

ラジオオートグラフィーの冶金学的応用法について

加 藤 正 夫

1. 緒 言

ラジオオートグラフィーとは試料中に存在する放射性同位元素の分布、すなわち位置と量とを、写真乳剤膜に写し取る技術で、ラジオオートグラフィー (radioautography) またはオートラジオグラフィー (autoradiography) とも呼ばれる。近年あらゆる種類の人工放射性同位元素が作られるようになり、またその技術が顕微鏡に近い精度をもっているので、生物組織の研究や物性の研究に重要な役割を果たしつつある。ここでは冶金学への応用例とその原理ならびに方法について述べる。

比較的大きな試料中の放射性元素の肉眼的分布を測定するのを survey radioautography または macroradioautography といい、顕微鏡的分布を測定するのを detail radioautography または microradioautography という。これらは目的に応じて使い分けられるが、テクニクも異なってくる。

今日わが国においては、生物学への利用はかなり行われているが、工学的利用は極めて少ない。特に冶金学的利用価値は非常に大きいと考えられるので、あえて本稿を草した次第である。β線ラジオオートグラフィーに焦点を絞って解説するが、一般的概念の理解に便であるように最初にこの技術の発達の歴史から述べることにする。

2. 発達の歴史

1896年に Henry Becquerel は、ウラニウム塩が写真乳剤を現像可能にする放射線を出していることをはじめて発見し、そしてこれが原子核物理学の出発点となった。その後多くの物理学者によって、一連の天然放射性元素が発見され、1911年に Wilson が霧函を発見するまでは写真乳剤が放射能測定の最も有力な方法として用いられた。

1907年に Mügge⁽¹⁾ は、放射線源と写真乾板の黒化点との対応関係を顕微鏡検査によって指摘した。ラジオオートグラフィーの技術はこのときから始まったものといえよう。

このように今世紀の初めにおいては、鉱石の磨いた断面に乾板を当て、天然放射性元素の分布と量を測定するのにこの技術が盛んに利用されたのである。この場合の放射線は主に α線であって、写真乳剤中の飛程 (range) の測定から α粒子のエネルギーを知り、さらに原子核の構造の研究へと進んでいった。同時に β線、γ線、ある

いは陽子、重水素核または中性子などの粒子についても、写真乳剤に対するそれらの感光作用が研究せられ、さらに種々の粒子を含む宇宙線の研究にも利用せられるようになったのである。

しかしこのような粒子線の飛跡 (track) を写真乳剤に記録する技術は、特に track radioautography と称して、macro- または microradioautography とは、その目的と技術内容を異にする。

α粒子によるラジオオートグラフィーを冶金学に初めて利用したのは G. Tamman である。1933年にポロニウムの銅、錫、アンチモン、その他数種の金属に対する溶解度の研究を発表し、さらに ThB およびそのドーターの α放射を用いて、初晶の析出、偏析、結晶粒の成長、再結晶、拡散など一連の金属学の研究に利用している。W. Seitz にも同じ頃同様な研究を行っている。しかし天然放射性元素は高い原子番号の数種類のものに限られ、その利用価値は小さかった。

1919年 Rutherford が元素の人工転換にはじめて成功してから、1934年にはサイクロトロンなどによる人工放射性同位元素の製造が可能となり、さらに 1942年にはじめて原子炉による多量製造が可能になった。今日ではおよそあらゆる種類の人工放射性同位元素が作られるようになり、その利用価値が絶大なものとなった。

天然放射性元素の壊変系列は主として α粒子の放射によって行われるものであるが、人工放射性同位元素 (以下 R. I. と略称する) は β粒子・γ線・X線などを放射して壊変する。そしてその大部分が β粒子放射型である。1938年に Groven, Govaerts, Guében⁽²⁾ らはじめて人工 R. I. を用いたラジオオートグラフィーの研究を発表している。P³² と Ir¹⁹² の β線を利用したものである。以来この技術は原子核乳剤 (nuclear type emulsion) の進歩と相俟って発達し、動植物体・金属・合金・結晶、無機および有機化合物その他の物質組織の研究に大いに利用せられるようになった。しかし世界的にみてもなおその歴史は浅く、今後の進歩発達に俟つところが大きい。特にわが国において然りである。

3. 冶金学的応用の方法

冶金技術においては、数種の金属ないしはその化合物を高温で溶解し、これを凝固させてその組織をしらべるということが多い。これらは相律にしたがって凝固するが、一般には完全な平衡状態から偏移している。また微

量の不純物を伴うことが多く、これらの挙動を確認することの困難な場合が多い。従来行われていた顕微鏡検査の方法では捕捉し得ないいくつかの現象がある。たとえば、同一の固溶体結晶内での濃度差、微量成分の存在位置、同種または異種元素の相互拡散、などである。

