

## 反 射 オ ー ト ラ ジ オ グ ラ フ に つ い て

小尾 五明\* 横山 峰子\* 岸本 文男\*

## A New Reflection Type-autoradiograph

By

Itsuaki OBI, Mineko YOKOYAMA &amp; Fumio KISHIMOTO

## Abstract

Common autoradiography is a special kind of photography, made by radiation from radio-isotopes (for example,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  etc.) through samples. The purpose is to discover cracks of iron-steel, to measure volumes of canning tin, etc.

But, authors have investigated autoradiography of a new-type, namely a "reflection" type. This autoradiograph is based on the effects of two phenomena of  $\gamma$ -rays; first is photoelectric effect by  $\gamma$ -radiation; second is Compton-scattering.

The testing set is as follows: suitable film or plate is set between a polished plane of a sample and a source of  $\gamma$ -rays, and this film or plate must make contact with the polished plane of the sample.

By the above effects the distribution of heavy metal elements in large hand specimens can be recorded.

## 1. はじめに

筆者の1人は鉱石および母岩中における重金属元素ならびに重金属鉱物(主としてHgおよび辰砂)の分散・濃集状態を明らかにするための検討を続けてきた(岸本文男ら, 1966)。その間, 試料を粉碎して行なう各種の分析法によって得られたデータだけでは統計的解析に終始せざるを得ず, 試料中における重金属元素ならびに重金属鉱物のありのままの分布状態を試料全体として細かく認識することができなかった。そこで, 試料を破碎することなく目的を達することのできる適当な方法の開発が必要となり, 各種放射線の性質に関する知識と写真処理技術のある程度もっていることを出発点にして, 筆者らはオートラジオグラフに着目し, その導入を試みた。

周知のように, 今まで用いられてきたオートラジオグラフィーの形式には, 1) 適当な放射線源から放出される放射線を試料に照射し, その試料の背後に置かれた適当な感光膜に潜像を作らせる方法と, 2) 試料それ自体の天然放射能あるいは人工的に与えられた放射能を利用し, 試料に適当な感光膜を密着させて潜像を作らせる方法の2種がある(D. A. HELLER, 1951)。

\* 鉱床部

1)の場合に得られるオートラジオグラフは, 試料に厚みがあるため, 1種の投影図となり像が重なる可能性がある。したがって, 重金属元素もしくは重金属鉱物のありのままの分布状態を細かく知ろうとする目的には必ずしも適当でない。試料を薄片にした場合には, 有効なことがあるかも知れないが, 大型試料を用いたいという要求からすれば, 薄片製作技術に制約され, 現状では断面積  $65 \times 45 \text{ mm}$  の大きさが一応の限度と思われる。また, 目的とする元素ないし鉱物の分布が重なって潜像を作ること好都合とする場合の可能性については, なお検討する価値が残されている。

2)の形式のオートラジオグラフィーを比較的簡単な操作で行なうことができるのは, 天然の放射性元素ないし放射性鉱物を対象とする場合で, 非放射性的の重金属元素ないし重金属鉱物を対象とする場合には, 原子炉を用いて適当に人工放射能を与えるという操作が必要となり, しかも試料を構成する各元素の核物理学的性質の差が単純でないため, 各元素のオートラジオグラフを得ることは容易でないと思われる。

以上のことを主な理由に, 1)の場合でも2)の場合でもない, 新しい形式と手法によるオートラジオグラフィーを開発した。それは試料の大型研磨面をオートラジオグ

ラフにすること、そのために適当な放射線を試料の研磨面にあてて、2次的に放射される電子線を適当な感光材料で感光させるという方式である。今まで工業・農業分野で用いられてきた通常のオートラジオグラフと区別するため、筆者らはこの方法によるオートラジオグラフを「反射」オートラジオグラフ注1)と呼ぶことにする。

本研究は放射能検層実験室内で行ない、使用した放射線源は<sup>137</sup>Csと<sup>75</sup>Seとである。日本原子力研究所榎本茂正氏から有益な助言をいただいた。これに明記して、厚く謝意を表するしだいである。

2. 反射オートラジオグラフィーの原理

上述の手法で得られる反射オートラジオグラフィーの原理は、次のような要素からなると考えられる。すなわち、 $\gamma$ 線と物質との相互作用で問題となる光電効果(光電吸収)、コンプトン散乱、電子対生成の3種の現象である(山崎文男, 1966)。

イ) 光電効果

$\gamma$ 光子は研磨面で原子と衝突して軌道電子の一つに全エネルギーを与え、それを原子からとび出させて、光子自身は消滅する。光子のエネルギーを $h\nu$ 、軌道電子の電離ポテンシャルを $I$ とすれば

$$E = h\nu - I \quad (1)$$

というエネルギーで電子は原子から飛び出すことになる。この現象の生ずる確率は $\gamma$ 線のエネルギーが小さい光子の場合ほど大きく(ただし、 $I$ よりは大きくなければならない)(山崎文男, 1966)、そのエネルギーが増大すると急激に減少する。また同じエネルギーの $\gamma$ 線に対しては、原子番号 $Z$ が増すと急に大きくなり、同一元素については近似的に $(h\nu^{-1/2})$ に比例し、原子番号 $Z$ の5乗に比例する。

ロ) コンプトン散乱

コンプトン散乱は、 $\gamma$ 光子と軌道電子との弾性散乱であって、光子はそのエネルギーの一部を失い、振動数が前より小さい光子となってその方向を変ずる。この光子との衝突で外に飛び出した軌道電子は、物質の原子をイオン化する。この散乱が生ずる確率は、 $\gamma$ 線のエネルギーが増大するとともに減少し(江藤秀雄, 1966)、また異なる物質については、原子番号 $Z$ に比例する。

ハ) 電子対生成

電子対生成は、 $\gamma$ 光子が原子核の近傍を通るとき、その電界の中で一對の陰陽の電子をつくりだし、光子自身は消滅する現象のことで、それは、 $\gamma$ 線のエネルギーが $2mc^2 = 1.02 \text{ MeV}$ 以上のときに生じ、その確率は $\gamma$ 線

