

第 4 編 蛍光材料と感光材料

第 1 章	解 説	高 野 正 雄	1 頁
第 2 章	増感紙-フィルム系の階調と相互露光量比 (1 2 - 1)	土 井 邦 雄	2
第 3 章	医用蛍光板の二、三の特性 (1 4 - 3)	木 下 幸 次 郎 中 島 緑 彦 竹 中 栄 一 鏑 晃 一 滝 口 隆	5
第 4 章	迅速処理フィルムについて (1 7 - 2)	中 島 庸 介	1 1
第 5 章	Evaluation of Transient Luminescent Phenomena by Frequency Characteristics (1 8 - 3)	土 井 邦 雄 十 枝 内 秋 男	1 4
第 6 章	写真フィルムの三次元的レスポンス関数の測定 (1 9 - 1)	高 野 正 雄	2 0

第4編 螢光材料と感光材料

第1章 解 説

富士フィルム足柄研究所 高野正雄

近年、X線テレビやシンチレーションカメラ等による検診が、盛んにおこなわれるようになってきた。これらの方法が普及する最大の理由は、時々刻々と変化する生体内の変化を動的にとらえることができるところにある。しかし、一方では、従来からおこなわれている蛍光増感紙-写真フィルムの系による静的な検診も、ますます増大の一途をたどっている。これは連続撮影等の用途の増加もあるが、最大の理由は他の系よりも画質がすぐれており、多量の情報が得られるところにあると思われる。

我々がX線像を得ようとするときの最大の注目視点は、情報の多少にあることは言うまでもない。このような目的に対してX線像の質的研究、特にレスポンス関数や Wiener spectrum による鮮鋭度や粒状性の評価研究が、ここ2~3年国内で盛んにおこなわれてきた。その結果、X線像の撮影系の各要素が画質に与える影響の度合を、ある程度定量的に評価できる段階にまで達しているように思える。

本研究報告、第1巻においては蛍光増感紙や写真フィルムの画像の鮮鋭度、粒状性について、その評価法、測定法及び解析などの研究が多数報告された。その結果、レスポンス関数や Wiener spectrum による方法が、有効な手段であることがほとんど確実になった。第2巻では報告の数が少なく、“研究完了”の感を与えているが、これは一次的なもので、各研究者が次に進むべき方向の“探索期間”ではないかと考えられる。おそらく次の研究テーマとしては

1. 系全体の総合的評価
2. 問題となる要素の抽出とその改良
3. 情報の処理法
4. その他

が考えられる。これらの研究はいづれも従来の研究の活用であり、相当困難な問題である。しかし、これらの研究がおこなわなければ、第1巻で報告された研究の価値も半減されてしまう。その意味で、今後この種の研究がさらに盛んになることが期待される。

第2章 増感紙 - フィルム系の階調と相互露光量比*

大日本塗料(株)研究部 土井 邦 雄

1. 緒 言

写真撮影系における画質は、階調、鮮鋭度および粒状性によってきまる。普通の写真撮影では、階調または特性曲線は、単に写真感光材料の特性に固有のものである。しかし、X線撮影系では、階調は増感紙の構成にも依存することが知られている¹⁾。特性曲線と増感紙の構成との関係は、特別な場合について与えられている^{2, 3)}が、一般的な場合については議論されていない。

本章は、X線撮影で用いられる両面塗布写真フィルムの階調と増感紙の相対露光量比**との関係を求める。この関係を用いて、増感紙と写真フィルム系の相互露光量比を測定する。ここで、相対露光量比 k は、複増感紙と両面写真フィルムの組み合わせた系で、両側の乳剤層中における有効露光量の比である。また、相互露光量比⁴⁾は、上と同じ系で片側だけの増感紙が発光した時、これによる反対側の乳剤層のうける有効露光量の割合を示す。

なお、写真の特性曲線は、フレアーやかぶり、また散乱線などによってみかけ上変化する⁵⁾が、ここでは、これらの散乱線などは入射する信号そのものの一部分と考え、写真撮影系特有の変換特性が変化したものは考えない。

2. 階調と相互露光量比の関係

片面塗布写真フィルムの特性曲線を $D_1 = f_1(x)$ とすると、両面フィルムの特性曲線は

$$D_2 = f_2(x) = f_1(x) + f_1(x + \log k) \quad (1)$$

で与えられる。ここで、 x は有効露光量の対数である。

(1)式の成立には、写真フィルムベースで分けられた2つの乳剤層が、カスケードにおかれた単純な2枚の透過フィルターの役割をし、それらの入出力関係が全く線型に取り扱えることを仮定する。Berg⁶⁾によると、写真黒化度が約2.0よりも高くなると、この関係は成立しないが、低濃度側では成立することを実験で観測している。

両面写真フィルムの階調 $G_2'(x)$ は、その定義と(1)式から

$$G_2'(x) = d f_2(x) / dx = G_1'(x) + G_1'(x + \log k) \quad (2)$$

となる。ここで、 $G_1'(x)$ は、片面フィルムの階調である。次に階調は、 x の関数としてではなく、一般に写真黒化度 D の関数として記述されているので、変数を D に変える。(1)と(2)式から、 $G_2(D)$ は

$$G_2(D) = G_1'\{f_2^{-1}(D)\} + G_1'\{f_2^{-1}(D) + \log k\} \quad (3)$$

* cross exposure ratio

** relative exposure ratio

である。この式を、片面フィルムの階調 $G_1(D)$ で書き表わすには

$$\left. \begin{aligned} x_0 &= f_2^{-1}(D) & D_A &= f_1(x_0) \text{ および} \\ D_B &= f_1(x_0 + \log k) \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

とおくと、(3)式から

$$G_2(D) = G_1(D_A) + G_1(D_B) \quad (5)$$

となる。ここで、(1)と(5)式から $D = D_A + D_B$ が成立している。これらの結果から、次の結論が得られる。つまり、写真黒化度 D 、相対露光量比 k 、および特性曲線 $f_1(x)$ が与えられた時、 $G_2(D)$ は、 $G_1(D)$ の曲線を用いて求められる。この時、 D_A と D_B が、(4)式から求められねばならない。これを図式的に求めるには、まず、 $f_1(x)$ を基にして $\log k$ を用いて $f_2(x)$ を描き、与えられた D に対して x_0 を求め、次に $f_1(x)$ を利用して D_A および D_B が求められる。

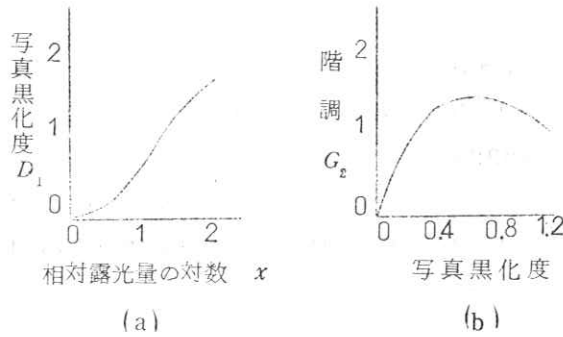
次に実験結果について述べる。

第1図は、片面フィルム（フジKXタイプ）に増感紙（極光FS）を片面の状態を用いて得た特性曲線(a)と階調(b)を示す。

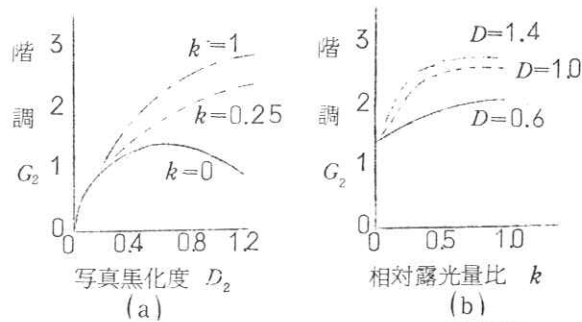
写真黒化度は、平行光濃度に近いもので、デンシトメーターの光学系のN.A.は、入力側も出力側も0.25である。特性曲線は、70kVpで時間目盛によって測定した。階調は、特性曲線の横軸に対する角度をバイプリズムを用いて測定して求めた。

第2図は、(4)と(5)式を基にして計算した両面写真フィルムの階調を示す。ここで、第2図-(b)は、両面写真フィルムの階調の測定から相互露光量比を決定することに応用することができる。

そこで、次の2つの実験を行なった。まず第1のものは、通常の撮影の配置と同じに、両面写真フィルムに、複増感紙を用いて露光する。第2のものは、複増感紙ではなく片側だけに増感紙を用い、反対側は増感紙の台紙と同じ材質の反射用の白紙を用いて露光したこの時の階調は1.0



第1図 片面フィルムの特性曲線と階調



第2図 両面写真フィルムの階調の計算値

の写真黒化度において前者では2.45, 後者では1.99となった。これらは4回の実験の平均値である。

そこで, 第2図-(b)から, これらの実験での相対露光量比は, 1.00および0.27となる。後者の実験で得られた数値は, この増感紙と写真フィルム系における相互露光量比である。

3. 結 言

両面写真フィルムと増感紙を組み合わせた系において, 階調が相対露光量比の関数として与えられることを示した。

片面フィルムの特性曲線と階調を実験から求め, これを用いて両面フィルムの階調を計算し, グラフを作成した。

このグラフを用いて, 階調の測定から相互露光量比を0.27と求めた。

- 1) 平城 実, 土井邦雄: 極光X-Ray No. 21, (1967)12
- 2) H. W. A. Schober, R. Röhler and H. pulvermacher: Jap. J. appl. Phys., 4, suppl. 1. (1965)178.
- 3) 滝沢達児, 加地昭夫: 極光X-Ray No. 19, (1962)1
- 4) H. W. A. Schober: Diagnostic Radiologic Instrumentation, Modulation Transfer Function (1965)366. (C. C. Thomas)
- 5) 菊池真一他編: 科学写真便覧, 上(1959)83.
- 6) W. F. Berg and A. Spühler: Jap. J. appl. Phys., 4, Suppl. 1, (1965) 196.