これらに対しては R. I. を用いたラジオオートグラフィーを活用することが極めて便利である。また黒化度から成分元素の濃度の直接定量も可能である⁽⁹⁾。

次に試料中の特定の元素に放射能を与えるには、一般に二つの方法で行われる。

(1) 試料を原子炉に入れて中性子照射を行い、成分元素の比放射能の差を利用してラジオオートグラフをとる。この方法では中性子束の強さと照射時間とを調節して目的とする元素の比放射能を高め、また試料中に生じた種々の R. I. の半減期の差を利用して、目的とする元素の放射能と他の元素のそれとの差が最大となるような減衰段階において適当時間の露出を行う。放射能をもたない状態であらかじめ試料を作製できる利点がある。

(2) R. I. を試料に入れる方法。この方法は R. I. を扱って試料を作製するという難点はあるが、目的以外の元素の放射線によるカブリがないので、写真の解像力やコントラストの点で有利である。

(1)の方法はアクチベーション法(activation method)と呼ばれ、原子炉を有する国では盛んに行われている。その詳論は紙面がないので本稿では割愛する。原子炉をもたないわが国ではこの方法は実行不可能である。

4. 応用例

例 1 F. Montariol⁽⁴⁾らは“高純度アルミニウムの溶融粒界における不純物の偏析”の研究を行っている。純度 99.998% Al の矩形板状試片を温度勾配のある炉に入れて一部粒界を溶かす。これを原子炉に入れて放射能化する。適当な減衰時間後の残留放射能は Na と Cu の R. I. によるものであることがわかった。そのラジオオートグラフは粒界にこれらの不純物が偏析していることを示した。次に R. I. 添加法によって Zn⁶⁵ を用いて 0.002% および 0.0005% Zn* を含む試料を作り、前記と同じ熱処理を施すとやはり Zn が結晶粒界に集まることがラジオオートグラフに示される。さらにラジオオートグラフィーによる Al 中の Zn の拡散の研究を行っている。また中性子束の強さを変化させてアクチベーション法の基礎的研究も行っている。

例 2 A. B. Michael⁽⁵⁾らは“金属および鉱物のオートラジオグラフィー用試料の調製法の研究”を行った。高純度 Al に Cu を 1.5% および 3.0% 添加した合金試料について、その初晶固溶体中の Cu の濃度分布をラジオオートグラフィーで調べ、また現像銀粒子の数から θ 相の分布をきめている。このほかに曹長石中の Na の分布を同様の方法でラジオオートグラフに得ている。

例 3 A. B. Michael⁽⁵⁾らはさらに上記の研究を進めて、2%, 3%, 4%, 5% Cu を含む Al 合金の凝固時の現象を、熱分析や顕微鏡検査を併用してラジオオートグラフィーによって研究している。Cu 含有量と凝固速度とを変数にした場合の、残留共晶の量と共晶中の θ 相の形状と分布、初晶の粒度、樹枝状晶中の Cu の分布と樹枝間間隔の変化をラジオオートグラフィーで調べることで、などで価値のある成果を得ている。またラジオオートグラフィーの基礎的研究として、Eastman NTB-2型乳剤膜 10 μ に対する Cu⁶⁴ (放射線, K, γ 1.35 Mev, β^- 0.571 Mev, β^+ 0.657 Mev, 半減期 12.8 hrs.) の感度測定の補正曲線と計算式を与えている。

例 4 また A. B. Michael⁽⁵⁾らは、“改良処理を行った Al-Si 合金中の Na の分布の研究”を R. I. Na²⁴ を用いて行い、写真 1 に示すような結果を得た。すなわち Na は初晶と共晶に対してほぼ等量に分布していることを明らかにし、Na と Si の反応による共晶の微細化機構を否定した。

例 5 J. L. Putman⁽⁷⁾は、“アルミニウム鋳塊の製造時における凝固境界の決定の研究”にラジオオートグラフを効果的に利用した。このような Full Scale の実験においては R. I. 添加法を用いると、R. I. の量が多くなって種々の危険を伴うことは明らかである。そこでアクチベーション法を用いている。8% Au を含む母合金の 0.5g を 200g の溶融 Al に添加し、これを連続鋳造機の樋の湯の流れに注加した。鋳塊中の Au の平均濃度は 0.0007% であった。ベースの Al の純度は 99.6% である。Au の存在する部分を鋳塊から切り出して、原子炉に入れて放射能化処理を 6 日間行い、取り出して 3 日後に 10 分間の露出を行い、これは Al, Mg, Si などは速かに壊変を終わってしまうが、Fe, Ti は半減期が数十日である。Au はこの場合 Au¹⁹⁸ (β^- 0.96 Mev, γ 0.4 Mev) となり、半減期は 2.7 日であって上記の不純物の 2 群の間であるから、3 日の壊変期間において次に短時間の露出を行い、他の不純物としての R. I. によるカブリを少なくすることができた。写真 2 はこのようにして得られ

