

放射ラジオグラフィの歩みとその後

小尾五明・佐藤岱生(鉱床部)
Itsuaki OBI Taisei SATO

1. はじめに

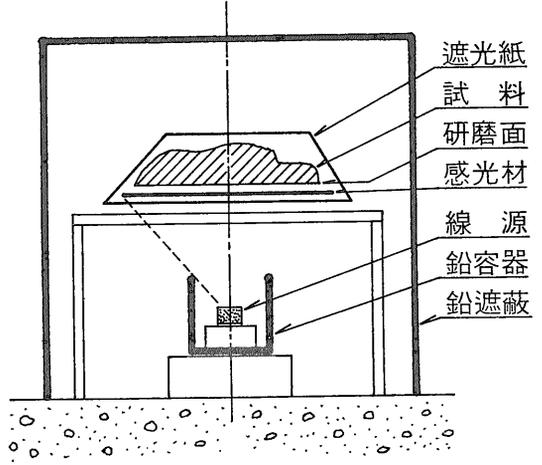
放射ラジオグラフィを始めた1970年からはや15年がたち ひとつの段落をおく時が来たようだ。この方法の応用の場は まだ十分に開発されておらず 検討すべき課題も沢山残っているような気がする。しかし 時間がなくなってしまった今 最後に原理の検討から始まった筆者らのたどって来た道を書き残しておくこともあながち無駄ではないだろう。この際論文としてまとめきれなかった諸々のことも書いておきたい。

2. きっかけ

筆者の一人小尾が 放射ラジオグラフィを手がけるようになったのは 1970年に岸本文男氏から1枚の写真を見せて頂いたことにはじまる。この写真は放射線を利用したラジオグラフィだそうで ガンマー線(以下 γ 線)を水銀鉱石の研磨面に照射して得たものであるとのことだった。それは普通の写真とは異なり 水銀鉱石の辰砂黄鉄鉱 方解石の分布を示す白黒で表わされたラジオグラフィであった。驚いたことには この写真は鉱石研磨面を γ 線源となる RI の方に向け その研磨面にX線フィルムをあてて撮影されたとのことだった(第1図)。すなわち γ 線はまずX線フィルムを通過してから研磨面にあたり その研磨面上の鉱物配列をX線フィルム上に記録しているもので たいへん興味をそそられた。「なぜフィルムは γ 線によって黒化されないのか?」という疑問がわき どうにも納得しにくい配置であるが目の前につきつけられれば異論をとなえるわけにもいかなかった。

岸本氏は このラジオグラフィに鉱物の像をつくる「因子」が何であるのか どのような過程でこのような写真ができるのか つまり 因子の解明と理論の体系づけを依頼されたのである。岸本氏の話では このラジオグラフィは ^{75}Se を γ 線源として撮影されたが 「 ^{137}Cs では像は得られなかった。おそらく 280keV 程度のエネルギーを持つ γ 線によって像を得られるのであろう」とのことだった。

小尾は 1966年11月に日本原子力研究所の駒込ラジオ



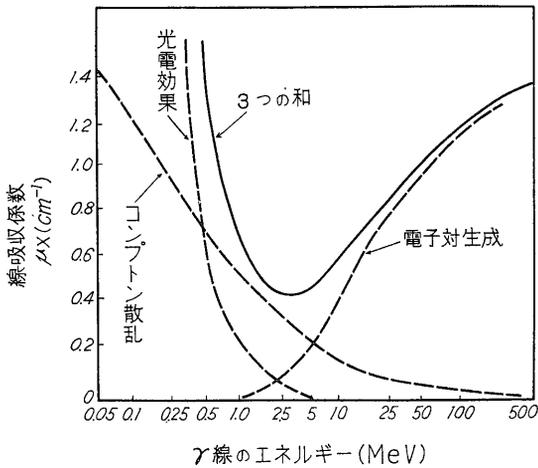
第1図 ラジオグラフィ撮影装置概念図

研磨面と線源の距離は 線源の強さと研磨面の線量分布の均一性を勘案して定める。感光材は線源と試料の間にあり試料面に密着させる。

アイソトープ研修所でラジオアイソトープ基礎過程の研修を修了しており 放射線による物理現象には関心を持っていた。仕事の上では ウラン鉱物資源調査のための放射能測定器としてカウンター類を扱った程度の経験しかなかったので 一時はむずかしい問題をひきうけたものだととまどった。しかし RI 関係の理論と実際上の勉強をしたいと考えていた時でもあり 何としてもラジオグラフィの像の形成に関与する「因子の正体」を確かめたいと決意したわけである。早速 RI 研修テキストの読み直しを始め さらに原子物理学の本を何冊か読みだした。

像を形成する因子の正体が γ 線照射により物質を構成する元素中の原子の電子軌道から外部に飛出した「2次電子」であるとの推定に達したのは 宿題を頂戴してから1カ月余り後のことだった。筆者の一人佐藤はこの頃小尾から相談をうけ 説明を聞いて非常に興味を持ち第2図および第3図の意味を考えたことがある。その結果 照射する γ 線のエネルギーは ほぼ鉛のK吸収端以上であれば低ければ低いほど良いことに気がついた。

この頃 岸本・小尾・横山による研究グループが成立

第2図 γ 線のエネルギーと鉛の線吸収係数との関係

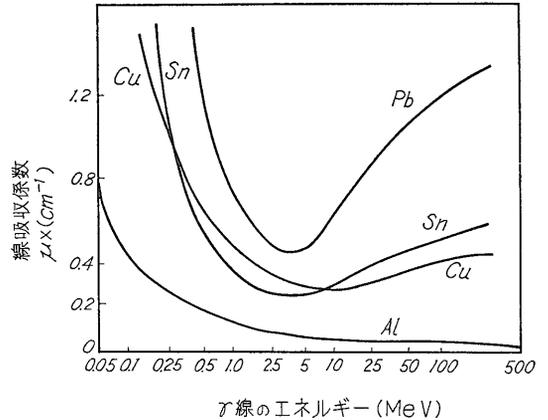
した。実験は主に横山によってなされより良いラジオグラフィを得るための技術的問題の解決を主体としてX線フィルムや原子核乾板によるラジオグラフィを撮影していた。1970年の後半頃になってからと記憶しているが当時 γ 線と物質の相互作用について種々の実験をしておられた日本原子力研究所の榎本茂正氏に筆者らのラジオグラフィについてお伺いした。因子の正体は筆者の推定どおり「ほとんど二次電子である」とのご返事を頂いた。

3. 原理

一般に用いられている透過型のラジオグラフィは ^{60}Co や ^{137}Cs などを線源とし材質による密度差を写真濃度の差として検出するもので製品検査や厚み計などに利用されている。この場合感光材は主に γ 線によって感光される。けれども筆者らの方法は透過ラジオグラフィとは感光材と試料との幾何学的配置がまったく逆で感光材は γ 線ではなく主に二次電子によって感光される。

物質が照射された γ 線を吸収して二次電子を放出する現象には光電効果・コンプトン散乱・電子対生成の3つがあり各々RI線源からの入射 γ 線エネルギーによって3つの現象のうちどれが主要となるのかの範囲が決まる。つまり照射 γ 線のエネルギーが500keV以下では光電効果 500-5000keVでコンプトン散乱 5000keV以上で電子対生成による二次電子が主体となる(第2図)。このことから金属鉛の場合は ^{75}Se 線源では光電効果 ^{137}Cs では光電効果とコンプトン散乱によ