のエネルギーとともに増大する。また同一エネルギーの $\gamma$ 線に対しては、物質によって原子番号 $Z$ のほぼ2乗に比例して変化する。

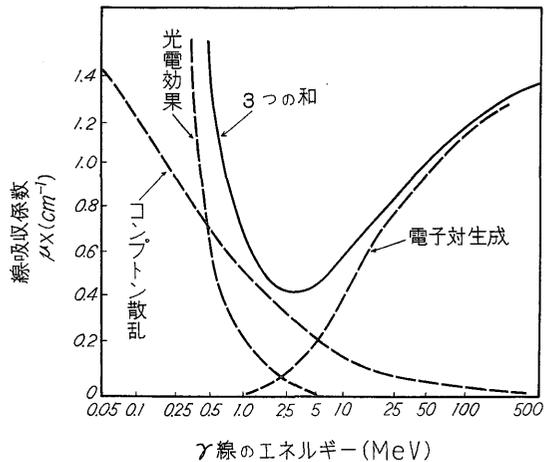
したがって3現象がいずれも潜像形成の可能性をもち、そのうち光電効果ももっとも可能性が高い。また、原子番号 $Z$ の5乗に比例するという光電効果が、潜像に強いコントラストを与える可能性が大きい注2)。

以上3種の現象が生ずる確率は、上に述べたように $\gamma$ 線のエネルギーの大小によって異なり、一般にエネルギーの低い $\gamma$ 線に対しては光電効果の確率が、中位のエネルギーの $\gamma$ 線に対してはコンプトン散乱の確率の方がそれぞれ大きい。また電子対生成の確率は $\gamma$ 線のエネルギーが $5 \text{ MeV}$ を超したところで大きくなる。加えて第1表、第1図および第2図に示したように、これらの関係

第1表  $\gamma$ 線エネルギーによる光電効果・コンプトン散乱・電子対生成

	光電効果	コンプトン散乱	電子対生成
軽元素の場合 (例 Al)	50 KeV 以下	50 KeV ~15 MeV	15 MeV 以上
重元素の場合 (例 Pb)	0.5 MeV 以下	0.5 MeV ~5 MeV	5 MeV 以上

(江藤秀雄, 1966)

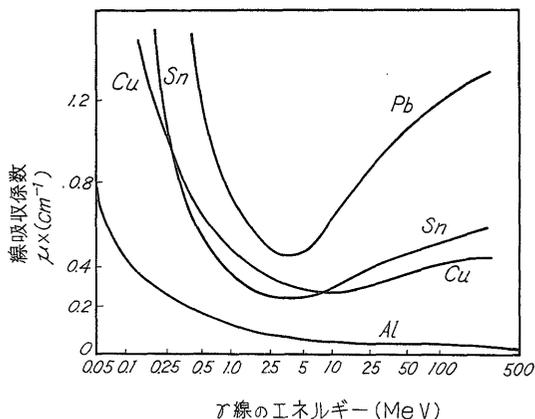


第1図  $\gamma$ 線のエネルギーと鉛の線吸収係数との関係(山崎文男, 1966)

実線は実際に測定される吸収係数で点線曲線の3つの和を示す

注2) 潜像の形成には、このほか、特性X線(光電効果で放出された電子の軌道へ他の軌道から電子がせん移した際に生ずるX線)があるが、フィルムの黒化には1%程度しか影響がないので本報告では省略する。

注1) A new reflection type-autoradiograph と仮称する。



第2図  $\gamma$ 線のエネルギーとアルミニウム、スズ、銅、鉛の線吸収係数との関係 (山崎文男, 1966)

曲線はほぼ  $Z^5$  に比例することを示す

が  $\gamma$ 線のエネルギーによって変化する状態は元素によって異なる。

イ), ロ) ならびにハ) の作用時における吸収係数をそれぞれ  $\tau, \sigma, \kappa$  で表わせば, 全吸収係数  $\mu$  は,

$$\mu = \tau + \sigma + \kappa \quad (2)$$

という式で表わされ, この式の右辺の3項は, それぞれ  $z^5, z, z^2$  にほぼ比例する。 $\tau$  はエネルギーの低い  $\gamma$ 線領域ではいちじるしく増大し, 中位のエネルギーになると減少する。 $\sigma$  は Al で 50 KeV, Cu で 150 KeV, Pb で 500 KeV くらいで重要となり, 高位のエネルギーになると減少する。 $\sigma$  は散乱  $\gamma$ 線による吸収係数  $\sigma_s$  と反跳電子<sup>注3)</sup>による吸収係数  $\sigma_a$  の和になる。

$$\sigma = \sigma_s + \sigma_a \quad (3)$$

2次電子放射に関係するのは  $\sigma_a$  のみで  $\sigma_s$  は散乱した  $\gamma$ 線に関係する。 $\kappa$  は,  $\gamma$ 線エネルギーが 1.02 MeV 以上でないと生じないので, それ以下のエネルギーの  $\gamma$ 線を使用する場合は考えなくてよい。したがって今の場合, 2次電子放射の起こる確率  $\mu_a$  は

$$\mu_a = \tau + \sigma_a \quad (4)$$

$\mu_a$  は原子番号とあてて放射線のエネルギーの関数である。 $\mu_a$  の値は, Al 等の軽金属元素では比較的变化が少ないが, 重金属元素ほど変化が大きくて 2.5~5 MeV 付近で最小値となる (第1図・第2図)。

この他に  $\gamma$ 線エネルギーが低くなって X線領域となっ

た場合の K-吸収端や, 2次電子線の制動放射<sup>注4)</sup>が  $\mu$ に対して影響を与えることも考えられるが, この場合は使用したエネルギー範囲から考慮する必要はない。

使用した  $^{75}\text{Se}$  の  $\gamma$ 線エネルギーは第2表に示したように 0.14 および 0.27 MeV の線が最も強く出ている。これは  $\sigma$  にくらべ,  $\tau$  の値が大きくなる範囲になっており, より多くの2次電子を放射することになるしたがって光電効果が感光膜に対して主要な影響を与えるものと考えられる。

### 2.1 $\gamma$ 線源とフィルムの黒化について

今回の実験の問題点の一つとして, 試料からの反射エネルギーを受ける前に, 線源によってフィルムが黒化しないかという心配があった。それは透過像の場合と反対で, 線源からの順位がフィルム, 次に試料面となるためである (第6図)。放射線が試料面に到達する以前に, 線源側に置いたフィルムを黒化するとすれば, 感光膜上に明瞭な潜像を得ることはむずかしいわけである。

通常,  $\gamma$ 線は,  $\alpha$ 線や  $\beta$ 線と異なり, それ自身は電荷をもたないから, それ自身が電離作用をおこすことはあまりなく, したがって透過力も強大で, 金属のような密度の大きなものでも透過する。1 MeV の  $\gamma$ 線は厚さ 1 cm の鉛板を通してようやくその強度が半分になる。そのかわり電離作用は他の放射線や X線に較べもっとも弱い。