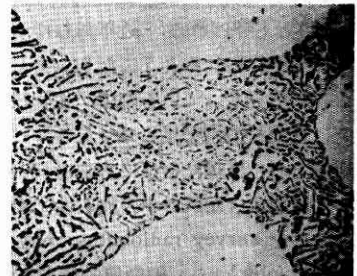


写真 1-a Na²⁴ で改良処理をした 7% Si を含むアルミニウム合金の顕微鏡組織

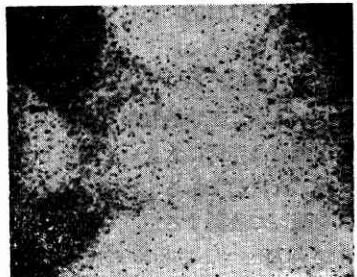


写真 1-b 写真 1-a に相当するラジオオートグラフの顕微鏡写真

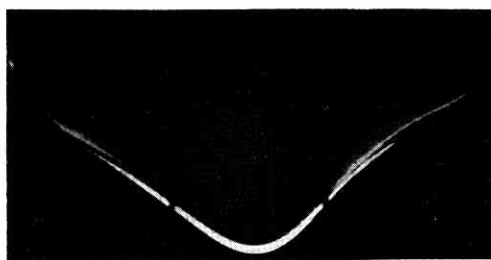


写真 2 連続鋳造アルミニウム鎔塊の凝固境界を示すラジオオートグラフ

たラジオオートグラフである。layer by layer に凝固していく過程が見事に写し出されている。

例 6 A. Kohn⁽⁸⁾は“鋼中のPとAsの樹枝状偏析の溶体化の研究”を、アクチベーション法によって行い、例5に説明したのと同様な手法で、他の不純物のコンタミネーションによるカブリを最小にするようにしてラジオオートグラフをとった。この一連の研究の結果、Fe に対してはAsはPよりも拡散が遅いこと、Pの偏析を完全に溶体化するためには、1200°Cで70時間、1275°Cでは32時間の焼鈍を必要とすることなどが明らかにされた。

例 7 G. L. Pearson⁽⁹⁾らは、“トランジスター用ゲルマニウム合金の研究”において、Ge地金に添加した微量($10^{-2} \sim 10^{-6}\%$)のSbの偏析をしらべるのに、 Sb^{124} (放射線、 β -0.68, 2.37, 0.48, 1.0, 1.6 Mev, γ 0.603, 1.70, 0.71, 0.65, 2.06 Mev, 半減期 60 日)を用いてラジオオートグラフィと G-M カウンターによる計数法とを併用した。18 mm ϕ ×30 mm の鑄塊中に Sb はその底部に多く偏析することを明らかにし、これは頂部から凝固させていったことと Ge が先に凝固することとがその原因であると考えられた。

例 8 K. Löhberg⁽¹⁰⁾は、アルミニウムを含む亜鉛合金にみられる著しい腐食が不純物としての Pb によることを、ThB (Pb^{212} に相当する、 β -0.36 Mev, γ 0.43, 0.71, 0.238 Mev, 半減期 10.6 hrs)を用いたラジオオートグラフィで証明した。まず ThB を添加した合金のラジオオートグラフをとっておき、次にこの試料を水蒸気試験にかけて腐食させると、表面の腐食模様が Pb の濃度の高い部分とピッタリ一致することを示した。

例 9 P. L. Pinotti⁽¹¹⁾らは、ピストンリングを放射能化しておき、これをピストンに装着して運転し、ピストンリングの磨耗を潤滑油の放射能を測定すると同時に、シリンダー壁への R. I. の附着状況をラジオオートグラフィによって測定した。これらの放射能測定から得た値と重量測定から出した磨耗減量の値とはよく一致した。なお J. N. Gregory⁽¹²⁾は Pb と Pb^* とを用い相互の摩擦現象をしらべている。

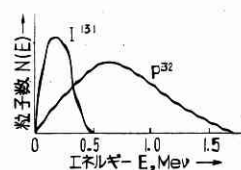
5. ラジオオートグラフィの原理

5.1 放射線に対する写真乳剤の感光機構 放射線

のうち、X線と γ 線は電磁波であり、 α 線と β 線は荷電粒子である、前者は普通の光と同じように光子の流れと考えればよいのであって、光子が物質を通過するとき起る過程のうちの光電効果が感光作用にあずかるのである。普通の光と異なる点は、光電効果でハロゲン銀粒子中に生じた電子のエネルギーが大きいために、この電子が乳剤膜中を走り遂にそのエネルギーを消滅するまで、近傍の数個のハロゲン銀粒子を電離してこれに潜像(latent image)を与える。すなわちハロゲン銀粒子内には一次電子によって多数の二次電子が発生し、これらが粒内に存在する感光核に捕えられると近傍の銀イオンを引き寄せてこれを中和し、多数の潜像銀原子ができて現像可能になる。 γ 線は物質の透過能が大きく、換言すれば、エネルギーの損失が小さいので、量子効率が小さい。すなわち感光作用が小さいのである。

後者の荷電粒子の感光機構は、これらの粒子が前述の一次電子に相当すると考えればよいのである。 α 粒子は質量数4のヘリウム核であって、他の素粒子に比して質量数が大きくかつ一般に数 Mev という大きなエネルギーを有するために、物質を通過する際のエネルギー損失が大きくまた電離作用が著しい。したがってハロゲン銀に対する潜像形成作用が大きい。 β 粒子は電子であって質量は極めて小さいが、エネルギーは γ 線程度に比較的大きくまたエネルギーを失いやすいので α 線に次いで潜像形成能がある。

