

Développement sélectif des émulsions nucléaires : discrimination entre traces et voile gamma

Autor(en): **Gailloud, Maurice / Hænnny, Charles**

Objektyp: **Article**

Zeitschrift: **Mémoires de la Société Vaudoise des Sciences Naturelles**

Band (Jahr): **10 (1950-1952)**

Heft 5

PDF erstellt am: **22.07.2024**

Persistenter Link: <https://doi.org/10.5169/seals-256791>

Nutzungsbedingungen

Die ETH-Bibliothek ist Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Inhalten der Zeitschriften. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern.

Die auf der Plattform e-periodica veröffentlichten Dokumente stehen für nicht-kommerzielle Zwecke in Lehre und Forschung sowie für die private Nutzung frei zur Verfügung. Einzelne Dateien oder Ausdrucke aus diesem Angebot können zusammen mit diesen Nutzungsbedingungen und den korrekten Herkunftsbezeichnungen weitergegeben werden.

Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. Die systematische Speicherung von Teilen des elektronischen Angebots auf anderen Servern bedarf ebenfalls des schriftlichen Einverständnisses der Rechteinhaber.

Haftungsausschluss

Alle Angaben erfolgen ohne Gewähr für Vollständigkeit oder Richtigkeit. Es wird keine Haftung übernommen für Schäden durch die Verwendung von Informationen aus diesem Online-Angebot oder durch das Fehlen von Informationen. Dies gilt auch für Inhalte Dritter, die über dieses Angebot zugänglich sind.

**Développement sélectif des émulsions
nucléaires :
Discrimination entre traces et voile gamma**

PAR

Maurice GAILLOUD et Charles HAENNY

(Présenté à la séance du 23 janvier 1952)

Résumé.

Une irradiation gamma de 2 roentgens suffit pour noircir complètement une émulsion nucléaire Ilford C₂ développée normalement. Nous avons recherché les meilleures conditions de sous-développement sélectif faisant apparaître fortement les traces de particules ionisantes (α de l'U, réaction B (n, α) Li) de préférence au voile gamma. Après avoir déterminé la limite de discrimination (40 roentgens) par sous-développement avec un révélateur habituel, en nous basant sur les résultats que nous avons obtenus dans une précédente étude, nous avons fait usage de révélateurs d'un autre type. Les propriétés électrochimiques mesurées pour trois révélateurs ont été comparées et la nouvelle limite de discrimination a pu être reculée à 200 roentgens. Le révélateur superficiel au glycin photographique doit être souvent préféré aux révélateurs habituellement en usage. Ceci s'explique par des considérations sur la structure de l'image latente

INTRODUCTION.

Les phénomènes ionisants en général, lumière, rayons X, radiations gamma des corps radioactifs, particules chargées rapides impressionnent l'émulsion photographique. L'ionisation produite dans les grains de bromure d'argent donne lieu à la réduction d'un certain nombre d'ions argent en atomes d'argent. Le résultat final de cette transformation (généralement invisible) est la constitution de petits amas d'argent métallique situés à la surface et à l'intérieur des grains de bromure d'argent, formant ce qu'on appelle les images latentes.

Le développement qui se fait à l'aide d'une solution réductrice (révélateur) transforme en argent une fraction plus ou moins grande de chaque grain de bromure d'argent pourvu

d'images latentes. Les grains vierges que le révélateur ne réduit pas dans le cas général ou que très lentement, sont dissous dans une solution de thiosulfate de sodium (solution de fixage).

Précisons que les émulsions photographiques nucléaires, très épaisses (50 à 500 microns et plus) en comparaison des émulsions ordinaires (1 à 20 microns) sont développées selon un procédé spécial dit en température (1) : elles sont imprégnées de révélateur refroidi à 2° C qui ne produit ainsi aucun développement appréciable, puis introduites dans une étuve thermostatique (en général 25° C) à humidité saturante où le développement se fait d'une façon uniforme dans toute l'épaisseur de l'émulsion.

Après développement, les trajectoires de particules chargées rapides sont jalonnées de grains d'argent contigus dans certains cas et plus ou moins espacés dans d'autres, formant ce que l'on appelle une trace, que l'on peut suivre au microscope, dont on peut mesurer la longueur et d'autres caractéristiques. Dans les émulsions photographiques ordinaires, les traces de particules chargées sont difficiles à reconnaître, car les grains d'argent qui les constituent sont trop éloignés les uns des autres ; dans les émulsions nucléaires par contre, la concentration des grains de bromure d'argent étant beaucoup plus élevée (10^{13} au lieu de 10^{11} grains par cm^3 d'émulsion), la dimension de ces grains étant plus petite (diamètre de 0,2 à 0,3 micron au lieu de 1 micron), les grains d'argent obtenus après développement peuvent être très rapprochés les uns des autres et les traces de particules chargées, souvent continues, sont faciles à suivre.

L'exploration des émulsions nucléaires développées se fait à l'aide d'un microscope équipé spécialement pour les mesures de longueurs, d'angles, etc. ; connaissant les densités de grains, les longueurs de parcours, les changements de direction des traces de particules ionisantes rapides, il est possible de déterminer les masses, les charges, les énergies cinétiques de ces particules. Ce type d'émulsion photographique est très utile dans l'étude des phénomènes nucléaires ; sa sensibilité continue aux phénomènes ionisants permet en particulier la recherche des événements nucléaires rares du rayonnement cosmique, des émissions radioactives d'éléments à très longue période, etc. (2), (3), (4) et (5).

L'observation des traces de particules chargées rapides dans les émulsions nucléaires peut être rendue difficile, voire im-

possible, par la présence du voile dû à l'action photographique des radiations gamma qui sont parfois inséparables des phénomènes nucléaires que l'on désire étudier. Ainsi, à titre d'exemple, dans l'étude des événements qui ont lieu au voisinage d'une pile nucléaire (réactions de capture de neutrons en particulier) ou dans l'étude des photodésintégrations produites par les rayons gamma, les plaques photographiques utilisées comme détecteurs se trouvent nécessairement soumises à des irradiations intenses qui conduisent après développement à un noircissement complet de celles-ci.

Intéressés au problème, les fabricants de plaques photographiques tels que Ilford Ltd, Kodak Ltd, etc., ont cherché à préparer des émulsions nucléaires plus ou moins sensibles aux événements ionisants. Les émulsions Ilford C₂ ou Kodak NT2a par exemple, sont rendues opaques et inutilisables dans les conditions de développement habituelles par une irradiation gamma d'environ 2 roentgens; par contre, les émulsions Ilford D₁ ou Kodak NTa ne sont noircies dans les mêmes conditions de développement, qu'après avoir reçu une dose de 10 roentgens. Cette amélioration est malheureusement très insuffisante dans de nombreuses expériences; d'autre part, les émulsions Ilford D₁ ou Kodak NTa, trop insensibles aux protons rapides et aux particules alpha, ne peuvent pas être utilisées pour l'étude de certains phénomènes nucléaires.

Dans ces conditions, il est important d'établir de nouvelles méthodes de discrimination ou d'améliorer celles qui ont déjà été utilisées, afin de développer dans les émulsions nucléaires de haute sensibilité (Ilford C₂ et G₅, Kodak NT2a et NT4) les traces correspondant aux trajectoires de particules fortement ionisantes sans faire apparaître un voile gamma trop gênant. De cette manière, on étend le champ d'application des émulsions photographiques nucléaires qui peuvent dès lors être mises en œuvre pour de nouvelles recherches.

