

平成 29 年 5 月 19 日現在

機関番号：12501

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26287037

研究課題名(和文) 高分解能原子核乾板と超解像顕微鏡法を用いた暗黒物質検出システムの開発

研究課題名(英文) Detection system for dark matter by high-resolution-nuclear-plate and super-resolution-microscopy

研究代表者

久下 謙一 (Kuge, Kenichi)

千葉大学・融合科学研究科(研究院)・教授

研究者番号：10125924

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,900,000円

研究成果の概要(和文)：原子核乾板を用いた暗黒物質探索の国際プロジェクトNEWS(Nuclear Emulsion for WIMPs Search)の一環として、超微粒子写真乳剤の原子核乾板上に記録される、暗黒物質に起因する微細飛跡の検出システムの確立を目指した。光学顕微鏡を用いて解像度以下の微細飛跡を検出するための超解像顕微鏡法として、蛍光標識化法、表面局在プラズモン共鳴発光法を検討し、光学顕微鏡で解像しない像を詳細観察することができた。さらに超微粒子乳剤の増感、ノイズ除去などの原子核乾板応用技術を開発した。

研究成果の概要(英文)：We aimed to develop the detection system of fine radiation-tracks due to the dark matter recorded on nuclear plates with ultra-fine-grain emulsions as a part of international project for the dark matter search NEWS(Nuclear Emulsion for WIMPs Search). We studied the methods of fluorescence labeling and surface-localized-plasmon-resonance emission for the super-high-resolution microscopy in order to detect fine tracks smaller than the resolution of optical microscope, and observed fine images not-resolving on the microscope. Technologies for nuclear plates such as sensitization method for ultra-fine grain emulsions and noise removal were developed.

研究分野：銀塩写真科学

キーワード：放射線 暗黒物質 飛跡検出 原子核乾板 超微粒子乳剤 超解像顕微鏡法 蛍光標識化 プラズモン共鳴発光

## 1. 研究開始当初の背景

宇宙空間を満たす未知なる重力源である暗黒物質の存在が示唆されてから、この暗黒物質を検出する試みが種々なされている。暗黒物質の存在の証明として、その相互作用で生じる反跳粒子の検出があるが、この反跳粒子のエネルギーは keV オーダーと予測されている。このような低エネルギー粒子の飛跡はきわめて短く、高分解能の飛跡検出器を必要とする。

原子核乾板は古くから用いられている飛跡検出器であり、3次元の高い空間分解能を持つ。これは微細飛跡を方向感度を含めて検出するのに適している。原子核乾板のネックとされる飛跡画像の読み出しも、近年の画像処理技術の進歩で、自動飛跡解析技術が構築され、大面積を高速で解析できるようになってきている。

その中で原子核乾板を用いた暗黒物質探索のための国際プロジェクト NEWS (Nuclear Emulsion for WIMPs Search) が動き出した。そこで解決すべき課題の一つに、微細飛跡像の読み出しがある。原子核乾板に記録された飛跡像の読み出しには、一般に光学顕微鏡が使われてきた。光学顕微鏡は比較的安価で操作も簡便な検出器であるが、解像度は光の波長程度と限界がある。原子核乾板中の反跳粒子の飛跡はこれより短いと予想され、この解像度限界を超える方策が必要である。

方策として、X線顕微鏡や電子顕微鏡などの使用があるが、これらは装置が大がかりで、観察に手間がかかる。もう一つの方法として、光学顕微鏡の解像度限界を超えて観察する超解像顕微鏡法が考えられる。光学顕微鏡を用いることで、大量の原子核乾板を迅速に処理することができる。

このように原子核乾板上の微細飛跡を、光学顕微鏡を用いて超解像顕微鏡法により検出するシステムの構築が求められている。またそれに付随するところの超微粒子を用いた原子核乾板の感度向上、ノイズ除去などを含めた、原子核乾板の特長を活かした暗黒物質の検出システムの開発が、NEWSプロジェクトの推進のために望まれている。

