

聚碳酸酯和硝酸纤维素塑料的快中子反冲径迹响应特性

李煥鉄 謝建倫 黃晨光 姜德熙 謝云瑞 徐声科

本文概述了聚碳酸酯和硝化纤维膜中的反冲径迹的蚀刻性能，径迹的直径和中子能量的关系，中子探测效率与能量的关系及其紫外线效应。研究表明，上述两种膜可作为快中子阈探测器，而聚碳酸酯还可作快中子的雷姆计数器，用来监测中子源、反应堆和加速器的快中子通量和剂量。

测量剂量范围是1—1000 拉德。如进一步采用电化学蚀刻技术扩大径迹，可测剂量下限为几个毫拉德的量级，这就可期望作常规的中子剂量测量。

在固体径迹探测器中，某些比较灵敏的有机径迹探测固体，本身含有C、O和N等成份，快中子同这些成份的原子核相互作用，产生反冲核和 α 粒子，后者在固体内产生潜伏径迹，蚀刻后能显示为可观察之蚀刻径迹。通过观测这种径迹的数目和大小，能够测量快中子通量、剂量和能量^[1-4]。目前，能够探测 α 粒子的径迹探测固体，都能用作记录反冲径迹，主要有聚碳酸酯、硝酸纤维素和醋酸纤维素等塑料。其主要优点是，在强的轻粒子和辐射（如 β 、X和 γ ）场存在的情况下，能够探测快中子而不受干扰；同时径迹比较稳定，能累积和贮存照射，而不必要即刻测量和作衰变校正等。下面叙述本工作对聚碳酸酯和硝酸纤维素塑料中的快中子反冲径迹的研究和实验结果。

一、探测物质和实验

实验用的聚碳酸酯薄膜为朝阳塑料厂的产品，厚约50微米。而硝酸纤维素薄膜（下面简称为硝化纤维膜）是实验室自制的，其制备方法如下：

硝化纤维膜Ⅰ：取硝棉（进口的试剂品）10克，用500毫升丙酮溶解。经抽气过滤后，浓缩成胶质状。再加入香蕉水（主要成份为醋酸异戊酯），均匀混合。进一步浓缩后，倒在干净的玻璃平面上，让其自然挥发一天。晾干后，在约80℃下烘烤24小时，即得厚度约200微米的透明薄膜。

硝化纤维膜Ⅱ：取硝棉（四川泸州产品）10克，用500毫升香蕉水溶解。过滤后，浓缩成胶质状。进一步的成膜手续与膜Ⅰ相同。

将聚碳酸酯和硝化纤维膜样品在加速器和中子源上作中子照射实验。利用T(p, n), D(d, n)和T(d, n)反应，在加速器上得到从0.4—14兆电子伏范围内几种不同能量的单能中子。样品用聚乙烯薄膜夹装，离靶10厘米，离地1.5米。中子束垂直于样品表面入射。关于中子通量的刻度，0.4—5兆电子伏用长计数管，6.8兆电子伏用铝活化法，而14兆电

子伏用伴随粒子法测量中子通量。此外，所用中子源为 Ra-Be 源，平均能量为 5 兆电子伏，其强度事先经过刻度为 1×10^6 中子/秒。

照射后的聚碳酸酯样品，在 6 N KOH 和 65°C 的条件下蚀刻。而硝化纤维膜在 6 N KOH 和室温（21—25°C）的条件下蚀刻。蚀刻径迹用光学显微镜观测和计数，一般用 40×10 倍，少数情况下用 100×10 倍。

二、结 果

1. 反冲径迹的蚀刻性能

实际观察快中子照射后的聚碳酸酯和硝化纤维膜中的径迹，有如下共同特点，径迹绝大多数呈现为圆形或近圆形，而一小部分（在 20% 以下）为接近锥形、椭圆或圆锥结合等不同形状的非圆形径迹。在硝化纤维膜中这小部分径迹的比例比聚碳酸酯明显地大一些。其次，径迹都是从小到大连续分布，如图 1 所示，这图为实测的 5.0 和 4.4 兆电子伏中子

