрон).

2) Получение минимальной степени химического созревания, которая была бы однородной для всего множества микрокристаллов эмульсии (важнейшее условие принципа однородности).

3) Отсутствие агрегации.

4) Наличие вязкости эмульсии, обеспечивающей получение при выделении твердой фазы требуемой консистенции осадка и коллоидной защиты микрокристаллов галоидного серебра в осадке, обуславливающей его полное последующее диспергирование перед вторым созреванием.

Требуемые размеры микрокристаллов и максимальная гранулометрическая однородность были достигнуты варьированием параметров кристаллизации, например избытка бромида, содержания иодистого серебра, разбавления растворов и т. д. Практически минимальная степень хими-

ческого созревания обеспечивалась весьма короткой продолжительностью дигестации аммиачной эмульсии с последующей нейтрализацией аммиака избытком уксусной кислоты и немедленной подачей эмульсии в аппарат для осаждения твердой фазы.

Отсутствие агрегации обеспечивалось прежде всего сильным разбавлением эмульсии в первом созревании. Такое разбавление неизбежно связано с последующим осаждением твердой фазы и может успешно применяться только при наличии рационального метода осаждения. Так как при осаждении твердой фазы эмульсия претерпевает ряд изменений своей коллоидной структуры, то уже при построении процесса первого созревания должно быть предусмотрено создание оптимальных условий для осаждения и, в частности, оптимальная, достаточно высокая концентрация желатины.

3. Процесс выделения твердой фазы

Построение процесса выделения твердой фазы должно способствовать получению хорошо диспергируемого осадка. При этом оно должно обеспечивать минимальный ход химического созревания в процессе осаждения и связанных с этим операций (промывка осадка и т. д.). Оба приведенных требования связаны с условиями однородного поведения всей массы эмульсии в процессе выделения твердой фазы.

Метод промывки без выделения твердой фазы применим к эмульсиям только с малым разбавлением в первом созревании. Ядерные эмульсии НИКФИ получают с сильным разбавлением, и метод студения и промывки к ним не может быть применен. Следует отметить, что для более концентрированных эмульсий, получаемых капельным методом, промывка применяется, но получающаяся эмульсия имеет малую крепость студия, что является существенным недостатком.

Метод сульфатной коагуляции может применяться для изготовления мелкозернистых ядерных фотоэмульсий низкой и средней чувствительности¹³. Однако коагуляты, получаемые в результате введения концентрированного раствора сульфата натрия в эмульсию после первого созревания, имеют неоднородную трудно воспроизводимую консистенцию. При последующей промывке отдельные части его имеют различные остаточные концентрации отмываемых электролитов. Поэтому трудно добиться однородной кинетики второго созревания. Коллоидная структура концентрированного геля склонна к образованию местных уплотнений частиц галоидного серебра («роев»). В связи с этим коллоидная и фотографическая стабильность эмульсий, получаемых сульфатным методом, даже при самом рациональном его техническом осуществлении, не является достаточной для обеспечения высоких фотографических и физико-механических свойств, которыми должны обладать эмульсии, применяемые в виде современных эмульсионных камер.

Метод центрифугирования имеет тот принципиальный недостаток, что эмульсионные микрокристаллы относительно длительное и неодинаковое время находятся в центробежном поле. Для выделения осадков ядерных эмульсий, состоящих из мелких зерен, требуется мощное ускорение, в результате чего осадок получается слишком плотным, часть микрокристаллов в нем необратимо агрегирует и потому достигнуть полной диспергации осадка не удается.

Следует отметить, что во время диспергации осадка и последующего его созревания неизбежно неоднородное созревание микрокристаллов галоидного серебра.

Метод седиментации вообще неприменим для мелкозернистых эмульсий. Экспериментальная проверка его в применении к эмульсии типа *P* дала отрицательный результат.

Метод тонкослойной сепарации является в настоящее время наилучшим способом выделения твердой фазы. Впервые он был предложен для изготовления ядерных эмульсий К. С. Богомоловым и О. П. Новиковым* и детально разработан А. А. Сиротинской, Н. П. Козловой, М. Ю. Дебердеевым и Л. С. Спиридоновой. Преимущество метода тонкослойной сепарации заключается в следующем.

Тонкослойный сепаратор представляет собой центробежную машину непрерывного действия. В ее барабан вставлены конические «тарелки», между которыми остаются кольцевые зазоры 0,3 или 0,5 мм. Поскольку рабочие поверхности «тарелок» расположены под углом к вектору центробежного поля, твердые частицы проходят в центробежном поле очень малое расстояние, обычно менее 1 мм. Далее жидкость стекает быстрым ламинарным потоком, а эмульсионные микрокристаллы со сравнительно меньшей скоростью равномерно сползают вдоль металлических плоскостей. В результате такого процесса получают малоуплотненные осадки с высоким содержанием галоидного серебра, а наличие влаги и желатины облегчает их диспергируемость.

Во время прохождения микрокристаллов в центробежном поле они не успевают потерять защитную желатиновую оболочку или, тем более, увеличиться в размерах. Условия для необратимой агрегации при этом практически отсутствуют. Легкая диспергируемость осадков эмульсии, образующихся в результате сепарирования, привела к практически полному устранению дихроического окрашивания фотослоев типа *P*, получаемых ранее методом сульфатной коагуляции. Устранение дихроического окрашивания является показателем хорошей коллоидной защиты эмульсионных микрокристаллов и отчасти хорошего качества промывки.

4. Диспергирование

Проведению более полной пептизации осадка эмульсии способствует разделение процесса диспергации на две стадии: плавление осадка в растворе бромистого калия, а затем плавление его с желатиной.

Положительный эффект при двустадийном процессе диспергации можно объяснить, исходя из исследования механизма выделения твердой фазы и основываясь на теории устойчивости лиофобных зольей, развитой Б. В. Дерягиным¹⁴.

При выделении твердой фазы изменяется (снижается) заряд поверхности зерен галоидного серебра, снижается потенциальный барьер между частицами и расстояние сокращается настолько, что начинают преобладать силы молекулярного приближения над силами электростатического отталкивания и наступает процесс коагуляции частиц. При последующей диспергации необходимо, видимо, восстановить заряд поверхности частиц для образования потенциального барьера, обуславливающего силы отталкивания частиц. Силы электростатического отталкивания, расклинивающие зерна галоидного серебра в агрегатах зерен, способствуют диспергации частиц.

Кроме того, при диспергации осадка в растворе бромистого калия на поверхности зерен создаются гидратные оболочки, которые также расклинивающим образом действуют на агрегаты зерен галоидного серебра. Последующее введение желатины приводит к дополнительной стабилизации поверхности зерен галоидного серебра. При обратном проведении процесса диспергации, когда плавление производится сразу же в растворе желатины (или при одновременном плавлении желатины), макромолекулы желатины адсорбируются на поверхности стабилизирующихся агрегатов зерен, причем прочность таких агрегатов возрастает и диспергация

* Научно-исследовательский институт химического машиностроения.

осуществляется с большим трудом. В случае плавления в желатине возрастает склонность зерен к вуалированию, так как процесс второго созревания начинается тогда, когда на поверхности зерен галоидного серебра еще не образовался достаточно однородный и устойчивый потенциальный барьер, препятствующий также и процессу восстановления на поверхности зерен галоидного серебра.

5. Сенсбилизация

Сенсбилизация золотом ядерных эмульсий применяется в радиографической лаборатории НИКФИ с 1948 года. С помощью сенсбилизации золотом К. С. Богомолу и А. А. Сиротинской удалось в начале 1949 года изготовить первые в Союзе фотопластинки, регистрирующие следы электронов энергии 80—100 кэв. В дальнейшем сенсбилизация золотом была применена в разработке фотоэмульсий, чувствительных к частицам релятивистских энергий.

Сенсбилизация золотом эмульсий, предназначенных к действию ионизирующих излучений упоминается также и в иностранной литературе*.

Сенсбилизация роданистым золотом ядерных эмульсий в обычных условиях вызывает сильное вуалирование. Поэтому в течение долгого времени некоторые специалисты выражали сомнения в возможности или целесообразности применения этого способа сенсбилизации. Однако в начале 1949 года в НИКФИ было обнаружено, что роданистое золото не дает вуалирования в ядерной эмульсии при условии весьма низкого рН. Для сенсбилизации ядерных эмульсий успешно применялось предварительное введение в эмульсию уксусной кислоты до рН, порядка 4,7—4,9.

Преимущество низкого значения рН при сенсбилизации роданистым золотом ядерных эмульсий заключается в том, что в этих условиях резко снижается растворимость поверхности галоидного серебра эмульсионных микрокристаллов.

Если ядерная эмульсия сенсбиблируется роданистым золотом при $\text{pH} = 7,5 - 8$ (что является довольно обычным для крупнозернистых эмульсий), то, вследствие эффекта растворения галоидного серебра, после проявления обнаруживается сильное дихроическое окрашивание и большая поверхностная вуаль. В некоторых случаях поверхностная вуаль переходит в сплошной черный налет. Эмульсии с высокой коллоидной стабильностью менее чувствительны к повышению рН.

Однако одной сенсбилизации золотом недостаточно для получения высокой чувствительности к действию слабоионизирующих частиц у высококонцентрированных ядерных эмульсий. Эти эмульсии содержат количество желатинины, недостаточное для осуществления химической сенсбилизации, что компенсируется введением гипосульфита.

Исследование сенсбилизации золотом, с участием А. А. Панковой¹⁶ показало, что оптимальная концентрация соли золота соответствует ее минимуму, достаточному для сенсбилизации, а избыток ухудшает качество эмульсии. Количество вводимого для усиления золотой сенсбилизации растворимого роданида также должно быть минимальным во избежание растворения галоидного серебра и связанных с этим эффектами дихроического окрашивания, агрегации и коалесценции. В случае чрезмерно высокой концентрации роданида наблюдается (при длительном хранении в условиях высокой влажности) даже перекристаллизация галоидного серебра^{16, 17}.

Концентрация гипосульфита также должна соответствовать минимуму количества этого вещества, обеспечивающему требуемую фотографиче-

* Первые литературные данные в этой области принадлежат Хэрлину и Мюллеру (1949 г.)¹⁵.

скую чувствительность. Более высокие концентрации гипосульфита вызывают повышенную вуаль¹⁶.

Таким образом, содержание в эмульсии веществ, сенсibiliзирующих и способствующих сенсibiliзации, должно быть минимальным¹⁶.

6. Второе созревание

Второе созревание производится обычным способом. Специфичным является лишь метод установления оптимальной продолжительности созревания, так как он связан с определением чувствительности эмульсии методом просчета следов заряженных частиц. Для этого из основной массы эмульсии отбирается проба, которая подвергается созреванию, причем толщина полива фотопластинок не превышает 100 *микрон* при 1, 2, 3... и т. д. часах созревания. Фотопластинки после высушивания облучаются на бетатроне.

