一般論文

硝酸セルロースフィルムにおける放電計数特性

丹羽健夫^{*1}, 古賀妙子^{*1}, 森嶋彌重^{*1}, 河合 廣^{*1}, 西脇 安^{*1}

(1978 年 6 月 5 日受理)

(1978 年 10 月 2 日再受理)

Spark Counting Characteristics of Etched Alpha-particle Tracks on
Cellulose Nitrate FilmsTakeo NIWA,^{*1} Taeko KOGA,^{*1} Hiroshige MORISHIMA,^{*1}
Hiroshi KAWAI^{*1} and Yasushi NISHIWAKI^{*1}

Basic spark counting characteristics of cellulose nitrate films 13 μm thick stripped off from the polyester bases of LR-115 Type II and LR-115 Type II Stripping made by KODAK-PATHÉ in France were investigated. Detector films irradiated with α -ray were etched with NaOH solution, sandwiched between copper and aluminized sheet electrodes, and the number of sparks was counted with a scaler. Results obtained were as follows:

- 1) Optimum etching condition was 26 % NaOH solution at 50°C and etching time was 140 min.
- 2) Sparking voltages were 600 V for punching and 425 V for counting.
- 3) Optimum thickness of polycarbonate sheet for a moderator was 20 μm .
- 4) The relation between irradiation time and number of counts was linear up to about 1,000/cm².

LR-115 Type II Stripping B, which was sticked with thin LiBO₂ layer on one side of the film, was also examined. It was irradiated with neutron produced from the reactor of Kinki University. Neutron fluence was estimated from spark counting of α -tracks produced by (n, α) reaction. The relation between spark counts and neutron fluence was linear between 2×10^8 and 4×10^9 n/cm².

KEY WORDS: dielectric track detectors, nitro-celluloses, personnel dosimetry, spark counters.

I 序 論

放電計数法は CROSS および TOMMASINO により開発された¹⁾。 α 線および陽子飛跡の放電計数は、検出器に使用できるセルロースがポリカーボネートに比べて化学的、機械的に弱く、取扱いに細かい注意が必要であり、研究例も数が少ない。 α 線については、1969 年、BECKER 等が自作した硝酸セルロースフィルムで成功し

ており²⁾、その後、1974 年に同じく BECKER 等がフランス KODAK-PATHÉ 社の硝酸セルロースフィルム LR-115, 8 μm 厚を用いて (n, p) 反応による反跳陽子の飛跡について実験を行なった³⁻⁴⁾。また 1975 年 HAHN 等は $^6\text{Li}(n, \alpha)^3\text{He}$ の α 線を適当な可塑剤を入れて製作した硝酸セルロースフィルムを用いて測定した⁵⁾。わが国では、1978 年鶴田等が $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ の α 線をアセトンと酢酸イソアミルを溶媒とし、硝酸セルロース、樟脳およびオルトカルボランを溶質とする溶液から作ったフィルムで放電計数に成功している⁶⁾。我々も 1973 年以来、 α 線の放電計数の研究を行なってきた⁷⁾。すなわち、

^{*1} 近畿大学原子力研究所; 東大阪市小若江 3-4-1 (〒577)
Atomic Energy Research Institute of Kinki
University, 3-4-1 Kowakae, Higashi-osaka City,
Osaka, Japan 577.

1) バイエル社製酢酸セルロース (TRIAFOL, 30 μm 厚), 2) TRIAFOL の厚みを減らすため溶解して薄く引き延ばす, 3) 国産の硝酸セルロース粉末を溶解して薄く引き延ばす, 4) KODAK-PATHÉ 社製 LR-115 Type II 硝酸セルロースフィルム (9 $\times$ 12 cm, 13 μm 厚) をベースからはがすなど種々の方法を試みたが, 1) については放電計数には厚すぎ, 2), 3) についてははしわができたり, 機械的に弱いなど欠点があり, 研究室における小規模な製作では毎回均一で一定の厚みのフィルムを得ることは困難であるので, 量産され市販されている LR-115 を使用することにした。すなわち, LR-115 Type II フィルムをベースからはがしたものを, LR-115 Type II Stripping および Stripping B の3種のフィルムについて, ベースからはがし方, エッチングの仕方による放電計数の諸特性を比較検討した。

