N841-78-47

ZnS(Ag)増感オートラジオグラフ法による α放射性粒子の粒子径測定

Size determination of a α emitter particle by autoradiography using ZnS(Ag) intensifier screen

1978年7月

動力炉・核燃料開発事業団
東　海　事　業　所

この資料は、社内における検討，周

Ⓦ

ＰＮ８４１－７８－４７
１９７８年　７月

ZnS（Ag）増感オートラジオグラフ法によるα放射性粒子の粒子径測定

Size determination of a α emitter particle by autoradiography using ZnS(Ag) intensifier screen

実施責任者　斉藤節子*
報告者　小泉勝三*
大高正*

期間　１９７７年４月１日～１９７７年９月３０日

目的　内部被曝線量を評価するためのパラメータ１つである放射性粉塵の粒度分布測定法として蛍光膜を使用するオートラジオグラフ法を取り上げ，この方法を日常の放射線管理により使い易いものとするための技術的検討を行なう。

要旨

α放射性粉塵の粒子径測定法として，ＺｎＳ（Ａｇ）増感オートラジオグラフ法を取り上げ，この方法を日常の放射線管理に，より使い良いものとするため，曝射用カメラの製作と蛍光膜の特性試験を行なった。

その結果，遮光構造を持つ曝射用カメラを使用することによって，全く暗室を必要としないで，オートラジオグラフを得ることが出来るようになった。

また，オートラジオグラフに用いる蛍光膜としては，蛍光体に添加する樹脂成分は１０ W/o 前後のものが，また，蛍光体の塗布厚さは１０㎎/㎠前後のものが実用性の点で良いことがわかった。

さらに，蛍光体の平均粒子径が２０μm，樹脂添加率が7.４ W/o，塗布厚さが１３.２㎎/㎠の蛍光膜について，α線の曝射量とオートラジオグラフのスポット径の関係を校正した結果，α崩壊数が１００（disintegrations）の時に得られるオートラジオグラフのスポット径は0.４２mmで，従来用いられて来た蛍光膜より高い感度を持つことがわかった。

* 安全対策課

PNC TN841-78-47

目　　次

緒　　　　　言

プルトニウムなどのα放射体を取扱う施設においては，内部被曝管理が安全管理上重要である。

放射性物質の体内摂取に伴う被曝線量は，その物理的・化学的性質，半減期，放射線の種類とエネルギー，および体内での代謝速度などできまる。特に吸入摂取の場合には，その粒度分布によって肺胞への沈着割合や体内における挙動の異なることが指摘されており[1]，作業環境中の放射性粒子の粒度分布の把握が，肺負荷量や内部被曝線量の評価上必要となる。

放射性粉塵の場合で，特にプルトニウムのように比放射能が高い核種については，最も普通に用いられる方法としてオートラジオグラフ法がある。オートラジオグラフ法による放射性粉塵の粒子径測定は歴史も古く，１９５１年にLEARY[2]が報告している。これは，原子核乾板を用いてα線のトラック像を得，このα線トラック数から，もとの粉塵を球形であると仮定し，計算によって粒子径を求める方法である。

その後，１９６３年にSHERWOOD[3]らが，蛍光膜とフィルムを用いる方法を，また，HEISE,[4]田中[5]らが，蛍光膜とポラロイドカメラを用いる方法を開発している。

村田[6]らは，文献調査の結果，オートラジオグラフ法の中で，この蛍光膜を用いる方法が迅速に結果の得られる点で良く，より精密な方法としては，原子核乾板を用いる方法が良いと報告している。

筆者らは，以上の方法の中で，蛍光膜とポラロイドフィルムを用いる方法，および，原子核乾板を用いる方法について実験を行い，この実験を通して，蛍光膜を用いる方法が日常の放射線管理に適用するには最も良いとの結論を得た。

そこで，この蛍光膜とポラロイドフィルムを使用する方法を，日常の放射線管理により使いやすくするために，暗室を必要としない曝射器を製作した。また，従来より感度の高い蛍光膜を選択するために約２０枚の蛍光膜を試作し，蛍光膜の特性試験を行なった。

さらに，この方法を用いて粒度分布を解析する手順について説明を加えた。この報告は，以上の試験結果と解析手順についてまとめたものである。

1 試 験 方 法

1. 1 蛍光体と蛍光膜の選択

蛍光体を選択するにあたって，実用性の点から発光性と残光性が問題となる。松岡[6]らは紫外線照射時における残光性について，米国産のRadelin Phoshor P−7とHelecon 2200および国産の大日本塗料の極光蛍光体2665について比較試験を行っている。それによると「国産のものは，米国産の二種に比べ，発光性についても劣っておらず，しかも残光性においては米国産の二種をはるかにしのいでいる。」と報告している。また，大畑[7]らも，この極光蛍光体ZnS (Ag)（以下「蛍光体」という）を使用し，粒度分布測定に応用している。そこで筆者らも，この極光蛍光体を使用することにした。

蛍光体粉末を使用して蛍光膜を製作する方法としては，松岡[6]，大畑[7]らの報告がある。これらの報告に示された方法で蛍光膜を製作することは可能である。しかし，日常の放射線管理に使用するためには，少なくとも面積が100cm^2程度のもので，かつ，塗布厚さが均一な蛍光膜が必要である。

この様な蛍光膜の製作は素人には難しいため，蛍光膜の製作は大日本塗料に依頼した。

蛍光膜の製作に当って，オートラジオグラフに最も適した蛍光膜の条件を見出すため，(1)蛍光体粉末の粒子径，(2)蛍光体に添加する樹脂（バインダー）の添加率，(3)蛍光体の塗布厚さを，それぞれ変えたものを試作した。(1)の蛍光体粉末の粒子径については，平均粒子径が，5μm，10μm，20μmの3種類を，(2)の樹脂添加率は，11.8 W/o，23.6 W/o，46.4 W/oの3種類を，(3)の塗布厚さについては，4〜16 mg/cm^2の範囲で3種類の蛍光膜を作った。以上のそれぞれの組合せとして，合計20枚試作した。蛍光体のベースには，12μm厚さの酢酸セルロース膜を使用した。その仕様をTable 1.に示す。

Table 1. Specifications of phosphor screen

No.	ZnS(Ag) particle size (μm)	Percent of the binder (w/o)	ZnS(Ag) thickness (mg/cm^2)
A-1-1	5	11.8	4.1
A-1-2			8.6
A-1-3			13.0
A-2-1		23.6	4.4
A-2-2			8.8
A-2-3			14.5
A-3-1		46.4	4.8
A-3-2			10.2
A-3-3			15.6
B-1-1	10	11.8	4.6
B-1-2			9.1
B-1-3			12.0
B-2-1		23.6	4.8
B-2-2			8.9
B-2-3			14.8
B-3-1		46.4	4.7
B-3-2			10.4
B-3-3			15.4
C-1-1	20	11.8	5.0
C-2-1		23.6	4.3

1.2 曝射器の製作

ZnS（Ag）増感オートラジオグラフ法として，現在まで行なわれてきた方法には次の2つがある。[5),6),7)]

(1) 透明なマイラ膜上に蛍光体を塗布し，暗室内で試料と蛍光膜とフィルムを一緒にして密着する。

(2) 両面にアルミニウム，または，金を蒸着して遮光性を持たせたマイラ膜上に蛍光体を塗布した蛍光膜を使用する。

以上の方法のうち，(1)は暗室内での操作が必要であり，日常の放射線管理に利用する点からは，α放射性粒子を安全光なしの真暗の中で取扱うことになるため，安全取扱い上好ましくない。(2)は明るい所で操作できるが，蒸着膜にピンホールがあると，光によってフィルムが感光し，α線による像と区別がつかず，また長期間の繰返し使用に蒸着膜が耐えないこと，さらに，蒸着膜によるα線吸収のため感度が低下するという難点がある。

そこで，Fig. 1.に示す遮光構造のアダプターを作り，これを光学顕微鏡の写真撮影用ポラロイドカメラと組合わせたオートラジオグラフィ用カメラを試作した。カメラの外観写真をPhoto 1.に示す。

そして，このカメラの中に蛍光膜を収めることによって，蛍光膜とフィルムを収めたカメラ内には光が入らない状態で，試験の交換，照射，および現像の一連の操作ができるようにした。

