# 原子核乾板

古 関 靖 夫

1896 年に, Becquerel<sup>(1)</sup> が初めてウラニウム塩が写真 乾板を黒化させることを発見して,荷電粒子の写真記録 を作った. 1911 年 Reinganum<sup>(2)</sup>は,  $\alpha$  粒子が飛跡とし て写真乳剤に記録されることを発見した. その後, プロ トンや  $\beta$ 線についても研究されたが,そのころ利用され た写真乳剤は,もちろん可視光による撮影用として作ら れたものであった.

1935年頃より、プロトンの飛跡記録用の写真乾板の試 作研究が始められた. Blau と Wambacher<sup>(3)</sup>は、写真乳 剤の減感剤であるピナクリプトール黄がプロトン感度を 高めると報告 し て い る. しかし、現在の原子核乾板に

は、その増感効果は認められない. おそら く、その減感作用によって背影カブリが減 って、プロトン飛跡が見やすくなったため だろうと推察されている.

1935 年, Ilford 社より RI 乾板, つづい て R 2 乾板, New Halftone 乾板と, プロ トン乾板が発売された. Agfa 研究所は K 乾板を, Kodak 研究所は Fine-Grain Alpha Plate を出した.

しかし, 1945年頃までは, 原子核物理学 者の定量的研究には, ionization chamber, Geiger-Mueller 計数管や Wilson 霧箱が用 いられて, 原子核乾板の影はうすかった.

1945年以来,原子核物理学者と写真工業会社との共同研究が大いに進み,1948年12月にはBerriman<sup>(4)</sup> が Kodak Ltd. の NT 4 によって最小イオン化能の β 線飛跡を記録 し,1949 年初頭には Ilford 社が G5 乾板を発表して, ともにあらゆる荷電粒子を飛跡として記録しうる写真乳 剤が完成した.

このようにして,原子核乾板は荷電粒子の記録の手段 として広く使用されるようになった.

### 1 原子核乾板の特徴

第1表に標準的な原子核乳剤と一般の高感光度写真乳 剤の特性を対照して示しておくが,原子核乳剤の特徴 は,



(2) ハロゲン銀結晶の大きさが,きわめて小さく, かつその大きさが均整で揃っている.

(3) 乳剤膜厚がきわめて厚く, 1200μのものも利用 される.

(4) 光に対する感度はきわめて低いが、荷電粒子の 個々の行動を飛跡として記録できる。

2 荷電粒子飛跡の記録

原子核崩壊片 (Fission product),  $\alpha$  線, デュートロン, プロトン, メソンや $\beta$ 線のような荷電粒子が物質に





入射すると,物質との相互作用により,その運動の経路 に沿って周囲にイオン化エネルギを与え(自己のエネル ギを失い)つつ運動し,ついには停止する.第1図は各 種の荷電粒子の空気中におけるエネルギ損失曲線であ る.荷電粒子自身のエネルギ(横軸)が大きい時は,空 気へ与えるイオン化エネルギ,すなわちエネルギ損失 (縦軸)は小さい.しかし,周囲にエネルギを与えて自 己のエネルギが減少するにつれて,周囲へ与えるエネル ギ損失が増大することを示している.

エネルギの大きい荷電粒子が写真乳剤に入射すると, 初期は自己のエネルギが大きいのでエネルギ損失が少ない.すなわち,飛跡中のハロゲン銀粒子へ与えるエネル

	乳剤組成(重量	レパーセント)	ハロゲン銀結晶の	乳 卻 膵 厚	光に対する比感度	
	ハロゲン銀	ゼラチン	大きさ (直径 µ)	(μ) (μ)		
原子核乳剤	70~85	15~30	0.2~0.4	25~600	1	
高感度ネガ乳剤	35~45	55~65	0.5~1	10~15	100~1000	

第1表 原子核乳剤の特徴

ギが少ないので,これ を現像可能にする確率 は少ない.そこで,低 感度原子核乳剤は,イ オン化能の少ない荷電 粒子(たとえば電子) の高エネルギ状態のも

7

のを飛跡として記録できない.