1985年5月号

第3図 γ 線のエネルギーとアルミニウム 銅 スズ 鉛の線吸収係数との関係

る二次電子が発生する。

またエネルギーをうける物質によって γ 線の吸収量も異なる(第3図)。光電効果では物質の原子番号 Z の5乗に比例して二次電子が放出される。コンプトン散乱では Z に電子対生成では Z の2乗に比例する。つまり照射 γ 線のエネルギーが低いほど物質の原子番号によって放出二次電子の量の差が大きくなりそれがフィルム上に黒化度の差となって表されると考えられた。

すなわち放射ラジオグラフィでは照射 γ 線からエネルギーをもらって試料面の構成元素から γ 線とは反対方向に放出される二次電子が感光材に作用して像を得るわけである。 γ 線は感光材を通過してから試料面に達するが都合のよいことに γ 線は電荷をもたない。そのために感光材は γ 線ではほとんど感光されないのでラジオグラフィに影響を与えない。

放射ラジオグラフィは小容量の線源 手製の簡単な装置で手軽にラジオグラフィが得られかつ透過法とは異なり比較的低エネルギーの線源が適している。

ここまでわかった時になって始めて Gumansky(1960)の論文が岸本さんの訳(1964)によって紹介されていることがわかった。彼等は ^{203}Hg (279 keV)を γ 線源とし水銀・鉛・タングステン・亜鉛・銅などの鉱石のラジオグラフィを得ていた。また光電効果による二次電子によって感光することと単一の γ 線源の重要性を強調していた。

これまでの実験の手法と結果は1971年4月に48学会共同主催で開かれた第8回理工学における同位元素研究発表会で「大型鉱石研磨面に対するラジオグラフィ」と題して初めての発表をおこなった(小尾・横山・岸本

1971a). 内容は大型水銀鉱石 (21×11cm) と海底 マンガン団塊 (7.5×4.5cm) のラジオグラフについて紹介したもので 透過ラジオグラフィとは異った実験手法として注目された。

同年 8 月には地調月報に実験装置・原理・ラジオグラフを得るための手順を「反射オートラジオグラフについて」の題名で発表した (小尾・横山・岸本 1971 b). また同年 9 月には科学新聞記者の鶴野誠氏が取材にみえた。この時点では「反射オートラジオグラフ」の題名は適当でないかと判断していたので より正確をきするため「二次電子放射ラジオグラフィ」と訂正して説明をおこない同年 10 月 1 日の科学新聞に掲載された。さらに同年 12 月には 日本アイソトープ協会 出版の *Isotope news* 12 月号に「二次電子放射ラジオグラフィとその鉱石組織解析への応用」の題名で 実験手法と重金属鉱石への応用の概略を発表した (小尾・横山・岸本 1971 c)。

4. カラーフィルムによるラジオグラフィ

原理の検討をしている時点で 2 次電子の量は物質の原子番号により変化するが 2 次電子のエネルギーも変化するのではないかと予想された。もしそうだとすると「カラー感光材を用いて 発生する 2 次電子のエネルギーのちがいを色でつかまえることができなにか？」と考えた。

ポラロイドカラーフィルムを用いた予備の実験は 1971 年から行っていたが 本格的になったのは 1973 年 3 月末に新線源が入荷してからである。実験は小尾が行った。試料には水銀鉱石 小坂鉱山産の黒鉱石 ドイツのクランツ標本などを用いた。カラー感光材には当初 富士フィルムのネガ S type (6.4×8.9 cm) と L type (4×5 cm) のシートフィルムや ポラロイドカラー type 58 などを使用した。

1973 年のはじめ頃 さくらフィルムを製造する小西六写真工業で X 線用カラーフィルムを開発市販しているという話を聞いた。早速 同社に電話したところ 需要が少ないため前年で製造を中止したが 詳細は日野の開発研究所で聞いて下さいとのこと。薬をもつかむ気持で日野の平田明技師を訪問した。やはり X 線用カラーフィルムの在庫はすでになく落胆したが 平田技師から「放射線と感光材」に関する論文の別刷りを多数頂いた。

さらに スライド用のカラーリバーサルフィルムを使用してはどうかとの有益なアドバイスを頂いた。ネガフィルムでは 印画紙に焼付ける段階でフィルターを使用して色の調整をするのに対して リバーサルフィ

ルムは 発色の状況を直接目でたしかめられるのである。早速 さくらリバーサル 35mm 20 枚撮りなどを使用してこれを小坂黒鉱試料 (9×4 cm) に巻きつけて照射を行った。

巻きつけのテクニックが問題で 始めはボケなどの失敗が多かった。結果は 巻きつけて試料面に密着する部分では 鮮明なラジオグラフとなり 2 枚目 3 枚目とボケが大きくなる。しかし フィルムの 1・2・3 枚で色が変わったり まったく写らない鉱物があったりというような現象は見られなかった。

結局 白黒フィルムで黒化の強い鉱物 (方鉛鉱等) ではカラーフィルムでも黒く 印画紙に焼付ると白色になり 色彩の変化は見られなかった。フィルムを 2 枚かさねても 2 枚目がぼけるだけでやはり色彩の変化はなく 金属や鉱物のちがいをフィルム上の色でとらえることはできなかった。しかし 小坂鉱山産の黒鉱石では脈状に青～紫色を呈する写真を得た。研磨面と対照してみるとこれは方解石であった。この現象は後日になって「蛍光現象」を研究する端緒となった。

この間 1973 年 9 月には地質調査所所内研究発表会でラジオグラフィによる鉱石組織の研究の第 1 報として基本的な手法および照射線量・線質の検討について小尾・岸本で発表した。内容は ^{75}Se のような比較的低いエネルギーの線源を用いるべきこと ラジオグラフは高原子番号の重金属元素を含む鉱物ほど写真濃度が大きく鮮明な像が得られること その実例として Hg Pb をそれぞれ辰砂と方鉛鉱の形で含む水銀鉱石 黒鉱石をあげ これら重金属鉱物の分布や組織および含量を調べるのに放射ラジオグラフィが有効な手段となり得ることなどであった。同年 10 月には秋田大学で開かれた三鉱学会で同じ趣旨の発表を行った (小尾・岸本 1973)。

5. 技術的問題

1970 年頃の実験はフィルムのみを遮光袋に入れ その上に試料をのせて γ 線はその下側から照射していた。この方法では フィルムと試料の間隔が広くなるので像がぼける。それをさけるためにフィルムと試料を密着させて遮光袋に入れる方法を考えた。しかし これではフィルム上に試料による引っかかり傷が多くなり 像が見にくくなった。その対策として薄い紙をはさむなどの実験を種々行なったが いずれもうまくいかなかった。結局 密着作業は慎重に行い多少の傷には目をつぶることにした。

また 夏期には湿度と温度上昇のために 膜面が軟化したり 試料と膜面の間で化学変化をおこしたり 試料

第1表 RI 線源とその主な γ 線エネルギー及び半減期

γ -ray source	γ -ray energy and relative intensity		half-life
	keV	%	
^{75}Se	96	3	120 d
	120	15	
	140	54	
	270	56	
	280	23	
	400	12.5	
^{57}Co	14	9	270 d
	122	87	
	136	11	
^{137}Cs	662	85	30 y
^{60}Co	1170	100	5.26 y
	1330	100	
^{241}Am	14	38	458 y
	18	51	
	21	14	
	26	7	
	59.5	100	

