



Title	硝酸セルロース飛跡検出器中の α 粒子飛跡生成への γ 線照射効果
Author(s)	沢村, 晃子; Sawamura, Teruko; 山崎, 初男 他
Citation	北海道大學工學部研究報告, 87, 155-160
Issue Date	1978-06-05
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/41458
Type	departmental bulletin paper
File Information	87_155-160.pdf



硝酸セルロース飛跡検出器中の α 粒子飛跡 生成への γ 線照射効果

沢村 晃子* 山崎 初男** 小澤 保知**

(昭和52年9月28日受理)

Effect of γ -ray Irradiation on α -particle Registration in Cellulose Nitrate Track Detectors

Teruko SAWAMURA, Hatsuo YAMAZAKI, Yasutomo OZAWA

(Received September 28, 1977)

Abstract

Cellulose nitrate track detectors were exposed to α -particles after γ -ray irradiation. These detectors were then etched with 25% solution of NaOH. The effect of γ -ray irradiation on α -particle registration on these detectors were investigated.

It has been observed that γ -ray irradiation induces changes in bulk properties of detector material, that is, the increase of bulk etching rate and, with respect to track formation, the decrease of developing velocity of track diameter and the increase of sensitivity of track registration. From these results it is concluded that the effect of low LET radiation on track registration can not be ignored when the irradiation dose is higher than 10^7 rads.

1. 序 言

絶縁性固体の或る種のもは飛跡検出器として有効であることが知られている。P. B. Price等によって化学的エッチング法を用いて絶縁物中に形成せられた荷電粒子飛跡を光学顕微鏡で観測することが可能であることが発見せられて以来^{1),2)}, 飛跡検出器の様々な分野での利用は飛躍的に増加してきている。特に硝酸セルロース, 酢酸セルロース, ポリカーボネート等のプラスチック類は, 高感度な検出器として広く利用されている。

固体飛跡検出器は, β , γ 線のような低 LET 放射線の影響を受けずに重荷電粒子の飛跡を記録できることがその使用上の有利な特性の一つであるが, プラスチック検出器においてはその高感度性に伴って, $\sim 10^7$ rads 以上の高線量の照射を受けると, 低 LET 放射線によっても検出器素材の性質が変化することが知られている。それ故プラスチック検出器について β - γ 線照射が飛跡生成に及ぼす影響を検討することは検出器利用の上で大変重要なことであり, 更に未だ明きらかになされていない飛跡形成機構の解明にも役立つことであろう。

本文では硝酸セルロース検出器中でのアルファ粒子の飛跡生成に対する γ 線照射効果が検討されている。硝酸セルロースは最も高感度な飛跡検出器として知られており^{2),3)} アルファ粒子の

* 工学部エリアモニタ施設

** 工学部原子工学科

検出器としてしばしば用いられる素材である。

2. 実 験

実験に用いた試料はダイセル社製（日本）硝酸セルロース，約 $197\ \mu$ 厚シートである。試料は ^{60}Co γ 線により $5\sim 25\ \text{M rads}$ まで照射された。照射線量率は $2.93 \times 10^5\ \text{rads/h}$ であった。 γ 線照射の後，試料は未照射試料と共に α 粒子の照射を受けた。 α 粒子は ^{241}Am から放出されるものをポリテフタル酸エチレンフィルムで減速して用いた。エッチングには 25% NaOH を用いた。

γ 線照射を受けた試料は薄い黄褐色を呈し，P. R. Herke⁴⁾ 等が γ 線照射を受けたポリカーボネートについて報告しているように，紫外部に吸収が観測された。その波長領域は $300\sim 450\ \text{nm}$ でこの値はポリカーボネートの場合よりも長波長側になる。

エッチングにより試料表面は粗面化し，白濁色を示すようになり，その傾向は γ 線線量が大きい程顕著であった。又，照射によりバルクエッチング速度の増加がみられた。Fig. 1 にエッチング温度 70°C の場合の未照射及び照射試料のバルクエッチング速度について示す。搅拌の有無は夫々次に述べる 2.1 及び 2.2 節のエッチング条件に対応しており，両条件間の差は観測されなかった。バルクエッチング速度は照射線量に対し指数関数的に増加することが示されている。これらの事から検出器素材には γ 線照射による損傷が誘起されていると考えられる。