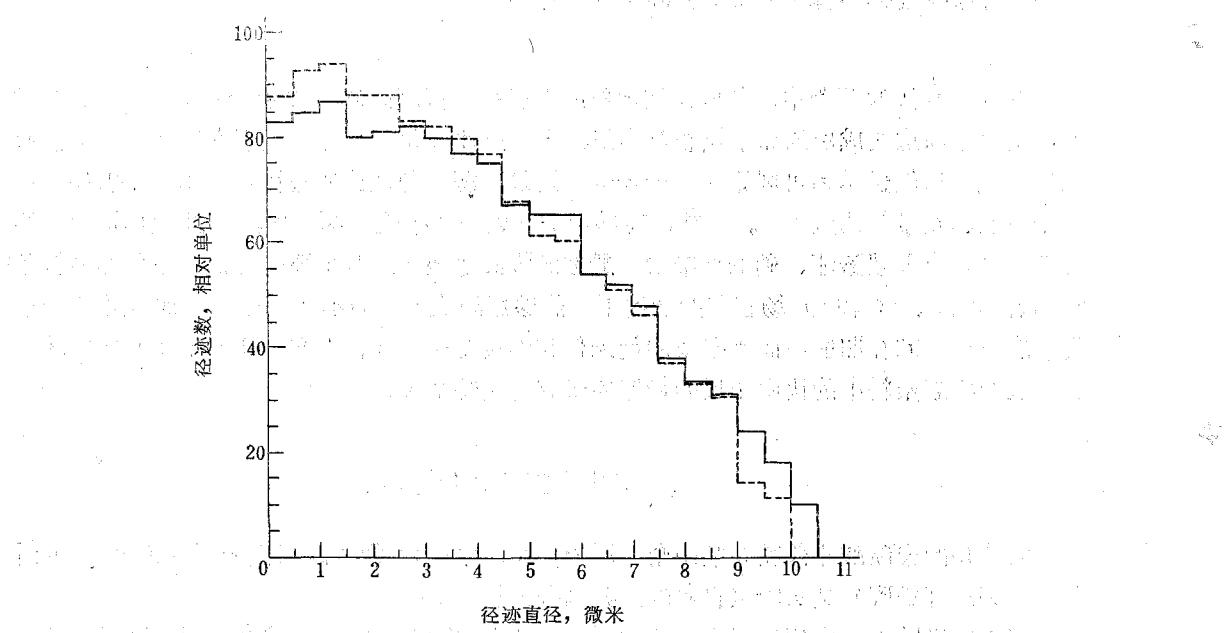


图 1 聚碳酸酯薄膜中快中子反冲径迹的大小分布

——5 兆电子伏中子垂直入射；

- - - 4.4 兆电子伏中子垂直入射；

蚀刻条件：6 N KOH, 65°C, 6.5 小时。

在聚碳酸酯中产生的反冲径迹的大小（直径或短轴）分布。因为快中子产生的反冲核和 α 粒子的潜伏径迹分布于整个探测固体内，蚀刻时，随着固体表面的不断蚀去，已显现的径迹不断地扩大，而同时新的径迹又不断地产生。再者，在较长的蚀刻时间之后，部分径迹由于蚀刻已超过射程终点，而逐渐变浅，以致变得模糊而趋向消失。实际测量单位面积上的径迹数随时间的变化，表示在图 2 上，其中聚碳酸酯是用 14 兆电子伏中子照射的，而硝化纤维膜 I 是用 Ra-Be 中子源照射的。在蚀刻开始的一段时间内，径迹数随时间线性增加，

