

整理番号	2023-J-043	報告者氏名	六條宏紀
------	------------	-------	------

## 研究課題名

超微粒子・高感度型写真感光材料の開発と宇宙線ミュオン粒子計測への応用

<代表研究者> 機関名：名古屋大学（現：九州大学） 職名：助教 氏名：六條宏紀

<共同研究者> 機関名：名古屋大学 職名：博士前期課程2年 氏名：諫山雄大

機関名：名古屋大学 職名：博士後期課程2年 氏名：臼田育矢

機関名：名古屋大学 職名：機関研究員 氏名：長原翔伍

機関名：名古屋大学 職名：研究員 氏名：山本紗矢

機関名：名古屋大学 職名：特任助教 氏名：中村悠哉

## &lt;研究内容・成果等の要約&gt;

宇宙線ミュオンイメージング計測（ミュオンラジオグラフィ）は、宇宙から降り注ぐ高エネルギーの素粒子「ミュオン粒子（ミュオン）」を利用した大型構造物内部の密度構造を透視撮影する技術である。例えば、土木構造物や地盤の密度構造をミュオンラジオグラフィによって計測し、劣化状態を早期に診断・把握できる。この計測手法が確立されることで、社会インフラの長寿命化や維持管理に役立ち、安心・安全な暮らし、経済的な損失を抑えるなどの環境調和型で省エネルギーな社会作りに大きく貢献することが期待されている。

名古屋大学の研究グループは、ミュオン粒子の検出・計測に「原子核乾板」と呼ばれる写真感光材料の原理を用いた検出器を使用してきた。本研究は、原子核乾板そのものに革新的な改良・変更を加えて高機能な原子核乾板を開発し、ミュオンラジオグラフィ等の計測技術の性能向上を目指した。

以下の研究成果について報告する。

1. 原子核乳剤の製造効率化、収量2倍化を可能にする乳剤製造方法の改良を行った。1回の製造工程でこれまでの2倍の臭化銀結晶を含んだ“高銀量”乳剤を開発した。最終工程で高銀量乳剤にゼラチンを加え希釈することで、装置や設備のスケールを大型化せずとも、これまでと変わらない作業量で、研究に使用可能な原子核乳剤の収量を2倍に増加することが見込める。標準製造の乾板と比べて、同等の初期性能と保管特性であることが確かめた。本手法は、製造速度2倍を達成する製造方法として、既に量産プロセスへの導入が完了している。
2. 原子核乾板の新たな増感方法の検討を行った。これまで原子核乾板で実績のなかった水素による超増感の効果を確認する試験を行った。硫黄増感と組み合わせることで、原子核乾板の感度を上昇させる効果を初めて確認でき、水素超増感が原子核乾板の適時感度制御を実現する可能性を見出した。

<研究発表（口頭、ポスター、誌上別）>

**【口頭発表】**

[1] Hiroki Rokujo

Nagoya University Nuclear Emulsion Facility: Recent Activities and Prospects of Film Production  
International Conference on Materials and Systems for Sustainability 2023 (ICMaSS2023), 6 Nov.  
2023, online

[2] 六條宏紀

原子核乾板および計測技術開発と活用の現状

研究会「放射線検出器とその応用」(第38回)、2024年1月23日、高エネルギー加速器研究機構

[3] 諫山雄大、六條宏紀、臼田育矢、中村悠哉、山本紗矢、長原翔伍

水素超増感による原子核乾板の感度上昇試験

2024年度 日本写真学会年次大会、2024年5月17日、千葉大学西千葉キャンパス

[4] 諫山雄大、六條宏紀、臼田育矢、中村悠哉、山本紗矢、長原翔伍

水素超増感による原子核乾板の感度上昇試験2

第10回画像関連学会連合会秋季大会、2024年11月22日、京都工芸繊維大学

[5] 六條宏紀、臼田育矢、中村悠哉、山本紗矢、長原翔伍

原子核乾板における水素超増感を用いた荷電粒子飛跡に対する感度制御の実証

2025年度 日本写真学会年次大会、2025年5月31日、東京工芸大学

**【ポスター発表】**

[6] 六條宏紀、諫山雄大

「原子核乾板の水素超増感試験」

第9回画像関連学会連合会秋季大会、2023年11月13日、名古屋大学

[7] 六條宏紀、他

「名古屋大学製原子核乳剤製造方法の改良~結晶形成・脱塩工程の高銀量化~」

第10回画像関連学会連合会秋季大会、2024年11月21日、京都工芸繊維大学

**【誌上発表】**

[8] H. Rokujo, Y. Isayama and T. Nakano

Performance Evaluation of Nuclear Emulsion Sensitized by Hydrogen Gas  
UVSOR ACTIVITY REPORT 2023

[9] 六條宏紀, 諫山雄大, 日本写真学会誌 86 (2023), 426.

