

論	文
---	---

## 硝酸セルロース及び CR-39 プラスチック の $\alpha$ 粒子に対する臨界角の測定

鶴田 隆雄

### Measurements of Critical Angle for Alpha Particles in Cellulose Nitrate and CR-39 Plastics

Takao TSURUTA

(Received September 30, 1987)

CN-85 cellulose nitrate films and CR-39 plates were irradiated with  $\alpha$ -particles possessing energy from 2.4 to 4.7 MeV. Then CN-85 and CR-39 were etched with aqueous solution of 10% NaOH, 60°C and 30% KOH, 80°C, respectively, for 30-120 min. Bulk etching rate  $V_B$  was 3.5 and 6.8  $\mu\text{m/hr}$  for CN-85 and CR-39, respectively. Track etching rate  $V_T$  was obtained from measured increment rate of depth of etch-pits and  $V_B$ . Critical angle  $\theta_c$  was derived from  $V_B$  and  $V_T$  to be about 13° and about 20° for CN-85 and CR-39, respectively. It was found that decline of detection efficiency arose at incident angle considerably smaller than  $90^\circ - \theta_c$ .

#### KEYWORDS

critical angle, alpha particle, cellulose nitrate, CR-39, CN-85, bulk etching rate, track etching rate, etch-pit, detection efficiency, incident angle.

#### I 緒 言

ガラス、雲母、プラスチック等の絶縁性固体中の重荷電粒子飛跡は直径数 $\text{\AA}$  ( $1\text{\AA}=10^{-8}\text{cm}$ ) のシリンダー状の放射線損傷であって、電子顕微鏡を使えばこれを直接観察することが可能であるが、光学顕微鏡ではこれを直接見ることはできない。しかしながら、これらの放射線損傷領域は化学的活性を持っているので、重荷電粒子飛跡を持った固体を適切な化学物質の溶液中に浸すと、固体表面近傍の飛跡を蝕刻・拡大させ、光学顕微鏡で観察可能なエッチピットに成長させることができる。通常の化学エッチングにおいては直径数十 $\mu\text{m}$  のエッチピットに成長させることができ、

電気化学エッチング法によれば肉眼でもその存在を認めることができる直径数百 $\mu\text{m}$  のエッチピットに成長させることが可能である。

固体飛跡検出器の各種の応用に際し、一般にこのエッチング処理が行われる。中性子線量測定、大気中のラドン濃度の測定等固体飛跡検出器の保健物理計測への応用においては、固体上の飛跡の密度の低い場合が多く、この場合、できるだけエッチピットを大きく拡大させ、低倍率の光学顕微鏡を使って目視計数したり、放電計数装置を使って自動計数したりして、広い面積の計数を行う必要がある。したがって、使用する物質の対象とする粒子線に対するエッチング特性を正確に把握しておくことが重要である。

ガラス、プラスチックのような無定形物質の場合、

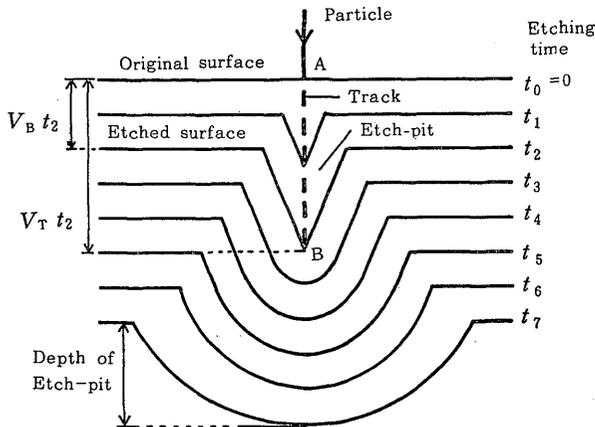


Fig. 1 Etching process of nuclear track in amorphous substance

飛跡の化学エッチングはその断面が Fig. 1 に示されるように進行する。この場合、固体表面に垂直に入射した粒子の飛跡のエッチピットへの成長の過程を示している。飛跡の起点 A から飛跡の終点 B までの行程に添ってのエッチングはその部分の化学的活性が高いために急速に進行する。エッチングの初期（時刻： $t_0$  から  $t_2$  まで）において、エッチング前の固体の表面からエッチピットの最深部までの距離の単位時間あたりの増加をトラックエッチング速度と呼び、 $V_T$  と記述する。一方、エッチングの進行に伴い固体表面も一定の速度  $V_B$  で削られてゆき、これをバルクエッチング速度と呼ぶ。エッチピットの形状は円錐で、エッチング初期の時刻  $t$  におけるエッチピット入口の直径  $D$  は(1)式で表される<sup>1)</sup>。

$$D = 2V_B t \sqrt{(V_T - V_B)/(V_T + V_B)} \quad (1)$$

$V_T \gg V_B$  であれば(2)式が成立する。

$$D = 2V_B t \quad (2)$$

エッチピットの最深部が B 点を超えてエッチングが進行すると、エッチピットの先端は丸くなり、エッチング前の固体の表面からエッチピットの最深部までの距離は、ほぼ一定の速度  $V_B$  で大きくなってゆく。一方、固体表面も速度  $V_B$  で削れ続ける。したがって、エッチピットが B 点を通じた以後のエッチピットの深さはほぼ一定となり、直径のみが拡大し続けることになる。すなわち、エッチピットの形状は、お碗形からスプー皿状にと変化して行く。

