

オペラ実験に使用する ニュートリノ検出用原子核感材の開発

桑原 謙一* , 西山 伸吾*

Development of New Nuclear Emulsion Film for the OPERA Experiments

Ken-ichi KUWABARA* and Shingo NISHIYAMA*

Abstract

A new nuclear emulsion film was designed and developed for the Emulsion Cloud Chamber (ECC) detector in the OPERA experiments.

Fuji Photo Film Co., Ltd. established the process for automatic machine coating of the nuclear emulsion film. The new film for the OPERA experiments could be produced with the production line for commercial photographic films. The introduction of 5-methylbenzotriazole(5-MBT) into the emulsion layer made it possible to establish a reset treatment technology. By this technology, it is possible to destroy the fog centers formed and accumulated by incident cosmic rays and to erase unwanted background tracks.

1. 序

オペラ計画(OPERA : Oscillation Project with Emulsion-tRacking Apparatus)は、素粒子の標準理論を越えるニュートリノ質量の検証を目的とした国際共同プロジェクトによる研究計画である¹⁾。原子核乳剤を用いた検出器でニュートリノ振動 μ で出現するニュートリノの荷電カレント反応(粒子の飛跡を含む)を直接検出することを目指している。

従来から素粒子物理の研究において、宇宙線や原子核反応の飛跡を記録し、その特性を解析研究するための手段のひとつとして、原子核感材が利用されてきた²⁾。原子核感材の持つ特徴は、サブミクロンレベルの高い空間分解能をもつ3次元の飛跡検出器であるということである。

感材中のハロゲン化銀乳剤は、荷電粒子が乳剤中のハロゲン化銀結晶内を通過するときエネルギーを受け、電離作用によって発生した電子によりその結晶内に潜像が形成される。電子線や α 線などの荷電粒子は、その飛跡に沿ってハロゲン化銀粒子に潜像が形成される。一方、 γ 線やX線は、その飛跡上に直接潜像が形成されるのではなく、光電効果やコンプトン効果などにより生じた電子の飛跡に沿って潜像が形成される。

潜像の形成された原子核感材中のハロゲン化銀結晶は、現像処理をすることによって黒化銀として可視化される。可視化された黒化銀粒子は光学顕微鏡で観察することによって、その飛跡をとらえ、荷電粒子などの種類や性質を識別することが可能となる。

特に、粒子のような寿命の短い(3.5×10^{-13} 秒)荷電粒子の飛跡を識別するためには、空間分解能の高い原子核感材は必須の検出手段であり、他の手段では代替できない不可欠なものとなっている。

しかし、他のいかなる検出器より優れたこの特徴は、逆に画像の分析に膨大な手間がかかるという決定的な弱点にもなっていた。原子核感材上に記録された無数の飛跡の中から、目的とする飛跡を顕微鏡を使って探し出し、データ解析するのは膨大な時間と労力を要する作業であった。この欠点を克服し、コンピュータ制御による自動飛跡計測・解析技術と、原子核感材・カウンターを組み合わせた検出システムの開発により、最新の素粒子検出技術としてよみがえらせたのが、名古屋大学の丹羽研究室³⁾である。かくして、原子核感材からのデータの読み出しと解析がコンピュータにより自動化され、処理速度を大幅に高めることが可能となった。

原子核感材用のハロゲン化銀乳剤は、飛跡の単位長さあたり形成される現像銀粒子数(通常、最小電離粒子に対する値を基準として求められ、 $100 \mu\text{m}$ あたりの個数 Grain Density=GDであらわされる)が高く、かぶり($1000 \mu\text{m}^2$ あたりのかぶり粒子数 Fog Density=FD)が著しく少ない性能を有するものが要求され、通常、粒子サイズの揃った微粒子の臭化銀または沃臭化銀結晶を高

本誌投稿論文(受理2002年9月25日)