$\gamma$ 線は  $\alpha$ 線や  $\beta$ 線のように徐々にエネルギーを消耗するのではなく, 光電効果や電子対生成によって1回で消耗する。またコンプトン散乱でも, 散乱された  $\gamma$ 線は入射  $\gamma$ 線とは異なったものであるから, やはり入射光子は1回の過程で消滅する。したがって物質中に入射した  $\gamma$ 線がある厚さの物質を通る間に,  $\gamma$ 光子が減少する割合  $-\Delta I/I_0$  は,  $\gamma$ 光子が物質中で衝突する原子または電子の数, したがって物質の厚さ  $\Delta X$  (cm) に比例することになる。上述の3作用により,  $\gamma$ 線の一部はエネルギーを失い他は通過する。いま入射  $\gamma$ 線の強度を  $I_0$ , 透過後の強度を  $I$ , 物質の厚さを  $X$  とすれば,

$$I = I_0 e^{-\mu X} \quad (5)$$

という指数関数で表わされる。 $\mu$  は  $\gamma$ 線のエネルギーと透過する物質によってきまる (これは前述の吸収係数に相当する)。

フィルムの場合,  $\Delta X$  と  $\mu$  の値が小さいので(5)式は  $I \div I_0$  となる。したがって, フィルムにカブリ, つまり黒化は生じないはずである。

注3) 大きなエネルギーの  $\gamma$ 光子が, 物質を構成する原子の電子と衝突したときに, 電子はその反動で運動エネルギーを得る。そして, このような変化を受けた電子を反跳電子という。

注4)  $\beta$ 粒子は原子核の近傍を通過するとき, 原子核の電場によって減速され, エネルギーの一部を副射 (or 電磁波 or X線) の形で放射する。この現象を制動放射という。

2.2  $\gamma$ 線源の選定と実験結果の検討

$\gamma$ 線については、前述したようにその特性電離能は他の粒子線に較べてきわめて弱い。しかし原子に衝突して放出された2次電子は非常に高いエネルギーをもっているため、これが激しい電離を行なう。したがって量子の飛跡の周囲には広く電離作用がおよぶ。

使用した放射線核種ならびに Ci 数は第2表に示すとおりである。放射線核種の選定については、非常に制約があったのでわずか2種類の線源で実験を行なわなければならなかった。実験1で後述するように、はじめ $^{137}\text{Cs}$ (5 mci)を使用した、反射像は何も得られず不成功に終わっている。この原因は、 $^{137}\text{Cs}$ の $\gamma$ 線エネルギーが0.662 MeVであることに起因するものであり、第1表(江藤秀雄, 1966)ならびに第1図(山崎文男, 1966)を見れば明らかなように、光電効果は、 $\gamma$ 線エネルギーが0.5 MeV以上で急激に減少するからである。なおこれに伴ってコンプトン散乱量は増加するが、前に述べたように反射オートラジオグラフには影響しない。また、電子対生成は1.02 MeV以上でなければ生じない。したがって $^{137}\text{Cs}$ の $\gamma$ 線エネルギーは、試料内で若干のエネルギーを消費するだけであり、そのほとんどが試料を通過し、したがって、反射オートラジオグラフが得られなかったのは当然の結果と考えられる。

次に使用した $^{75}\text{Se}$ は、0.066 MeV~0.40 MeVという広範な $\gamma$ 線エネルギー分布を有する。実験の結果は良好で、はじめ感光膜面に反射オートラジオグラフィによる潜像が得られた。 $^{75}\text{Se}$ の $\gamma$ 線エネルギーは第2表(日本放射性同位元素協会編, 1965)のように、0.14 MeV~0.40 MeVのものが大部分を占める。第1図から

第2表 使用した放射線核種の半減期と $\gamma$ 線エネルギー

核種	半減期	崩壊形式	$\gamma$ 線のエネルギーと放出の割合 (MeV)	使用線源 Ci 数
$^{137}\text{Cs}$	30年	$\beta^-$	0.662 — 82%	5 mci
$^{75}\text{Se}$	120.4日	Ec	0.066 — 1%	0.11 mci
			0.096 — 3%	0.51 mci
			0.12 — 15%	0.68 mci
			0.14 — 54%	
			0.20 — 1.5%	
			0.27 — 56%	
			0.28 — 23%	
			0.31 — 1.4%	
			0.40 — 12.5%	

(日本放射性同位元素協会, 1965)

このエネルギーを検討してみると、得られた潜像は光電効果によるものが主で、いくらかコンプトン散乱の影響が考えられる。電子対生成は皆無で、潜像の形成には寄与していない。 $^{137}\text{Cs}$ によって反射オートラジオグラフが得られなかったという結果から、光電効果ならびにコンプトン散乱に目を向けて $^{75}\text{Se}$ という低エネルギーの $\gamma$ 線を用いたのがよい結果を得た大きな原因であったと考えられる。もし電子対生成による感光作用を利用するとすれば、非常に強い $\gamma$ 線エネルギーの線源が必要となるだろう。

3. 反射オートラジオグラフの作製法

以上に述べた原理にもとづいた反射オートラジオグラフを得るために、筆者らは次のような準備を行ない、実験を進めた。

3.1 撮影の準備

撮影に必要な放射線源として $^{137}\text{Cs}$ と $^{75}\text{Se}$ (いずれも密封線源)を、感光材料として工業用X線フィルム(ノースクリーン型、富士100)と電子顕微鏡乾板(コダック社)を、試料として北海道竜昇殿鉱山の水銀鉱石<sup>注5)</sup>および海底マンガン団塊<sup>注6)</sup>(第3図)を準備した。試料は研磨して面を平滑に仕上げているものを選んだ。

セットするときに必要な容器および台は、木片を集めてごく簡単なものを製作した。そのため、暗箱としての役にたかないので、別に遮光紙用に、黒色のいわゆるポスター用紙を用意した。その他のこまかなものについては、作製法の説明のなかで触れる。

3.2 撮影

まず、感光膜面と試料の研磨面を密着させてその全体を前記遮光紙で包むか、あるいは感光フィルムないし乾



第3図 マンガン団塊の研磨試料 (丸山修司技官より借用)