$V_T$  と  $V_B$  から(3)式を使って求められる角度  $\theta_c$  を臨界角と呼ぶ。

$$\theta_c = \sin^{-1}(V_B/V_T) \quad (3)$$

重荷電粒子が Fig. 2 に示されるように、固体表面

に斜めに入射するとき、入射角が  $a$  のように  $90^\circ - \theta_c$  よりも小さければエッチピットを生成し、 $b$  のように  $90^\circ - \theta_c$  に等しいか、 $c$  のようにそれより大きければエッチピットを生成しない。斜めに入射した粒子の飛跡から成長したエッチピットの入口の形状は楕円となる。

飛跡検出固体表面に  $\alpha$  線放出核種が存在するとき、ランダムな方向に放出される  $\alpha$  粒子がエッチピットに成長する確率（検出効率） $m$  は(4)式で表される<sup>2)</sup>。

$$m = (1 - \sin \theta_c) / 2 \quad (4)$$

$^{10}\text{B}$  を溶解させたプラスチック検出器の中性子感度  $K(E)$  は(5)式で表される<sup>2)3)</sup>。

$$K(E) = \tau \{ (1/2) R \cos^2 \theta_c + (1 - \sin \theta_c) l \} \sigma(E) \quad (5)$$

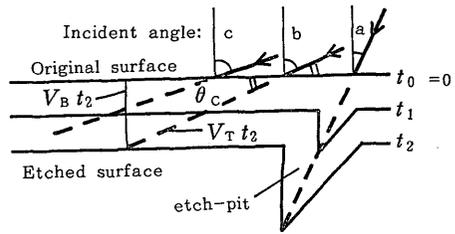


Fig. 2 Track registration geometry and critical angle

ここで、 $\tau$  は  $^{10}\text{B}$  核種の密度、 $R$  は放出される重荷電粒子の平均実効行程、 $l$  はエッチング中の固体表面の溶出厚、 $\sigma(E)$  は  $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$  核反応断面積である。

このように、臨界角  $\theta_c$  は固体飛跡検出器の検出効率、中性子感度等を決定する重要な量である。

ラドン等天然の放射性核種から放出される  $\alpha$  線及び  $(n, \alpha)$  反応に伴って放出される  $\alpha$  線に対し良好な検出特性を有するところから、硝酸セルロースプラスチック（セルロイド）が多年使用されてきている。また、 $\alpha$  粒子には勿論、反跳陽子に対しても良好な検出特性を有するところから、最近では CR-39 プラスチックが盛んに使用されるようになってきている。

しかしながら、これらの物質の重荷電粒子線に対する臨界角のデータの報告は少なく、特に粒子エネルギーの変化に対する臨界角の変化を測定したデータはほとんど無い。そこで、これらの物質にいくつかのエネルギーの  $\alpha$  線を垂直に入射させた試料をエッチングし、 $V_T$  と  $V_B$  を測定することにより(3)式を使って臨

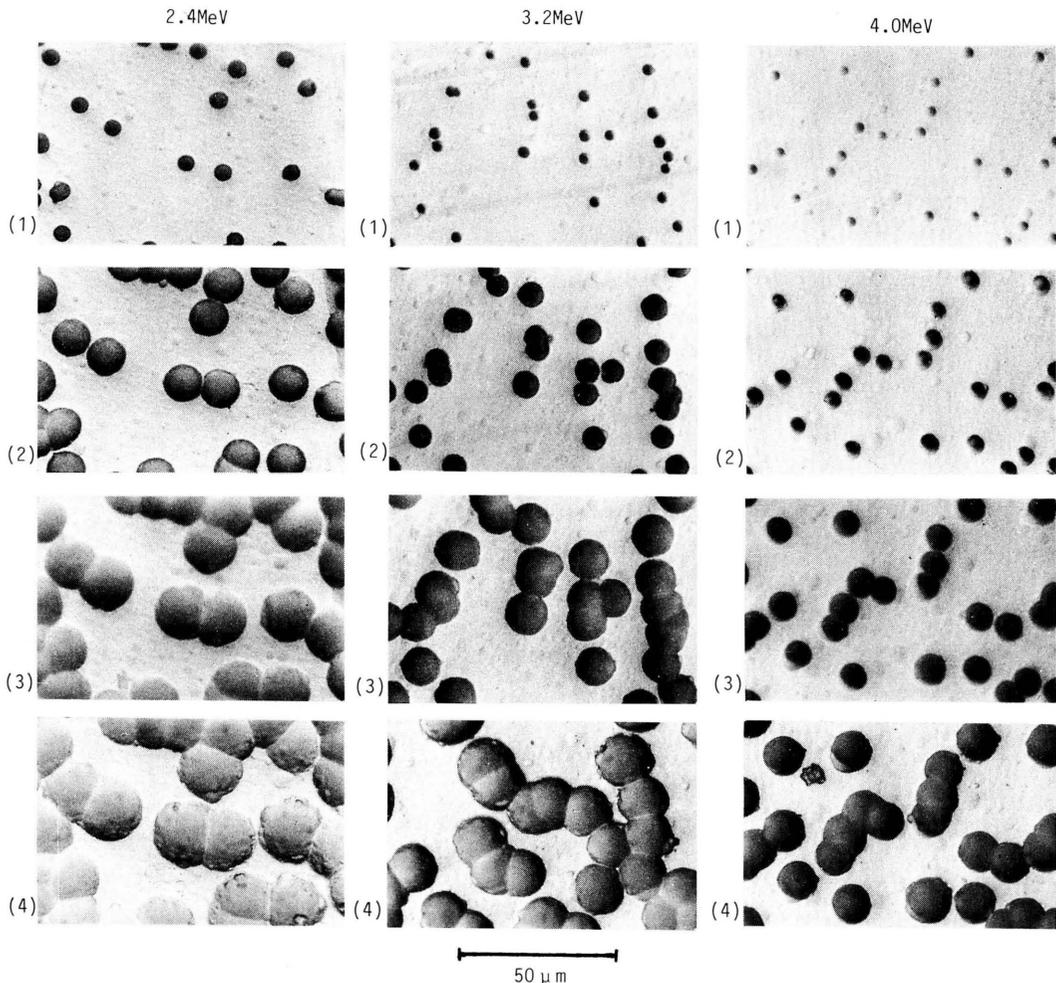
界面角を決定することにした。また、それらのエネルギーの $\alpha$ 粒子を種々の角度で入射させ、エッチングした試料表面の観察結果から、検出効率の変化する角度と臨界面角の関係を検討した。