*富士写真フイルム(株)足柄研究所

〒250-0193 神奈川県南足柄市中沼210

*Ashigara Research Laboratories, Fuji Photo Film Co., Ltd.
Minamiashigara-shi, Kanagawa 250-0193, Japan

密度でゼラチンバインダー中に分散した乳剤が供給されてきた。塩化銀乳剤はかぶりが高くなりやすく、結晶内の電子密度が低いので好ましくない。沃臭化銀の場合、好ましい沃化銀の含有率は5モル%以下であり、好ましい粒子サイズは0.2 μ前後である。

当社の高感度原子核乳剤、たとえばET-7C、7D乳剤は、超高エネルギー宇宙線の研究やハイパー核の研究、あるいはニュートリノ反応の研究などに使用され、ニュートリノの存在の確認、ダブルハイパー核の検出など、高エネルギー素粒子物理学分野の最先端で重要な役割を果たしてきた。

2. オペラ実験用原子核感材に求められる性能

今回、その独自の原子核乳剤の技術を生かし、国際プロジェクト・OPERA実験の検出器としての要求を満たす新たな原子核感材の開発を、名古屋大学からの依頼を受けて進めてきた。

原子核感材はハロゲン化銀乳剤が支持体上に塗布されてから実験に使用するまでの間に、自然界に存在するラドンなどによる放射線や地球に降り注ぐ宇宙線などの被爆を受けて、かぶりの形成が蓄積され、本来目的とする荷電粒子の飛跡解析にとって、邪魔なノイズとなる飛跡が形成される。そのためこれらの影響を極力少なくするために、従来は実験をスタートする直前に研究者が実験現場でハロゲン化銀乳剤を塗布して使用するといったやり方がとられてきた。

オペラ計画での飛跡検出器として使用する原子核感材は、乳剤として100トンを超える量を必要としているため、実験の直前に塗布して使用することは不可能である。そこで、原子核感材を製造スケールで前もって大量生産し、塗布後使用するまでの間に、蓄積された宇宙線によるかぶりは、実験をスタートする前に消去（Background-Trackの消去）するための処理（リセット処理）をおこなって、実験の解析に邪魔となる飛跡を消去する方法を採用することになった。

しかしながら、従来の原子核感材用に供給されてきたハロゲン化銀乳剤では、リセット処理によって十分に飛跡かぶりが消去できないこと、化学増感かぶりが上昇してしまうこと、あるいは、飛跡かぶりが消去できたとしても、リセット処理後の感度（GD）が低下してしまうなどの欠点があり、リセット処理適性の良好な原子核乳剤の開発が必要となった。

3. オペラ用原子核感材の開発目標

1. 高エネルギー素粒子物理学分野の最先端で重要な役割を果たしてきた当社の高感度原子核乳剤ET-7Dの乳剤技術を生かし、大量生産適性を付与し、均一な厚さで塗布されたフィルムを供給すること。

機械塗布された原子核感材を大量製造し供給するのは、世界初の試みである。

2. 塗布されてから実験に使用するまでの間に、フィルムに蓄積された宇宙線被爆による飛跡かぶりを消去することが可能な（Background-Trackの消去可能な）フィルムの開発とその処理条件を見出すこと。