第3章 医用螢光板の二、三の特性

NHK基礎研 木下幸次郎 中島緑彦
 東大医放 竹中栄一
 芝電気 鏑晃一 滝口 隆

医用X線などで用いられている増感紙や螢光板はX線領域波長を可視光線領域の波長に変換する媒体である。この媒体である螢光体(例えば増感紙なら, $CaWO_4, ZnS:Ag$; 螢光板なら $ZnCdS:Ag$ など)を明るくするために螢光体の粒子を大きくするか, 又は層厚みを増すことと, レスポンス関数を向上させることは相反する¹⁾²⁾。

この打開策の基礎資料を得るために螢光体の二・三の特性を測定したのでその報告をする。

現在使用されている増感紙や螢光板などの螢光体の塗布量に対する明るさや鮮鋭度(遮断周波数)の関係は第一図, 第二図に示す通りで塗布量の増加に対して, 明るさは増加してある値に収束し, 鮮鋭度は低下する。これらの現象は螢光体層内でのX線や変換された光の吸収や散乱のために十分な結果が得られていないことを示す。今X線の層内での吸収係数を α , 光の吸収係数を β とすると層厚み d としたときのX線透過方向に取り出される光の強度は $I_p = K\eta\alpha I_0 [e^{-\alpha d} - e^{-\beta d}] / (\beta - \alpha)$ となる。ただし I_0 はX線強度, K と η は光とX線に対する効率で, この定数には層内でのX線と光の散乱をも含める。この式より螢光体のX線と光に対する吸収係数を測定すると螢光体層の有効な層厚が求まる。その一例が第一図中の FRONT 増感紙にも表われている。そこで螢光体のX線と光に対する吸収係数を求めた(第三図)。X線の吸収係数は管電圧50kVp, 管電流0.54mA, M。対陰極面の白色X線を用いシンチレーション・カウンターで測定した。光に対する吸収係数はX線フィルムの最大感度4600Åの波長の点で測定した(第四図)。測定に用いた螢光体試料はZnS結晶, ZnS粉末と, $CaWO_4$ 粉末層であり参考試料として普通の硝子とALをも調べた。これらZnS結晶, ZnS粉末と, $CaWO_4$ 粉末層をALのX線に対する吸収係数 α は, 夫々 19.0 cm^{-1} , 28.9 cm^{-1} , 22.0 cm^{-1} と 2.0 cm^{-1} となりZnS結晶, ZnS粉末と硝子の光に対する吸収係数 β は夫々 0.48 cm^{-1} , 61.6 cm^{-1} と 0.03 cm^{-1} となった。

以上の結果螢光体のX線に寄与する層厚は約1~2mm程度であり, それに対しZnS結晶は光に対してほとんど透明であるのにZnS粉末層は不透明でZnS結晶とZnS粉末とでは層厚を1mmとすると約500倍の明るさの相違がある。これらの事実よりX線の可視領域その変換媒体としての螢光板に構造的な改善の余地があると推定される。

改善を実現するために制限となる条件はまず次の三つである。

- (1) 螢光体内でX線から変換された光を必要な方向にのみ集中して取出すこと。
- (2) 螢光体層の散乱による光の損失をできる限り防ぐこと。
- (3) 被写体を観察する上に必要な空間周波数帯域を保つこと。

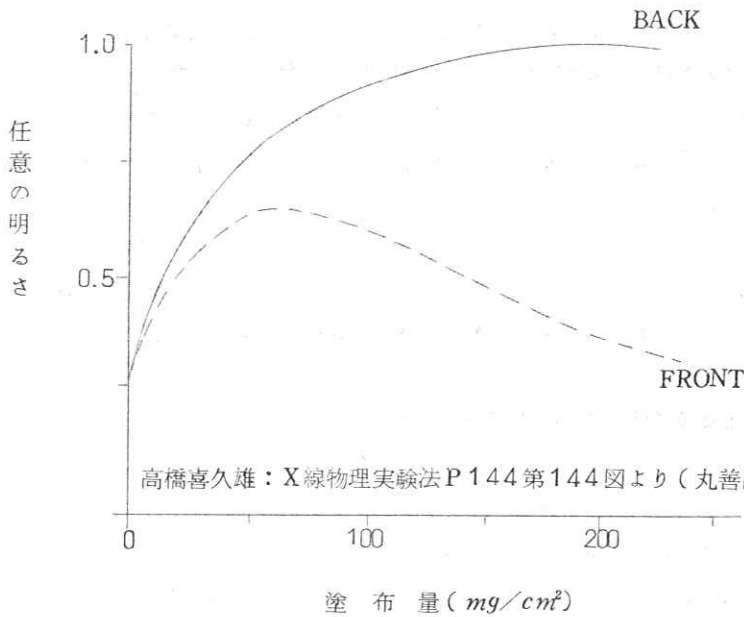
条件(1)は必要方向以外の光を必要な方向に反射させることによって簡単に解決できる。条件(2)はここでは一番問題になる所で螢光体層内の散乱は粒子が細くなるほど大きくなる。このためにもできる限り粉末の螢光体をさけてX線と光の吸収係数面から見て有益な結晶螢光体とすべきである。もしこのような結晶螢光体

が結晶作成工程上困難なら粉末蛍光体をこの蛍光体とほぼ同程度の屈折率をもつバインダーで固着させた固形蛍光体でも満足し得る。条件(3)は第26回日本医学放射線学会総会で報告した骨X線像の所要帯域幅を基にしこの通過帯域を保つように標本定理によって蛍光板上の蛍光体を分割してこれらを網構造とすれば満足されるから問題が少ない。これらの条件を満足すると考えられる新しい放射線用蛍光板の断面の例である(第五図)。

文 献

- 1) 高橋: “蛍光板及び増感紙の性質”, X線物理実験法, p 142~151 丸善(昭和16年)
- 2) 土井他: “X線撮影係のレスポンス関数(1), X線用蛍光板”, 放射線像の研究第1巻p 114~120, RII研究会編(1967)
- 3) 木下他: “X線テレビジョンの情報量”, 第26回日本医学放射線学会総会付録集p55(1967)
木下他: “医用X線写真の所要帯域幅”, 昭和42年度日本写真学会春季講演発表会 p 83~86 (昭和42年)

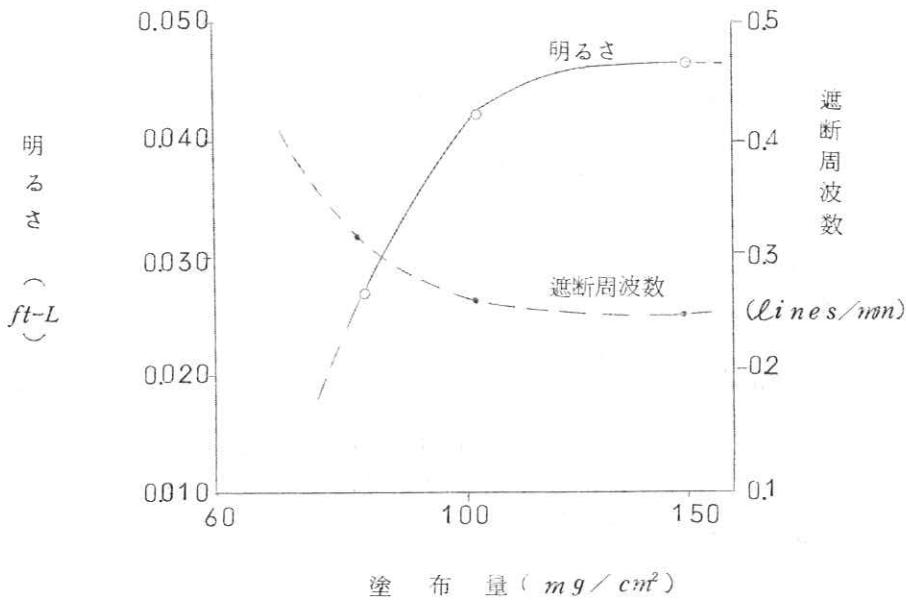
増感紙の塗布量と明るさの関係



高橋喜久雄: X線物理実験法 P 144 第144図より(丸善出版 昭和16年)

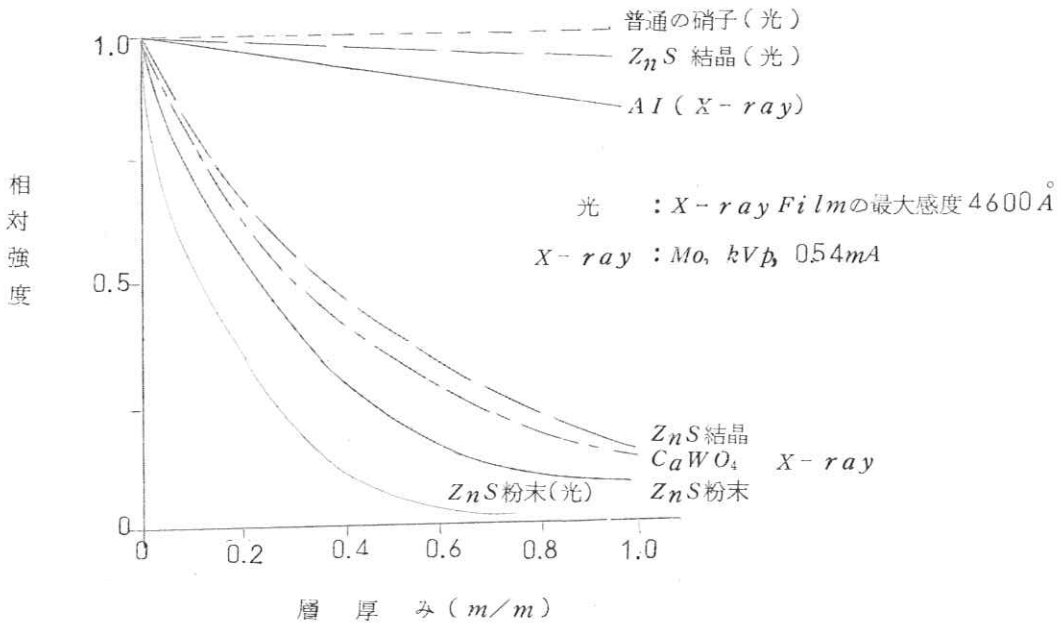
第一図

蛍光板の塗布量に対する明るさと遮断周波数の関係



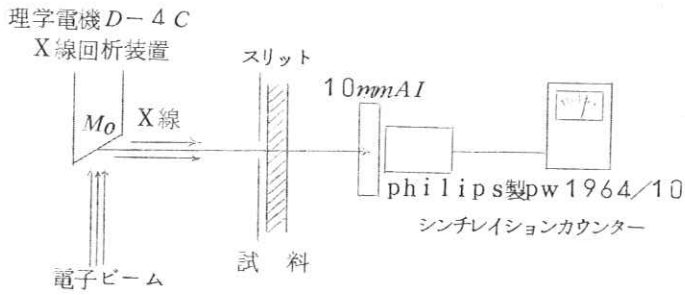
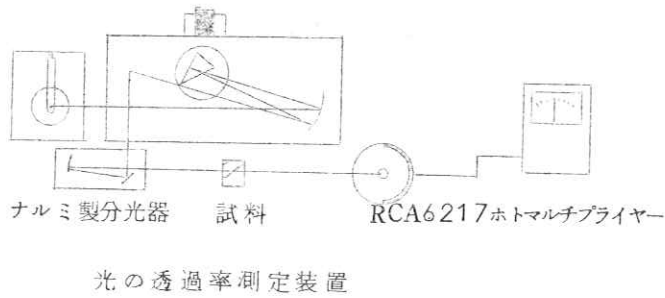
第二図