## II 実験材料及び実験方法

硝酸セルロースプラスチックとしては、フランス Kodak-Pathé 社で固体飛跡検出を目的に開発された CN-85 を用いた。これは、面積  $9 \times 12 \text{cm}$ 、厚さ  $100 \mu\text{m}$  の無色・透明なフィルムで、25枚が1箱に入って供給される。

CR-39 プラスチックとしては、ソーラ・オプティカル・ジャパン社製の面積  $54 \times 56 \text{cm}$ 、厚さ  $1.6 \text{mm}$  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・ペルオキシ・ジカーボネイト3%である。

これらのフィルム及び板を適切な大きさに切断した後、その表面に種々のエネルギーの $\alpha$ 線を種々の角度で入射させた。この $\alpha$ 線照射には、最近我々の研究室で開発された $\alpha$ 線照射・測定装置<sup>4)</sup>を使用した。真空容器中で、 $^{241}\text{Am}$ 電着線源と照射試料の間隔をできるだけ大きくとり、 $\pm 1^\circ$ 以下の平行度の良い粒子ビー



**Photo. 1** Growth of etch-pits from  $\alpha$ -particle tracks on CN-85 cellulose nitrate film.  $\alpha$ -particles possessing above mentioned energy bump against the film with  $0^\circ$  in incident angle. Etching conditions: 10%NaOH,  $60^\circ\text{C}$ . Etching time: (1) 30 min., (2) 60 min., (3) 90 min., (4) 120 min.

