

論	文
---	---

染色 CR-39 飛跡検出器の特性

鶴田 隆雄

Characteristics of Dyed CR-39 Nuclear Track Detector

Takao TSURUTA

(Received September 30, 1988)

CR-39 plastics plates were dyed red, blue, yellow and black. After alpha-particle irradiation, the dyed plates were etched in an aqueous solution of 30% KOH, at 90°C for 1 to 8hr. Etch-pits were then counted using an optical microscope. It was observed that the dyeing made etch-pits clear. Bulk etching rate was reduced slightly as a result of the dyeing. The dyeing had no effect on alpha-particle detection efficiency. Dye of 0.5%, 90°C and 5 to 10hr. was recommended as the optimum dyeing conditions.

KEYWORDS

dyeing, CR-39, solid state nuclear track detector, alpha-particle, irradiation, etch-pit, bulk etching rate, detection efficiency.

I 緒 言

アリル・ジグリコール・カーボネイト樹脂, すなわち CR-39 プラスチックが, 重荷電粒子飛跡の検出素材として極めて良好な性質を備えていることが発見されてから, 丁度十年が経過した¹⁾。この間, CR-39 プラスチックは放射線計測に関連する種々の分野で検出器としての利用が試みられ, これまでの検出器になり種々の特長が明らかにされ, その特長を発揮し得るいくつかの分野では日常的な利用が開始されてきている。放射線防護の分野では, 中性子線量測定と空気中のラドン濃度の測定での利用が顕著な応用例である。CR-39 プラスチックにポリエチレンを密着させた検出器を使った高速中性子線量測定サービスが, 数年前から我国でも開始されている。また, CR-39 プラスチックを検出器とし, カップ法と呼ばれる測定法により, 日本全国各地の家屋内のラドン濃度の広域的サーベイが実施されつつある。

固体飛跡検出器中の重荷電粒子飛跡の計数には, 一般的に検出器の厚さに応じて 3つの方法がある。10 μm 程度の薄いフィルムの場合, 化学エッチングして得られるエッチピットを放電計数装置を用いて電氣的に自動計数することができる²⁾³⁾。100 μm 程度のフィルムの場合, 電気化学エッチングして得られる比較的大きなエッチホールを低倍率の投影機等で拡大して直接目で計数することができる⁴⁾。それ以上の厚さの板の場合, 化学エッチングして得られるエッチピットを光学顕微鏡を用い, 直接目で計数し, または光学的画像解析装置を用いて自動計数および自動計測することができる⁵⁾。

CR-39 プラスチックを化学エッチングして得られるエッチピットは, ポリカーボネイト, 硝酸セルロース等他のプラスチックのエッチピットに比べれば, 明瞭で計数しやすい。しかしながら, エッチピットは無色透明なガラス状物質表面に生じた小さなくぼみに過ぎないので, エッチングが進行し, くぼみの曲率が小さくなった場合など, コントラストが弱く, 計数しに

くことがある。エッチピットのコントラストを強め、計数を容易にするために、検出器を着色する試みがある。硝酸セルロースプラスチックの場合、淡いバラ色に着色したもの (CA 80-15) や濃い赤色に着色したもの (LR-115) が市販されている⁶⁾⁷⁾。CR-39 プラスチックの場合、まだこのような着色の試みはない。そこで、より明瞭で計数しやすいエッチピットを得ることを目的として、CR-39 プラスチックを種々の条件で染色し、その染色特性ならびに染色したプラスチックのエッチング特性および飛跡検出特性を調べることとした。

II 実験材料および実験方法

1. CR-39 プラスチックの染色

CR-39 プラスチック 材料としては、ソーラ・オプティカル・ジャパン社製の面積 54×56 cm, 厚さ 1.6 mm の無色透明な板を用いた。その組成は、アリル・ジグリコール・カーボネイト 97%, 重合開始剤としてのジイソプロピール・パーオキシ・ジカーボネイト 3% である。この板を 6×4 cm の大きさに切断し、両面染色の場合はそのまま染色液に浸した。片面染色の場合は 2 枚を密着させ、周囲に接着剤を塗って密着面に液が浸透しないようにしてから染色液に浸した。

