

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 5月21日現在

機関番号：13901

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011年度・2012年度

課題番号：23654083

研究課題名（和文）

革新的超高機能原子核乾板の開発

研究課題名（英文）

R&D of high quality nuclear emulsion

研究代表者

中村 光廣（NAKAMURA MITSUHIRO）

名古屋大学・現象解析研究センター・准教授

研究者番号：90183889

研究成果の概要（和文）：

日本の独自技術であり、タウニュートリノ検出やニュートリノ振動の研究で大きな役割を果たしている原子核乾板に、自前の原子核乾板製造装置を用いて、これまでになかった高機能性（高感度、高位置分解能、低BG性等）を付加し、広い用途（素粒子／原子核／宇宙線実験、原子力研究、中性子ラジオグラフィ、 μ 粒子ラジオグラフィなど）のニーズに答えるための基礎研究を行った。

研究成果の概要（英文）：

In order to deal with new needs from wider applications in elementary particle and nuclear physics, cosmic-ray studies, research in atomic power plants, neutron radiography and muon radiography, we performed a basic study to add functions like high sensitivity, high resolution and low radioactive background to the nuclear emulsion detector which has been a kind of original technology of Japan by using original nuclear emulsion gel production system.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2011年度	1,000,000	300,000	1,300,000
2012年度	900,000	270,000	1,170,000
総計	1,900,000	570,000	2,470,000

研究分野：素粒子物理学

科研費の分科・細目：

キーワード：原子核乾板、放射線検出器

1. 研究開始当初の背景

原子核乾板は、銀塩写真の一種で有り、ハロゲン化銀のサブミクロンサイズの微結晶をその検出の基本単位とする検出器である。

我々はこの原子核乾板を用いて、チャームクォークを含むハドロンや、タウニュートリノ検出、ニュートリノ振動の研究などを行ってきた。

これまで原子核乾板本体の開発・製造は写真フィルムメーカーである企業により担われてきたが、写真のデジタル化によって企業における写真技術開発のニーズは縮小し、新たな開発はほとんど不可能になっている。

我々は、この機会を写真フィルムの基礎技術を大学に引き継ぎ、自分たちの研究目的に向けてさらに発展させる機会ととらえて、2010年度から企業OBの写真技術者の全面的な協力を得て、最新鋭の写真乳剤製造装置を導入し、その開発・製造を開始した。

2. 研究の目的

日本の独自技術であり、タウニュートリノ検出やニュートリノ振動の研究で大きな役割を果たしている原子核乾板に、これまでになかった高機能性（超高感度、超高位置分解能、高BG耐性、高環境耐性、低BG性等）

を付加し、広い用途（素粒子／原子核／宇宙線実験、原子力研究、中性子ラジオグラフィ、 μ 粒子ラジオグラフィなど）のニーズに答えることが目的である。

3. 研究の方法

名古屋大学に設置した最新の乳剤製造装置を駆使して、写真科学者・技術者らの協力の元、原子核乳剤の高機能化をはかった。

研究に当たっては、元写真学会長で写真科学者の谷忠昭氏、千葉大学の写真科学者の久下謙一氏らの理論的アドバイスを受けながら、富士フイルム OB の桑原謙一氏の指導の下、研究員の長縄直崇が実質的な開発を担当し、定期的に評価のためのワーキンググループを開催し、研究代表者中村がこのグループ全体と研究をマネジメントした。

使用した原子核乳剤の製造装置は写真 1 に示す物で、硝酸銀供給用の精密液注入装置が 2 本、ハロゲン供給用の精密液注入装置 2 本、注入された液を混合する高速混合機、銀イオン濃度モニター、PH モニター、温度センサー等からなる。2 本ある精密液注入装置に成分・濃度の異なる硝酸銀やハロゲン化カリウムなどを準備することによって、二層構造のハロゲン化銀結晶を作る事が可能である。混合はダブルジェット法と言われる方法で行われて、粒子径のそろったハロゲン化銀微粒子を形成することが可能である。



写真 1 使用した原子核乳剤製造装置

粒子形成後は、残留している硝酸イオンとカリウムイオンを除去するための洗浄を行い、最後に微結晶の表面に微結晶内の電子状態を制御する硫化銀や金を添加して感度調整を行う。