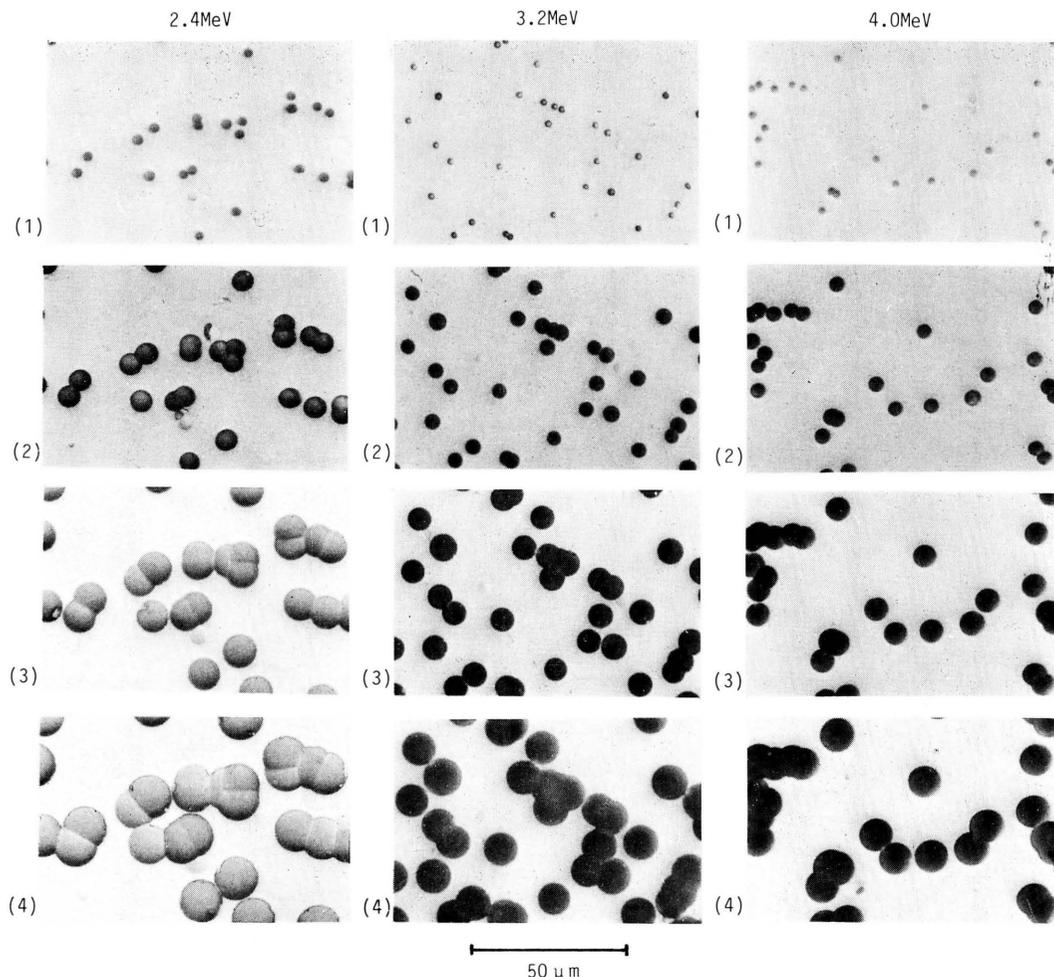
ムが試料に入射するようにした。線源と試料の間には、厚さ  $7.8\mu\text{m}$  のポリエチレンテレフタレートフィルムを置き、その枚数を変えることにより試料に入射する粒子のエネルギーを制御した。入射粒子のエネルギーは Si 表面障壁型半導体検出器と波高分析器からなる測定系により確認した。

照射後、CN-85 フィルムは  $60^\circ\text{C}$  の 10% NaOH 水溶液中で、CR-39 板は  $80^\circ\text{C}$  の 30% KOH 水溶液中で、それぞれ 30~120 分間エッチングを行った。水溶液の入ったビーカーをウォーターバス中に設置し、エッチングの間マグネチックスターラーで溶液を静かに攪拌続けた。エッチング後、フィルム及び板を水洗・

乾燥し、その表面上に生成したエッチピットを光学顕微鏡を用いて計測及び計数した。

### III 実験結果及び考察

CN-85 フィルム及び CR-39 板に 2.4MeV, 3.2 MeV 又は 4.0MeV の  $\alpha$  粒子を垂直に (入射角  $=0^\circ$  で) 入射させ、各々のエッチング条件で 30 分, 60 分, 90 分, 120 分とエッチングを進めるときのエッチピットの成長の過程を **Photo. 1** 及び **Photo. 2** に示す。縦に 4 枚の写真は同一試料上のほぼ同一の点について、エッチング時間を追って撮影したもので、個々の



**Photo. 2** Growth of etch-pits from  $\alpha$ -particle tracks on CR-39 plastics plate.  $\alpha$ -particles possessing above mentioned energy bump against the plate with  $0^\circ$  in incident angle. Etching conditions: 30%KOH,  $80^\circ\text{C}$ . Etching time: (1) 30 min., (2) 60 min., (3) 90 min., (4) 120 min.

エッチピットがどのように成長して行くかを見ることが出来る。エッチピットは、その形が円錐状のエッチングの初期から半球状の中期に至るまでは、しだいにコントラストを強めながら直径を拡大してゆく。エッチピットがその直径の割に底の浅いくぼみになる後期にはコントラストが弱くなり、やがてエッチピットは表面の荒れと見分けがつかなくなる。その過程は $\alpha$ 粒子のエネルギーが小さいほど早く進行することが観察される。すなわち、エッチピットが最もコントラストが強く、明瞭に見えるのは、CN-85 フィルムについては 2.4MeV に対しては30分、3.2MeV に対しては60分、4.0MeV に対しては90~120分である。また、CR-39 板については、2.4MeV に対しては60分、3.2 MeV に対しては90分、4.0MeV に対しては120分である。

Photo. 1, 2 において、光学顕微鏡の焦点は各々の固体表面に合わせられている。そこからエッチピットの最深部に焦点が合うまで顕微鏡のステージを上昇させ、そのストロークを顕微鏡付属のマイクロメーターで読み取り、エッチピットの深さを求めた。エッチング時間に対する深さの変化の測定結果を Fig. 3 及び Fig. 4 に示す。Fig. 4 には、Photo. 2 に無い CR-39 板に入射させた 4.7MeV の $\alpha$ 粒子飛跡の深さ増加のデータを加えた。エッチング初期の直線の勾配から深さの増加率が求まり、これにバルク エッチング速度