注5) 岸本文男探集のもの。

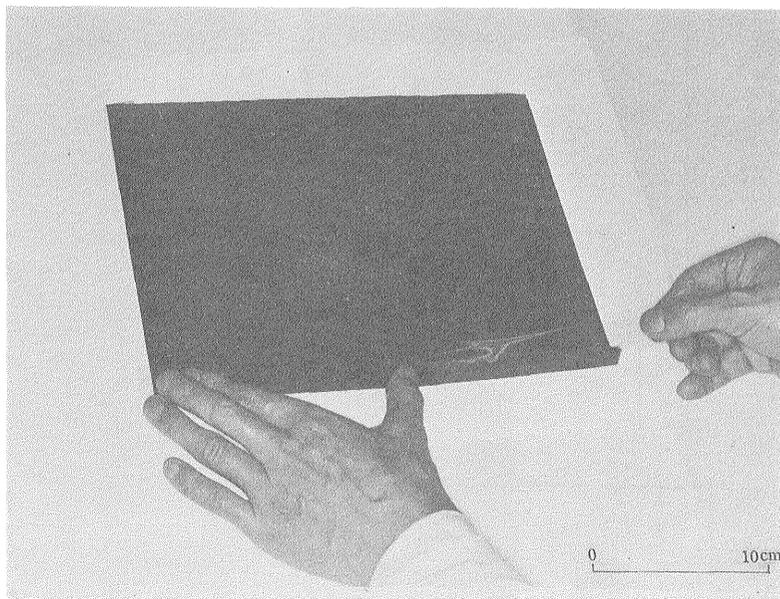
注6) 丸山修司技官から借用のもの。

板そのものを遮光紙で包んで、その開口部分を第4図のようにセロテープで密封して、感光膜面側に注7) 試料の研磨面をのせる (第5図)。

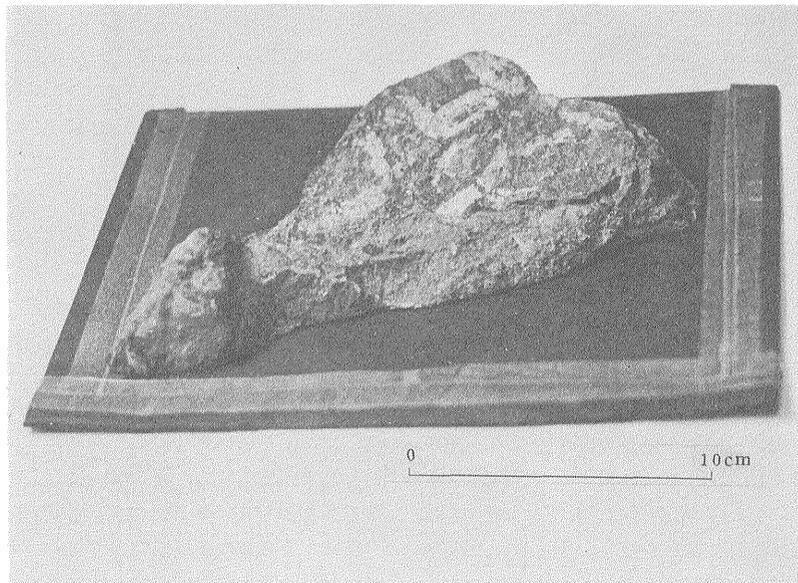
いずれの場合にも試料によって膜面に傷がつかぬよ

う、また素手で触れて膜面が汚れることのないように注8) 慎重に取り扱い、第6図のようにセットする。

密封線源の位置は、感光フィルムないし乾板の中心に相当するように注意する。



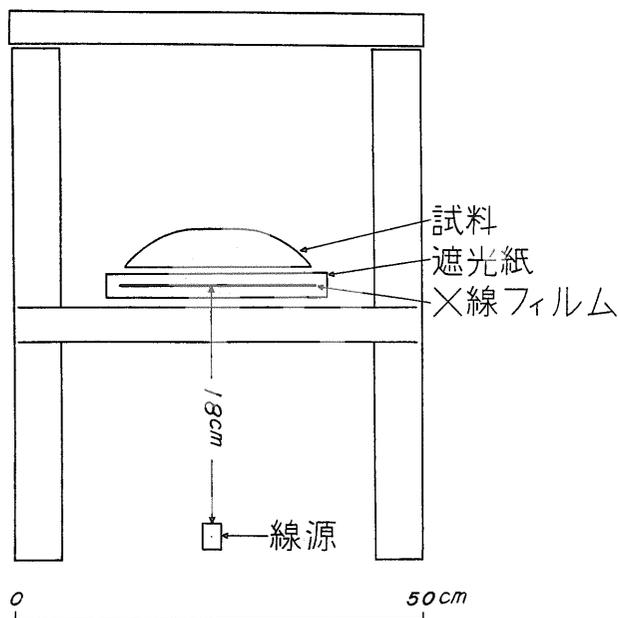
第4図 遮光紙を用いたフィルムの包装作業状況



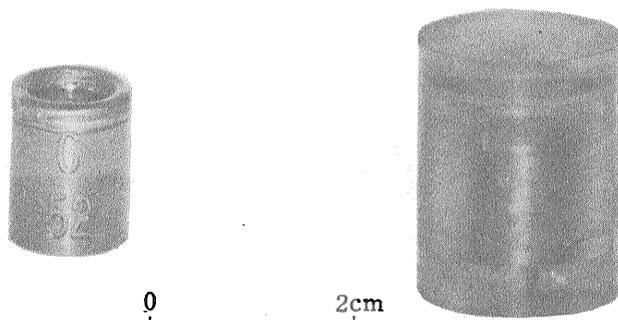
第5図 遮光紙で包装されたフィルムとサンプル研磨面のセット状況 (ただし、現在はサンプルとフィルムの全体を遮光紙で包んでセットしている)

注7) X線フィルムの場合は両面に感光乳剤が塗布してあるから、感光膜面のチェックを必要としないが、電子顕微鏡乾板の場合は片面塗布であるから、指定セイフ・ライトの前で膜面を確かめておかねばならない。

注8) 白い薄手の手袋を着用するとよい。



第 6 図



第 7 図 使用した  $^{75}\text{Se}$  密封線源の外貌  
線源は左の金属容器の中心に密封されさらに右のプラスチック容器に収めてある

密封線源 (第 7 図) は鉛製容器から取り出して、透明容器 (プラスチック) 入りのまま使用するが、線源の放射線強度が 0.2 mCi 以上の場合はピンセットなどの用具を用い、手で直接触れてはならない。そして、照射中はセットしてある部屋を閉鎖し、照射予定時間がこない限り出入りをせず、セットの安定に留意し、放射線障害を予防する。筆者らは放射能検層実験室の防護された部屋を使用した。特別な部屋がなければ、放射線源の強さに見合った厚さの鉛板でセット全体を覆うことができれば、放射線障害のおそれはない。ただしその場合に

は、鉛板による反射放射線などの散乱が X 線フィルムないし電子顕微鏡乾板などの感光膜に与える影響—カブリなどを前もってチェックする必要がある。

期待する画像の濃度は 2.0 である。それに必要な放射線の照射時間と放射線強度の関係は普通のオートラジオグラフィーの場合の公式を当てはめることができないので、同一放射線源を用い、照射時間を変えて実験を繰り返したわけである。