この曝射器は

(1) 全ての操作に暗室を必要としないで，オートラジオグラフを得ることができる。

(2) 支持軸の回転によって，1粒の粒子を用いて，1枚のポラロイドフィルムで校正ができる。

(3) 試料と蛍光膜およびポラロイドフィルムには，常に錘りのみの圧力がかかるように工夫してあるので，再現性の良いオートラジオグラフを得ることができる。

(4) 蛍光膜の交換がカメラの裏ぶたを開ければ簡単に行なうことができる。

等の特長を持っている。

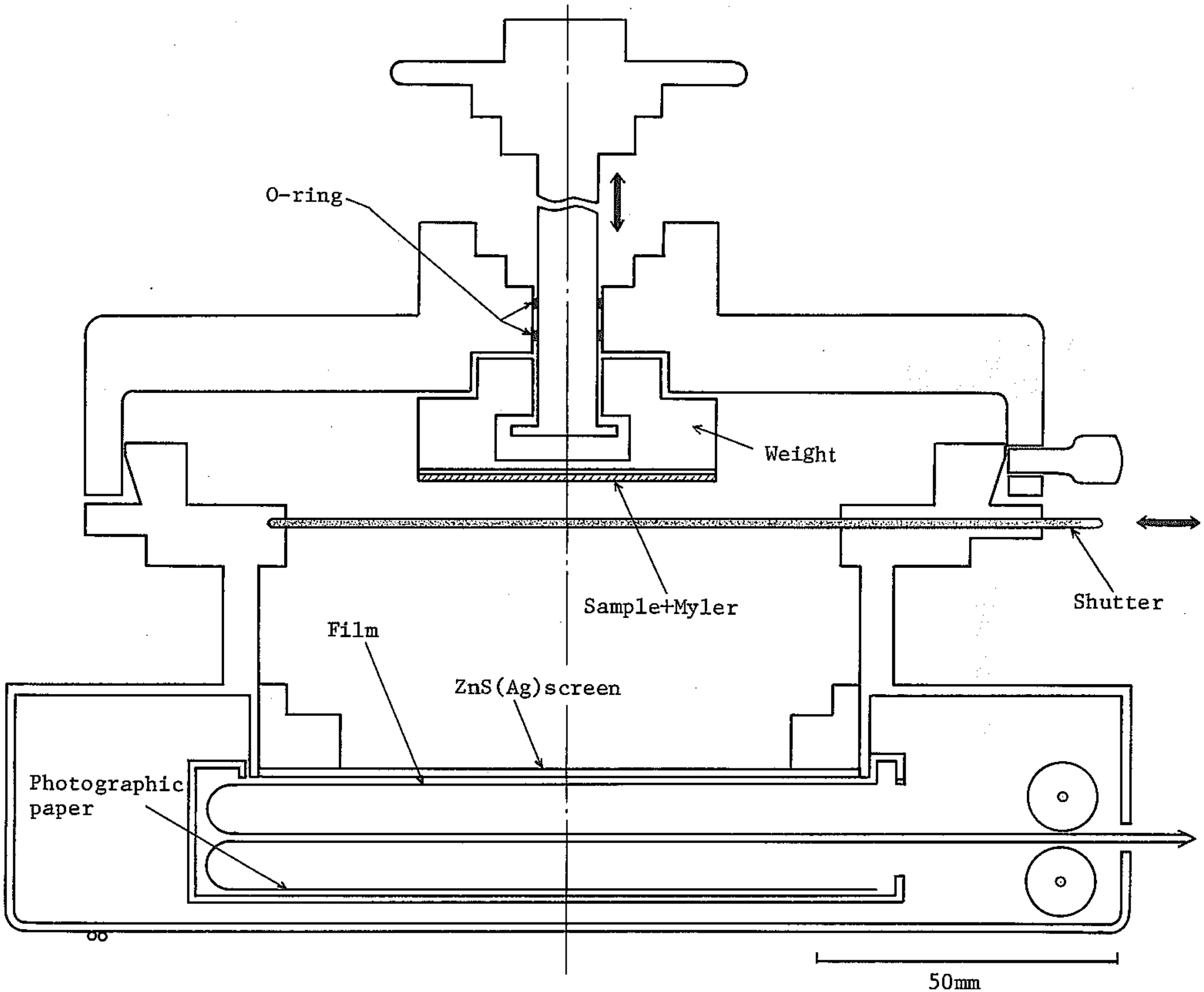
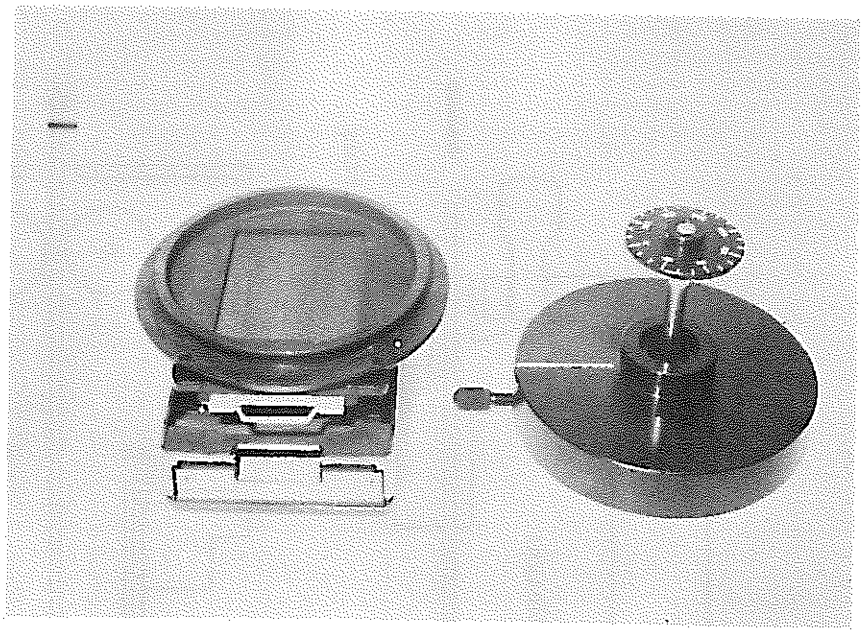


Fig. 1 ZnS(Ag) autoradiograpic camera



Polaroid camera　　　　　　Adapter

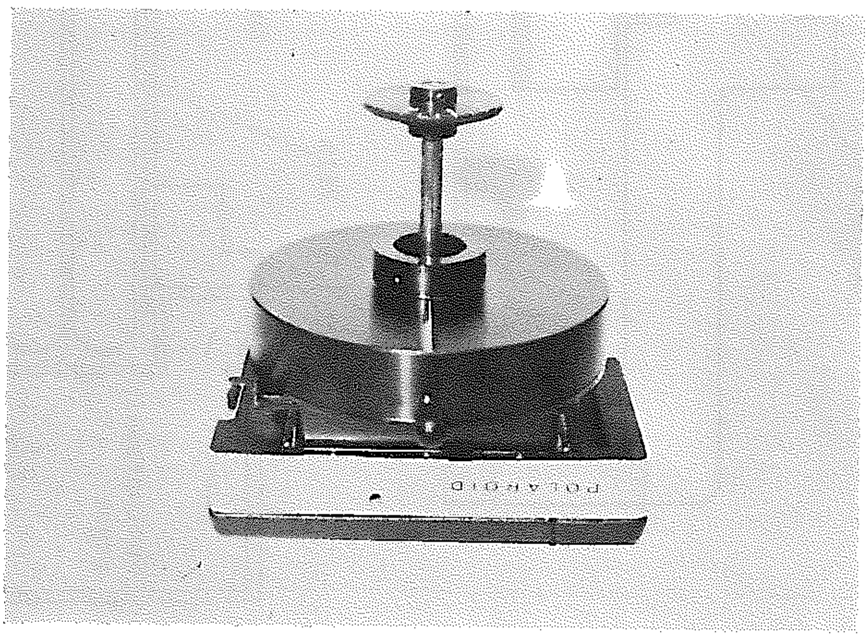


Photo. 1　ZnS(Ag) autoradiograpic camera

1.3 試験用α線源

1.1で述べた蛍光膜の試験を行うためのα線源には，ろ紙（ＨＥ−４０）に付着した１粒のＰuO_2 粒子を用いた。このろ紙は蛍光膜への汚染を防ぐため，4μm厚さのマイラ膜を用いて一重に包んだ。そして，原子核~~核~~乾板（KODAK;NTA）を用いて，その粒子のα線オートラジオグラフを撮り，α線トラック数からα放射能を求めた。曝射時の幾何学的効率は５０％としてα放射能を計算した。

その結果，α放射能は１１５ｄｐｍであった。このα線オートラジオグラフをＦｉｇ．２に示す。 5.18×10^{-5} μCi = 1.9 dps

1.4 蛍光膜の試験方法

1.4.1　感度および再現性

オートラジオグラフ法に適した蛍光膜の条件として，

(1)　α線の曝射量が同じ時，より大きな点像（以下「スポット像」という）の得られる蛍光膜を感度が高いと考える。

(2)　蛍光膜のどの位置がα線で照射されても，α線の曝射量が同じ時，再現性の良いスポット像の得られる蛍光膜が良いと考える。

以上の２点の性質を調べるため，Fig.1に示すカメラを用いて，1.3で述べた１粒の放射性の粒子を蛍光膜とポラロイドフィルムに密着して１分間照射し，オートラジオグラフを得る。フィルムにはポラロイドフィルムのタイプ１０７（ASA３０００）を使用する。また，一枚の蛍光膜について，位置の違いによるスポット像の再現性を調べるため，位置をかえて照射を１０回繰返す。以上の操作を1.1で述べた２０枚の蛍光膜について行う。

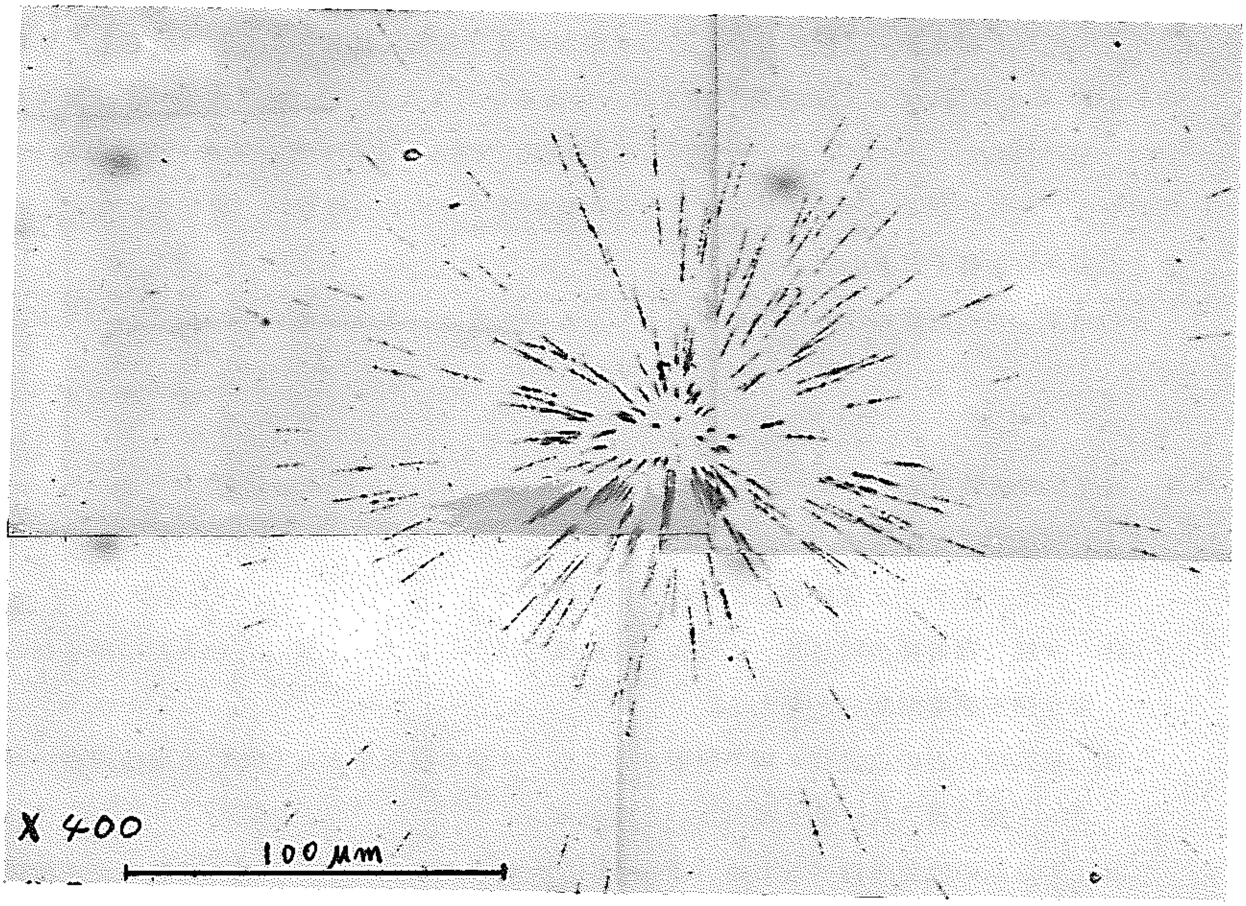


Fig. 2 Autoradiograph of a plutonium oxide particle

このようにして得られたオートラジオグラフのスポット像の直径（以下「スポット径」という）を，光学顕微鏡を用いて50倍の倍率で測定する。測定は，直交するX軸とY軸について行ない，その平均値をスポット径とし，さらに10個のスポット径の平均値と標準偏差を求める。