次第にエネルギを失ってゆくと、エネルギ損失は急激 に増大するので、荷電粒子の経路にあるハロゲン銀粒子 は現像可能となる。したがって、飛跡の終点に近づくに つれて、経路にあるハロゲン銀粒子を全部現像可能とす る.

α 粒子は、第1図よりわかるように、エネルギ損失が 大きく、イオン化能が大きいので、第2図の模型図のよ うにその飛程の最初からすべてのハロゲン銀粒子を現像 可能とする・すなわち、α線は写真作用強く、1個のα 粒子は十数個のハロゲン化銀を現像可能とする・



第2図 写真乳剤膜の構造と粒子線飛跡(模型図)

プロトンは、α 粒子に比べて、質量は ¼、荷電数は ½ であるので、たとえ入射した時の粒子のエネルギは同 ーでも、プロトンはエネルギ損失(イオン化能)が低い、 その乳剤中の飛跡の長さ(飛程)はより長く、飛跡の単 位長さ当りの現像銀粒子数(銀粒子密度)は小さくな



2.

ン化能が低いので、低感度原子核乳剤を用いたのでは飛 跡として記録できない、特に最小イオン化能電子では高 感度原子核乳剤によらなければならない. ただし、低エ ネルギ電子では、イオン化能が増すのでやや低感度の原 子核乳剤でも記録できる.

このように,原子核乳剤を用いると,入射荷電粒子の 行動がそのまま現像銀粒子の行列(飛跡)として記録で きるし,この飛跡の長さ(飛程),飛跡の銀粒子密度,飛 跡の散乱される程度を解析することによって,その荷電 粒子の質量,荷電数,エネルギ等の諸性質を測定でき る.

第3図はTh原子の崩壊で、太い直線の4本の $\alpha$ 線飛跡と曲がった電子線の飛跡が見られる。第4図は $\pi-\mu-e$ 崩壊の1例である.

3 原子核乾板

a. 原子核乳剤の製造 市販品の特性は後述するが, 原子核乳剤の製法には比較的多くの報告がある.

Myssowsky と Tschijow<sup>(5)</sup>, Blau と Wambacher<sup>(6)</sup>, Jdanoff<sup>(7)</sup>, Demers<sup>(8), (9)</sup>, Hälg と Jenny<sup>(10)</sup>, Jenny<sup>(11)</sup> 等の報告があるが, 比較的新しい Jenny の方法を紹介す る.

つぎの3液を準備する.

第1液:	蒸留水	60 ml
	写真用ゼラチン	3.6 g
	6-nitrobenzimidazole 1/500	1 m <i>l</i>
第2液:	蒸留水	23 m <i>l</i>
	KBr	14.8g
	KI	0.6g
	Cd Br <sub>2</sub> 10%	7 m <i>l</i>
第3液:	蒸留水	30 m <i>l</i>
	AgNO <sub>3</sub>	20 g

使用する薬品は高純度でなければならない. 第1液は 250 ml のビーカーに, 第2液と第3液とは 50 ml の三 角フラスコ中に作る.

第1液を1時間室内において、ゼラチンをよく吸水さ せてから、37°Cの恒温水槽に入れる.ガラス棒でよく 攪拌してゼラチンを完全に融解する.第2液と第3液と はビュレットに入れてビーカー上におく.第2液を3滴 入れてから、第2液と第3液を1秒に2滴の速度で第3



第4図 宇宙線の π-μ-e 崩壊 富士原子核乾板 ET-7A (山梨大学, 今枝助教授提供)

488

### 第11巻第10号

液中に同時に滴下する. ビュレット内の液面が低下する と,滴下速度はおそくなるが,3秒に1滴の程度になっ てもかまわない.