### 3.3 現像・定着・引伸

現像・定着・引伸に用いた薬剤はすべて既存の処方に

よって調合したもの(コダックD19・永酢酸 1.5%水溶液—停止液)と市販の調合済みのもの(レンフィックス・フジフィックス—以上ネガ定着剤・コレクトール—印画現像剤・レンドール—ネガ現像剤)注9)である。

#### 4. 実験とその経過

##### 4.1 遮光紙について

遮光性テストを行なった結果、遮光紙には黒色ポスター用紙を1重の袋にして使用することとした(第8図)。

##### 4.2 撮影

線源として有利に使える条件はまずその半減期が長いことであり、必要な条件は放射線( $\gamma$ 線)のエネルギーが原理に照して適当なものであることである。

そこで最初に、アイソトープ実験室で保管してある密封線源注10)のうち、半減期30年の $^{137}\text{Cs}$ の5 mciのものをテストの線源とした。

実験1~3の線源： $^{137}\text{Cs}$  (5 mci)

使用フィルム：X線フィルム・ノースクリーン型・富士 100

使用現像薬：レンドール

使用定着薬：レンフィックス

使用試料：研磨した大型水銀鉱石(辰砂, 黄鉄鉱, 方解石, 石英) (第9図)

遮光方式：試料とフィルムを全体として前記遮光紙で包んだもの。

実験 1 前述のセット方式によって、それぞれ 24 h, 72 h, 168 h, 336 h の照射を行なったが、いずれも反射オートラジオグラフは得られなかった。これは、 $^{137}\text{Cs}$  が放射する主な $\gamma$ 線のエネルギー 0.662 MeV (82%) が強すぎて透過してしまうためと思われる。

実験 2 実験1の結果からみて、 $^{137}\text{Cs}$ の放射する $\gamma$ 線エネルギーを低エネルギーに変えて使用フィルムに対する2次電子放射効果を得るために、フィルムをアルミ箔で包み、フィルターとして適当かどうかをテストした。

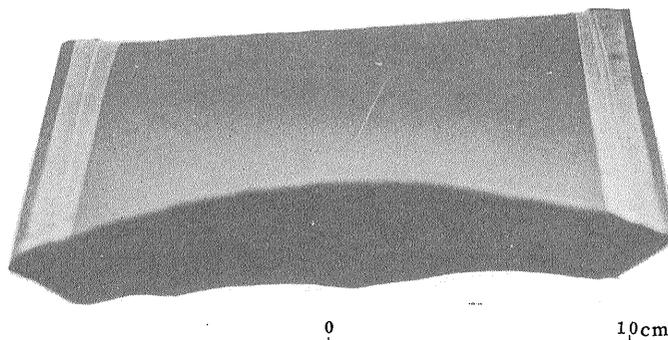
そのため1枚, 4枚, 12枚のアルミ箔すなわち 4.5 mg/cm<sup>2</sup>, 18 mg/cm<sup>2</sup>, 54 mg/cm<sup>2</sup> のアルミ箔で包んだフィルムを実験1と同じようにセットし、24h~336hの照射を行なった。

しかし、それでも反射オートラジオグラフは得られなかった。

実験 3 上記実験のアルミ箔に代えて、鉛箔 2260 mg/cm<sup>2</sup> を用いて上記の実験と同じような条件下で実験を行なった。

しかし、この場合も反射オートラジオグラフは得られなかった。

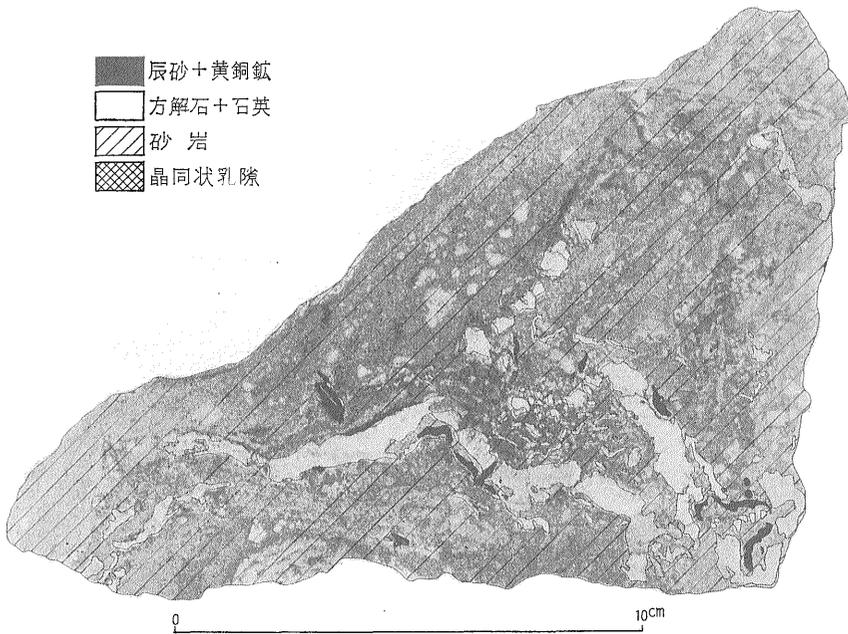
実験4~9の線源： $^{75}\text{Se}$ (0.11 mci 0.51 mci 0.68 mci) 半減期の長い $^{137}\text{Cs}$  (30年) が上記の操作法を用いる場合に適した線源とならないことが一応わかったので、



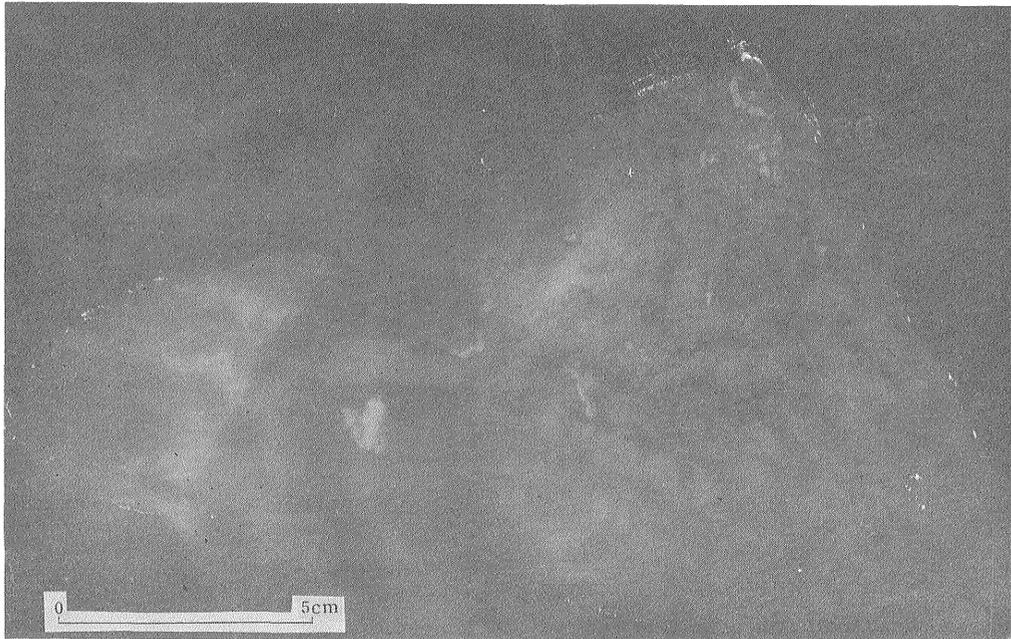
第8図 遮光紙で作った包装用の袋  
サンプルとフィルム全体を包装するとかなり膨らむ