PRINCIPE DES MÉTHODES DE DISCRIMINATION.

Les méthodes de discrimination déjà en usage, se basent sur le fait que les images latentes qui donnent lieu aux traces, résultant de l'action ionisante cumulative des particules chargées et des radiations gamma, sont plus importantes et plus actives vis-à-vis du développement que celles responsables de la formation du voile, qui ne sont dues qu'à l'action des radiations gamma. Pour favoriser une action sélective du révélateur on peut désensibiliser l'émulsion vierge, détruire les ima-

ges latentes de faible importance ou opérer un développement partiel, c'est-à-dire réaliser un sous-développement.

1. *Désensibilisation partielle des émulsions vierges de grande sensibilité (Ilford C₂ et G₅, Kodak NT2a et NT4).*

La sensibilité des émulsions devrait être diminuée de façon telle que les images latentes créées par les radiations gamma ne soient pas développables alors que celles créées dans les grains de bromure d'argent traversés par les particules chargées rapides, plus nombreuses et plus actives que les précédentes, soient encore susceptibles d'être développées (tout au moins partiellement). DEMERS (6) et BRODA (7) ont signalé l'action désensibilisante de l'acide chromique, YAGODA (8) celle de la vapeur d'une solution aqueuse d'eau oxygénée.

Les expériences faites dans cette direction ne paraissent pas ajouter des possibilités à celles déjà données par les émulsions nucléaires de faible sensibilité fournies par les fabricants.

2. *Destruction partielle des images latentes formées dans les grains de bromure d'argent.*

Les images latentes dues aux radiations gamma devraient être affaiblies suffisamment pour qu'elles ne soient plus développables alors que celles responsables de la formation des traces le seraient encore. PERFILOV (9), YAGODA (10), FARAGGI et ALBOUY (11), (12) ont proposé d'oxyder en partie l'argent constituant les images latentes par une solution d'acide chromique ou dans une atmosphère contenant de l'eau oxygénée. Au cours d'un premier travail (13), nous avons constaté que des émulsions fortement irradiées par un rayonnement gamma donnaient par oxydation suivie du développement habituel une discrimination inverse de celle recherchée, les traces disparaissant plus rapidement que le voile gamma. Nous avons attribué ce fait à une différence de structure entre les images latentes créées par les particules chargées fortement ionisantes et celles dues aux radiations gamma. Des expériences précises nous ont révélé en effet que les particules chargées donnaient lieu essentiellement à des images latentes superficielles ou tout au moins facilement accessibles et rapidement détruites par les oxydants tandis que les radiations gamma créaient des images latentes essentiellement internes, que l'agent oxydant n'atteint pas ou difficilement.

Tout récemment, deux auteurs américains, GOLDSTEIN et SHERMAN (14) ont indiqué que l'effet Herschel permet de pro-

duire un effacement sélectif des images latentes donnant lieu au voile gamma sans affaiblissement notable de celles créées par les particules chargées ; on sait que le phénomène de Herschel est une oxydation de l'argent des images latentes résultant de l'absorption de radiations infra-rouges (longueur d'onde supérieure à 7000 \AA). On comprend que cette oxydation produite par une radiation puisse avoir lieu à l'intérieur du cristal de bromure d'argent d'une manière différente de celle produite par un agent matériel qui ne peut agir que sur les parties accessibles au fluide. Les auteurs obtiennent une bonne discrimination de traces de particules alpha du polonium et du voile gamma dans les émulsions Kodak NTa soumises à une irradiation gamma 7 fois plus grande (70 roentgens) que celle qui dans les conditions habituelles rend ces mêmes émulsions inutilisables (environ 10 roentgens). Le résultat est intéressant mais la méthode proposée demande encore à être précisée.

3. *Sous-développement des émulsions photographiques.*

Les images latentes correspondant aux traces de particules chargées étant en moyenne plus actives vis-à-vis du développement que celles donnant lieu au voile gamma, on peut espérer en diminuant le degré de développement (sous-développement) ne faire apparaître qu'un voile gamma négligeable tout en développant suffisamment les traces correspondant aux trajectoires de particules chargées.

Différents facteurs sont susceptibles d'agir sur le degré de développement, ce sont : le pouvoir réducteur du révélateur, la température et la durée du développement. On peut, par exemple, produire un sous-développement contrôlé en affaiblissant le pouvoir réducteur du révélateur par abaissement de son pH ou par diminution des concentrations des substances réductrices, en écourtant la durée du développement ou en abaissant la température de développement ; on peut enfin combiner une variation de ces différents facteurs.

O. ROCHAT (4) en étudiant la discrimination entre des traces de fragments lourds provenant de la fission de noyaux d'uranium et des traces de particules alpha, ainsi que STEVENS (15), ont signalé l'efficacité du sous-développement comme moyen de discrimination des traces de particules chargées et du voile gamma. P. LERCH et O. ROCHAT, au cours d'un travail préliminaire, ont obtenu une discrimination des traces de particules fortement ionisantes et du voile gamma compa-

rable en abaissant le pH ou en diluant le révélateur habituel ID 19. La méthode de discrimination par sous-développement est celle qui a déjà donné les meilleurs résultats dans ce Laboratoire et ailleurs. Toutefois les techniques établies étaient loin de nous permettre la discrimination qui nous était nécessaire pour des recherches nucléaires en cours. En nous basant sur la mesure des propriétés électrochimiques de révélateurs, nous avons voulu aller plus loin qu'il n'était strictement nécessaire pour nos expériences actuelles et déterminer la limite d'application du sous-développement tel que nous l'avons pratiqué comme moyen de discrimination des traces de particules chargées et du voile gamma lorsque grandit l'intensité de la radiation gamma.

Aux méthodes de discrimination mentionnées précédemment, il faut en ajouter une autre qui consiste à éclaircir les émulsions développées. BERRIMAN (16) a montré que la discrimination des traces de particules ionisantes et du voile ne dépend pas seulement du rapport des densités de grains d'argent constituant les traces et le voile, mais aussi de la densité totale des grains d'argent ; on peut ainsi améliorer la discrimination désirée soit en augmentant le rapport des densités de grains soit en diminuant la densité de grains totale. En conséquence, une dissolution partielle des grains d'argent dans les émulsions développées, qui diminue la densité de grains totale même sans faire varier le rapport des densités de grains doit être favorable à la discrimination des traces de particules chargées et du voile. WANG (17) a proposé d'utiliser l'action dissolvante d'une solution de thiocyanate de potassium, OcCHIALINI et coll. (18) celle d'une solution de thiosulfate de sodium. L'expérience nous a montré cependant que les méthodes d'éclaircissement ne permettent pas de rétablir de bonnes conditions d'observation des traces de particules chargées dans les émulsions nucléaires noircies par l'action de radiations gamma.

MATÉRIEL ET CONDITIONS D'EXPÉRIENCES.

1. *Types d'émulsions :*

Nous avons utilisé essentiellement des émulsions Ilford C₂ d'une épaisseur de 100 microns et de mêmes émulsions contenant des sels du bore ou du lithium.