この間,ビーカー内が泡立たぬ程度に攪拌する・常に 第2液のハロゲンの方が当量よりわずかに多い状態にし て,その過剰量を一定に保たねばならない・滴下速度が 急に変ると,巨大沈澱を生じたり,カブリを生じたりす る・全滴下時間は約 30 分である.

滴下が終れば、2分後に比重 0.91 の濃アンモニア水 6ml を加えて、 5分後にクエン酸 4.5g を加えて中和 する.これにゼラチン1g を加えて 12 分間攪拌しつつ 放置し、磁製皿にうつして、その外側から氷で冷却し、 凝固させてゼリー状とする.冷蔵庫内に7時間入れてお くと、丈夫なゼリーになる.

写真乳剤を細片に切って,流水中で15時間水洗する. 乳剤を引き上げて余滴を去って,250mlのビーカーに 入れて,28°Cに温めてゾル状とする.

2% のクロム明ばん 2 ml, 1:2 グリセリン溶液 6 ml, 0.04% の増感剤アルコール溶液 5 ml を,200 ml の写 真乳剤に加えてガラス板に塗布する・

増感剤として次のものを推奨している.



b. 原子核乳剤の感度 原子核乳剤の感度を示す方法 の一つは、荷電粒子を飛跡として認めうるような1列の 現像銀粒子を生ずるようになる限界のエネルギ損失をも って、その原子核乳剤の感度とする方法である.

もう一つの方法は、実用的に便利な表現として、その 乳剤が飛跡として記録し得る素粒子の最大エネルギ値で 示す方法である。前述のように、入射した荷電粒子の有 するエネルギが大きいほどイオン化能が低く、飛跡とし て記録しにくいからである。たとえば、同一の荷電粒 子、たとえば電子でも、第2表に示すように、富士原子 核乾板 ET-2E では、全然飛跡として記録できないが、 ET-6B なれば 0.1 MeV 以下の電子なら記録可能で、 ET-7 A ではあらゆるエネルギの電子を飛跡として記録 できる。

このように,各種の感度を有する原子核乾板を必要と するのは,つぎの理由によっている.

使用目的によっては、たとえば比較的イオン化能の高 い荷電粒子の測定に、高感度原子核乾板を用いると、得 られた飛跡の銀粒子密度が高すぎて、微細な差を定量す ることができなくなる、そこで、それぞれの目的に合っ た感度の乳剤を必要とするのである.

エネルギ損失曲線を見ると、すべての荷電粒子につい

て極小点がある. この極小点のイオン化エネルギが, い わゆる最小イオン化能(minimum ionization) である. この最小イオン化能の電子を飛跡として記録しうる原子 核乳剤が最高感度である. この級の原子核乳剤の性能の 比較は,最小イオン化能粒子の飛跡の銀粒子密度で比較 する. たとえば, Ilford G-5 乾板では 25~30 grains/ 100  $\mu$ ,富士 ET-7 A 乾板では 30~40 grains/100  $\mu$ と報 ぜられている<sup>12)</sup>.

この種の乳剤は、保存中に宇宙線の高エネルギ電子に 感じて、その背影カブリ飛跡が増加してしまうので、約 3週間後には使用に耐えなくなる、使用前にこの種の飛 跡を消す方法が提案されている、 $H_2O_2$ を用いたり、90 ~100% R.H. 中に 6~12 時間放置してから使用する方 法などがある.

最小イオン化能粒子を飛跡として記録できる乳剤の粒 子の直径を 0.3 µ とする. エネルギ 損失曲線の 極小値 は、空気中で 0.0023 MeV/cm, 臭化銀中では 6.9 MeV/ cm であるから、1 個の乳剤粒子あたりのエネルギ損失は 207 eV を越えることはない. ハロゲン銀結晶の crystal counter の実験から,結晶内に1個の自由電子を生ずる のに必要なエネルギは 5.8~10 eV であると報告されて いるので, 5.8 eV とする. 直径 0.3 µ の乳剤粒子中に は、最小イオン化能粒子によって、35個の自由電子を生 じ,最高感度の原子核乳剤粒子は現像可能となるわけで ある. 荷電粒子が光速度で乳剤粒子を通過する時間は 10-14 秒の桁であって、その露光時間はきわめて短く、イ オン化によって生ずる電子と正荷電イオンは、荷電粒子 の通過した経路に沿って1列に生ずる.したがって,再結 合や高照度相反則不軌現象に対する補正を必要とする. 結局, この場合は, おそらく 15 個以内の電子によって 潜像が形成されるのであろう(13).