使用した 3 種類の染料および分散剤の名称は次のとおりである。

赤 : Miketon Polyester Scarlet 3R

黄 : Diacelliton Fast Yellow GL

青 : Serilene Dark Blue GN 150

分散剤 : CIBA-GAIGY Ultra Von WJA

赤, 黄, 青の染料は, そのまま赤色, 黄色, 青色に染める染料として使用することができる。また, 黒色に染める場合は, 赤, 黄, 青の染料を 3:3:4 の割合で混合して用いる。染色液は, ガラス容器に入れたイオン交換水に 0.5% または 1% の染料と 5 ppm の分散剤を溶解したものである。ガラス容器をオイルバスに入れることによって, 染色液の温度を 90°C に保持した。CR-39 板を染色板に浸した時間は, 0.5, 1, 2, 5 または 10 時間である。これらの染色時間経過後, 板を染色液から取り出し, 水洗し, 接着剤を除去し, その後 100°C で 30 分間乾燥させた。

2. α 線照射

α 線源として, 日本アイソトープ協会製の Ra-DEF 線源を使用した。 1×3 cm 程度の大きさに切断した

CR-39 板の着色面を上向きにして机上に置き, その上に厚さ 1 cm のアルミニウム製のスペーサーを置き, その上に線源を下向きに置いて α 線照射を行った。円形の面線源の中心軸が板表面と交わる位置付近において, α 線は板にはほぼ垂直に入射する。板に入射する α 線のエネルギーは約 4 MeV である。 α 線の入射密度は, 線源の壊変強度, 線源の半径, スペーサーの厚さおよび照射時間から計算で求めることができる⁹⁾。

3. エッチングおよびエッチピットの計数

α 線照射後, 着色 CR-39 板を 90°C の 30% KOH 水溶液中で 1~8 時間エッチングした。エッチングの前後に, 同じ乾燥条件において板の厚さをマイクロメータで測定し, その差の 2 分の 1, すなわちバルクエッチングを求めた。エッチング後, 板の巨視的表面状態を目視で観察した後, 100~400 倍の光学顕微鏡を用いて板の微視的表面状態とエッチピットを観察した。さらに, エッチピットの計数を行ない, その表面密度と α 線の入射密度から検出効率を求めた。

III 実験結果および考察

1. 染色特性

染料の濃度が 0.5% で 90°C の染色液中に 5 時間浸して調製した, 各色の片面染色 CR-39 板を Fig. 1 に示す。このうち黄色と青色に染色した板を 1 時間から 8 時間までエッチングした後の色の変化を Fig. 2 と Fig. 3 に示す。また, Fig. 4 の (a) と (b) には, 黄色に片面染色した板を 2 時間または 4 時間エッチングした後, 100 倍の光学顕微鏡で観察したときのエッチピットの様子を示す。更に, Fig. 5 と Fig. 6 には, 種々の条件で片面染色した赤色と黒色の板を 1 時間から 8 時間までエッチングした後の色の変化を比較して示す。

染料の濃度が 0.5% の液中で, 0.5 時間染色すると, CR-39 板のごく表面に近い層のみが染色された。これは, 1 時間程度の短いエッチング時間で染色した色が消えてしまうことから分かり, どの色についても共通に言えることである。染色時間を 1, 2, 5, 10 時間と増加させてゆくと, エッチングされる層の厚さは次第に増加する。染色の時間を 5 時間から 10 時間に延長したとき, 染色される層の厚さがどの程度変化するかは, Fig. 5 と Fig. 6 のそれぞれ (a) と (b) または (c) と (d) を比較することにより読み取ることができる。後述

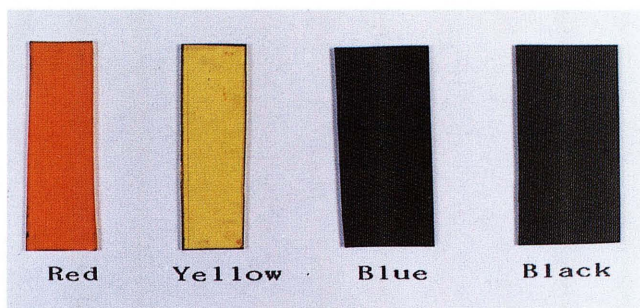


Fig. 1 Dyed CR-39 plates
Dyeing conditions: 0.5%, 90°C, 5hr.

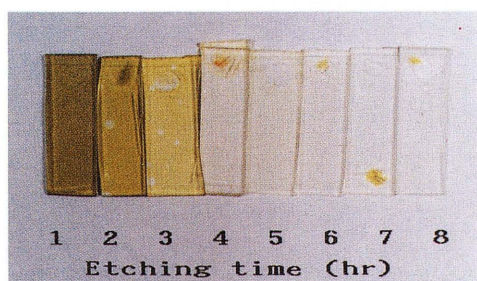


Fig. 2 Etched yellow dyed CR-39 plates
Dyeing conditions: 0.5%, 90°C, 5hr.
Etching conditions: 30% KOH, 90°C.