Бетатрон с выведенным пучком электронов энергии около 15 *мэв* был смонтирован в радиографической лаборатории сотрудниками Томского политехнического института с участием научных сотрудников НИКФИ К. В. Старинина и Э. А. Груз¹⁸. Он служит для испытания чувствительности как опытных, так и готовых фотоэмульсий к действию релятивистских частиц.

Оптимальное время второго созревания устанавливается после измерения плотности следов релятивистских электронов и вуали на эмульсиях с переменной продолжительностью созревания или же определяется путем визуальной оценки под микроскопом, если результат оценки не вызывает никаких сомнений.

7. Полив и сушка фотослоев

Полив фотопластинок производится на поливной машине с приспособлениями для регулирования скорости полива, термостатирования эмульсии, поддержания постоянства уровня эмульсии в сосуде, из которого она поступает на полив и т. д. Эмульсионные слои, толщиной свыше 200 *микрон*, наносятся путем многослойного полива эмульсии сначала на стекло, а затем на застуженные слои.

Бесподложечные слои для эмульсионных камер изготавливаются путем дозированного полива эмульсии в кюветы из органического стекла с пониженной термопластичностью (может применяться и обычное стекло). Кюветы ограничены рамкой, высотой около миллиметра, и подслой наносится на часть кюветы, шириной 5 *мм* от края рамки. Что же касается краев эмульсионного слоя, то они обрезаются после окончания сушки.

Сушка как фотопластинок, так и бесподложечных слоев типа *P* проводится в три стадии:

Первая, основная стадия сушки протекает при температуре 20—25° и относительной влажности около 65%. Продолжительность сушки 400-*микронных* слоев составляет 40—48 часов. Остаточная влажность эмульсии после этой стадии сушки около 5—6%.

Второй стадией является выдерживание фотослоев не менее 12 часов при обычных комнатных условиях для выравнивания влажности в объеме слоя.

Третья стадия — досушка при температуре 35°. Влажность фотослоев доводится до 2,5—3,5%. Применение досушки необходимо, так как иначе чувствительность фотослоя и склонность его к регрессии остаются распределенными по слою крайне неравномерно.

8. Методика обработки

А. Фотопластинки типа Р

Процесс обработки фотосластинки состоит из 14 стадий, продолжительность которых указана в специальной таблице (см. стр. 80).

- 1) Охлаждение фотопластинок до температуры 2—5° С.
- 2) Пропитка в дистиллированной воде при температуре 2—5° С.
- 3) Пропитка в охлажденном амидоловом проявителе (температура 2—3° С) следующего состава:

амидол	2,5 г
сульфит б/в	10,0 г
лимонная кислота	до рН проявляющего раствора 6,7
вода	до 1 литра

Доведение рН проявляющего раствора до величины 6,7 осуществляется добавлением в проявитель необходимого количества лимонной кислоты (0,4—0,8 г). Контроль ведется по потенциометру.

Примечание: Если при растворении амидола в воде выпадает черный осадок, то при приготовлении проявителя необходимо брать увеличенное количество амидола (до 3 г). Проявитель готовится непосредственно перед употреблением.

4) Проявление пластинок проводится сухим методом. Пластины вынимаются из кюветы с охлажденным проявителем и накрываются запарафинированным стеклом, предварительно охлажденным до температуры 2—5° С. Эмульсионный слой, находящийся между двумя охлажденными стеклами, помещается в термостат на отполированную металлическую поверхность, обеспечивающую хороший приток тепла к стеклу.

Температура стадии сухого проявления 24° ± 0,5° С.

Примечание: При обработке фотопластинок, с толщиной слоя 100 микрон, стадия сухого проявления заменяется мокрым проявлением; проявитель (см. состав проявителя в стадии 3) разбавляется в отношении 4:5. Время проявления — 20 минут.

5) Охлаждение фотопластинок до температуры 2—5° С и снятие запарафинированного стекла.

6) Стоп-ванна — 0,5 %-ный раствор уксусной кислоты (рН=3,4) при температуре 2—5° С.

7) Удаление с поверхности эмульсионного слоя черного налета тампоном ваты, смоченным дистиллированной водой.

8) Фиксирование в растворе следующего состава:

гипосульфит кристаллический	400 г
метабисульфит калия, 5 %-ный раствор	до рН=5,8 (~25 мл)
вода	до 1 литра

при температуре 5—7° С (контроль по потенциометру).

Продолжительность фиксирования определяется временем просветления, к которому добавляется еще 1/2 этого времени. Смена фиксажа через каждые 30 минут.

9) Фиксирование в растворе фиксажа, разбавленном дистиллированной водой в отношении 3:1 (30 %-ный раствор гипосульфита) при температуре 5—7° С.

10) Фиксирование в растворе фиксажа, разбавленном дистиллированной водой в отношении 1:1 (20 %) при температуре 5—7° С.

Примечание: При каждом разбавлении берется свежий исходный фиксажный раствор (см. состав фиксирующего раствора в стадии 8). В течение всего процесса фиксирования пластинки располагаются эмульсионным слоем вниз, на некотором расстоянии от дна кюветы для лучшего удаления продуктов фиксирования из эмульсионного слоя.

11) Фиксирование в растворе фиксажа, разбавленном дистиллированной водой в отношении 1 : 3 (10%) при температуре 5—7° С.

12) Промывка пластинок водопроводной водой методом декантации при температуре 5—7° С.

13) Промывка заканчивается в 3%-ном водном растворе глицерина при температуре 5—7° С.

14) Сушка проводится без циркуляции воздуха, с постепенным понижением относительной влажности окружающего воздуха, во избежание нежелательной деформации эмульсионного слоя.

Обработка пластинок ведется при неактивном желто-зеленом освещении со светофильтрами типа 117 и 118, при лампочке мощностью в 25 ватт.

Примечание: Для уменьшения величины деформации черный налет рекомендуется снимать после сушки пластинок тампоном ваты, смоченным дистиллированной водой или этиловым спиртом.

Продолжительность различных стадий обработки в зависимости от толщины эмульсионного слоя

№№ п/п	Продолжительность стадии обработки в минутах			
	толщина слоя 100 микрон	толщина слоя 200 микрон	толщина слоя 300 микрон	толщина слоя 400 микрон
1	3	6	12	15
2	13	40	60—80	110—130
3	13	40	60—80	130
4	20	25	30	35
5	3	6	12	15
6	13	40	60—80	130
7	1—2	1—2	1—2	1—2
8	До момента просветления эмульсионного слоя плюс половина времени просветления			
9	15	30	40	120
10	15	30	40	120
11	120	240	300	600
12	180	600	900	1200
13	15	30	60	120
14	Без циркуляции воздуха с понижением влажности; сушка медленная			

В. Бесподложечные слои типа Р

Процесс обработки бесподложечных эмульсионных слоев состоит из 17 стадий (см. таблицу на стр. 82).

1) Охлаждение эмульсионного слоя до температуры 2—5° С.

2) Пропитка охлажденных эмульсионных слоев дистиллированной водой при температуре 2—5° С.

3) Пропитка фотослоев в охлажденном амидоловом проявителе (температура 2—5° С) следующего состава:

Амидол	2,5 г
сульфит б/в	10,0 г
лимонная кислота	до значения рН, проявляющего раствора 6,7
вода	до 1 литра

Доведение рН проявляющего раствора осуществляется добавлением в проявитель необходимого количества лимонной кислоты (обычно 0,4—0,8 г). Контроль ведется по потенциометру.

Примечание: Если при растворении амидола в воде выпадает черный осадок, то при приготовлении проявителя необходимо брать до 3-х грамм амидола. Проявитель готовится непосредственно перед употреблением.

4) Мокрое проявление. Эмульсионные слои помещаются в кювету с теплым проявителем (см. состав проявителя в стадии 3); разбавление — 4 : 5. В процессе проявления эмульсионный слой должен находиться в проявляющем растворе таким образом, чтобы была обеспечена двухсторонняя диффузия проявляющего вещества в слой. Продолжительность мокрого проявления для слоя 400 микрон — 27 минут.

Сухое проявление. Эмульсионные слои вынимаются из кюветы с охлажденным проявителем, ополаскиваются в воде (капли воды снимаются фильтровальной бумагой) и накрываются запарафинированным стеклом. Эмульсионный слой, находящийся между двумя стеклами, помещается в термостат на полированную металлическую поверхность. Температура стадии сухого проявления для эмульсии типа Р 24 ± 0,5° С.

Примечание: Вместо запарафинированного стекла можно использовать тонкий слой полиэтилена, который перед сухой стадией «накатывается» на эмульсионный слой.

5) Охлаждение слоев до температуры 2—5° С, снятие запарафинированных стекол.

6) Стоп-ванна — 0,5%-ный раствор уксусной кислоты (рН=3,4) при температуре 2—5° С.

7) Снятие черного налета с поверхности эмульсионных слоев тампоном ваты, смоченным в дистиллированной воде.

8) Фиксирование эмульсионного слоя в растворе следующего состава:

гипосульфит кристаллический	400 г
метагипосульфит калия (5%-ный раствор)	до рН фиксирующего раствора 5,8 (25 мл)
вода	до 1 литра

Фиксирование ведется при температуре 5—7° С. Продолжительность его определяется временем просветления, к которому добавляется еще половина этого времени. Смена фиксажа происходит каждые 30 минут.

9) Фиксирование эмульсионных слоев в растворе фиксажа, разбавлением дистиллированной водой в отношении 3 : 1 (30%-ный раствор гипосульфита) при температуре 5—7° С.

10) Фиксирование эмульсионных слоев в фиксаже, разбавленном в отношении 1 : 1 (20%) при температуре 5—7° С.

11) Фиксирование эмульсионных слоев в растворе фиксажа, разбавлением в отношении 1 : 3 (10%) при температуре 5—7° С.

Примечание: При каждом разбавлении берется свежий исходный фиксирующий раствор (см. состав фиксирующего раствора в стадии 8).

12) Промывка слоев в водопроводной воде методом декантации при температуре 5—7° С.

Примечание: Промывка дистиллированной водой исключается, так как вызывает чрезмерное набухание эмульсионного слоя.

13) Промывка эмульсионных слоев заканчивается в 3%-ном водном растворе глицерина при температуре 5—7° С.

14—15—16) Сушка эмульсионных слоев в водном растворе этилового спирта с добавлением глицерина при температуре 9—10° С.

Спиртовая сушка делится на три последовательные стадии:

I — Раствор из 25% этилового спирта и 3% глицерина.

II — Раствор из 50% этилового спирта и 5% глицерина.

III — Раствор из 75% этилового спирта и 5% глицерина.

Примечание: Если после третьей стадии эмульсионный слой еще не принимает своего первоначального размера, то вводится четвертая стадия — раствор 10 мл глицерина в 95%-ном этиловом спирте.

17) Наклейка эмульсионных слоев на шестикратно подслоное стекло. Клеем БФ-2 обмазываются края эмульсионного слоя.