(ラジオアイソトープ手帳1970年版による)

面にサビができて膜面を損傷したりする。この対策として湿気を取るために 試料と感光材を包んでいる遮光紙内にシリカゲルを小穴をあけたビニールの小袋に入れて置いたところトラブルを解決することができた。家庭用の古い冷蔵庫内で実験してみたこともあったが湿度を十分除くことができれば温度のコントロールまでは特に必要なさそうである。

6. 系統的実験

6.1. 線源

1970年当時は予算がないため専用の線源もなく 物理探査部の RI 線源 ^{75}Se を借用して実験していた。この線源は半減期が 120 日 (この期間がくると線量が $1/2$ に減衰する) と短いので購入時には 10 ミリキュリー (以後 mCi) のものが借用時点で 0.1~0.5 mCi に減衰していた。このため照射時間は 1 週間から 2 週間もかかることとなり 照射時間が長いので遮光紙のピンホールなどによる感光材のカブリなどの事故の可能性が大きく よいラジオグラフィを得るには条件が悪かった。この線源は 1971 年の夏頃さらに減衰して残念ながら使用不能となり 実験は中止となった。1973年 3 月末に ^{75}Se の新線源 10 mCi を購入した。これでカラーラジオグラフィの実験を重点的に行った。

1985年 5 月号

ラジオグラフィは ^{75}Se によって始めて得られた。しかし この線源の欠点の第 1 は 放出する γ 線エネルギーが 6 種類以上もあるため そのうちどのエネルギーが像の形成に関与するのか 判定が困難なことである。ラジオグラフィで RI 線源のエネルギーの検討をするにはできるだけ単一の γ 線エネルギーをだす線源がのぞましい。第 2 は 半減期が短いことであった。製造時に 10 mCi あった線源が 1 年たつと約 $1/10$ の 1 mCi とほげしく減衰することは 実用的にも経済的にもつごうである。

これらの条件とともに 入手しやすさなどを考えて ^{57}Co による実験をしてみることにした。この線源は半減期が 270 日で ^{75}Se の約 2.3 倍の寿命をもち かつ γ 線の主要エネルギーは 122 keV で ほかに 136 keV を少し放出するが エネルギーがほぼ等しいので単一 γ 線に近く γ 線源のエネルギーの検討がしやすくなる利点がある (第 1 表)。また ^{75}Se の主要な γ 線エネルギーは 140 keV と 270 keV であるが ^{57}Co はこれよりやや低い γ 線エネルギーである。

1975年 3 月には ^{57}Co 10 mCi を購入した。 ^{75}Se と同様に英国からの輸入で 1 ケ月かかったが 入荷時のキュリー数は 9.65 mCi で ^{75}Co の 8.4 mCi と較べかなり条件がよくなる。

1970年から始まったこの研究も半減期の短い ^{75}Se を線源としていたこともあって 中断の時期をはさみながら 1974年頃までが 原理および撮影方法を確立していく時期であった。 ^{57}Co を購入したことは ひとつの転機を迎えることになった。また この頃から佐藤が本格的にこの研究にかかわることになった。

それまでは照射線量を目やすも適当に決めていたが もう少し定量的に 少ない線量から多すぎる線量まで段階的に照射して 適正な線量をさがしだすことになった。また 物質の原子番号と黒化度との関係も これまでの「なんとなくそうらしい」という段階から定量的に把握する段階へ移行する必要があった。 γ 線のエネルギーについても ^{137}Cs では撮影できなかったと言う話を聞いただけで 自分で確かめたわけではなかった。

さいわい 物理探査部の ^{137}Cs ^{60}Co 線源を空いている時に借用できたので 比較実験をしてみることにした。これらの線源は 半減期が長いので減衰を気にする必要がない。1975年から 1977年にかけては 最も精力的に照射実験を行った時期であった。

6.2. 鉛亜鉛鉱石と標準金属試料

このような定量的取扱いを目標にした実験の鉱石試料には 細倉鉱山産の 鉛亜鉛鉱石 (方鉛鉱—閃亜鉛鉱—黄鉄

第2表 金属と鉱物の写真濃度 元素記号および鉱物分子式の次の数字は実効原子番号

RI	57Co		137Cs			241Am	
Specimen	Kuroko		Sheelite			Kuroko	Hg-ore
Film type	Polaroid N-P		X-ray Film				
No.	A	B	C	D	E	F	G
Film No.	123	125	224	226	232	325	326
Exposure mR	450	1320	1870	1600	1000	403	403
Au 79	0.41	0.58	1.47	1.15	0.75	0.27	0.31
W 74	0.39	0.56	1.38	1.07	0.71	0.28	0.32
Ag-W 64.6	0.37	0.50	1.22	0.95	0.65	0.36	0.41
Sn 50	0.31	0.39	0.87	0.76	0.55	0.48	0.52
Ag 47	0.29	0.36	0.79	0.71	0.50	0.43	0.48
Zr 40	0.26	0.32	0.68	0.61	0.47	0.40	0.45
Zn 30	0.22	0.27	-	-	-	-	-
Ni 28	-	-	0.55	0.52	0.31	0.27	0.33
Mn 25	0.21	0.23	-	-	-	-	-
Ti 22	0.20	0.21	0.42	0.39	0.26	0.23	0.28
Al 13	0.19	0.20	0.31	0.27	0.22	0.20	0.23
PbS 66.1	0.37	0.51	-	-	-	0.34	-
HgS 64.3	-	-	-	-	-	-	0.40
CaWO ₄ 37.9	-	-	0.99	0.91	0.64	-	-
CuFeS ₂ 22.7	0.20	0.22	-	-	-	0.22	-
FeS 21.8	-	-	0.42	0.40	0.29	-	-
FeS ₂ 20.1	-	-	-	-	-	-	0.28
CaCO ₃ 11.3	0.43	0.60	-	-	-	0.63	0.72

鉱物 8×5.5cm)を使用した。これは高原子番号の鉛を多く含む鉱物であり 構成鉱物の量比や実効原子番号(後出)の間隔も適当である。試験的に照射した結果 良好な黒化度の差が得られたので 同一の鉱物から数個の試料を作成した。

また 11個の金属板を樹脂に埋め込んで研磨した標準金属試料も作成した。金属は原子番号の間隔と入手の容易さなどから Pb(原子番号82), Au(79), W(74), Ag-W 合金 (64.6, Ag:W=30:70wt%), Sn(50), Ag(47), Zr(40), Zn(30), Mn(25), Ti(22), Al(13)の11種を選んだ。これらの金属のうちいくつかは錆びやすかったりもろかったりしたので その後 Au(79), W(74), Sn(50), Ag(47), Zr(40), Ni(28), Ti(22), Al(13)の8種による標準金属試料を作成した。金属板の大きさは各々 7mm 平方で厚さは約 0.5mm である。