蛍光体のX線と光に対する透過率



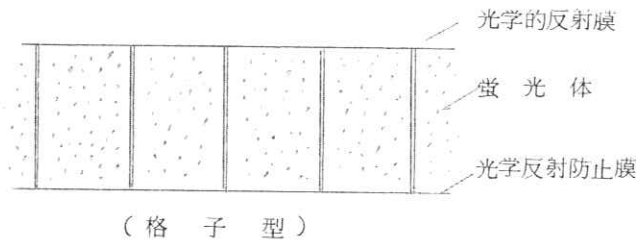
第三図

第四図

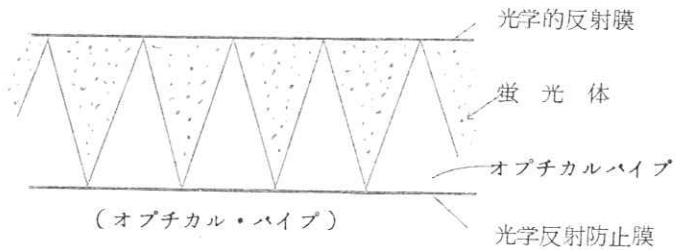


X線の透過率測定装置

新しい放射線用蛍光板の断面



第五図



〔質問討論〕

伊藤：実際に実験に利用される考えはあるか？

中島：もう少し蛍光体の特性を調べねばならない。実際に硝子板と蛍光板を交互に並べて実験をした。今後、楔形やコーン形を用いても実験をする積りだ。

土井：透過率の吸収の違いだけで同じような実験を、Coltman^{注)}が以前に $CaWO_4$ について報告している。その結果によると、蛍光体結晶内でX線の光に変換されたエネルギー量の大体半分が表側に出てくる。内側には100%に近い反射膜がある。

中島：高橋喜久雄先生の本にも大体倍ぐらいという結果がある。

土井：実際の場合、増感紙は1 mmということはなくて、大体0.1 mmぐらいたから、あまり吸収は効かないのではないか？

中島：ということは、そんな条件ではX線の光への変換能率を十分に活用していないことになる。

フィルムには光と直接X線とで露光されることになる。

X線はできる限り光に変換し、その変換された光を取り出すことの方がフィルムの感度によいし、X線TVでは光だけしか利用されていない。

土井：拡散透過率で測定されたか？

中島：そうです。

取り出す光が結晶よりも少いのは粉末体面での反射のためで、結局はX線も粒子面で散乱されることになる。

伊藤：裏面反射を用いた蛍光板は現実されているか？

土井：ポピュラーに使われている。

伊藤：どういふもので反射させているか？

土井：反射といっても、散乱の反射で白い紙である。

伊藤：非金属のようなものか？

土井：そういうものはまだやっていない。

伊藤：蛍光板の方向性が、実際密着する場合は問題ないが、間接撮影の場合、必要な撮影の範囲は非常に狭い。

そこで、そこに光が集中すればそれだけ非常に明るくなる。

その意味でも、コーン形にするというのは面白い。例えば撮影される方向だけに回折するようにすれば。

土井：間違いなく明るくなるというなら調べる。

注)

J. W. Coltman, E. G. Ebbighausen, & W. Alter: "Physical Properties of Calcium Tungstate X-ray screens" Journal of Applied Physics, Vol. 18(1947) P. 542

Table II Light losses in two typical X-ray intensifying screens

	<i>Thin screen</i> (1 layer) 0.045 g/cm ² CaWO ₄	<i>Thick screen</i> (2.45 layer) 0.109 g/cm ² CaWO ₄
<i>Light lost in phosphor & binder</i>	2.2 %	9.6 %
<i>Light lost in mounting card</i>	28.7 %	36.0 %
<i>Light yield (total)</i>	69.1 %	54.4 %

第 4 章 迅速処理フィルムについて

富士フィルム 中 島 庸 介

富士医療用 X-レイフィルム RX タイプは乳剤膜を従来の 7 分処理用 KX の約 $1/2$ に薄層化して 90 秒処理適性を備えさせた新しい高性能 X-レイフィルムである。超迅速処理の場合、現像定着、水洗が高温短時間で行なわれるため、画質と画像保存性に充分の配慮が払われていなければならない。

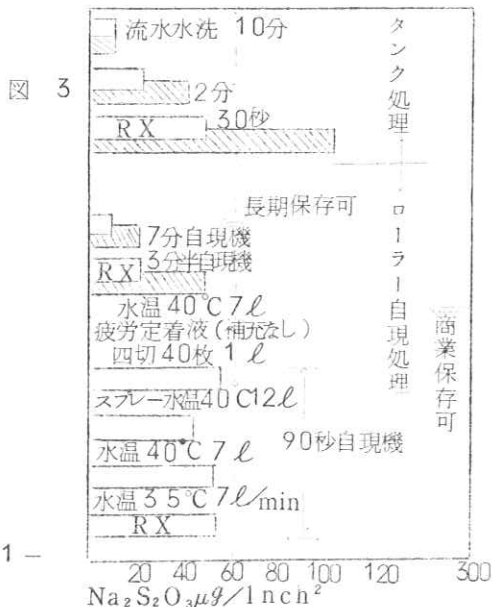
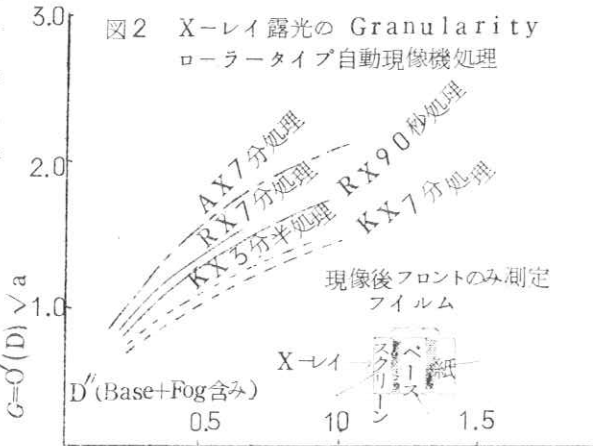
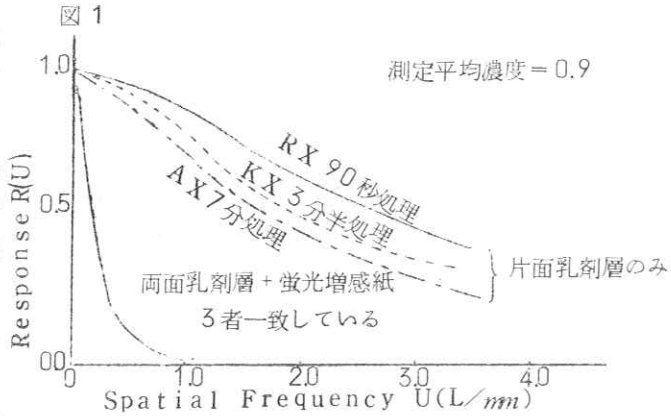
<画 質>

RX タイプを 90 秒処理した場合の乳剤層のレスポンス関数 (Fraunhofer 回折計による) は従来フィルムの 7 分処理や 3 分半処理に較べて良好である。蛍光増感紙を用いるとレスポンス関数は著しく低下して、3 者の差がなくなってしまう。

粒状性 (Wiener Spectrum による) は AX より良好で KX よりやや劣るが 3 者の差は実技的には殆ど認められない。

<画像保存性>

RX タイプの残留ハイボ量 (ASA 法による) は同一処理条件では KX の約 $1/2$ に過ぎない。RX タイプを 90 秒処理した場合は KX の 7 分処理や 3 分半処理に較べてやや多いが変色限界線内にある。富士 90 秒処理機の水洗水の温度や水量、定着液の疲労度の変動が残留ハイボ量に与える影響は小さく変色限界を越えることはまづない。この限界は 50°C , 80% RH, 10 日の経時促進試験より推定したものであるが保存条件が良ければ 3 倍量の残留ハイボがあっても変色は起らない。



<ま と め>

富士90秒処理用RXタイプの画質と画像保存性は従来フィルムの7分処理や3分半処理と比較して、実用上の差はなく良好である。

近日発売予定の超迅速処理用Xレイフィルム(RXタイプ)の処理について御報告する。このフィルムは乾燥仕上がりまでの全現像処理を90秒間で完了する90秒処理自動現像機(Fuji Xray Processor R90)と90秒用処理液(富士X-レイ自動現像機用現像液RX-D, 定着液RX-F)によって処理される。従来の7分又は3分30秒処理の自動現像機用フィルムよりも更に現像進行性を速め又定着速度, 水洗速度, 乾燥速度を速めて設計されている。

処理の迅速化に伴い、もしもすれば従来のフィルムに比して保存性の劣化が危惧されるかも知れないが、その点は十分に配慮し定着, 水洗の効率を向上することによって従来通りの保存性を得ることができた。