## 2. 研究の目的

暗黒物質による微細飛跡の解析のための超解像顕微鏡法として、蛍光標識化法と表面局在プラズモン共鳴発光法を提案した。これをもとに、(1) 蛍光標識化法による微細飛跡検出システムの構築、(2) 新しい超解像顕微鏡法としてのプラズモン共鳴発光法による現像銀粒子の直接観察、(3) 高解像度の超微粒子乳剤に付随する感度低下を補う有効な増感法の開発、(4) 線・X線によるノイズの低減、(5) 微細像の検証手段としてのX線顕微鏡の改良などを目指した

### (1) 蛍光標識化法

近年この方法を開発し、微細飛跡検出法として検討してきた。しかしここで、用いた蛍

光標識化用色素が製造バッチにより光らないものがあるという問題に直面した。この原因の解明と、蛍光標識化法に適した色素と媒染剤の選定を図った。

さらに高解像度の超微粒子乳剤からなる原子核乾板に打ち込んだ重粒子線の飛跡が蛍光標識化法でも識別できなかった。この原因として、1. 感度が低く、重粒子線に感光しない、2. 飛跡が微細で発光像でも解像しないことが考えられ、原因の特定を進めた。

### (2) 表面局在プラズモン共鳴発光法

現像銀粒子は微細な金属微粒子であり、表面局在プラズモン共鳴発光を示すと考えられる。飛跡を作る現像銀粒子のプラズモン共鳴発光により、微細飛跡の存在を検知できることになる。さらにこの発光は粒子の形状と入射光の偏光方向に依存する。飛跡は現像銀粒子の並んだものであるその方向に共鳴し合い、入射光の偏光角度と飛跡の方向とが一致した時に強い発光を示すことになる。これより飛跡の方向を含めて検出する方法が可能かを検討した。

放射線露出ではエネルギーがごく短時間に多量に付与されて、潜像核が1個のハロゲン化銀粒子中に多数できる。この潜像核個数は放射線のエネルギー付与の情報を含んでいる。しかし現像すると潜像核の個数にかかわらず、1個のハロゲン化銀粒子がそのまま1個の現像銀粒子になるため、このエネルギー付与の情報は失われる。抑制現像法を用いると潜像核個数を数えることができ、エネルギー付与の測定が可能となる。プラズモン共鳴発光法を用いた潜像核個数のカウントが可能かを調べた。

### (3) 超微粒子乳剤増感法

銀塩写真感光材料の感度はハロゲン化銀粒子サイズに比例するため、高解像度の超微粒子では感度が低下し、飛跡が記録されなくなる。超微粒子乳剤に有効な増感法の開発が必須である。

### (4) ノイズ低減法

測定場に線やX線が混在すると、これらによる感光はノイズとなる。線やX線は光子なのでエネルギー付与が小さく、感光力が弱い。原子核乾板の感度を調整してこれらに感光しにくくすると、ノイズを低減することができる。感度の調節によるノイズの低減の可能性を探った。

### (5) X線顕微鏡の解像度

X線顕微鏡は超解像顕微鏡法で得た光学顕微鏡像の検証に有用である。画像処理によるX線顕微鏡像の解像度の向上を図った。

## 3. 研究の方法

### (1) 蛍光標識化法

蛍光標識化法では飛跡を作る現像銀を、蛍光色素の媒染剤となるヨウ化銀に変換する。ヨウ化銀粒子からなる飛跡で示す特異的な緑色発光は不純物の作用が考えられたため、構造の類似した色素混合系を作り、色素を吸

蔵した濾紙上と色素の吸着したヨウ化銀結晶上での発光挙動の違いを調べ、特異的な緑色発光を示す条件を探った。

そのため、蛍光標識化に最適な色素と媒染剤について、種々の色素とハロゲン化銀を試し、飛跡を特異的に光らせるものを探索した。

また、超微粒子乳剤の原子核乾板に強い段階露光を与え、確実に感光している領域で、個々の粒子像を光学顕微鏡で観察し、透過像と発光像の比較を行い、分解能の比較を行った。

