

## 放射ラジオグラフィ

—<sup>57</sup>Co, <sup>137</sup>Cs, <sup>60</sup>Co  $\gamma$ 線源の検討—

小尾五明\* 佐藤岱生\*

OBI, Itsuaki and SATO, Taisei (1982) Emission radiography: <sup>57</sup>Co, <sup>137</sup>Cs, <sup>60</sup>Co gamma-ray sources. *Bull. Geol. Surv. Japan*, vol. 33(1), p. 33-47.

**Abstract:** Emission radiography as applied to ore petrology is a method taking radiographs of polished surface of metallic ore by gamma-ray irradiation. Secondary photo-electrons and fluorescent X-rays emitted from the specimen give images of component minerals on the photographic film put directly on the polished surface depending on the effective atomic numbers of the minerals. The radiographs thus obtained include informations of texture, grain size and proportion of ore-forming minerals, and are particularly useful for the study of ores containing minerals that are difficult to discern each other by the naked eye (e.g., sheelite in skarn).

The present paper discusses technical problems to obtain well-contrasted radiographs of ore specimens, such as estimation of optimum exposure dose, comparison of gamma-ray sources, effect of fluorescent X-ray overlapping on photo-electronic images, and so on.

The specimens used in this study are eleven metal tips [Pb: 82, Au: 79, W: 74, tungsten-silver alloy: 64.6, Sn: 50, Ag: 47, Zr: 40, Zn: 30, Mn: 25, Ti: 22, Al: 13; figures are (effective) atomic numbers] and a lead-zinc ore from Hosokura mine (Miyagi Prefecture), consisting of galena, sphalerite, pyrite, and gangue minerals. Polaroid Land film (type 55 P/N), instead of X-ray film, is used for the convenience of handling and processing. The photographic densities of the metals and the minerals are normalized using that of a blank point on the film as a standard, in order to cancel the variations of the density due to the processing condition of the film.

It has been confirmed by the experiments that among the three R.I.'s studied <sup>57</sup>Co is the best gamma-ray source to get well-contrasted radiographs because of its lowest gamma-ray energy level (about 122 keV). <sup>60</sup>Co is inadequate for this method, because of its higher gamma-ray energy level (1170 and 1330 keV), and <sup>137</sup>Cs (662 keV) has brought intermediate results. Exposure dose of 3000-3500 mR is optimum for the <sup>57</sup>Co source, and about 7500 mR is necessary for <sup>137</sup>Cs when Polaroid Land film (type 55 P/N) is used.

The tests on a specimen wrapped with aluminum foil have revealed that the irradiated sample by gamma-ray induce not only photo-electron but also fluorescent X-ray.

The radiograph of lead-zinc ore with the <sup>57</sup>Co source shows a good contrast between galena and sphalerite, or galena and pyrite, but the contrast between sphalerite and pyrite is poor due to their similar effective atomic numbers. Therefore, this method is the most adequate to study those ore specimens which contain minerals of high effective atomic numbers such as Pb, Hg, W and so forth.

## 要 旨

鉱石岩石学への応用としての放射ラジオグラフィは $\gamma$ 線照射によって、金属鉱石の研磨面のラジオグラフィを得る方法である。試料から放射される二次電子と蛍光X線は試料研磨面に直接おかれた写真フィルム上に、鉱物の実効原子番号に従った鉱物組成の像を与える。ラジオグ

ラフはそれゆえに、組織・粒度、鉱石構成鉱物の量比などの情報をもたらし、また（例えばスカム中のシーライトのように）肉眼的に見わけにくい鉱物を含む鉱石の研究に有用である。

この論文では鉱石試料の良いコントラストのラジオグラフィを得るための技術的問題、すなわち、適正線量の見積り、 $\gamma$ 線源の比較、二次電子に重複する蛍光X線の像への効果などについて述べる。

\* 鉱床部

この研究で用いた試料は11種の金属板 [Pb : 82, Au : 79, W : 74, W-Ag 合金 : 64.6, Sn : 50, Ag : 47, Zr : 40, Zn : 30, Mn : 25, Ti : 22, Al : 13. 数字は (実効) 原子番号] と方鉛鉱, 閃亜鉛鉱, 黄鉄鉱と脈石鉱物からなる細倉鉱山 (宮城県) 産の鉛・亜鉛鉱石である. ポラロイドフィルム (タイプ55P/N) は取り扱いと現像が便利なので, X線フィルムの代りに用いた. 金属と鉱物の写真濃度はフィルムの現像条件の違いを差し引くために, フィルム上でなにもない点の写真濃度を用いて標準化した.

実験の結果,  $\gamma$ 線エネルギーが最も低い $^{57}\text{Co}$  (約 122 keV) を線源とした場合に, 最もコントラストの良いラジオグラフィが得られた.  $^{60}\text{Co}$  は高いエネルギー (1170と 1330 keV) のために, この方法には適当な線源ではない.  $^{137}\text{Cs}$  (662 keV) は中間の結果を示した.  $^{57}\text{Co}$  ではポラロイドフィルム (タイプ 55 P/N) を用いる時は 3000-3500 mR の照射線量が適正線量で,  $^{137}\text{Cs}$  線源では 7500 mR である. なお, 試料面をアルミニウムホイルで包んだ実験は, 二次電子のみならず, 蛍光X線もラジオグラフィの感光に関与していることを示している.

鉛・亜鉛鉱石の  $^{57}\text{Co}$  線源によるラジオグラフィは, 方鉛鉱と閃亜鉛鉱あるいは方鉛鉱と黄鉄鉱の間では良いコントラストを示したが, 閃亜鉛鉱と黄鉄鉱の間のコントラストは, 実効原子番号が近いために良くない. したがって, この方法は高い実効原子番号をもつ Pb, Hg, W などの鉱物を含む鉱石試料の解析に最も適当である.

## 1. はじめに

近年, 地質・鉱物学の分野にも  $\gamma$ 線やX線を利用した機器が増えてきている. RI (radio isotope) 線源を用いた蛍光X線分析装置やメスパウアースペクトル分析装置, 軟X線を用いるソフテックスなどがその例である.

筆者らがここで報告する方法は, RI線源からの  $\gamma$ 線を金属鉱石研磨面に照射して, その実物大の密着写真を得る方法である. この写真は, 鉱物を構成する主成分金属元素の原子番号によってコントラストが決まる (小尾ほか, 1971 a, 1971 b, 1971 c; 小尾・佐藤, 1977). 放射線のエネルギーによって像が形成されるので, この写真はラジオグラフィと呼ぶことができる. これは, HINE (1952), 及び GUMANSKY *et al.* (1960) の応用例をさらに発展させたものであり, その原理と事例についてはさきに詳しく検討した (小尾ほか, 1971 a). 本報告では標準金属試料による基礎的データの定量的取り扱い, 適正線量の見積り, 照射線源の核種別比較, 像形成への蛍光X線の寄与, 鉛・亜鉛鉱石の撮影例について述べる.

この方法の名称については, これまで「反射オートラジオグラフィ (reflection type autoradiography)」 (小尾ほか, 1971 a), 「二次電子放射ラジオグラフィ (secondary electron emission radiography)」 (小尾・佐藤, 1977) と呼んだ. しかし, これらはいずれも正確さを欠く. 本報告で述べるようにこの方法は必ずしも二次電子のみによる現象ではない. したがって本報告ではこれまでの呼びかたを改め, GUMANSKY *et al.* (1960) にならって「放射ラジオグラフィ (emission radiography)」と呼ぶ.

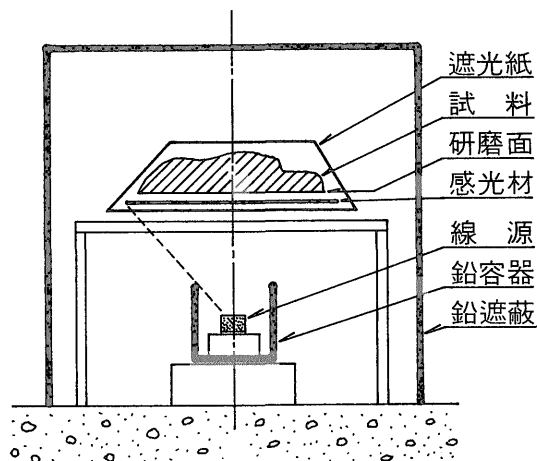
## 2. 原理

作用: 物質を  $\gamma$ 線で照射した場合, 一般に二次電子, 蛍光X線, オージェ電子が放出される. これらのうち, オージェ電子は, エネルギーも, 発生割合も低いので, 感光作用については無視できる.