又、このフィルムの特徴として従来のフィルムに比して乳剤層のみの測定ではレスポンスが向上したことである。画質を向上させ得る可能性がある。

感度, コントラスト等の写真性に関しては従来のフィルムと同等の性能が得られている。

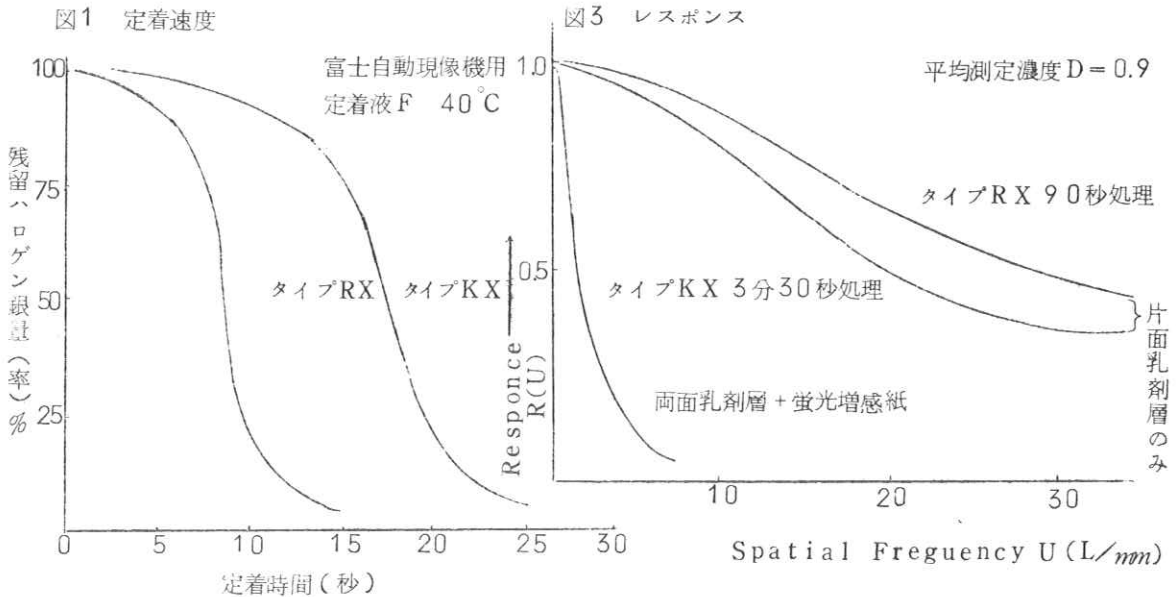


図2 乾燥速度

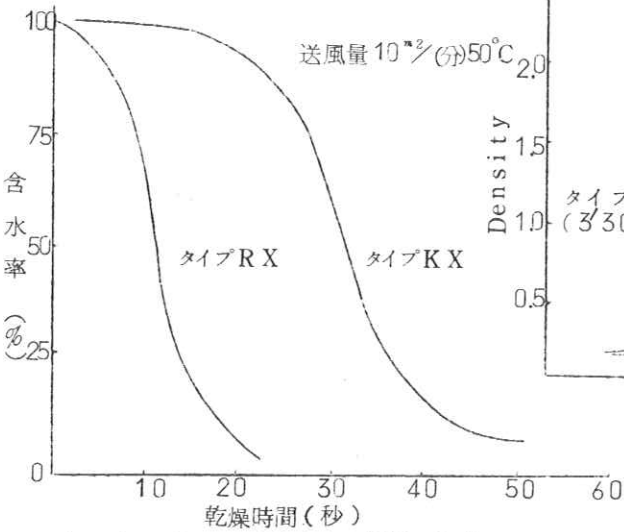
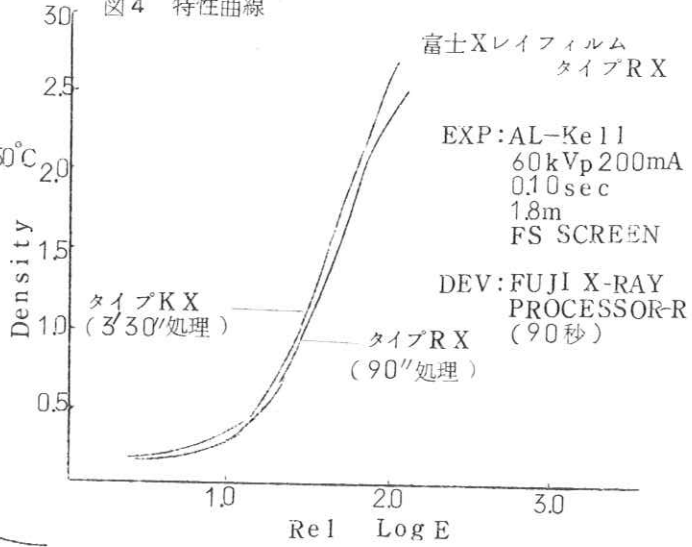
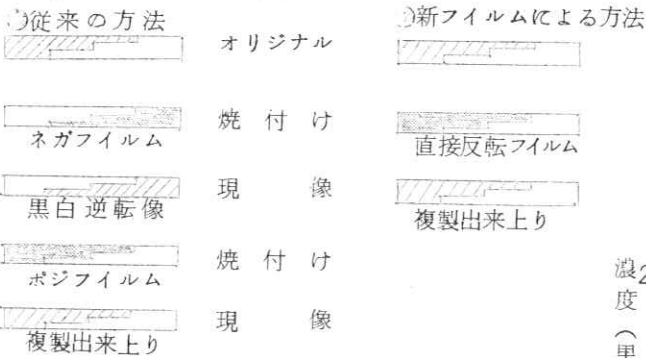
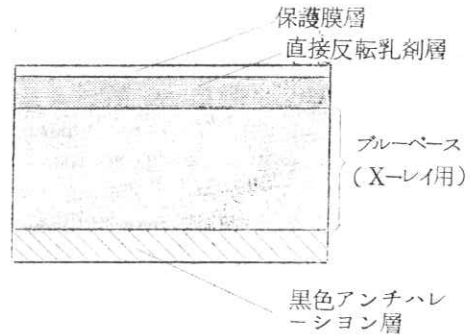


図4 特性曲線



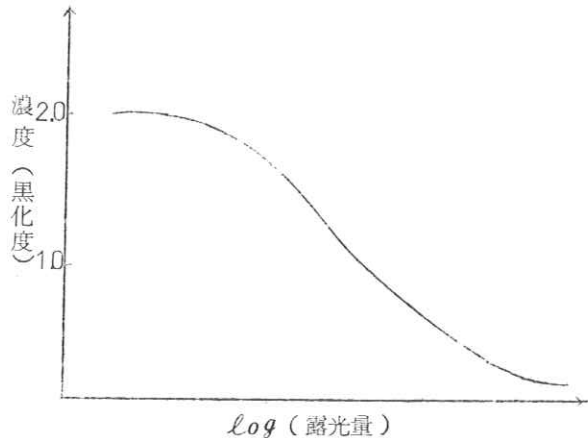
X線写真のデュープ(複製)を簡単に作製する為^ニに開発した「富士ラジオグラフデュープリケーティングフィルム」は右図1の様な構成を持ち図2の様な特性曲線を示す。即ち露光をあてないで現像すると黒化し、露光量の増加と共に黒化度が減少するいわゆる直接反転タイプである。このフィルムを使用してデュープをとる時は下に示す様に約半分の手数でできる。

図1 富士ラジオグラフデュープリケーティングフィルムの構成(断面図)



焼付には専用のプリンター又は一般のプリンターも用いる事が出来る。
現像、定着、水洗、乾燥処理は、普通のX線フィルムと全く同様に、例えば3分半で仕上げるローラー現像機で行なり事が出来る。

図2 特性曲線



Evaluation of Transient Luminescent Phenomena by Frequency Characteristics

Kunio DOI and Akio TOSHINAI

Research Department, Dai Nippon Toryo Co., Ltd.,
Chigasaki, Kanagawa

(Received July 18, 1968)

The concept of a frequency characteristic is introduced to evaluate the persistence of the luminescent materials. The frequency characteristic is defined as a Fourier transform of a corresponding emission intensity of a phosphor under an impulsive excitation. The frequency characteristics of a monomolecular process, a bimolecular process, and an exponentially build up and decay process are calculated theoretically. The frequency characteristics of several red-emitting phosphors for color television are measured under cathode-ray excitation. The amplitude transfer function of a calcium tungstate obtained experimentally is compared with a calculated curve, and good agreement is obtained. The frequency characteristics from a television system to a visual system are discussed for evaluating the temporal image reproduction property of the phosphor.

§ 1. Introduction

The transient emission properties in luminescent materials have mainly been described as it behaves on a time axis. The build up and decay curves of representing the process are obtained from the number of the photons emitted, which is given from a solution of the rate equation.¹⁾ For evaluating the process by a single figure of merit, a time constant or the other effective rise and/or decay time is used in most solid state physical research works. In television application of a phosphor, the emission intensity at a certain decay time which is the time of frame repetition of the exciting electron beam is utilized to evaluate the persistence of the phosphor.²⁾ However, these transient process may also be described on a frequency axis, that is, the reciprocal of the time axis. It means that we may apply these to the frequency characteristics which have already been known to the other fields of physics, that is, communication systems³⁾ and optics.⁴⁾ One of the most usefulness of this concept is that when the signal transfer system is composed of several elements in cascade, the total characteristic is simply given by multiplying each characteristic of all the elements included.

This paper introduces and discusses the concept of the frequency characteristics of the transient emission properties of the phosphor. The frequency characteristics of

several processes are calculated theoretically, and the frequency characteristics of some phosphors under cathode-ray excitation are obtained experimentally.