#### (2) 表面局在プラズモン共鳴発光法

超微粒子乳剤の原子核乾板に反跳粒子を模した低速イオンを打ち込み、記録された微細飛跡に偏光をかけてプラズモン共鳴発光の観察をした。

さらに潜像核から現像が始まった段階で現像を停止して、各潜像核上に微細な現像銀を作る抑制現像の手法により、潜像核個数を求めた。抑制現像により潜像核の位置に微小現像銀粒子が形成され、これを数えることでハロゲン化銀1粒子中の潜像核の個数が求められる。抑制現像でできる現像銀粒子は微細なため、光学顕微鏡の透過像では解像しないので、プラズモン共鳴による発光での検出を行った。さらにこの現像銀はフィラメント状のため、偏光を入射させれば偏光角度とフィラメントの方向とに相関したプラズモン共鳴発光の強弱を生じる。1個のハロゲン化銀粒子上に形成された複数の微細現像銀粒子に偏光を回転させながら入射すると、偏光角度に応じて順に光る。この方法で潜像核の個数を数えることを試み、エネルギー付与の計測が可能かを調べた。

#### (3) 超微粒子乳剤増感法

超微粒子乳剤ではハロゲンアクセプター(HA)が感度上昇に有効であるという以前の報告をもとに、化学増感とHAの併用での感度上昇の程度を、金+硫黄増感と還元増感について特性曲線を作成して調べ、さらなる感度上昇を検証した。

#### (4) ノイズ低減法

写真乳剤に減感剤としてテトラゾリウム化合物を添加して、感度の異なる原子核乾板を調製し、重粒子線と線照射によるノイズの低減効果を調べた。重粒子線による感光は単位長さあたりの現像銀粒子個数であるグレインデンシティ(GD)で、線による感光は単位体積あたりの現像銀粒子個数であるノイズデンシティ(ND)で評価した。

#### (5) X線顕微鏡の解像度

撮影像におけるX線フレネル回折の影響によるボケが、フレネル回折・逆回折の計算により低減できるかを調べた。

### 4. 研究成果

#### (1) 蛍光標識化法

当初に蛍光標識化色素として用いた NK863 色素 (3,3'-diethyl-2,2'-oxacyanine

iodide)は、単独では飛跡を発光されられないが、ここに構造の類似した NK85 色素 (3,3'-diethyl-2,2'-oxacarboyanine iodide)を微量混合すると飛跡のヨウ化銀上で緑色発光をした。すなわち、当初使用の NK863 色素には、偶然 NK85 色素のような不純物が混入しており、そのような混合系では飛跡が緑色発光することが判明した。図1に示すように、溶液や濾紙に吸蔵された分子状態では、混合系でも緑色発光は見られないが、ヨウ化銀など特定の物質上に混合系を吸着させると緑色発光を示した。これはこれらの物質上に色素が吸着した時に両色素が相互作用をしうる配置をとり、NK863 色素で生じた励起状態が NK85 色素に移動して緑色発光を示したと考えられる。

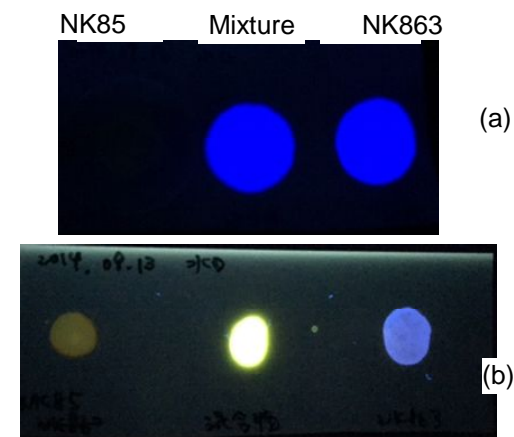


図1. 濾紙上とヨウ化銀結晶上での色素の発光の写真、(a)濾紙上、(b)ヨウ化銀結晶上

蛍光標識化に用いる色素と、そこに混合する色素、それらの最適の組み合わせについて、シアニン色素を中心に多数の色素を探索した。しかしながら NK863 色素と NK85 色素の組み合わせが、発光の強度や発光波長などの観点から、総合的に最良の組み合わせであると結論された。