Для удаления пузырьков воздуха слой прижимается к стеклу. Сушка ведется без циркуляции воздуха, с постепенным понижением влажности.

Примечание: а) В случае возникновения пузырьков при наклейке слоев сушки наклеенных слоев необходимо проводить при температуре 9—10° С.

б) Во всех растворах бесподложечные слои помещаются горизонтально в специальных кольцах, размер которых на 25—30% больше размера эмульсионных слоев. Начиная со стоп-ванны, слои находятся в кольцах большего размера (размер кольца на 50—60% больше размера слоя). Необходимо полное покрытие слоев раствором. Кюветы, в которых обрабатываются бесподложечные эмульсионные слои, должны быть изготовлены из нержавеющей стали марки IX18H9T.

Продолжительность различных стадий обработки в зависимости от толщины эмульсионного слоя

Порядковый номер	Продолжительность стадий обработки в минутах		Порядковый номер	Продолжительность стадий обработки в минутах	
	толщина слоя 400 микрон	толщина слоя 600 микрон		толщина слоя 400 микрон	толщина слоя 600 микрон
1	9	14	9	55	80
2	55	80	10	55	80
3	40—55	80	11	240	490
4	35	40	12	720	1080
5	1	1	13	90	150
6	55	50	14	50	80
7	1—2	1—2	15	50	80
8	До момента просветления плюс половина времени просветления		16	До принятия первоначального размера	

Примечание: Для уменьшения величины деформации следует избегать прикосновений к бесподложечным слоям в процессе фотографической обработки. Снятие черного налета с зеркальной стороны бесподложечного слоя производится после сушки слоя. Для этого слой необходимо наклеивать зеркальной стороной вверх.

9. Свойства фотоматериалов типа Р

На данной ступени развития техники изготовления фотоматериалов воспроизводимость фотослоев самых разнообразных сортов и назначений далеко не постоянна. Для количественных измерений с помощью фотоме-

тогда для каждого номера эмульсии необходимо получение кривой почернения или же кривой плотности зерен в следах заряженных частиц.

Элементарный состав любых фотослоев также подвержен колебаниям в небольших пределах вследствие возможных потерь галоидного серебра и желатины и изменения соотношения между ними. Влажность эмульсионных слоев не поддается достаточно строгой нормализации. Летучесть некоторых веществ, например пластификаторов, может вносить какие-либо изменения в количественный состав эмульсии. Наконец, у любой эмульсии в процессе ее хранения несколько изменяются физико-механические и фотографические свойства. Было бы элементарной ошибкой руководствоваться при применении любого типа эмульсии стандартными цифрами или кривыми, но каждый отдельный номер эмульсии должен

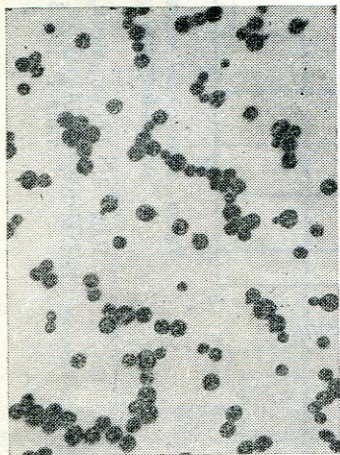


Рис. 1. Микрофотография непроявленных зерен галоидного серебра эмульсии типа *P*.

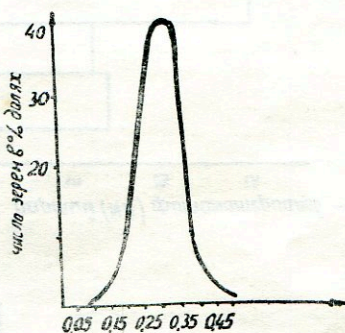


Рис. 2. Кривая распределения непроявленных зерен галоидного серебра эмульсии типа *P* по размерам.

иметь постоянные показатели от пластинки к пластинке. Ниже приводятся данные по свойствам фотоматериалов типа *P* (материалы выпуска 1956 года) в виде гистограммы, отражающих реальную степень воспроизводимости этого сорта.

Постоянными свойствами, практически полностью воспроизводимыми в пределах ошибок измерений, являются гранулометрические свойства эмульсии типа *P*: средний диаметр непроявленного микрокристалла — 0,28 микрона и распределение микрокристаллов по размерам (см. рис. 1 и 2). Размеры проявленных микрокристаллов в довольно заметной степени подвержены колебаниям вследствие колебаний самого процесса проявления и влияния коллоидно-защитных свойств желатиновых оболочек эмульсионных микрокристаллов на характер проявления.

При оценке степени воспроизводимости фотографических свойств эмульсий типа *P* следует учитывать то обстоятельство, что годной эмульсией типа *P* считается эмульсия, дающая плотность следа релятивистской однозарядной частицы не менее 30 зерен на 100 микрон. Однако наличие более высокой чувствительности всегда рассматривается как преимущество эмульсии. Поэтому до сих пор не предпринимались ника-

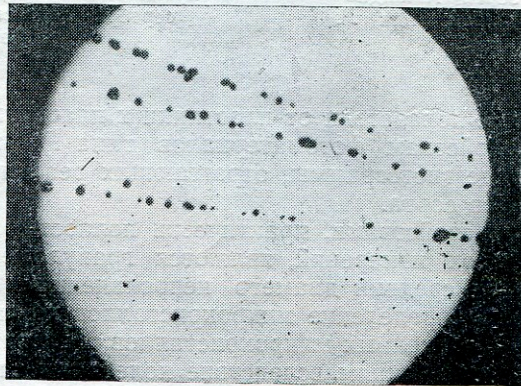


Рис. 3. Следы релятивистских электронов на пластинках типа Р
Увеличение 1280х.

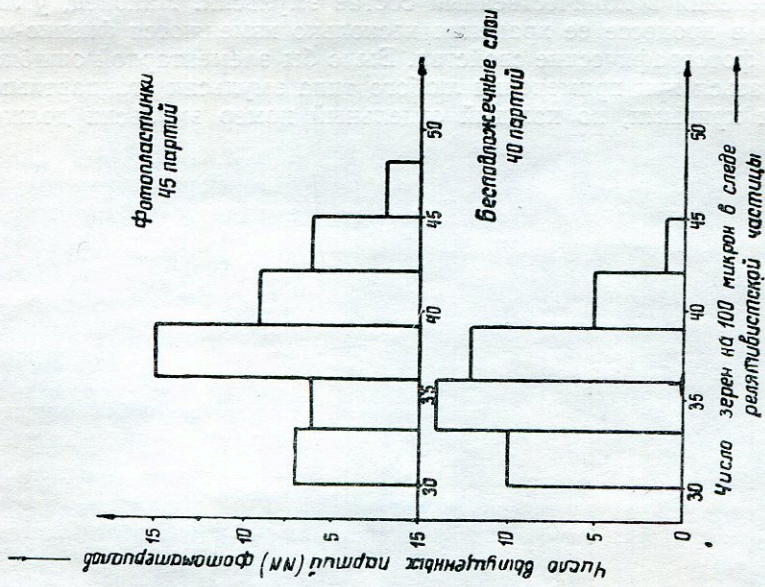


Рис. 4. Гистограммы значений чувствительности 85-ти фотослоев типа Р (1956 г.)

кие меры по стандартизации чувствительности за счет ее уменьшения для высокочувствительных эмульсий. Следы релятивистских электронов на пластинках типа *P* показаны на рис. 3.

На рис. 4 приведены гистограммы значений чувствительности 85 фотослоев типа *P* 1956 года (фотопластинки и бесподложечные слои). Среднее значение вуали за второе полугодие 1956 года — 3,7 зерен на 1000 куб. микрон.

Существенным показателем в отношении степени стандартности свойств ядерной эмульсии является концентрация галоидного серебра в сухом слое, что определяет тормозную способность. Значения этой величины для эмульсий типа *P* 1956 года приведены на гистограмме рис. 5. Если сравнить результаты, полученные для типа *P* (рис. 5), с результа-

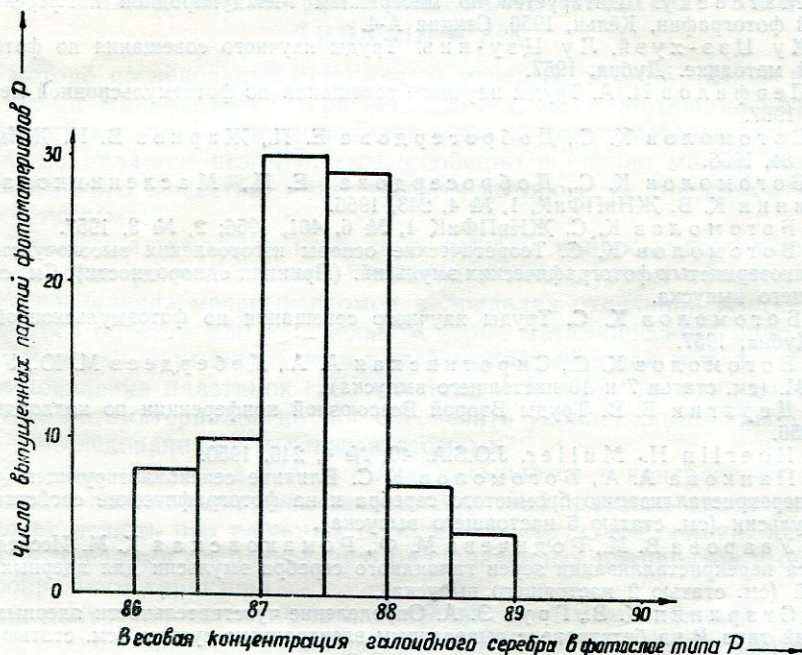


Рис. 5. Гистограммы значений концентрации галоидного серебра эмульсии типа *P* (1956 г.).

тами определения концентрации галоидного серебра в фотослоях типов *A-2*, *Я-2* и *K*, получаемых с применением сульфатного метода¹³, то относительное постоянство состава эмульсии типа *P*, выявляется с достаточной очевидностью. Это является одним из преимуществ метода тонкослойной сепарации по сравнению с сульфатным методом осаждения твердой фазы эмульсии.

Из-за накопления электронного фона гарантийный срок сохраняемости эмульсии типа *P* составляет всего два месяца. За это время при хранении в комнатных условиях чувствительность эмульсии типа *P* уменьшается на 15%. Фотографическая вуаль при этом не увеличивается. Рекомендуется хранение необлученных и особенно облученных слоев при пониженной температуре.

Плотность следов релятивистских частиц при хранении облученных фотослоев типа *P* в плотно закрытом эксикаторе при +4° за 15 дней уменьшается не более чем на 10%.

Средняя величина искажений в бесподложечных слоях толщиной 400 микрон составляет 50 ковансов.

Кроме производственного выпуска фотоматериалов типа *P*, в лабораторных условиях изготавливаются различные экспериментальные варианты этого сорта, в том числе эмульсии с повышенной чувствительностью и эмульсии для облучения при низких температурах¹⁹.