§ 2. Frequency Characteristics of Luminescence

2.1. Definition

If the transient excitation intensity which is the electromagnetic wave, the electron beam or any other input to the phosphor is represented by $i(t)$ and the corresponding emission intensity of the phosphor by this excitation $o(t)$, the relationship may be given by a convolution integral³⁾

$$o(t) = \int_0^{\infty} i(t-t')h(t')dt', \quad (1)$$

where $h(t)$ is the corresponding emission intensity for the impulsive excitation and is called the impulsive response in communication systems, and the line spread function in optics. The relationship given by eq. (1) requires the linear and invariant conditions for the luminescent process. However, since the exact form of $h(t)$ is in general dependent on the intensity and the temporal history of the excitation, the explicit linear and invariant conditions are somewhat questionable in the phosphor. In the macroscopic aspect, as time-averaged emission intensity is proportional to the time-averaged excitation intensity, it may be approximately satisfied. Since

the impulsive response $h(t)$ may answer the causality and stability requirements, eq. (1) is more simply written by

$$O(f) = I(f)H(f) \quad (2)$$

from the convolution theorem of the Fourier integral, where the Fourier transform is defined as

$$H(f) = \int_0^{\infty} h(t) \exp(-2\pi jft) dt. \quad (3)$$

In the similar forms $I(f)$ and $O(f)$ are defined when $i(t)$ and $o(t)$ are absolutely integrable functions. The frequency characteristic of luminescence is defined by eq. (3), and the useful multiplicative relationship between input and output signals is represented by eq. (2). Equation (3) is rewritten by its real and imaginary parts, and is also related to the physically observable quantities as

$$H(f) = H^{(r)}(f) - jH^{(i)}(f) \quad (4)$$

$$= |H(f)| \exp\{-j\varphi(f)\}, \quad (5)$$

where $H^{(r)}(f)$ and $H^{(i)}(f)$ are the Fourier cosine and sine transforms respectively, which are connected by a Hilbert transform, and $|H(f)|$ and $\varphi(f)$ represent the amplitude and the phase transfer functions respectively.

The amplitude and the phase transfer functions are given by the real and imaginary parts as

$$|H(f)| = [H^{(r)}(f)^2 + H^{(i)}(f)^2]^{1/2} \quad (6)$$

$$\varphi(f) = \arctan H^{(i)}(f)/H^{(r)}(f) \quad (7)$$

from eqs. (4) and (5).

The frequency characteristic is therefore obtained by knowing $h(t)$.

2.2. Monomolecular and bimolecular decay processes

The most fundamental decay laws in luminescent materials are monomolecular and bimolecular decay processes, and sometimes the build up process may be regarded as to be instantaneous in comparison with the decay process. The frequency characteristics of these elementary processes may be calculated theoretically. However, the frequency characteristics of some more complicated processes are difficult in general to obtain in a closed form. And some of the decay curves, for example, the decay curves¹⁾ which were obtained in electron trap decay with uniform or exponential trap distribution seem

to be not appropriate as a luminescent process, for they do not satisfy the stability condition, *i.e.*, the integrations of these decay curves over the whole time domain diverge.

In monomolecular decay process, the decay curve is represented by an exponential function. If we put this by

$$h_m(t) = (1/a) \exp(-t/a), \quad t \geq 0, \quad (8)$$

using a constant a , its Fourier transform gives

$$\begin{aligned} H_m(f) &= \frac{1}{a} \int_0^{\infty} \exp(-t/a - 2\pi jft) dt \\ &= (1 + 2\pi jfa)^{-1}. \end{aligned} \quad (9)$$

The amplitude and the phase transfer functions are given by

$$|H_m(f)| = \{1 + (2\pi fa)^2\}^{-1/2} \quad (10)$$

$$\varphi_m(f) = \arctan 2\pi fa \quad (11)$$

from eqs. (6), (7) and (9).

In bimolecular decay process, the decay curve is represented by

$$h_b(t) = (1/a)(1+t/a)^{-2}, \quad t \geq 0. \quad (12)$$

The Fourier transform is then given by

$$H_b(f) = \int_0^{\infty} \frac{\exp(-2\pi jft)}{a(1+t/a)^2} dt. \quad (13)$$

This is calculated on integration by parts, and then by changing the variable to $2\pi jf(t+a) = t'$ and using the exponential integral $Ei(-z)$ defined by

$$Ei(-z) = - \int_z^{\infty} \frac{\exp(-t')}{t'} dt',$$

we obtain

$$H_b(f) = 1 + 2\pi jfa \exp(2\pi jfa) Ei(-2\pi jfa). \quad (14)$$

The real and imaginary parts of eq. (14) are written by using $Ei(-jx) = \text{ci } x - j \text{si } x$ as follows:

$$\begin{aligned} H_b^{(r)}(f) &= \\ &1 + 2\pi fa (\cos 2\pi fa \text{ si } 2\pi fa - \sin 2\pi fa \text{ ci } 2\pi fa) \end{aligned} \quad (15)$$

$$\begin{aligned} H_b^{(i)}(f) &= \\ &-2\pi fa (\cos 2\pi fa \text{ ci } 2\pi fa + \sin 2\pi fa \text{ si } 2\pi fa), \end{aligned} \quad (16)$$

where we use the integral trigonometric function defined as

$$\text{si } x = - \int_x^{\infty} \frac{\sin t}{t} dt \quad \text{and} \quad \text{ci } x = - \int_x^{\infty} \frac{\cos t}{t} dt.$$

Finally the amplitude and the phase transfer

functions of the bimolecular decay process are obtained as

$$|H_b(f)| = [1 + (2\pi fa)^2 (\text{ci}^2 2\pi fa + \text{si}^2 2\pi fa) - 4\pi fa (\sin 2\pi fa \text{ci } 2\pi fa - \cos 2\pi fa \text{si } 2\pi fa)]^{1/2} \quad (17)$$

$$\varphi_b(f) = \arctan \frac{2\pi fa (\cos 2\pi fa \text{ci } 2\pi fa + \sin 2\pi fa \text{si } 2\pi fa)}{2\pi fa (\sin 2\pi fa \text{ci } 2\pi fa - \cos 2\pi fa \text{si } 2\pi fa) - 1} \quad (18)$$

using eqs. (6), (7), (15) and (16).

The decay curves and their frequency characteristics are shown in Figs. 1 and 2, respectively.

2.3. Exponentially build up and decay process

For luminescent materials used in scintillation counter,⁶⁾ the transient process is described by two exponential curves in build up and decay processes having time constants τ_R and τ_D as

$$h_s(t) = \frac{1}{\tau_D - \tau_R} \{ \exp(-t/\tau_D) - \exp(-t/\tau_R) \}, \quad (19)$$

$t \geq 0, \quad \tau_D \neq \tau_R.$

The Fourier transform of eq. (19) becomes

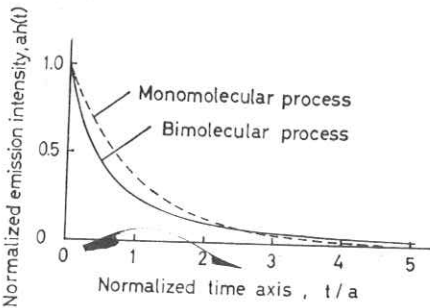


Fig. 1. Decay curves in monomolecular and bimolecular processes.

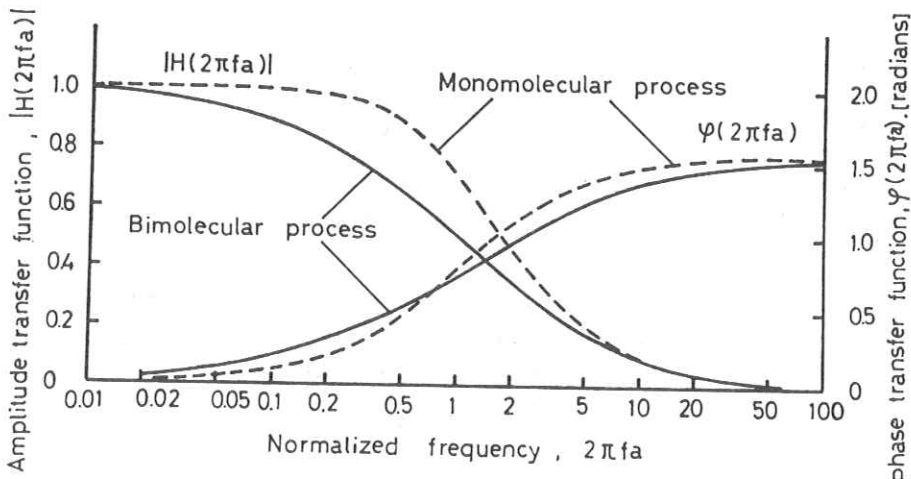


Fig. 2. Frequency characteristics of monomolecular and bimolecular processes.

$$H_s(f) = \frac{1}{\tau_D - \tau_R} \left\{ \frac{\tau_D}{1 + 2\pi j f \tau_D} - \frac{\tau_R}{1 + 2\pi j f \tau_R} \right\} \quad (20)$$

The amplitude and the phase transfer functions are therefore given as

$$|H_s(f)| = [\{ 1 + (2\pi f \tau_D)^2 \} \{ 1 + (2\pi f \tau_R)^2 \}]^{-1/2} \quad (21)$$

$$\varphi_s(f) = \arctan \frac{2\pi f (\tau_D + \tau_R)}{1 - 4\pi^2 f^2 \tau_D \tau_R} \quad (22)$$

using eqs. (6) and (7) from real and imaginary parts in eq. (20).

The amplitude and the phase transfer functions in eqs. (21) and (22) are shown in Figs. 3-(a) and (b), where the parameter $m = \tau_R/\tau_D$ is introduced to indicate the fraction of the exponentially build up process. If the rise time τ_R is extremely small and may be regarded as zero, eqs. (21) and (22) equal to eqs. (10) and (11) in monomolecular decay process. When $f \ll \sqrt{\tau_D \tau_R}/2\pi$, the frequency characteristic is equivalent to two monomolecular processes in cascade that have time constants τ_D and τ_R . However, in higher frequencies the phase transfer function behaves quite differently, and in $f \geq \sqrt{\tau_D \tau_R}/2\pi$ the phase changes over $\pi/2$.