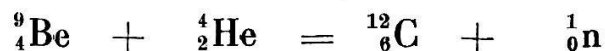
Les émulsions Ilford C₂ simples et celles contenant du lithium ont un pH compris entre 6,5 et 7 ; imprégnées d'eau distillée, elles gonflent sans se décoller du support de verre. Par contre, les émulsions Ilford C₂ contenant du bore ont un

pH compris entre 8,5 et 9 (par suite de la présence du tétraborate de sodium inclus dans l'émulsion); plongées dans de l'eau distillée, elles gonflent fortement et peuvent se détacher de leur support. On évite cet inconvénient en dissolvant le sel de bore avant de procéder aux opérations de développement; il suffit pour cela d'imprégner les émulsions pendant 30 minutes d'une solution d'acide acétique à 2 % et d'éliminer ensuite l'acide acétique par un lavage de 30 minutes à l'eau distillée.

2. *Particules chargées rapides utilisées et irradiations gamma.*

Nous avons utilisé les traces des particules alpha émises par l'uranium ou les traces des particules émises lors de la réaction de capture des neutrons lents par le bore ou le lithium. Dans les trois cas, on a affaire à des particules fortement ionisantes dont les trajectoires sont généralement rectilignes.

Lorsqu'on a fait usage des réactions nucléaires produites par les neutrons lents avec le bore ou le lithium, les images latentes des traces et du voile gamma ont pris naissance au cours d'une même opération. Les émulsions Ilford C₂ contenant des sels du bore ou du lithium ont été soumises à l'action simultanée des neutrons et des radiations gamma émis par une même source. Celle-ci, du type Ra-Be, est constituée par un cylindre de laiton (diamètre 5 mm; longueur 26 mm) entouré de plomb (épaisseur 1 cm), renfermant un mélange d'une poudre de glucinium (Be) et d'un sel de radium (50 mC). La source a été placée au centre d'un bloc de paraffine de forme parallélépipédique (75 cm × 75 cm × 35 cm) et les plaques photographiques ont été irradiées en les introduisant dans un logement situé à l'intérieur de la paraffine à une distance de 6 cm de la source. Les neutrons rapides produits dans la réaction :



sont émis isotropiquement et avec une énergie cinétique comprise entre 1 et 10 MeV (énergie cinétique moyenne : 6 MeV environ). Ils sont ralentis dans la paraffine par chocs successifs contre les atomes d'hydrogène et de carbone et parviennent à une énergie cinétique de l'ordre de 0,03 eV où leur probabilité de capture par le bore ou le lithium inclus dans les émulsions photographiques est très grande. On a observé dans les émulsions développées les traces d'une longueur de 7 microns environ correspondant à la réaction :



ou les traces d'une longueur de 43 microns environ correspondant à la réaction :



Le dispositif expérimental nous a permis d'obtenir environ 10^4 traces de la réaction du bore ou 10^3 traces de la réaction du lithium par cm^2 d'émulsion et par heure d'exposition à la source.

La source Ra-Be émet un rayonnement gamma hétérogène provenant d'une part des désintégrations d'atomes de radium ($E = 0,19$ MeV) ainsi que de RaB ($E_{\text{max.}} = 0,35$ MeV) et de RaC ($E_{\text{max.}} = 2,19$ MeV), éléments qui se sont formés dans l'ampoule de laiton à partir du radium et qui sont en équilibre radioactif avec lui, et d'autre part des réactions productrices de neutrons ($E_{\text{max.}} = 7,9$ MeV). Le plomb qui entoure la source n'absorbe pratiquement pas les neutrons ; par contre, il produit une forte diffusion des radiations gamma qui ne parviennent à la plaque photographique qu'avec une énergie moyenne faible (1 à 100 KeV). Ces radiations gamma, absorbées dans les atomes de l'émulsion, éjectent des électrons de faible énergie et de petits parcours dont l'action cumulative donne lieu au voile gamma. C'est bien ce que l'on constate par exemple dans une émulsion Ilford G₅ de très grande sensibilité irradiée ; on peut distinguer alors dans le voile gamma observé au microscope des traces courtes (de quelques grains à 30 grains d'argent), très contournées, qui correspondent aux trajectoires des électrons résultant de l'absorption des radiations gamma. Dans les émulsions Ilford C₂ moins sensibles que les émulsions G₅, le voile gamma est formé par des grains d'argent isolés ou des groupes de quelques grains¹.

L'intensité de la radiation gamma a été mesurée à l'aide d'une chambre d'ionisation cylindrique (diamètre 10 mm, longueur 12 mm), d'une sensibilité de 5 volts par roentgen. Le principe de la mesure est le suivant : on charge l'électrode centrale de la chambre d'ionisation (qui est isolée des parois

¹ Les flux de neutrons auxquels ont été soumises les plaques photographiques sont de l'ordre de 10^6 à 10^8 neutrons par cm^2 . Dans ces conditions, l'action des radiations gamma émises lors de la capture des neutrons lents et de même celle de bêta et gamma provenant des radioactivités provoquées dans le brome et l'argent sont négligeables en comparaison de l'action des radiations gamma provenant de la source de neutrons.

de celle-ci) et on mesure à l'aide d'un électromètre à lampes de la maison Baldwin, la vitesse de décharge de cette électrode lorsque la chambre est soumise au rayonnement gamma de la source radioactive. L'intensité de l'ionisation mesurée dans la paraffine à l'endroit où sont exposées les plaques photographiques a été de 13 ± 1 roentgens par heure.

Dans le cas où l'on a fait appel à la radioactivité de l'uranium, la création des images latentes des traces et des images latentes du voile gamma a été faite en deux temps. Les émulsions Ilford C₂ simples ont été tout d'abord imprégnées d'une solution d'un sel d'uranyle (solution complexe, voir O. ROCHAT (4), p. 212), rapidement séchées dans un courant d'air (dans l'émulsion humide, l'effacement des images latentes par oxydation spontanée à l'air est rapide) et conservées dans un dessiccateur au-dessus d'une solution saturée de CaCl₂ (humidité 30 % à 20° C) ; le temps de pose, variable avec la concentration en uranium de la solution d'imprégnation, a été choisi de façon telle que la densité des traces alpha observées après développement soit d'environ 10⁵ traces par cm² d'émulsion (20 traces d'une longueur de 18 microns par champ microscopique pour un grossissement de 600 fois). Les émulsions ont été ensuite lavées à l'eau pour éliminer le sel d'uranyle qu'elles contenaient, séchées à nouveau rapidement à l'air et irradiées à la source Ra-Be dont on n'a alors utilisé que la seule radiation gamma, les neutrons émis par cette source étant sans effet notable sur une émulsion Ilford C₂ simple.

3. *Température et durée des opérations de développement, composition des révélateurs.*

Les opérations de développement et de fixage des plaques photographiques ont été réalisées généralement dans les conditions suivantes :

imprégnation d'eau distillée à 2° C	30 min.
imprégnation de révélateur à 2° C	30 min.
à l'étuve à 25° C	{ Glycin photographique 45 min.
	{ ID 19 dil 1/3 ou ferro-oxalate de K 30 min.
bain d'arrêt (solution d'acide acétique à 2 %)	30 min.
rinçage à l'eau	30 min.
bain dans solution de fixage	
(solut. de thiosulfate de Na à 30 %)	3 heures
lavage à l'eau courante	6 heures

Deux révélateurs surtout ont été utilisés : le révélateur ID 19 et le révélateur au glycin photographique ; pour confir-

mer certaines conclusions, on a utilisé également un troisième révélateur ne contenant pas de produits organiques et préparé avec le ferro-oxalate de potassium.