単体金属では その原子番号にはほぼ比例して写真濃度が得られるが 鉱物や合金の場合はその化学組成から原子番号にみあう「実効原子番号」を求めなければならない。この実効原子番号Zは Hine(1952)に従って計算された。つまり

$$Z = (Z_1+1)P_1(Z_2+1)P_2 \cdots (Z_n+1)P_n - 1$$

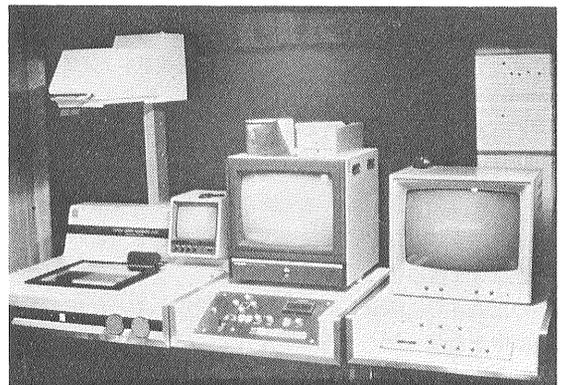
ここで P₁ P₂ … P_n は化合物中の各元素の重量比 Z₁ … Z_n は各元素の原子番号である。この式で計算した鉱物・合金の実効原子番号を第2表に示す。

感光材には ネガ・ポジが同時に得られるポラロイド type 55(ASA50)を用いた。type 55は2次電子に対する感度も解像力も比較的良好で そのうえ現像が簡便で実

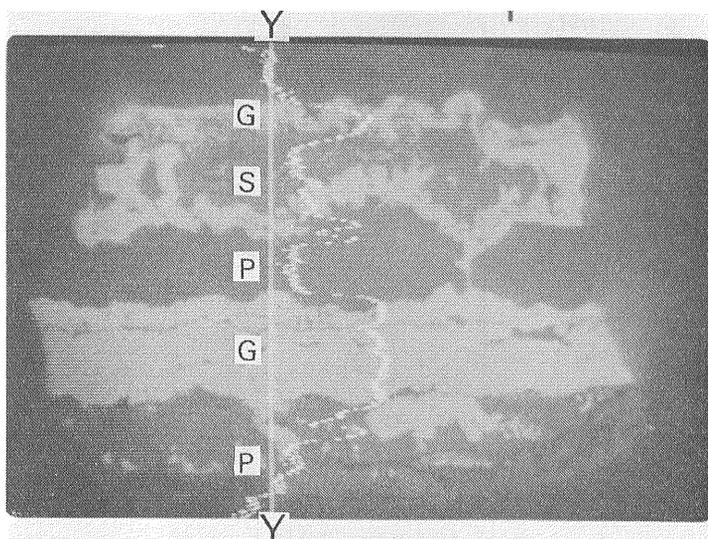
験結果がすぐわかるので次の実験計画がたてやすいなどの利点がある。このほか 照射時間の短縮の目的でポラロイド type 57(ASA3000)による実験を行ったが この感光材は粒子があらすぎて解像力 コントラストともに悪く ラジオグラフにはむかないことがわかった。

実験はまず 57Coを線源として 照射線量を順次高い方から低い方へと照射時間を減らしながらラジオグラフの撮影を行った。ところが当初予想していたよりもずっと少ない線量でも 良好なラジオグラフが得られた。やはり系統的な実験が必要だったわけである。

次に当初撮影できなかったという 137Csを線源として撮影したが ラジオグラフが得られた。当初の撮影では 照射線量の見積りが適当でなかったためであろう。また さらに高いエネルギーの 60Co 線源でもラジオグ



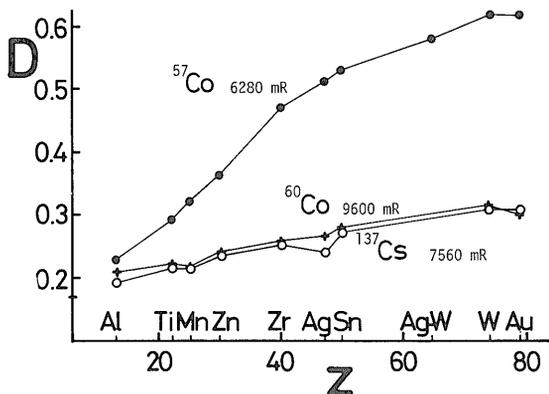
第4図 カラーデータシステム1200 (ナック社製)



第5図

カラーデータシステム1200による鉛亜鉛鉱石の写真濃度グラフ

鉱石は 宮城県細倉鉱山産 大きさは $8 \times 5.5 \text{ cm}$. ピークの最も高い部分が方鉛鉱 (G, 実効原子番号66.1) 中位の部分が閃亜鉛鉱 (S, 24.5) 小さなピークが黄鉄鉱 (P, 20.1) を表わす.

第6図 3つの γ 線源による写真濃度の比較

Zは原子番号 Dは写真濃度 フィルム上のバックグラウンドの写真濃度を0.17として標準化してある.

ラフを得ることができた. ただし ^{137}Cs , ^{60}Co ともにコントラストは ^{57}Co 線源に比較すると悪かったし ^{60}Co では フィルムと試料が密着しているにもかかわらず像のぼけが観察された. コントラストが悪くなることは筆者らの予想したとおりであった. また Hine (1952) の実験は ^{60}Co を γ 線源として行われていた. このようにしてほぼ2年の間に約180枚のラジオグラフィを撮影した.

6.3. 照射線量と写真濃度測定

撮影したラジオグラフィの写真濃度の測定は 1976年当時環境地質部にあったカラーデータシステム 1200 (ナック社製) を使用させていただいた (第4図). この装置で 1985年5月号

は写真濃度の測定の他に 写真濃度差をカラーに転換して表現したり 任意のプロファイルにおける写真濃度をグラフで表わす (第5図) こともできた. なお この装置では一定範囲の写真濃度の部分のパーセンテージを計算してくれるので 目的とする金属鉱物の品位を知ることができる.

写真濃度測定の結果は ^{57}Co では原子番号が高くなるほど写真濃度がより大きくなり 写真濃度の差も大きくなるが ^{137}Cs , ^{60}Co では原子番号の高低による写真濃度の変化はそれほどでもないことがわかった (第6図). やはり予想どおりエネルギーの低い γ 線源の方がこの方法には適していた.

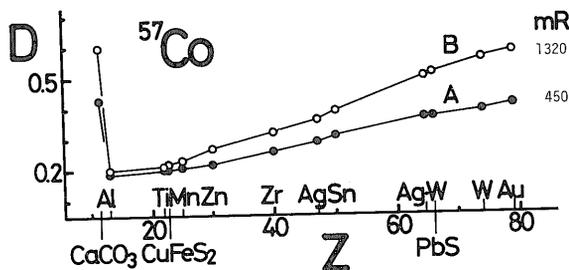
これらの結果は 放射ラジオグラフィ実験の第2報: 一各種照射線源の検討—と題して 鹿児島で開催の三鉱学会で発表した (小尾・佐藤 1976).

6.4. 蛍光X線の関与について

1976年の6月頃 地質部の奥村さんにこの放射ラジオグラフィの話をしたところ「 γ 線を照射すると蛍光X線も出るのではないか」といわれた. これまで 鉱物の像をつくる因子として2次電子のみしか考えていなかったので 早速確かめてみることにした. 佐藤のメモには次のように書かれている.

6月10日 アルミホイルで光電子を遮蔽した場合に写るかどうか? 写らなければ光電効果 写れば蛍光X線ということになる. ^{57}Co による光電子のエネルギーを計算すると アルミホイル1枚 (3.99 mg/cm^2) で $\text{Pb} \cdot \text{Au}$ から放出される光電子は遮蔽できる.