原子核乾板を用いて 粒子線を記録する場合 の感度の温度依存性 は、 Dollmann<sup>(14)</sup> と Lord<sup>(15)</sup> の実験結果を まとめた第5図のよう に、通常使用する温度 に近い 0~20°C 付近 に極大感度があり、潜 像減退をおそれて0°C 付近で露光してもその 時の感度低下は無視でき



時の感度低下は無視できる程度である.

**c. 潜像の退行** 原子核乳剤については潜像の退行 (原子核実験物理学では fading という) は重要な問題で あるのでよく研究されている. Blau<sup>(16)</sup> と Wambacher<sup>(17)</sup> は初めて,  $\alpha$ 線で感光させた乳剤が 14 日後に現像する と最初の黒化度の半分になってしまうことを示した. そ

9

の後の多くの研究によって保存条件と潜像退行との関係 が明らかにされた.



温湿度が高いほど,潜像退行は著しい.Lauda<sup>(18)</sup>は
 Agfa 乾板を用いて露光後160日で,室内保存で80%,0°Cで保存して60%,真空乾燥器中では8%の潜像

減退を認めた. Yagoda と Kaplan<sup>(19),(20)</sup> は Eastman 原子核乾板中の α線飛跡が 室内保存で 20 日間に 90~ 35% 減少することを見出 し, さらに第6 図に示した ように高温の飽和空気中で 潜像退行が著しいことを発 表した・

La Palme & Demers<sup>(22)</sup>

は 42°C では潜像が著しく 早く退行し, -85°C で は数カ月間ほとんど退 行がみられなかったと 報じている.

> Albouy と Faraggi<sup>(23)</sup> は第7図のように保存 空気中の湿度が潜像退 行にいかに影響するか を示した.これと Mees<sup>(24)</sup>の比湿度とゼ

ラチンの吸湿量との関



係(第8図)とを比較す ると潜像の退行は写真 乳剤膜中の吸水量に関 係することがわかる・

產研究

仹

さらに, Albouy と Faraggi は, 露光した 乳剤膜を湿度を一定と しながら種々のガス中 に保存し, 潜像減退を 測定した. その1例は

第9図のように、純酸素中では空気中の2倍の早さで退 行し、純窒素中の約10倍の早さで潜像が減退すること を示した。

Cuer と Morand<sup>(25)</sup> は、乳剤中のハロゲン銀含有量の 多いほど、潜像の退行が少ないことを明らかにした. Albouy と Faraggi はまた、写真乳剤の pH が高いほど、 ハロゲン銀結晶が大きいほど、潜像の減退の起こりにく いことを示した.この因子は写真乳剤を製造する立場に おいて注目すべき現象である.

以上の実験事実から,潜像の減退機構は次式のように

 $2 Ag + O + H_2O - 2 Ag^* + 2 OH^-$ 

進行する潜像の酸化と考えられている.酸素と水とが多ければ反応は右辺に進み,乳剤の pH が高くて OH<sup>-</sup> が 多ければ反応は右辺に進みにくい.乳剤中のゼラチン含 有量が少ないほど,同一湿度でのハロゲン銀に対する吸 湿した水の量が少ないから,酸化反応は進みにくい.

