

総 説

固体飛跡検出器に関する最近の研究の動向

森 嶋 彌 重, 古 賀 妙 子
丹 羽 健 夫, 河 合 廣

Recent Trend of Researches on Solid State Track Detectors

Hiroshige MORISHIMA, Taeko KOGA
Takeo NIWA and Hiroshi KAWAI

(Received November 4, 1982)

ABSTRACT

Some topics of the 11th International Conference on Solid State Nuclear Track Detectors, held at Bristol, UK, 7-12 September 1981, are introduced. Papers presented are classified according to detector materials, automated track counting methods, radiating particles, etching methods and applications. One third of detector materials investigated are allyl di-glycol polycarbonate (CR-39), which is recently recognized as a sensitive alpha or proton detector and cellulose nitrate seems to give way to CR-39.

Application to track autoradiography is suggested as a promising one.

KEYWORDS

Solid state nuclear track detector, Allyl di-glycol polycarbonate (CR-39), Neutron dosimetry, Radon monitoring, Track autoradiography, Automated analysis system

1. はじめに

1960年代の初め, Price 等による化学的エッチング法の導入によって絶縁性固体による荷電粒子の記録の技術法は一躍その応用範囲を拡げ粒子線測定, 地質学, 生物学, 宇宙物理学, 考古学, 微量元素分析, オートラジオグラフィなど各方面に急速に利用される様になった¹⁾。1977年には粒子トラック専門の雑誌が出版され, 1979年に“Nuclear Tracks”と改名されて今日に至っている。一方絶縁性固体による飛跡検出法に関する国際学会もひんぱんに開催され, 1979年にリヨン, パキスタンで開催された。これら最近の研究の動向を1981年9月, 英国 Bristol で行われた固体飛跡検出器に関する第11回国際会議で発表された論文について“Nuclear Tracks”別冊²⁾に掲載された要旨を

もとに調査し, まとめたものである。Table 1 にその概要をまとめ示した。これによると基本的機構, 実際使用されている検出物質, 固体飛跡検出器の応用お

Table 1 Abstracts of papers presented at the 11th International Conference on Solid State Nuclear Track Detectors, held at Bristol, UK, 7-12, September 1981

Session 1	Fundamental mechanisms
Session 2	Practical detectors
	1 New detectors
	2 Emulsion
	3 Polymers
	4 Glasses and minerals
Session 3	Applications
	1 Fission track dating
	2 Reactor environment and neutron dosimetry

3 Radon monitoring
4 Detection of uranium and mapping
5 Medicine and biology, -spectroscopy and LET spectra
6 Microfilters
7-12 Atomic, nuclear, particle and cosmic ray physics
8 Nuclear fragmentation
9 High energy nuclear reactions
10 Novel situations
11 and 12 Meteorites and cosmic rays
Session 4 Automated analysis systems
Supplementary papers

よび自動計数システムのセッションに分けて行っている。この国際会議には **Table 2** に示した様に東欧、ソ連を含む世界各国、約27ヶ国、192の研究所より多彩な研究が発表された。英国、米国、西独を筆頭に約30件、日本からは早稲田大学の浜崎、道家氏および日本大学、小倉、玉井氏等がいずれも CR-39 検出器を用いた研究を発表している。

Table 2 National distribution of the survey.

England	33	Sweden	3
United States	30	Japan	2
West Germany	29	Australia	2
France	15	Pakistan	2
India	11	Czechoslovakia	2
Yugoslavia	8	Greece	1
China	8	Switzerland	1
Austria	8	Israel	1
Hungary	7	Romania	1
Mexico	7	USSR	1
Italy	5	Turkey	1
Ireland	5	Finland	1
Iran	4	Egypt	1
Spain	3		

2. 固体飛跡検出用物質

固体飛跡検出法は鉱物などの結晶や無機ガラス、プラスチックなどの絶縁性固体表面に α 線などの荷電粒子が入射すると粒子飛跡に沿って電離や励起が生じ放射線損傷が残る、その飛跡を計数するものである。その際の損傷の程度は飛跡検出用物質、入射粒子の種類、性質およびエネルギーなどに影響される。その中の一つの検出用物質に用いられたものについて **Table 3** に示した。これを大別すると左欄のプラスチック類

Table 3 Registration materials used by number of researchers.