[10] 諫山雄大, 六條宏紀 他, 日本写真学会誌 87 (2024), 273.

[11] 諫山雄大, 六條宏紀 他, 日本写真学会誌 88 (2025), 59.

[12] 六條宏紀 他, 日本写真学会誌 88 (2025), 82.

[13] 諫山雄大, 名古屋大学 修士論文, 2025年

[14] 六條宏紀, 12 諫山雄大, 他, 日本写真学会誌 88 (2025), 259.

<研究の目的、経過、結果、考察（5000 字程度、中間報告は 2000 字程度）>

### 【研究の目的】

宇宙線ミュオンイメージング計測（ミュオンラジオグラフィ）は、宇宙から降り注ぐ高エネルギーの素粒子「ミュオン粒子（ミュオン）」を利用した大型構造物内部の密度構造を透視撮影する技術（X 線を用いたレントゲン撮影の大型版）である。エジプト・ピラミッド内部の観測において未知の新空間を発見するなど筆頭に近年急速に応用分野・適用範囲が広がりつつあり、極めて高い注目を集めている。例えば、土木構造物や地盤の密度構造をミュオンラジオグラフィによって計測し、劣化状態を早期に診断・把握できる。この計測手法が確立されることで、社会インフラの長寿命化や維持管理に役立ち、安心・安全な暮らし、経済的な損失を抑えるなどの環境調和型で省エネルギーな社会作りに大きく貢献することが期待されている。

名古屋大学の研究グループは、ミュオン粒子の検出・計測に「原子核乾板」と呼ばれる写真感光材料の原理を用いた検出器を使用してきた。本研究は、原子核乾板そのものに革新的な改良・変更を加えて高機能な原子核乾板を開発し、ミュオンラジオグラフィ等の計測技術の性能向上を目指す。

原子核乾板は写真感光材料の原理を用いた素粒子・放射線飛跡検出器である。ゼラチン中に臭化銀結晶（半導体）を分散させた「乳剤」をプラスチックなどの透明な支持体に塗布した構造をもつ。個々の臭化銀結晶（粒子径は通常 200 ナノメートル）は、光や荷電粒子のセンサーとして機能し、一般的な写真フィルムと同様に現像工程を経ることで、結晶中に残る感光核を中心に銀粒子の塊が成長して、光学顕微鏡で観察可能な像が現れる。原子核乾板は、荷電粒子、特に光速に近い速さで運動する電離作用の小さい高エネルギー荷電粒子の観察・測定に特化した特殊な写真フィルムであり、その通過位置を銀粒子の連なりとして観察することができ、サブミクロンの空間分解能で精密に計測できる。

一方で、原子核乾板を用いた計測には、まだ技術的な課題が多くあり、その取り扱いには専門的な技能が必要とされ、習熟が必須となっている。また近年の銀価格の高騰から原子核乾板の製造コストも上がっている傾向がある。本研究では、原子核乾板そのものに革新的な改良・変更を加え、より安定、簡便、安価、高性能な原子核乾板の確立を目指し、これによりユーザー拡大を促し、産業分野への普及を加速させることを目的とする。

### 【経過】

#### 研究経過 1. (実験 1.)

原子核乳剤の製造効率化を目的とした製造方法の改良に取り組んだ。1 回の製造工程でこれまでの 2 倍の臭化銀結晶（粒子径や性能は変わらない）を含んだ“高銀量”乳剤を開発した。最終工程で高銀量乳剤にゼラチンを加え希釈することで、装置や設備のスケールを大型化せずとも、これまでと変わらない作業量で、研究に使用可能な原子核乳剤の収量を 2 倍に増加することが見込める。