飛跡生成に対する γ 線照射効果は次の二点につき検討されている。一つはトラックの生長過程に照射の影響がどのように現れるかということであり，もう一つは α 粒子検出のしきい値が変化するかどうかで，夫々次のような実験を行なった。

2.1 トラック生長過程の観測

γ 線照射を受けた試料及び未照射試料に α 粒子を照射した。 ^{241}Am α 粒子はポリテフタル酸エチレンフィルムにより中心エネルギー $2.05\ \text{MeV}$ まで減速されている。そのエネルギースペクトルが Fig. 2 に示されている。エッチングは恒温槽内に挿入された $18\ \text{mm}\phi$ プラスチック製試験管中で行なわれた。試料は $12\ \text{mm} \times 50\ \text{mm}$ ，エッチング液の量は $15\ \text{ml}$ である。エッチング後試料は超音波洗滌器により蒸留水で洗滌され室温で乾燥された。

トラックの観測は光学顕微鏡（オリンパス FHT 534）により行ない，接眼移動測微計（オリンパス OSM）によりトラック半径を測定した。 γ 線照射線量が増加すると共にエッチング後の試料表面は粗面化し，このような状況はエッチング温度が低温程顕著であった。Fig. 3 に $10\ \text{M rads}$ の γ 線照射後更に α 粒子を照射した時の α トラックをエッチング温度 30°C 及び 70°C の場合について示す。(a) は 30°C 2 時間 40 分，(b) は 70°C 3 分 50 秒エッチングした試料で，エッチングに

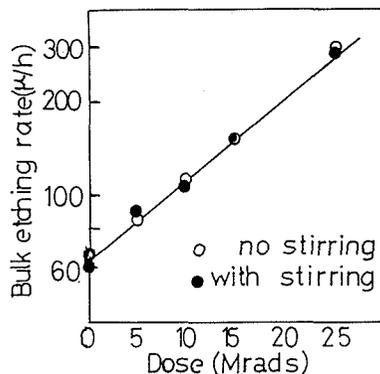


Fig. 1. Relation between bulk etching rate and irradiation dose at 70°C .

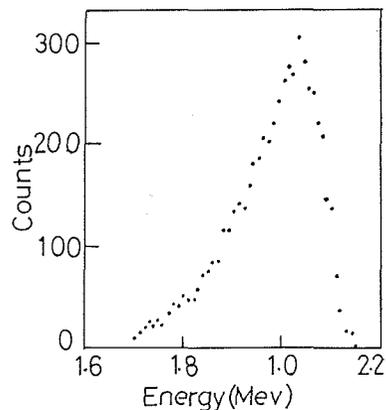


Fig. 2. Slowing-down spectrum of α -particles of ^{241}Am .

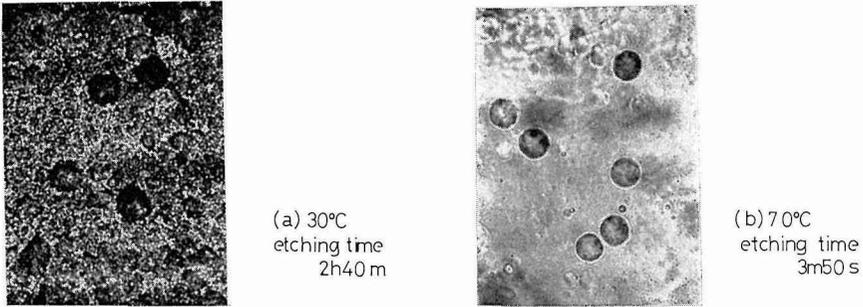


Fig. 3. α-tracks in cellulose nitrate detector after etching at 30°C and 70°C. (magnification: 6.7 × 40).