評価期間を含めて年間約 20 バッチ程度を試作した。試作乳剤は研究室の暗室でフィルム化し、岡崎分子研の UVSOR を用いて高エネルギー電子を照射後現像、現像されたサン

プルは手持ちの顕微鏡システムや、自動飛跡読取装置でその性能を評価した。

また製造した乳剤のハロゲン化銀微結晶の観察・サイズの測定は、医学部の電子顕微鏡群（SEM, TEM）や、Spring-8 の X 線顕微鏡を用いて撮像評価した。

写真 2 に、その一例（直径約 200nm のハロゲン化銀を示す。

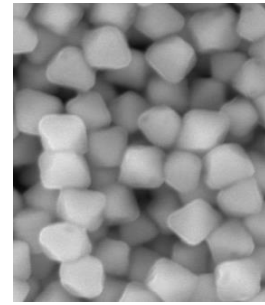


写真 2 生成したハロゲン化銀(200nm)

4. 研究成果

1) 高感度化

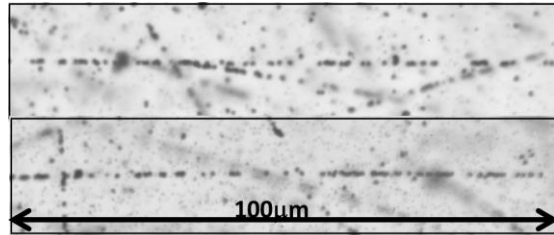


写真 3 開発した高感度乳剤

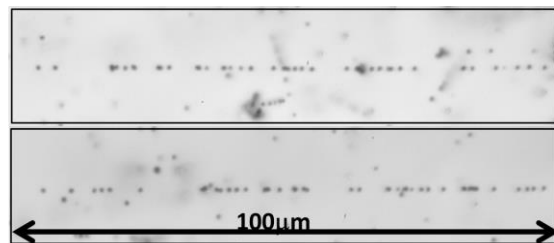


写真 4 従来品 OPERA 型乳剤

乳剤中に含まれるゼラチンの割合を下げることで、高銀化乳剤の開発を行った。密度は従来の OPERA フィルムの 2.7 程度に対して 4.0 を越える物を試作した。

これと並行して、ハロゲン化銀の結晶構造（二層シェル構造）の層中に含まれる鉄イオン濃度や、ヨウ素の割合を調整する事によって、最小電離粒子の飛跡に沿って記録される銀粒子密度が ~ 85 個/100ミクロンのものを得ることに成功した（写真 3）。これは従来の約 30 個/100 ミクロン（写真 4）に比して約 3 倍高感度なものとなっており、 γ 線望遠鏡や μ 粒子ラジオグラフィなどの最小電離粒子検出の用途に適した物とする事が出来ている。

ゼラチンが少なくなったために、乳剤の保存安定性や、製造したフィルムの性能の安定性の再調整が必要であり、本研究期間の終了後もその調整を追求している。フィルムの安

定性は、日本の原子核乾板グループ計画している気球搭載型の γ 線望遠鏡の用途（回収時に砂漠などに落下、回収まで1週間程度40°C程度の高温下に曝される可能性がある。）や、火山の μ 粒子ラジオグラフィーなどでは設置場所を選ばない等のために重要であり、今後この方面に特化した研究の展開を行う予定である。

2) 高位置分解能化

高位置分解能化を目指すためには、その検出単位であるハロゲン化銀の微粒子化を行う必要があったが、数10nmの超微粒子の乳剤形成に当たっては従来その安定性が問題とされていた。

実際に以前富士フィルムで40nmサイズの微粒子乳剤を試作してもらったところ、製造後時間がたつにつれて結晶同士がくっついてしまい粗大化し使い物にならなくなるという問題があった。

文献調査や、専門家のアドバイスの元、これを防ぐ手法として、微結晶を分散させるために使用しているゼラチンにプラスチック系のポリマーを混合すると言う手法を試したところ、製造時はうまくゆくことを確認したが、その後の乳剤洗浄ならびに感度調整のところでやはり粗大銀が発生する結果となった。研究グループの院生の浅田貴志君の発案で、プロセス全体を通して、ポリマー濃度制御を導入したところ、全プロセスにわたって安定に微結晶状態を保つことが出来る事が確認されこの問題を突破できた。