ЛИТЕРАТУРА

1. Bergman R. W. Nature 162, 992, 1948.
2. Ilford Research Laboratories Technical Note, 1/VIII, 1949. Цитируется по диссертации Ж. Блюма, Парижский университет, 1954.
3. Halg W., Jenny L. Helv. Phys. Acta, 21, 131, 1948.
4. Demers P. Canadian Journ. of Physics, 32, № 8, 538, 1954.
5. Магсоку. Цитируется по материалам Международной конференции по научной фотографии, Кельн, 1956, Секция А-4.
6. Ху Цзэ-хуэй, Лу Цзу-инь. Труды научного совещания по фотоэмульсионной методике. Дубна, 1957.
7. Перфилов Н. А. Труды научного совещания по фотоэмульсионной методике. Дубна, 1957.
8. Богомолов К. С., Добросердова Е. П., Жарков В. Н. ЖНиПФиК, 1, № 2, 84, 1956.
9. Богомолов К. С., Добросердова Е. П., Масленникова Н. В., Старинин К. В. ЖНиПФиК, 1, № 4, 243, 1956.
10. Богомолов К. С. ЖНиПФиК 1, № 6, 401, 1956; 2, № 3, 1957.
11. Богомолов К. С. Теоретические основы изготовления высокочувствительных мелкозернистых фотографических эмульсий. (Принцип однородности). См. статью 1 настоящего выпуска.
12. Богомолов К. С. Труды научного совещания по фотоэмульсионной методике. Дубна, 1957.
13. Богомолов К. С., Сиротинская А. А., Дебердеев М. Ю., Уварова В. М. (см. статьи 7 и 10 настоящего выпуска).
14. Дерягин Б. В. Труды Второй Всесоюзной конференции по коллоидной химии, 1956.
15. Hoeglin H. Muller. J.O.S.A. 40, № 4, 246, 1950.
16. Панкова А. А., Богомолов К. С. Влияние сенсibiliзирующего раствора на перекристаллизацию бромистого серебра и на фотографические свойства ядерной эмульсии (см. статью 6 настоящего выпуска).
17. Уварова В. М., Родичева М. Ф., Романовская К. М. Исследование процесса перекристаллизации зерен галоидного серебра эмульсии для ядерных исследований (см. статью 2 настоящего выпуска).
18. Старинин К. В., Груз Э. А. Определение чувствительности ядерных фотоэмульсий типа *P* на бетатроне с выведенным электронным пучком (см. статью 12 настоящего выпуска).
19. Богомолов К. С., Разоренова И. Ф., Сиротинская А. А. Труды научного совещания по фотоэмульсионной методике. Дубна, 1957.

К. С. БОГОМОЛОВ, М. Ю. ДЕБЕРДЕЕВ, А. А. СИРОТИНСКАЯ,
В. М. УВАРОВА

ФОТОМАТЕРИАЛЫ ДЛЯ МИКРОАВТОРАДИОГРАФИИ ТИПА *МР* И *МК*

В методе исследования с помощью меченых атомов особо важную роль играет микроавторадиография. Метод микроавторадиографии во многих случаях не только дополняет электрические методы регистрации частиц, но является незаменимым, особенно в случае малых количеств радиоактивного вещества, интенсивность которого не поддается измерению счетчиками.

Микроавторадиография позволяет решать вопросы количественного распределения радиоактивного вещества в исследуемом объекте, например распределение меченых атомов в пределах отдельной клетки гистологического объекта или в отдельном зерне металлического сплава, распределение радиоактивного вещества в горных породах и т. д.

До появления пластинок НИКФИ типа *МК* и *МР* ни один сорт отечественных фотоматериалов не мог обеспечить удовлетворительных результатов в исследованиях с мечеными атомами.

Фотоматериалы типа *МК* и *МР* используются в контрастной авторадиографии, обеспечивая возможность 300—500-кратного увеличения, что позволяет решать ряд сложных проблем по структуре сплава, диффузии и количественному распределению радиоактивных препаратов в объектах разнообразного характера.

Для получения автографов с более высокой разрешающей способностью в радиографической лаборатории НИКФИ разработан метод нанесения жидкой эмульсии на геологические шлифы и поверхность металлических сплавов, а также фотоматериалы со съемным слоем. В этих случаях возможность увеличения автографов сильно возрастает, достигая 800—1000х.

1. ХАРАКТЕРИСТИКИ ФОТОМАТЕРИАЛОВ ТИПА *МК* И ТИПА *МР*

Фотоматериалы типа *МК* и типа *МР* применяются для контрастной авторадиографии. В контрастной авторадиографии анализ распределения и количества радиоактивного препарата в исследуемом образце производится на основании измерения оптической плотности почернения фотослоя. Для получения оптимальной разрешающей способности метод контрастной авторадиографии требует тонких эмульсионных слоев, порядка 5—10 микрон. Чувствительность таких фотослоев определяется не только тем, что отдельные зерна галоидного серебра обладают высокой чувствительностью к радиоактивному излучению, но и высокой концентрацией галоидного серебра в слое, порядка 85—86%. Характерной особенностью таких фотоматериалов является однородность зерен галоидного серебра по своим размерам и форме. Эмульсия пластинок типа *МК* в толстом слое может регистрировать следы электронов до 200 кэв. Эмульсия пластинок типа *МР* чувствительна ко всем ионизирующим частицам любых энергий.

Характеристики фотоматериалов типа МК и типа МР

Тип фотоматериала	Предельная толщина слоя в микронах	Концентрация галоидного серебра в слое в %/0/0	Средний диаметр непроявленного зерна в микронах	Средний диаметр проявленного зерна в микронах	Предельная чувствительность к электронам	Возможное увеличение автографа (на фото-пластинках)
МК	5—7	83—85	0,15	0,35—0,40	до 200 кэв	200—300 раз
МР	5—7	85—86	0,30	0,50	частицы любых энергий	" " "

1. Условия применения пластинок типа МР и типа МК

а) Влияние механического воздействия

В связи с тем, что эмульсионный слой данных пластинок содержит большое количество галоидного серебра и незначительную концентрацию желатины, всякое механическое воздействие вызывает повреждение его поверхности. Места повреждений после проявления пластинок выглядят как черные полосы, разводы и т. п. Характер почернений поверхности зависит от вида воздействия. Царапины образуют черные полосы. Трение эмульсионной поверхности при резке пластинок о бархат столика (для резки) вызывает образование черных разводов по всей поверхности эмульсионного слоя. Выступы частей поверхности исследуемого образца вызывают дополнительные почернения эмульсионного слоя в этих местах. Поэтому особенно важно тщательно полировать поверхность исследуемого объекта.

б) Влияние лабораторного освещения

Так как данные пластинки чувствительны к синему свету, то при работе с ними необходимо применять светофильтры определенной спектральной характеристики. Неактивными светофильтрами для указанных пластинок являются желто-зеленые светофильтры типа Агфа №№ 118 и 117. Если при работе данные условия не будут соблюдаться, возможна оптическая засветка зерен галоидного серебра поверхности эмульсионного слоя, которая будет ухудшать контрастность изображения.

2. Условия экспонирования

а) Совмещение исследуемого образца с поверхностью эмульсионного слоя

Для получения снимков с высокой разрешающей способностью прежде всего необходимо хорошее совмещение поверхности исследуемого образца с поверхностью эмульсионного слоя. Это достигается, с одной стороны, тщательной полировкой поверхности образца (выступы и впадины на радиоактивном образце вызывают дополнительное почернение слоя — псевдоэффекты), а с другой стороны, плотным прижатием образца к поверхности эмульсионного слоя.

В случае тонких объектов для создания прочного контакта образец и пластинка зажимаются в зажимные кассеты. При массивных металлических образцах хороший контакт обеспечивается весом самого образца. Во всех случаях следует избегать чрезмерного давления, так как это приводит к почернению эмульсии при обработке.

б) Влияние влажности

Перед совмещением эмульсионной поверхности с образцом последний необходимо тщательно высушить, что предотвращает взаимодействие образца (полированного шлифа, металлического сплава и др.) с галоидным серебром эмульсии.

в) Влияние регрессии

В случае длительных экспозиций возникает вопрос о регрессии скрытого изображения. Как известно, процесс регрессии ускоряется при увеличении влажности и повышении температуры. Во избежание этого явления пластинки необходимо экспонировать при низкой температуре (10—12°), в сухом воздухе и при нормальном атмосферном давлении, что достигается хранением пластинок в эксикаторах, помещенных в холодильник.

г) Время экспозиции

Продолжительность экспонирования устанавливается в зависимости от интенсивности радиоактивного препарата.

д) Контрольный образец

Одновременно с радиоактивным образцом экспонируется аналогичный нерадиоактивный образец, являющийся контрольным для каждого опыта.

е) Проверка качества фотопластинок

Для контроля фотосвойств применяемых фотоматериалов необходимо одновременно с экспонированными пластинками обрабатывать необлученную пластинку. На этой пластинке должна измеряться величина оптической плотности вуали. Такой контроль особенно необходимо применять при работе с пластинками с большим сроком хранения. Накопившийся на пластинках фон медленных электронов может ввести экспериментаторов в заблуждение при расшифровке микроструктуры автографа. Сопоставление контрольной пластинки с автографом вносит ясность в анализ автографа.

3. Методика обработки экспонированных пластинок типа МК и типа МР

Большое значение при обработке снимков радиоактивных препаратов имеет чистота реактивов. Все растворы необходимо готовить на дистиллированной воде и тщательно их фильтровать. Это обусловлено тем, что автографы просматриваются под микроскопом, и поэтому грязь, неотмытый гипосульфит и т. п. снижают качество изображения. Лучшие результаты достигаются при проявлении пластинок в амидоловом проявителе следующего состава:

Амидол	3 г
Сульфит б/в	12 г
Вода	до 1 литра

Примечание: Амидоловые проявители быстро окисляются, поэтому их нужно готовить в небольших количествах непосредственно перед проявлением.

Кроме амидолового проявителя можно пользоваться метолгидрохиновым проявителем следующего состава:

Вода дистиллированная	до 1 литра
Метол	— 2 г
Сульфит б/в	— 75 г
Гидрохинон	— 8 г
Сода б/в	— 40 г
Бромистый калий	— 5 г

Перед употреблением проявитель разбавляется в отношении 1 : 2.