より試料表面から除去された層の厚さは両者において同じく6.5μである。写真から30°Cエッチングの方が表面の粗面化が著しいことが判る。このような表面状態はエッチングを進めると共に一層悪化するため、低温エッチングではトラックの生長過程を観測するのは困難であった。以下の実験は70°Cで行なった。

Fig. 4 にトラック半径 r とエッチングにより表面より除去された層の厚さ h との関係を示す。Fleischer 等⁵⁾ によると試料面に垂直に入射する粒子のトラックの半径 r は、バルクエッチング速度及びトラックエッチング速度を夫々 V_g, V_t とすると、エッチング時間 t では、

$$r = V_g \left(t - \int_0^{y'} \frac{dy}{V_t(y)} \right) \left(1 - \frac{V_g^2}{V_t(y')^2} \right)^{1/2}$$

$$y' = V_g t - \frac{V_g^2}{V_t(y')} \left(t - \int_0^{y'} \frac{dy}{V_t(y)} \right) \quad \text{但し } y' \leq R \text{ (粒子飛程)}$$

となる。 $t \rightarrow 0$ では $V_t(y) \approx V_t, h = V_g t$ と置いて、

$$\left(\frac{dr}{dh} \right)_0 = \frac{\left(1 - \frac{V_g}{V_t} \right)^{1/2}}{\left(1 + \frac{V_g}{V_t} \right)^{1/2}}$$

が求まる⁶⁾。 $(dr/dh)_0$ は Fig. 4 から求められる。得られた $(dr/dh)_0$ を Fig. 5 に示した。入射粒子のエネルギーが拡がっていることに起因してトラック半径のバラつきが大きく $(dr/dh)_0$ の線量依存性は明確ではないが、25 M rads 照射試料については明らかに $(dr/dh)_0$ の減少が示されており、γ線照射がトラック半径の増加率を減少させる方向に働いていることが解る。先に述べた照射による V_g の増加がこの事の一因と考えられる。 $h > 10 \mu$ で r の増加率が減少しているのは 2.05 MeV α 粒子の飛程が 8μ ⁷⁾ であることによる。

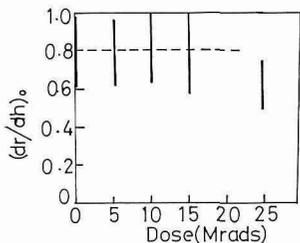


Fig. 5. $(dr/dh)_0$ derived from Fig. 3 vs. irradiation dose.

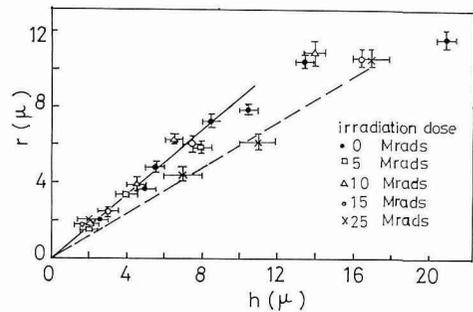


Fig. 4. Track radii r of α-particles in unirradiated and irradiated samples vs. layer thickness h removed from one side.

2.2 検出感度

飛跡検出器には検出器素材によって定められるしきい値が存

在し、入射粒子パラメーター粒子の電荷、質量、速度等一によって記述される特定の量がそのしきい値を越える粒子の飛跡だけが化学的エッチングによって検出される。エッチングにより飛跡が可観測になるかどうかの判定基準には、飛跡生成理論によって指定される、飛跡に沿っての一次電離量 J^8 、一定領域内に分布する平均線量 D^9 、一定エネルギー以下の二次電子のみを考慮して算出されるエネルギー損失 $(dE/dx)_e^{10}$ 等が夫々の理論に基き用いられており、これ等の量は上述の入射粒子パラメータにより記述される。しきい値は又、エッチング及びその他の条件、例えばエッチング液の種類、エッチング温度、紫外線照射の有無等に依存することが知られている。

検出器の検出感度は又、バルクエッチング速度 V_g 及びトラックエッチング速度 V_T によって決まる。即ち検出臨界角 θ_c は次の様に定義される。

$$\theta_c = \sin^{-1}(V_g/V_T)$$

荷電粒子が検出器面に角度 θ をもって入射するとする。時間 t だけエッチングするとトラックに沿って $V_T \cdot t$ だけエッチングされる。素材表面はバルクエッチング速度により $V_g \cdot t$ だけ失なわれる。それ故トラックが観測されるためにはトラック長の表面に対する垂直成分、 $V_T \cdot t \sin\theta > V_g t$ でなければならない。検出可能な最大角が上のように V_g と V_T で定まることになる。しきい値は検出限界、 $\theta_c=0$ 、言い換えれば、 $V_g=V_T$ を意味している。 γ 線照射によって θ_c 、或いはしきい値が変化するかどうかということは、 V_g と共に V_T も照射の影響を受けるかどうかということに関わっている。