II 実 験

1. 飛跡検出用フィルム

a) LR-115 Type II : このフィルムは不活性ポリエステルベース約 100 μm 厚に赤色の 13 μm 厚の硝酸セルロースフィルムをはりつけたもの (9 cm $\times$ 12 cm) である。陽子, α 粒子など荷電粒子照射後エッチングしてから顕微鏡下で飛跡数を数えるとき, 赤背景からエッチピットの所だけ白く抜け, 数えやすい特徴がある。我々はこれを放電計数に使うため, ポリエステルベースより硝酸セルロースフィルムのはがし方についていろいろ試みた結果, 熱湯を用いれば容易にはがれ, 良好な特性が得られることがわかった。

b) LR-115 Type II Stripping および LR-115 Type II Stripping B (20 cm $\times$ 60 cm) : これはポリエステルベースから硝酸セルロースフィルムを容易にはがすことができるタイプで, 大きさを除き, 使用目的, 物理的性質および厚みは前述の LR-115 Type II フィルムと同じである。LR-115 Type II Stripping B フィルムは片面に 8 mg/cm² の LiBO₂ を塗布したもので, ¹⁰B, ⁶Li の (n, α) 反応による α 線を測定して, 間接的に中性子を検出する目的で作られたものである。

2. 照射

LR-115 Type II フィルムの照射には, RaDEF (280 dps) 線源の RaF すなわち ²¹⁰Po から出る 5.3 MeV の α 線を用い, 20 μm 厚のポリカーボネートフィルムを減速材として, 線源と検出フィルムの間にはさみ, 密着して照射を行なった。なお, LR-115 Type II Stripping B フィルムの中性子照射は, UTR-Kinki⁸⁾, 熱出力 1W で運転し, 原子炉の中央試料孔の中央 (熱中性子束密度

$1.4 \times 10^7 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$) において数秒 $\sim$ 4 時間照射を行なった。またフィルムと同時に金箔を照射し, 中性子フルエンスを測定した。

3. エッチング

照射したフィルムは, フィルム上に α 粒子でできた飛跡を拡大し, 放電可能な大きさのエッチピットを得るため, 未照射フィルムとともに 26% 水酸化ナトリウム溶液, 50°C または 60°C で行なった。

中性子検出用の Stripping B フィルムは, 照射後, 塗布した LiBO₂ を水洗し取り除き, 上と同じ方法でエッチングした。

4. 放電計数

放電計数は直径 2.2 cm の銅の円板陽極とアルミ蒸着したポリカーボネート (アルミ蒸着膜は 10 nm 厚) との間にエッチングしたフィルムをおき, 電極間に高電圧を印加し, このとき得られる放電パルスを計数器で計数する。

III 結果と考察

1. 放電計数特性

LR-115 Type II の種々の開孔電圧での放電計数プラトー特性を Fig. 1 に示した。これによると, 開孔電圧

Fig. 1 Spark counts as a function of counting voltages at different punching voltages.

600 V において比較的是っきりしたプラトーを示し、またこのときのバックグラウンド計数（未照射フィルムを放電計数したときの値）も少ないので、以後、開孔電圧 600 V、計数電圧はプラトー中央の 425 V において行なった。

Fig. 2, Fig. 3 に 26% 水酸化ナトリウム 50°C におけるエッチング時間と放電計数値の関係を示した。Fig. 2 は LR-115 Type II と Type II Stripping について、ポリエステルベースより硝酸セルロースフィルムをはがした後エッチングしたもので、両者間に有意の差はなく、最適エッチング時間は 140 分付近であることがわかる。またフィルムの剝離をエッチングおよび水洗後行なった場合のエッチング時間と放電計数の関係を Fig. 3 に示した。前者の 140 分における放電計数値と同じ放電計数値が得られるエッチング時間は 210 分で前者よりかなり長い、これはエッチングが片側からのみ行なわれるためと思われる。同様の場合、60°C における結果を Fig. 4 に示した。我々は、前者の場合、50°C、26% 水酸化ナトリウム溶液において、エッチング時間、140 分に設定して行なった。このときのエッチピット径は平均約 7 μm 程度である。

放電計数効率_{放電}は検出器に入射した α 粒子数に対する放電計数値の割合で、照射時に線源と検出器の間に挿入する減速材の種類と厚さによって異なる。ここでは減速材にポリカーボネートシートを使用し、その厚さと放電計数効率の関係を Fig. 5 に示した。減速材なしで検出器の照射を行なった場合、放電計数効率は 5% であるが、減速材に 20 μm 厚のシートを使用した場合に 44% と最高を示したので、以後、20 μm 厚のポリカーボネート

Fig. 2 Spark counts as a function of etching times (LR-115 Stripping film was stripped before etching).

を用いた。この場合、通過した α 線のエネルギーは約 2.6 MeV であった。

α 線照射量と放電計数値の間の関係を Fig. 6 に示した。これより、放電計数値 1,000/cm² まで比例関係があり、それ以上では飽和に達した。これは、 α 線照射量が多くなるとアルミ蒸着シートにあいた孔が重なり、蒸発孔中のエッチピットの計数が不可能となるためである。

Fig. 3 Spark counts as a function of etching times (LR-115 Stripping film was stripped after etching).