物質が  $\gamma$ 線を吸収して二次電子を発生する機構には, 光電効果・コンプトン散乱・電子対生成の三つがある. このうち, 電子対生成は照射する  $\gamma$ 線エネルギーが 5 MeV 以上でないと有効な二次電子を生じない. また, コンプトン散乱は, 高原子番号の物質では 1-5 MeV の  $\gamma$ 線で主要な作用となるが, 筆者らの実験では 1 MeV 以下の低い  $\gamma$ 線が主体である. したがって, ここではコンプトン散乱によって発生する二次電子の量は光電効果による二次電子の量に比べて非常に小さい. コンプトン散乱で生ずる散乱  $\gamma$ 線は, 入射  $\gamma$ 線と反対の方向に戻る比率はきわめて低い. したがって, 筆者らの実験結果の範囲内では, 電子対生成とコンプトン散乱については考える必要がない.

光電効果では照射する  $\gamma$ 線のエネルギーが低くなるほど発生する光電子は急激に多くなる. また, 光電子は物質を構成する元素の原子番号によっても発生量に変化する. したがって光電効果は, 有効な二次電子の発生, すなわち像の形成に最も重要な役割を果たす. 蛍光X線は光電効果に伴って発生し, 特定の元素の蛍光X線のエネルギーは, 照射  $\gamma$ 線のエネルギーによらず固有値をとり, 電離ポテンシャルのエネルギーに等しい. 蛍光X線は感光材に作用するが, この方法における像形成への関与については明らかにされていなかった. 本報告ではこの点についても実験を行ったので後述する.

金属又は鉱物からなる試料に照射された  $\gamma$ 線は, 試料を構成する元素から光電効果により二次電子及び蛍光X線を発生させ, それらによって試料研磨面に接して置かれたフィルムを感光させる. フィルムは原子番号の高い物質ほど強く感光し, 写真濃度が大きくなる (印画では, 逆に原子番号の高い物質に対応する部分がより白く



第1図 ラジオグラフ撮影装置概念図

研磨面と線源の距離は線源の強さと照射むらを勘案して適当に定める。感光材が線源と試料の間にあり、かつ、試料面に密着させている点が透過ラジオグラフィと異なる。

Fig. 1 Geometry of the gamma-ray irradiation.

Arrows show, from top to bottom, light shield paper, handspecimen, polished surface of the handspecimen, emulsion, radio-isotope for gamma-ray source, lead vessel, and lead shield.

なる)。

この過程での特徴は、線源からの $\gamma$ 線は透過力が強すぎるために感光材には感光しにくく、それに比べて試料から発生した電子や蛍光X線は透過力が弱く感光材に吸収されやすいので、その結果、感光作用を強く引き起こすことである。このことを利用して、線源と試料研磨面の間に、感光材を置くことが可能になる(第1図)。

照射線量：照射線量の算定は、照射時間の見積りやラジオグラフ濃度の比較・検討に不可欠である。いま、線源から試料面までの距離を  $d$  (メートル) とすると線量率  $D$  は

$$D = \frac{0.525}{d^2} C \sum_1^n \left( E_i \frac{P_i}{100} \right) \quad (\text{レントゲン(R)/hr)} \quad (1)$$

で与えられる。  $C$  は線源の強さで単位はキュリー (Ci) である。  $E_i$  は線源の $\gamma$ 線エネルギー (MeV)、  $P_i$  はその放出割合を百分比で表わしたものである。

RI線源は半減期  $T$  によって減衰していくので、検定した日のキュリー数を  $C_0$  とすると、  $t_0$  日後のキュリー数  $C$  は

$$C = C_0 e^{-\lambda t_0} \quad (\text{Ci}) \quad (2)$$

となり、ここで  $\lambda$  は壊変定数で、  $\lambda = 0.693/T$  である。したがって、検定の日から  $t_0$  日後の線量率を  $D_0$  とすると

$$D_0 = \frac{0.525}{d^2} C_0 e^{-\lambda t_0} \sum_1^n \left( E_i \frac{P_i}{100} \right) \quad (\text{R/hr}) \quad (3)$$

となる。さらに、線量率  $D_0$  の日から  $t$  日間照射したときの照射線量  $A$  は

$$A = \int_0^t D dt = \int_0^t D_0 e^{-\lambda t} dt = \frac{D_0}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t}) \quad (\text{R}) \quad (4)$$

となる。例えば  $^{57}\text{Co}$  を線源とし、  $d$  を 0.12 m、検定日のキュリー数を 10 mCi、この日から39日後に3日21時間 (3.88日) 照射したとすれば、照射線量は 3660 mR となる。

実効原子番号：金属鉱物の写真濃度の予測には、単体の場合と異なり、その鉱物の化学組成から実効原子番号を求めなければならない。後方散乱二次電子に対する実効原子番号は HINE (1952) の定義式により計算した。すなわち、

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

ここで、  $P_1, P_2, \cdots, P_n$  は化合物を構成する各元素の重量比、  $Z_1, \cdots, Z_n$  は各元素の原子番号である。この論文に関係のある鉱石・脈石・合金についての実効原子番号を第1表に示す。

### 3. 実験

#### 3.1 試料の調製 (標準試料、鉱石試料)

原子番号と写真濃度の関係を確認、適正線量を決定するために標準金属試料を作製した。試料の選択にあたっては原子番号の間隔、入手の難易、酸化の問題などの適性を検討した。

試料は、Pb (原子番号 82, 以下同様)、Au (79), W (74), W-Ag 合金 (W : Ag = 70 : 30 wt%, 64.6), Sn (50), Ag (47), Zr (40), Zn (30), Mn (25), Ti (22), Al

第1表 実効原子番号の例

Table 1 Effective atomic numbers of the materials used in this study

Material	galena	sphalerite	pyrite	calcite	quartz	W-Ag alloy
Composition	PbS	ZnS	FeS <sub>2</sub>	CaCO <sub>3</sub>	SiO <sub>2</sub>	W: 70, Ag: 30
The effective atomic number	61.1	24.5	20.1	11.3	10.4	64.6

(13)の11種を選んだ。金属板の大きさは各々一辺約7 mmの角型で厚さは0.5 mm程度とした。Wだけは板状の物が入手できなかったので、丸棒を切断して使用した。これらを合成樹脂に埋めこんで一体とし、普通の方法で研磨し、仕上げはアランダム3000番で行った。試料11個を埋めこんだ合成樹脂の大きさは、約2×4 cmである。

板厚0.5 mm以下では研磨段階で剝離を起こしたり、角が欠けたりする。樹脂から剝離しやすい試料には、金属板の裏面に鉄製ナットを接着してから樹脂に埋めこんで安定させた。

実験の結果、Pbはもろくて、鹿皮でぬぐっただけで研磨面が粒状に破損した。また、Zn・Mnは表面の酸化が著しく、錆を生じた。錆は最初局部的に生ずるが、急激に研磨面を覆う。さらにこの錆は平らな研磨面から盛り上がるため、感光材の膜面に喰込み、損傷をひき起こす。錆の予防のためには、デシケーター中で保管し、錆の光候がでたら、直ちに再研磨することが必要である<sup>1)</sup>。

天然試料としては、本実験では宮城県細倉鉱山産、方鉛鉱-閃亜鉛鉱-黄鉄鉱鉱石を使用した。試料は手標本大(約8×5.5×2 cm)で、平面研磨は3000番まで行った。一般に、つや出しをする必要はない。この鉱石は共生鉱物の実効原子番号の範囲が広く、写真濃度の比較検討に適している。

### 3.2 感光材・装置及び撮影の手順

本実験の感光材料にはポラロイドランドフィルムタイプ55/ポジ-ネガ(以下、ポラロイドフィルムと略称)を用いた。その理由は現像処理の簡便さと、ラジオグラフがすぐ見られるのでその結果に応じた次の段階の実験条件の設定を能率的に行えるためである。このフィルムはネガとポジの両方が得られ、ネガからの焼増し、引伸しが可能である。反面、光学写真用感光材なのでX線・γ線に対する感度が多少にぶいほか、フィルムサイズが11×9 cmなので試料の大きさに制約がある。これまでの実験では工業用X線フィルム「富士100」に比べ、約10倍近くの照射線量を必要とすることが判明している。