Le choix de ces révélateurs résulte de nos recherches antérieures auxquelles nous avons fait allusion précédemment (page 274 (13)). Il est assez évident que les images latentes facilement accessibles à l'action d'un oxydant doivent l'être également à celle d'un révélateur. Il doit en résulter que les images latentes externes seront développées rapidement alors que les images latentes internes ne le seront que lentement ou pas du tout. En conséquence, la discrimination réalisée avec un révélateur superficiel ne révélant que les images latentes externes, doit être meilleure que celle obtenue avec un révélateur total capable de développer les images latentes superficielles et profondes.

Le révélateur ID 19, préparé selon la formule habituelle (4) a été le révélateur total utilisé ; la solution de base est formée de la manière suivante :

3,2 gr. de métol
8,8 gr. d'hydroquinone
72 gr. de sulfite de sodium anh.
48 gr. de carbonate de sodium 1aq
4 gr. de bromure de potassium

ces produits sont dissous dans de l'eau distillée de façon à faire 1000 cm³ de solution.

Pour l'emploi, 1 volume de solution de base est additionné de 2 volumes d'eau distillée (ID 19 dil 1/3).

Le sulfite de sodium présent en concentration élevée dans le révélateur ID 19 confère à celui-ci un certain pouvoir dissolvant du bromure d'argent (19) (propriétés dissolvantes cependant moins marquées que celles du thiosulfate de sodium utilisé dans la solution de fixage). Ce révélateur peut ainsi développer tous les grains pourvus d'une image latente suffisante, que celle-ci soit en surface ou en profondeur.

Les révélateurs suivants au glycin photographique (parahydroxyphénylglycin) ou au ferro-oxalate de potassium, n'ayant pas d'action dissolvante sur le bromure d'argent, n'agissent que sur les images latentes situées en surface des grains ou accessibles sans nécessiter une dissolution du bromure d'argent. Leurs compositions sont données ci-dessous :

glycin photographique : (20)

1. solution de base (stable) :
 40 gr. de carbonate de sodium 1 aq
 2 gr. de bromure de potassium
 sont dissous dans de l'eau distillée pour faire 1000 cm³ de solution ;
2. bain de développement :
 1 gr. de glycin photographique
 est dissous dans 50 cm³ de solution de base ; on ajoute ensuite de l'eau distillée pour amener à 100 cm³ le volume de la solution ;

ferro-oxalate de potassium : (21)

1. solutions de base (stables) :
 solution A :
 165 gr. de sulfate ferreux ($\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$)
 1 gr. de bromure de potassium
 5 cm³ d'acide sulfurique 2N
 sont dissous dans de l'eau distillée pour faire 500 cm³ de solution ;
 solution B :
 330 gr. d'oxalate de potassium ($\text{K}_2\text{C}_2\text{O}_4 \cdot 1\text{H}_2\text{O}$)
 sont dissous dans de l'eau distillée pour faire 1000 cm³ de solution ;
2. bain de développement :
 un volume de solution A est additionné de 3 volumes de solution B.

4. *Etude électrochimique des révélateurs* :

Pour diminuer le pouvoir réducteur des révélateurs ID 19 dil 1/3 et glycin photographique, nous avons abaissé le pH de leurs solutions. On sait, en effet, que l'activité de substances réductrices comme l'hydroquinone, le métol, le glycin, etc., varient suivant le pH de la solution dans laquelle elles sont dissoutes ; cette variation s'explique si l'on considère la dissociation ionique de ces substances en fonction du pH ; la forme active étant la forme ionisée, un abaissement de pH qui fait rétrograder la dissociation diminue en conséquence la force réductrice (22).

Le potentiel d'oxydo-réduction (ou redox) de ces révélateurs, qui est une mesure de leur pouvoir de réduction, a été déterminé pour différents pH des solutions. Il était donné par une électrode de platine poli accouplée à une électrode à ca-

lomel à chlorure de potassium saturé. La valeur du pH était obtenue simultanément à l'aide d'une électrode en verre accouplée à la même électrode de référence. Les f. e. m. des piles ainsi constituées étaient mesurées au moyen d'un potentiomètre à lampes de la maison Metrohm, étalonné à l'aide d'un élément Weston. Les électrodes ont été maintenues dans une atmosphère d'azote débarrassé de l'oxygène qu'il pouvait en-

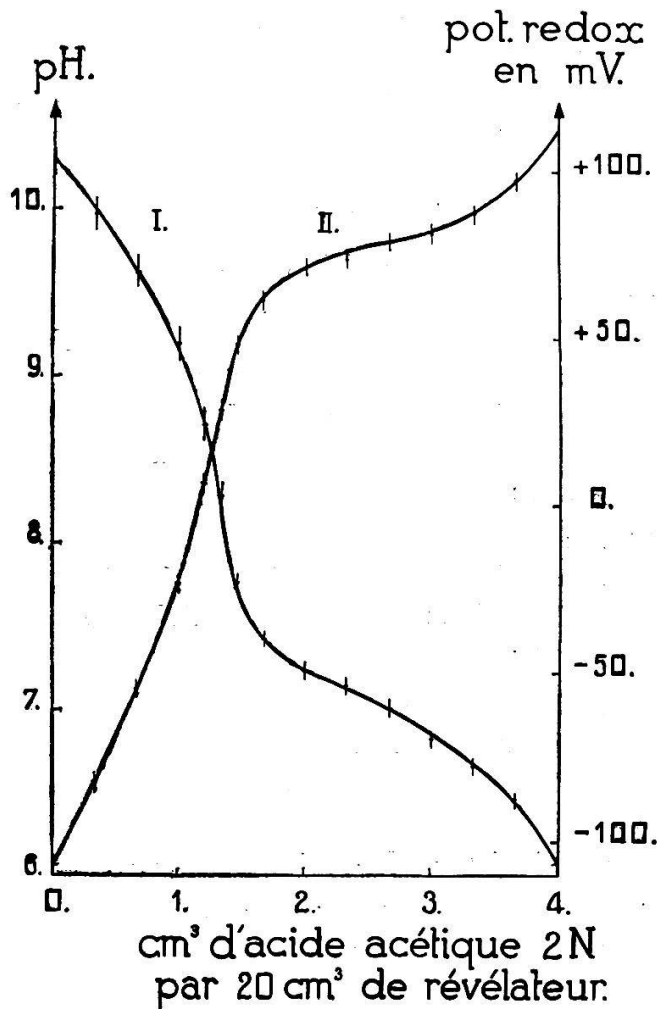


FIG. 1. — Révélateur ID 19 dil 1/3 ; pH (courbe I) et potentiel redox (courbe II) en fonction du nombre de cm^3 d'acide acétique 2N ajoutés à 20 cm^3 de révélateur.

core contenir par barbottage dans une solution alcaline de pyrogallol. En l'absence d'oxygène les mesures sont stables et les valeurs reproductibles à $\pm 3 \text{ mV}$ près pour le potentiel redox, à $\pm 0,05$ unité pour les pH inférieurs à 8 et à $\pm 0,1$ unité pour les pH supérieurs à 8. La température des solutions au cours des mesures a été de $21 \pm 1^\circ \text{C}$.