1.4.2 残光性

一般の使用状態での残光性を調べるため，Table 1.に示すA−1−1の蛍光膜に，蛍光灯下2mの位置で10分間光を照射する。そして，照射直後，1分後，3分後に，ポラロイドフィルムを当て，つぎに蛍光膜とポラロイドフィルムを5分間密着した後ポラロイドフィルムを指定の現像処理し残光性を調べる。

1.4.3　α線の曝射量とスポット径の関係

最も高い感度が得られると思われる1枚の蛍光膜について，1.3で述べた1粒の粒子を用い，照射時間を1分間から約1週間まで等比級数的に増加させ，α線の曝射量と，オートラジオグラフのスポット径との関係を求める。この曝射には，1.2で述べた曝射器を使用する。フィルムには，ポラロイドフィルムのタイプ107（ASA3000)を使用し，指定の現像処理を行なう。

スポット径の測定は，光学顕微鏡を使用する。

2　結果および結果の検討

2.1　蛍光膜の照射試験結果

1.4で述べた方法によって，樹脂添加率，塗布厚さ，および蛍光体の粒子径をそれぞれパラメータとして得られたオートラジオグラフをFig.3とFig.4に示す。Fig.3は蛍光体の平均粒子径が5μmの場合で，Fig.4は平均粒子径が10μmの場合である。また，このオートラジオグラフのスポット径の測定結果をFig.5からFig.9に示す。

Fig.5とFig.6は，樹脂添加率をパラメータとしてグラフ化したものであり，Fig.7とFig.8は塗布厚さをパラメータとしてグラフ化したものである。また，Fig.9は蛍光体の平均粒子径をパラメータとしてグラフ化したものである。

2.1.1　蛍光体に添加する樹脂添加率の影響

Fig.5は蛍光体の平均粒子径が5μmの場合で，Fig.6は10μmの場合である。

Fig.5から蛍光体粒子の平均粒径と塗布厚さが一定の時，樹脂添加率が多くなるに従って，オートラジオグラフのスポット径は小さくなることがわかる。蛍光体粒子の平均粒子径が5μmで，塗布厚さが4.1㎎/㎠のものでは，樹脂添加率が11.8 $^{W}/_{O}$ の時，スポット径は0.40㎜である。一方，樹脂添加率が46.4％に増加すると，スポット径は0.29㎜と小さくなる。Fig.6から明らかなように，蛍光体の粒子径が10μmの時も5μmの時と同じ傾向を示す。オートラジオグラフで，より大きなスポット径を得るには，樹脂添加率は小さい方が良いことがわかる。

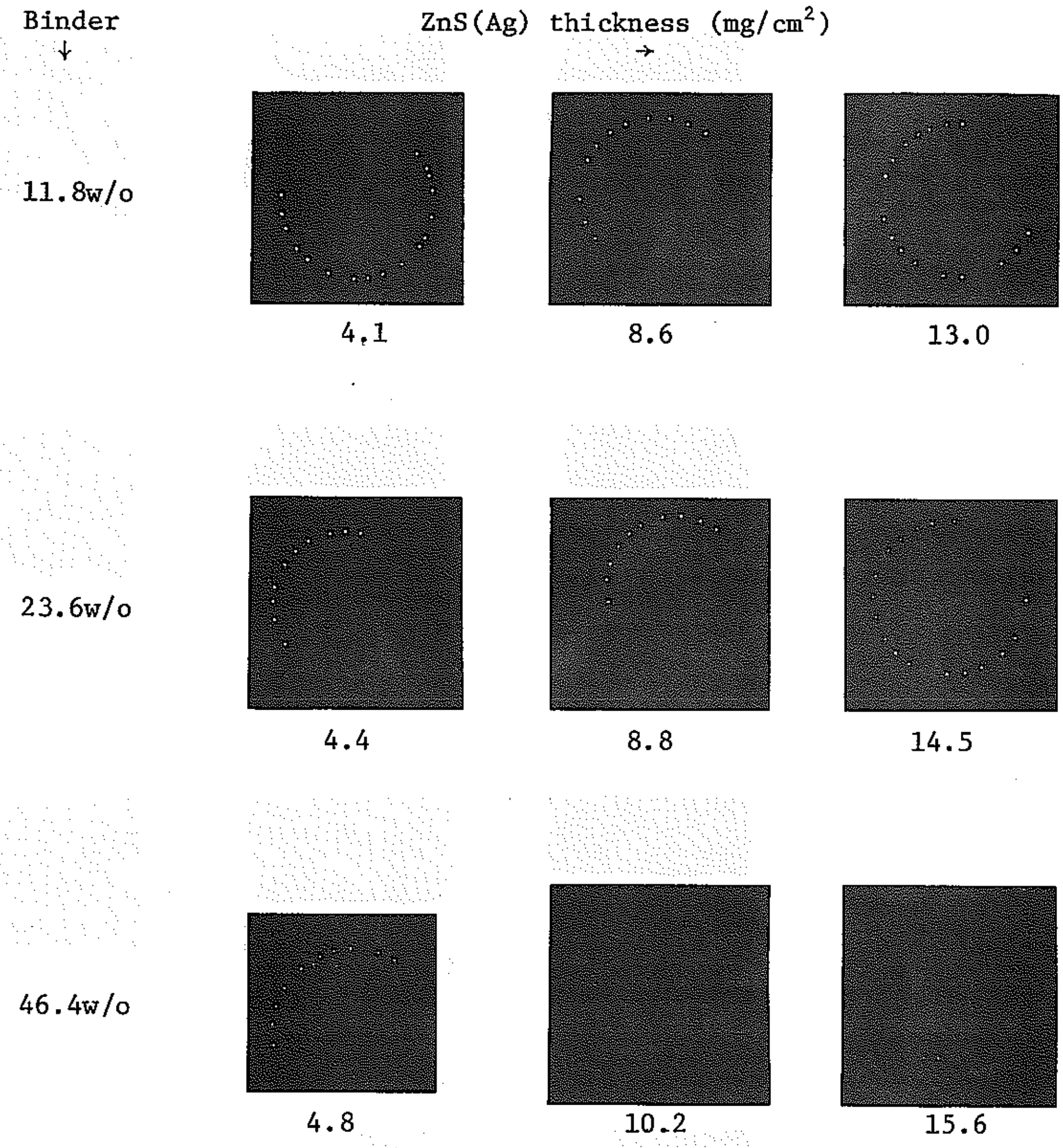


Fig. 3 ZnS(Ag) autoradiograph of a alpha particle obtained from various phosphors (Parlicle size of phospher : 5μm)

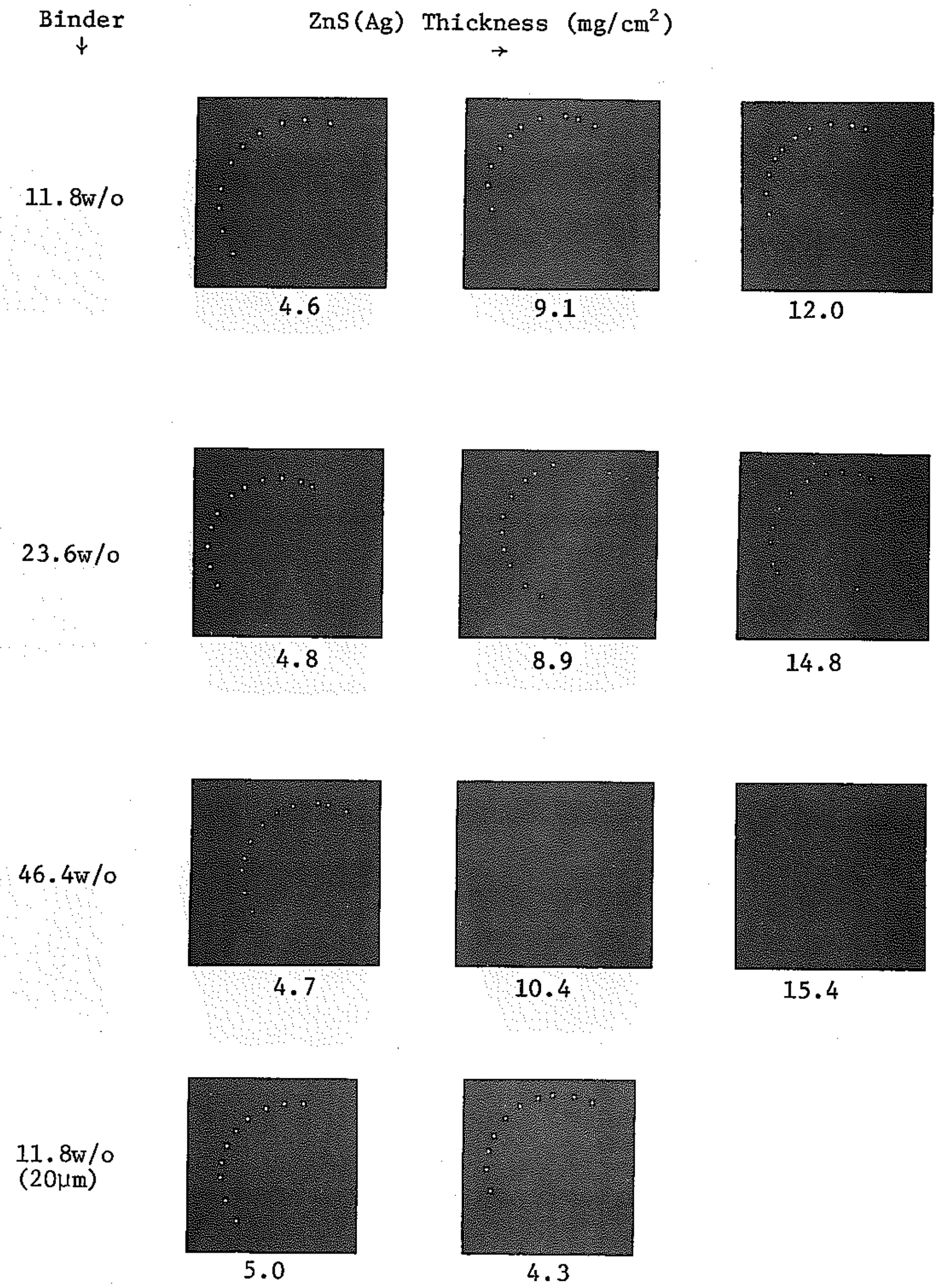


Fig. 4 ZnS(Ag) autoradiograph of a alpha particle obtained from various phosphors (Particle size of phosphor : 10μm)