方法 1.1 結晶形成工程: 最小電離粒子の検出に用いる標準的な原子核乳剤には粒子径 200nm の AgBrI 結晶（ヨウ素を含むコアシェル構造）を用いている。高銀量乳剤を製造するため、結晶形成時に添加する硝酸銀水溶液やハロゲン水溶液を約 2 倍に高濃度化した調液の変更を行った。さらに核形成時や結晶成長時の溶液添加および温度条件を調整した。乳剤をサンプリングし、結晶サイズを測定した(A)。

方法 1.2 脱塩工程: 結晶形成後の高銀量乳剤中には不要なイオンも 2 倍の濃度で含まれる。イオンの除去率を標準工程と同等にするため、水洗回数を（標準より 1 回多い）4 回とした。また、沈降剤添加量を通常の 3 倍とし、pH を調節したことで、標準工程とほぼ変わらない作業時間で脱塩作業を行うことができた。分散後の乳剤をサンプリングし、乳剤中のゼラチン量を評価した(B)。

方法 1.3 感度・ノイズの計時変化の評価: 多くの研究グループで使用している銀量（塗布乾燥後の乾板中のゼラチン体積が 65%）となるよう高銀量乳剤にゼラチンを加えて希釈し、金硫黄増感処理を施した。

新工程で製造した原子核乳剤と、標準工程で製造した乳剤をそれぞれ自動塗布装置を用いてフィルム化し、50度の恒温槽で保管後、数10MeV電子ビームに対する感度およびノイズ(fog密度)を評価した(C)。

## 研究経過 2.(実験 2.)

本研究では感度制御について取り組んだ。特に増感手法について、これまで原子核乾板で実績のなかった水素による超増感の効果を確かめる試験に着手した。水素超増感法は、天体写真における増感プロセスの一つとして知られている。その原理は、水素ガスの還元作用を利用して臭化銀結晶上に還元増感中心を生成させ、感度を上げるというものである[15]。露光前にフィルムを水素ガスでベーキングすることで、一時的に感度を上げることができる。従来の写真フィルムは空気中で使用されるため、ガス処理後、数日間しか感度を保持できない。これまでに原子核乾板と水素超増感の組み合わせで実用化された報告はない。そこで、水素ガスを用いて原子核乾板の感度制御を試みた。

方法 2.1 原子核乾板作製:名古屋大学において原子核乳剤(粒径 200nmAgBrI 結晶、ゼラチン体積割合 65%)を作成した。乳剤状態での化学増感は硫黄増感のみを行い、ポリスチレンベース片面に乾燥膜厚 20 $\mu$ m となるよう塗布、乾燥を行い、低感度の原子核乾板を作成した。

方法 2.2 水素超増感:作製した低感度の原子核乾板を圧力容器に入れ、0.05 気圧下で 2 日間脱気処理を行い、その後、窒素+水素混合ガス(水素濃度 2%)を容器内へ 1.3 気圧になるまで注入した。この圧力容器ごと恒温槽へ入れ、27 度下で暴露処理を行った。暴露時間は 0.5、1、2 日間と条件を変えて行った。

方法 2.3 ベータ線照射:乾板を容器から取り出し、ベータ線源(<sup>90</sup>Sr)を 30 秒間密着させて照射した。照射直後に乾板は現像処理(現像、停止、定着、水洗)を行なった。

方法 2.4. 測定:センシトメーターを用いて現像後の乾板の黒化度の測定を行なった。ベータ線照射部中央の黒化度を  $D_b$ 、未照射部の黒化度を  $D_{BG}$  とした。加えてノイズ(カブリ粒子の密度)を示す fog density を測定した。 $D_b$  から  $D_{BG}$  を差し引いた値をベータ線飛跡による黒化度とした。

## 【結果】

### 実験結果 1

A: 高銀量乳剤中の結晶サイズの平均値や分散は、標準工程の乳剤と同等となった。

B: 脱塩工程で洗い流されたゼラチンの割合は 22%と測定した。これは標準工程の場合(48%)と比べて優位に低い値となった。沈降剤の量や結晶数が増加していることが原因と考えられる。

C: 図 1 に新工程と標準工程のフィルムの fog density および grain density の測定結果を示す。両者は同等の性能および計時特性を示した。