高湿度の特定条件下で上記のかぶりの退行が著しく、通常条件の常温常湿度～低温では潜像が安定である感材設計が必要になった。感材に求められる主な性能は以下の～である。

荷電粒子に対する飛跡感度が高い（GD=33以上）こと

高い角度精度を確保するため、厚みが一定で透明かつ複屈折の小さい支持体の両面に、均一な厚さでハロゲン化銀乳剤層を有すること

常温常湿度～低温では感度が安定であること

高温あるいは高湿度下で飛跡かぶりが消去できる（潜像退行が著しい）こと

の処理後も感度変化がないこと

表面に保護層を設け、取り扱い時の摩擦などによるかぶりの発生を防止し、ノイズが低減できること

4. 感材の構成

4.1 乳剤

乳剤設計の基本である粒子形成はET-7Dで開発した技術を採用し改良を加えた。

1. コア・シェル構造で、シェル部にFe()錯イオンを均一にドーブした粒子形成。
2. 過剰のハロゲンイオンが少ない状態で安定に粒子を形成するために、CDJ(Controlled Double-Jet)法⁴⁾を採用した。還元増感核の生成を抑えて、低かぶり高感度を実現した。
3. サイズ0.2 μmの単分散AgBrI粒子(変動係数10%以下)を高密度に充填した乳剤。

上記手段で粒子形成した乳剤に、金および硫黄による最適な化学増感をほどこし、製造時のかぶりが少なく、荷電粒子に対する飛跡感度の高い乳剤を大量に、かつ安定に製造できるようになった。Fig. 1に乳剤粒子のカーボンレプリカの透過型電子顕微鏡写真と粒子サイズ分布を示す。

かぶり粒子数の比率は全粒子に対して2万分の1のレベルであり、FD値 2の非常にかぶりの少ない乳剤を開発できた。

4.2 層構成

測定時の複屈折を避けるためにTACベース(厚さ約200μm)を使用し、乳剤層の厚さが片面あたり44μmとなるように塗布量を設定して、ベースの両面に交互に4回塗布することにより、上記の原子核乳剤を均一に塗布したフィルムを大量に製造した。

1μmの厚さのゼラチン保護層を設けることで、取り扱い時の摩擦などによるかぶりの発生を防止でき、ノイズを減らすことができた。また、従来の原子核乾板では

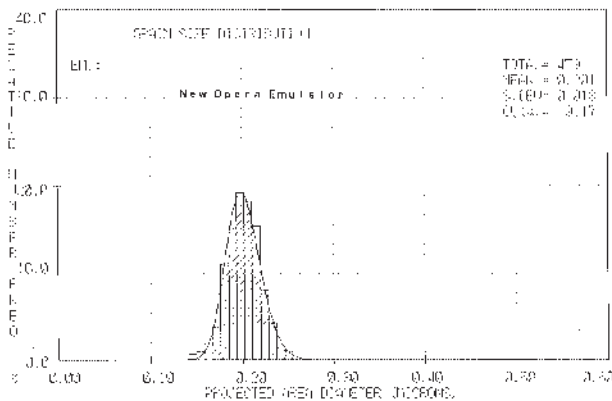
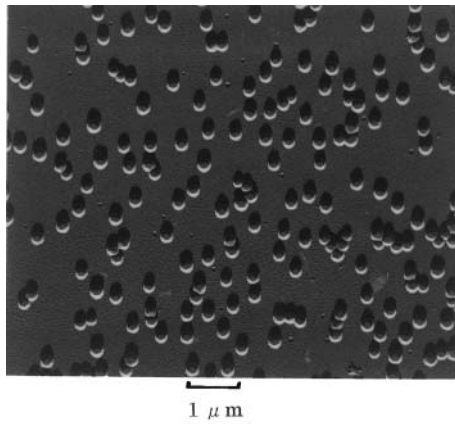


Fig. 1 Electron micrograph of carbon replicas of the silver halide grains in the emulsion developed in this study and their size distribution. The length of the bar above is 1 μ m.