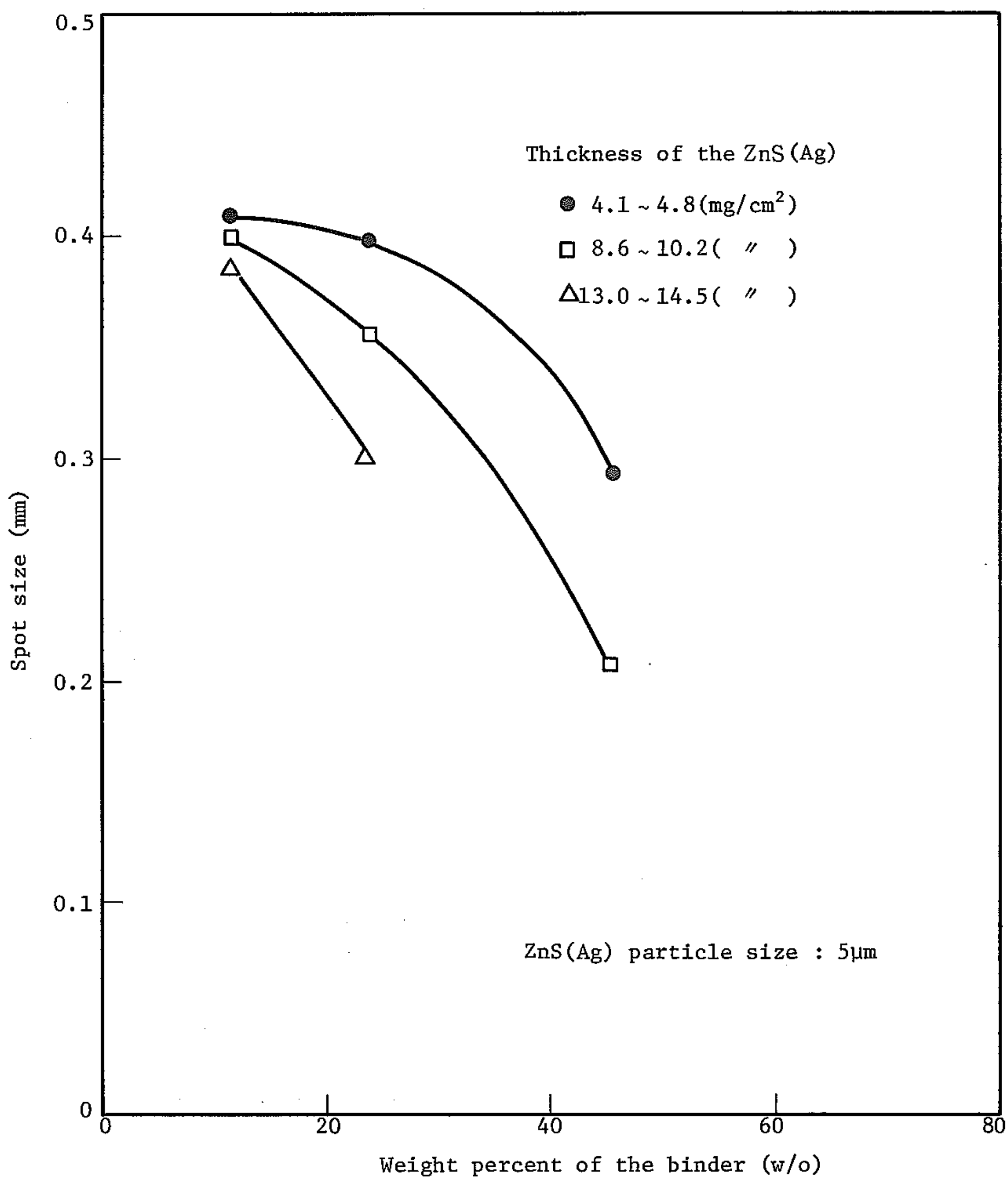


Fig. 5 Relation between spot size and weight percent of the binder

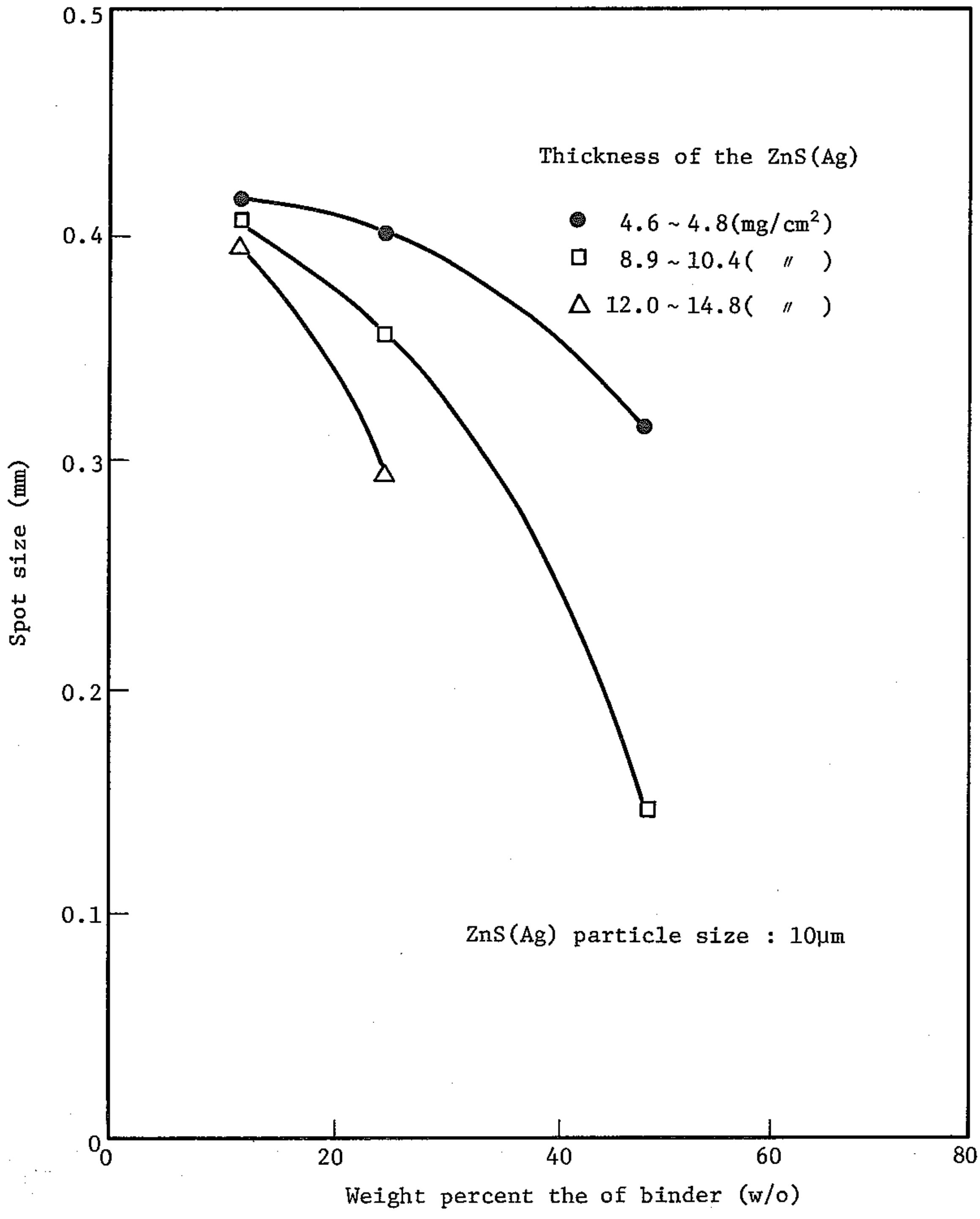


Fig. 6 Relation between spot size and weight percent of the binder

2.1.2　蛍光体塗布厚さの影響

Fig.7から蛍光体粒子の平均粒子径と樹脂添加率が一定の時、塗布厚さを増すとオートラジオグラフのスポット径は小さくなることがわかる。すなわち，オートラジオグラフのスポット像を得るには，蛍光体の塗布厚さとして約5㎎/㎠（今回試作した中で最も薄いもの）あれば充分で，さらに厚さを増した分は発光には寄与せず，むしろ光の吸収をもたらしているといえる。これは，今回用いたα線源のα線エネルギーが5.1MeVであり，このα線の蛍光体中での飛程が約20μmと短く，表層の蛍光体粒子のみが発光に寄与していることによるものと考えられる。蛍光体の平均粒子径が10μmの時も，Fig・8に示すように，5μmの時と同じ傾向を示す。

2.1.3　蛍光体粒子径の影響

樹脂添加率と塗布厚さを一定にし，蛍光体粒子の平均粒子径を5μm，10μm，20μm，にそれぞれ変えた時に得られるスポット径をFig.9に示す。Fig.9から蛍光体粒子の平均粒子径が5μm，10μm，20μmのいずれの場合も，スポット径はほとんど変わらないことがわかる。蛍光体の平均粒子が変わっても，スポット径がほとんど変化しないのは，1個のα線が入射することによって生ずる発光量が丁度蛍光体中20μmの吸収エネルギーに相当し，蛍光体の粒子径には直接関係していないことによるものと考えられる。

以上の樹脂添加率の影響，塗布厚さの影響，蛍光体の粒子径の影響の試験結果から，今回試作した範囲内では，樹脂添加率，塗布厚さとも，いずれも小さいものほど大きなスポット径の得られることがわかった。Fig・5から明らかなように，樹脂添加率がスポット径におよぼす影響は特に大きいため，樹脂添加率は今回試作した蛍光体中最も小さい11.8 w/o が良いといえる。蛍光膜の製作技術上は5 w/o まで可能であるが，実用上は蛍光膜としての耐久性の点から10 w/o 前後のものが良いと言える。

つぎに，樹脂添加率が11.8 w/o の蛍光膜について，塗布厚さがスポット径に及ぼす影響を見ると，Fig. 7から明らかなように，塗布厚さが5㎎/㎠から約15㎎/㎠の範囲ではスポット径はそれほど大きく変化していないことがわかる。一方，塗布厚さも10㎎/㎠以下になると蛍光膜としての耐久性の点で問題があるため，実用上は10㎎/㎠前後のものが良いと言える。