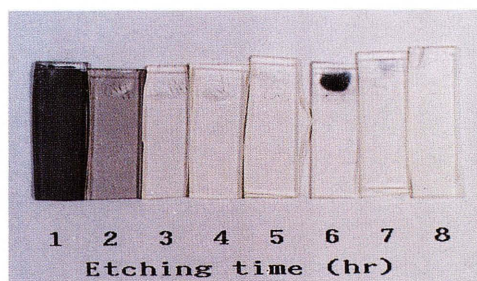


Fig. 3 Etched blue dyed CR-39 plates
Dyeing conditions: 0.5%, 90°C, 5hr.
Etching conditions: 30% KOH, 90°C.

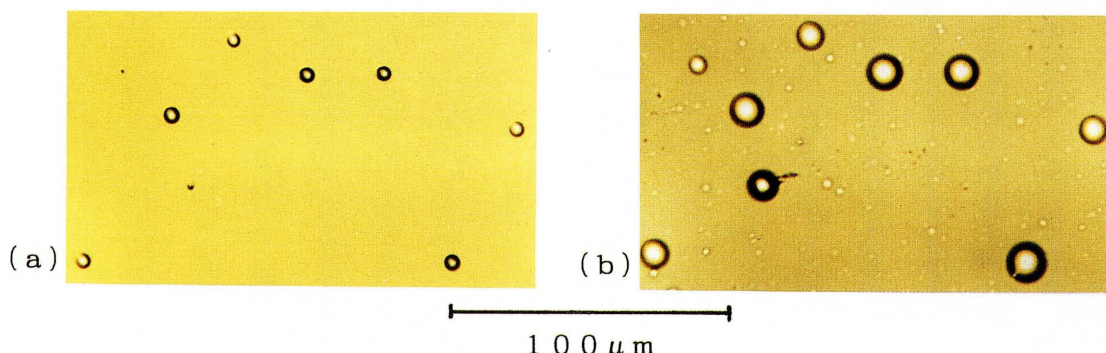


Fig. 4 Etch-pits on yellow dyed CR-39 plates
Dyeing conditions: 0.5%, 90°C, 5hr.
Etching conditions: 30% KOH, 90°C.
Etching time: (a) 2hr. (b) 4hr.

するように、バルクエッチングすなわちエッチングに伴う板表面の溶出厚はエッチング時間にはほぼ比例するので、長いエッチング時間色の褪せない板はそれだけ深く染色されていたと考えてよい。10時間程度までは、染色時間にはほぼ比例して染色される層の厚さが増加すると考えられる。染色が確認できる最深部の移動速度を染色速度と定義すれば、0.5%、90°Cの染色条件における染色速度は約 10 μ m/hr. と見積もられる。

染色液中の染料の濃度を増加させても、同じ染色時

間内に染色される層の厚さを増加させることができる。染料の濃度を0.5%から1%に増加させたときの効果は、**Fig. 5** と **Fig. 6** のそれぞれ(a)と(c)または(b)と(d)を比較することにより、読み取ることができる。この程度の濃度になると、濃度が2倍になっても染色される層の厚さが2倍になるといった大きな効果は期待できない。また、濃度が1%以上になると染色中に染料が板表面に析出し、染色むらを生じることがある。したがって、染料の濃度は0.5%程度以下に留め