### 実験結果 2

図 2 にベータ線飛跡に対する感度( $D_b - D_{BG}$ )と Fog Density の測定結果を示す。今回の硫黄増感のみの化学増感を施した原子核乾板は、金硫黄増感済みの原子核乾板乾板に比べ感度が半分(相対感度 0.5、図 2 中第二縦軸として表示)となった。この乾板に暴露時間 0.5 日の水素超増感を施すと、相対感度が 0.74 へと上昇した。暴露時間をより伸ばした場合、感度のさらなる上昇は見られず、fog が上昇した。

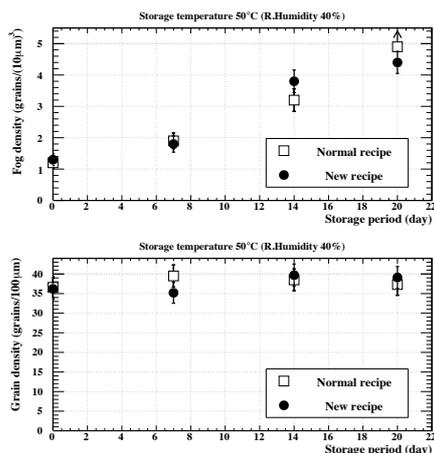


図 1. 新工程と標準工程で製造した原子核乾板の fog density および grain density の計時変化(50 度環境) [12]

### 【考察】

実験 1 の結果より、原子核乳剤の製造効率化、収量 2 倍化を可能にする乳剤製造方法の改良を行った。これまでの標準工程の乳剤と同等の性能、計時特性であることを確認した。1 回の製造工程でこれまでの 2 倍の臭化銀結晶を含んだ“高銀量”乳剤を開発した。最終工程で高銀量乳剤にゼラチンを加え希釈することで、装置や設備のスケールを大型化せずとも、これまでと変わらない作業量で、研究に使用可能な原子核乳剤の収量を 2 倍に増加することが見込める。

この新たな製造レシピをフィルム of 量産製造に導入し、実用化を達成した。今後は実用化を進めていく。本研究成果により、量産型装置の 1 運転あたりの製造コストを下げ、原子核乾板のコスト低下が期待される。今後、乾板の長期性能の安定性について引き続き詳細に調べていく。

実験 2 の結果より、硫黄増感済み乾板で初めて水素超増感による荷電粒子に対する感度上昇効果が観測された。結晶表面にできた  $\text{Ag}_2\text{S}$  が、水素暴露によって作られた  $\text{Ag}_2$  を安定化させ、増感効果を促進したと考えられる[16]。先行研究では、未化学増感乾板に水素超増感を施すと激しい fog 増加が起こる一方で感度の上昇が観測されなかった[10,11]。

原子核乾板は製造から現像までの間、全ての最小電離粒子の飛跡を記録し続けることから、使用期間・使用環境に制限がある。製造後の低感度の原子核乾板を任意のタイミングで増感・減感できれば、従来は難しかった火山の噴火、雷、太陽フレアなどの突発的に起きる稀な現象の観測や、月の資源探査のための放射線環境の計測など、新たな研究領域への適用が可能となる。原子核乾板を水素ガスに晒すことで、感度を一時的に上昇させるような感度制御方法を確認することができれば、実験/観測の前後で原子核乾板の感度を ON/OFF するスイッチ機能を持たせることへと発展させることができる。月面などの宇宙空間での測定にも応用するなど、新たな用途への拡大が期待される。本研究では、硫黄増感と組み合わせることで、原子核乾板の感度を上昇させる効果を初めて確認でき、水素超増感が原子核乾板の適時感度制御を実現する可能性を見出した [13]。

### 参考文献

[15] 谷忠昭. 日本写真学会誌 81 (2018): 108-117.

[16] T.A.Babcock et al. Photogr. Sci, Eng., 19, 211-214 (1975)

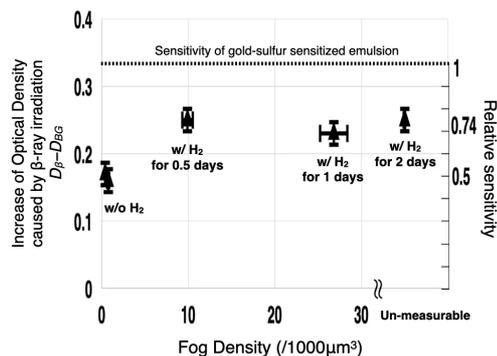


図 2: 水素超増感処理を施した硫黄増感乳剤乾板の感度と fog density. [14]