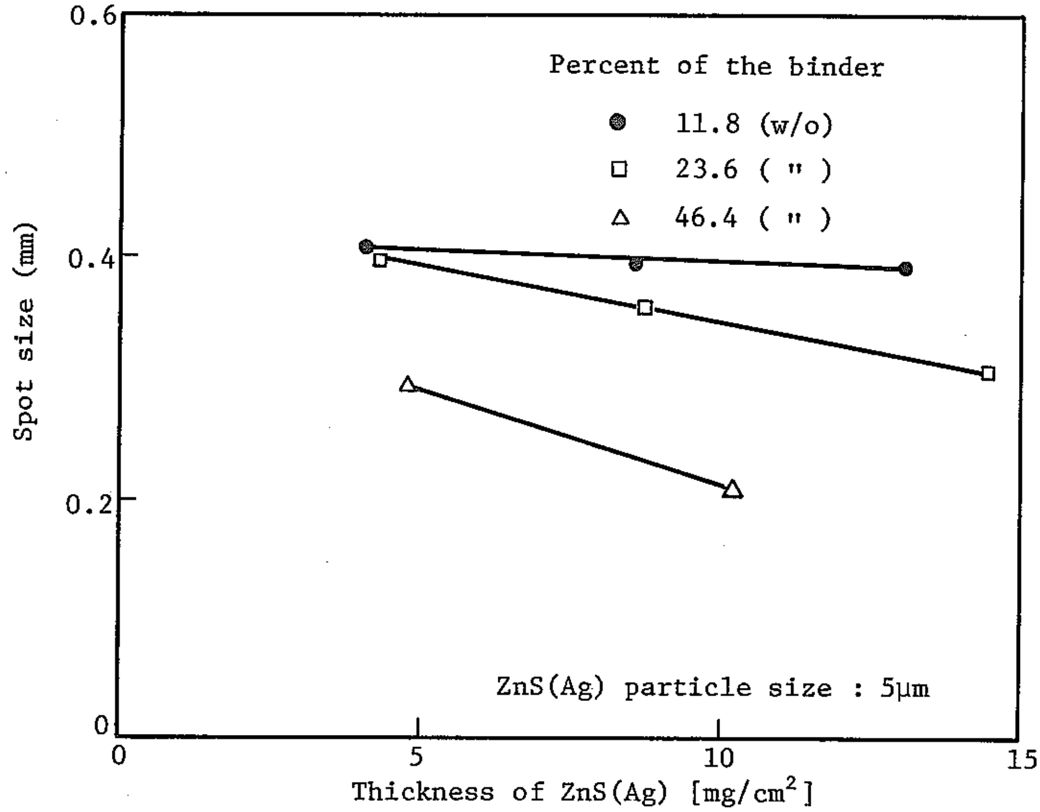


Fig. 7 Relation between phosphor thickness and spot size

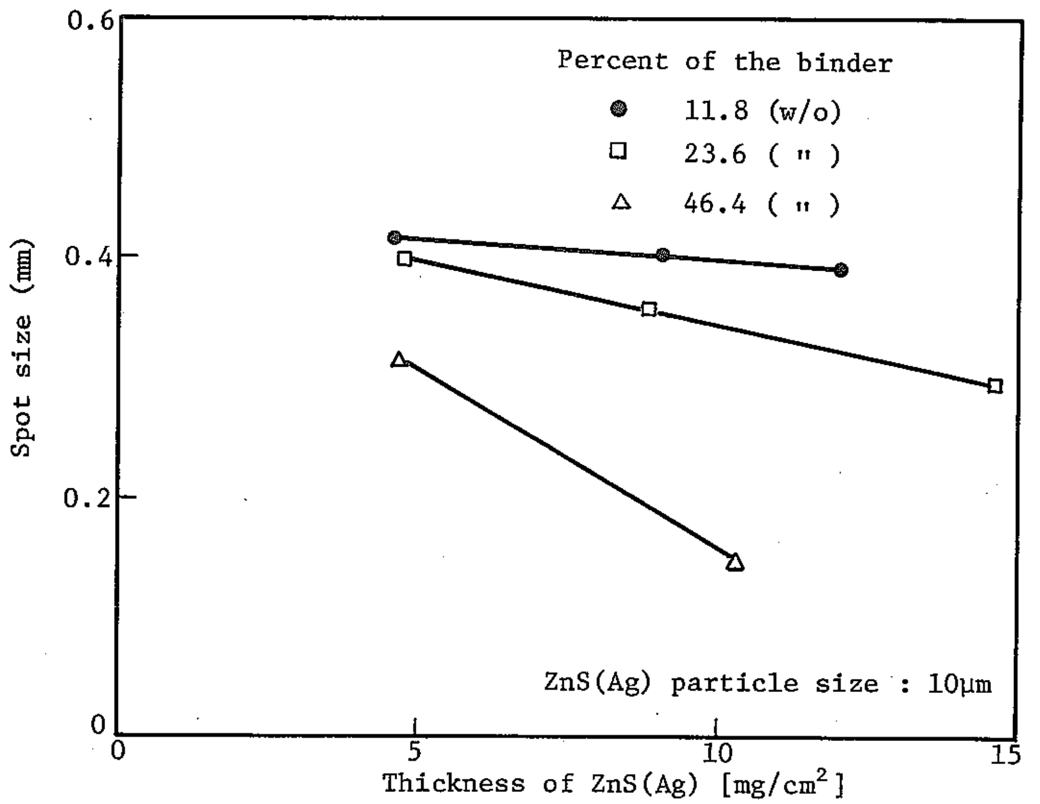


Fig. 8 Relation between phosphor thickness and spot size

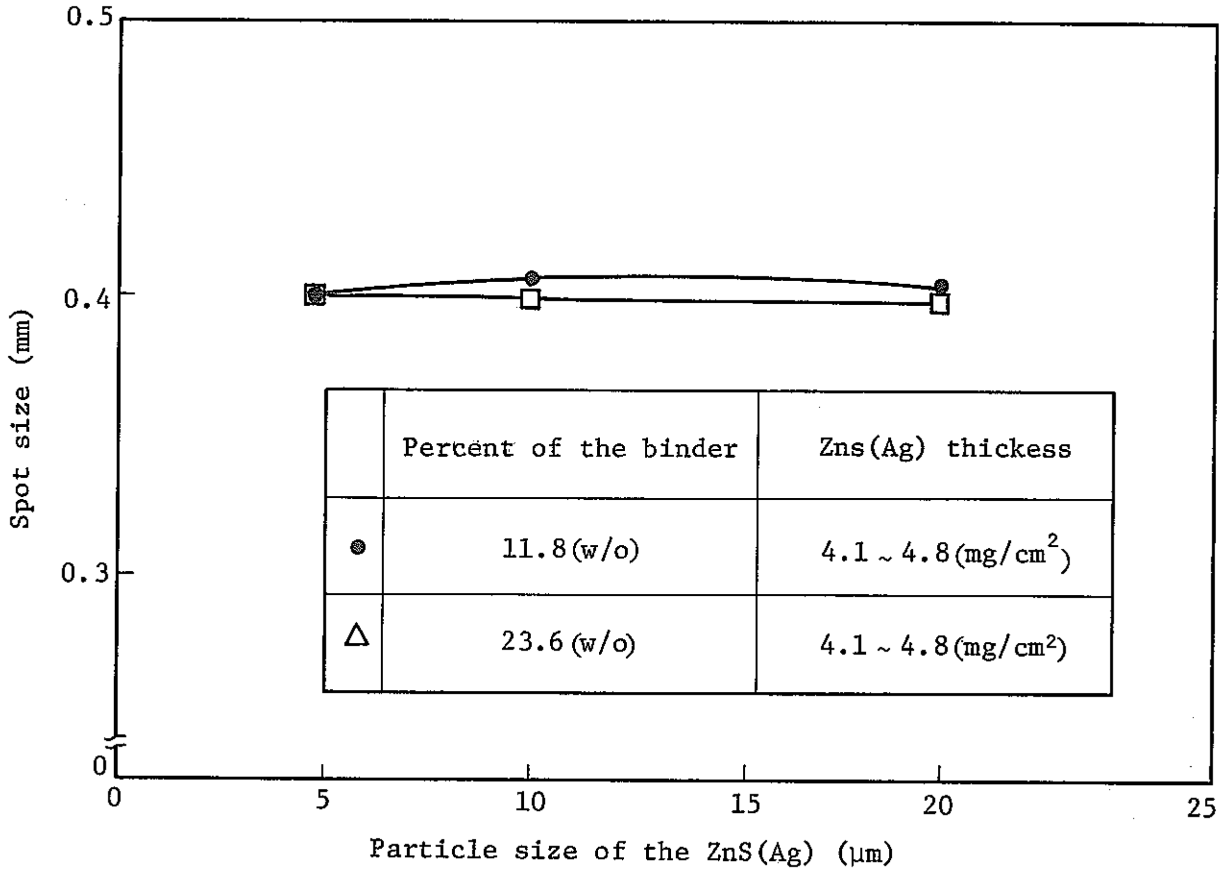


Fig. 9 Relation between spot size and particle size of the phosphors

2.1.4 繰り返し曝射によるスポット径の再現性

Tble 2.に各々の蛍光膜について得られたスポット径の10個の平均値と相対誤差を示す。Tble 2.から，スポット径が0.40㎜以上の時その相当誤差は3〜6%である。スポット径が0.20㎜以下になると，光学顕微鏡の測定誤差がむしろ問題となる。

スポット径が0.20㎜以上の時には相当誤差は7.2%以下となり，この値は大畑[7]らが報告している16.7%に比べ，かなり小さな値となっている。これは，蛍光膜中の蛍光体が均一に塗布されていることと，曝射器による照射条件の再現性，特に密着時の圧力が一定に保たれていることの結果と考えられる。

2.1.5 残 光 性

1.4.2に述べた方法で残光性を調べた結果，蛍光灯の光を照射した直後にポラロイドフィルムを当てると，フィルムは感光するが，1分間以上暗い所に置いた後であればフィルムは全く感光しないことがわかった。

したがって，一度蛍光膜に蛍光灯の光が当った時には，1.2に示したカメラ内で1分間以上放置し，その後にフィルムを当てれば実用上は全く問題がないといえる。

Table 2. Results of spot size measurment

Phosphor No.	Spot size of autoradiograph (diameter : mm)	Relative error (%)
A-1-1	0.40	4.9
A-1-2	0.39	3.8
A-1-3	0.38	3.8
A-2-1	0.40	4.3
A-2-2	0.35	3.4
A-2-3	0.30	3.7
A-3-1	0.29	3.4
A-3-2	0.21	7.2
A-3-3	0.14	-
B-1-1	0.41	5.6
B-1-2	0.41	3.4
B-1-3	0.39	2.8
B-2-1	0.40	3.3
B-2-2	0.36	3.9
B-2-3	0.29	4.8
B-3-1	0.32	3.2
B-3-2	0.15	15.8
B-3-3	0.14	-
C-1-1	0.41	2.5
C-2-1	0.40	5.7

2.1.6 α線の曝射量とスポット径の関係

2.1の試験結果から，特に樹脂添加率が小さい蛍光膜の方が大きなスポット径が得られることがわかった。そこで，蛍光体粒子の平均粒子径が20μで，樹脂添加率が7.4 W/o，蛍光体塗布厚さが13.2㎎／㎠の蛍光膜を作り，この蛍光膜について1.3で述べた1粒の粒子を用いて，α線の曝射量とその時に得られるオートラジオグラフのスポット径の関係を求めた。その関係をFig.10に示す。

Fig.10からα線の曝射量が増加するに従って，スポット径は大きくなり，その増加の傾向はα線の曝射量が10^4以上になると徐々にゆるやかになる。これは1度感光したスポット像の中央部が再度光を受けても，スポット径を大きくすることにはならないからである。すなわちスポット径がα線のエネルギーと照射時の密着条件，蛍光体の特性，およびフィルムの特性で定まるところのある一定の大きさに達するためと考えられる。

Fig.10からわかるように，α線の曝射量が10^2（蛍光膜に入射するα線の粒子数が50）の時に得られるオートラジオグラフのスポット径は0.42㎜である。この値は，田中[5)]，村田[7)]らがASA3000のポラロイドフィルムを用いて得ている値より約2倍大きい。