**d. 原子核乾板の種類** 原子核乾板を供給している写 真工業会社は、Ilford 社, Kodak 社, Agfa 社, Ferrania 社の外,富士フィルムと小西六の6社である. この外, ソ連と中共でも作られている.

第2表にあげてあるように、それぞれ感度の異なるものを数種供給している。

原子核乳剤に限って、製造会社よりその組成が発表さ

第2表 市販原子核乾板の性能 (各種の荷電粒子について,飛跡として記録できるエネルギの最大値を MeV の単位で示してある)

				Ilford		Kodak Ltd			Eastman Kodak						
		D1	E1	C2	B2	G5	NT1a	NT2a	NT4	NTC	NTC3	NTA	NTB	NTB2	NTB3
	電子	·	-	0.03	0.07	全部		0.1	全部	-	-	-	0.03	0.2	0.4
	μ 中間子	<u> </u>	2	5.5	0.14	全部	2	20	全部	-	1	2	6	40	85
~	プロトン	-	20	50	120	全部	20	200	全部	—	1.5	3	8	50	110
	デュートロン	-	40	100	240	全部	40	400	全部		20	40	100	750	1500
	ai 粒子	低	500	1500	全部	全部	500	全部	全部	低	100	200	800	全部	全部

	Agfa	富	士フィル	小西六		
	K2	ET-2E	ET-6B	ET-7A	NR-M1	NR-E1
電子	0.08	-	0.1	全部	0.03	全部
μ 中間子	16	2	20	全部	5.5	全部
プロトン	150	20	200	全部	50	全部
デュートロン	300	40	400	全部	100	全部
ơ 粒子	全部	500	全部	全部	1500	全部
1 M 12 M 1						

490

10

€..

第3表 市販原子核乳剤の組成 (g/cm<sup>3</sup>)

	Ilford		Eastman Kod	Eastman Kodak	Arte VO		小西六		
-	G-5	その他	Kodak Ltu.	除 NTC	除 NTC Agia K2	ET-2E	ET-6B	ET-7A	NR-M1
Ag	1.85	1.85	1.97	1.70	1.76	1.26	1.40	1.85	1.63
Br	1.36	1.34	1.44	1.22	1.29	0.89	1.02	1.36	1.18
т	0.024	0.052	0.036	0.054	0.05	0.065	0.00	0.024	0.053
c	0.27	0,27	0.27	0.34	0.29	0.44	0.29	0.27	0.36
н	0.056	0.056	0.038	0.043	0.06	0.06	0.05	0.056	~-0.046
0	0.27	0.27	0.16	0.17	0.30	0.22	0.19	0.27	0.18
N	0.67	0.067	0.080	0.11	0.07	0.12	0.07	0.067	0.183
S	0.010	0.010			0.02	0.007	0.01	0.010	0.005
条件	室温 50% R.H.		絶対乾燥	絶対乾燥	室温60% R.H.		室温 60% R.	H.	絶対乾燥

第4表 llford 原子核乳剤の含水量

相対湿度(%)	含水量(重量%)	比重(gm/cm <sup>3</sup> )
絶対乾燥	0	4. 18
0	1.41	3.94
32	2.06	3.88
58	2, 95	3.82
84	5. 17	3.69

れている(第3表).

原子核乳剤の吸湿の1例を,第4表に示しておく.

### 4 ペリクルとゲル乳剤

原子核乳剤はペリクルの形でも市販されている. これ は原子核乾板とは異なり,支持体のない乳剤膜のみであ る. これは,何枚も重ねて原子核乳剤のブロックを作る のに用いられる.

重ねたままで使用し、レジスターマークをつけて、1 枚ずつ下塗済乾板ガラスに貼付してから現像処理して、 検鏡する.1枚のペリクル中の飛跡の続きは、つぎのペ リクル中に記録されているので、全飛跡が記録できる.