Les courbes des figures 1, 2 et 3 représentent la variation du potentiel redox (rapporté à celui de l'électrode normale

à hydrogène) en fonction du pH des révélateurs ID 19 dil 1/3 et glycin photographique additionnés d'acide acétique binormal (d'après la convention habituelle, un milieu est d'autant plus réducteur que son potentiel redox est plus bas en valeur algébrique).

Plutôt que de modifier le pouvoir réducteur du révélateur au ferro-oxalate de potassium en variant le pH de sa solution (cette

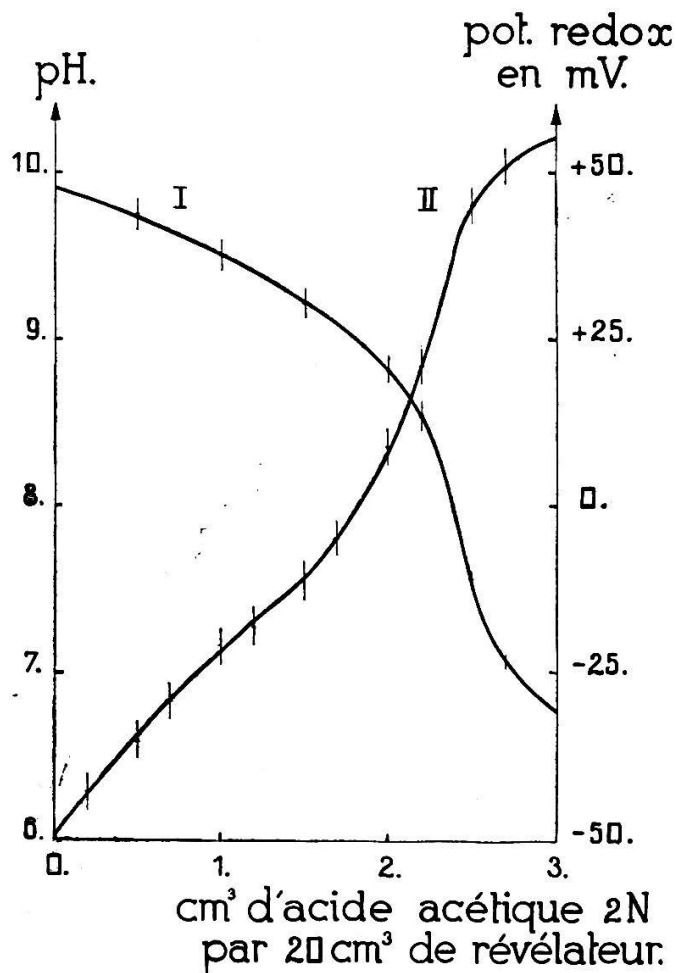


FIG. 2. — Révélateur au glycin photographique : pH (courbe I) et potentiel redox (courbe II) en fonction du nombre de cm³ d'acide acétique 2N ajoutés à 20 cm³ de révélateur.

méthode conduit à des résultats non reproductibles par suite vraisemblablement d'une transformation irréversible des ions complexes ferro-oxalate) on a préféré opérer un sous-développement progressif par abaissement graduel de la température de développement de 12° C à 4° C, les autres conditions de travail étant celles indiquées à la page 279.

La stabilité du révélateur au glycin photographique en présence d'air est relativement grande malgré l'absence de

sulfite de sodium (dans les révélateurs habituels comme l'ID 19, le sulfite de sodium protège contre l'oxydation par l'oxygène de l'air). C'est ce qui apparaît dans la fig. 4 où sont représentés les potentiels redox des trois révélateurs, ID 19 dil 1/3 (courbe II), glycin photographique (courbe I) et ferro-oxalate de potassium (courbe III), en fonction du temps. Les courbes ont été établies en disposant les révélateurs dans les cuves de

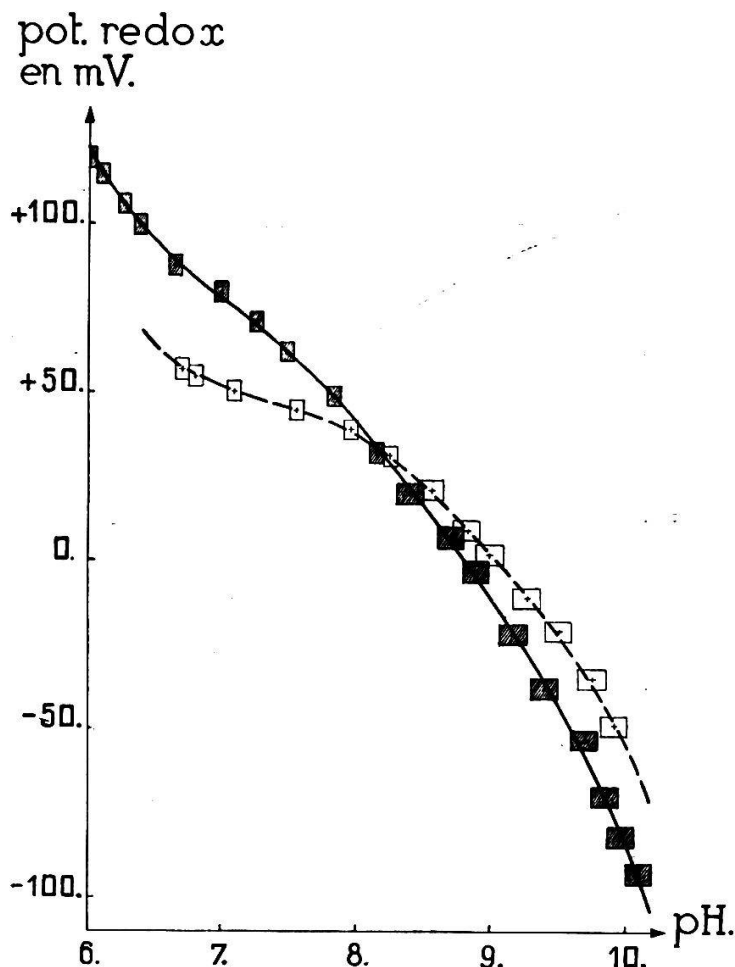


FIG. 3. — Potentiel redox en fonction du pH. ID 19 dil 1/3 (courbe en trait plein) et glycin photographique (courbe en trait interrompu).

développement (surface en contact avec de l'air tranquille : 70 cm², épaisseur de liquide 1 cm) et en mesurant le potentiel redox d'échantillons de solution prélevés à diverses époques, à l'aide d'une électrode de platine poli (conditions de la page 11).

On constate, par contre, que la solution de ferro-oxalate de potassium s'oxyde rapidement à l'air ; son utilisation comme révélateur superficiel est limitée au développement d'émulsions nucléaires minces d'une épaisseur de 50 à 100 microns), où la durée des opérations (imprégnation de révélateur et séjour à l'étuve) ne dépasse pas une heure.

DISCRIMINATION PAR SOUS-DÉVELOPPEMENT AVEC UN RÉVÉLATEUR TOTAL.

Un grand nombre d'expériences ont été réalisées avec le révélateur ID 19 dil 1/3 au cours desquelles on a fait varier le degré de sous-développement en diminuant plus ou moins le pH du révélateur ; l'addition de 0 à 4 cm³ d'acide acétique à 20 cm³ de révélateur ID 19 dil 1/3 abaisse le pH de celui-ci de 10,2 à 6,1 et augmente le potentiel d'oxydo-réduction de - 110 mV à + 105 mV (fig. 1).