Режим обработки

- 1) Пропитка дистиллированной водой при температуре 18—20° С в течение 3-х минут.
- 2) Проявление в амидоловом проявителе при температуре 18—20° С в течение 3-х минут.
- 3) Ополаскивание в дистиллированной воде — 30 секунд.
- 4) Стоп-ванна — 1% -ный раствор уксусной кислоты, при температуре 13—15° С в течение 3-х минут.
- 5) Ополаскивание в дистиллированной воде — 30 секунд.
- 6) Фиксирование в 40%-ном растворе гипосульфита при температуре 13—15° С. Продолжительность стадии фиксирования определяется временем просветления (примерно 20—25 минут).
- 7) Промывка декантацией. Первые сливы проводятся хорошо фильтрованной водопроводной водой, а последние сливы — дистиллированной водой. Время промывки равно времени фиксирования.
- 8) Сушка обработанных пластинок производится в обеспыленном помещении без потока воздуха. Вместо воздушной сушки можно применять спиртовую. Концентрация раствора спирта постепенно возрастает от 25% до 75—90%. Для придания слоям необходимой эластичности в раствор спирта добавляют глицерин. (До двухпроцентного раствора глицерина).

4. Хранение пластинок

Пластинки должны храниться в сухом хорошо вентилируемом помещении при температуре, не превышающей 18° С.

Пластинка типа *МР* и типа *МК*, чувствительные к электронам, непрерывно регистрируют космические и радиоактивные излучения, набирая фон медленных электронов. Срок годности пластинок типа *МР* определен продолжительностью в 2 месяца, после чего пластинки из-за большого электронного фона уже непригодны к применению для исследования микроструктур. Для характеристики макроструктуры эти пластинки могут использоваться и с большим сроком хранения. Срок годности пластинок типа *МК* (менее чувствительных) — 6 месяцев. Для уменьшения скорости накопления фона медленных электронов фотоматериалы *МК* и *МР* рекомендуется хранить в свинцовых домиках. Такое хранение удлиняет гарантируемый срок жизни этих фотоматериалов.

II. ФОТОСЛОИ ДЛЯ РАДИОГРАФИИ НА ГИБКОЙ ПОДЛОЖКЕ

Для обеспечения более тесного контакта радиоактивного образца с эмульсионной поверхностью разработаны фотоматериалы типа *МК* и типа *МР* на гибкой подложке, дающие возможность увеличения автографа до 500 раз.

Режим обработки материалов на гибкой подложке аналогичен режиму для пластинок типа *МК* и *МР* (см. стр. 89). Для равномерного проявления всей поверхности пленку перед обработкой необходимо закрепить на стекле, что осуществляется закреплением краев пленки тонкими круглыми резинками.

III. МЕТОДИКА НАНЕСЕНИЯ ЭМУЛЬСИОННОГО СЛОЯ НА ГЕОЛОГИЧЕСКИЕ ШЛИФЫ, МЕТАЛЛОГРАФИЧЕСКИЕ ПРЕПАРАТЫ И ГИСТОЛОГИЧЕСКИЕ СРЕЗЫ

При использовании пластинок как для следовой, так и контрастной автордиографии, не всегда удается получить тесный контакт поверхности шлифа горной породы, гистологического препарата или металлогра-

фического образца с поверхностью эмульсионного слоя. В некоторых случаях остается незначительная прослойка воздуха, влияющая на разрешающую способность и контрастность автографа.

Кроме того, при исследовании автографов часто необходимо знать, как распределяется радиоактивное вещество в изучаемом объекте.

Для того, чтобы это установить, автограф (обработанную пластинку) совмещают с исследуемым объектом под микроскопом. Методы совмещения разнообразны (засветка контура в случае непрозрачного шлифа, координатный метод и др.), но все они чрезвычайно кропотливы и не обеспечивают достаточно точного совмещения.

Для создания наиболее тесного контакта между радиоактивным излучателем и поверхностью эмульсии, в радиографической лаборатории НИКФИ был разработан метод нанесения жидкой эмульсии на поверхность исследуемого образца, дающий возможность одновременного просмотра автографа и исследуемого образца и обеспечивающий увеличение автографа до 800—1000 раз.

а) Подготовка поверхности шлифов

Чтобы обеспечить держание эмульсионного слоя на поверхности объекта, необходимо нанести специальный подслоя следующего состава:

1. Вода90 мл
2. Желатина	0,33 г
3. Квасцы хромовые 3%	2,5 мл
4. 3%-ный спиртовой раствор тимо- ла10 мл

Предварительно при температуре 35° в воде плавится желатина, и медленно при перемешивании вводятся квасцы, а затем раствор тимола. Раствор подслоя длительного хранения не выдерживает и потому готовится в небольшом количестве непосредственно перед работой.

Приготовленный подслоя фильтруется через бумажный фильтр.

б) Нанесение подслоя на поверхность шлифа

Подслоя должен наноситься на шлифы при температуре 25—27° С. Нанесение производится методом купания. Шлиф после купания в подслоя сушится в вертикальном положении. Операция нанесения подслоя на шлифы производится дважды. Толщина подслоя незначительна, порядка 1—2 микрон.

в) Подготовка эмульсии к поливу

Для предотвращения набухания эмульсионного слоя при обработке необходимо эмульсию перед нанесением на шлиф или гистологический срез задубить, что обеспечивается введением соответствующих добавок: смеси спирта с глицерином (3 : 1) и смеси хромацетата с раствором соды. Эмульсия плавится в водяной бане (температура 40° С) при медленном перемешивании. Добавки вводятся в определенной последовательности: сначала смесь спиртового раствора тимола с глицерином, смачиватель, а затем дубитель. Дубитель вводится по каплям, при непрерывном перемешивании. На 100 мл эмульсии необходимо ввести 4 мл смеси спирта с глицерином и 6,5 мл дубящей смеси.

г) Запасные растворы дубителя

а) Na ₂ CO ₃ (б/в)	4%-ный раствор;
б) ацетатхром	10%-ный раствор.

Перед введением в эмульсию в отношении 1 : 1 готовится смесь растворов «а» и «б», которая в 6 раз разбавляется дистиллированной водой.

Смачиватель вводится в эмульсию в виде 4%-ного раствора в количестве 1 мл на 100 мл эмульсии.

После введения добавок эмульсия разбавляется в отношении 1:1 дистиллированной водой комнатной температуры (в дистиллированную воду вводится 2 мл — 10%-ного раствора бромистого калия на 1 литр воды), а затем фильтруется через слой батиста, смоченного дистиллированной водой. В связи с тем, что разбавленная эмульсия хранится меньше, для полива приготавливается небольшое количество разбавленной эмульсии. Оставшаяся часть эмульсии хранится в холодильнике.

Эмульсия на исследуемый образец наносится методом купания в разбавленном растворе эмульсии. Если толщина получаемого эмульсионного слоя после однократного купания недостаточна, то операция купания образца повторяется. Температура эмульсии перед поливом 30—35° С. В случае следовой автордиографии неразбавленная эмульсия наносится на образец толстым слоем.

Нанесение эмульсии на поверхность шлифа производится каплями при помощи стеклянной палочки, которой и разравнивается эмульсия на шлифе после полива. Пользоваться пипеткой довольно трудно из-за большой вязкости эмульсии. На площадь 5 см² требуется нанести 4—5 капель эмульсии для получения 30—35 микрон сухого эмульсионного слоя. Студенение эмульсионного слоя происходит в течение 20—30 минут, после чего образец с нанесенным эмульсионным слоем помещается в сушильный шкаф.

д) Сушка эмульсионного слоя

Образец с нанесенным эмульсионным слоем сушится в сушильном шкафу при движении воздуха со скоростью 0,5 м/сек и температуре 18—20° С. Для обеспечения чистоты воздуха на его пути помещается марлевый фильтр, смоченный в глицерине. Продолжительность сушки эмульсионного слоя — 2—3 часа.

е) Экспозиция

После сушки образец с нанесенным эмульсионным слоем помещают на экспозицию в эксикатор для обеспечения постоянной влажности эмульсионного слоя. Время экспозиции определяется в зависимости от интенсивности испытываемого образца.

ж) Методика обработки эмульсионного слоя, нанесенного на образец

Режим обработки эмульсионного слоя, нанесенного на образец аналогичен режиму для фотоматериалов МК и МР (см. стр. 89). В случае нанесения эмульсии достаточно толстым слоем продолжительность стадий обработки соответственно увеличивается.

IV. ФОТОМАТЕРИАЛЫ СО СЪЕМНЫМ СЛОЕМ

В радиографической лаборатории НИКФИ разработан метод изготовления съемных слоев. Применение съемного слоя облегчает работу экспериментаторов и позволяет широко использовать метод автордиографии в различных областях науки и техники.

Съемный слой обеспечивает хороший контакт поверхности исследуемого образца с эмульсионным слоем и позволяет производить одновременное исследование автографа и радиоактивной поверхности. Для автордиографии горных пород, т. е. в случае «следовой» автордиографии, требуется толщина эмульсионного слоя, порядка 50 микрон (в расчете на сухой слой).

Для автордиографии контрастной (по почернению), когда требуется высокая разрешающая способность, наоборот, необходимы тонкие эмульсионные слои, порядка 5—10 микрон (в расчете на сухой слой).

Сухой эмульсионный слой осторожно разрезается ножницами на кусочки требуемого формата и опускается в ванну 0,2% КВг с 2%-ным раствором глицерина (желатиновой стороной кверху). Под кусочек эмульсионного слоя, находящегося на поверхности раствора, осторожно подводится исследуемый образец, который вместе с эмульсионным слоем вынимается из раствора. Эмульсионный слой тщательно разравнивается и прижимается пальцами к поверхности образца для удаления пузырьков воздуха. Съемный слой не должен долго находиться в растворе глицерина.

Образец с нанесенным эмульсионным слоем помещается в сушильный шкаф. Высушенные образцы на время экспозиции рекомендуется помещать в эксикаторы и хранить при температуре не выше 18° для обеспечения постоянной влажности в эмульсионном слое. Лучшее совмещение поверхности исследуемого образца с эмульсией и большая прочность эмульсионного слоя при обработке обеспечивается нанесением съемных слоев больших размеров, чем поверхность исследуемого образца. В этом случае эмульсионный слой «обволакивает» боковые стороны образца.

Если происходит взаимодействие поверхности исследуемого образца с эмульсионным слоем, на поверхность образца необходимо нанести тонкий слой защитного лака. Хорошие результаты достигаются (в случае металлических препаратов) при нанесении на поверхность сапонового лака (по рекомендации М. А. Студница). Одна часть сапонового лака растворяется в пяти частях амилацетата. Нанесение защитного слоя производится методом купания образцов в указанном растворе.

К. В. СТАРИНИН

ПРИМЕНЕНИЕ РАДИОАКТИВНЫХ ИЗОТОПОВ ДЛЯ ОПРЕДЕЛЕНИЯ ЧУВСТВИТЕЛЬНОСТИ ФОТОПЛАСТИНОК, РЕГИСТРИРУЮЩИХ ЗАРЯЖЕННЫЕ ЧАСТИЦЫ С МИНИМАЛЬНОЙ ИОНИЗИРУЮЩЕЙ СПОСОБНОСТЬЮ

Постановка опыта

Целью настоящей работы явилось выяснение возможности применения электронов искусственно-радиоактивных β -излучателей (с энергиями до 3 мэв) при определении чувствительности эмульсий, предназначенных для регистрации заряженных частиц с минимальной ионизирующей способностью (фотопластинки типа *P*). Чувствительность характеризуется числом зерен на 100 микрон следа частицы с минимальной ионизацией. Для выделения из β -спектра радиоактивного источника электронов требуемого интервала энергий использовался бета-спектрограф с короткой магнитной линзой (магнитный сенситометр МС-1).