より大きなスポット径の得られる蛍光膜が，オートラジオグラフ法の観点から感度が高いと便宜上考えると，2.1.1，2.1.2で述べた結果からわかるように，この感度の向上は主に蛍光膜中の樹脂成分を少なくしたことと，蛍光体の塗布厚さを薄くしたことによるものといえる。感度の向上は実用性の観点からは，放射性粒子の粒子径測定の検出限界を向上させることを意味する。

光学顕微鏡を用いて読み取り誤差約7％以内で読み取れる最小スポット径は約0.20㎜でこのスポット径を最小読み取りスポット径とすると，曝射時間と最小検出粒子径の関係は，PuO_2についてFig.11に示すようになる。

すなわち，1週間（168時間）の照射時間でスポット径が0.20㎜になるようなPuO_2粒子の粒子径は，0.15μmであることがわかる。

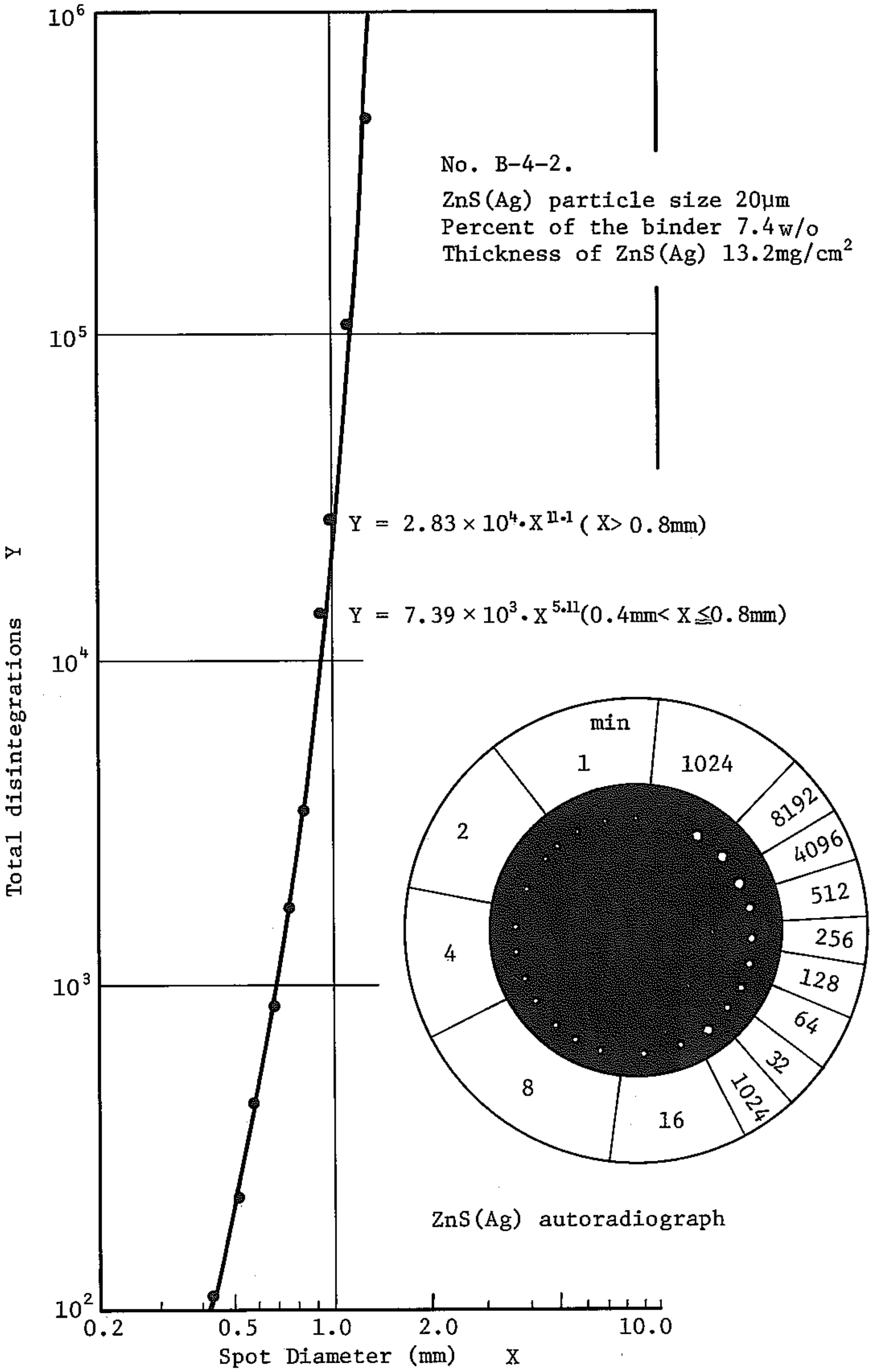


Fig. 10 Relation between spot size and total disintegrations

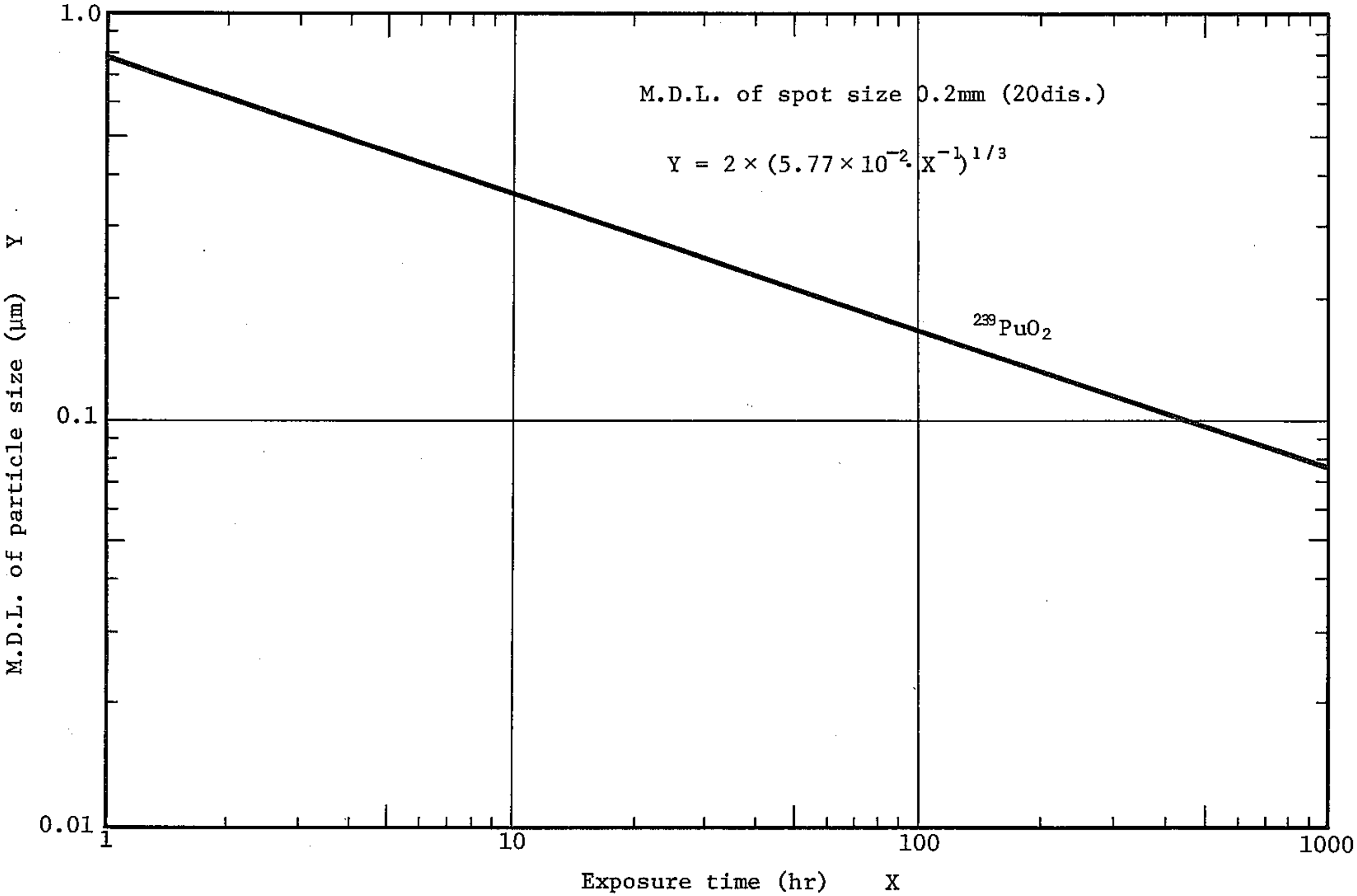


Fig. 11 Relation between exposure time and minimum detection limit (M.D.L) of particle size

結　　　言

ZnS (Ag) 増感オートラジオグラフ法によるα放射性粒子の粒度分布測定を，日常の放射線管理により使いやすいものとするため，オートラジオグラフ撮影用曝射器の製作と，この方法に最も適した蛍光膜を見出すための試験を行なった。得られた結果は以下の通りである。

(1) 遮光構造を持つ曝射器を製作した結果，暗室を全く必要としないでオートラジオグラフを得ることが出来るようになった。

(2) この方法に使用する蛍光体はZnS (Ag) が良く，また蛍光膜は樹脂添加率，塗布厚さとも小さいものほどオートラジオグラフの大きなスポット径が得られる。

実用上は，蛍光膜の耐久性と製作技術上の問題から樹脂添加率は10 W/O 前後，塗布厚さは10 mg/cm^2 前後のものが良い。また，使用する蛍光体の粒子径が，オートラジオグラフのスポット径におよぼす影響は，平均粒子径が5〜20 μmの間では小さい。

(3) 残光性は，蛍光灯下で使用する時は，約1分間曝射器内で放置した後，ポラロイドフィルムの1枚目を装填すれば実用上問題はない。

(4) スポット径が0.20 mm以上の時は，繰り返し曝射によって得られるスポット径の相対誤差は最大7.2%である。

(5) 蛍光体の平均粒子径が20 μm, 樹脂添加率が7.4 W/O，塗布厚さが13.2 mg/cm^2 の蛍光膜について，1粒の粒子を用いてα線の曝射量とオートラジオグラフのスポット径の関係をもとめた。その結果，α線の曝射量が100(disintegrations)の時得られるスポット径は0.42 mmで，従来用いられてきた蛍光膜より約2倍大きなスポット径の得られることがわかった。

今後の検討課題として

(1) ZnS (Ag) 増感オートラジオグラフ法で得た像の解析過程の中で，特に光学顕微鏡によるスポット径の読み取りには労力と時間がかかるため，スポット径の読み取りを自動化し，データ処理を迅速化する。