Les fig. 5 et 6 montrent ce que l'on obtient par sous-développement avec des émulsions Ilford C₂ contenant un sel de bore, toutes soumises à un même flux de neutrons lents et à une irradiation gamma de 5 roentgens. Les émulsions ont été développées parallèlement avec des révélateurs ID 19 dil 1/3 de pH différents ; l'émulsion développée avec l'ID 19 dil 1/3

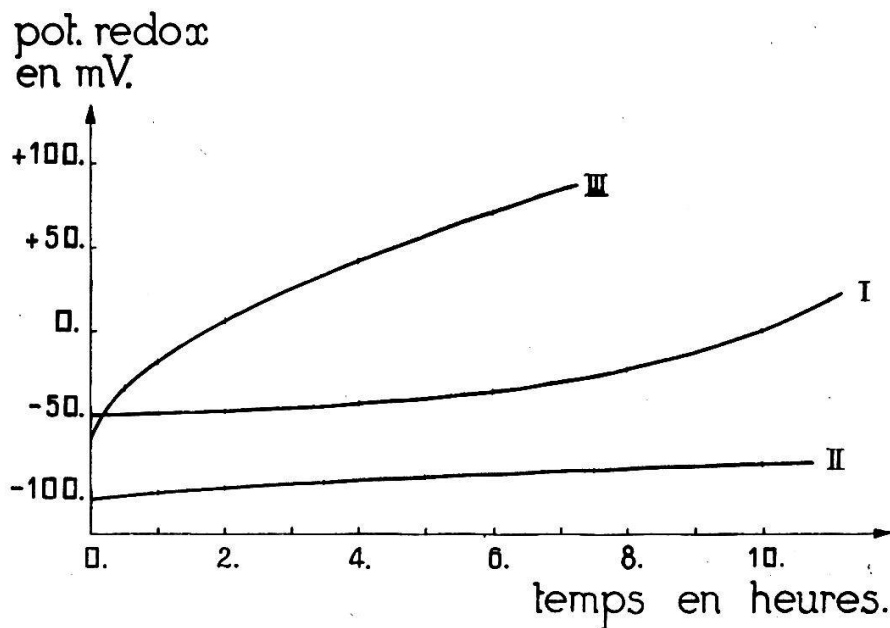


FIG. 4. — Potentiel redox en fonction du temps. Courbe I : glycine photographique ; Courbe II : ID 19 dil 1/3 ; Courbe III : ferrioxalate de potassium.

habituel (pH = 10,2 ; pot. redox = - 110 mV) est fortement noircie et les traces de la réaction du bore sont difficiles à discerner dans le voile ; par contre, celle sous-développée avec l'ID 19 dil 1/3 additionné d'acide acétique (pH = 8,2 ; pot. redox = + 30 mV) est pratiquement transparente ; le voile gamma y est très faible et prend l'aspect d'un voile de fond habituel (*background*), les traces de la réaction B (n, α) Li ressortent nettement.

Lorsqu'on augmente l'irradiation gamma, le voile se forme avec une densité de plus en plus grande si l'on n'accroît pas le sous-développement. La fig. 7 présente une photographie prise à un grossissement de 1450 fois dans une émulsion Ilford C₂ imprégnée d'un sel d'uranyle et qui a été soumise à une irradiation gamma équivalant à 30 roentgens. L'adjonction de 3 cm³ d'acide acétique binormal à 20 cm³ de révélateur ID 19 dil 1/3 (pH de la solution = 6,80; pot. redox = + 83 mV) a été nécessaire pour empêcher le développement d'un voile gamma excessif; les traces de particules alpha apparaissent affaiblies mais sont bien reconnaissables.

On atteint bientôt une limite située aux environs de 40 roentgens au delà de laquelle le sous-développement opéré comme ci-dessus ne permet plus de développer sélectivement les traces de particules chargées, ces dernières, trop faiblement développées, apparaissent de plus en plus fragmentées et peuvent être prises pour des alignements fortuits de grains du voile gamma. Toute mesure précise devient alors impossible.

Nous avons sous-développé de diverses manières des plaques, ayant subi le même traitement, en utilisant toujours le révélateur ID 19. Des émulsions Ilford C₂ imprégnées d'un sel d'uranyle et exposées à une source de radiations gamma ont été sous-développées parallèlement en abaissant le pH du révélateur ID 19 dil 1/3, en diminuant la concentration des substances réductrices (métol et hydroquinone) à un dixième et jusqu'à un centième des valeurs habituelles, en abaissant de 25° C à 4° C la température de développement ou enfin en diminuant de 30 minutes à 2 minutes la durée du développement. Une bonne discrimination des traces de particules ionisantes (protons rapides, particules alpha, etc.) et du voile gamma peut être obtenue par ces différentes méthodes. Mais l'abaissement du pH du révélateur est le moyen le plus commode pour produire un sous-développement contrôlé des émulsions photographiques nucléaires.

DISCRIMINATION PAR SOUS-DÉVELOPPEMENT AVEC UN RÉVÉLATEUR SUPERFICIEL.

Au cours d'expériences préliminaires, nous avons tout d'abord précisé l'emploi, encore inusité, des révélateurs superficiels au glycin photographique et au ferro-oxalate de potassium pour le développement des émulsions photographiques nucléaires.

Traces de la réaction du bore dans des émulsions Ilford C₂;
gross. 1450 fois.

Irradiation gamma : 5 roentgens

20 microns

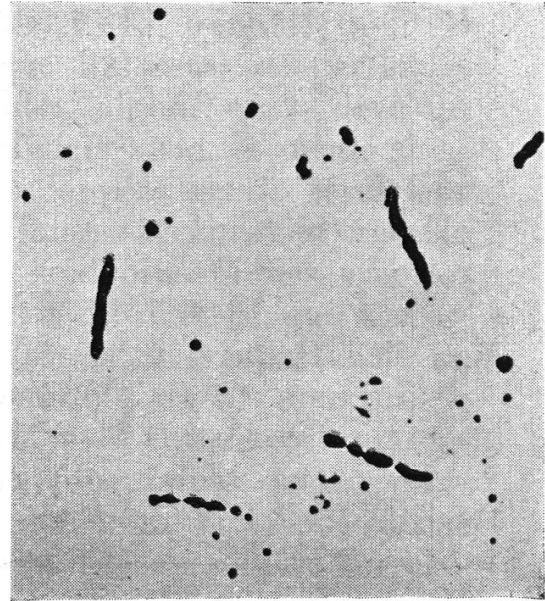
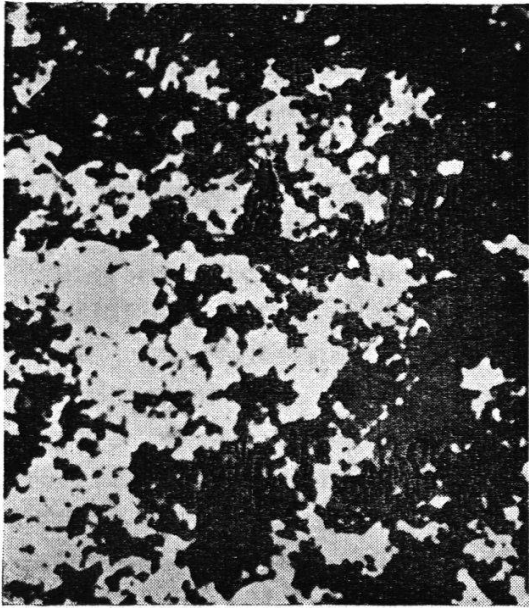


FIG. 5.