Примененный спектрограф обладал малой разрешающей способностью. Полуширина *F* — линии ThВ, по которой производилась энергетическая градуировка, равна $\sim 10\%$. Градуировка была проверена по верхней границе β -спектра P^{32} (путем построения графика Ферми) и по *K* — линии фотоэлектронов аннигиляционного γ — излучения Cu^{64} в свинце. Результаты проверки совпали с градуировочной кривой в пределах разрешающей способности.

Расходящийся электронный пучок источника, ограниченный диафрагмой, фокусировался на фотопластинке с помощью катушки с током (магнитной линзы), расположенной посредине между источником и фотопластинкой. При расстоянии источник-пластинка, равном — 130 см, и внешнем диаметре центральной кольцевой диафрагмы 7,6 см на пластинку падает слабо сходящийся электронный пучок. Облучаемая пластинка помещается под небольшим углом к оси прибора для того, чтобы электроны падали на пластинку почти параллельно эмульсионному слою. Питанию катушки осуществляется с помощью аккумуляторной батареи.

При выборе радиоактивного источника электронов к нему предъявляются следующие требования. Энергия испускаемых электронов должна быть не ниже минимума ионизационных потерь электрона (~ 1 мэв), а изотоп должен быть достаточно долгоживущим. Кроме того, желательно также отсутствие γ -излучения. Вначале в качестве такого источника применялся радиоактивный изотоп фосфора P^{32} , имеющий верхнюю границу β -спектра 1,7 мэв период полураспада 14,3 дня и не испускающий γ -лучей. Источники готовились из порошка радиоактивного красного фосфора путем нанесения его на алюминиевый держатель и закрепления на нем с помощью клея БФ.

Облучение пластинок электронами с энергией 1,5 мэв. Источник P^{32}

В опытах по облучению пластинок электронами P^{32} фокусирующий ток в катушке был равен 7,5 а, что соответствует энергии падающих электронов $\sim 1,5$ мэв. Это практически наиболее высокая энергия, которой можно пользоваться при данной светосиле прибора, данном источнике и активности препаратов 3—10 т Си. Электроны меньших энергий имеют больший угол многократного рассеяния в эмульсии, поэтому их следы неудобны для измерений. Эти опыты показали, что после облучения и проявления в пластинках, как правило, не наблюдаются следы электро-

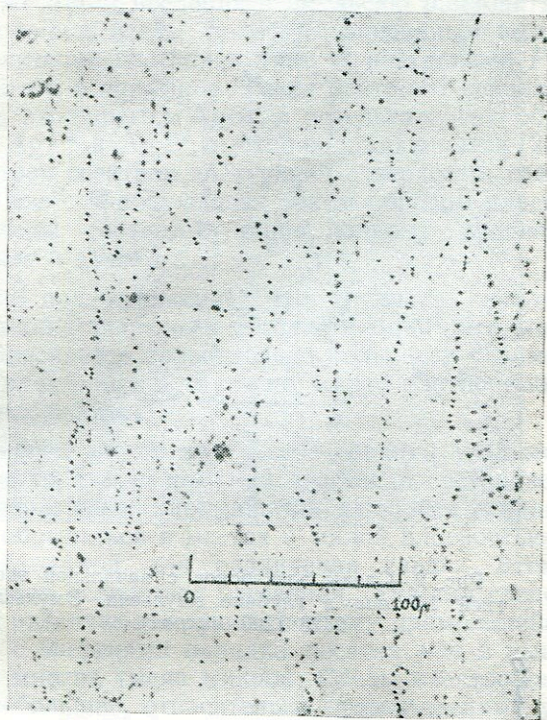


Рис. 1. Следы электронов с начальной энергией 1,5 мэв на поверхности эмульсий. Эмульсия 2528 (200 микрон).

нов, соответствующих полному их пробегу, от входа в эмульсию до места остановки.

В эмульсии наблюдаются относительно прямолинейные и более изогнутые отрезки следов, а в слоях, прилегающих к поверхности, наблюдаются более или менее прямолинейные отрезки и видна их направленность, соответствующая направлению пучка электронов. В более глубоких слоях больше искривленных следов. Это объясняется тем, что электроны входят в эмульсионный слой под небольшим углом и, проникая затем в глубину, тормозятся и рассеиваются. Средняя длина прямолинейных участков электронных следов: 150—200 микрон, а максимальная длина этих следов — 700—750 микрон.

На рис. 1 и 2 представлены микрофотографии электронных следов, наблюдаемые на пластинках, облученных P^{32} . Масштаб фотографий указан на снимках.

Представление о распределении длин следов, облученных P^{32} , дает рис. 3. Здесь по оси абсцисс отложена длина следов, измеренных в интервалах по 100 микрон окулярной шкалы, а по оси ординат — число следов

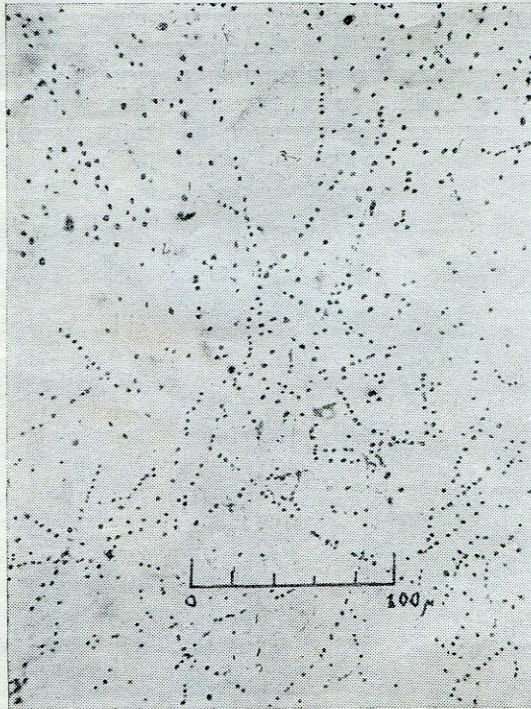


Рис. 2. Следы электронов с начальной энергией 1,5 мэв в глубине эмульсии. Эмульсия 2528 (200 микрон).

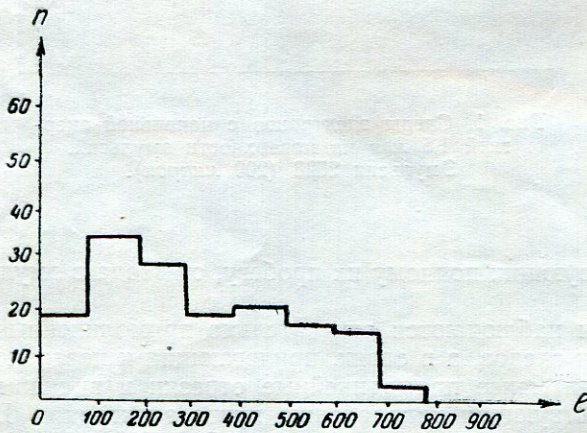


Рис. 3. Распределение длин следов. Эмульсия 2552 (400 микрон).

в данном интервале длин. Так как в пластинках имеется некоторый фон медленных электронов, то его приходилось исключать из общего распределения путем учета числа следов электронов фона на необлученной части пластинки.

Подобную же картину дают измерения длин следов на других пластинках. Интересно сравнить эти данные о следах электронов с величиной полного пробега электрона в эмульсии. Для сравнения укажем, что вычисленный для эмульсии с 85%-ным содержанием AgBr пробег электрона с энергией 1,5 мэв составляет 2600 микрон. Таким образом, наблюдаемые в фотопластинках следы составляют лишь небольшую часть их полного пробега. Отсутствие в литературе экспериментальных данных по зависимости пробег-энергия для электронов в эмульсии в широких пределах энергии служит косвенным подтверждением этого факта. (Экспериментальные данные имеются до энергии 250 кэв).

В опытах по облучению пластинок препаратом P^{32} путем прямого контакта, а также путем введения в эмульсию радиоактивного раствора Na_2HPO_4 наблюдались следы, подобные описанным выше. Кроме того, проводилось облучение пластинок типа P нейтронами $Po - Be$ — источника, замедленными в парафине. Такие нейтроны хорошо захватываются ядрами серебра, входящего в AgBr, в результате чего образуются радиоактивные ядра Ag^{108} и Ag^{110} , быстро распадающиеся (2,3 мин. 24,2 сек.) с испусканием трех спектров электронов с верхними границами 1,5 мэв, 2,24 мэв и 2,82 мэв¹. В облученных таким образом пластинках также не наблюдались следы, соответствующие полностью пробегу электронов с энергиями ~ 1 мэв и выше.

Было сделано предположение, что трудность наблюдения полного пробега электронов с энергиями в области минимума ионизационных потерь и выше объясняется сравнительно большими углами многократного рассеяния этих электронов в эмульсии, малой плотностью следов и флюктуациями этой плотности.

Так, при энергии электрона 1,5 мэв средний угол между последовательными 100 микронными хордами его следа составляет около 14 градусов. Следы, образуемые электронами, дающими минимальные потери энергии, могут обрываться в местах с малой плотностью зерен, меньшей плотности, необходимой для различения следа. Этому способствует искривление следов вследствие рассеяния. Участки следов с малыми углами рассеяния различаются лучше, поэтому прямолинейные участки следов электронов с энергиями порядка десятка мэв и выше наблюдаются на протяжении многих тысяч микрон. Следы электронов с $E = 1,5$ мэв, также имеют небольшие, относительно прямолинейные участки, которые можно использовать для счета зерен (см. рис. 1).

Плотность зерен в следах электронов, полученных от P^{32} на спектрографе, контролировалась путем сравнения с плотностями, полученными в результате облучения фотопластинок на синхротроне с энергией γ — лучей 30 мэв*.

В пластинках, облученных таким образом, плотность определялась путем счета зерен в последовательных участках следа, длиной 60 микрон, на 10 следах, длиной 1000 микрон, откуда вычислялась средняя плотность, приведенная к 100 микронам. На пластинках, облученных P^{32} , для подсчета выбирались прямолинейные отрезки длиной 100—250 микрон, с расчетом, чтобы их общая длина, как и в первом случае, составляла 10 000 микрон.

Результаты определения чувствительности пластинок на спектрографе с помощью P^{32} , по сравнению с чувствительностью, полученной на следах электронов высоких энергий, приведены в таблице 1.

* Физический институт Академии наук.