6月12日 現像に失敗したが アルミホイル1枚では写



第7図 ^{57}Co 線源による方解石の写真濃度
 データは第2表 標準金属試料および 小坂鉱山産黒鉍鉍石・方解石 (CaCO_3) の写真濃度がいちじるしく高いのは 蛍光を発しているため。

っている事がわかった。 アルミホイルを2枚にして照射にかける。

6月14日 アルミホイル2枚 ($8\text{mg}/\text{cm}^2$) 厚でも写真は写っている。 やはり蛍光X線の影響がある。 アルミによる γ 線の減衰はどうなるか？

このように 2次電子の通過を十分阻止できる厚さのアルミ箔を試料面と感光材の間にはさんでも像を得たことから 2次電子とともに物質から放出される蛍光X線も 像の形成に関与することがわかった。

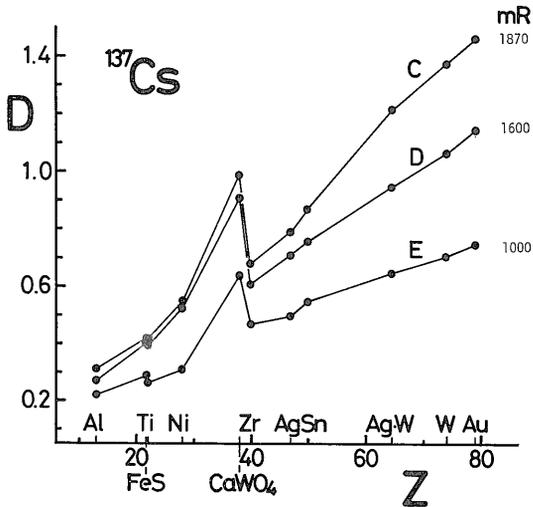
これらの線源の検討や写真濃度測定の結果は1982年1月の地調月報に「放射ラジオグラフィ ^{57}Co , ^{137}Cs , ^{60}Co γ 線源の検討」と題して報告した(小尾・佐藤, 1982)。

7. 蛍光現象の利用

1977年には細倉の鉛垂鉛鉍石のほか、佐藤興平氏の協力を得て 藤ヶ谷鉱山産タングステン鉍石を手がけた。タングステン鉍物灰重石は 脈石の石英や長石と類似しているので 鉍石中で双方を一目で区別するのは容易ではない。 一般には暗室などで紫外線をあてて蛍光現象により灰重石を発光させ この鉍物の分布や含量などを調べるのが普通である。 また この状態を写真にとることも容易ではない。

灰重石の実効原子番号は37.9で この番号が60代の方鉛鉍や辰砂にはおよばないが 黄鉄鉍・黄銅鉍など20代の鉍物が多い中では高い方である。 実効原子番号の高い鉍物は放射ラジオグラフィにむいているので撮影してみたわけである。 試料が大きかったので感光材はX線フィルムを使い γ 線源は ^{57}Co を使用した。

撮影の結果は 暗室でみた通りの鮮明な灰重石のラジオグラフィを得ることに成功した。 しかし 灰重石は実効原子番号から予想されるよりも濃い写真濃度であった。1977年11月の地質ニュース (No. 279) の表紙は この灰



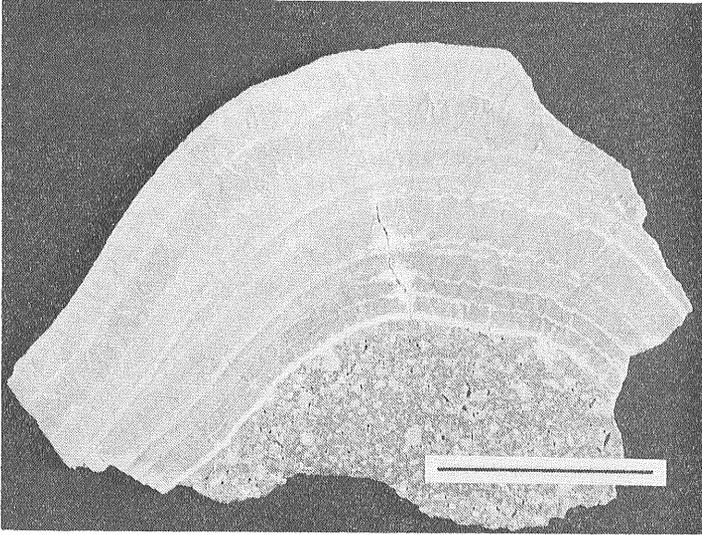
第8図 ^{137}Cs 線源による灰重石の写真濃度
 データは第2表 標準金属試料および 藤ヶ谷タングステン鉍石による写真濃度。 CaWO_4 は灰重石 FeS は磁鉄鉍を表わす。

重石のラジオグラフィでかざられた。 また本文中では放射ラジオグラフィの紹介も行い 灰重石が γ 線によって蛍光を発しているらしいことにもふれられている。

それまでは その原因がわからず未解決の問題として次のような現象があった。 すなわち 第1には 水銀鉍石の黄鉄鉍と方解石の写真濃度が逆転して撮影されることで この現象には1971年頃から気付いていた。 第2は 小坂鉱山産黒鉍鉍石の方解石が 実効原子番号が11.3しかないにもかかわらず 高実効原子番号の鉍物のような写真濃度を示していた。 時には方鉛鉍をしのぐほどであった。 第3には この鉍石の方解石は カラーフィルムでは他の鉍物と異なり青みをおびて撮影された。

カラーフィルムで色彩が撮影されたことから それまでの疑問点が氷解したものであった。 方解石も灰重石も紫外線で蛍光を発する鉍物であり γ 線でも蛍光を発する共通の性質を持っているものと思われる。 しかし 光を出す鉍物がすべてカラーフィルムで色彩をとらえることができるかというそうではなく 水銀鉍石の方解石も灰重石も単なる濃度の差として灰色—白色にしか撮影されていない。

このようにして 2次電子や蛍光X線とは別に 実際に可視光線を発する蛍光もまた 像の形成に関与することが明らかとなった。 後に 1983年になってから蛍光を発している鉍物の写真濃度を測定した(第2表 第7図第8図)ところ 実効原子番号から推定されるよりも方

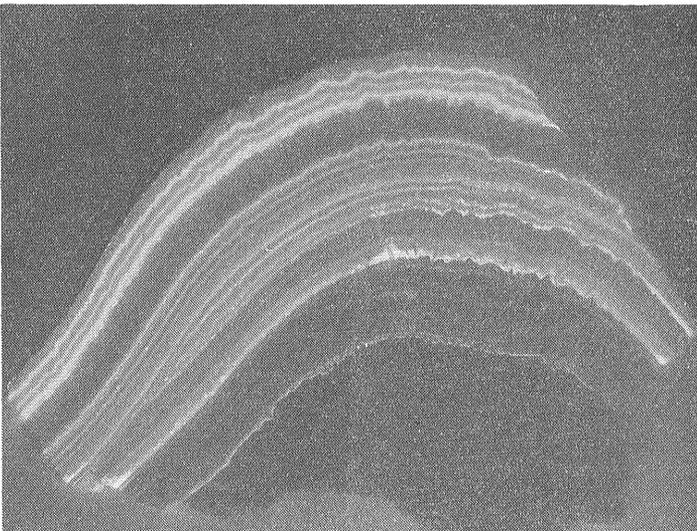


第9図 北投石を含む温泉沈澱物の実物写真
秋田県玉川温泉産。安山岩礫を核として北投石が沈着している。線は3 cm。

解石で2-3倍 灰重石で約2倍の濃度を示した。

8. オートラジオグラフィとの併用

ウラン鉱石やトリウム鉱石のように試料自身が天然に放射線を放出する鉱石については その研磨した面と感光材膜面を密着させて遮光紙に包み 適した露出時間をかければ 照射線源がなくてもラジオグラフィが得られる。