第1図に示した照射装置では線源と試料研磨面の距離は研磨面全体が均等な照射を受け、なおかつ照射時間が短かくてすむように決める。照射は密封線源により行う。その取扱手順、照射施設などは、法規に定められた基準を守る必要がある。

撮影の手順はまず暗室内で感光材膜面と研磨面を密着させ、遮光紙でつくった袋を二重にしてこれらを入れ

る。フィルムの試料研磨面へのセットは現像液の小袋を付けたまま行う。これらを照射室に運びあらかじめ計算しておいた線量のγ線を照射する。照射終了後はフィルムを印画紙の入っている袋に戻し、ランドフィルムホルダー #545によって現像を行う。

この方法は、感光材膜面に金属や硫化物を密着させるために、種々のトラブルが発生しやすい(小尾・佐藤, 1977)。その第1は機械的なもので、試料による膜面の掻き傷、異物が試料と膜面の間に入るための像のボケ、機械的圧力による感光などがある。第2は化学的な作用で、試料と感光材の間に化学反応を生じて感光したり、膜面が変化したりすることである。また、膜面の乳剤によって試料が酸化され、錆を生ずる場合もある。第3は気温の上昇による膜面の軟化で、湿度と相まって膜面の損傷をひき起こす。

機械的トラブルは技術的な習熟で比較的簡単に除去できる。化学的障害及び膜面の軟化に対する対策の重点は湿気の除去にある。水分を除去することによって化学反応を抑制し、膜面の試料面への粘着もおさえることができる。

このため、遮光紙内の片隅に、試料や感光材に影響しないようにシリカゲルを同封して好結果を得た。シリカゲルはビニールの小袋に多数の小孔をあけたものに入れて使用した。

### 3.3 照射線源

今回の実験では、<sup>57</sup>Co, <sup>137</sup>Cs, <sup>60</sup>Coの3種の密封線源を使用して、得られたラジオグラフの比較を行った。各線源のγ線エネルギー、半減期を第2表に示す。線源の強さはいずれも検定時に10 mCiのものを使用した。

小尾ほか(1971 a)では<sup>76</sup>Seを使用して、良いラジオグラフを得ている。しかし、この線源は放出されるγ線エネルギーが66-400 keVの範囲で10種にもなり、γ線エネルギーに対するラジオグラフの写真濃度の依存性を検討するには不適當であった。この目的では、理想的には単一エネルギーのγ線源が望ましい。また、一般に半減期の長い線源が経済的である。

しかし、100 keV程度のエネルギー領域で、上記の条件を完全に満たすことのできる線源はない。したがって、本実験ではそれに近いものとして<sup>57</sup>Coを用いた。<sup>57</sup>Coは122 keVと136 keVのγ線を出す。両線のエネルギーの差は小さく、また、その放出割合は122 keV線が88%、136 keV線が10%と大差がある。さらに、半減期は270日であるが本実験の目的には十分であった。この線源は100 keV程度のエネルギーのγ線源としては最も良い条件をそなえていると言える。

1) 現在では、このようなトラブルをさけるためにPb・Zn・Mnを除いてあらたにNiを加え、Au(79), W(74), Sn(50), Ag(47), Zn(40), Ni(28), Ti(22), Al(13)の8種を標準金属として用いている。

第2表 RI線源とその主なγ線エネルギー及び半減期

Table 2 Radio-isotopes and gamma-ray energies used in this study			
γ-ray source	γ-ray energy and relative intensity		half-life
	keV	%	
<sup>75</sup> Se	96	3	120 d
	120	15	
	140	54	
	270	56	
	280	23	
<sup>57</sup> Co	400	12.5	270 d
	14	9	
	122	87	
	136	11	
<sup>137</sup> Cs	662	85	30 y
<sup>60</sup> Co	1170	100	5.26 y
	1330	100	

(ラジオアイソトープ手帳1970年版による)

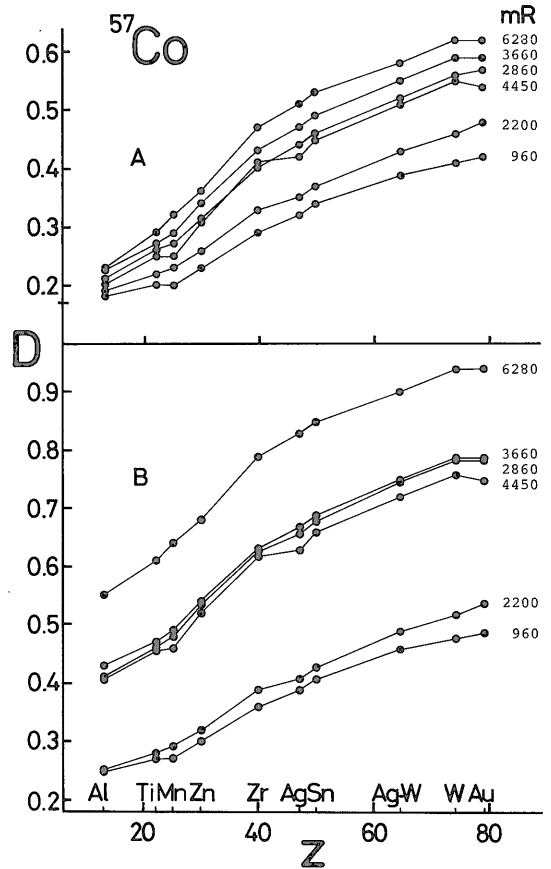
<sup>137</sup>Cs は662 keV のγ線しか出さない単一エネルギーの線源であり、半減期は30年と非常に長い。この線源が実用化できれば、経済性の面で非常に有利である。小尾ほか (1971 a) では、照射線量の見積りが適当でなかったために、この線源での撮影に失敗していたが今回は露出を適正にしてラジオグラフィを得ることができた。

<sup>60</sup>Co (1.17 MeV, 1.33 MeV) は、エネルギーが高すぎるので、小尾ほか (1971 a) では検討の対象としなかった。しかし、HINE (1952) はこの線源を用いて二次電子のみについて考察しているので、今回、比較検討のために<sup>60</sup>Coによる実験も行った。

### 3.4 写真濃度の測定と標準化

写真濃度の測定はフィルムの透過光を用い、ナック社製カラーデータシステム1200によって、画像解析と共に行われた。本報告では写真濃度のみについて述べる。

ラジオグラフィの現像にあたっては、温度や時間などの現像条件を一定に保つことが非常に重要である。しかし、発光分光分析などのように、多数の乾板を一度に現像することによって現像条件をそろえる方法がとれず、現像は照射終了ごとに1回ずつ行うので、各々の現像条件はふぞろいとなることは避けられない。また、γ線によるカブリも長時間照射になると無視できなくなる。このように写真濃度の測定値そのものを二つ以上のラジオ



第2図 写真濃度の標準化と非標準化の比較

図版Iの<sup>57</sup>Co線源によるラジオグラフィ中の標準金属資料の写真濃度(D)を原子番号(Z)に対してプロットした。mRは照射線量。写真濃度の値は第3表に示す。Aはバックグラウンドを0.17として標準化し、測定値のばらつきを補正してプロット。Bは写真濃度測定値のままプロット。

Fig. 2 Comparison between observed and normalized photographic densities (D) for the standard metal samples (<sup>57</sup>Co gamma-ray source).

mR: exposure dose, A: normalized, B: observed

グラフィの間で直接比較することは意味がないので、以下に述べる手法で写真濃度の標準化を行った。これは標準試料のAl近くの樹脂部分の写真濃度をバックグラウンド(以下B. G. で表わす)として測定し、濃度の基準を一定値にそろえる操作である。この基準値は、測定値のうちの最低の値を用いて仮に0.17とした。

いま、測定値を $D_0$ とすると標準化値 $D_n$ は次の式で与えられる。

$$D_n = D_0 - \text{B.G.} + 0.17$$

例として、<sup>57</sup>Coを線源とした標準金属の写真濃度を原子番号に対してプロットした図を第2図に示す。測定値

は大きくばらついて写真濃度の比較は直接できないが、上式によって標準化することにより可能となる。また、Al の写真濃度27個の測定値は0.17-0.55の範囲で、平均0.30、標準偏差0.095であるが、これを標準化すると0.17-0.23、平均0.19標準偏差0.021となり、写真濃度のバラツキが是正される。