CR-39	50	Mica	12
Polycarbonate film		Glass	
Lexan	9	Phosphate	3
Makrofol KG	7	Soda	8
Tuffak	1	Silicate	1
The other	22	Borate	1
Cellulose Nitrate		Apatite	5
LR-115	13	Quartz	1
Daicel	2	LiF	1
CA 85-15	1		
Cellulose			
Triacetate	1		
Polyvinyl			
Chloride	1		
Emulsion	6		
Gelatine	1		
Luminescent track detector	1		

および右欄の鉱物結晶、無機ガラスとなり、前者は一定エネルギーをもつ陽子やアルファ粒子などの軽粒子の検出も可能で、後者は核分裂片など重荷電粒子を検出できる¹⁾。これら使用された飛跡検出用物質はポリカーボネート、雲母、セルロース類で全体の7割を占めているが、多くの研究者はいずれも1種類以上の物質に興味を示している。

この中で CR-39 は新しい飛跡検出用物質として注目され全体の約30%、50件発表され、急進的な発展を遂げている。これはメガネのプラスチックレンズ材として用いられ、アリルディグリコールポリカーボネート(商品名 CR-39)で飛跡検出用物質として均質性が良く表面のきずが少なく、飛跡生成に必要なエネルギー付与に関する臨界エネルギー損失率の閾値が低い²⁾ため、陽子の検出も可能である。これを利用して速中性子による反跳陽子の検出評価に用いられ、検出可能エネルギー範囲が広いなど検出器として非常にすぐれている。

Table 4 に CR-39 の物理、化学的特性を示し、日本ではソーラオプティカルジャパン社で製造されており、厚みは 1.6 mm、光の透過率が大きく組成成分の均一性が高い。

いままで鉱石やプラスチック製品を検出器として用いてきたが、最近では研究者自身が検出器素材を製作、開発し研究を行っており、それらについて **Table 5** に示した。ユーゴスラビアの M. Najžer は金属中の

Table 4 Physical and chemical property of CR-39

1. $C_{12}H_{18}O_7$, (m. w. 274.3)
2. $CH_2=CH-\overset{\overset{O}{\parallel}}{C}-O-CH_2-CH_2-O-CH_2-$ $-CH_2-\overset{\overset{O}{\parallel}}{C}-O-CH_2-CH=CH_2$
3. S.g.: 1.32 (25°C)
4. Allyl di-glycol polycarbonate
5. Refractive index at 20°C: $n_D=1.504$
6. Specific Heat, cal./g · °C: 0.55
7. Water absorption, 24 hrs/25°C: 0.2

Table 5 Production of Detector Film

Gelatine dyeing with ink	M. Najzer
Thin CR-39 detector film	G. Somogyi
5-70 μm thick film of CR-39	D. L. Henshaw
Development of thin CR-39 detector films for spark counting	E. Pitt
Sensitivity of several SSNTD	Lj. Vasiljevic
A track etch detector in Boron loaded plastic capsule with different Boron thickness	G. M. Hassib

ホウ素の分布を (n, α) 反応で生成した α 粒子をゼラチンに記録して調べた。ゼラチンはインクで染色し、コントラストを良くしている。D. L. Henshaw (アイルランド) は CR-39 の感度に関する研究を続け 0.5~70 μm 厚の薄いフィルムを作製し、良い一様性を得ている。G. Somogyi も同様に行い、E. Pitt (西独) は反跳陽子トラックの放電計数を行うために薄い CR-39 フィルムを作り、35 μm 厚 CR-39 と 150 μm 厚のポリエステルを合せた板を検出器としてエッチングを容易にしている。その他、熱、中速および速中性子とエネルギー別にホウ素を色々な厚さに塗布したプラスチックカプセル内に検出器を入れ、新しい個人用アルベド中性子線量計として工夫および開発を行っている。