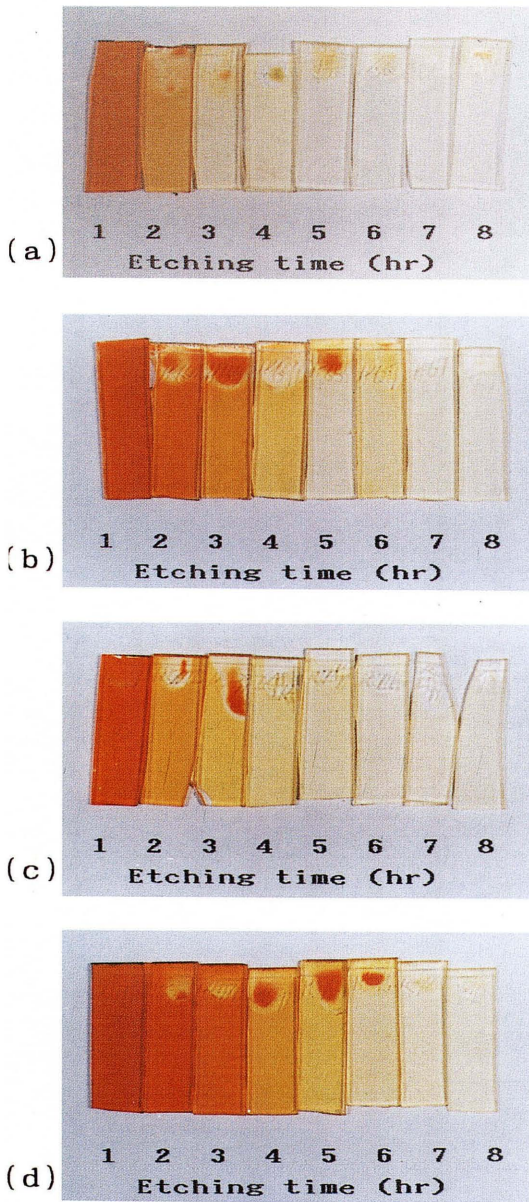


Fig. 5 Etched red dyed CR-39 plates
 Dyeing conditions: (a) 0.5%, 90°C, 5hr.
 (b) 0.5%, 90°C, 10hr.
 (c) 1%, 90°C, 5hr.
 (d) 1%, 90°C, 10hr.
 Etching conditions: 30% KOH, 90°C.

ておくのが良いと考えられる。

2. バルクエッチング率

染料の濃度が0.5%の染色液中で5時間、両面染色

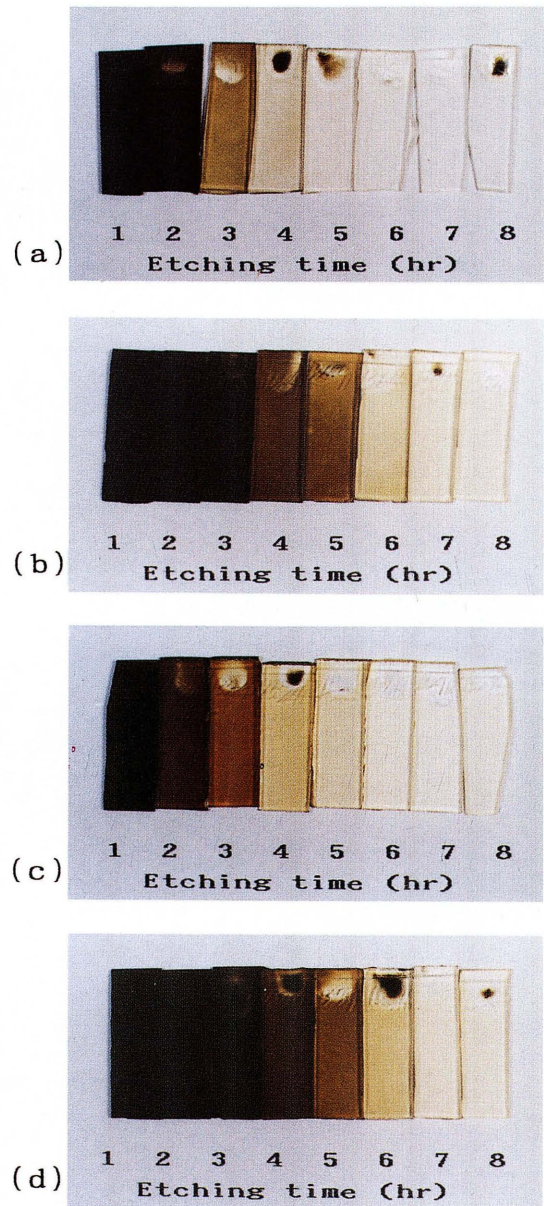


Fig. 6 Etched black dyed CR-39 plates
 Dyeing conditions: (a) 0.5%, 90°C, 5hr.
 (b) 0.5%, 90°C, 10hr.
 (c) 1%, 90°C, 5hr.
 (d) 1%, 90°C, 10hr.
 Etching conditions: 30% KOH, 90°C.