行なわれていなかった乳剤層を硬膜する方法を導入した。これによって、現像処理時の膨潤が抑えられ、乳剤層膜厚の均一性とあわせて飛跡の歪みやズレ(ディストーション)を大幅に改善することができた。

Fig. 2および3にはそれぞれ塗布した乳剤層の構成を示す断面の走査型電子顕微鏡写真とその拡大写真を示す。乳剤層中のハロゲン化銀重量比率は69%であり、1000 μ m³あたり約4万個のハロゲン化銀粒子を含有している。

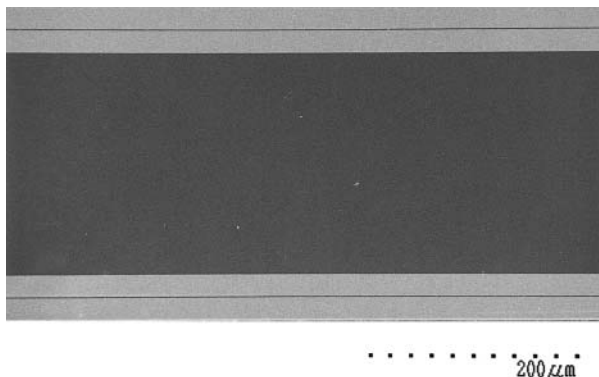


Fig. 2 Scanning electron micrograph of a cross section of a machine-coated layer of the emulsion.

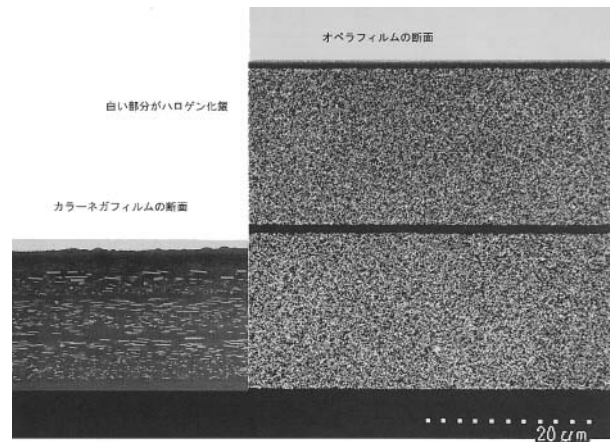


Fig. 3 Micrograph showing the silver halide grains distributed in the emulsion layer.

5. Background-Trackの消去(リセット処理)技術

ベンゾトリアゾール化合物類の導入により、高い湿度の下で潜像やかぶりの破壊(退行あるいはfadingと呼ばれる)技術を確立した。銀1モルあたり10⁻³モルオーダーのベンゾトリアゾール化合物類を乳剤層に含有させることにより、高い湿度の条件下(たとえば、25~30で湿度100%)で数日間保存することで、荷電粒子により形成された飛跡かぶりを消去することができた。名古屋大学での評価では消去率98%という結果が得られている。

常温常湿度~低温の条件下では感度および化学増感かぶり安定であり、かつリセット処理を行った後は、荷電粒子により形成された飛跡かぶりが消去され、感度とかぶりは初期の状態に維持されている。

従来の原子核乳剤に導入したかぶり抑制・安定化の技術では、乳剤層の保存中に進行する化学増感かぶりを抑えることと、感度をそこなわずに飛跡かぶりを破壊することを両立させる条件が見出せず、飛跡かぶりを十分に消去することができなかった。

ベンゾトリアゾールの導入により、高湿度の条件下で小さい銀のクラスターからなるかぶり中心は効率よく酸化されるが、高い写真感度を支える化学増感中心(硫化金銀のクラスターからなる)は酸化されず安定で、銀クラスターからなるかぶり中心と化学増感中心の識別が大幅に向上したものと考えている。

Fig.4-1およびFig. 4-2に5-メチルベンゾトリアゾール(5-MBT)の効果を示し、Xeランプに対して10⁻⁴秒間露光して生成した潜像の退行挙動を示した。5-MBTを添加すると、高湿度の条件下で潜像の退行が著しくなったが、写真感度とかぶり濃度(化学増感かぶりの変化に相当する)にはほとんど影響がなかった。

Fig. 5は、最適に設計したオペラ用原子核乳剤層中で、数十MeVの電子線により形成された飛跡と、リセット処理によりその飛跡が消去されていることを示した顕微鏡写真である。