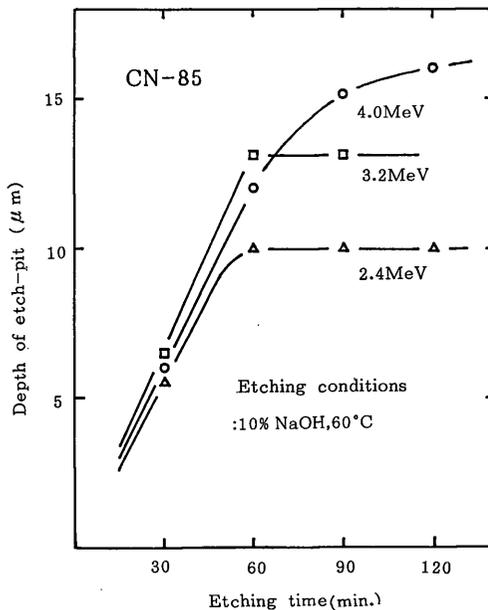


Fig. 3 Relationship between depth of etch-pit and etching time

$V_B$  を加えるとトラックエッチング速度  $V_T$  が得られる。エッチングの中期から後期に深さは一定値に飽和するが、その時期は粒子のエネルギーが高いほど遅く、飽和値は粒子のエネルギーが高いほど大きい。これは、この飽和値が固体中の粒子の実効飛程を示すもので、本実験の場合、実効飛程は $\alpha$ 粒子のエネルギーが高いほど長いためである。同一エネルギーの粒子に対しては、CN-85 フィルムより CR-39 板中の方が実効飛程の長いことが読み取れる。

両物質の、本実験で採用したエッチング条件に対する  $V_B$  はすでに得られている<sup>5)6)</sup>。 $V_T$  及び  $V_B$  並びにそれらから(3)式を用いて計算された臨界角  $\theta_c$  のデータを Table 1 にまとめた。照射したエネルギー領域の $\alpha$ 線に対し、CN-85 フィルム及び CR-39 板の臨界角は各々  $12.7^\circ \sim 13.7^\circ$  及び  $18.5^\circ \sim 21.2^\circ$  であることが分った。CN-85 フィルムについては 3.2MeV 付近、CR-39 板については 4.0MeV 付近の $\alpha$ 線に対する臨界角が最も小さく、エネルギーがそれより上っても下っても臨界角は増大する傾向が見られる。その理由は、各々の物質中の粒子飛跡の放射線損傷領域に

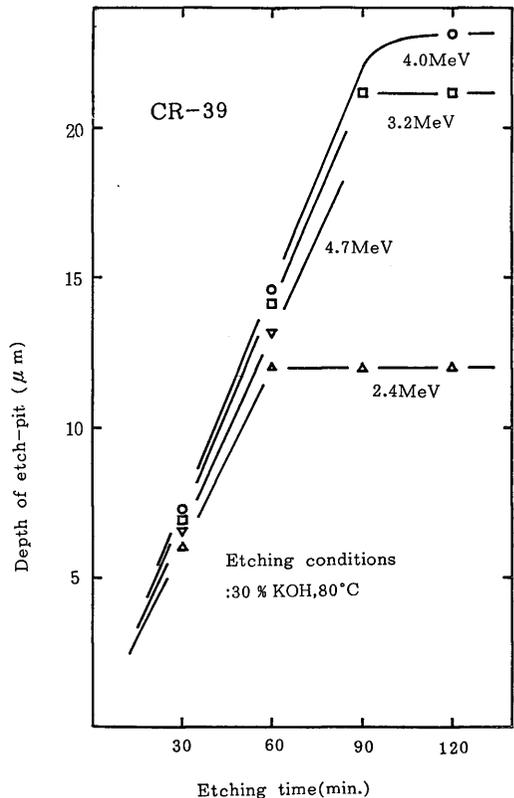
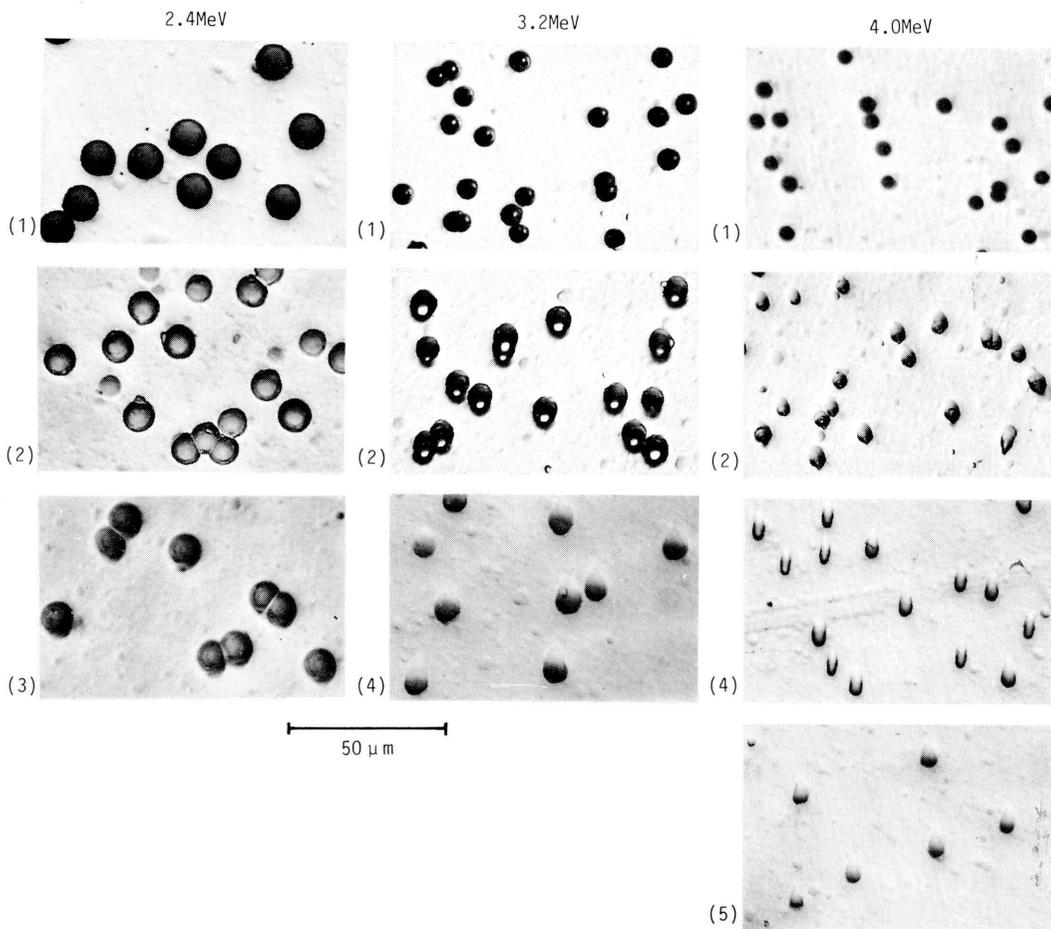