Плотность следов электронов на пластинках, облученных на спектрографе (источник P^{32} энергия 1,5 мэв) и электронами высоких энергий

№№ полива	Толщина (в микронах)	Плотность — d (число зерен) 100 микрон		Длина прямолинейного участка для МС-1 (микрон L)
		Высокие энергии	Энергия 1,5 мэв	
2518	200	21,2	28,8	181
2522	200	27,2	25,5	194
2523	200	26,7	27,3	181
2528	200	33,5	27,9	173
2529	200	23,7	28,3	163
2551	400	26,1	29,3	170
2552	400	25,4	28,6	144
2565	400	25,1	30,7	134
2571	400	20,2	29,6	123
2573	400	24,7	31,9	151

$(d_{1,5} - d_{выс})_{ср} = + 3,4$ зерна/100 μ ; $L_{ср} \sim 170 \mu$. Пробег электрона с $E = 1,5$ мэв в эмульсии R равен 2600 микрон.

Из этих данных видно, что плотности от МС-1, как правило, выше, чем от электронов высоких энергий. В двух случаях они ниже. Это объясняется за счет некоторой разницы в условиях проявления этих пластинок, что является недостатком этих опытов. Однако, несмотря на это, преобладающее число плотностей для МС-1 выше, чем в другом случае. Это, по-видимому, объясняется небольшой длиной прямолинейных участков электронных следов, вследствие чего просчитываются, главным образом, более плотные участки. Разница в энергиях электронов не может объяснить факт больших плотностей при энергии 1,5 мэв, так как замедленные эмульсией электроны с энергиями меньше минимума ионизационных потерь (~ 1 мэв) имеют сравнительно большие углы рассеяния в эмульсии (угол между 100-микронными хордами следа электрона ~ 1 мэв около 20°)², а для просчета выбирались сравнительно прямолинейные участки следов электронов, энергия которых заведомо больше 1 мэв. Поэтому для облучения пластинок источник электронов P^{32} следовало сменить на источник с более высокой верхней границей бета-спектра. В качестве такого источника была выбрана цепочка изотопов $Ce^{144} \rightarrow Pr^{144}$.

Облучение электронами с энергией 2,5 мэв. Источник $Ce^{144} \rightarrow Pr^{144}$

Радиоактивный изотоп Ce^{144} испускает электроны невысоких энергий (2 бета-спектра с верхними границами: 0,3 мэв — 70% и 0,17 мэв — 30%). В качестве источника электронов для облучения пластинок использовался продукт его распада Pr^{144} , который испускает более 99% электронов в спектре с верхней границей 2,97 мэв. Так как период полураспада Ce^{144} составляет 275—290 дней, то, несмотря на малый период

Pr^{144} (17,5 мин.), жесткая бета-компонента источника (2,97 мэв) имеет ту же активность, что и мягкая. Ce^{144} испускает также гамма-кванты (30%), самые жесткие из которых обладают энергией 0,134 мэв. Pr^{144} испускают кванты с энергией до 2,18 мэв, но в малом количестве (2%)¹.

Раствор, содержащий соль Ce^{144} , наносился на держатель из нержавеющей стали (алюминий, из которого изготовлялись держатели для P^{32} , реагируют с раствором), выпаривался на нем, затем заливался клеем БФ и высушивался.

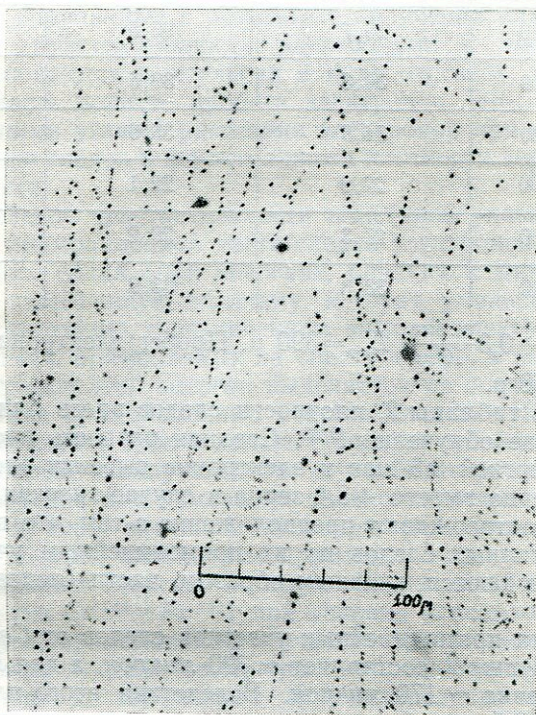


Рис. 4. Следы электронов с начальной энергией 2,5 мэв на поверхности эмульсии. Эмульсия 453(6); 100 микрон. Лабораторный полив.

Пластинки облучались электронами с энергией $\sim 2,5$ мэв, что соответствует фокусирующему току в катушке $\sim 12,5$ ампер.

Следы электронов, полученные от источника $Ce^{144} \rightarrow Pr^{144}$, имеют характер следов P^{32} . Разница состоит лишь в увеличении прямолинейного участка пробега электронов. На рис. 4 приведены микрофотографии следов от $Ce^{144} \rightarrow Pr^{144}$. Методика определения плотности следов была та же, что и в случае P^{32} .

Таблица 2 дает сравнение результатов облучения пластинок на спектрографе электронами с энергией 2,5 мэв и электронами высоких энергий.

В этих опытах пластинки, облученные двумя способами, проявлялись одновременно, что исключает разницу в плотностях следов за счет проявления.

Плотности следов электронов в пластинках, облученных на спектрографе (энергия 2,5 мэв, источник $Ce^{144} \rightarrow Pr^{144}$) и электронами высоких энергий

№№ поливов	Толщина (в микронах)	Плотность — d $\frac{(\text{число зерен})}{100 \text{ микрон}}$		Средняя длина прямолинейного участка на МС—1 (в микронах) L
		Высокие энергии	Энергия 2,5 мэв	
2634	400	27,7	27,6	360
2635	300	31,2	30,5	425
2636	200	25,7	96,5	331
2638	300	30,3	30,5	390
2640	100	34,5	35,9	417
2643	400	22,9	22,1	350
2644	300	27,3	29,2	376
2652	400	33,8	33,9	416

$(d_{1,5} - d_{выс})_{ср} = +0,3 \frac{\text{зерна}}{100\mu}$; $L_{ср} = 390 \mu$. Пробег электрона с $E = 2,5 \text{ мэв}$ в эмульсии $R = 4550 \mu$.

Как видно из таблицы 2, плотности следов здесь ближе к минимальным, чем в случае облучения P^{32} . Средняя разность плотностей следов электронов с энергией 3,5 мэв и электронов высоких энергий здесь составляет +0,3 зерна вместо +3,4 зерна в случае энергии 1,5 мэв.

Эти данные подтверждают предположение о том, что при определении плотности электронных следов по их прямолинейным участкам небольшой длины наблюдаются, главным образом, части следов с повышенной плотностью.

Средняя длина прямолинейных участков следов от $Ce^{144} \rightarrow Pr^{144}$, вычисленная из таблицы 2, составляет $\sim 390 \text{ микрон}$, а для P^{32} (таблица 1) средняя длина равна $\sim 170 \text{ микрон}$. Вследствие этого плотности следов электронов с $E = 2,5 \text{ мэв}$ ближе к плотности следов электронов высоких энергий, чем в случае энергии 1,5 мэв, хотя при дальнейшем увеличении энергии электронов можно добиться более удовлетворительного совпадения.

Применение других радиоактивных изотопов лимитируется ограниченной величиной верхней границы их β — спектров при достаточно большом периоде полураспада. Из известных в настоящее время долгоживущих β — излучателей, только $Rh^{106} \rightarrow Ru^{106}$ дает увеличение верхней границы β — спектра до 3,5 мэв¹ по сравнению с верхней $Pr^{144} \sim 3 \text{ мэв}$.

Другим существенным недостатком определения чувствительности пластинок с помощью электронов с энергиями до 2,5 мэв является то, что оно применимо лишь в тех случаях, когда используются пластинки со слоями не более 100 микрон. В случае более толстослойных пластинок имеется существенная разница в следах, лежащих в глубине эмульсии и в слоях, близких к ее поверхности. Как уже указывалось, с проникновением вглубь эмульсионного слоя электроны сильно рассеиваются, что делает затруднительным измерение их длин. Поэтому нельзя определить чувствительность в глубине толстых эмульсионных слоев. Приведенные в таблицах 1 и 2 плотности следов в пластинках 200 и 400 μ относятся лишь к поверхностным слоям эмульсии.

Выводы

1. Проведено исследование метода определения плотности следов электронов релятивистских энергий. Подобные измерения обычно производятся на прямолинейных отрезках следов, получаемых с применением электронов с энергиями 10 мэв, при помощи ускорителей. Считается, что длина измеряемых прямолинейных отрезков следов должна быть не менее 800—1000 микрон.

Непосредственной целью настоящей работы явилось выяснение возможности применения для контроля и исследования фотосвойств эмульсии электронов минимальных релятивистских энергий (1,5—2,5 мэв), получаемых с помощью бета-спектрографа.

2. Следы, получаемые в результате облучения пластинок высокой релятивистской чувствительности электронами с энергиями от 1,5 до 2,5 мэв, наблюдаются в эмульсии в виде отрезков, составляющих лишь небольшую часть полного пробега электронов. Это объясняется сравнительно большими углами рассеяния электронов при данной энергии, малой плотностью следов и флюктуациями плотности зерен в следах релятивистских частиц.

3. Определение чувствительности пластинок указанного типа при использовании прямолинейной части следов электронов дает для плотности релятивистского следа (при энергиях, близких к минимуму ионизационных потерь) завышенную величину, которая уменьшается, приближаясь к истинному значению, с увеличением энергии электронов.

При энергиях, применяемых на спектрографе, в частности при 1,5 мэв (пучок электронов этой энергии выделяется из спектра P^{32}) получаются весьма короткие прямолинейные участки следов. Измерение плотности следов в этом случае может давать большую субъективную ошибку, связанную с отбором «наилучших», т. е. наиболее различных следов. Эта ошибка характерна для измерений только коротких редких следов.

4. Для получения значений плотности релятивистских следов, более близких к истинным, необходимо применять пучки электронов с энергиями, превышающими энергию минимума ионизации. Так, электроны с энергией 2,5 мэв (из $Ce^{144} \rightarrow Pr^{144}$) при условии использования для счета зерен начального, прямолинейного участка траектории электронов, равного 350—400 микрон, дают возможность определять чувствительность пластинок толщиной до 100 микрон. Для определения чувствительности более толстых слоев необходим источник электронов более высокой энергии.

ЛИТЕРАТУРА

1. J. M. Hollander, J. Perlman, G. T. Seaborg. *Reviws of Modern Physics*, 25, 469, 1953.
2. М. Росси и Б. Заяц. Фотографический метод в ядерной физике. Изд. иностр. литературы, М., 1952.
3. H. S. Shy der. *Physical Review*, 1068, 1951.