注9) その使用に当たり、各薬剤の指定条件は厳守され、暗室内の操作には、セーフ・ライトとしてキング No. 5 (X線フィルムの場合)とコダック・ラテンシリーズ1(赤) (電子顕微鏡乾板の場合) が用いられた。

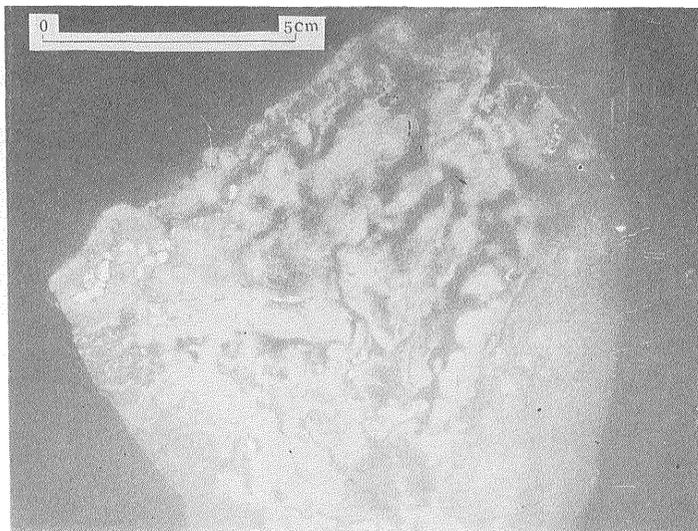
注10) とくに密封線源でなくてはならないということはない。しかし $^{208}\text{Hg}$ のような開放線源は、放射線障害防止法に照して、取り扱い資格と必要設備の基準が厳重なので簡単に使用することができないのである。



第 9 図 北海道竜昇殿鉱山層状鉱体下位の脈状鉱



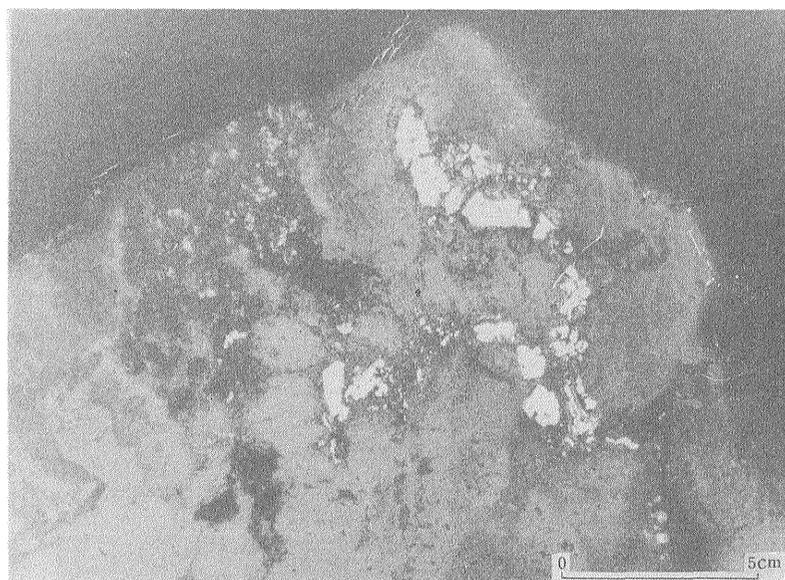
第10図 黒色辰砂  
96時間照射  
線源強度 0.2 mci



第11図  
白色部：辰砂  
灰白色部：黄鉄鉱  
灰色部：石英および方解石  
黒灰色部：粘土  
淡灰黒部：砂岩



第12図 黒色辰砂  
336 時間照射  
現像薬：レンドール  
線源強度 0.51 mci



第 13 図  
白色部：辰砂  
灰白色部：黄鉄鉱  
灰色部：石英および方解石  
黒灰色部：粘土  
淡灰黒部：砂岩

それを<sup>76</sup>Se に代えて実験した。

実験 4

使用フィルム：工業用X線フィルム・ノース  
クリーン型・富士 100  
現像薬：D19とレンドール  
定着薬：フジフィックス  
試料：研磨した大型水銀鉱石 (第9図)  
線源強度：0.11 mci  
照射時間：96 hと 336 h

このテストで初めて反射オートラジオグラフが得られた (96 h の場合, 第10図)。現像にレンドールを使用せず, D19を用いたのは強いコントラストを画像にもたせるためであった。レンドールによる現像結果と比較すれば, 336 h の場合, D19の方が解像力とコントラストの点ですぐれている (第11図および第12図参照)。

D19によって得られたこの反射オートラジオグラフの濃度は 2.0前後で, これを月光 V3 印画紙に密着してみると (コレクトールとフジフィックス使用), 肉眼で辰砂と黄鉄鉱, さらに黄鉄鉱と脈石鉱物とを識別することができる映像が得られた (第13図)。

しかし, そのフィルムの膜面にはサンプルによる機械的な傷が生じ, これはサンプルと感光膜面が直接に接していること, しかも接触面を固定する措置がなされていないことから生まれる避け難い現象と思われる。

そのため, 筆者らは感光膜面と試料の研磨面との接触面を固定する措置の適否を次のようにテストした。

実験 5

使用フィルム・現像薬・定着薬・試料は実験 4 と同じ。照射時間 96 h

X線フィルムと試料をセキスイのセロテープで7カ所固定して, その全体を遮光紙で包み, 前述のようにセットした。

そして写真処理の結果得られた不鮮明な反射オートラジオグラフ上には, 膜面に接着したセロテープの部分が映像となって現われ, 画面をみにくくしてしまうことが明らかとなった (第10図参照)。