3. 飛跡計数法

白雲母中に生じた核分裂片飛跡は電子顕微鏡観察で幅 1~5 nm, 長さ約 20nm を有するが、フッ化水素酸で表面処理をすると飛跡は光学顕微鏡で観察可能な

幅 0.1 μm 以上まで拡大される²⁾。

粒子トラックの計数は通常適当な化学薬品で処理した後光学顕微鏡で観察し行う。Table 6 に示したように測定は光学顕微鏡を用いた肉眼による計数がほとんどで、自動計数系および放電計数によるものは13件と全体の10%以下である。この他化学エッチングにパルス電流を印加して行うエレクトロケミカルエッチングが開発されエッチピットをより拡大して計数する方

Table 6 Methods of image enhancement and data acquisition

Optical microscopy (Manual)	117 (29)
Electrochemical etching	20 (5)
Autoradiography	11 (8)
Automatic scanning devices	9 (1)
Spark counting	4 (1)
Electron microscopy	5
LET spectrometry	3 (2)
Microfilter	2
Photographic assessment	2
Breakdown counting	1
Optical density measurement	1
Optical microscopes with television monitors	1
Use of fluorescent dyes	1
X-ray CT image	1
IR, UV and ESR analysis	1 (1)
Electret	1

法も20件報告された。しかし光学顕微鏡観察は高トラック密度で、試料数が少ない場合には有効であるが、低トラック密度で多数の試料を処理する場合にはかなり面倒で時間がかかるため、計数法を自動化する工夫が色々行われ、Table 7 に示した。これによると電子顕微鏡および光学顕微鏡にテレビジョンあるいは映像解析装置を組合せ、ブラウン管上のトラック像を表示し計数する方法、マイクロプロセッサなどスキニング装置、テレビジョン映像器、コンピュータを用いる法、またトラック密度が高く、白雲母、プラスチックなど透明な検出器の場合にはトラック飛跡を透過度の差をマイクロデンシトメータなどで測定しコンピュータで判断するシステム、顕微鏡観察では見逃しやすい浅いピットなどの計数にレーザー光干渉装置と合せて計数する方法などが挙げられている。

Table 7 Automated analysis System

Computerized image analysis	E. V. Benton et. al. (USA)
Buffon needle method (Scanning electron microscopy)	R. Gold (USA)
Microscope employing Laser Interferometer	J. H. Adams (USA)
Readout electronically (Reticon)	P. B. Price (USA)
Optical method	J. H. Roberts (USA)
Microdensitometer Computer ensemble	J. Lira (Mexico)
Video picture analysis system (Microscope)	W. Heinlich (West Germany)

しかしいずれの自動計数系に構成されている装置もかなり高価であるし、トラックが円形に観察され、適当な密度に散在している場合にはよいが、方向性のある直線状のトラックが重なりあっている場合には自動計数は解析しにくい。

自動計数の一つに放電計数法があり、低トラック密度の試料の場合に、トラック飛跡よりも薄いプラスチック検出フィルムを用い、エッチング後、アルミニウム蒸着ポリカーボネートフィルムと金属電極板にはさみ、両極に高圧をかけ、トラック点で放電をおこしAl電極を蒸発させ次々と生じる放電を計数する。この会議では4件報告され **Table 8** に示した。

Table 8 Spark Counting

L. Tommasino (Italy)	Electrochemical etching
H. Böck (Austria)	Jumping spark counting system
E. Pitt (West Germany)	Makrofol KG, CR-39+Polyester
M. Varnagy et. al. (Hungary)	Makrofol KG (12 μm thick) Jumping spark counting system

これによると L. Tommasino はエレクトロケミカルエッチング後に放電計数を行い、検出フィルムは Makrofol KG 5~12 μm 厚の薄いフィルムを、そして E. Pitt は CR-39 の薄いものとポリエステルシートを合せたものを作製し行っている。

4. 固体飛跡検出法の研究分野

固体飛跡検出法は放射性同位体自身が荷電粒子の放出を行うものあるいは核反応を利用し荷電粒子を発生させる確率の高いものを含んでいるものについて可能となる。 **Table 9** に示した様に ^{226}Ra および ^{222}Rn など天然および人工の α 放射性核種および (n, α) 核反応による α 粒子および ^{252}Cf , ^{235}U , ^{238}U , ^{232}Th な