また、飛跡を作ってそこに色素を吸着させる媒染剤としてヨウ化銀を用いていたが、臭化銀・塩化銀についても検討を加えた。しかし、塩化銀は特異的な緑色発光を示さず、臭化銀は青色と緑色の混合した発光を示して、飛跡の識別能力の点から難があった。媒染剤についても、当初に用いた混合色素系の特異的な緑色発光を強く示すヨウ化銀が最適であった。

露光により生じた微小ヨウ化銀粒子の存在する領域を、光学顕微鏡の透過像と発光像で観察した。図2に示すように透過像では粒子は解像せず、存在は検知されない。一方、発光像では粒子による発光点が個々に区別できるように分布しており、発光像での分解能ははるかに高い。これより、飛跡が観察されなかったのは超微粒子乳剤の感度が低いためと結論され、超微粒子乳剤の増感法が必須であることが示された。

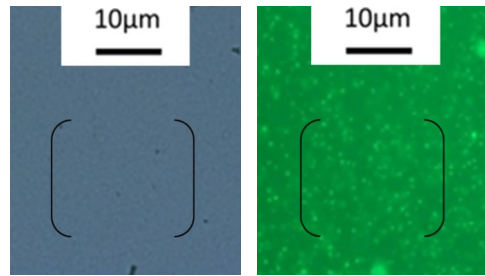


図2. 色素が吸着したヨウ化銀の超微粒子の光学顕微鏡写真, 左: 透過像, 右: 蛍光発光像

### (2) 表面局在プラズモン共鳴発光法

光学顕微鏡の透過像では検出できない微細飛跡をプラズモン共鳴発光で観察すると, 個々の現像銀粒子が発光点として区別して認識され, 発光像では飛跡として検知された。さらに偏光を入射して偏光角度を回転させると, 接近した現像銀粒子間の相互作用により, 回転角度に応じた発光の強弱を示した。偏光角度の解析から飛跡の方向を定めることができ, さらに方向異方性の有無からノイズ粒子との区別が容易になり, 解析精度の向上も得られた。

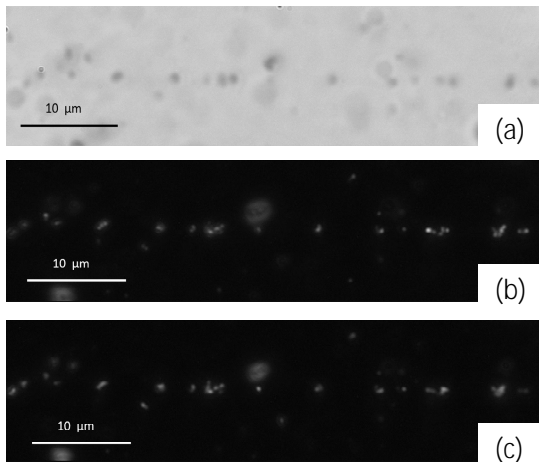


図3. 抑制現像法で形成した微小現像銀粒子による炭素イオンの飛跡の光学顕微鏡写真, (a) 透過像, (b), (c) 偏光角度を90°回転させた時の発光像

抑制現像法で微細なフィラメント状銀をそれぞれの潜像核上に形成した場合, 図3aの光学顕微鏡像に示すように, 現像銀粒子は微細なため透過像では解像しない。プラズモン共鳴発光による像では, 現像銀粒子が発光点となり, 飛跡の存在が検知される。さらに入射光を偏光にして, 偏光を回転させると, 図3のb, cに示すように発光の強弱を示し, 接近した発光点も分離して観察することができた。

これらより, 表面局在プラズモン共鳴発光

法も光学顕微鏡による微細飛跡検出のための超解像顕微鏡法として有用であることが示された。

### (3) 超微粒子乳剤増感法

各種の増感法を超微粒子乳剤に試したところ, 図4に示すように一般的な乳剤で効果の大きい金+硫黄増感も単独では感度上昇は小さかった。ハロゲンアクセプター(HA)単独は効果があるが, 感度上昇は限定的であった。一方, 還元増感単独では感度上昇が大きかった。ここで金+硫黄増感とHAを併用すると, 還元増感単独より大きな感度上昇が得られた。しかし還元増感とHAの併用は, 逆に感度が低下した。