5.2 β 線の性質 R. I. が壊変する際に放出される β 線は原子核からであって、軌道電子ではない。このとき核内の中性子1個が陽子に変化して、原子番号の一つ高い安定元素になる。すなわち R. I. 原子一個の壊変に際して一個の β 粒子が放出される。そのエネルギーは第1図に示すように、0からある最高値まで連続な分布をもっており、この最高値は半減期とともに各 R. I. に個々の値である。 β 線のエネルギーというときにはこの最高値をもって呼ばれるのが普通である。その平均エネルギーは最高値のほぼ $\frac{1}{3}$ となっている。



第1図 β 線スペクトル

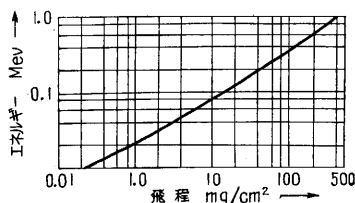
β 粒子が物質中を進行するとき、原子と衝突して起す過程は、第一に原子の軌道電子と衝突してこれをはじき飛ばし原子を電離する。この際 β 粒子は軌道電子に与えただけのエネルギーを失い、かつ進行方向を多少変える。あるいは電子を電離する代りに励起するだけの場合もある。核の電荷または核力によって進行方向をまげられるとか減速されるということも起る、このようにして次第にエネルギーが吸収されて、最大エネルギーに相当する厚さ以上には進行できない。これを最大射程(maxi-

mum range)と称し、エネルギーとの関係は次の実験式で与えられている。

$$R = 0.542E - 0.133 \quad E > 0.8 \text{ Mev}$$

$$R = 0.407E^{1.38} \quad 0.8 \text{ Mev} > E > 0.15 \text{ Mev}$$

ここに、 R は飛程を単位面積当りの吸収体の質量(比重×厚さ、 g/cm^2)で表わした値、 E はエネルギーをMevで表わした値である。この式をFeatherの式といい、種々の物質について近似的に適用できる。 E が一定であれば透過距離は比重に逆比例することも示している。また



第2図 低エネルギーβ線の飛程

E が0.3Mev以下の場合にはこの式の誤差が大きくなるから、第2図に示した実測曲線を利用するのがよい。

β線には正の電荷をもった陽電子(positron)も含まれ、 β^+ および β^- と記して区別する。しかしエネルギーと飛程の関係および感光機構に関しては両者を全く同様に取扱ってよい。

第1表 ラジオオートグラフに適した放射性同位元素

| 放射性同位元素 | 半減期(日) | 最大エネルギー(MEV) | 平均エネルギー(MEV) | 乳剤膜中の最大飛程(μ) | 乳剤膜中の平均飛程(μ) |
|------------------|---------------------|--------------|--------------|--------------|--------------|
| I ¹³¹ | 8.0 | 0.595 | 0.205 | 700 | 160 |
| P ³² | 14.5 | 1.712 | 0.695 | 2700 | 1000 |
| Sr ⁹⁰ | 55 | 1.50 | 0.57 | 2300 | 600 |
| Fe ⁵⁹ | 47 | 0.46 | 0.120 | 500 | 60 |
| S ³⁵ | 88 | 0.169 | 0.055 | 120 | 15 |
| Ca ⁴⁵ | 180 | 0.260 | 0.10 | 200 | 50 |
| C ¹⁴ | 1.7×10 ⁶ | 0.154 | 0.65 | 100 | 15 |

第1表に一般に追跡子として用いられるβ放射型R.I.の性質を表示しておく。

5.3 β線ラジオオートグラフィ用感光材料 まずマイクロ・ラジオオートグラフィに用いられる写真乳剤は、原子核乳剤と称して、その特徴は、大きさのよく揃った微粒子(0.2~0.3 μ)、ハロゲン銀の濃度が高く(70~85%)比重が大きい(3.5~4)、背影カブリが少なく、粒子線に対する感度が高いということである。このゆえに、β線に対する停止力が大きく乳剤中の飛程が小さくなる。したがって黒化範囲を小さくし解像力を高める。またβ線のエネルギー損失を大きくするから乳剤の粒子感度を高める。

次にマクロ・ラジオオートグラフィ用には解像力の高い必要がないから感光感度の高い乳剤を使用すればよい。この目的にはハロゲン銀粒子の比較的大きな(約1 μ)コントラストのよいNo screen X-ray film, またはプロセスフィルムが推奨される。