3.5 蛍光X線の影響判定

ラジオグラフに対する蛍光X線の影響を調べるために試料とフィルムの上にアルミニウム箔をおいてラジオグラフを撮った。これは一般に電子はアルミニウム箔を通過しにくい、X線は通過しやすいことを利用したものである。たとえば <sup>57</sup>Co のγ線 (122 keV) を Au に照射すると、光電効果によって発生する二次電子はK殻からのものが80%を占め、そのエネルギーは Au のK殻の電離ポテンシャル80.7 keV との差、41.3 keV である。電子線の最大飛程 (l: 単位 mg/cm<sup>2</sup>) は物質によらず次式で与えられる。

$$l = 412 E^n$$

ここで E (MeV) は電子線のエネルギーで、これが0.01-2.5 MeV の間では  $n=1.265-0.095 \ln E$  である。41.3 keV の電子線に対しては  $l=2.79$  (mg/cm<sup>2</sup>) と計算され、これは Al の密度 2.7 を用いて  $1.03 \times 10^{-3}$  cm となる。したがってこのエネルギーの二次電子は  $1.03 \times 10^{-3}$

cm の厚さのアルミニウム箔で阻止される。実験に用いた箔の厚さは  $1.48 \times 10^{-3}$  cm で、上記の遮蔽の目的には十分である。

一方、アルミニウム箔による Au の蛍光X線の透過率 K は、

$$K = e^{-\mu x}$$

により計算できる。ただし  $\mu$  は Al の線吸収係数で、X線のエネルギーに依存する。Xは箔の厚さ(この場合  $1.48 \times 10^{-3}$  cm)である。これによると、Au では箔3枚分でもほとんど100%透過する。また、原子番号が低くなると蛍光X線は減衰し、例えば Cu(29)では、箔1枚を透過した後では、当初強度の88.7%に減衰する。それでも箔によって電子が阻止されるのに対して、蛍光X線は相当の割合で箔を通過してフィルムに達する。したがって、アルミニウム箔を介してもラジオグラフが得られれば、それは蛍光X線による像と判定できる。

4. 結果及び考察

4.1 ラジオグラフについて

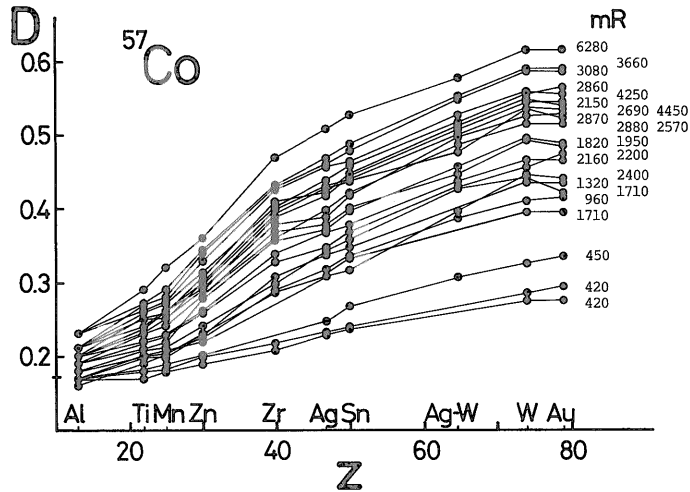
<sup>57</sup>Co によるラジオグラフは約40枚得られた。図版Iにその例を、第3表に写真濃度の測定値を、第2図に標準化した値を原子番号に対してプロットした写真濃度グラフを示す。また、第3図は標準化値と、測定値の写真濃

第3表 <sup>57</sup>Co, <sup>137</sup>Cs, <sup>60</sup>Co 線源による標準金属試料及び鉛・亜鉛鉱石の写真濃度測定値

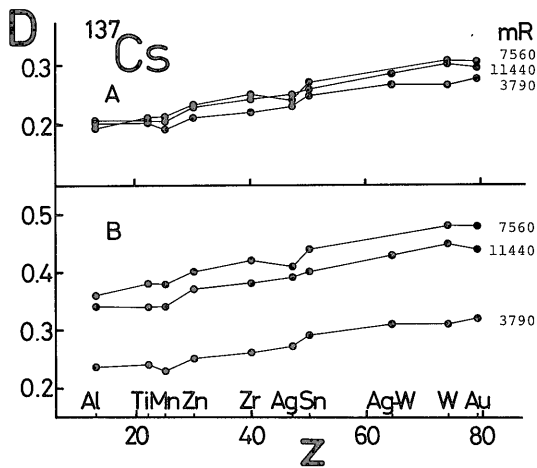
Table 3 Photographic densities of metals and minerals on Figs. 3 and 5.

RI	<sup>57</sup> Co						<sup>137</sup> Cs			<sup>60</sup> Co		
	No.	132	141	134	136	144	137	154	162	168	151	153
Exposure (mR)	960	2200	2860	3660	4450	6280	3790	7560	11440	4800	9600	19000
Au	0.49	0.54	0.77	0.79	0.75	0.94	0.32	0.48	0.44	0.34	0.43	0.59
W	0.48	0.52	0.76	0.79	0.76	0.94	0.31	0.48	0.45	0.34	0.44	0.59
W-Ag	0.46	0.49	0.72	0.75	0.72	0.90	0.31	—	0.43	—	—	0.58
Sn	0.41	0.43	0.66	0.69	0.66	0.85	0.29	0.44	0.40	0.31	0.41	0.55
Ag	0.39	0.41	0.64	0.67	0.63	0.83	0.27	0.41	0.39	0.30	0.39	0.52
Zr	0.36	0.39	0.60	0.63	0.62	0.79	0.26	0.42	0.38	0.28	0.38	0.52
Zn	0.30	0.32	0.51	0.54	0.52	0.68	0.25	0.40	0.37	0.27	0.36	0.50
Mn	0.27	0.29	0.47	0.49	0.46	0.64	0.23	0.38	0.34	0.27	0.34	0.48
Ti	0.27	0.28	0.46	0.47	0.46	0.61	0.24	0.38	0.34	0.27	0.35	0.49
Al	0.25	0.25	0.41	0.43	0.41	0.55	0.24	0.36	0.34	0.25	0.34	0.47
B.G.	0.24	0.23	0.37	0.37	0.38	0.49	0.21	0.34	0.31	0.23	0.30	0.44
PbS	0.43	0.53	0.71	0.75	0.75	0.94	0.29	0.44	0.41	0.32	0.40	0.53
ZnS	0.27	0.32	0.47	0.51	0.48	0.68	0.22	—	0.32	—	—	0.41
FeS <sub>2</sub>	0.24	0.28	0.44	0.48	0.44	0.61	0.20	0.32	0.30	0.26	0.31	0.38

B.G. はバックグラウンド、PbS, ZnS, FeS<sub>2</sub> は各々方鉛鉱、閃亜鉛鉱、黄鉄鉱を表わす。

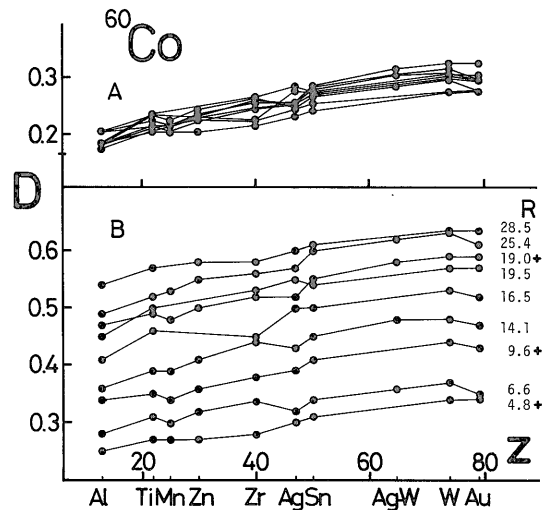


第3図  $^{57}\text{Co}$  を線源とした標準金属試料の写真濃度バックグラウンドの写真濃度を0.17として標準化した値をプロット。Dは写真濃度、Zは原子番号、グラフ右の数字は照射線量 (mR)。  
 Fig. 3 Relationship between photographic densities (D) and atomic numbers (Z) for the standard metal samples irradiated by the  $^{57}\text{Co}$  gamma-ray source.