Fig. 6 (a) のような試料に α 粒子を照射する。 ^{241}Am α 粒子は約 20μ 厚ポリテフタル酸エチレンフィルム及び空気により減速される。試料表面での α 粒子エネルギー E_α は入射角 θ により、Fig. 6 (b) に示されるようになる。硝酸セルロース中で $E_\alpha=0.8 \text{ MeV}$ の時飛程は約 $3 \mu^7$ になるので、表面を $\sim 3 \mu$ エッチングすると、 $\theta < \sim 45^\circ$ の範囲に α 粒子検出の可能性がある。未照射試料と 15 M rads 照射試料に各 17 時間 α 粒子を照射し、 70°C でエッチングを行なった。試料面が一樣にエッチングされることに特に配慮して、 $1,000 \text{ ml}$ ビーカー中でマグネティックステーラーでエッチング液を攪拌しながらエッチングを行なった。各試料がエッチング槽中の一定位置に設置されるよう試料ホルダーを使用した。エッチング時間は両者共 $h \sim 3 \mu$ になるよう未照射試料 160 秒、 15 rads 照射試料 72 秒とした。エッチング後の α -トラックの空間分布の測定は粒子アナライザー Luzex450 (日本レギュレーター株式会社) を使用して行なった。

Fig. 7 にその結果を示す。トラック数が ~ 100 を越えるとトラックの数え落しが多くなり、尚その数え落しの確率は数及びトラック形状に依存し、トラック形状は粒子の入射角、即ち試料上の位置によって異なるので、表示された数は真のトラックの数を示していない。しかし、トラックが現出する位置では急峻な数の変化を示すので、その位置の推定には差しつかえない。

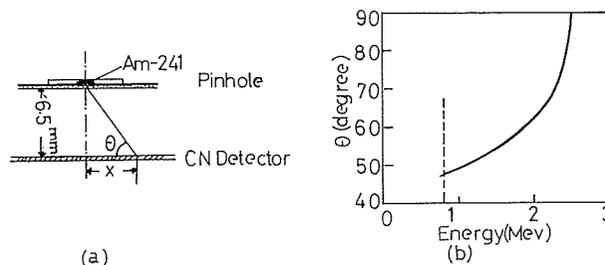


Fig. 6. (a) Geometry of α -particle source and a detector. (b) Incident angle vs. energy of α -particles.

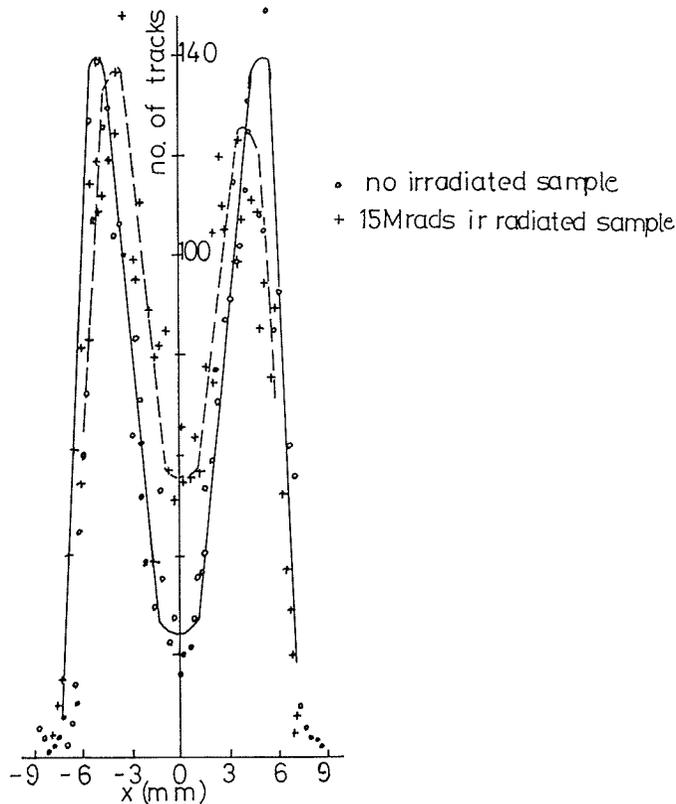


Fig. 7. Number of tracks at position x on the detectors.