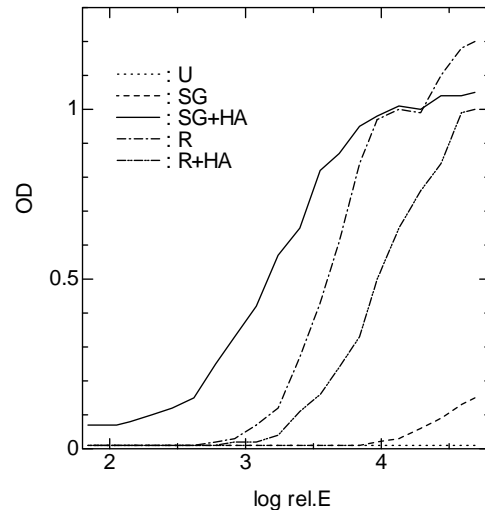


図4. 各種の増感処理をした超微粒子乳剤の特性曲線, U: 未増感, SG: 金+硫黄増感, R: 還元増感, HA: ハロゲンアクセプター

これより超微粒子乳剤における金+硫黄増感とHAの増感作用は異なるものであり, HAは金+硫黄増感の増感効果を強めるが, 還元増感とHAは作用が類似して互いの作用を妨害しあうため, 感度低下を招くと考察された。

### (4) ノイズ低減法

フェノサフランンの添加量を変えて感度を変えた原子核乾板に打ち込んだ炭素イオンのGDと, 線のNDの変化を図5に示す。添加量増大に伴いNDは連続的に低下するが, GDは一定の値を保った後急激に低下した。このため鎖線で示す添加量では, NDは小さいがGDはまだ一定値を保っており, 線によるノイズを消去して, 重粒子の飛跡情報が得られた。原子核乾板の感度調節によりノイズを消去して, S/Nの向上が可能であることが示された。



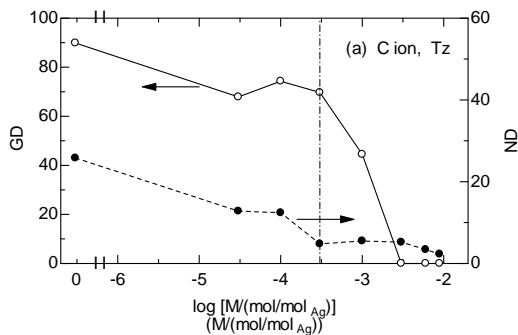


図5 炭素イオンによるGDと、線によるNDのテトラポトリウム化合物添加量依存性

#### (5) X線顕微鏡の解像度

撮影像に対しフレネル回折・逆回折計算を繰り返すことにより、X線フレネル回折の影響によるボケが低減された。

#### 5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計11件)

1. K.Kuge, K.Morimoto, "Sensitization of ultra-fine-grain photographic emulsions (II): Combination of chemical sensitization and halogen acceptors", *Bull. Soc. Photogr. Imag. Japan*, 査読有り, **27**, (2017), in press.
2. Jamsranjav Erdenetogtokh, K.Kuge, A.Ito, Y.Kinjo, T.Shiina, "Evaluation of noise limits to improve image processing in soft X-ray projection microscopy", *J. X-Ray Sci.Tech.*, 査読有り, (2017), in press.
3. Jamsranjav Erdenetogtokh, 久下謙一, 伊藤 敦, 金城康人, 椎名達雄, 「拡大投影型軟X線顕微鏡での像修正におけるノイズ除去の効果」, *RADIOISOTOPES*, 査読有り, **66**, 137-148 (2017), doi: 10.3769/radioisotopes.66.137.
4. J.B.R.Battat, I.G.Irastorza, K.Kuge, T.Naka, *NEWS collaboration (89 members)*, "Readout technologies for directional WIMP Dark Matter detection", *Physics Reports*, 査読有り, **662**, 1-46 (2016) doi:10.1016/j.physrep.2016.10.001.
5. 久下謙一, 稲葉俊喜, 鈴木秀祐, 小平 聡, 「銀塩写真感光材料の感度調節による放射線飛跡の弁別検出」, *日本写真学会誌*, 査読有り, **79**, 376-381 (2016), URL: 登録待.
6. 高田俊二, 久下謙一, 「低速粒子飛跡の光感度検出に関する考察 - 低温トリボルミネッセンスの観察から」, *日本写真学会誌*, 査読無し, **79**, 275-279 (2016), URL: 登録待.
7. 久下謙一, 「光と放射線による銀塩写真の感光の原理」, *日本写真学会誌*, 査読無し, **79**, 65-69 (2016), URL: [https://www.jstage.jst.go.jp/article/hotogrst/79/1/79\\_65/\\_pdf](https://www.jstage.jst.go.jp/article/hotogrst/79/1/79_65/_pdf).
8. Erdenetogtokh Jamsranjav, T.Shiina,