第4図  $^{137}\text{Cs}$  による標準金属試料の写真濃度グラフ  
 図版IIの1-3に対応する写真濃度測定値(B)とその標準化した値(A)  
 Fig. 4 Relationship between photographic densities (D) and atomic numbers (Z) for the standard metal samples irradiated by the  $^{137}\text{Cs}$  gamma-ray source.

A: normalized, B: observed



第5図  $^{60}\text{Co}$  による標準金属試料の写真濃度グラフ  
 写真濃度測定値(B)とその標準化した値(A)。照射線量右の十印は図版IIの4-6の写真に対応する。

Fig. 5 Relationship between photographic densities (D) and atomic numbers (Z) for the standard metal samples irradiated by the  $^{60}\text{Co}$  gamma-ray source.

A: normalized, B: observed

度グラフである。ここに見られるように、ほとんど例外なく原子番号の増加にしたがって写真濃度は単調に増加する。また、照射線量の少ないものは傾斜がゆるく、照射線量の多いものは傾斜が急となる傾向が見られる。し

かし、1500-4500 mR の範囲では、照射線量と写真濃度との関係は必ずしも一定していない。

一般に、写真濃度グラフの傾斜が急なものがコントラストが強く良いラジオグラフであるが、照射線量が多すぎるとハレーションを起こし、画質を落とす。

$^{137}\text{Cs}$  によるラジオグラフは約 20 枚を得た。図版Ⅱの 1-3 にラジオグラフの例を示すが、 $^{57}\text{Co}$  の場合に比べコントラストが劣り、画像も鮮明さを欠く。写真濃度は、原子番号が大きくなってもわずかしき増加せず、最高値が 0.3 をやや越える程度となっている(第 4 図)。また、 $^{57}\text{Co}$  に比べ画像を得るのに 2.5-3 倍の線量を必要とするが、写真濃度への寄与は少ない。

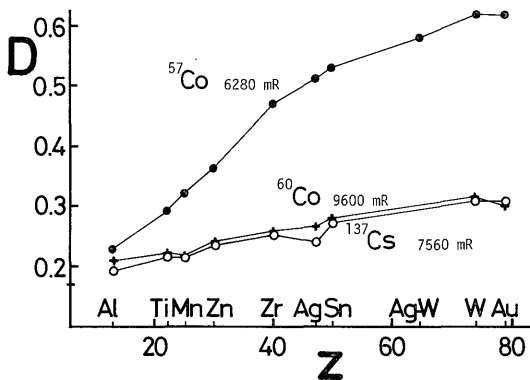
$^{60}\text{Co}$  では約 10 枚のラジオグラフを得た。図版Ⅱの 4-6 にそのラジオグラフを、第 5 図に写真濃度グラフを示す。このグラフの傾斜はゆるく、 $^{137}\text{Cs}$  の場合とほとんど差がない。

#### 4.2 適正線量

ラジオグラフのコントラストに対しては、現像温度や現像時間など適切な写真処理も重要であるが、最も基本的な要素は照射線量である。照射線量が少なすぎればコントラストのないラジオグラフになるし、多すぎればハレーションやソラリゼーションを起こす。また、ほぼ良好なラジオグラフが得られる範囲内であれば照射線量は少ない方がよい。これらの条件を考慮した適正線量は、ポラロイドフィルムに対しては  $^{57}\text{Co}$  : 3,000-3,500 mR,  $^{137}\text{Cs}$  : 7,500 mR,  $^{60}\text{Co}$  : 10,000 mR である。

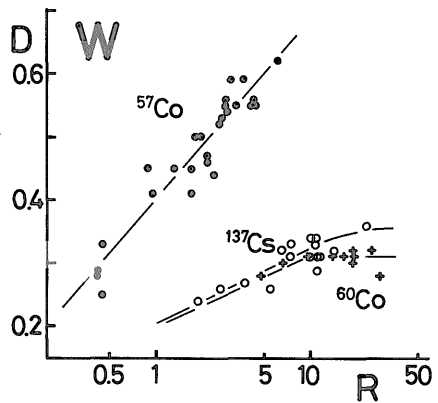
#### 4.3 照射線量の比較

$^{57}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{60}\text{Co}$  の 3 線源によって、各々似た照射線量を標準金属試料に与えた場合の比較を第 6 図に示す。これによると  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{60}\text{Co}$  では、写真濃度はほとんど同じゆるい傾斜、 $^{57}\text{Co}$  では急な傾斜を示す。すなわち、 $^{57}\text{Co}$



第 6 図  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{60}\text{Co}$  の各線源による標準金属写真濃度の比較

Fig. 6 Comparison of photographic densities by the  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{60}\text{Co}$  gamma-ray sources.



第 7 図 照射線量(R)と写真濃度(D)から見た  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{60}\text{Co}$  各線源の比較

写真濃度はタングステン(W:原子番号74)の標準化した値をプロット。

Fig. 7 Relationship between photographic densities and exposure doses for tungsten metal.

によるラジオグラフは良いコントラストを示すが、 $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{60}\text{Co}$  ではこの条件では十分なラジオグラフを得ることができない。これは、 $\gamma$ 線エネルギーのより低い $^{57}\text{Co}$ 線源では、光電効果により発生する二次電子が増加する(小尾ほか, 1971a)ためである。

写真濃度を照射線量に対してプロットしたものを第 7 図に示す。この図で明らかのように、照射線量を増やしても写真濃度が増加しない飽和領域が存在する。 $^{57}\text{Co}$  ではこれまでの実験でこの領域に達する線量を照射したことがないが、 $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{60}\text{Co}$ では飽和線量に早く達してしまうことを示している。

#### 4.4 蛍光X線の寄与

アルミニウム箔による遮蔽の実験結果を第 4 表・図版Ⅲ・第 8 図に示す。第 4 表は図版Ⅲから写真濃度を測定したものである。 $^{57}\text{Co}$  による図版Ⅲの 1-3 ではアルミニウム箔遮蔽の効果が顕著である。箔を用いない写真濃度(第 8 図実線)が急傾斜であるのに比べ、箔を用いた場合(点線)では傾斜がゆるい。しかし、箔を介してもラジオグラフを得ている。3.5で検討したように少なくとも Au では、光電子はアルミニウム箔 1 枚で完全に阻止されているが、それにもかかわらず像が得られるのは二次電子の効果ではなく、アルミニウム箔を通過する蛍光 X 線による効果である。

低い原子番号の物質では電離ポテンシャルが低いので、発生する二次電子はエネルギーが高くなり、アルミニウム箔をほとんど通過するようになる。それにもかかわらず写真濃度が低いのは、これらの物質中で発生する

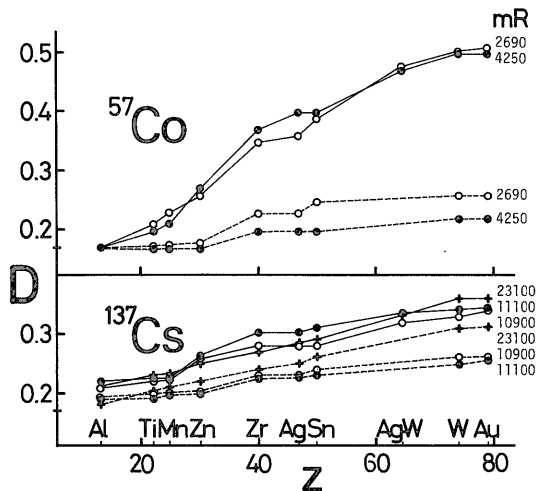


第4表 アルミ遮蔽による写真濃度の減少

Table 4 Decrease of photographic densities by aluminum shield

RI	<sup>57</sup> Co				<sup>137</sup> Cs					
	189		178		173		179		180	
No.	2690		4250		23100		10900		11100	
Exposure (mR)	2690		4250		23100		10900		11100	
Symbol	○		●		+		○		●	
Al foil	0	1	0	2	0	1	0	3	0	4
Au	0.64	0.42	0.77	0.53	0.67	0.62	0.54	0.48	0.46	0.42
W	0.63	0.42	0.77	0.53	0.67	0.60	0.53	0.46	0.46	0.41
W-Ag	0.60	—	0.74	—	0.64	—	0.52	—	0.45	—
Sn	0.52	0.41	0.67	0.51	0.60	0.57	0.48	0.44	0.43	0.39
Ag	0.49	0.39	0.67	0.50	0.58	0.56	0.48	0.43	0.42	0.39
Zr	0.48	0.39	0.64	0.51	0.59	0.55	0.47	0.43	0.41	0.39
Zn	0.39	0.34	0.54	0.48	0.57	0.53	0.45	0.40	0.38	0.36
Mn	0.36	0.33	0.48	0.48	0.53	0.52	0.43	0.40	0.34	0.36
Ti	0.34	0.33	0.47	0.48	0.53	0.51	0.43	0.40	0.35	0.35
Al	0.30	0.33	0.44	0.48	0.51	0.49	0.41	0.39	0.34	0.35
B.G.	0.27	0.31	0.38	0.48	0.48	0.48	0.37	0.37	0.29	0.33
PbS	0.62	—	0.67	0.47	0.56	0.58	0.47	0.43	0.43	0.42
ZnS	0.38	—	0.47	—	0.46	—	0.37	—	—	—
FeS <sub>2</sub>	0.33	—	0.39	0.41	0.44	0.49	0.36	0.36	0.30	0.36