Fig. 7 において照射試料(\times 印)の方が低エネルギー側の臨界角がやや小さくなっている。これは照射によって V_g が増加したためと考えられる。中央部 $x \sim 0$ 附近 (α 粒子の高エネルギー側) では照射試料のトラック数が多く検出感度が高くなっている。

3. 結果の検討

硝酸セルロース飛跡検出器へ 5~25 M rads の γ 線照射を行なった後 α 粒子を照射し、 α 粒子飛跡生成への γ 線照射効果について検討した。素材には γ 線照射により、バルクエッチング速度の増加等が誘起され、バルクの性質が変化することが示された。一方、飛跡生成に対する効果に関しては、まずトラック半径の生長速度の低下が 25 M rads 照射試料について観測された。このことは V_g の照射による増加のためと解することができるが、 V_i が同時に変化しているかどうかについては明確ではない。未照射試料、15 M rads 照射試料の α 粒子検出の感度に関する実験からは、照射試料にやや高エネルギー α 粒子の検出感度が増加している様子が見られたが定量的に明きらかにするまでには至っていない。

低 LET 放射線照射の飛跡生成への効果に関しては今までに次のような報告がみられる。D. R. Stone¹¹⁾ のポリカーボネート中の核分裂破片飛跡に対する α 粒子照射の実験では臨界角に変化のない事を報告している。M. Várnary 等¹²⁾ は酢酸セルロース中の α 粒子飛跡に対する γ 及び電子線照射について論じ、彼等もまた照射による $(dr/dh)_0$ の低下を報告している。H. A. Khan¹³⁾ のポリカーボネート中の核分裂破片へのプロトン照射効果は、照射量もプロトン 10 MeV

$10^{16}/\text{cm}^2$ と上二例に比し非常に高フラックスの照射を行なっているが、 V_i の増加、それに伴う検出感度の増加を報告している。

本実験は硝酸セルロース試料によるもので直ちに上記の例と比較することは出来ないが、照射によるバルクエッチング速度の増加、 $(dr/dh)_0$ の減少については、M. Várnagy¹²⁾ 等の酢酸セルロースに関する実験結果と同様な傾向を示し、 ~ 20 M rads 以上の低 LET 放射線照射はトラック観測時に影響を考慮すべきことが明きらかにされた。しかし、尚トラックエッチング速度に対する照射効果は未だ不明確であり、今後トラックエッチング速度を単独で測定し照射効果を検討することが重要な課題であると考えられる。

最後に本実験を行うにあたり、粒子アサライザー Luzex 450 の使用について御助言をいただき、又便宜をお計り下さった東洋インキ株式会社稲葉公誌氏、本学機械工学科助教野口徹氏に感謝致します。又試料厚みの測定に御援助いただいた本学部精密工学科岸波建志助教並びに三好隆志氏に感謝します。

文 献

- 1) Price, P. B. and Walker, R. M.: J. Appl. Phys., **33** (1962), 12, p. 3407.
- 2) Price, P. B. and Walker, R. M.: Phys. Rev. Lett., **8** (1962) p. 217.
- 3) Fleischer, R. L., Price, P. B. and Walker, R. M.: J. Appl. Phys., **36** (1965) 11, p. 3645
- 4) Henke, R. P., Benton, E. V. and Heckman, H. H.: Rad. Effects, **2** (1970) p. 269.
- 5) Fleischer, R. L., Price, P. B. and Woods, R. T.: Phys. Rev., **188** (1969) **2**, p. 563.
- 6) Lück, H. B.: Nucl. Instr. Meth., **114** (1974) p. 139.
- 7) Tripier, J. *et al.*: Nucl. Instr. Meth., **115** (1974) p. 29.
- 8) Fleischer, R. L., Price, P. B. and Walken, R. M.: Phys. Rev., **156** (1967) **2**, p. 353.
- 9) Katz, R. and Kobetich, E. J.: Phys. Rev., **170** (1968) **2**, p. 401.
- 10) Benton, E. V. and Nix, W. D.: Nucl. Instr. Meth., **67** (1969) p. 343.
- 11) Stone, D. R.: Health Phys., **16** (1969) p. 772.
- 12) Várnagy, M., Csikai, J. and Szegedi S.: Nucl. Instr. Meth., **119** (1974) p. 261.
- 13) Kahn, H. A.: Nucl. Instr. Meth. **130** (1975) p. 603.