第2表にラジオオートグラフィ用感光材料を掲げておく。

第2表 市販ラジオオートグラフ用感光材料 (Eastman No-screen Film)

| 名 称 | 用途および特徴 |
|-------------------------------------|--------------------------|
| Eastman NTB Kodak Ltd. NT2a | 緩速β線飛跡オートラジオグラフィ用 同上 |
| Eastman NTB stripping film | β線用, ストリップ法 |
| Eastman type M stripping film | β線用, ストリップ法 |
| Eastman contrast lantern slide | β線用, NTBより高感度 |
| Eastman lantern slides | β線用, NTBより高感度, α線用にも用いる |
| Eastman no screen X-ray film | β線用, 最高感度, 低解像力 |
| Eastman NTA 25 ミクロン | β線飛跡用 |
| Iford halftone stripping emulsion | β線用, 解像力3~5ミクロン, ストリップ法 |
| Iford line film | β線用, 低感度, 解像力10~15ミクロン |
| Iford type B2 | β線用, lantern slide より高感度 |
| Iford type C2 50ミクロン | α線飛跡用, β線用 |
| Anso Reprolith ortho stripping film | β線用 |
| Fuji type ET-2E 30, 50ミクロン | α線飛跡用, NTAとNTBとの中間の感度 |
| Eastman type ET-2E 15ミクロン | β線用, 同上 |
| Fuji ET-2E stripping plate | β線用, ストリップ法, 同上 |
| Fuji Process film or plate | β線用, lantern slide 級の感度 |
| Fuji X-ray film | β線用, 高感度, 低解像力 |

5.4 写真乳剤のβ線感度 J. Cobb および A. K.

Solomon⁽¹⁴⁾は写真乳剤の感度を比較するには、背影カブリを除いて0.6の黒化濃度を得るのに必要な1 cm²当りの入射β粒子数のlog 10, をもってすることを提唱している。またコントラストの比較には、背影カブリを除いて0.6の黒化濃度における特性曲線の傾斜, によることを推奨している。

P. H. Herz⁽¹⁵⁾によれば, Eastman No-screen X-ray film について15日間の露出で黒化濃度0.6を得るのに必要なβ線量と露出開始時の放射能の強さとの関係を。

第3表 X線フィルムのβ線感度の例

| 放射性同位元素 | β線の最大エネルギー(MEV) | 露出開始時のActivity(μC/cm ²) | 1cm ² 当りの入射電子数 |
|------------------|-----------------|-------------------------------------|---------------------------|
| C ¹⁴ | 0.154 | 3.6×10 ⁻⁴ | 0.38×10 ⁷ |
| Ca ⁴⁵ | 0.26 | 4.6×10 ⁻⁴ | 2.0×10 ⁷ |
| I ¹³¹ | 0.69 | 9.8×10 ⁻⁴ | 2.65×10 ⁷ |
| P ³² | 1.71 | 2.1×10 ⁻³ | 7.2×10 ⁷ |

第3表のように与えている。これによれば, エネルギーの低いβ線ほど感度がよくなるのがわかる。またKodak Autoradiographic Plate について, 10日間の露出で黒化濃度0.5を得るのに要する上と同様の関係を。

第4表⁽¹⁶⁾のように与えている。ラジオオートグラフィ用

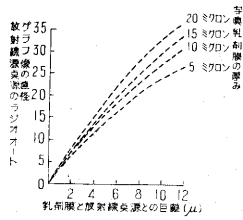
第4表 ラジオオートグラフィ乾板のβ線感度の例 (Kodak Autoradiographic Plate)

| 放射性同位元素 | β線の最大エネルギー(MEV) | 露出開始時のActivity(μC/cm ²) | 1cm ² 当りの入射電子数 |
|------------------|-----------------|-------------------------------------|---------------------------|
| I ¹³¹ | 0.99 | 2.6×10 ⁻² | 0.56×10 ⁹ |
| P ³² | 1.7 | 5.5×10 ⁻² | 1.4×10 ⁹ |

乾板はX線フィルムに比して感度が約1/100であることがわかる。プロセス乾板はこの中間である。

5.5 解像力 前に述べたように, α粒子に比してβ粒子はその電離能が小さいので, β粒子の投射でハロゲン銀粒子1個を現像可能にするには数個ないし数百個が必要である。またβ線源に接している乳剤膜はβ線点

源の直下が最も β 線に当る頻度が大きく黒化しやすいが、露出時間の経過とともにその範囲が拡大していく。しかしその範囲は乳剤膜中の最大飛程以上には拡がらない。この点源が乳剤膜を遠ざかるに従って極大濃度が低下し、かつ黒化像の直径も増大する。第 3 図に D. Doniach⁽¹⁷⁾ らの行った結果を示しておく。



第 3 図 放射線源のラジオオートグラフ像の直径と放射線源との距離および乳剤膜厚との関係

ミクロ・ラジオオートグラフィーにおいては、解像力をいかに高めるかということが最も重要なことである。

次にその因子となるものを挙げてみよう。

(1) 線源と乳剤膜とが接近しているほどよい。したがって試料と乳剤膜がよく密着し、かつ試料も乳剤膜もその厚さの小さいほどよい。(2) β 粒子のエネルギーが小さいほどよい、これは R.I. の種類できまる。(3) 露出時間は短いほどよい。しかし試料中の R.I. 濃度が小さいときには長くしなければ必要なコントラストが得られない。一方カブリが大きくなる。ゆえに試料の作製に当っては適当な R.I. の濃度を必要とする。(4) ハロゲン銀粒子が小さくかつ大きさが揃い、また濃度の高いほどよい。粒子が小さくなると感度とコントラストが低下するから、あまり小さ過ぎてもいけない。(5) 現像条件も関係するから使用した感光材料に指定された方法によらなければならない。