<sup>57</sup>Co, <sup>137</sup>Cs 線源による標準金属試料及び鉛・亜鉛・錳石の写真濃度とアルミ遮蔽部分の写真濃度を示す。



第8図 アルミ遮蔽による写真濃度の減少

<sup>57</sup>Co のグラフはアルミニウムの値を 0.17 として標準化した。実線は遮蔽なし、点線はアルミ遮蔽したもので上から順に箔 1 枚、3 枚、4 枚を用いた写真濃度である。箔 1 枚の厚さは  $1.48 \times 10^{-3}$  cm、写真濃度は第 3 表に示す。マークは第 4 表に対応する。

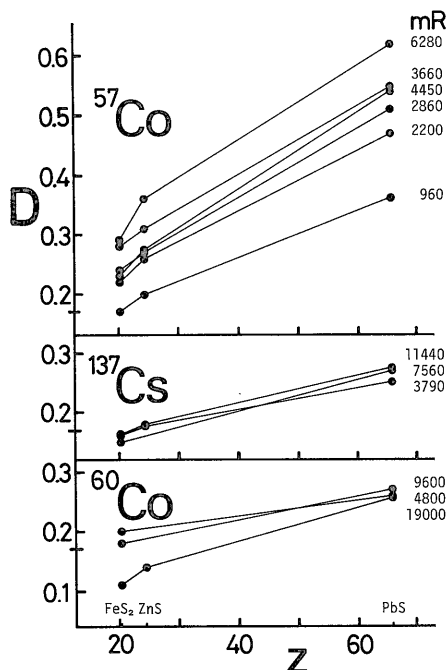
Fig. 8 Decrease of photographic densities by aluminum shield. Data are shown on Table 4.

二次電子の絶対量が少ないためである。

<sup>137</sup>Cs による図版Ⅲの 4-5 ではアルミニウム箔の効果が少ない。これは <sup>137</sup>Cs による場合、照射する  $\gamma$  線エネルギーが高いため、試料面で発生する二次電子のエネルギーも高いので、この厚さのアルミニウム箔では遮蔽できないためである。

#### 5. 鋳石への応用と今後の課題

図版 I, II に前述した鋳石試料のラジオグラフ、第 3 表に写真濃度の測定値、第 9 図に標準化した鋳石の写真濃度グラフを示す。図版 I で見る通り方鉛鉱と閃亜鉛鉱、黄鉄鉱の識別は明瞭である。閃亜鉛鉱と黄鉄鉱は共に実効原子番号が低く(第 1 表)、その差は 4.4 とわずかであるが、<sup>57</sup>Co を線源としたラジオグラフでは、濃度差はほぼ識別できた。すなわち、デンシトメータによる写真濃度の測定では、21 例のうち 67% が濃度差 0.03-0.05 の範囲に入る。しかし肉眼では識別できるが、測定値では差のないものが 10%、肉眼的にも識別できないものが 10% あった。



第9図 鉛・亜鉛鉱石の写真濃度グラフ

バックグラウンドを0.17として標準化。ラジオグラフは図版 I, II, 測定値は第3表に示す。実効原子番号は方鉛鉱: 66.1, 閃亜鉛鉱: 24.5, 黄鉄鉱: 20.1。

Fig. 9 Relationship between photographic densities (D) and effective atomic numbers (Z) for a lead-zinc ore.

線源に<sup>137</sup>Cs, <sup>60</sup>Coを使用したラジオグラフ(図版II)では、コントラスト・解像力共に劣り、閃亜鉛鉱と黄鉄鉱の識別が困難である。第9図は標準金属試料による写真濃度グラフと同様に、コントラストは<sup>57</sup>Coで最も良く、照射γ線エネルギーの上昇にしたがって悪くなることを示している。また、コントラストの悪いものに閃亜鉛鉱の測定値が欠けているものが多いが、これは黄鉄鉱との識別が困難で、分布面積の少ない閃亜鉛鉱の写真濃度が測定できなかったためである。

この方法の重要な特長は、原子番号、実効原子番号によって物質のコントラストが決まることで、このような写真は他の方法では得られない。一般には方鉛鉱・辰砂・タングステン鉱物など実効原子番号の高い鉱物ほど写真濃度が大きくて特に有効である。これら鉱物と共生する実効原子番号の低い鉱物との識別は容易であるが、実効原子番号が近似の値をもつ鉱物の識別には、線量の見積り、線源の選定などに更に検討を要する。このほか、本方法では、灰重石のように肉眼では脈石と判別しにくい鉱物の識別及び分布状態、品位の検討が実物大

写真により容易にできる(小尾・佐藤, 1977)。また、肉眼ではまったく類似する二つの鉱物の識別(例えば辰砂と赤銅鉱)などの判別にも適用できる。

光学的な写真では、鉱物の結晶面や劈開面による反射によって同じ鉱物でも写真濃度が異なって撮影されるし、顕微鏡写真でも鉱物の光学的方位によって色や明暗などが異なるのが普通である。しかし、この方法では鉱物の光学的方位などには無関係に鉱物種ごとに定まった写真濃度が得られ、近年特に発達してきている画像解析技術などを適用することも容易である。

したがって、この方法は鉱石中の特定の鉱物の分布状態や配列、組織、場合によっては粒度などを実物と対比しながら観察できるほか、写真の引伸しによって鉱物の細部構造の検討も可能である。また、鉱石のモード分析や鉱物品位の非破壊測定などにも応用することができる(小尾・岸本, 1973; 小尾・佐藤, 1976)。

前述のように低実効原子番号の黄鉄鉱、閃亜鉛鉱などの共生する鉱石でも、写真濃度の差による識別が一応可能であるが、磁鉄鉱(18.9)、黄銅鉱(22.7)、黄鉄鉱、閃亜鉛鉱など一般的な鉱物の実効原子番号が18-25に集中することから、これらの鉱物にも適用するためには<sup>57</sup>Coよりさらにγ線エネルギーの低い線源を使用する必要がある。たとえば<sup>109</sup>Cd(88 keV)、<sup>241</sup>Am(59.5 keV)などが考えられるが、感光材が線源から出る低エネルギーのX線によって感光してしまうなどの制約も予想されるので、その適用性については今後十分な検討が必要である。

経済性の問題から考えると、半減期の長い線源を得ることが重要となる。このため、<sup>57</sup>Coに比べ半減期のはるかに長い<sup>137</sup>Cs(30年)の実用化が当面の課題となり、現在、適当な感光材を選ぶことにより、<sup>137</sup>Csでも良いラジオグラフを得る方法について検討中である。

## 6. まとめ

(1) 放射ラジオグラフィはRI線源を用いて、γ線照射により鉱石研磨面の元素分布のラジオグラフを得る方法である。この手法について、適正照射線量の決定、実効原子番号の算出法、写真濃度の標準化について実験を行い、以下に述べる結果を得た。

(2) 標準金属試料としてPbからAlに至る11種の金属を使用した。このうちもろいもの、剝離や錆を起しやすなどの欠点をもつ金属がわかった。鉱石試料には細倉鉱山産鉛・亜鉛鉱石を用いた。