第10図 北投石のオートラジオグラフィ
白色の帯が撮影されている。

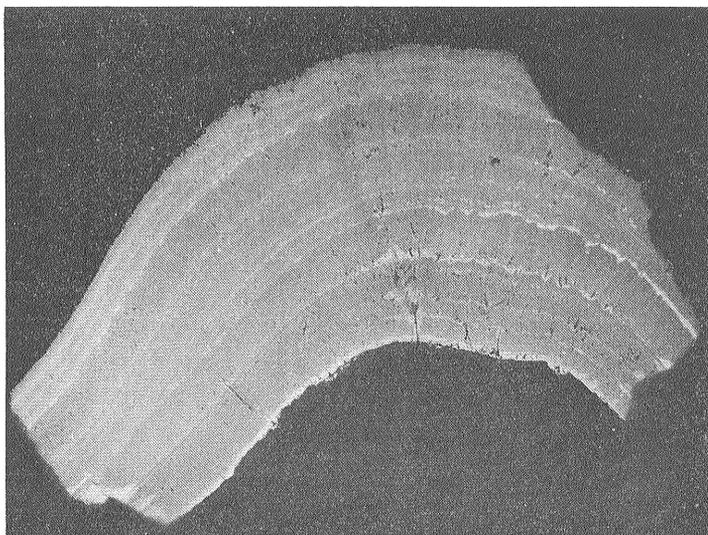
この方法は 一般にオートラジオグラフィと呼ばれているが ここでは一つの例として北投石を使用したオートラジオグラフィと これに放射ラジオグラフィを併用した例について報告する。この研究は地殻熱部の玉生さんのすずめにより始めたもので 玉生さんは α 線トラックフィルムによる同じ鉱石のオートラジオグラフィを撮影していた。

ここで取扱う北投石は 秋田県玉川温泉産の温泉沈澱物(第9図)で $(\text{Ba}, \text{Pb})\text{SO}_4$ の組成をもち 放射性元素を含有(南, 1954)し α 線などの放射線を放出する。試料は 安山岩礫を核としてそのまわりを白色—褐色の層がとりまく層状構造をしている。白色の層は非常に薄く 連続しない。また 層状構造を直角に切るひび割れにそってこの白色の層がレンズ状に厚く

なっている部分がある。

第10図は この温泉沈澱物の オートラジオグラフィである。感光材には 電子に対して感度がすぐれている X線フィルム富士 100 を使用し 14日間露出した。このオートラジオグラフィを実物と比較すると おおむね肉眼的に白色に見える帯が このオートラジオグラフィでも帯状に撮影されている。しかし 安山岩礫との境のやや幅の広い層と その次の2つの層は オートラジオグラフィではごく薄くしか撮影されていない。また 層状構造の外側では白色の帯が薄いか又は肉眼的にまったく見えないにもかかわらず オートラジオグラフィでは 最も明瞭な3本の帯が撮影されている。ひび割れにそったレンズ状に厚くなっている白色の層は内側からかぞえて3層目が明瞭に撮影されているが 内側の2層は薄い。

第11図は ^{57}Co 線源による γ 線照射を併用した放射ラジオグラフィである。感光材は X線フィルムを使用し 照射線量は 500mR 7日間露出した。この放射ラジオグラフィでも肉眼的に白色に見える帯が撮影されている。また肉眼的に褐色に見える層は 中間のトーンで撮影されている。肉眼的に白色の帯は おおむね肉眼で見た帯の幅と連続性で撮影されており オートラ



第11図 北投石を含む温泉沈殿物の放射ラジオグラフ
白色の帯の位置や連続性は肉眼観察とほぼ同じ。白色の帯は γ 線
によって励起された蛍光によって感光した部分と考えられる。

ジオグラフとは逆に 層状構造の内側で明瞭である。オートラジオグラフで明瞭だが肉眼的にはなにも見えない外側の3層は 放射ラジオグラフではごく薄く撮影されている。

玉生さんの撮影した α 線トラックフィルムを検討してみると X線フィルムによるオートラジオグラフと良く似た部分で α 線トラックが密集している。オートラジオグラフと同様内側の α 線トラック密度が低く 外側の肉眼では見えない3層も明瞭である。しかし異なる点は ひび割れにそってレンズ状に厚くなっている部分が α 線トラックフィルムにはまったく表われていないことである。

次にこの試料に紫外線をあててみたところ 白色の帯の部分で肉眼的にはごく弱いが蛍光を発する。南 (1954) は 北投石のオートラジオグラフで フィルムと試料の間に色のついたセロファン紙を挿入した実験を行い 得られた像は「蛍光によるもので 直接放射能に」によるものではなく 「蛍光は放射線によって励起されて生ずる……」と述べている。 α 線トラックフィルムによる撮影結果から 放射線が放出されていることは明らかであるが ひび割れにそってレンズ状に厚くなっている白色の部分では α 線トラックがないにもかかわらず オートラジオグラフでは異常な写真濃度を示している。したがって蛍光がX線フィルムによるオートラジオグラフに作用していることは疑いない。

また 放射ラジオグラフにおいても 肉眼的に白色に見え ラジオグラフでも明瞭な細い帯の写真濃度は 鉍

物の実効原子番号のちがいででは考えられないほど大きな差を持っている。

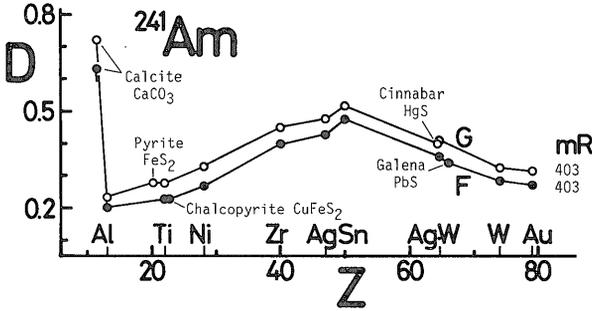
したがってこの部分は照射した γ 線によって励起されて生じた蛍光によって明瞭な帯として撮影されたのであろう。第10図のオートラジオグラフを見ると 白色に撮影されている部分にも濃淡があり 外側ほど放射能が強く 内側はすでに放射能が弱くなってしまっていると考えられる。一方放射ラジオグラフでは逆に内側ほど明瞭な帯が撮影されているのは 露出時間が短くなっているために オートラジオグラフとして撮影されるはずの部分がごく薄くしか撮影されず γ 線照射により実際に蛍光を発する鉍物の分布を示しているものと考えられる。

9. アメリカウム 241 線源

1980夏からは ^{75}Se や ^{57}Co よりさらに低いエネルギーの線源 ^{241}Am によるラジオグラフの検討をはじめた。この線源は物理探査部の金谷さんに借用した。借用時 5mCi であったこの線源の半減期は 458 年と非常に長く 主要なエネルギーは 59.5keV と低い(第1表)。このエネルギーは タングステンのK吸収端より低く 原子番号69番のイットリビウムのK吸収端に相当するエネルギーである。一般に線吸収係数は吸収端を境としてそれより高いエネルギーでいちじるしく低下することが知られている。このことから これ以上の(実効)原子番号の物質では これまでの写真濃度の規則的変化があてはまらないことが予想されていた。しかし鉍石鉍物では 実効原子番号が15~25番の範囲に入るものが多いので この部分の写真濃度差を拡大する効果はないだろうか? というのがこの線源を使用して実験を行った動機である。