5・6 偽写真効果と背影カブリ 金属を取り扱う場合にはこの効果を特に注意しなければならない。金属によってはその新しく研磨された面に写真乳剤を密着すると潜像を作ることが、古くから観察されている。この作用の強いものは、Al, Zn, Mg, Cd およびそれらの合金で、Sn も弱いがこの作用がある。Pb, Cu, Fe, Hg などには認められない。これは水分の共存によって過酸化水素を生成することに起因すると考えられている。

写真乳剤に偽写真効果を与える化学作用は種々ある。硫化水素や金属の硫化物はハロゲン銀と反応して硫化銀を作り、この褐色の化合物は定着処理によって溶解しない(サルファー・プリントの原理)。また金属や合金の種類によっては酸で腐食すると残存する酸のために微量の H_2S を発生するから、酸で腐食したあとにはアムモニヤ水に浸してよく水洗する。

以上のような作用の懸念のある場合には、写真乳剤を直接密着することを避け、試料の表面を適当な物質で薄く被覆するのがよい。この目的にはセロイジンまたはコロジオンの膜をかけることが常法となっている。前者はエーテルとアルコールの 1:1 混合液 100cc にニトロセ

ルローズ 1g を溶かしたものを、後者は酢酸アミール 100cc にコロジウム綿 1.5g を溶かしたものを、それぞれ試料の表面に筆で塗って乾燥したものである。その厚みはいずれも 0.5 μ の程度であって、ラジオオートグラフの解像力に対しては無視できると考えられる。

次に機械圧力も乳剤膜に潜像を作る原因となる。その他温度と湿度の影響は一般の写真乳剤と同様にカブリを大きくする。

6. 実験技術

マクロ・ラジオオートグラフィーについては説明するまでもないと思われるので、ここにはミクロ・ラジオオートグラフィーについてのみ述べる。一般的な説明を避けて、著者の研究室で行っている合金に対する技術に関して具体的に説明する。

例を R. I. Zn⁶⁵ を添加してある α 黄銅にとってみよう。

(1) R. I. Zn⁶⁵ の性状 入荷された形は、 Zn^*Cl_2 の弱塩酸溶液としてである。これをまず金属亜鉛に還元するのであるが、操作を簡易化するためにあまり一般的でない塩化物($ZnCl_2 + NaCl + AlCl_3$)の水溶液電解によった。この溶液に上記の Zn^*Cl_2 を加えて、 Zn^* を薄い黄銅板陰極に析出させた。入荷時の比放射能の値をもとにして、この実験の行われた日までの経過時間による減衰の補正、附加されたキャリアーによる稀釈度、などから計算すると析出した $Zn^* 1 mg$ 当りの比放射能は 26 μC であった。Zn⁶⁵ の放射特性は、 β^+ (0.32 Mev), γ , K (X線) を放射し、半減期 250 日である。この β^+ 線はラジオオートグラフィーには適したエネルギーである。

(2) 合金の溶製と放射能の強さの測定 あらかじめ約 15g の α 黄銅をタンマン管内に溶かしておき、これに上記の $Zn^* 40 mg$ を加えて、十分拡散するのをまってそのままタンマン管内で凝固させて試料とした。次に定電位電解法によってこの試料のうち 0.68g から Cu だけを分析し、その含有量が 67.03% と決められた。分析残液は Zn^*Cl_2 だけであるからこの放射能を計数して、予め用意された cpm-mC 補正曲線から mC 数が決定された⁽¹⁹⁾。すなわち溶製された全合金重量 15.067g の有する放射能の強さは 0.990 mC ということがわかった。

(3) ラジオオートグラフィー用試片の調製 この放射性合金塊から薄片を切り取り、その片面をエメリー紙 05 番までよく研磨し、さらにペーパー研磨で仕上げた。この際試用器具の汚染、合金粉末の飛散には十分の注意と適当な措置を講じた。この研磨面はさらに腐食することなしに露出面として使えるのである。もちろん表面にごく薄いバイルビー層ができてはいるが、非常に薄いためにこの層から放射される β 粒子の写真効果は無視される。弱い腐食でこの層を取り除いてもよいが、腐食が過ぎるとこの場合 Zn^* の溶失があってむしろいけない。

次に試料を研磨面上にしてスライドガラスにはりつ

け、その上にセロイジン膜またはコロジオン膜をかければ試料の準備ができたことになる。H. Yagoda⁽²⁰⁾によれば黄銅では研磨面による偽写真効果はないと述べている。著者らの実験においてもこの点が検討されたが、やはりないように思われる。