また, Ilford 社では,原子核乳剤をゲル状態でも市販 している.これは,水を含んだゲル状態の乳剤の細片 を,50 cc または 100 cc の茶褐色瓶に入れてある.必要 量を加温してゾル状態として,下塗済ガラスへ塗布して 用いる.原子核乾板は,保存中にも宇宙線の飛跡を記録 してしまうのである期間使用してから処理しても,その 乳剤中に記録されている飛跡中には,製造後使用するま での間に記録した飛跡も含まれているので,目的として いる飛跡を区別するのは困難である.したがって,製造 直後に使用するのが望ましいが,遠隔地で使用するに は,現地で原子核乳剤を塗布乾燥して用いるのが理想的 である.この目的には,ゲル状態の乳剤は便利である. (1959.8.3)

## 文 献

- (1<sup>r</sup>) Becquerel, H.: Compt. Rend., 122, 420 (1896).
- (2) Reinganum, M.: Phys. Z., 12, 1076 (1911).
- (3) Blau, M. & Wambacher, H.: Sitzungsber. Akad. Wiss. Wien, 143, 285 (1934).
- (4) Berriman, R. W.: Nature, 161, 928 (1948).
- (5) Myssowsky, L. & Tschijow, P. : Z. Phys., 44, 408 (1927).
- (6) Blau, M. & Wambacher H.: Monatsh., 61, 99 (1932).

(7) Jdanoff, A.: J. phys. et radium, 6, 233 (1935).

- (8) Demers, P.: Phys. Rev., 70, 86 (1946).
- (9) Demers, P.: J. Research, 25, 223 (1947).
- (10) Häly, W. & Jenny I. : Helv. Phys. Acta, 21, 131 (1948).
- (11) Jenny, L.: Fundamental Mechanisms of Phot. Sensitivity, J. W. Mitchell, ed. (Butterworths Scientific Publications. London), 259 (1951).
- (12) 今枝国之助, 数野美ツ子: 宇宙線研究, 3, 1 (1958).
- (13) Mees, C.E.K.: The Theory of the Phot. Process, MacMillan Co., N.Y., 308 (1954).
- (14) Dollmann, E. M. : Rev. Sci. Instr., 21, 118 (1950).
- (15) Lord, J. J. : Phys. Rev., 81, 901 (1951).
- (16) Blau, M.: Sitzungsber. Akad. Wiss. Wien, 140, 623 (1931).
- (17) Blau, M. & Wambacher, H.: Z. Wiss. Phot., 31, 243 (1933).
- (18) Lauda, J.: Sitzungsber. Akad. Wiss. Wien, 145, 707 (1936).
- (19) Yagoda, H.: Am. Mineral., 31, 27 (1946).
- (20) Yagoda, H. & Kaplan, N. : Phys. Rev., 71, 910 (1947).
- (21) Yagoda, H. & Kaplan, N. : Phys. Rev., 73, 634 (1948).
- (22) La Palm. J. & Demers P. : Bull. Am. Phys. Soc.,
  22. 17 (1947).
- (23) Albouy, G. & Faraggi, H.: J. Phys. et radium, 10, 105 (1949).
- (24) Mees. C. E. K. : The Theory of the Phot. Process, MacMillan Co., N.Y., (1942).
- (25) Cüer. P. & Morand, M.: Comp. rend., 225, 1146 (1947).

誤 **表**(9月号)

頁	段	行	種	別	正	誤
7	左		第3図	説明	$(  heta_0 +  heta_1 )/ (1+\mathcal{E}rac{-lpha T}{2})$	$( \theta_0 + \theta_1 ) \\ 1+\mathcal{E}^{-\frac{\alpha T}{2}})$
"	左	11, 12	本	文	$( \theta_0 + \theta_1 )/\Delta\theta$	$( \theta_1  +  \theta_1 )/\Delta\theta$
8	左	10	// (:	18式)	$( \theta_0 + \theta_1 )$	$( \theta  +  \theta_1 )$
27	1.1		第 <b>6</b> ₿	【説明	入力電圧特性	入力電
32	右	2	筆者	首紹介	◇山本尚志 助手	◇山本尚志 技官

Ŧ