した各色の板を、1時間から8時間までエッチングしたときのバルクエッチングを、染色しない板の結果と共に、Fig. 7に示す。染色した板の場合、エッチング開始後2～3時間まで、すなわち染色層が溶出して

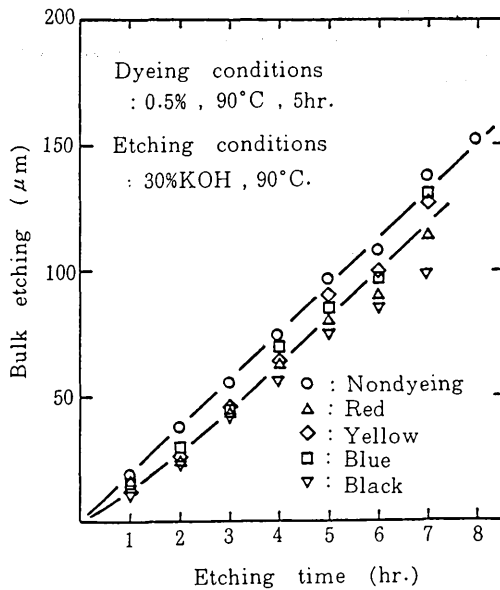


Fig. 7 Increase of bulk etching with etching time

る間は、バルクエッチング率がわずかに低下し、それ以降のバルクエッチング率は染色しない板のそれとほぼ同じであることが読み取れる。

3. α線の検出効率

Fig. 4 の(a)と(b)は同一の板の同一の部分で、エッチングの進行と共に各々のエッチピットがどのように成長し、表面状態がどのように変化するかを観察することができる。一般に、赤、黄、青の3色に片面染色した場合、染色された面に生成したエッチピットは無色の板に生成したエッチピットよりも明瞭で、計数しやすかった。その理由は、この3色の場合、染色してもまだ光の透過性が十分良好で、しかも染色層の深さに応じて着色に濃度勾配があるので、表面とエッチピットの間には、光の散乱によるコントラストの違いに、色の変化が加わり、それらの相乗効果が生じるためと考えられる。それに対して、黒色に片面染色した場合、エッチピットは無色の場合より判別しにくかった。その理由は、黒色の場合、光の透過性が極端に悪くなるためと考えられる。一方、両面染色の場合はどの色の場合も、生成したエッチピットは無色の板に生成したエッチピットよりも計数しにくかった。これは、ある色の光で同じ色の物質の濃淡を見分けることになってしまうためと考えられる。染色された層が溶出してしまった後の時点における、エッチピットの見え方は、染色した板でも染色しない板でもほぼ同じであった。

30% KOH, 90°Cのエッチング条件でエッチング時間が6時間を超えると、エッチピットのコントラストが低下すると共に表面の荒れが大きくなり、エッチピットの計数が困難になることがある。2時間から6時間エッチングした試料について、α線入射密度とエッチピット表面密度を比較した結果、両者はほぼ一致した。すなわち、4 MeV の垂直入射 α線の検出効率はほぼ100%で、染色しても変化しないことが分かった。

IV 結 言

CR-39 プラスチックの染色特性、エッチング特性およびα線検出効率を調べ、次の結論を得た。

- (1) 染料の濃度が0.5%, 90°Cの染色液を使って赤、黄、青等に片面染色を行えば、染色面により明瞭なエッチピットを生成させることができる。
- (2) 染色層の厚さと色の濃淡は染色時間を適切に選択することにより調節することができる。
- (3) 染色時間が10時間以内では、染色層の厚さは染色時間にはほぼ比例して増加する。染色速度は約10 μm/hr. である。
- (4) 染色により、バルクエッチング率はわずかに減少する。
- (5) 染色はα線の検出効率に影響を与えない。30% KOH, 90°C, 2~6時間のエッチング条件で、4 MeV の垂直入射α線の検出効率はほぼ100%である。

謝 辞

CR-39 プラスチックの染色の基本的事項についてご教示頂きましたソーラ・オプティカル・ジャパン株式会社村田織利氏、実験にご協力頂きました近畿大学理工学部天野博氏に感謝致します。

参 考 文 献

- 1) Cartwright, B. G. et al.: *Nucl. Instr. Meth.*, **153**, 487 (1978).
- 2) Cross, W. G. and Tommasino, L.: *Rad. Effects*, **5**, 85 (1970).
- 3) Tsuruta, T. and Takagaki, M.: *Health Phys.*, **43**, 705 (1982).
- 4) Tommasino, L. et al.: *Nucl. Tracks*, **4**, 191 (1981).

鶴田：染色CR-39飛跡検出器の特性

5) Majborn, B.: *Rad. Prot. Dosimetry*, **17**, 153
(1986).

(1984).

6) 鶴田隆雄：近畿大学原子力研究所年報, **21**, 69

7) 鶴田隆雄：近畿大学原子力研究所年報, **21**, 79
(1984).