Fig. 4 Spark counts as a function of etching times (LR-115 Stripping film was stripped after etching and etched at different temperature).

Fig. 5 Efficiencies of spark counting as a function of moderator thicknesses.

Fig. 6 Spark counts as a function of irradiation times in cellulose nitrate.

2. 中性子フルエンスの測定

LR-115 Type II Stripping B フィルムを用いて, 中性子フルエンスを測定し, 放電計数値との関係を Fig. 7 に示した。この値はバックグラウンド計数 $200/\text{cm}^2$ を差引いた値である。なおバックグラウンド計数の相対標準偏差は 22% であり, これを考慮に入れると, 放電計数値で $44/\text{cm}^2$, つまり, 中性子フルエンス $2 \times 10^8 \text{ n}/\text{cm}^2$ から測定可能となる。また上限は LR-115 Type II

Stripping の場合とほぼ同様 $1,100/\text{cm}^2$ で, この間に中性子フルエンスとの間に直線関係が得られた。したがって, 中性子フルエンス約 $2 \times 10^8 \sim 4 \times 10^9 \text{ n}/\text{cm}^2$ の範囲で測定が可能である。検出感度は $K_s = N/\phi$ (N : 放電計数値 (counts/cm²), ϕ : 中性子フルエンス, (n/cm²), K_s : 感度) より, $K_s = 2.7 \times 10^{-7}$ (counts/n) である。なお照射場所 (中央照射孔) での Cd 比は約 11 であった。熱中性子を求める場合は速中性子の影響を差

Fig. 7 Relation between spark counts and thermal neutron fluence in cellulose nitrate (LR-115 Stripping B).

引く必要がある。この方法はウランターゲットを用意する必要がないという利点がある。

IV ま と め

放電計数法による α 線飛跡検出について、KODAK LR-115 Type II および LR-115 Type II Stripping について放電計数特性を調べた結果を得た。

1) エッチング条件は(両者、ポリエステルベースより硝酸セルロースをはがしてエッチングを行なったものについて)、26% 水酸化ナトリウム溶液で、温度 50°C 、エッチング時間 140 分が適当であった。なお、ポリエステルベースに硝酸セルロースを付着したままでエッチングした場合、前者の 140 分における放電計数値が得られるエッチング時間は 1.5 倍になった。

2) 放電計数時の開孔電圧および計数電圧はそれぞれ 600 V, 425 V にした。

3) ^{210}Po 、 α 線照射時に使用する減速材のポリカーボネートの厚さは、 $20\mu\text{m}$ を用いたものが放電計数効率で最高であった。なお、この時の α 線のエネルギーは約 2.6 MeV であった。

5) LR-115 Type II Stripping B を用いて中性子フルエンスの測定を行なった結果、 $2 \times 10^8 \sim 4 \times 10^9 \text{ n/cm}^2$ の範囲で測定可能であった。

この研究に協力いただきました、近畿大学理工学部原子炉工学科卒業生、磯部泰久氏、畑田博一氏、保科重徳氏、中野浩彰氏、広兼千幸氏に感謝します。また実験材

料 (LR-115) の貸与および助言をいただきました京都大学原子炉実験所、鶴田隆雄氏、また、LR-115 Stripping フィルムについて技術上の助言をいただきました KODAK PATHÉ 社の LECART 氏にも感謝いたします。

参 考 文 献

- 1) W.G. CROSS and L. TOMMASINO; *Rad. Eff.*, **5**, 85 (1970).
- 2) D.R. JOHNSON, R.H. BOYETT and K. BECKER; *Health Phys.*, **18**, 424 (1970).
- 3) K. BECKER, M. ABD-EL RAZEK; ORNL-TM-4460 (1974).
- 4) K. BECKER, M. ABD-EL RAZEK; *Nucl. Instrum. Methods*, **124**, 557 (1975).
- 5) P.B. HAHN, M.A. WECHTER and A.F. VOIGT; *Nucl. Instrum. Methods*, **123**, 111 (1975).
- 6) 御座精二, 鶴田隆雄, 桂山幸典, 森嶋彌重, 河合 廣; 日本保健物理学会第 13 回発表会要旨集, P. 12 (1978).
- 7) 丹羽健夫, 森嶋彌重, 古賀妙子, 河合 廣, 保科重徳, 西脇 安; 日本保健物理学会第 12 回発表会要旨集, P. 13 (1975).
- 8) 森嶋彌重, 古賀妙子, 丹羽健夫, 本田嘉秀, 河合 廣, 長野文彦, 西脇 安; 保健物理, **10**, 141 (1975).