^{241}Am 線源は 第1表に示すように 14~60keV の間で5種の低エネルギー γ 線を放出する。これらの低エネルギー γ 線は 大部分がX線領域であるために これまでの RI 線源では考えられなかった問題が生じた。すなわち 照射する γ 線による感光材のカブリが大きい。また 今まで何も支障なしに使っていた試料の支持台であるベニヤ板の木目までラジオグラフに表れてしまう。

そこで 4種の低エネルギー部分をカットして 59.5 keV のエネルギーだけを通過させるためのフィルターを



第12図 ^{241}Am 線源による写真濃度
方解石の写真濃度は蛍光によるものなので別にすると Sn の所に写真濃度の最大がある。

検討した。計算では 1.5mm のアルミニウム板によって 20keV の X線は75%が阻止されるのに対して 60 keV では90%が通過する。また 実際に線源に 0.5~2 mm のアルミニウム板をかぶせ その枚数を変えてカブリと像の関係を見た。

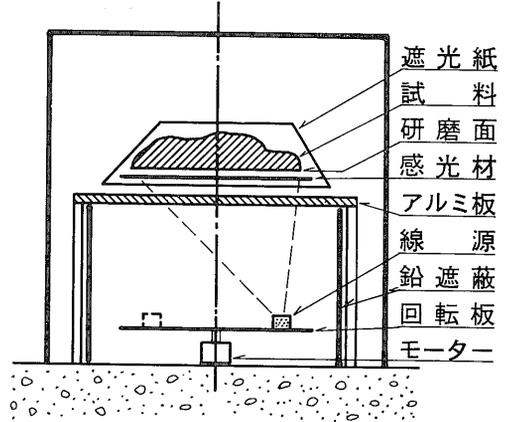
その結果ベニヤ板の代りに フィルターと支持台を兼ねて 1.5 mm 厚のアルミニウム板を使用することでカブリを十分少なくし 木目などの支持板の不均一によるトラブルをなくすことができた。

標準金属試料 水銀鉱石 黒鉛鉱石の照射の結果を第2表および第12図に示す。感光材は X線フィルムを使用し 照射線量は 403mR である。方解石からの蛍光による写真濃度は高い。これを別にすると 原子番号50番のスズの所に写真濃度の最大値があり ここから原子番号の低下に従って写真濃度も低下している。しかし コントラストは期待したほど良くなく グラフ上でも勾配は大きくない。

原子番号が69より高いタングステン 金で 写真濃度が低下するのは予想したとおりである。しかし 実効原子番号が69より下の64~66の銀タングステン合金 辰砂 方鉛鉱で 写真濃度が低下する現象は予想外で その原因は解明されていない。

10. 照射時間の短縮に関する実験

これまでの放射ラジオグラフィの実験では RI 線源を装置箱内の中央に固定し 線源の真上に試料面の中心がくるようセットしてきた。線源と鉱石研磨面との距離は試料の大きさに応じて約 10~30cm の間で選定し 中心部と周辺部で照射線量の差が 5%以内となるようにしていた。中心部と周辺部の線量差を少なくするためには 線源と試料の間を広くする必要がある。そうすると線量は距離の 2 乗に反比例して減るので 照射時間が長



第13図 線源を回転させて照射する装置の概念図

くなる。

能率良くラジオグラフィを得るためには 線源と試料の間隔をせまくして照射時間を短縮する必要がある。照射線源と試料面の距離をできるだけ短くし かつ照射むらを除くために 線源を試料面に平行な面内で回転させる方式を考えた。つまり 線源移動によって線源と試料間の距離を照射むらのない状態で どれだけ短くできるかという実験を行ったわけである。

回転する円盤の上に線源をセットして照射する装置を第13図に示す。回転円盤は直径 20cm 厚さ 2mm のアルミニウム製で その中心部をモータルのシャフトに直結してある。モートルは手許にあった毎分18回転のものを使用したが レコードプレイヤー (4 speed) を使用してもよい。線源の移動方式は円回転移動が適当とは言えないが 安直で経済的に作製できる点ですぐれて

いる。この実験の線源は ^{241}Am を使い 鉱石試料をおかずに長時間照射して 感光材のカブリの写真濃度を測定することにした。感光材には 25.4×30.5cm の X線フィルム富士 100 の大判を使用し 照射 γ 線による感光範囲を余裕をもってキャッチするようにした。この実験に用いた ^{241}Am による照射線量は 350mR である。

照射は 試料と線源の距離を 2, 5, 10, 15cm と変化させ 線源の回転半径も 0, 3, 6cm と変化させて行った。照射時間は 試料と線源の距離 2cm で 1時間 5cm で 6.3時間 10cm で 25時間 15cm で 54.7時間であった。これは 線源の回転半径ゼロの時 その距離にある感光材が 350mR の線量を受ける時間である。このような照射をしたので 回転半径ゼロの時の写真濃度は 線源の真上付近では各々ほぼ等しくなっている。

照射実験で得た12枚のフィルムは 地球化学課伊藤司

郎さんの協力をいただき 日本ジャーレルアッシュ社製のコンパラティブ・マイクロホトメータ (JM1型) により透過率を測定した。測定は X線フィルムの端から中心まで走査させ フィルムの端で透過率 100%とし 光源をさえぎった時の透過率を 0%として測定した。この透過率から写真濃度を求め 写真濃度グラフを作成した (第14図)。

これによると 線源の回転半径を大きくすることによって 照射線量の均一化をはかることができそうである。この図では フィルムの端で写真濃度ゼロとすることや回転の中心を見積ることがむずかしいなどの不つごうがある。特に距離 15cm のグラフでは フィルムの端でも照射 γ 線によって感光されているにもかかわらず 透過率ゼロとしたために 全体の写真濃度が低く測定されている。そこで フィルム上の中心からの距離による線量率を計算によって求めたグラフを第15図に示す。第14図と第15図はよく似ている。第15図は 各グラフとも回転半径ゼロの時の線源真上のフィルム面で 1.2R となるように 時間を選んである。

各曲線における最高レントゲン数から 5%以内のレントゲン数低下におさまる範囲の半径を 第3表に示す。これによると 距離 5 cm 半径 6 cm で回転した場合が 最も広い範囲の均一照射域を持つことがわかる。これは 第15図からも読みとることができる。また照射時間も非常に短縮できる。なおこれらのデータ処理と作図には YHP9836型卓上計算機と吉井・佐藤 (1983)