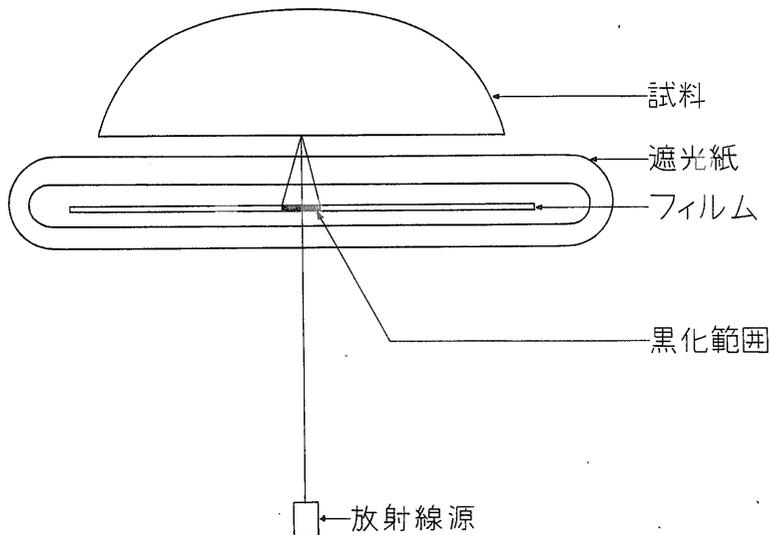
実験 6

セロテープを使ってフィルムの感光膜面と試料の研磨面を固着する代わりに, ゼラチンの稀薄溶液を使って直接接着する方法を検討した。

このテストのために, 日本薬局方のゼラチンの 0.5% と 5% の溶液を試料 (通常型の研磨片：辰砂鉱石) の研磨面に塗って接着し, 自然乾燥後, 前述の方式にしたがってセットした。そして 336 h 照射して実験 4 と同じ条件で現像・定着したが, その結果得られたのは, いずれもゼラチン膜のために現像薬の還元作用と定着剤による銀の溶解が妨害された不完全な反射オートラジオグラフであった。

実験 7

そこで, X線フィルムだけを遮光紙で包み, その上に試料の研磨面をのせて, 傷つきやすいX線フィルム (X線フィルムは通常のパンクロマチック・フィルムの場合と異なり, ゼラチン量が



第 14 図

多い)の感光膜面に固い試料の研磨面が直接触れないようにし、前記方式にしたがってセットした。

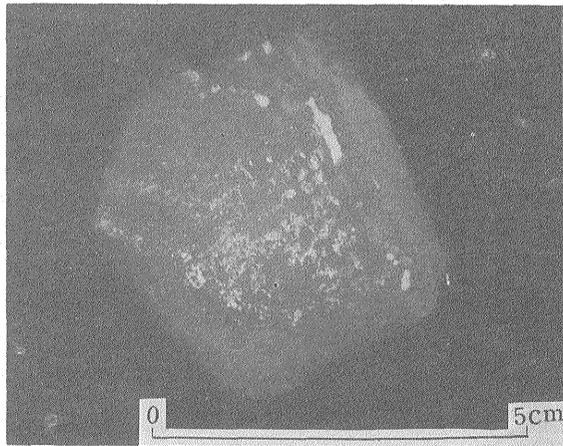
そして、163h,  $^{75}\text{Se}$ (0.68 mci)の $\gamma$ 線を照射したものをD19とレンフィックスで現像・定着したところ、前者では濃度2.0の反射オートグラフとなり、実験4の0.11 mci,  $^{75}\text{Se}$ による336h照射の場合よりも濃度が適当であったが、映像は少し不鮮明であった。不鮮明さの原因は、フィルムの感光膜面と試料の研磨面との間に遮光紙が入るため、その遮光紙の厚さだけ両面が離れ、第14図

に示すような反射2次線の散乱によるボケにあるものと思われる。

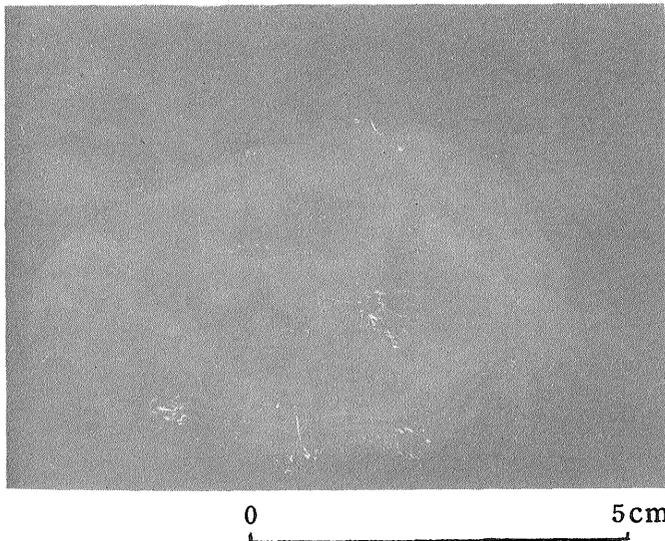
### 実験 8

したがって、フィルムの感光膜面と試料の研磨面との直接の接触を妨げ、かつ、映像を不鮮明にしない程度の物質を介在させるとすれば、その介在物は薄いほどよいことになる。

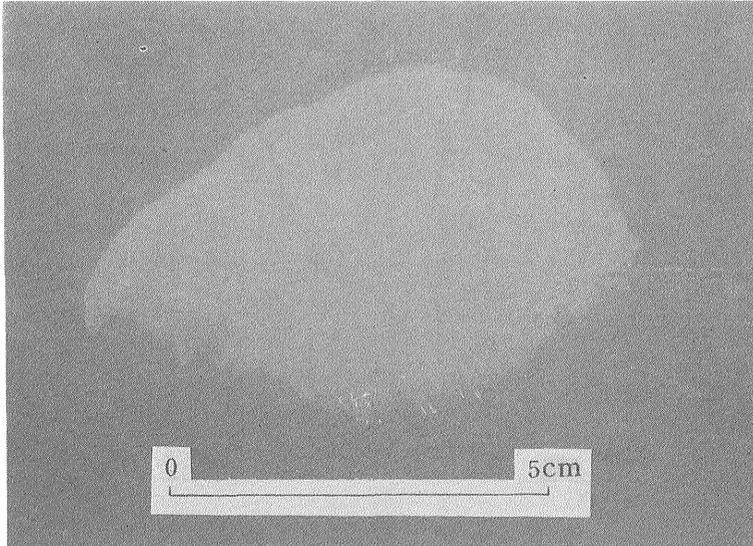
そこでX線フィルムを包装したケース中の薄い青紙(9 mg/cm<sup>2</sup>)を介在させて、その全体を遮光紙で包み、前記の方式に従ってセットした。使用した試料は、小型