К. В. СТАРИНИН и Э. А. ГРУЗ

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ЧУВСТВИТЕЛЬНОСТИ ЯДЕРНЫХ ФОТОЭМУЛЬСИЙ ТИПА *P* НА БЕТАТРОНЕ С ВЫВЕДЕННЫМ ЭЛЕКТРОННЫМ ПУЧКОМ

В отличие от обычных фотоэмульсий чувствительность фотослоев для ядерных исследований определяется по плотности следа заряженной частицы. При этом для определения чувствительности фотоэмульсий типа *P* необходимо применять однозарядные частицы с энергией не ниже минимума ионизационных потерь. Чувствительность определяется как плотность следа такой частицы путем счета под микроскопом количества зерен на 100 *микрон* длины следа. Для измерения плотности выбираются 10 прямолинейных участков (800—1000 *микрон*) следов частиц с минимальной ионизацией. Такая длина выбрана для получения средней плотности с достаточной точностью. Прямолинейность следа необходима для лучшей его различимости, а также для исключения поправки на истинную величину длины следа в случае его искривления и выхода из плоскости наблюдения. Чувствительность эмульсионных слоев толщиной 100 *микрон* определяется в нескольких местах, расположенных на разной глубине фотослоя.

Источником частиц с минимальной ионизацией может служить космическое излучение. Однако использование этого источника затрудняется целым рядом причин. Для получения требуемого количества длинных прямолинейных следов, необходимых для определения чувствительности, приходится экспонировать пластинки в течение нескольких дней. За это время пластинки набирают большой фон следов медленных частиц, который осложняет дальнейшую работу. Кроме того, результаты, получаемые при использовании космического излучения, ненадежны, так как не всегда удается идентифицировать природу и энергию частицы, дающей длинный прямолинейный след.

Более определенным является метод измерения плотности следа релятивистского электрона $\pi \rightarrow \rho$ C — распада. Но практически и этот способ неприменим, так как, помимо весьма длительной экспозиции, для отыскания требуемого распада приходится просматривать под микроскопом огромные площади эмульсии. Применение же ускорителей для генерации мезонов явно нецелесообразно ввиду их уникальности.

Естественно, что электрон, как однозарядная частица, имеющая наименьшую массу, достигает минимума ионизации при сравнительно небольших энергиях (около 1 *мэв*). Казалось бы, что наиболее простым и удобным источником электронов для контроля чувствительности фотоэмульсии типа *P* являются радиоактивные изотопы. Однако, как показали результаты работы с бета-активными изотопами, дающими электроны с энергией до 2,5 *мэв*¹, их применение для этой цели не дает необходимых результатов. В этом случае величина энергии получаемых электронов (1,5—2,5 *мэв*), несмотря на превышение энергии минимума ионизации

* См. предыдущую статью.

ционных потерь, все еще не достаточна. Она не дает в эмульсии прямолинейного следа требуемой длины. При попадании электрона с такой энергией в эмульсию под небольшим углом его след только в поверхностном слое будет прямолинейным. В дальнейшем, по мере проникновения вглубь эмульсии, энергия электрона быстро падает в результате ионизационного торможения (плотность сухой эмульсии $\sim 3,7 \text{ г/см}^3$), что дает большие углы рассеивания, приводящие к искривлению следов. Помимо этого, уменьшению длины прямолинейных отрезков следов способствует разделение следа на отдельные, не связанные между собой, участки в местах наименьшей плотности и сильного искривления, приводящего к выходу следа из плоскости наблюдения.

Это происходит по причине небольшой плотности следов (контрольная плотность выпускаемых эмульсий 30 зерен/100 микрон) и флюктуаций плотности по длине следа. Даже при облучении электронами с энергиями 2,5 мэв, длина прямолинейных участков у поверхности эмульсии составляет всего 350—400 микрон, что позволяет определить чувствительность слоев, толщиной не более 100 микрон.

Таким образом, применение бетаактивных изотопов для определения чувствительности ограничивается небольшими толщинами фотослоев. Существенным неудобством использования бетаактивных изотопов является ограниченный срок их жизни и связанное с этим постепенное увеличение времени облучения пластинок, а также необходимость сравнительно частой смены радиоактивных источников.

Результаты указанной работы показали необходимость применения для определения чувствительности фотослоев источника электронов более высокой энергии. В качестве такого источника был выбран бетатрон с максимальной расчетной энергией ускоренных электронов 15 мэв, изготовленный Томским Политехническим Институтом.

Первоначально для определения чувствительности в радиографической лаборатории использовалось γ — излучение бетатрона. При использовании γ — излучения на эмульсию падает спектр γ — квантов, получаемый в результате радиационного торможения ускоренных в вакуумной камере электронов, сбрасываемых с равновесной орбиты на вольфрамовую мишень. Энергии γ — квантов тормозного спектра распределены от нуля до максимальной энергии ускоренных электронов. В этом случае эмульсионный слой регистрирует следы вторичных электронов, образованных в окружающей среде и в самом веществе эмульсии.

Первые опыты по облучению пластинок на бетатроне производились при энергиях электронов до 5 мэв. Было показано, что и эта энергия недостаточна для определения чувствительности. Вся дальнейшая работа велась с максимальной энергией ускоренных электронов — 13,6 мэв. Максимальная расчетная энергия 15 мэв не достигалась вследствие насыщения центрального сердечника магнита и самосброса электронов с равновесной орбиты при напряжении на магните, соответствующем максимальной расчетной энергии электронов. Это является общим недостатком бетатронов данной конструкции. При работе с γ — лучами пластинки устанавливались на расстоянии около 1,5 метров от мишени параллельно направлению излучения. Угловая полуширина γ — пучка была порядка 12° , это позволяло устанавливать позади пакета облучаемых пластинок стандартную ионизационную камеру, емкостью 1 литр. При интенсивности излучения порядка 0,1 рентгена в минуту выдержка была около 1 минуты.

В сентябре 1956 года сотрудниками Томского Политехнического института на бетатроне радиографической лаборатории НИКФИ был выведен электронный пучок. С тех пор для определения чувствительности фотоэмульсий используется исключительно электронный пучок.

Вывод его осуществляется электростатическим методом. Принцип этого метода следующий. Ускоренные в вакуумной камере электроны выводятся в атмосферу через окно этой камеры, закрытое тонкой алюминиевой фольгой. Выход электронов через окно происходит в результате изменения их траектории при прохождении между пластинами введенного в камеру отклоняющего конденсатора, на который подается импульсное напряжение (20—30 кВ). Импульс напряжения подается в момент сброса электронов с равновесной орбиты.

Из сказанного ясно, что перестройка от γ — излучения к электронному пучку в данном варианте осуществляется довольно просто. Это сводится к замене обычной ускорительной камеры камерой с двумя дополнительными патрубками для отклоняющего конденсатора и выводного

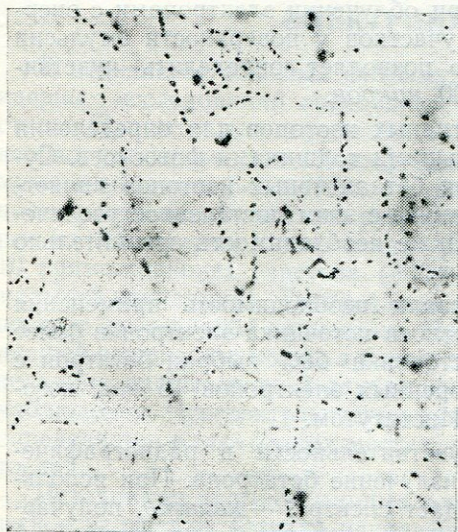


Рис. 1. Следы электронов при облучении γ -лучами бетатрона.

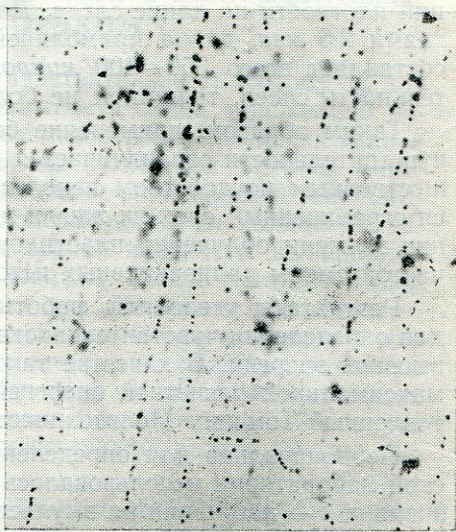


Рис. 2. Следы электронов при облучении выведенным электронным пучком.

окошка. Кроме того, для подачи отклоняющего напряжения к установке прилагается импульсный трансформатор с управляющим блоком. При наличии этих изменений возможна работа как с γ — излучением, так и с электронами. Переход от γ — излучения к электронному пучку производится простым опусканием электронной пушки ниже плоскости равновесной орбиты и подачей напряжения на пластины отклоняющего конденсатора. Интенсивность электронного пучка определялась по измерению силы тока всего пучка. Для этого использовался цилиндр Фарадея с усилителем постоянного тока. При силе тока электронного пучка порядка $1 \cdot 10^{-10}$ а выдержка составляла 5—10 сек на расстоянии 35 см от выводного окошка. Относительная интенсивность в процессе облучения регистрируется той же ионизационной камерой, причем камера устанавливается сбоку от пластинок, так как электроны при облучении больших пакетов, проходя через них, сильно поглощаются и камера дает заниженные показания.

Для определения чувствительности ядерных фотоэмульсий работа с электронным пучком представляет известные преимущества. Как уже отмечалось, для счета зерен под микроскопом необходимо иметь достаточно длинные прямолинейные и направленные следы электронов и минимальный фон следов медленных электронов, затрудняющих различимость та-

ких следов. Для получения достаточно длинных и прямолинейных следов требуется энергия электронов не менее 10 мэв.

При облучении γ — лучами бетатрона на пластинку падает тормозной спектр, средняя энергия которого значительно ниже максимальной. При применении же электронного пучка мы имеем дело с моноэнергетическими электронами, энергия которых практически равна максимальной (торможение в тонкой фольге и в воздухе незначительно). Кроме того, в случае γ — лучей эмульсия регистрирует следы вторичных электронов (комптоновские электроны и электронно-позитронные пары), которые имеют свое энергетическое и угловое распределение.

В результате этого энергия большинства электронов, дающих след, ниже средней энергии γ — спектра, что приводит к уменьшению прямолинейной части пробега, используемой для счета зерен. Наличие углового распределения вторичных электронов относительно направления первичного γ — пучка уменьшает направленность следов. Это также затрудняет просчет.

Таким образом, электронный пучок по сравнению с γ — лучами при той же максимальной энергии электронов дает более длинные, более прямолинейные и более направленные следы, необходимые для контроля чувствительности фотоэмульсий (рис. 1 и 2).

Резюмируя изложенное, можно сказать, что определение чувствительности фотослоев, осуществляемое с помощью выведенного электронного пучка на бетатроне с энергией электронов не ниже 10 мэв, является наиболее правильным, надежным и удобным методом.