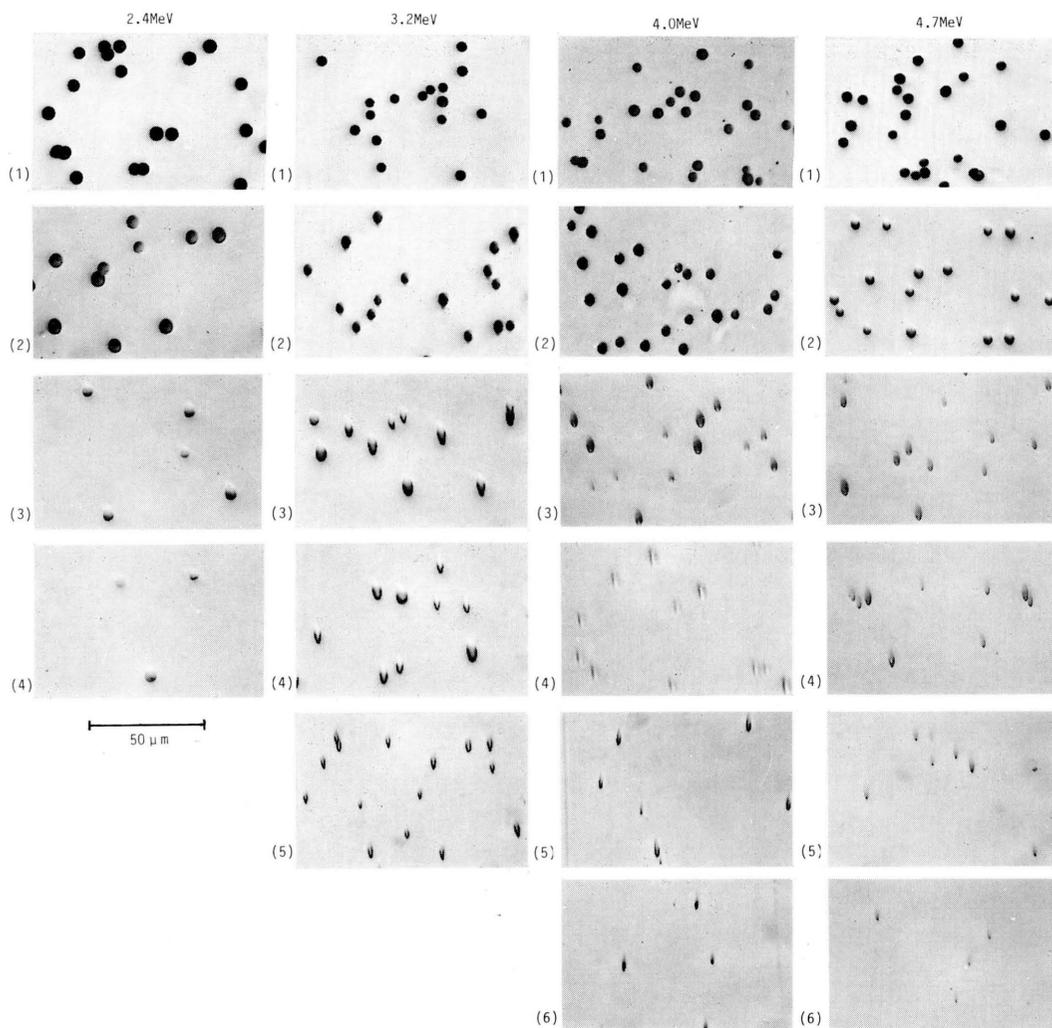
Fig. 4 Relationship between depth of etch-pit and etching time