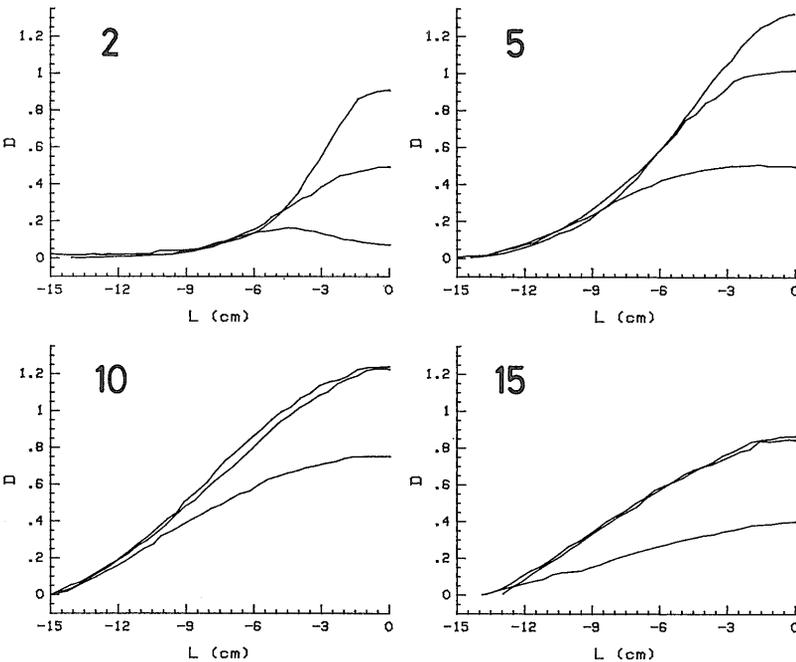
による GEOCAPS を用いた。

おわりに

放射ラジオグラフィ15年のあゆみと これまでの概要を報告した。筆者らの方法の呼び方は「反射オートラジオグラフィ」「2次電子放射ラジオグラフィ」「放射ラジオグラフィ」と変わってきた。これはひとつの失敗かもしれないが 見方によっては進歩したということでもあろう。鉱物の像が写真フィルム上に記録される因子にしても 2次電子から 蛍光 X線の関与 さらにには鉱物によっては蛍光という可視光線まで追跡された。

この方法は 手標本大の試料による鉱石組織の研究に用いることが最初の目的であった。灰重石鉱石の組織や粒度分布の写真記録を得たことは この方法の最も適した応用分野であろう。これは他の方法ではたいへんむずかしい。また鉛鉱石や水銀鉱石などの非破壊品位分析にも使えるだろう。この方法を多くの機関で応用されることを望んでいる。

15年の間に実に多くの方々にお世話になって来た。研磨片や機器を作ってくれた薄片室や試作室の方々 鉱石試料を提供あるいは借用させて下さったの方々 線源や測定機器を借用させていただき その使用法を教えて下さり 助言していただいたの方々 筆者らの話を聞いて助言やヒントをあたえて下さったの方々 どうもありがとうございました。深く感謝する次第です。



第14図
線源回転による写真濃度のグラフ
各グラフ左上の数字は線源と感光材の距離を示す。線源の回転半径は各グラフの上から下へ 0, 3, 6 cm である。

第3表 照射線量の差が5%以内におさまる領域の半径

線源と感光材の距離が 2 cm の場合は 回転の中心点が線量の最高点の 5%以内におさまらない。

回転半径 cm 距離cm	0	3	6	照射時間 (h)
2	0.4	—	—	1.0
5	1.1	2.0	5.7	6.3
10	2.3	2.7	3.9	25.0
15	3.4	3.7	4.4	54.7

文 献

江藤秀雄 (1966) 放射線遮蔽, 日本原子力研究所ラジオアイソトープ研修講義テキスト基礎課程, p. 187-228.

Гуманский, Г. А., Балащов, В. Н. and Земан, Я. Н. (1960) применение эмиссионной радиогрaфии для изучения парагенетических взаимоотношений минералов ивещественного состава руд элементовс высоким атомным номером, Геология Рудных Месторождений, No. 5, стр. 123-124, 岸本文男訳: 地調月報, vol. 15, p. 745-748.

HINE, G. J. (1952) Secondary electron emission and effective atomic numbers. *Nucleonics*, vol. 10, p. 9-15.

南 英一 (1954) 玉川温泉の北投石について. 鉱物学雑誌, vol.

2, p. 1-23.

小尾五明・岸本文男 (1973) 二次電子放射ラジオグラフィによる鉱石組織の研究. 第1報 基本的手法および γ 線照射線量・線質の検討. 昭和48年度三鉱学会講演要旨集, B41.

———・佐藤岱生 (1976) 二次電子放射ラジオグラフィによる鉱石組織の研究. 第2報 各種照射線源の検討. 昭和51年三鉱学会講演要旨集, B48, p. 95.

——— (1977) 鉱石研磨面における二次電子放射ラジオグラフィ. 地質ニュース, no. 279, p. 20-23.

——— (1982) 放射ラジオグラフィ ^{57}Co , ^{137}Cs , ^{60}Co γ 線源の検討. 地調月報, vol. 33, p. 33-47.

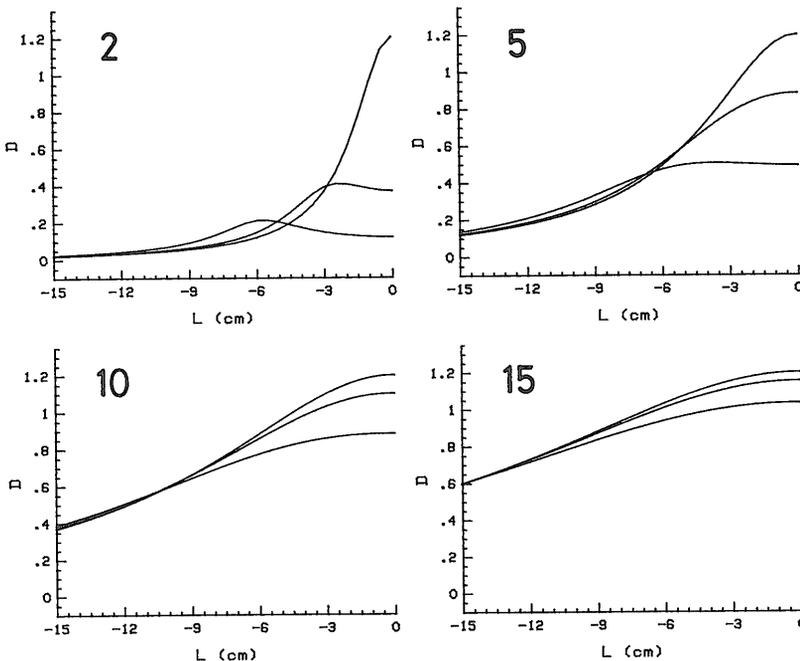
———・横山峯子・岸本文男 (1971a) 大型鉱石研磨面に対するラジオグラフ. 第8回理工学における同位元素研究発表会要旨集. p. 34.

——— (1971b) 反射ラジオグラフについて. 地調月報, vol. 22, p. 401-414.

——— (1971c) 二次電子放射ラジオグラフィとその鉱石解析への応用. 日本アイソトープ協会 *Isotope news*, no. 209, p. 14-15.

山崎文男 (1966) 放射線と物質の相互作用, 日本原子力研究所ラジオアイソトープ研修講義テキスト基礎課程, p. 31-47.

吉井守正・佐藤岱生 (1983) BASIC による地球化学データ解析システムGEOCAPSのあらまし. 情報地質, no. 8, p. 21-40.



第15図

感光材上の照射線量

回転半径 0 の時の中心点における線量を 1.2(R) として計算した. 各グラフ左上の数字は線源と感光材の距離を示す. 線源の回転半径は各グラフの上から下へ 0, 3, 6 cm である.