(2) オートラジオグラフ法で求めた幾何径と，電子顕微鏡等で求めた実際の幾何径を比較検討する。

等がある。

終りに，試験用蛍光体を提供していただいた，大日本塗料（株）技術課の三浦典夫氏に感謝致します。

Appendix

粒度分布解析手順

1. 試料の準備とオートラジオグラフ撮影
2. スポット径からα放射能およびPuO_2粒子径への変換
3. 粒度分布から空気力学的質量中央径への変換

Appendix

粒度分布の解析手順

ZnS (Ag) 増感オートラジオグラフ法によって求めたα放射能から，放射性粉塵の粒子径を求める方法と，この粒子径を基にして，肺胞への沈着割合を示すパラメータの１つである空気力学的質量中央径を求める方法について述べる。

測定および解析手順の全体の流れ図を図 1.に示す。

測定および解析手順の詳細を以下に述べる。

1. 試料の準備とオートラジオグラフ撮影

(1) まず，測定したい粒子を，空気サンプリングやスミア法によって沪紙等に補集する。

(2) オートラジオグラフに先だって，α放射能をα線測定器（ZnS−α線測定器または2πガスフローカウンタ等）を用いて測定する。また，β線，γ線の放射能を測定し，サンプリング時の条件等とともに記録しておく。さらに，^{241}Am／^{239}Pu 比や Pu の同位体組成比がわかっている時は，これらのデータも記録しておく。

(3) 粒子をサンプリングした沪紙を薄いマイラで一重に包み，Fig.1の曝射用カメラにセットし，一定時間，ZnS（Ag）蛍光膜およびフィルムと密着照射する。照射時間は，一応の目安として，試料のα放射能が100 dpm以上の時は3時間，10〜100 dpmの時は72時間，10 dpm以下の時は168時間（1週間）の3段階とする。長時間吸引したエアースニファろ紙の場合にはRa，T_n の影響を考慮して，一定の冷却時間を置くなどの処置をとる。

(4) 得られたオートラジオグラフをプレパラートに張り付け，光学顕微鏡のステージにのせオートラジオグラフ上の原点を定め，その時のステージのX軸およびY軸の目盛を読み取り記録する。観察する倍率は50倍とする。

スポットの数が多い時は，ビジコンカメラを接眼レンズに接続し，像がT.V.ブラウン管に写し出されるように設定する。次に，X−Yステージを移動させ，T.V.ブラウン管上でのX軸およびY軸方向のスポット径を順次読み取り，拡大倍率で除して，ステージ上のスポットの実寸法を求める。

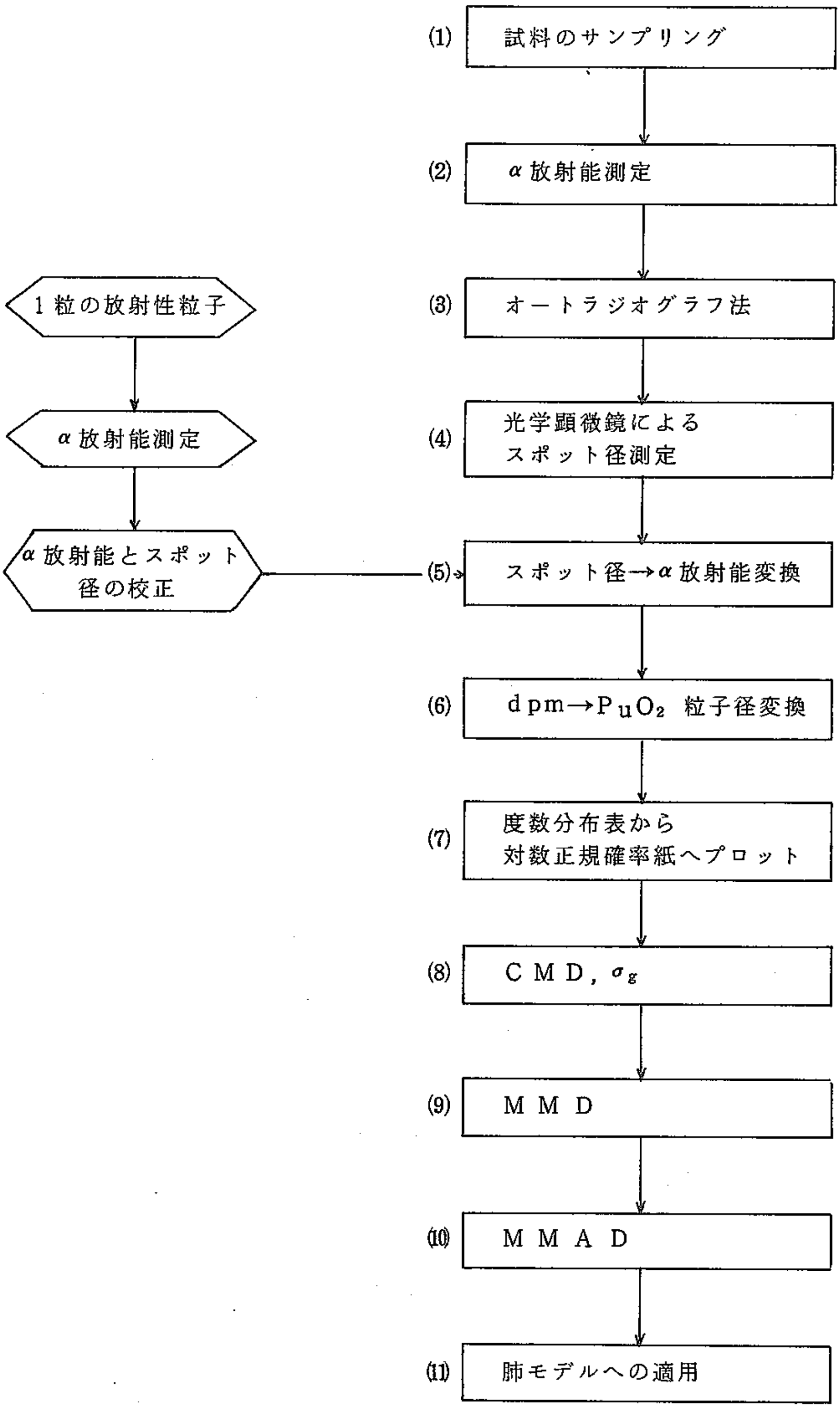


図 1.　ZnS (Ag) 増感オートラジオグラフ法から
空気力学的質量中中径（MMAD）を解析する手順

2. スポット径から α 放射能および PuO_2 粒径への変換

(5) (4)で得られた個々のスポット径を，本文2.1.6で述べた校正曲線を用いてα放射能に変換する。次に，そのα放射能を照射時間で除し，個々の粒子の単位時間当りのα放射能（dpm）を求める。

(6) α放射能（dpm）から粒子径への変換は，粒子を球形と仮定すれば，以下に示す放射性物質の放射能と質量の関係式[2)]を用いて行なうことができる。

$$-\frac{dN}{dt} = \lambda N$$

$$= \lambda \frac{A}{M} W \qquad W = \rho \cdot V \cdot f = \frac{4\pi\left(\frac{d}{2} \times 10^{-4}\right)^3}{3} \times \rho \times f$$

$$= \frac{\pi \cdot d^3 \cdot \rho \cdot f}{6} \times 10^{-12}$$

$$= \lambda \frac{A}{M} \times \frac{\pi \cdot d^3 \cdot \rho \cdot f}{6} \times 10^{-12}$$

$$= \frac{\lambda \cdot \pi \cdot d^3 \cdot A \cdot \rho \cdot f}{6M} \times 10^{-12}$$

$$= k \cdot d^3 \qquad \cdots\cdots\cdots\cdots (1)$$

$$\left(k = \frac{\lambda \cdot \pi \cdot A \cdot \rho \cdot f}{6M} \times 10^{-12}\right)$$

ここで

dN	：	dt時間に崩壊する原子数
λ	：	崩壊定数
N	：	放射性核種の原子数
A	：	アボガドロ数
M	：	放射性エアロゾルの分子量
W	：	放射性エアロゾルの質量（g）
V	：	放射性エアロゾルの体積（㎤）
ρ	：	放射性エアロゾルの密度（g/㎤）
f	：	化合物又は混合エアロゾルにおいて放射性原子の占める割合
d	：	粒子の直径（μm）

$-dN/dt$ は単位時間当りの放射能で，いまdpmで表現すると，放射性の粒子の直径dと放射能（dpm）の関係は，(2)式で表わすことが出来る。

$$d=\left[\frac{1}{k}\times(dpm)\right]^{\frac{1}{3}} \quad \cdots\cdots\cdots\cdots (2)$$

すなわち，個々の粒子について，単位時間当りの放射能が定まり，(1)式中の λ，M，ρ，f が定まれば，粒子を球形と仮定することによって，その粒子の直径を知ることが出きる。

化学形が $^{239}PuO_2$ で，その密度が11.46〔g/cm^3〕（理論密度）の時，粒子1個当りの放射能とその粒子の放射能球相当径の関係を図2に示す。

しかし，以上の過程で求めた粒子の径は，あくまで放射能から，もとの放射性粒子が球形であると仮定して求めた粒子径（光学顕微鏡等で求めた幾何径と区別するため以後「放射能球相当径」という）であることに注意して測定結果を評価することが必要である。

粒子の中にα放射性核種が混在している場合は，(1)式中の λ/M を(3)式[8]を用いて計算する。

$$\frac{\lambda}{M}=\frac{\alpha_1}{M_1T_1}+\frac{\alpha_2}{M_2T_2}+\cdots\cdots+\frac{\alpha_n}{M_nT_n} \quad \cdots\cdots\cdots\cdots (3)$$

ここで，α_1，α_2，……α_n は放射性粒子中のn種核種の存在比であり，M_1，M_2，………M_n はそれぞれの分子量，T_1，T_2，………T_n はそれぞれの核種の半減期である。