Table 9 Particles studied

Fission fragment	40
Alpha particle	41
Heavy particle ion	18
Cosmic ray	10
Recoil nuclei	10
Proton	5
Triton	1
Meson	1

どによる核分裂反応によるものが全体の約60%以上を示し、この他、反跳核による速中性子の検出も可能となり、 β , γ 線を伴う混合放射線場においても妨害なく行える。また最近ではラドンの測定がめざましく16件を示している。

4.1 基礎的特性に関する研究

検出法における基礎的特性としてエッチング条件を明記しているものについて **Table 10** に主なものを示した。エッチングは検出物質におけるトラックエッチ

Table 10 Etching characteristics of SSTD films.

Detector films	Etching condition
CR-39	20% KOH soln, 10% NaOH soln, 70°C 6N-NaOH soln, 70°C 6.25N-NaOH soln, 6N KOH-30% CH_3OH soln,
LR-115	60°C 30%KOH soln, 2hrs
Lexan	PEW soln (15gKOH, 40g $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$, 45g H_2O)
Glass (Soda)	12% HF+24% H_2SO_4 + H_2O (12:2:9)
Makrofol KG	6N-NaOH soln

ング率に対するバルクエッチング率の比が大きいほど望ましく、同エッチング剤においても温度、濃度その他の条件によって大きく影響を受ける。エッチング試薬には水酸化カリウム (20% KOH soln.) 水酸化ナトリウム (10% NaOH soln.) などが使用されているが、二つ以上の試薬の混溶液を即ち沸酸と硫酸の混液をソーダガラスのエッチングに、また Somogyi は Lexan のエッチングに PEW 溶液 (KOH およびエタノール混液) および過マンガン酸カリウムのアルカリ溶液を使用している。T. Singh らはプラスチック上に生じたトラックのエッチングに水酸化バリウム溶液を用い良い効果を得ている。このようなエッチング条件などの他、検出器自身の物性に基づく因子、トラックに沿う損傷に依存する入射粒子の種類およびエネルギーなどが、固体飛跡検出法におけるトラックの表面密度およびトラックの質 (トラックの長、径、円錐の向き) に影響を及ぼす。この方法は化学分析のような分離精製操作を必要としないで検出器に記録されたトラック密度の計数を行い微量元素の濃度および分

布の程度も測定するなど色々な分野に応用される。分野別に見るとトラックの形成、エッチング特性など基礎的研究が83件と全体の約50%を占めている。これを **Table 11** に示す。次に中性子線量測定、微量元素定量分析および年代測定などが続く。新検出器 CR-39 による研究については () 内に示している。

4.2 中性子線量測定

特に原子炉施設周辺の中性子線量測定を目的としているものが多く、核分裂性核種と飛跡検出物質との組合せで熱または速中性子束密度測定に有効で、電子、陽子、 α 粒子など軽粒子の妨害をほとんど受けず、 r 線に対しても光核反応をおこすような 5 MeV 以上のエネルギーをもつものでないかぎり影響しない。測定範囲も核分裂性物質質量を加減することにより拡げることが可能で個人被ばく線量測定にも利用出来る。**Table 12** に中性子線量測定に用いた飛跡検出物質などについてまとめた。速中性子に対しても核分裂性物質としてトリウムや ^{235}U と検出用フィルムの組合せにより行うもので、この場合、核分裂性物質が国際規制物質として計量規制を受ける場合も生じるし、線量計として、これらの組合せの検出器を利用者に配布した場合、紛失など管理者が不必要な神経を使わなければならない。しかしこの分野においても新検出物質としての CR-39 が利用され約半数を占めており、これは CR-39 単独の使用で速中性子とにより生じる反跳核の飛跡を測定するものである。この他、(n, α)、(n, p) 反応を利用した中性子線量測定が出来る。G. M. Hassib は (n, α) コンバータとしてホウ素を添加したプラスチックカプセルとともに中性子場におき、色々なホウ素の厚みの違いにより、熱、中速、速中性子線量を選択的に測定出来るアルベド線量計について報告している。また欧米では広く中性子線量測定に固体飛跡検出器を利用し計数の面倒を避けるため自動計数法が適用されている。