写真5にこの手法で製造した35nmと70nmの微結晶乳剤のSEM写真を示す。

現在20nmから250nm程度のサイズの物までを安定に製造できる様になっている。微粒子乳剤に関しては感度などの最適化に関してはこれからの課題である。

3) 低バックグラウンド化

ハロゲン化銀微結晶は、従来硝酸銀とハロゲン化カリウムを用いて製造していたが、カリウムには ^{40}K と言

う天然の放射性同位体（半減期12億年）が0.01%含まれており、その崩壊のために、バックグラウンドとなる電子の飛跡が蓄積されることがわかっていた。そこでカリウムに代わりナトリウムを用いる試験を行い、ナトリウムでも同等の性能の乳剤を製造できることを確認した。

写真2で示したハロゲン化銀、写真3で示した高感度乳剤はナトリウムを用いて製造した物である。

ゼラチンにはこれ以外に天然由来のトリウムやウラン系列の放射性物質が含まれることを、これまでの実験から確認している。これらの放射性物質は、ゼラチンの元である牛の骨に自然界から取り込まれた物であり、その除去は簡単ではない。今後石油系のゼラチン代替品の追求などを行ってゆく予定である。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計1件)

- ① Research Activity of Fken, Author M. Nakamura, Proceedings of the KMI Inauguration Conference, "Quest for the origin of particles and the universe. 24-26 October 2011, Nagoya. World Scientific. (査読無し)

[学会発表] (計7件)

- ② High sensitivity nuclear emulsion gel - its development and production (poster), Author Naotaka Naganawa, Neutrino 2012, June 3-9 2012, Kyoto, Japan.
- ③ 新型原子核乳剤の開発および飛跡読み取り技術の最新状況、発表者：長縄直崇、日本物理学会2011年秋季大会、弘前大学、2011/09/16-19.
- ④ 高感度原子核乳剤の開発、発表者：長縄直崇、2011年度日本写真学会秋季研究発表会、日時：2011年12月5日、京都教育文化センター。
- ⑤ 高感度原子核乳剤の開発、発表者：長縄直崇、日本物理学会2012年春季大会、関西学院大学、2012/03/24-27.
- ⑥ 高感度原子核乳剤の開発、発表者：長縄直崇、2012年度日本写真学会年次大会、2012年5月29-30日、千葉大学
- ⑦ 超微粒子原子核乾板における粒子のエネルギー損失メカニズムに対する潜像形成メカニズムの研究、発表者：中 竜大、2012年度日本写真学会 秋季研究発表会、2012年11月30日、京都工芸繊維大学
- ⑧ 低温条件下における潜像形成機構の差異に対する現像効率の研究、発表者：袴田香奈子、2012年度日本写真学会 秋季研究発表会、2012年11月30日、京都工

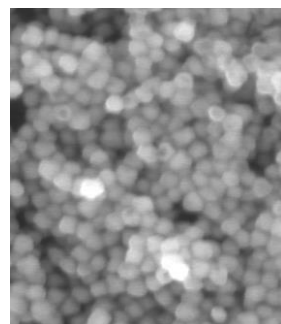
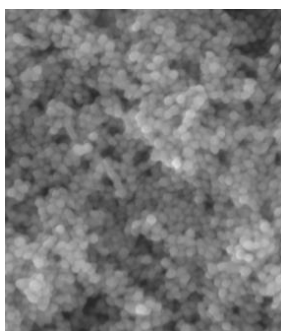


写真5 35nm 微結晶乳剤 (上) と 70nm 乳剤 (下)

芸繊維大学

〔図書〕（計0件）

〔産業財産権〕

○出願状況（計0件）

○取得状況（計0件）

〔その他〕

ホームページ等

<http://flab.phys.nagoya-u.ac.jp/2011/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

中村光廣 (NAKAMURA Mitsuhiro)

名古屋大学・現象解析研究センター・准教

授 研究者番号：90183889

(2) 研究分担者

なし