第15図  
336時間照射  
線源強度: 0.11 mci



第16図 マンガン団塊(第3図)の反射オートラジオグラフ  
(照射量不足による映像)X線フィルム使用



第17図 マンガン団塊 (第3図) の反射オートラジオグラフ  
(照射量不足による映像)電子顕微鏡用乾板使用  
336 h 照射 線源強度 : 0.63 mci

の辰砂鉱石である。その結果得られた反射オートラジオグラフが第15図である。

この結果はほぼ満足できるものであった。

9 以上の実験は大型の辰砂鉱石を試料としたために、下位にフィルムをおき、その上に試料をおいても、その重さによって、フィルムがたわむことがなく、そのため映像のいわゆる「鮮明度」は平均している。

試料が軽い場合には、フィルムが平坦になるとは限らない。そこで軽い、いわゆる「マンガン団塊」を試料として、チェックしてみた。

セットは実験8の場合と同じ方式によって行ない、工業用X線フィルム、富士100とD19、フジフィックスを使用して第16図に示す結果を得た。同時に工業用X線フィルムに代えて電子顕微鏡乾板コダックを用いて得た結果は、第17図に示すとおりであった。

これらの結果は、明らかに軽い試料のオートラジオグラフは、乾板のように曲らないものが適当であることを示している。

## 5. 結果について

筆者らが試みたオートラジオグラフィーは、一般に用

いられている方式とは異なった方式と理論によっている。

「反射オートラジオグラフ」の実験結果は次のことを教えている。すなわち、

1) 感光材料としては工業用X線フィルム(ノースクリーン型)と電子顕微鏡乾板が使用できる。軽い試料の場合は電子顕微鏡乾板の方が適当である。

2) 線源としては $^{75}\text{Se}$ が使用できるが、その $\gamma$ 線放射能は線密度が大きいものほど潜像に必要な照射時間が少なくてすみ、得られた反射オートラジオグラフの仕上がりがよい。X線フィルムを用いた場合0.11 mciの $^{75}\text{Se}$ の標準照射時間は3週間程度、0.68 micの $^{75}\text{Se}$ の場合は2週間程度である。後者の方がよりすぐれた結果を示している。電子顕微鏡乾板を用いた場合は、それより2~3日多く照射した方がよい結果を得ることができる。

3) 現像はD19を用いた方がよく、定着はフジフィックスでも、レンフィックスでも差しつかえない。

4) 試料による感光面の損傷を防ぐには、薄い青紙を両者の間に置けばよい。

5) 得られた「反射オートラジオグラフ」では、原子番号の大きい元素の鉱物ほど黒化度が大きく、原子番号の小さい元素の鉱物ほど黒化度が小さい。このことは、

2の項で述べたように、黒化度が $Z^5$ に比例して増加することから納得できる。いま、辰砂[(HgS) ( $Z_{Hg}=80$ ,  $Z_s=16$ )], 方解石[( $\text{CaCO}_3$ ) ( $Z_{Ca}=20$ ,  $Z_c=6$ ,  $Z_o=8$ )], 石英[( $\text{SiO}_2$ ) ( $Z_{Si}=14$ ,  $Z_o=8$ )]から各鉱物の平均的な原子番号を算出してその5乗を比較すると、 $48^5:21^5:11.3^5:11^5$ となる。ここでHgSの5乗値を100として各鉱物の黒化度を計算すると $100:1.6:7 \times 10^{-2}:6 \times 10^{-2}$ となる。すなわち、水銀鉱石試料では辰砂の黒化度が最も大きく、黄鉄鉱は辰砂よりも黒化度が比較的小さく、両者の黒化度の差は98.4で明瞭に識別できる。黄鉄鉱と脈石鉱物とは、辰砂と黄鉄鉱の黒化度の差で比較するとその差は比較的小さいが(1.53~1.54), それでも明瞭に識別でき、黒化度は黄鉄鉱の方が大きい。おもな脈石鉱物である方解石と石英はそれぞれ黒化度が非常に小さく、かつその差が非常に小さい(0.01)ので識別できない。したがって、その黒化度の大小によって、当該鉱物の存在と分布状況は巨視的に認識することが可能である。

## 6. まとめ

筆者らは、大型試料中の重金属鉱物の存在と分布状況を知るための、「反射オートラジオグラフ」を得ることに成功したが、反射オートラジオグラフィ専用設備や材料を用いることができず、既存設備と既存材料による実験であったため、なお、解決しなくてはならない問題が山積みしている。

問題の第1は、各種金属鉱物が「反射オートラジオグラフ」にどのような標準黒化度で現われるか、そして、線源を変えることによって、線源特有の $\gamma$ 線エネルギーと各種重金属鉱物の「反射オートラジオグラフ」上の黒化度の差は生じないか、など、黒化度に関する問題である。ここで軽元素の黒化度の問題点についてふれてみると、まず第1表・第2図に示すように、アルミニウムがある。この軽元素は、とくに低エネルギーの $\gamma$ 線、すなわち、50 KeV以下で光電効果が増大する。したがって原子番号の低い軽金属および軽元素でも黒化度の向上が考えられるので、これも今後の問題として十分検討する必要がある。

次に「反射」の意義について考察すると、光の場合の「反射」は物質の表面での現象(とくに金属の場合)であるが、本報告で述べた「反射」の意味はこれと異なり、物質のなかに $\gamma$ 線が浸透して原子に作用し、その結果生じる2次電子線が入射方向と反対の方向にとびだしてきたものであって、光学的反射とは全く異質のものであることを付記しておく。第2は使用感光材料の違いによる解像力の差の問題であり、第3は黒化度の差を機械的に読みとり、肉眼による濃度差の感知能力の限界をこえさせる可能性についての問題である。

そして、鉱石や母岩中における重金属元素、および重金属鉱物の分布を知るために利用するうえで、解決しておかねばならない多くの問題が立ちふさがっているといえる。

## 文 献

- 岸本文男・他7名(1966): 鹿児島県大口鉱山金銀脈脈周辺における水銀元素, 地質調査所月報, vol. 17, no. 1, 1-17
- D. A. HELLER (1951): The Autoradiographic Technique, *Advances in Biological and Medical Physics II*, Academic Press Inc., Publishers, New York, 133-170.
- 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究所講義テキスト基礎課程, 31-47
- 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究所講義テキスト基礎課程, 187-228
- 日本放射性同位元素協会編(1965): ラジオアイソトープ手帳, 37-45
- 日本放射性同位元素協会編(1966): 第1種放射線取扱主任者試験問題と解答 第1集, 51-122
- 木村健二郎(1958): 放射線データブック, 株式会社地人書館, 132-158
- GERALD J. H. (1952): Secondary Electron Emission and Effective Atomic Numbers, *Nucleonics* vol. 10, no. 1, 9-15.