**Table 1** Critical angle  $\theta_c$  derived from bulk etching rate  $V_B$  and track etching rate  $V_T$

Detector	$V_B$ ( $\mu\text{m/hr}$ )	$\alpha$ -energy (MeV)	$V_T$ ( $\mu\text{m/hr}$ )	$\theta_c$
CN-85 film	3.5 <sup>5)</sup>	2.4	14.8	13.7°
		3.2	16.6	12.7°
		4.0	15.5	13.0°
CR-39 plate	6.8 <sup>6)</sup>	2.4	18.8	21.2°
		3.2	20.9	19.0°
		4.0	21.4	18.5°
		4.7	19.9	20.0°



**Photo. 3** Etch-pits due to  $\alpha$ -particles possessing above mentioned energy on CN-85 cellulose nitrate film. Etching conditions and time: 10%NaOH, 60 °C, 60 min. Incident angle: (1) 0°, (2) 30°, (3) 50°, (4) 60°, (5) 65°.



**Photo. 4** Etch-pits due to  $\alpha$ -particles possessing above mentioned energy on CR-39 plastics plate. Etching conditions and time: 30%KOH, 80 °C, 60 min. Incident angle: (1) 0°, (2) 30°, (3) 50°, (4) 55°, (5) 60°, (6) 65°.

与えられた線量<sup>7)</sup> 又は飛程に添っての RELR (Restricted Energy Loss Rate)<sup>8)</sup> が臨界角が最小になったエネルギー付近で最大となり、エッチング初期における  $V_T$  を大きくしているためと考えられる。

粒子の入射角を0°からしだいに増加させていったとき、エッチング後に現れるエッチピット像がどのように変化するかを **Photo. 3** 及び **Photo. 4** に示す。この場合、エッチング時間はすべて1時間に固定されている。入射粒子エネルギーが低いと、入射角が増大しても円形に近い楕円形を維持し、比較的小さい角度で飛跡が消滅する。それに対して、入射粒子エネルギーが高いと、入射角の増大につれてエッチピットの形

状は細長い楕円からくさび形に、そして線形にと変化してゆき、比較的大きな入射角まで観察を継続しうる。エッチピットがくさび形や線形に見えるのはエッチピットの先端が常に固体表面のすぐ近くにあり、エッチピットの入口から先端までを同時に観察することになるからである。

照射試料表面の単位面積あたりの入射粒子数に対する計数しうるエッチピットの表面密度の割合を検出効率と呼ぶ。入射角を横軸に、検出効率を縦軸にとって両物質、各入射粒子エネルギーに対する検出効率のデータを **Fig. 5~11** に示す。緒言で述べた臨界角の定義から、検出効率は入射角が  $90^\circ - \theta_c$  で表される角