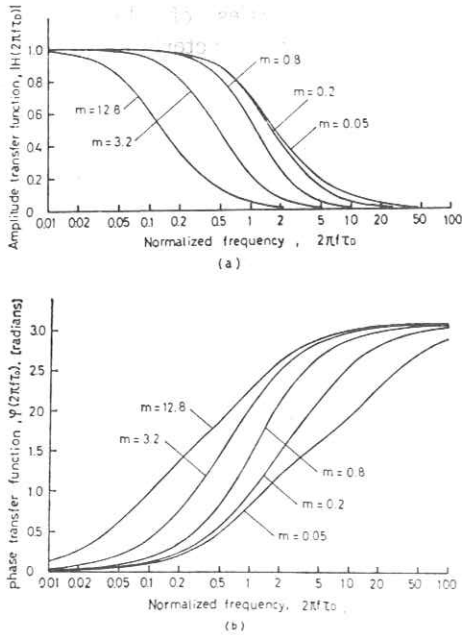


Fig. 3. Frequency characteristics of exponentially build up and decay processes. (a) and (b) show the amplitude and the phase transfer functions, respectively.

§ 3. Measurement of Frequency Characteristics

The frequency characteristics of several phosphors under cathode-ray excitation are experimentally obtained by using the sine wave modulated electron beams.

If the input excitation signal is given by

$$i(t) = i_0 + i_1 \cos 2\pi ft, \quad (23)$$

using constants i_0 and i_1 , and the normalization is performed by

$$\int_0^\infty h(t) dt = 1 \quad (24)$$

which gives $H(0) = 1$ from eq. (3), the output emission becomes

$$o(t) = i_0 + i_1 |H(f)| \cos \{2\pi ft - \varphi(f)\} \quad (25)$$

from eq. (1). The differences between the input and the output signals in eqs. (23) and (25) are the amplitude and the phase terms of the carrier cosine wave, and these are corresponding to the amplitude and the phase transfer functions.

The frequency characteristics are, therefore, obtained by comparing the input and the output signals displayed on the same time axis.

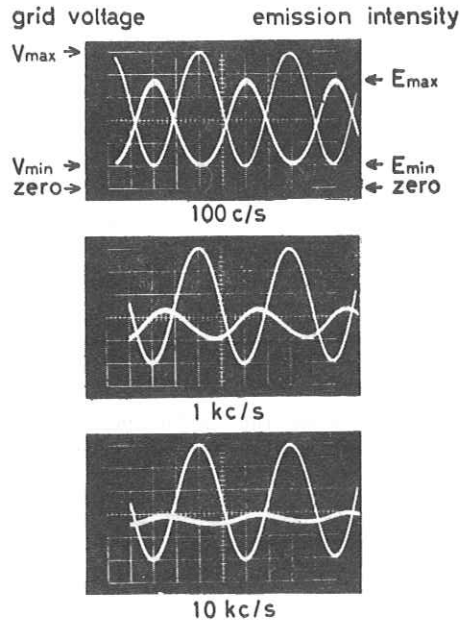


Fig. 4. Oscilloscope records of input grid voltages and photomultiplier currents in $YVO_4:Eu$ at 100 c/s, 1 kc/s and 10 kc/s. The grid bias is 0.7 volt and the p-p voltage of the input is 1.0 volt.

3.1. Experimental results

The phosphor samples coated on glass plates (40 mm × 40 mm) without metal backing are mounted in a demountable cathode-ray excitation equipment. The high potentials (14 kV) are supplied to accelerate the electron beam which is not focused with magnetic field and not scanned with raster. The audio sine wave oscillator which is supplied to a grid is used, in order to modulate the electron beam sinusoidally.

The constant grid bias is applied and adjusted to select the linear part between the grid voltage and the electron beam current. The emission intensity of the phosphor is observed by a photomultiplier (931A). The input signal fed to the grid and the photomultiplier output are observed by a dual-beam oscilloscope.

The photographs on the oscilloscope are shown in Fig. 4. If the grid voltage characteristics deviate appreciably from the linear part, the emission wave form is quite deformed from the sine wave.

The frequency characteristics may be obtained by plotting the amplitude variation and the phase difference of the emission intensity as a function of the frequency. The

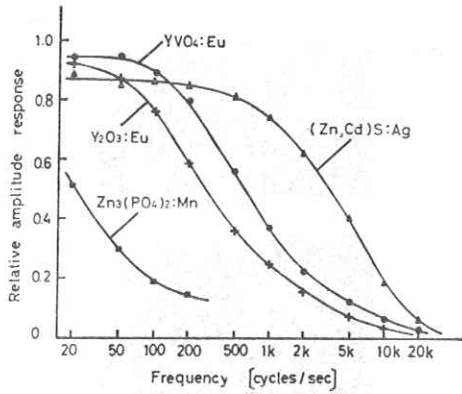


Fig. 5. Amplitude transfer functions of several red-emitting phosphors for color television.

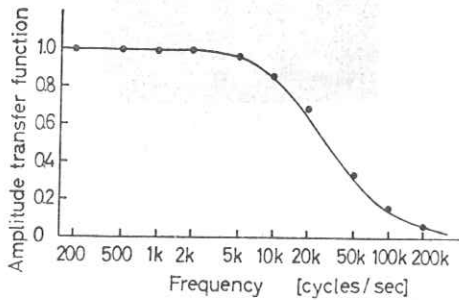


Fig. 6. Comparison of the amplitude transfer functions of the calcium tungstate phosphor between theory and experiments. The full line shows a theoretical curve.

amplitude transfer functions of several red-emitting phosphors for color television are shown in Fig. 5. The phase transfer function is not shown, because the measurement by this method is not precise.

3.2. Comparison of the theory and the experiment

The measured amplitude transfer function of a calcium tungstate phosphor is compared with the calculated amplitude transfer functions. Since the calcium tungstate phosphor obeys beautiful monomolecular process of which time constant is measured as 10×10^{-6} sec, the amplitude transfer function may be calculated from eq. (10). The comparison of the measurement and calculation is illustrated in Fig. 6. This seems good agreement between these two.

§ 4. Discussions and Conclusions

The frequency characteristics are suggested as a new tool of investigating the transient

luminescent properties of the phosphors. Several frequency characteristics of the phosphors are calculated theoretically and obtained experimentally.

The frequency characteristics are most powerful in signal transferring chain for its simple multiplicity relationship of all the elements in cascade.

In television system, the picture is recognized through at least three frequency characteristics in the input electric system, the phosphor screen and the human eye. Among three the temporal frequency characteristics of the human eye is the lowest one, where the maximum amplitude has been obtained around 2 c/s.⁶⁾ When we compare the frequency characteristics of the phosphors and the human eye, the former may be regarded almost flat over the latter with few exceptions, for example, the frequency characteristic of zinc phosphate activated with manganese. The band width in this whole system is therefore mainly decided by the eye receptor. In this system it may be concluded that the frequency characteristic of the phosphor should be evaluated by only low frequency region that the eye receptor covers rather than the higher frequency decided by the frame repetition. These may give a reason why the old method concerning the frame repetition in evaluating the temporal image reproduction properties of the phosphor was not necessarily corresponding to the result given by the visual examination.

The amplitude decrease in this low frequency region is caused by a very weak but extremely long decay process in the phosphor. The extent of this decrease is given by the content of the total area of the slow decay curve in the overall decay curve. Its effect on temporal image is very similar to the optical flare effect on static spatial image. This slow decay process may be, therefore, of practical importance in television phosphor screen than fast decay process.

In this paper the application of the frequency characteristics to the solid state physics is not discussed and its usefulness is not known yet. However, in sensitized luminescent system the related centers may be expected to have the similar frequency characteristics. In the instrumentation pro-

blems of measuring the luminescent properties, the concept of the frequency characteristics may open the new scope.

Acknowledgement

The authors wish to thank Dr. Takao Toryu and Mr. Hitoshi Sakamoto for their discussions and encouragements throughout the work.

References

- 1) B. J. Pernick: *Appl. Optics* **1** (1962) 753.
- 2) T. V. Rychlewski and R. Q. Vogel: *Electrochemical Technology* **4** (1966) 9.
- 3) E. J. Baghdady: *Lectures of Communication System Theory*. (McGraw-Hill, 1961).
- 4) E. L. O'Neill: *Introduction to Statistical Optics*. (Addison-Wesley, 1963).
- 5) G. F. J. Garlick: *Luminescence of Inorganic Solids*. (edited by P. Goldberg) p. 717 (Academic Press, 1966).
- 6) O. Bryngdahl: *J. Opt. Soc. Amer.* **56** (1966) 706.

§ 1. 緒言

従来、写真フィルムに記録された像のレスポンス関数は、銀像も色素像も膜厚を無視した2次元的な測定を行っていた。しかしながら、最近のホログラムに見られるような多重像の記録や、マイクロフィルムなどの膜厚より細い線の記録が行なわれるようになると、当然乳剤膜厚を無視した考え方は、満足のゆく写真フィルムの評価ができない。

写真像の三次元的解析についてはすでに大上ら¹⁾や Strübin²⁾によって報告されている。しかし、これらの報告は、超薄切片をつくり電子顕微鏡写真を撮影して解析したり、乳剤膜表面から徐々に酵素分解をして Fraunhofer 回折計などを用いて解析する方法で、自的によつては非常にすぐれた方法であるが、技術的な困難を併い、時間もかかる(理論的な計算についても報告が2~3提出されている)³⁾。そこで次のような簡単な方法で写真画像の三次元的分布を測定する方法を考えた。

現象された写真フィルムを、直径5~10mmの円筒に乳剤層を外側に巻きつけ、これをスリガラス平面に圧着させながら切削する。乳剤層は斜めに切削され、乳剤層切削面が100~1000μの中として観察できる。この中になるとマイクロホトメーターで充分濃度測定ができ、深さ方向の濃度分布を容易に得ることができる。今回はこの方法の検証をかねて感光層が単一層でできている。Neopan F(ロール)と MinicopyHRについて、その三次元的レスポンス関数を求めた。以下実験方法及びその結果について報告する。

§ 2. 試料の作成法

Fig. 1 に切削法の原理を示した。切削する試料を図の如く、乳剤層を外側にして円筒(以後試料ホルダーと呼ぶ)に巻きつけ、スリガラス円板面に圧着させる。スリガラスは円板にしておき、一定速度で回転させる。一度切削したスリガラス面は切削小片がスリガラス面の凹部に入り込んでいるので、試料ホルダーをスリガラス円板の外側から内側に順次移動させる(レコードプレイヤーと同じ方法)。