(3) 感光材には取り扱いの簡便さと現像結果がすぐわかり、次の計画がたてやすいなどの理由で、ポラロイド

タイプ55フィルムを使用した。

(4) 感光材の膜面と試料研磨面を密着させるので、化学作用・圧電現象・膜面の軟化・試料面の錆など種々のトラブルを生ずる。これらは、遮光袋中にシリカゲルを同封して湿度を下げることで、除くことができる。

(5) ラジオグラフを得られなかった $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{60}\text{Co}$ でも設定条件を変えて、今回ラジオグラフを得ることに成功した。また、標準金属試料を用いたラジオグラフの写真濃度グラフを作成することによって各線源の比較などの定量的取扱いが可能になった。

(6)  $^{57}\text{Co}$  によるラジオグラフが $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{60}\text{Co}$  に比べ写真濃度、解像力共に優れている。この線源では3,000-3,500 mR 程度の線量で良いラジオグラフが得られる。 $^{137}\text{Cs}$  については半減期 (30年) の点で優れているので、さらに良いラジオグラフが得られるように検討の必要がある。 $^{60}\text{Co}$  (5.2年) を用いた場合は、ラジオグラフを得ることはできるが、コントラストが低く筆者らの目的には向かない。

(7) 試料にアルミニウム箔を密着させた実験を行い、像の形成には二次電子のほかに蛍光X線も関与していることが判明した。

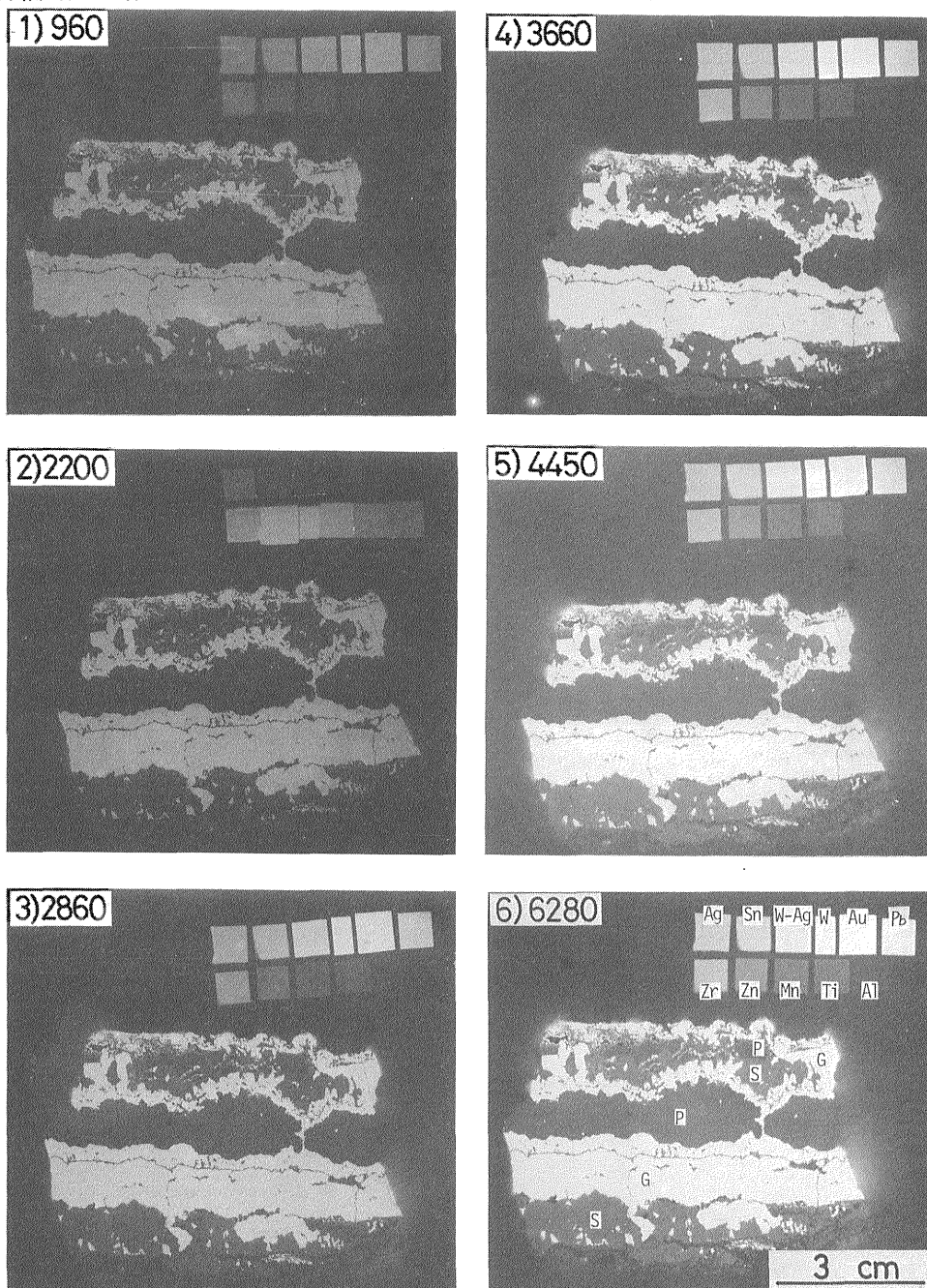
(8) 鉱石試料では $^{57}\text{Co}$  で最も良いラジオグラフが得られた。ここでは方鉛鉱と閃亜鉛鉱・黄鉄鉱の識別は明瞭だが、閃亜鉛鉱と黄鉄鉱の識別は十分とは言えない。しかし、この線源では方鉛鉱、辰砂、灰重石などの実効原子番号の高い鉱物を対象とする鉱石に適用できる。

謝辞：本研究にあたっては地質調査所鉱床部岸本文男氏から研究のきっかけを与えて頂き、同部坂巻幸雄氏には原稿を読んで頂き有益な助言を頂いた。元環境地質部長谷紘和・故西村嘉四郎の両氏にはカラーデンシトメータの使用について、技術部大野正一・佐藤芳治両氏には研磨片の作製について、同部小川銀三・青木市太郎・竹内三郎の三氏には照射装置の作製について、それぞれご協力頂いた。また、本実験について多くの方々から種々のご教示を頂いた。以上の皆様に対し厚く御礼申し上げます。

## 文 献

- Гуманский, Г. А., Балашов, В. Н. and Земан, Я. Н. (1960) Применение эмиссионной радиографии для изучения парагенетических взаимоотношений минералов и вещественного состава руд элементов с 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.
- 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, B-41.
- ・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.
- ・横山峯子・岸本文男 (1971a) 反射ラジオグラフィについて. 地調月報, vol. 22, p. 401-414.
- ・———・——— (1971b) 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.
- ・———・——— (1971c) 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.