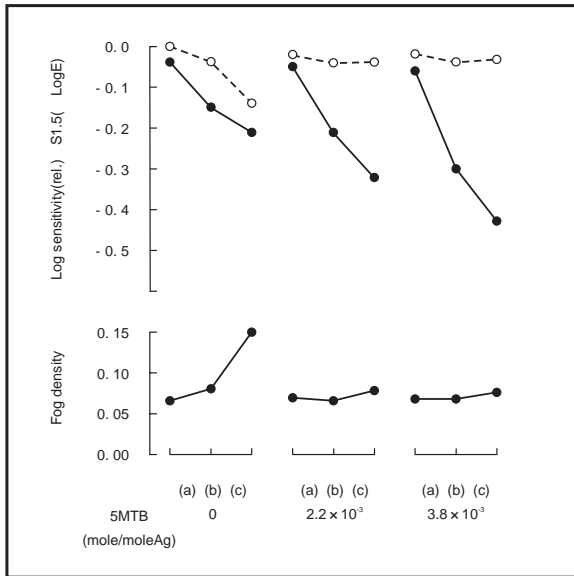


Fig. 4-1 Sensitivities and fog densities of the developed emulsion layers without and with 5-MBT(mole/mole AgX), as affected by the reset treatment (kept for 3 days at 25-30°C and 100% RH) before () and after exposure (). The emulsion layers were exposed to a Xe lamp for 10⁻⁴ sec, and developed by an ascorbic acid type developer(PD-T) at 20°C for 25 min. (a) : 25°C 60% (b) : 25°C 100% (c) : 30°C 100%.

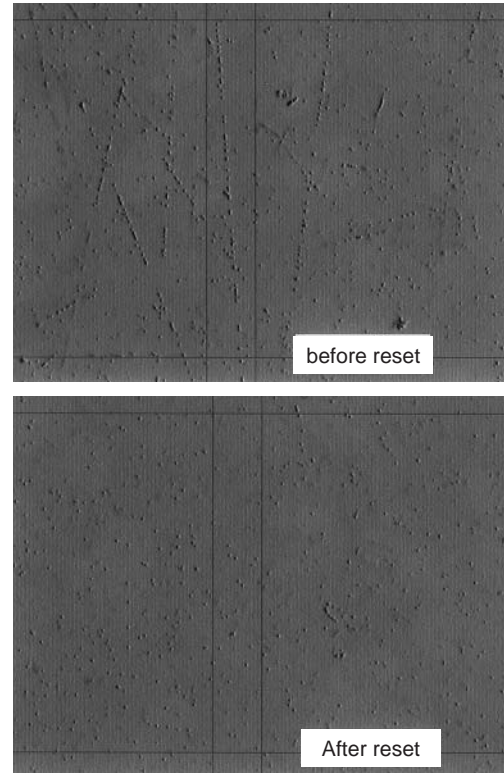


Fig. 5 Micrographs showing the effect of the reset treatment (kept for 3 days at 25°C and 100% RH) on the erasure of M.I.P (minimum ionizing particles) tracks recorded in the emulsion layer.