4.3 ラドンおよびウランなど微量元素の定量分析

飛跡検出物質上に生じるラドンよりの α 粒子飛跡およびウラン-235と熱中性子で生じる核分裂片飛跡を計測し目的元素の濃度を定量出来る。核分裂性核種 ^{235}U を含む天然ウランの定量分布、自発核分裂性物質 ^{252}Cf 、超ウラン元素で核分裂反応断面積の大きい核種 ^{239}Pu の定量や分布に関する研究が広く行われている。これは α 放射能測定するよりもさらに高感度に微量定量出来ると報告されている。

Table 11 Areas of Interest (using CR-39)

Basic research (Track formation, Track characteristics)	83 (21)
Neutron dosimetry	16 (8)
Radon determination	16 (8)
Uranium assay and distribution in environmental sample	16
Dating studies	12 (5)
Autoradiography	9
Fission fragment irradiation research	5 (1)
Cosmic ray	5 (2)
Isotopic abundance	3
Cross-section measurements	3
LET spectrometry	3 (3)
Distribution of boron in geological samples	2 (1)
Environmental alpha particle detection	2 (1)
Biological dosimetry	1
Radiation damage	1
Distribution of light isotopes in metal	1
Neutron spectrometry	1 (1)
Alpha spectrometry	1 (1)
Neutron reaction studies	1 (1)
Survey of radioactive contamination	1
Proton dosimetry	1

Table 12 SSTD methods for neutron dosimeter

Researcher	Detector material	Remarks
H. Böck et. al.	Makrofol KG	Fission fragment, Jumping spark counting
J. H. Roberts	Quartz crystal	// Optical
Shi-Lun Guo	Glass	// Optical
N. Segovia	Plastic recorder	// Optical
M. M. Dhawan	—	// //
L. Huantie	Polycarbonate	Recoil proton, // , Spark counting
F. H. Ruddy	CR-39	Recoil proton, Spark counting
S. Faermann	CR-39	
G. Somogyi	CR-39	//
E. Pitt	CR-39 (+Polyester)	// , Spark counting
H. Francois	Nuclear Emulsion	//
K. G. Harrison	CR-39	ECE, Short pre-etching, low BG
J. C. H. Miles	Landauer Neutrak-144	CE, 10-20 mrem,
M. A. Kenawy	CR-39-LiF (albedo, system)	Effective over full range of neutron energy
J. Palfavi	LR-115	In a water filled elliptical phantom
L. Vasiljevic	LR-115 (12 μ m)	Sensitivity in dependence of neutron energy
S. A. R. Al-Najjar	CR-39	Neutron energy 148 keV-6MeV
G. M. Hassib	—	New personnel albedo neutron dosimeter

Makrofol E, CR-39 などある種のポリカーボネートフィルムを用いて肥料, 植物, 岩石など環境中の天然ウランの定量および分布を観察している。

R. L. Fleischer らは地中のラドン量の移行を観察してウラン鉱床の探求および地震の予知に利用している。すなわちアルゴン, ラドンなどの希ガス成分の変化が地震など地殻応力の変化にもっとも早く応答することより地震の予測のシグナルとなる。

このようにこの技術を利用して環境中のラドンを測定する場合, 飛跡検出器を定期的にとりかえる必要があり, 測定場所が遠方の時, 冬期には重大な問題である。この点で M. Monnin らはラドン測定の自動化に当り, 検出用フィルムを電池で交換を行うシステムを考案し, 数ヶ月以上の試料を集めて測定できる装置を開発している。一定期間ラドン測定個所にフィルムを設置, 露出し, その後フィルムはラドンのない空気中に貯蔵し集め, 回収後まとめて計数する。

ラドン測定に広く利用されている検出器を **Table 13** に示したが, 従来は白雲母, ポリカーボネートなどが多く使われていた。これによると最近この分野においても CR-39 が 8 件と目立っており, α 線用検出用フィルムとして用いられている LR-115 (硝酸セルロース) の利用を上廻っている。CR-39 は硝酸セルロースと同様一定範囲のエネルギーをもつ陽子やアル