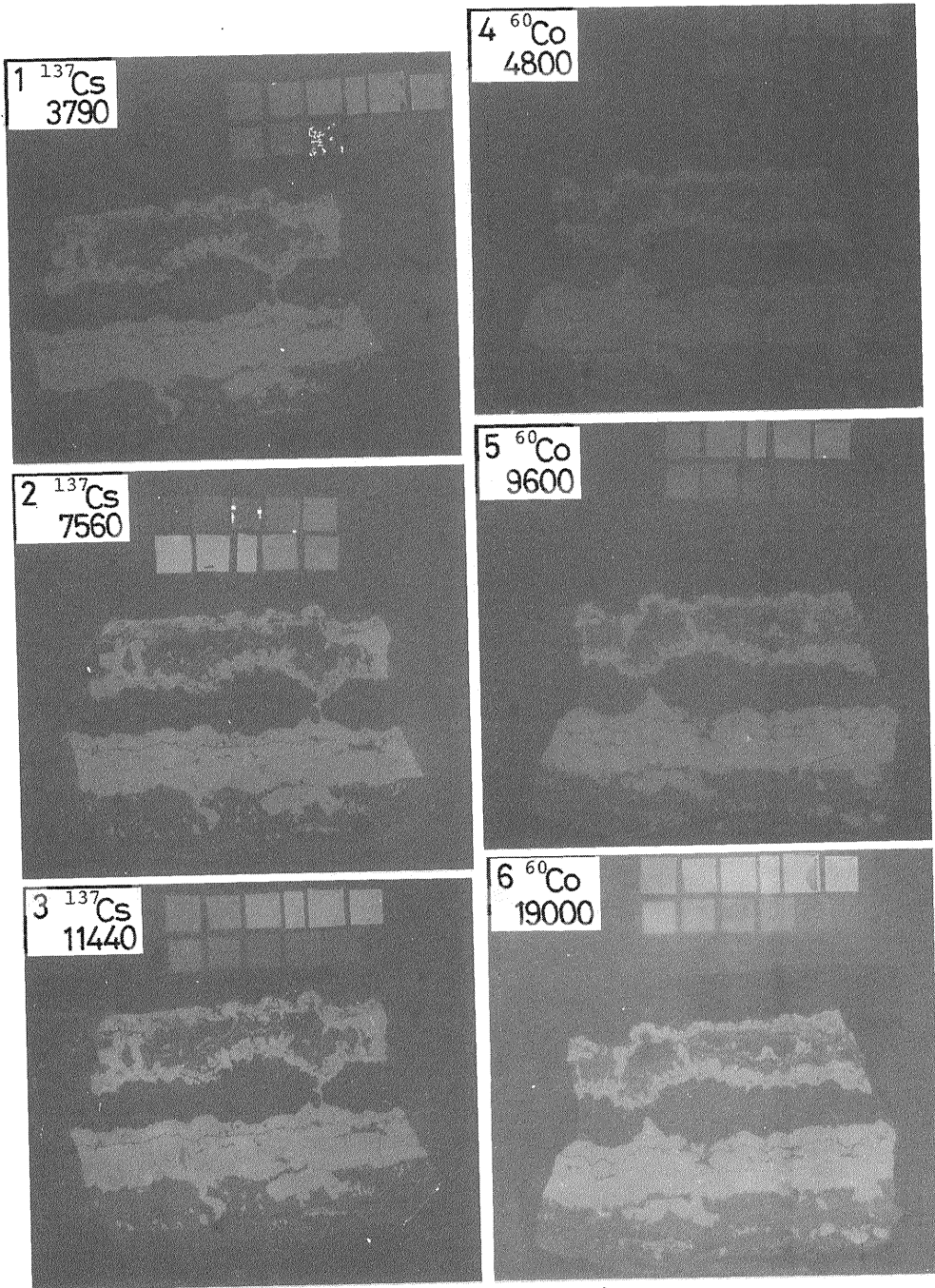
(受付：1981年8月14日；受理：1981年9月25日)



$^{57}\text{Co}$  によるラジオグラフ

左上は照射線量 (mR). 試料は宮城県細倉鉱山産鉛・亜鉛鉱石. 写真 6) に示す G, S, P は各々方鉛鉱, 閃亜鉛鉱, 黄鉄鉱を表わし, 標準金属試料内の文字は元素記号を示す. ただし, W-Ag はタングステン・銀合金 (撮影 No. は順に 132, 141, 134, 136, 144, 137).

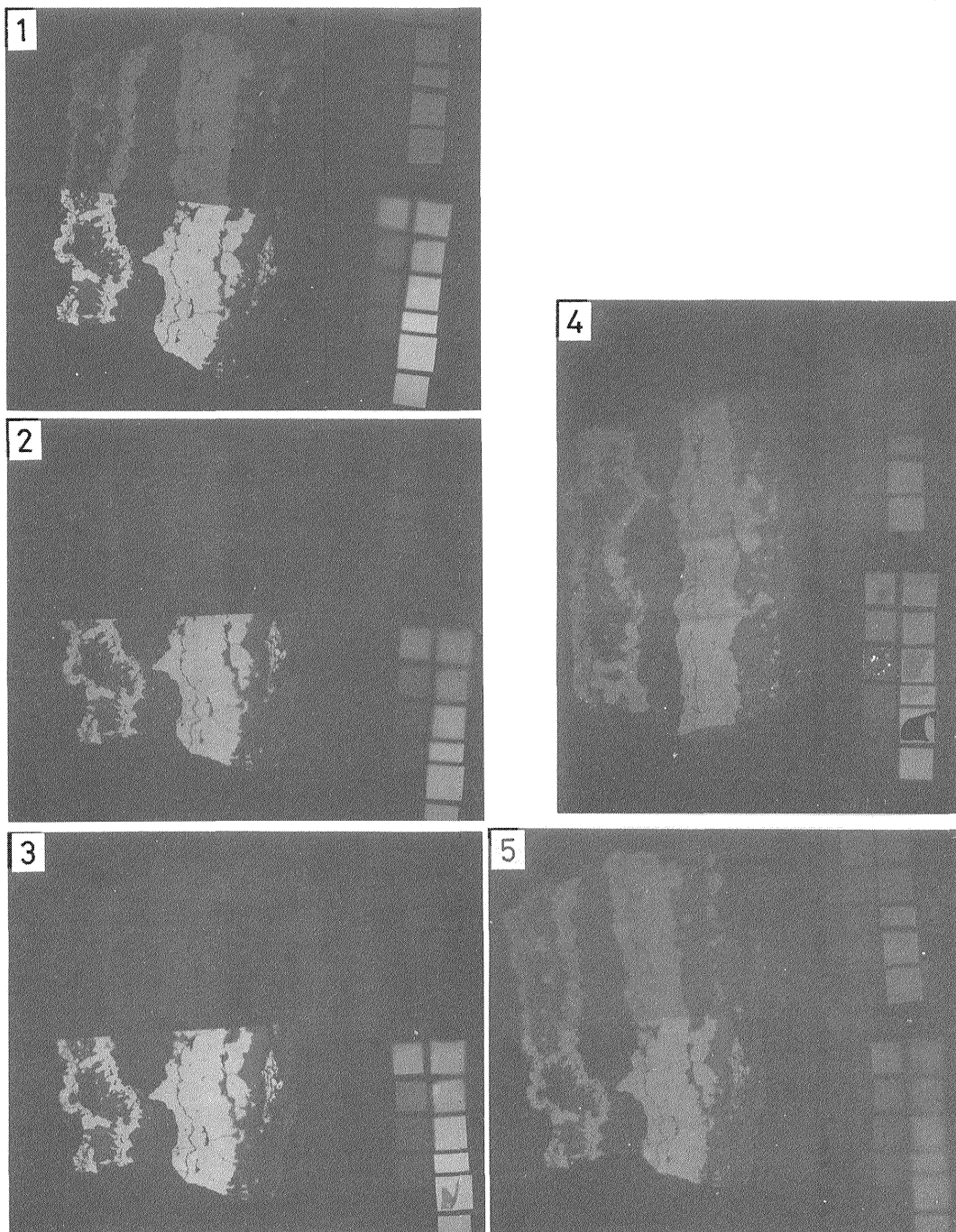
Plate 1 Radiographs of a lead-zinc ore irradiated by the  $^{57}\text{Co}$  gamma-ray source. Figures after photographic Nos. are exposure dose (mR). G: galena, S: sphalerite, P: pyrite, W-Ag: tungsten-silver alloy, others are element metals. Scale bar is 3 cm long.



$^{137}\text{Cs}$  と  $^{60}\text{Co}$  によるラジオグラフ

各写真の左上に使用線源と照射線量 (mR) を示す。(撮影 No.; 154, 162, 168, 151, 153, 161)

Plate 2 Radiographs of a lead-zinc ore irradiated by the  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{60}\text{Co}$  gamma-ray sources.



アルミ遮蔽したラジオグラフ

各写真の下半部は遮蔽していない。標準金属試料は2個使用し、上部の1個をアルミ遮蔽した。アルミ箔1枚の厚さは $1.48 \times 10^{-3}$  cm。アルミ箔枚数, 1; 1枚, 2; 2枚, 3; 3枚, 4; 上部4枚, 中央部2枚, 5; 4枚。写真1-3;  $^{57}\text{Co}$ , 4・5;  $^{137}\text{Cs}$ 。照射線量 (mR) と撮影 No. は, 1; 3610 (No. 175), 2; 2160 (No. 174), 3; 2150 (No. 176), 4; 11100 (No. 180), 5; 10900 (No. 179)。

Plate 3 Radiographs showing effects of shielding by aluminum foil. Upper part of the hand-specimen and upper standard metal samples are wrapped with aluminum foil. Nos. 1, 2 and 3 are irradiated by  $^{57}\text{Co}$ , and Nos. 4 and 5 by  $^{137}\text{Cs}$ .