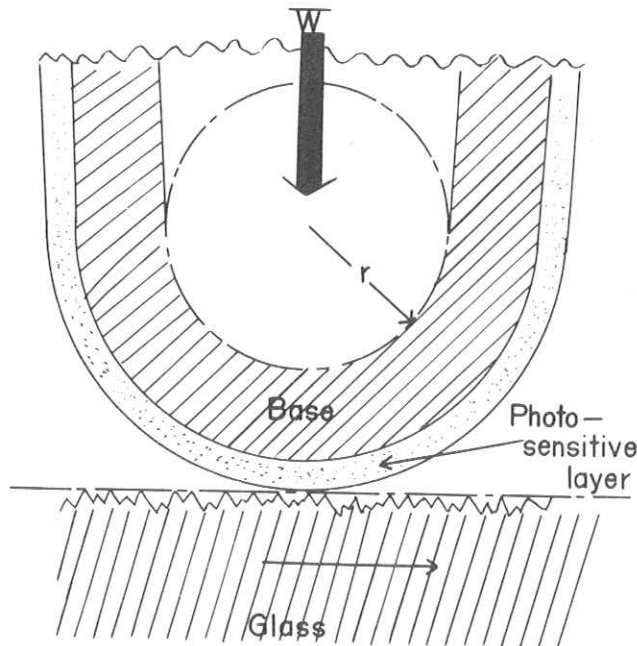


Fig. 1. 切削法の原理 一度平面仕上げたガラスに砂をかけたスリガラス円板の切断面

このようにすると乳剤層は常に新しいスリガラス面と接し、その切削面は非常にきれいに仕上がる。

このような方法で切削した試料は、Fig. 2 に示したように切削部にゼラチンを塗布してから斜め切断部の濃度変化をマイクロホトメーターで測定する。

§ 3. 三次元的レスポンス関数の測定
3-1. 二次元と三次元のホケ

極微小なスポット（デルタ関数に近い）の光をフィルムに与えると、乳剤中でハロゲン化銀結晶粒子等の光散乱によって、その吸収分布は三次元的な広がりを持ったものになる。今、乳剤面上に原点をとり、 x, y, z の三次元座標を考え、三次元的な光吸収分布を $p(x, y, z)$ とする（Fig. 3 参照）。従来はこの $p(x, y, z)$ を

$$p(x, y) = \int_0^t p(x, y, z) dz \quad (1)$$

として二次元的な point spread function で取りあつかっていた。この時の line spread function $h(x)$, response function $R(u)$ は

$$h(x) = \int_{-\infty}^{+\infty} p(x, y) dy \quad (2)$$

$$R(u) = \int_{-\infty}^{+\infty} h(x) \exp(-2\pi i u x) dx \quad (3)$$

となる。しかしながら、現像効果の解析や、ホログラフィーなどの多重像の記録などの場合には乳剤膜厚を無視したり取り扱いでは不十分な情報しか得

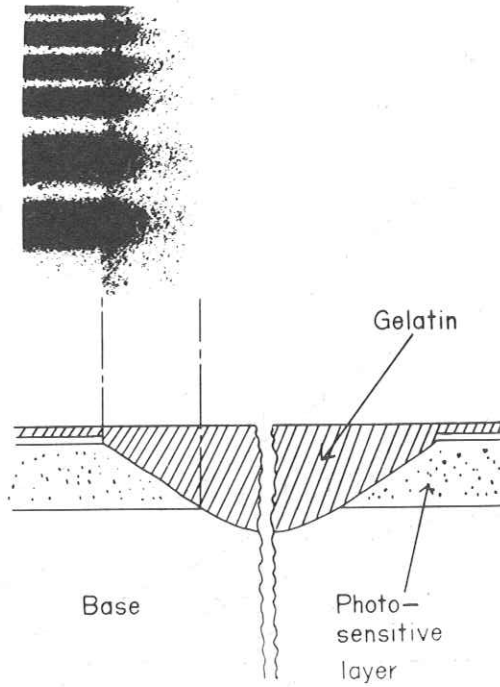


Fig. 2. 切削部の断面と顕微鏡写真

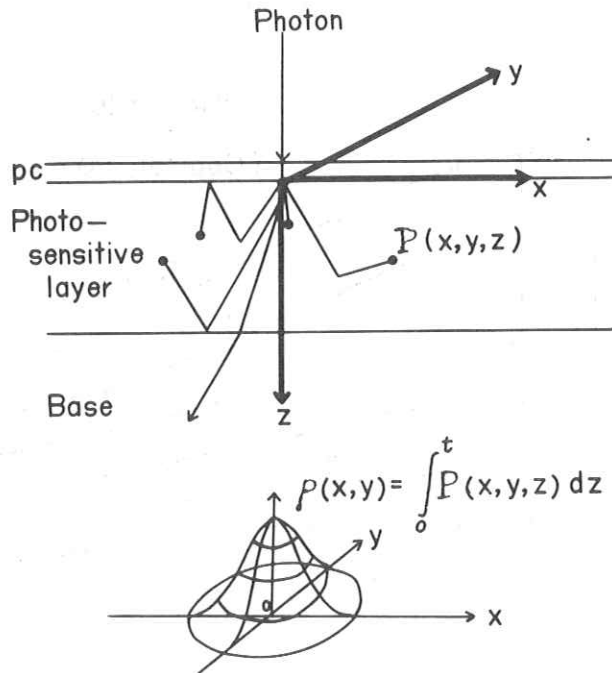


Fig. 3. 乳剤中での光の分布

られない。そこで、写真フィルムに正弦波露光を与え、現像処理後の試料について三次元的レスポンス関数を求めてみた。

3-2. 実験結果

Fig. 4, 5 には Neopan F (ロール) と Minicopy HR について、空間周波数 $u = 0$ に

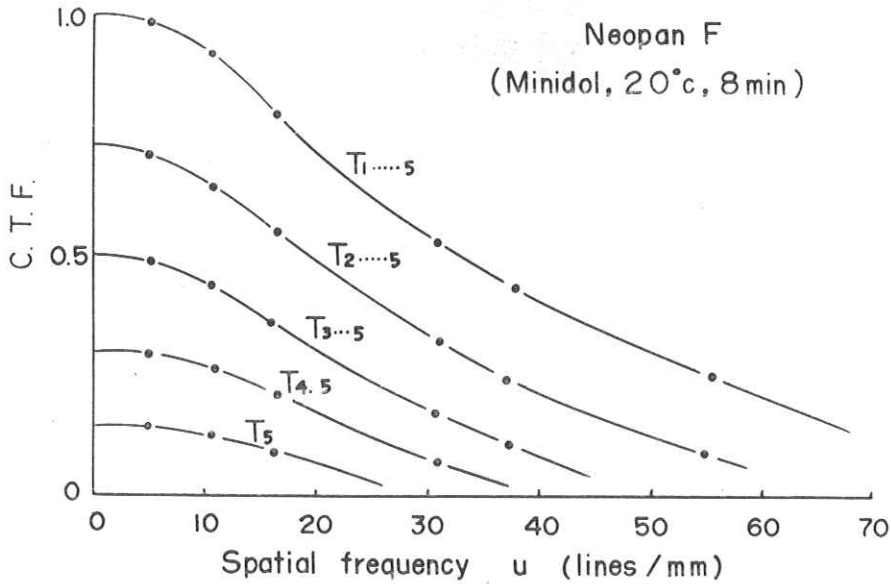


Fig. 4 空間周波数に対する深さ方向の濃度変化 (Neopan F, ロール)

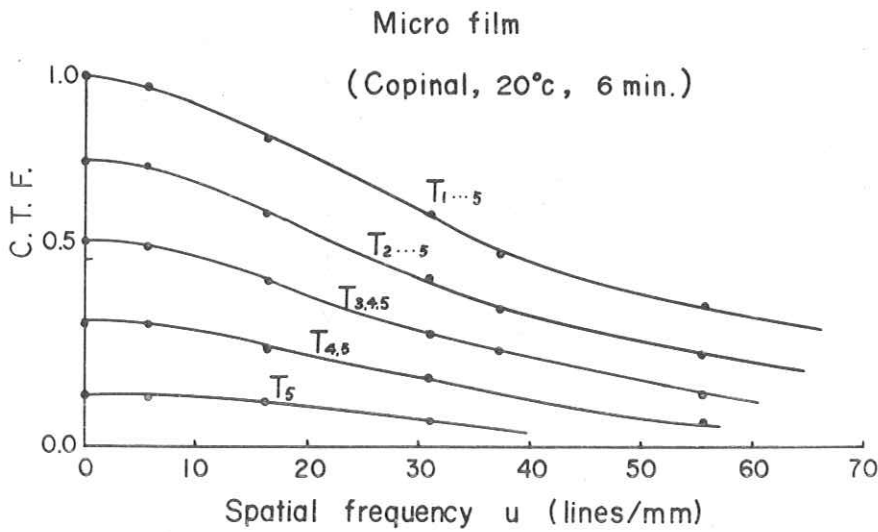


Fig. 5 空間周波数に対する深さ方向の濃度変化 (Minicopy HR)

おける濃度 ΔD が 1.0 であるときの空間周波数に対する深さ方向の濃度変化を示した。乳剤層の全厚みを 5 等分し、上から T_1, T_2, T_3, T_4, T_5 とし、それぞれを単位層と呼ぶことにする。Neopan F の乳剤層 ΔT は 9.6μ であり、単位層は 1.9μ である。また Microfilm H R は $\Delta T = 2.5 \mu$ 、 T は 0.5μ である。

これらの結果から $D_{T1} \dots 5 - D_{T2} \dots 5 = D_{T1}, \dots, D_{T5}$ を求め、 T_1, T_2, \dots, T_5 におけるレスポンス関数を求めた。有効露光量への換算は同様な方法で求めた三次元の特性曲線を使用した。結果を Fig. 6, 7 に示した。