(4) 試料の感度の意味 この実験に使用した原子核乳剤は Fuji ET-2E stripping plate 15 μ であるが、この乳剤膜の Zn⁶⁵ の β 線に対する感度を 10⁸ β 粒子/cm² と仮定して (実験の結果はこれより多少感度が低いようである)、1 週間の露出でこれだけの β 粒子の放射を行わせるに必要な Zn⁶⁵ の mC 数を計算してみると、以下の通りである。

$$N_0 - N = N_0(1 - e^{-\lambda t}) = 10^8$$

ここに、 $\lambda = 3.24 \times 10^{-8} \text{ sec}^{-1}$

$$t = 7 \text{ 日} = 6.04 \times 10^5 \text{ sec}$$

ゆえに露出開始時に存在しなければならない Zn⁶⁵ の個数は、

$$N_0 = 10^8 / (1 - e^{-\lambda t}) = 10^8 / 0.0192 = 5.2 \times 10^9$$

このときの放射能の強さは、

$$-dN/dt = N_0 \lambda$$

したがってその mC 数は

$$\begin{aligned} 5.2 \times 10^9 \times 3.24 \times 10^{-8} / 3.7 \times 10^7 \\ = 4.52 \times 10^{-6} \text{ mC} \end{aligned}$$

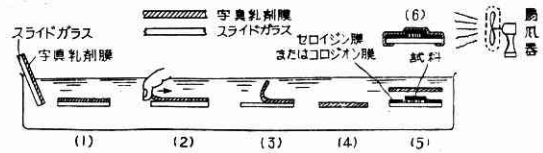
ただし、これだけの放射能が試料表面の 1cm² × Rcm (黄銅中の最大行程) の中に存在しなければならない。そこで次にこの R を計算してみる。前述の Feather の式を用い、この合金の実測比重 8.45 を入れて計算すると

$$\begin{aligned} R(\text{cm}) &= 0.407 E_{\text{max}}^{1.88} / d(\text{g/cm}^3) \\ &= 0.47 \times 0.32^{1.38} / 8.45 \\ &= 0.012 \text{ cm} \end{aligned}$$

すなわち深さ 120 μ から飛び出してくる β 線も黒化に関与することになる。しかし平均エネルギーを考慮すれば 40 μ 以内がその大部分であり、露出時間を加減すれば解像力はあまり落ちないで済む。

溶製した試料についての 1cm² × R 内の放射能の強さは、計算によって 6.9 × 10⁻³ mC となる。すなわちさきに仮定した感度に対しては十分に上回る放射能の強さといえる。

(5) ラジオオートグラフィの特技 試料に密着させる操作には種々の方法があるが、要はいかにして解像力を高めるかにある。生体組織の切片に対する技術は種々の方法が考案されているが、金属に対しては Contact method と Stripping method の二種類を考えておけばよい。前者はただ乾板またはフィルムを試料に当てがいカセットにセットして弱い圧力で一緒に密着させる方法である。後者はこのために作られた Stripping plate を用い、第 4 図に示すような手順で暗室赤色光の下で試料の表面にかぶせる。カブリを少なくするために速かに乾



- (1) ストリッピング乾板を水中に入れる
- (2) 矢印の方向に膜を引いて剥す
- (3) スライドガラスを下に入れて引き上げる
- (4) 指先で乳剤膜を縁から剥す
- (5) 乳剤膜を水中に広げる
- (6) 乾燥して露出に入る

第 4 図 Stripping Emulsion Method の説明図

燥し、黒紙でよく包装してデジケータ中に収め、5^oC 以下の温度に保って露出を行う。露出が終ればこれを現像定着を行う。この場合再び水に浸しゼラチン膜を取り外してスライドガラスに張り直し、乾燥してシワのなくなった状態で顕微鏡検査を行う。

写真 3 a に示した α 黄銅のラジオオートグラフは、この陰画を透過光で顕微鏡撮影機で拡大して撮ったもので、黒い部分が Zn* 濃度の高いことを示す。結晶粒内の Zn の分布および結晶粒による Zn の濃度差などが認められる。

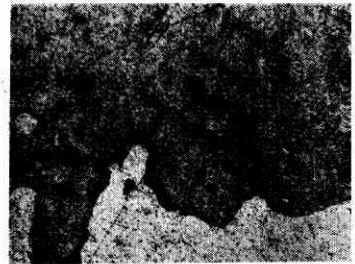


写真 3-a 徐冷した α 黄銅製造組織のラジオオートグラフ × 80

7. 結言

紙数が限られていたために十分な説明をなし得なかつたが、近年外国においては特に冶金学におけるこの技術の活用は注目に値する。著者らは上に述べたほか数種の合金についても研究を進め新しい現象を観察している⁽²¹⁾。この方面の研究者に多少とも本稿が役に立つならば望外の幸である。なおこの技術の参考書としては、

H. Yagoda⁽²⁰⁾ および古関靖夫⁽¹³⁾ の著書を読まれることをおすすめしておく。(1954. 10. 11)

文 献

- (1) O. Mügge, Centr. Mineral, 71, 114, 142 (1909)
- (2) C. Groven, J. Govaerts, G. Gueben, Nature, 141, 916 (1938).
- (3) A. B. Michael, W. Z. Leavitt, M. B. Bever, H. R. Spedden, J. of Applied Physics. Vol. 22, No. 12, Dec. (1951).
- (4) F. Montariol, A. G. Chaudron, Revue de Métallurgie, L. No. 11, (1953).
- (5) A. B. Michael, M. B. Bever, J. of Metals, Jan. (1954).
- (6) A. B. Michael, M. B. Bever, J. of Metals, May, (1953). (表紙 3 に続く)