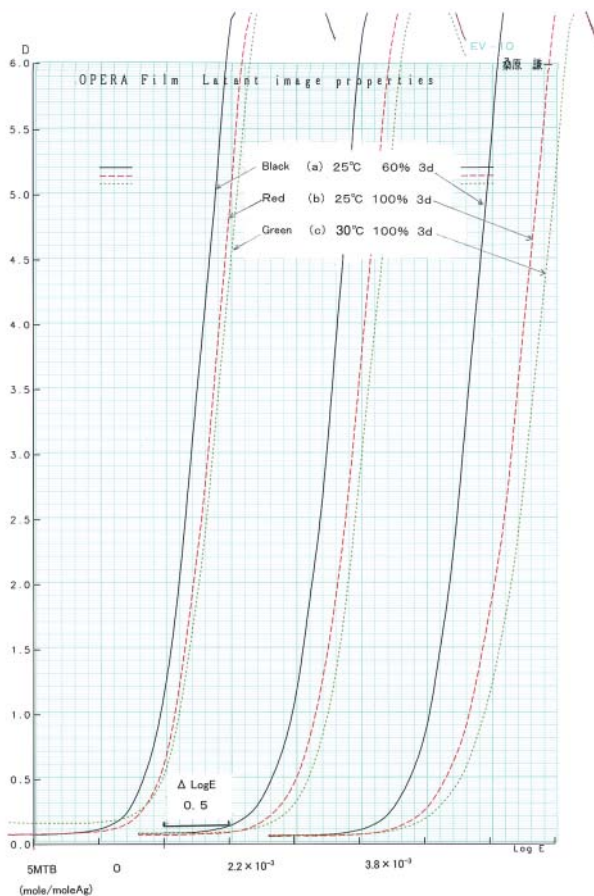


Fig. 4-2 Characteristic curves of the developed emulsion layers without and with 5-MBT(mole/mole AgX), as affected by the reset treatment (kept for 3 days at 25-30°C and 100% RH) after exposure. The emulsion layers were exposed to a Xe lamp for 10⁻⁴ sec, and developed by an ascorbic acid type developer(PD-T) at 20°C for 25 min. (a) : 25°C 60% (b) : 25°C 100% (c) : 30°C 100%.

6. 処理液の開発

オペラ感材の処理は、従来の原子核感材にくらべて処理量が多いので、保恒性の良好な現像処理液が望ましい。従来から用いられてきたアミドールを現像主薬とする処理液は安定性が著しく悪いため、使用直前に処理液を調製する必要があった。空気酸化により処理液活性がすぐに劣化してしまうため、処理性能を一定に保つことが難しかった。

当社が蓄積したハロゲン化銀の処理技術を原子核乳剤の処理に適用し、アスコルビン酸を現像主薬とする保恒性のよい処理液を開発し、その使用条件を提供することができた。

7. まとめ

オペラ実験に使用する原子核感材の処方と塗布条件を確立した。要求された感度と乳剤層膜厚を達成するため、両面交互4回塗りの塗布技術を確立し、大量生産適性が付与され、均一な厚さで塗布されたフィルムの提供を可能にした。

5-メチルベンゾトリアゾールの導入により、塗布されてから実験に使用するまでの間にフィルムに蓄積された宇宙線被爆による飛跡かぶりを消去することが可能な(Background-Trackの消去可能な)フィルムを開発することができた。

8. おわりに

オペラ実験は2005年に最初のビーム照射を開始する計画で、進行している。これに先立ち、本原子核感材の製造は2003年より始まり、名古屋大学の東濃鉱山地下研究施設でリセット処理が行なわれ、イタリアのGran Sasso地下研究所に運ばれて、検出器の組み立てが行なわれる。

新たに開発したニュートリノ検出用原子核感材の性能が最大限に発揮され、オペラ計画の目的が達成される成果が出ることを願っている。

原子核感材の開発にあたり、指針と助言をいただいた、名古屋大学F研究室の丹羽公雄教授、星野香助教授、中村光廣助教授に感謝申し上げます。

参考文献ほか

- 1) OPERA 実験の概要は“An appearance experiment to search for μ oscillations in the CNGS beam” Experiment Proposal. July 10, 2000 を参照.
- 2) 科学写真便覧 下巻 4.1節 荷電粒子写真. 丸善(株), 昭和39年3月25日発行.
- 3) 名古屋大理学部素粒子物理学研究室F研のホームページ (<http://flab.phys.nagoya-u.ac.jp/new>).
- 4) (a) C. R. Berry; D. C. Skillman. Photogr. Sci. Eng. 6, 159 (1962).
(b) E. Klein; E. Moiser. Photogr. Wiss. 11, 3(1962).