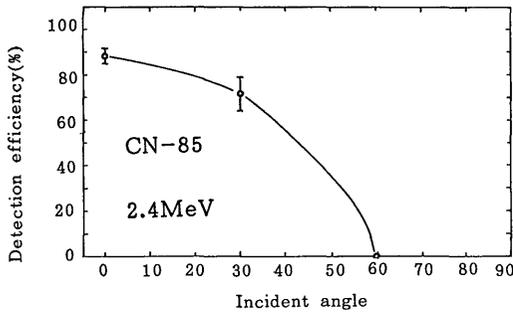


Fig. 5 Relationship between detection efficiency and incident angle

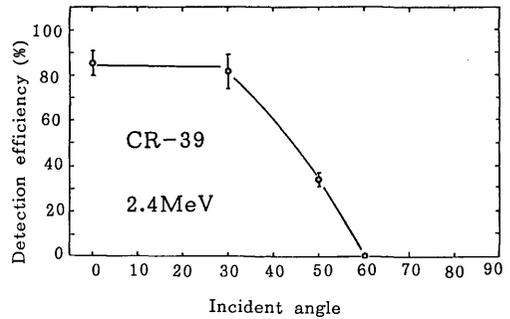


Fig. 8 Relationship between detection efficiency and incident angle

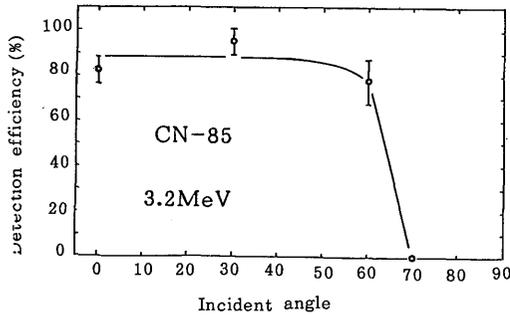


Fig. 6 Relationship between detection efficiency and incident angle

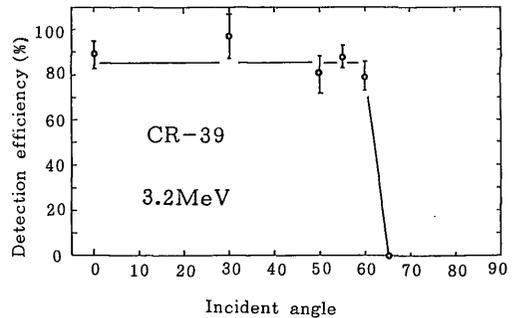


Fig. 9 Relationship between detection efficiency and incident angle

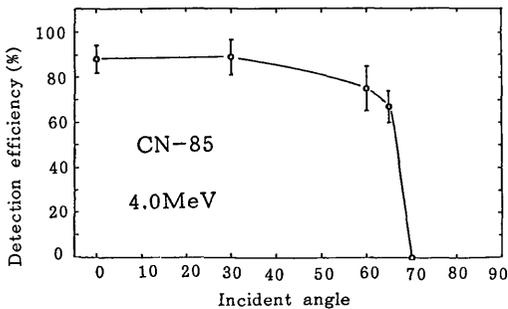


Fig. 7 Relationship between detection efficiency and incident angle

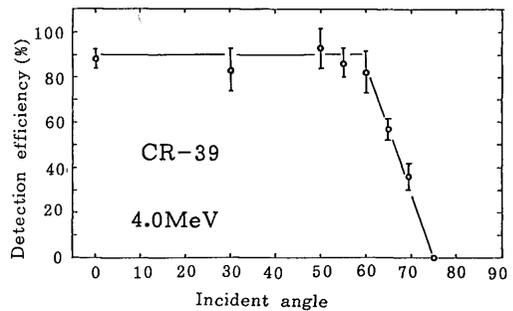


Fig. 10 Relationship between detection efficiency and incident angle

度よりわずかに小さい角度で100%から0%へと急速に低下することが期待される。しかしながら、実際はその低下がその角度よりかなり小さい角度から始まり、その角度から十数度小さい角度までの間で0%になることが分った。これは、 $90^\circ - \theta_c$  にごく近い入射角で入射した粒子飛跡は実際上エッチピットに成長しきれないことがあることを示している。また、検出効

率の低下は、粒子エネルギーが高いときは比較的急速であるが、エネルギーが2.4MeV付近と低いときは $90^\circ - \theta_c$ より大幅に小さい角度に始まる緩慢な低下になっている。その理由は、ここで採用している1時間というエッチング時間が2.4MeV程度のエネルギーの粒子に対しては、エッチピットが成長しきって、コントラストを失い始める時間にあっており、生成し

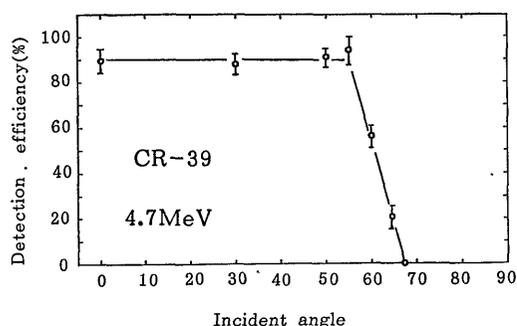


Fig. 11. Relationship between detection efficiency and incident angle

たエッチピットの相当部分がすでに消滅してしまったためであると考えられる。

#### IV 結 言

トラックエッチング速度とバルクエッチング速度の実測値から臨界角  $\theta_c$  を求めた。CN-85 硝酸セルロースフィルムについて、2.4~4.0MeV の  $\alpha$  線に対する臨界角は、約  $13^\circ$ 、CR-39 プラスチック板について、2.4~4.7MeV の  $\alpha$  線に対する臨界角は約  $20^\circ$  であることが分った。固体表面に斜めに入射した粒子の検出効率、入射角が  $0^\circ$  に近いときはほぼ100%であるが、入射角が  $90^\circ - \theta_c$  よりかなり小さい角度からその低

下が始まり、 $90^\circ - \theta_c$  から十数度小さい角度までの間で0%になることが分った。

#### 謝 辞

本研究を進めるにあたり、実験に御協力頂きました近畿大学理工学部河合政利氏及び山道亮二氏に感謝致します。

#### 参 考 文 献

- 1) Fleischer, R. L., Price, P. B. and Walker, R. M.: "Nuclear Track in Solids" p. 51. Univ. Calif. Press (1975).
- 2) Tsuruta, T. and Sakamoto, M.: *J. Nucl. Sci. Technol.*, **15**, 602 (1978).
- 3) Tsuruta, T. and Juto, N.: *ibid*, **21**, 871 (1984).
- 4) 鶴田隆雄: 近畿大学 原子力研究所年報, **23**, 21 (1986).
- 5) 鶴田隆雄: 近畿大学 原子力研究所年報, **21**, 69 (1984).
- 6) 鶴田隆雄, 福本善巳: 保健物理, **20**, 25 (1985).
- 7) Katz, R. and Kobetich, E. J.: *Phys. Rev.*, **170**, 401 (1968).
- 8) Benton, E. V. and Nix, W. D.: *Nucl. Instr. Meth.*, **67**, 343 (1969).