Développement normal
ID 19 dil 1/3.

FIG. 6.

Sous-développement
20 cm³ d'ID 19 dil 1/3
+ 1,3 cm³ d'acide acétique 2N

Traces des particules alpha de l'uranium dans des émulsions Ilford C₂;
gross. 1450 fois.

Irr. gamma : 30 roentgens

Irr. gamma : 160 roentgens

20 microns

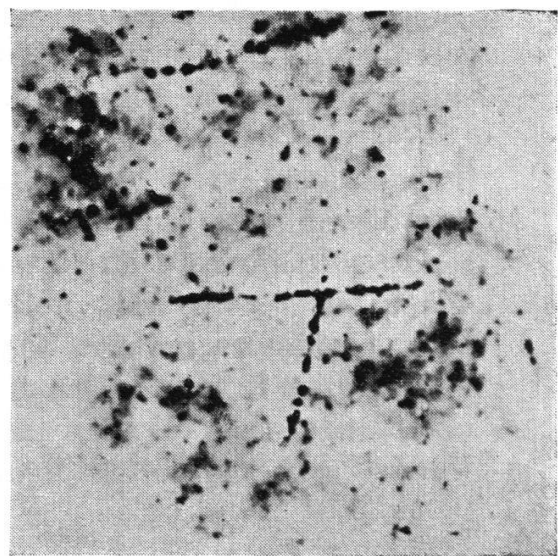
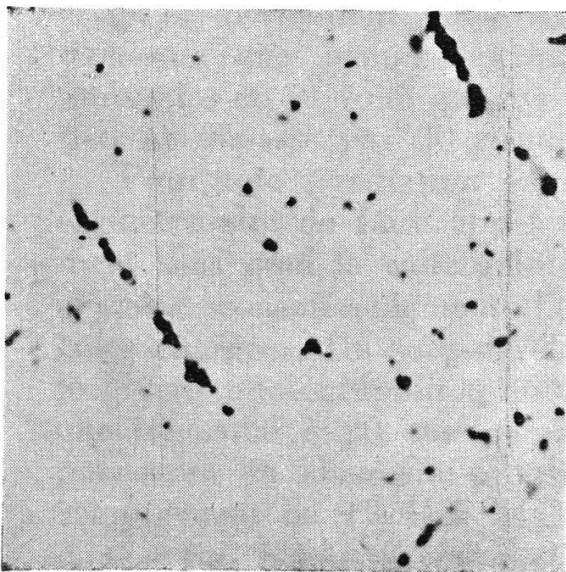
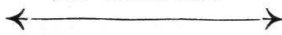


FIG. 7.

Sous-développement
20 cm³ d'ID 19 dil 1/3 + 3 cm³
d'acide acétique 2N.

FIG. 8.

Sous-développement
20 cm³ de glycin phot. + 3 cm³
d'acide acétique 2N.

On a fait appel comme précédemment pour le révélateur ID 19, à la méthode de développement en température ; la durée du développement a été maintenue à 30 minutes pour le ferro-oxalate de potassium et portée à 45 minutes pour le glycin photographique de manière que les traces de particules ionisantes (protons rapides, particules alpha, etc.) développées par ces deux révélateurs superficiels aient la même densité de grains d'argent que celles développées par le révélateur total ID 19 dil 1/3. Le voile de fond (*background*) et le voile situé en surface des émulsions sont plus faibles avec les révélateurs superficiels qu'avec l'ID 19 dil 1/3, ce qui correspond aux faits que d'une part les révélateurs superficiels ne développent que les grains de bromure d'argent pourvus de centres de développement superficiels et d'autre part que ces révélateurs ont un pouvoir réducteur plus faible que le révélateur ID 19 dil 1/3 (pot. redox moins négatif). Nous avons constaté en effet qu'une addition de sulfite de sodium au glycin photographique habituel, qui augmente le pouvoir réducteur du révélateur et qui permet à celui-ci de développer les centres de développement internes (situés dans les grains de bromure d'argent), entraîne un accroissement considérable des voiles de fond et de surface.

Des émulsions Ilford C₂ imprégnées d'un sel d'uranyle ont été soumises à des irradiations gamma croissantes puis développées avec des révélateurs au glycin photographique et au ferro-oxalate de potassium. L'expérience a montré qu'à égale irradiation gamma les révélateurs superficiels font apparaître un voile beaucoup plus faible que le révélateur ID 19 dil 1/3 et qu'ils permettent, sans recourir à un sous-développement, d'obtenir une bonne discrimination des traces de particules ionisantes et du voile gamma pour autant que la dose d'irradiation ne dépasse pas 30 roentgens.

Pour une irradiation gamma supérieure à 30 roentgens, il est nécessaire de faire appel à une méthode de sous-développement sans quoi le voile gamma apparaît de plus en plus dense et gêne considérablement l'observation des traces de particules chargées. Un sous-développement graduel est obtenu avec le glycin photographique en ajoutant 0 à 3 cm³ d'acide acétique binormal à 20 cm³ de révélateur, avec le ferro-oxalate de potassium en abaissant progressivement la température de développement de 12° C à 4° C.

La fig. 8 montre ce que l'on voit au microscope dans une émulsion Ilford C₂ qui a été imprégnée d'un sel d'uranyle, soumise à une irradiation gamma de 160 roentgens, puis sous-

développée avec le glycin photographique ($\text{pH} = 6,80$; pot. redox = + 55 mV). Le voile gamma est faible, les traces de particules alpha bien visibles.

Les méthodes de développement sélectif combinant l'emploi des révélateurs superficiels et le sous-développement des images latentes nous ont permis de reculer la limite de discrimination jusqu'à environ 200 roentgens. Au delà de cette limite, le sous-développement très prononcé qui est rendu nécessaire pour éviter la formation d'un voile gamma gênant, affecte considérablement les traces de particules chargées, celles-ci, très affaiblies et parfois méconnaissables, ne permettent plus des mesures précises.

Le tableau suivant donne pour différentes irradiations gamma, le volume d'acide acétique binormal qu'il convient d'ajouter à 20 cm³ de révélateur au glycin photographique pour obtenir les meilleures conditions de discrimination des traces de particules chargées (protons rapides, particules alpha, etc.) et du voile gamma dans les émulsions Ilford C₂ ; la durée et la température du développement sont celles indiquées à la page 279.

Irradiation gamma en roentgens	Cm ³ d'acide acétique 2N pour 20 cm ³ de glycin photographique	pH	pot. redox
0 r	0 cm ³	9,9	— 19 mV
50 r	1,5 cm ³	9,2	— 11 mV
100 r	2,5 cm ³	7,6	+ 45 mV
150 r	2,8 cm ³	7,0	+ 52 mV
200 r	3,0 cm ³	6,8	+ 55 mV

L'application des méthodes de sous-développement à la discrimination des traces de particules chargées rapides et du voile gamma dans les émulsions photographiques nucléaires n'offre pas de difficulté lorsqu'on veut effectuer un comptage de traces (dénombrement d'événements nucléaires). Par contre, si l'on désire mesurer les densités de grains d'argent des traces ou les parcours, il faut prendre garde que le sous-développement peut modifier les caractéristiques étudiées. Dans ce cas, il est indispensable, avant d'effectuer des mesures précises dans des émulsions soumises à une forte irradiation gamma, de déterminer à l'aide d'émulsions non irradiées, l'influence du sous-développement utilisé sur les grandeurs à mesurer.