K.Kuge, Y.Kinjo, Y.Nakamura, K.Shinohara, A.Ito, "Effect of contrast enhancement prior to iteration procedure on image correction for soft x-ray projection microscopy", *AIP Conference Proceedings*, 査読有り, **1696**, 020037 (2016), URL: <http://aip.scitation.org/doi/pdf/10.1063/1.4937531>.

9. 中 竜大, 「超微粒子原子核乾板による方向感度を持った暗黒物質探索実験と新技術」, *日本写真学会誌*, 査読無し, **78**, 218-227 (2015), URL: [https://www.jstage.jst.go.jp/article/hotogrst/78/4/78\\_218/\\_pdf](https://www.jstage.jst.go.jp/article/hotogrst/78/4/78_218/_pdf).
10. 久下謙一, 水口剛太郎, 伊瀬谷夏輝, 宮川信一, 「銀塩写真感光材料に記録された放射線飛跡の蛍光標識化法による検出(2): ヨウ化銀に吸着した色素混合系での蛍光発光の増強」, *日本写真学会誌*, 査読有り, **78**, 169-173 (2015), URL: [https://www.jstage.jst.go.jp/article/hotogrst/78/3/78\\_169/\\_pdf](https://www.jstage.jst.go.jp/article/hotogrst/78/3/78_169/_pdf).
11. 山下清司, 大島直人, 高田俊二, 久下謙一, 「誘電損失法によるハロゲン化銀微結晶の空間電荷層の研究( ) 表面空間電荷層のPauly-Schwan/Hanai理論による解析」, *日本写真学会誌*, 査読有り, **78**, 174-181 (2015), URL: [https://www.jstage.jst.go.jp/article/hotogrst/78/3/78\\_174/\\_pdf](https://www.jstage.jst.go.jp/article/hotogrst/78/3/78_174/_pdf).

[学会発表](計54件)

1. O.Sato, "Charge determination for high-Z nucleus by fine grain nuclear emulsion", *The 3rd International Symposium on "Quest for the Origin of Particles and the Universe"(KMI2017)*, Nagoya (Japan), 2017/1/5-7.
2. T.Naka, "Direction Sensitive Direct Dark Matter Search with Super-High Resolution Nuclear Emulsions", *The 3rd International Symposium on "Quest for the Origin of Particles and the Universe"(KMI2017)*, Nagoya (Japan), 2017/1/5-7.
3. 久下謙一, 安達考洋, 梅本篤宏, 中 竜大, 小平 聡, 「原子核乾板とプラズモン共鳴発光を用いた放射線飛跡のエネルギーロス測定」, 第31回固体飛跡検出器研究会, 量子科学技術研究開発機構 関西光科学研究所(木津), 2017/3/9-10.
4. 久下謙一, 水口剛太郎, 伊瀬谷夏輝, 田代弘生, 「銀塩写真感光材料に記録された放射線飛跡の蛍光標識化法による検出(7): 色素混合系での蛍光発光増強の基板依存性」, 画像関連学会連合会第3回秋季大会, 京都工芸繊維大学(京都), 2016/11/17-18.
5. 浅田貴志, 中竜大, 桂川貴義, 吉本雅浩, 梅本篤宏, 市来浩勝, 岡田晟那, 佐藤修,