Table 13 Registration materials used on radon determination

CR-39	8
LR-115	5
Polycarbonate	1
Polyvynyl chloride	1
LA 80-15	1

ファ粒子など軽粒子の検出が可能で, 欧米, パキスタン, エジプトなどで広範囲に研究されている。

4.4 医, 生理学における応用

飛跡検出物質に Lexan を用い核分裂性元素, ^{239}Pu , ^{235}U , 天然ウランの組織中のマイクロ解剖学的分布を観察する中性子誘導オートラジオグラフィの研究は J. H. Whatt, T. J. Tenner などが行い, α 放射性核種の生物組織中の分布を CR-39 などを用いて行う α トラックオートラジオグラフィについて, W. R. Ellis, W. Hofmann, A. P. Fewes などが行い, 医, 生理学における応用が広く開発されている。

4.5 新技法について

(1) CR-39 を固体飛跡検出物質としての利用は日

本においても近年めざましいものがあり、今回は二件発表されている。日本大学ではエッチング特性などについて、早稲田大学は宇宙線の検出に用い感度の一様性、およびレスポンス曲線を研究している。CR-39は飛跡検出器としては大層均質性がよく、表面のきずが少なく、トラック生成の閾エネルギーが低いため利用の範囲が広い。この他 CR-39 モノマーにフタル酸ディオクテルなどを添加したものを作製し研究をしているが、より透明となりエッチピット錐は単一な形となり計数が容易となる。この様に添加物として色々な物質を試験してより適した物質を改良し、選択が可能となる。

(2) 英国の P. Mapper らは V.L.S.I の Si 記憶装置中のソフトウェアの問題を研究する方法としてトラックオートラジオグラフィを用いている。天然放射性核種であるウラン、トリウムが微量の不純物として存在するとこれらの α 粒子の通過により一時的にピットの位置を変化、ソフトウェアを生じるものである。そこで装置の成分物質中のウラン、トリウムの存在の確認を、光学顕微鏡の観察により行っているが、検出ホイルを薄くして数 μm 程度にすれば放電計数法が可能となり、面倒なく低濃度の測定が行える。しかし、逆に計数可能な上限が低いので検出器の照射時間の加減が必要となる。

(3) これらはいずれも飛跡の計数に際して化学エッチングを必要としている。この面倒なエッチングをなくし、直接計数する電氣的絶縁破壊計数法をイタリアの L. Tommasino らが開発している。飛跡検出物質として二酸化ケイ素などの薄膜コンデンサーを用い、計数時の印加電圧も 30V と乾電池でも可能で検出範囲も $\sim 10^5/\text{cm}^2$ まで拡がり、携帯型の線量計としての可能性がある。

5. ま と め

固体飛跡検出法の発展は著しく、適用範囲はますます拡がり、世界各国いろいろの分野で研究され、新しい飛跡検出物質などの開発により今後更に関心が向けられる。透明で均質性が良好で検出を目的とする元素や他の放射性核種を含まず、エッチング処理が容易なものが望まれている。今回はプラスチックレンズ材として多用されているアクリルディグリコールポリカーボネートが速中中性子による反跳陽子の検出評価などに広く利用されている。この様に反跳核の検出は画期的な進歩であり、さらに添加剤による改良に関する研究が進められている。

現在でも固体飛跡の観察、計数において多種の自動計数法が、多数の試料をルチンに処理するために開発されているが、今後の研究最大の課題となると思われます。

— ○ —

この総説は「固体飛跡検出器、最近の研究の動向」として昭和57年6月12日、日本原子力学会「環境放射線」研究専門委員会第9回会合において口頭発表したものをまとめたものである。

参 考 文 献

- 1) 阪上正信；粒子トラックとその応用，南江堂 (1972)
- 2) Nuclear Tracks, 5, 4, Pergamon Press (1981)
- 3) Solid State Nuclear Track Detectors ; Proceedings of the 11th International Conference, Bristol, 7~12, Sept. (1981)