CONCLUSION

Si les méthodes de discrimination s'appuyant sur une désensibilisation partielle des émulsions vierges ou sur un affaiblissement des images latentes à l'aide d'un oxydant ou sur un éclaircissement des émulsions développées n'améliorent pas les conditions d'observation des traces des particules fortement ionisantes dans les émulsions photographiques nucléaires soumises à de fortes irradiations gamma, le sous-développement des images latentes et plus particulièrement le sous-développement par un révélateur superficiel permet d'obtenir des résultats remarquables. On produit ainsi un développement sélectif dans lequel apparaissent d'abord les traces des particules fortement ionisantes. Les observations et les mesures sont dès lors possibles dans des émulsions nucléaires qui seraient complètement noircies par un développement effectué suivant les techniques habituelles.

Une émulsion C_2 qui soumise à une irradiation gamma de 2 roentgens devient tout à fait noire par le développement normal (à l'aide d'un révélateur total) ne présente plus par des sous-développements appropriés, pour des irradiations allant jusqu'à 40 roentgens, qu'un voile compatible avec des mesures.

Le révélateur superficiel ou externe, au glycin photographique, donne dans la plupart des cas, des résultats meilleurs que le révélateur total ID 19. Particulièrement favorable à la discrimination qui nous intéresse, ce révélateur superficiel produit un développement sélectif des traces par rapport au voile. Une bonne discrimination peut alors se faire par un développement normal pour les émulsions qui ont été soumises à une irradiation gamma allant jusqu'à 30 roentgens et par sous-développement pour celles irradiées plus fortement par un rayonnement gamma dont l'intensité peut atteindre 200 roentgens. Ce développement sélectif des traces, particulièrement marqué lorsqu'on utilise un révélateur superficiel (au glycin ou au ferro-oxalate) confirme ce que nous avons déjà constaté : les images latentes créées par les particules rapides à forte ionisation courante se comportent comme des images superficielles (facilement accessibles à l'action d'un réactif réducteur incapable d'action dissolvante sur le bromure d'argent), tandis que les images latentes produites par la radiation gamma présentent des propriétés d'image latente interne.

Nous avons réalisé le plus souvent les conditions de sous-développement par abaissement du pH des révélateurs, mais nous avons constaté que l'on peut faire aussi varier le degré de développement en abaissant la température à laquelle se produit le développement, en diminuant la durée de celui-ci ou encore en diluant les révélateurs.

D'après notre expérience, un développement sélectif des traces des particules fortement ionisantes par rapport au voile gamma est réalisable, en général, par sous-développement, non seulement pour les émulsions Ilford C₂ mais également pour d'autres émulsions nucléaires de hautes sensibilités.

* * *

M. F. Bucher a collaboré activement aux recherches qui font l'objet d'une partie de ce mémoire, nous l'en remercions vivement.

*Laboratoire de Chimie physique et Recherches nucléaires,
Ecole polytechnique de l'Université de Lausanne.*

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

1. DILWORTH C.-C., OCCHIALINI G.-P.-S. et PAYNE R.-N. — *Nature* 162, 102 (1948).
2. POWELL C.-F. et OCCHIALINI G.-P.-S. — *Nuclear Physics in Photographs*. Oxford, Clarendon Press (1947).
3. YAGODA H. — *Radioactive Measurements with Nuclear Emulsions*. J. Wiley and sons, New-York (1949).
4. ROCHAT O. — *Mém. Soc. vaud. Sc. nat.* 9, n° 3 (1949).
5. ROCHAT O. — *Ann. Gebh. Séverine* (1947-48), p. 59; (1949-50), p. 69.
6. DEMERS P. — *Can. J. Research* 25 A, 243 (1947).
7. BRODA E. — *Nature* 158, 872 (1946).
8. YAGODA H. — *Rad. Meas. with. nucl. emulsions*. J. Wiley and sons, New-York (1949), p. 111.
9. PERFILOV N.-A. — *C. R. Acad. Sc. U. R. S. S.* 42, 258 (1944).
10. YAGODA H. — *Rad. Meas. with. nucl. emulsions*. J. Wiley and sons, New-York (1949), p. 110.
11. ALBOUY G. et FARAGGI H. — *J. Phys. Rad.* 10, 8 (1949).
12. FARAGGI H. — Thèses (1950). *Ann. Phys.* 6, 325 (1951).
13. GAILLOUD M. et HAENNY CH. — *Sc. et Ind. phot.* 23, 221 (1952).
14. GOLDSTEIN A.-M et SHERMAN C.-H. — *Rev. Sc. Inst.* 23, 267 (1952).
15. STEVENS G.-W.-W. — *Nature* 162, 526 (1948).
16. BERRIMANN R.-W. — *Fundamental Mechanisms of Photographic Sensitivity. Proceedings of Bristol Symposium*. Butterworths scientific Publications, London (1950), p. 272.
17. WANG P.-K.-S. — *Rev. Sc. Inst.* 21, 816 (1950).
18. OCCHIALINI G.-P.-S., DILWORTH C.-C. et SAMUEL. — *Bull. Centre Phys. nucl. de l'Université Libre Bruxelles*, n° 2 (1948).
19. JAHN E.-L. et STAUDE H. — *Zeit. Naturforsch.* 6 A, 385 (1951).
20. HAUTOT H. et DEBOT R. — *Sc. et Ind. phot.* 13, 203 (1942).
21. GLAFKIDÈS P. — *Chimie photographique, Publ. phot. et ciné. Paul Montel*, Paris (1949), p. 52.
22. MEES K. — *Theory of the photographic process*. Macmillan, New-York (1952), p. 470.

TABLE DES MATIERES

	Pages
RÉSUMÉ	271
INTRODUCTION	271
PRINCIPE DES MÉTHODES DE DISCRIMINATION	273
1. Désensibilisation partielle des émulsions vierges de grande sensibilité	274
2. Destruction partielle des images latentes formées dans les grains de bromure d'argent	274
3. Sous-développement des émulsions photographiques	275
MATÉRIEL ET CONDITIONS D'EXPÉRIENCES	276
1. Types d'émulsions	276
2. Particules chargées rapides utilisées et irradiations gamma	277
3. Température et durée des opérations de développement ; composition des révélateurs	279
4. Etude électrochimique des révélateurs	281
DISCRIMINATION PAR SOUS-DÉVELOPPEMENT AVEC UN RÉVÉLATEUR TOTAL	285
DISCRIMINATION PAR SOUS-DÉVELOPPEMENT AVEC UN RÉVÉLATEUR SUPERFICIEL	286
CONCLUSION	291
RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES	293

Rédaction : Mlle Suzanne Meylan, professeur, Treyblanc 6, Lausanne.

Publicité : M. P.-A. Mercier, Dr ès sc., géologue, Palais de Rumine,
Lausanne.

Imprimerie Baud, avenue de l'Université 5, Lausanne.