(20ページから続く)

(7) J. L. Putman, J. of the Inst. of Metals, Vol. 82,
 (8) A. Kohn, Revue de Metallurgie, L, No. 2, (1953)
 (9) G. L. Pearson, J. D. Struthers, H.C.Theurer, Phys.
 Rev., 77, 809 (1950).
 (10) K. Löhberg, Metallforschung, 2, 230, (1947).
 (11) D. L. Pinotti, Petroleum Engg., 21 (1949).
 (12) J. N. Gregory, Nature, 117 (1946) 444.
 (13) 古関靖夫, オートラジオグラフィ (納谷書店)
 1954, 40p.
 (14) J. Cobb, A. K. Solomon, Rev. Sci. Instruments,
 19, (1948), 441.
 (15) R. H. Herz, Nucleonics, 9, 24-29 (1951).

(16) R. W. Berriman, R. H. Herz, Brit. J. Radiology,
 23, (1950) 472.
 (17) D. Doniach, S. R. Pelc, Brit. J. Radiology, 23,
 (1950) 40.
 (18) 加藤正夫, "銅合金 α 固溶体の異常性に関する研究
 会" で口頭発表, 1954, 4月
 (19) 加藤正夫・武谷清昭, 生産研究, 日本金属学会誌
 vol. 18, No. 6 (1954)
 (20) H. Yagoda, Radioactive Measurements with
 Nuclear Emulsions, (Chapman & Hall, Ltd.)
 (1949).
 (21) 加藤正夫・小林昌敏, 軽金属協会講演会, 口頭発
 表, 1954, 4月.

IIS NEWS

☆ 特許・実用新案 ☆

- ◇教授 高木 昇 助教授 安藤良夫 特研生 尾上守夫
 「多現象同時測定用抵抗線歪計」 実用新案 410963
 (昭 27—8538)
 ◇教授 高木 昇 特研生 尾上守夫
 「圧電気振動子の分割電極製造方法」 特許 202802
 (昭 28—4430)
 「ビエゾ電気振動子の分割電極製造法」 特許 202803
 (昭 28—4431)
 「圧電気振動子の支持線取付方法」 特許 202804

(昭 28—4718)

「双入力ビエゾ発振器」 特許 204533

(昭 28—5516)

- ◇教授 高木 昇 助教授 丹羽 登 雇員 佐下橋守
 太郎 「超音波厚み計の厚み直読方式」 特許 207602
 (昭 29—2383)

☆ 人 事 ☆

- ◇高木 昇教授 (第3部) は, 電波技術協会ゲルマニ
 ウム応用調査研究委員会委員に任命された。
 (1954. 6. 16)

IIS NEWS

筆 者 紹 介

- ◇勝田高司 助教授 工博 専攻 建築環境学 (建築衛
 生学)
 ◇道家忠義 大学院学生 専攻 表面物理学・真空技術
 ◇岡本舜三 教授 工博 専攻 構造力学・応用弾性学
 ◇三木五三郎 助教授 専攻 土質工学
 ◇加藤正夫 助教授 工博 専攻 合金及金属加工学

- ◇西川精一 技官 専攻 非鉄金属材料学
 ◇一色貞文 工博 専攻 放射線工学・物理冶金学
 ◇仙田富男 研究員 (東京都立工業奨励館技師) 専
 攻 放射線工学
 ◇丸山 温 雇員 専攻 放射線工学・物理冶金学
 ◇森 政弘 助手 専攻 自動制御
 ◇原 善四郎 技官 専攻 粉末冶金学

編 集 委 員

編集委員長 福田 武雄
 編集委員 一色貞文
 森 大吉郎
 竹中規雄

編集委員 亘 理 厚
 高橋 幸伯
 安達 芳夫
 森脇 義雄
 高橋 武雄

編集委員 今 岡 稔
 *西川 精一
 *三木五三郎
 浜口 隆一
 星野 昌一

編集幹事 下村潤二郎
 編集室 水野晴明

(*印は当番委員)

本誌の実費頒布をご希望
 の方は下記へご照会下さ
 い。

千葉市弥生町1
 財団法人
 生産技術研究奨励会
 振替口座東京 108697

第 6 卷 第 10 号 生 産 研 究
 1954 年 9 月 25 日 印刷

(本誌は生産技術研究所の研究組
 介誌として、毎月1回発行する)

1954年10月1日 発行

編 集 者 福 田 武 雄
 発 行 者 星 合 正 治

印 刷 者 三 美 印 刷 株 式 会 社
 東京都千代田区神田多町2の7
 発 行 所 東 京 大 学 生 産 技 術 研 究 所
 千 葉 市 弥 生 町 1
 電 話 千 葉 366-370