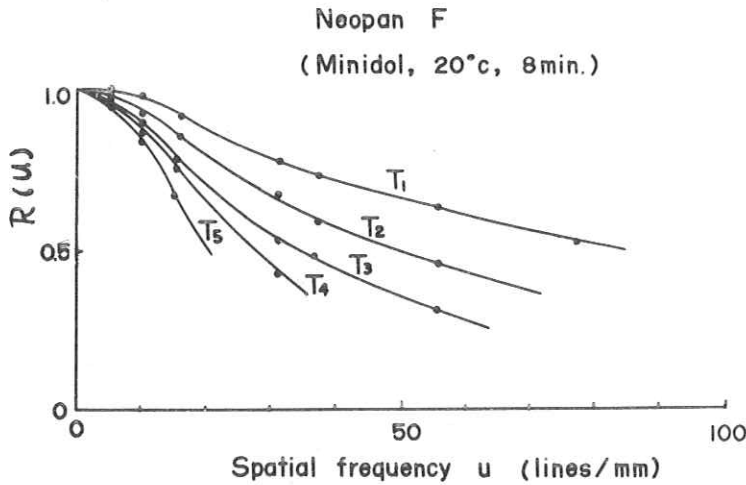


Fig. 6. Neopan F (ロール) の三次元的レスポンス関数

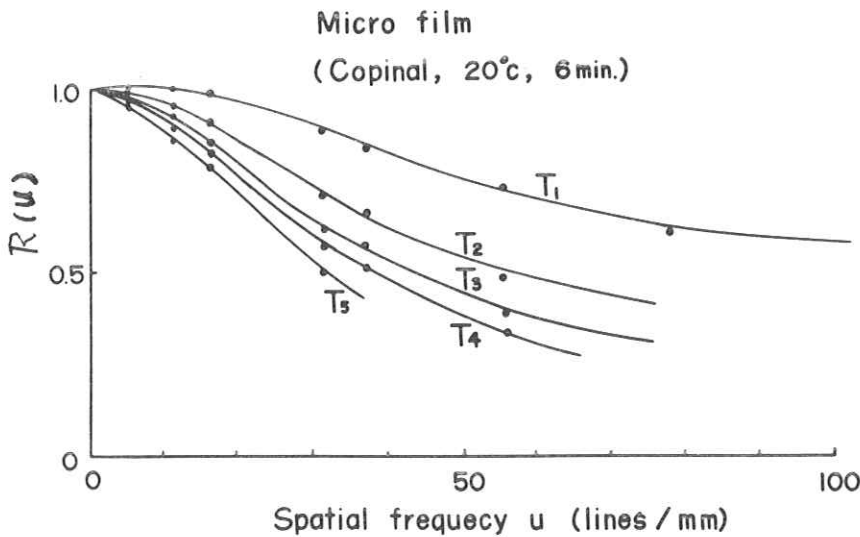


Fig. 7. Minicopy H R の三次元的レスポンス関数の測定

一般に乳剤の三次元的なレスポンス関数の変化の様子はフィルムによって異なることが予想される。Fig. 6, 7においても、Neopan F (ロール) は T_1 と T_2 の差が少なく、MinicopyHRでは T_1 と T_2 の差が大きく、他は比較的差が小さい。これらは光の散乱と現像処理に大きく依存しているためと思われる。

なおここで求めた三次元的レスポンス関数と従来の二次元的レスポンス関数の関係は

$$M(u) = \frac{\sum_{i=1}^5 W_i M_i(u)}{\sum_{i=1}^5 W_i} \quad (3)$$

であらわされる。 W_i は各単位層の effective exposure の相対的な比である。

§ 4. 三次元的レスポンス関数の近似式

ここでは § 3. で求めた三次元的レスポンス関数の近似式を求める。従来、optical lens のレスポンス関数、あるいは film のレスポンス関数に関する近似式が佐柳⁴⁾、Ingelstam⁵⁾ や Shade⁶⁾ らによって報告されている。

$$\frac{1}{\{1 + (2\pi\sigma u)^2\}^{\frac{3}{2}}} \quad (\text{lens})^{4)}$$

$$\frac{\alpha^2}{\alpha^2 + u^2} \quad (\text{lens film})^{5)}$$

$$\exp(-2\pi\beta u) \quad (\text{lens})^{6)}$$

$$[(1 - mu^2)^2 + (cu)^2]^{-\frac{1}{2}} \quad (\text{film})^{7)}$$

しかし、Fig. 6, 7 に最も良く近似する式は、(10)式を多少変形した

$$R_T(u) = \frac{A_T^2}{A_T^2 + u^{\frac{3}{2}}} \quad (8)$$

であった (Fig. 8 に (10)式の変化を示した)。Fig. 6, 7 について常数 A_T を求めて、深さ Z に対して作図すると、Fig. 9 になる。 A_T と Z は両対数目盛で直線になり、さらに Neopan F と MinicopyHR とはほぼ平行関係にある。 A_T と Z との関係式は次式であらわされる。

$$A_T = 10^{k_1 \log Z - k_2}$$

但し、 k_1 、 k_2 は常数である。

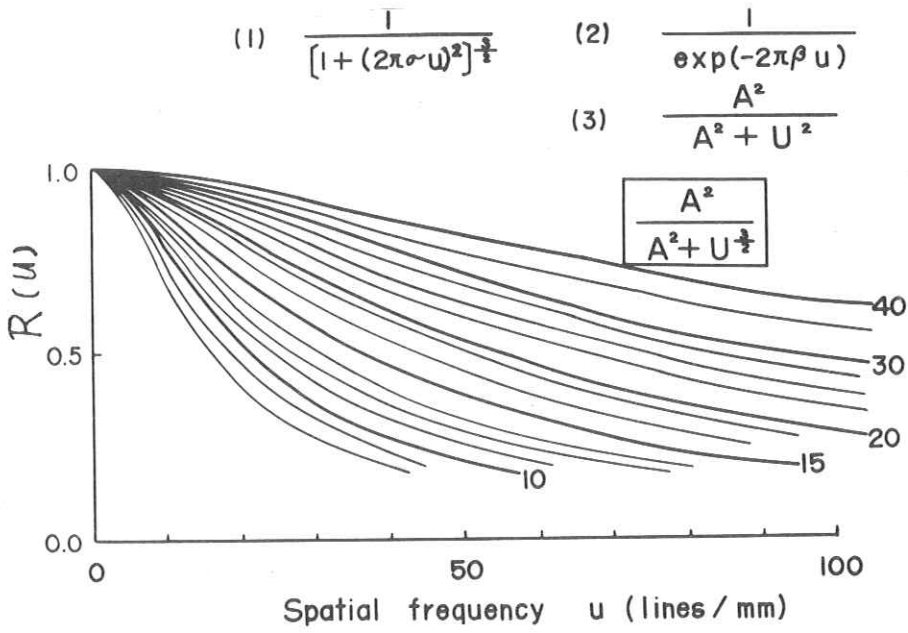


Fig. 8 三次元的MTFの近似式とその変化

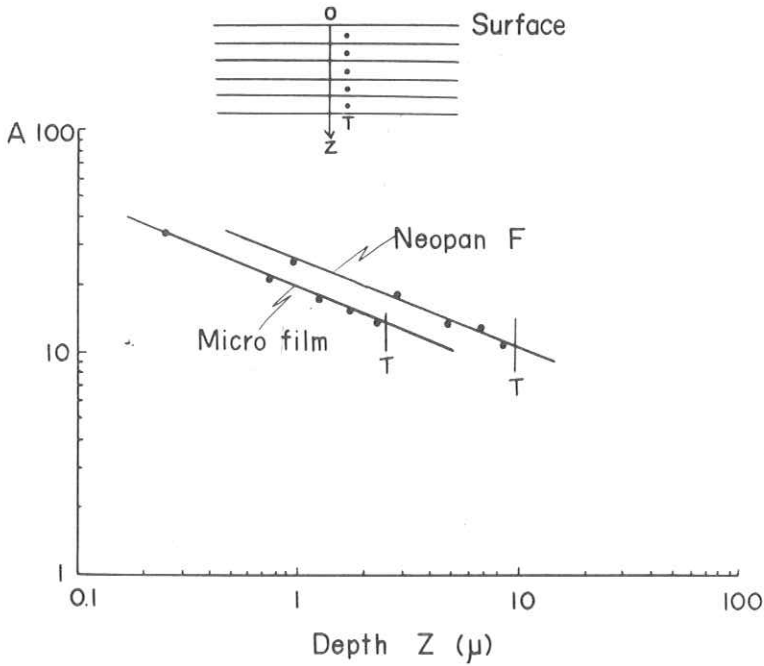


Fig. 9 乳剤膜厚の深さと近似式のパラメーター A_r との関係

§ 5. まとめ

写真画像の三次元的レスポンス関数の解析法としてスリガラスを用いた斜め切削方法を考えた。円筒に試料を巻きつけ、平面性の良いスリガラス面に圧着し、切削することにより容易に乳剤層の斜め切断面が得られた。この試料にゼラチン液を塗布し、表面の凹凸による光散乱を減少させ、マイクロトメーターで三次元的なレスポンス関数を測定した。

この方法の可能性を見るため、試料として単一乳剤層からなる NeopanF(ロール)と Microfilm RHを選んだ。その結果、従来予想されていた結果と定性的に良く合う傾向を示し、測定誤差等については十分な検討を行っていないが三次元的画像解析の方法として有力な手段であることが判明した。本実験を行なうにあたり終始御指導下さいました当足柄研究所藤村郁夫主任研究員、及び結果について議論して下さいました当中央研究所大上進吾研究員に深く感謝する。

参 照 文 献

- 1) 大上進吾, 植田博之, 梯上雅和, 遠藤博俊: 第27回 応用物理学会予講集, 176 (1966)
- 2) H. Strübin: Phot. Korr., 104, [1], 5 (1968)
" " [2], 26 (1968)
" " [3], 53 (1968)
- 3) 畑中勇: 写真物理研究会, 第11回, (1964)
" " 第14回, (1965)
- M. De Belder, J. De Kerf, J. Jespers and R. Verbrugghe: J. O. S. A.,
55, 1261 (1965)
- 4) K. Sayanagi: J. O. S. A., 47, 566 (1957)
- 5) E. Ingelstam: J. O. S. A., 46, 707 (1956)
- 6) O. H. Shade: R C A Rev., 2, 5, 245, 490, 653 (1948)
- 7) J. A. Eyer: J. O. S. A., 48, 938 (1958)