3. 粒度分布から空気力学的質量中央径への変換

(7) (6)で得られた個々の放射能球相当径をもとに度数分布表を作る。

この度数分布の結果を対数確率紙にプロッティングし，グラフから50％粒子径として，個数中央値（Count Median Diameter：CMD）を求める。

幾何標準偏差（Geometric Standard Deviation：σ_g）は次式を用いて計算される。

$$\sigma_g=\frac{84.13\%粒子径}{50\%粒子径}=\frac{50\%粒子径}{15.87\%粒子径}$$

さらに，CMDと σ_g が求まればHatch－Choateの式[10] (4)から質量中央径MMDを求めることができる。さらにエアロゾルの密度がわかれば，式(5)から空気力学的質量中央径MMAD (Mass Median Aerodynamic Diameter)を求めることができる。

$$\log MMD=\log CMD+6.91\log^2\sigma_g \quad \cdots\cdots\cdots\cdots (4)$$

$$MMAD=\sqrt{\rho}\cdot MMD \quad \cdots\cdots\cdots\cdots (5)$$

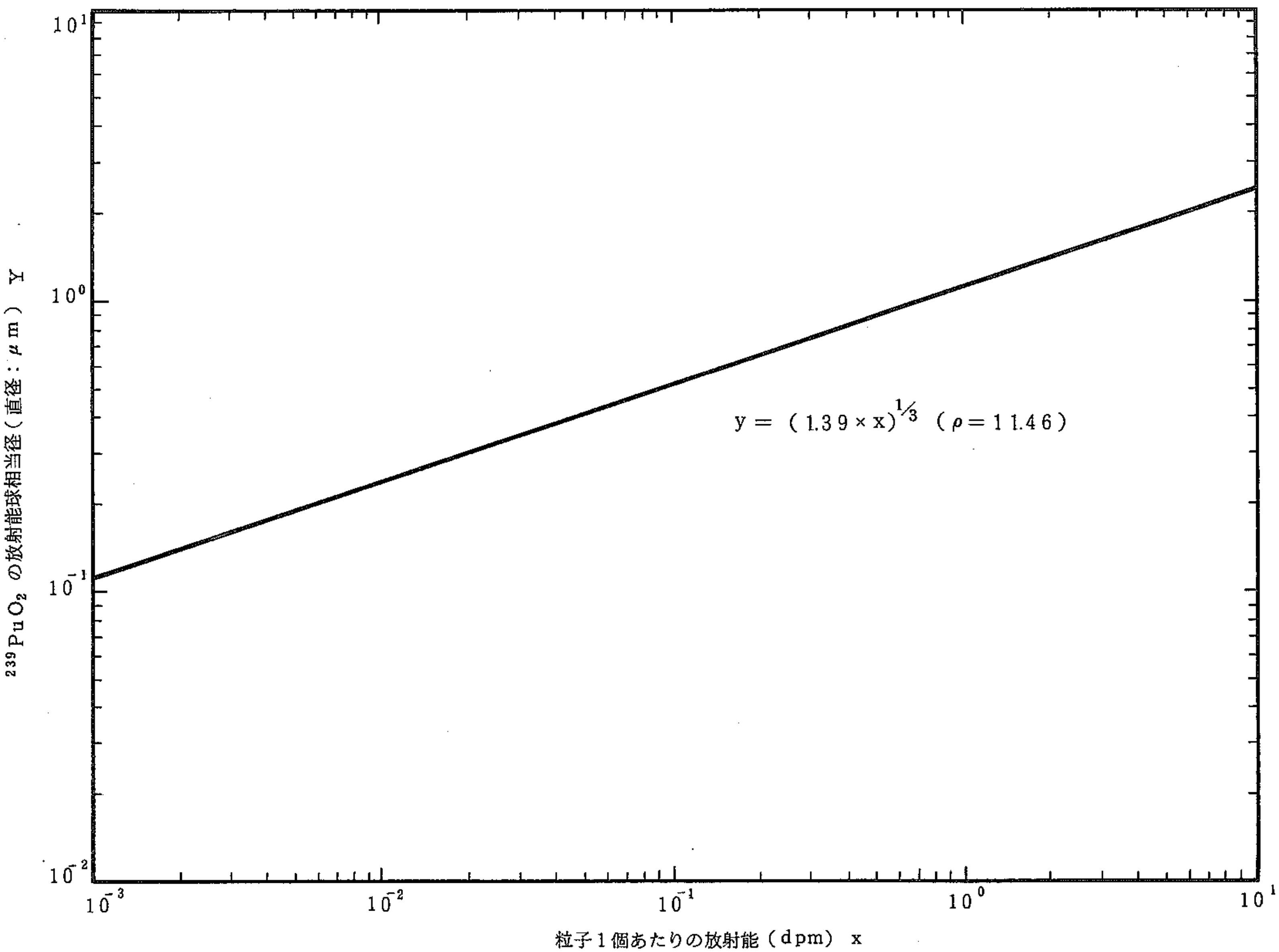


図2. PuO_2 粒子1個あたりの放射能と放射能球相当径の関係

図 3. にエアロゾル粒子が対数正規分布に従うとして，その個数中央径が 1.0 μm，幾何標準偏差が 2.0 の時の各パラメータの相互関係[1]を示す。また，各パラメータの記号，関係式[10]などについて表 1. にまとめて示す。

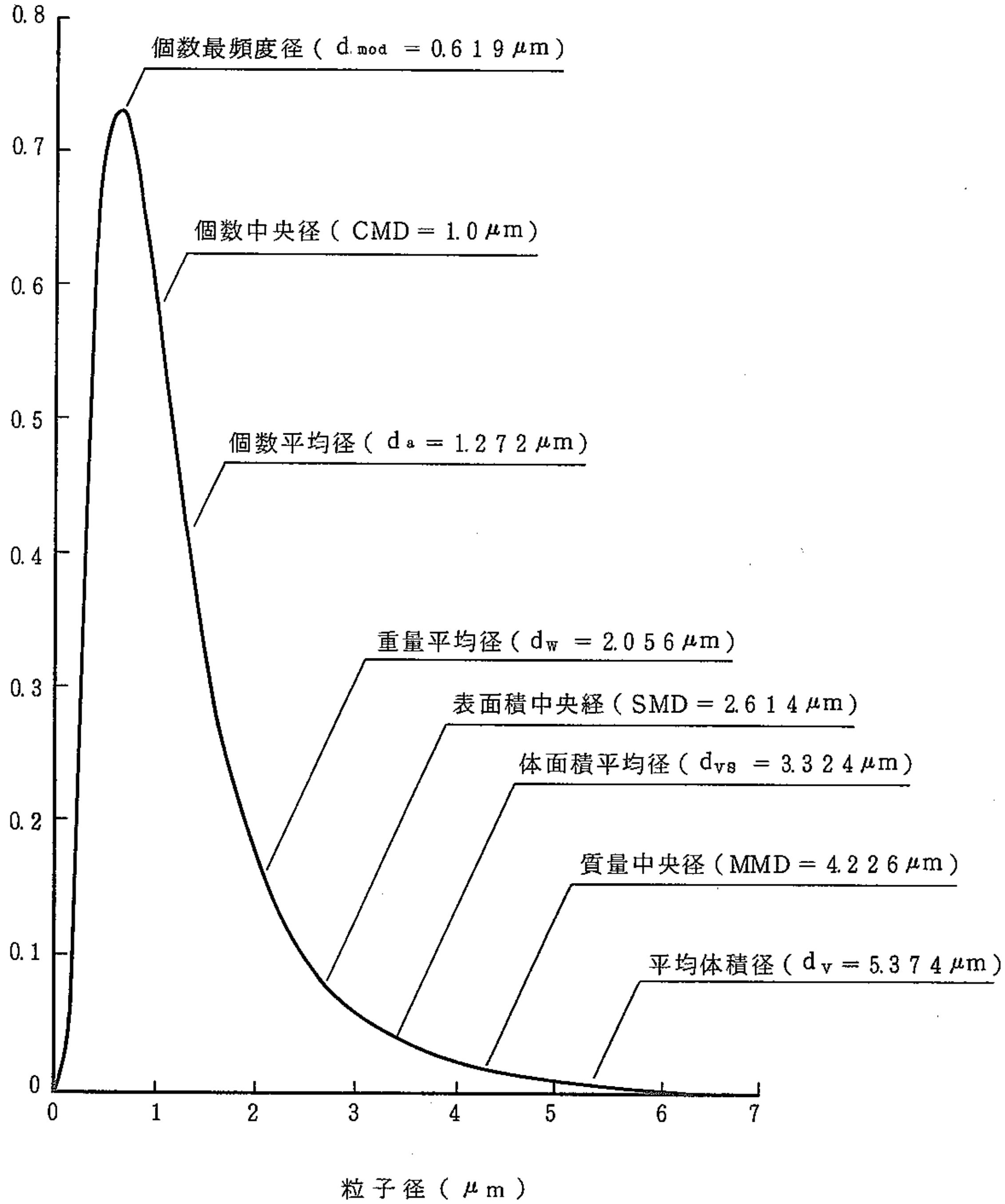


図 3. 個数中央値 1.0 μm，幾何標準偏差 2.0 の場合のエアロゾル粒子の代表的な対数正規分布と各パラメータの位置関係[1]

表－1. 対数正規分布する粒子群を代表するパラメータ

パラメータ		記号	説明	数学的関係式
最頻度径	mode diameter	d_{mod}	最も数の多い粒子径。（最多径ともいう）	——
算術平均径	arithmetic mean diameter	d_a	個々の粒子の径（d）にその個数（n）を乗じて平均した時の径。	$\overline{d}=\dfrac{\Sigma(n\cdot d)}{\Sigma n}$
放射能球相当径	――	d_A	粒子1個の放射能から球径粒子に換算した径。	本文(1)式から得られる。
幾何平均径	geometric mean diameter	d_g	対数平均径ともいう。（個数中央径に等しい）	$\log d_g=\dfrac{\Sigma(n\,\ell og\,d)}{\Sigma n}$
個数中央径	Count median diameter	CMD	粒子を大きさ順に並べたときの個数を基準とした中央の粒子径。	$CMD=d_g$
質量中央径	mass median diameter	MMD	重量を基準にして個数平均径と同様に求めたもの。	$\log MMD=\log CMD+6.91\log^2\sigma_g$ $MMD=CMD\exp(3\ln^2\sigma_g)$
空気力学的質量中央径	mass median aerodynamic diameter	MMAD	吸入評価のための粒子の空気力学的な運動やエアロゾル粒子の密度（ρ）を考慮して求めた径。	$MMAD=\sqrt{\rho}\,MMD=\sqrt{\rho}\,CMD\exp(3\ln^2\sigma_g)$
幾何標準偏差	geometric standard deviation	σ_g	粒度分布の分散の度合を表わす。	$\log\sigma_g=\left[\dfrac{\Sigma n(\log d-\log d_g)^2}{\Sigma n}\right]^{1/2}$

参　考　文　献

1) Task Group on Lung Dymamics for Comittee of ICRP : Deposition and Retention Models for Internal Dosimetry of the Human Respiratory Tract, Health Physics Vol. 12, p.173 (1966).

2) J. A. Leary : Particle Size Determination in Radioactive Aerosols by Radioautograph, Anal. Chem, 23 (6) 850 (1951).

3) R. J. SHERWOOD and D. C. STEVENS : A Phosphor-Film Technique to Determine the Activity of Individual Particles on Air Sample Filters, AERE-R 4310 (1963).

4) JACKJ. C. HSIEH : Autoradiography : Technique for Drastic Reduction of Exposure Time to Alpha Particles, Science Vol. 150 (31) 1821 (1965).

5) E. TANAKA, S. IWADATE et al. Determination of Activity of Individual Particles on Air Sampling Filters by Mean of Ultra-High Speed Radioautography, NIRS-Pu-(8)-(1971)

6) 村田幹生，吉田芳和：オートラジオグラフ法によるα放射エロアゾルの粒度測定法（資料調査）JAERI-memo 3855 (1970).

7) 松岡理，村松意美子他 : Radioisotope Vol. 17, p.58 (1968).

8) 大畑勉，村田幹生他：JAERI-memo 4310 (1971).

9) 大畑勉，松井　他 : JAERI-memo 6006 (1975).

10) T. HATCH and S. CHOATE, Jour. Franklin Inst, Vol. 207 p.369-387 (1929).

11) 中田啓，福田整司，Radioisotope Vol.26 No. 10 p.77 (1977).