- 久下謙一, NEWS collaboration, 「エマルジョン暗黒物質探索実験 NEWS(1)～検出器応答を含む方向感度シミュレーション～」, 日本物理学会秋季大会, 宮崎大学(宮崎), 2016/9/21-24.
6. 梅本篤宏, 中竜大, 浅田貴志, 桂川貴義, 吉本雅浩, 古屋駿二, 待井翔吾, 市来浩勝, 木村充宏, 佐藤修, 久下謙一, NEWS collaboration, 「エマルジョン暗黒物質探索実験 NEWS(1) プラズモニクスを用いた飛跡検出性能の評価」, 日本物理学会年次大会, 東北学院大(仙台), 2016/3/19-22.
7. 水口剛太郎, 伊瀬谷夏輝, 小平聡, 久下謙一, 「銀塩感光材料に記録された放射線飛跡の蛍光標識化による検出(6) 蛍光標識化法の改良」, 画像関連学会連合会第2回秋季大会, 京都工芸繊維大学(京都), 2015/11/19-20.
8. S.Takada, K.Kuge, “Design of photographic emulsion to detect ionizing radiation tracks: Detecting ultra-short tracks with an ultra-fine grain emulsion”, The 1st International Conference on Advanced Imaging (ICAI), invited, Tokyo (Japan), 2015/6/17-19.
9. N.Iseya, K.Kuge, M.Miyagawa, G.Mizuguchi, “Detection of radiation tracks recorded on silver-salt photographic materials by fluorescence-labeling method (IV).; fluorescence enhancement by mixed-dye system adsorbed on silver Iodide”, The 1st International Conference on Advanced Imaging (ICAI), Tokyo (Japan), 2015/6/17-19.
10. 梅本篤宏, 中竜大, 浅田貴志, 桂川貴義, 吉本雅浩, 古屋俊二, 待井翔吾, 田中阿由菜, 中村光廣, 中野敏行, 佐藤修, 桑原謙一, 田原謙, 久下謙一, 「エマルジョン暗黒物質探索実験(3)～超解像技術を用いた飛跡解析法の研究開発～」, 2015年日本物理学会年次大会, 早稲田大学(東京), 2015/3/21-24.
11. Asada T., Naka T., Katsuragawa T., Yoshimoto M., Umemoto A., Furuya S., Machii S., Ichiki H., Sato O., Tawara Y., de Lellis G., Di Crescenzo A., Aleksandrov A., Tioukov T., Sirignano C., D’Ambrossio D., Di Marco N., Pupilli F., Rosa G., Monacelli P. “The performance and status of directional dark matter search with the nuclear emulsion”, CYGNUS2015 5th Workshop on Directional Detection of Dark Matter, Los Angeles, (USA), 2015/6/2-4.
12. 水口剛太郎, 伊瀬谷夏輝, 小平聡, 大石恭史, 久下謙一, 「銀塩写真感光材料に記録された放射線飛跡の蛍光標識化による検出(3) 蛍光発光メカニズムの解析」, 画像関連学会連合会第1回秋季合同大会, 京都, 2014/11/20-21.
13. 梅本篤宏, 中竜大, 浅田貴志, 桂川貴義, 中村光廣, 「暗黒物質方向探索実験における表面プラズモン共鳴を利用した飛跡解析」, 2014年日本物理学会秋季大会 佐賀大学(佐賀), 2014/9/18-21.
- 他
- 〔図書〕(計 1件)
1. 久下謙一, 「写真の百科事典」, 朝倉書店, (2014), 編集委員長, 408 ページ.
6. 研究組織
- (1) 研究代表者  
久下謙一 (KEN'ICHI Kuge)  
千葉大学・大学院融合科学研究科・教授  
研究者番号: 10125924
- (2) 研究分担者  
中 竜大 (NAKA Tatsuhiro)  
名古屋大学・現像解析研究センター・特任助教  
研究者番号: 00608888
- 佐藤 修 (SATO Osamu)  
名古屋大学・未来材料・システム研究所・助教  
研究者番号: 20377964