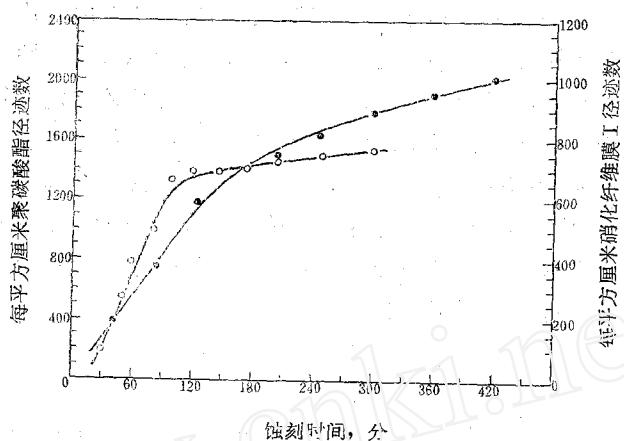


图 2 反冲径迹数对蚀刻时间的关系

●—聚碳酸酯 (14 兆电子伏中子照射, 6 N KOH, 65°C);
○—硝化纤维膜 I (Ra-Be 中子源照射, 6 N KOH, 21°C)。

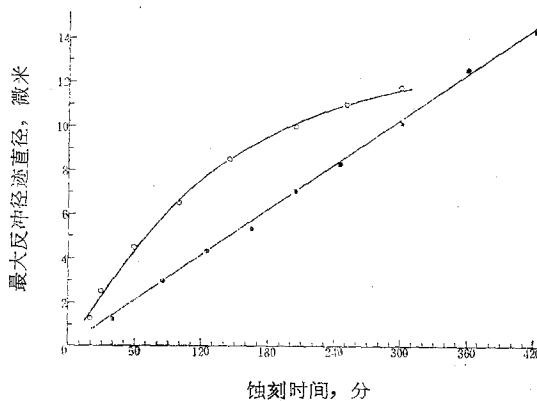


图 3 最大反冲径迹直径随蚀刻时间的变化

●—聚碳酸酯 (14 兆电子伏中子照射, 6 N KOH, 65°C);
○—硝化纤维膜 I (Ra-Be 中子源照射, 6 N KOH, 21°C)。

而过了一段时间之后则增加速率逐渐减小。这一特性以及曲线形状的差异，实质上由固体的表面浸蚀率对径迹蚀刻率之比 V_F/V_T 的大小所决定，即与径迹探测物质的类型有关，同时与入射中子的能量也有直接关系。从图 2 曲线的线性增长部分的斜率，可以求得单位面积范围内单位时间产生的径迹数 $\Delta P/\Delta t$ ，此量以 $V_F = \Delta l/\Delta t$ 除之，即得到中子在单位体积固体中产生的径迹数 $\rho = \Delta P/\Delta l$ (P 为单位面积的径迹数， l 为某段时间内薄膜表面蚀刻掉的厚度)。本实验用称量法测得聚碳酸酯的表面浸蚀率为 1.67 微米/小时 (6 N KOH, 65°C)，硝化纤维膜 I 为 2.6 微米/小时 (6 N KOH, 21°C)，硝化纤维膜 II 为 2.8 微米/小时 (6 N KOH, 25°C)。 ρ 值的测量结果见第 3 节。另外，聚碳酸酯和硝化纤维膜中的最大反冲径迹直径随蚀刻时间的变化表示在图 3 上，它们是分别用 14 兆电子伏中子和 Ra-Be 中子源照射后测得的。同样，关系曲线的形状主要由 V_F/V_T 值和中子能量两因素所决定。

2. 径迹直径与中子能量的关系

观测结果表明，无论是聚碳酸酯或硝化纤维膜在所研究的中子能量范围内，入射中子能

量越大，反冲径迹也普遍地越大，并且径迹越清晰。而对于1兆电子伏以下的中子，反冲径迹普遍地很小。这是因为随着中子能量的增高，反冲核的能量普遍地增大，其射程也随之增大，同时，在所观察的中子能量范围内，C, O, N反冲核的限定能量损失率是随能量而增加的(见图8)；而1兆电子伏以下的中子产生的反冲核的射程很短，其限定能量损失率也较小。我们选择聚碳酸酯样品中的最大反冲径迹(即如图1分布中直径最大者)测量其直径 D_m ，得出 D_m 与中子能量 E 的关系，如图4所示。在大约0.8—14兆电子伏范围内， D_m 与 E 的对数呈直线关系。利用最小二乘法，由实验数据(固定蚀刻条件为：6N KOH, 65°C, 6.5小时)可得出如下经验关系：

$$D_m = 3.06 \ln E + 5.23, \quad (1)$$

这里 D_m 和 E 的单位分别为微米和兆电子伏。

硝化纤维膜中的最大反冲径迹直径(或短轴)和中子能量之间的关系，具有和聚碳酸酯类似的特点，如图5所示。

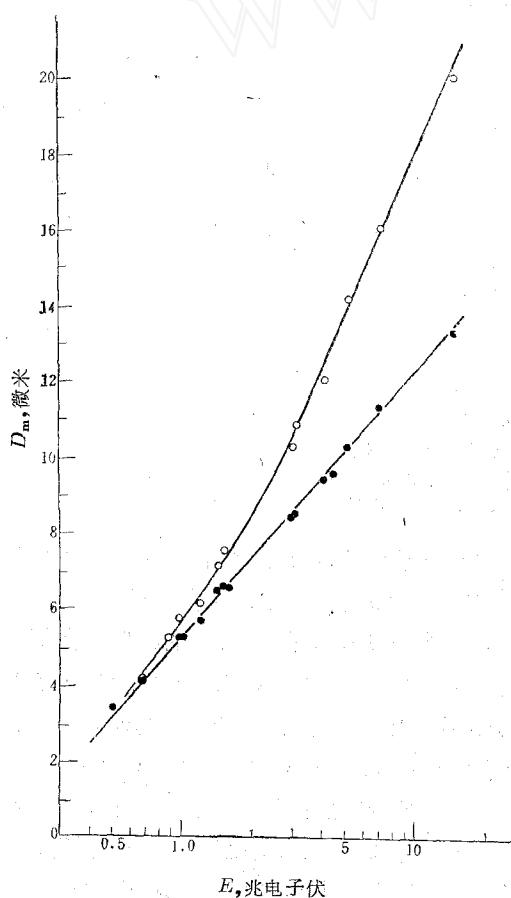


图4 聚碳酸酯薄膜的最大反冲

径迹直径和中子能量的关系

• —— $D_m = 3.06 \ln E + 5.23$; ○——经紫外线照射处理。

蚀刻条件：6N KOH, 65°C, 6.5小时。

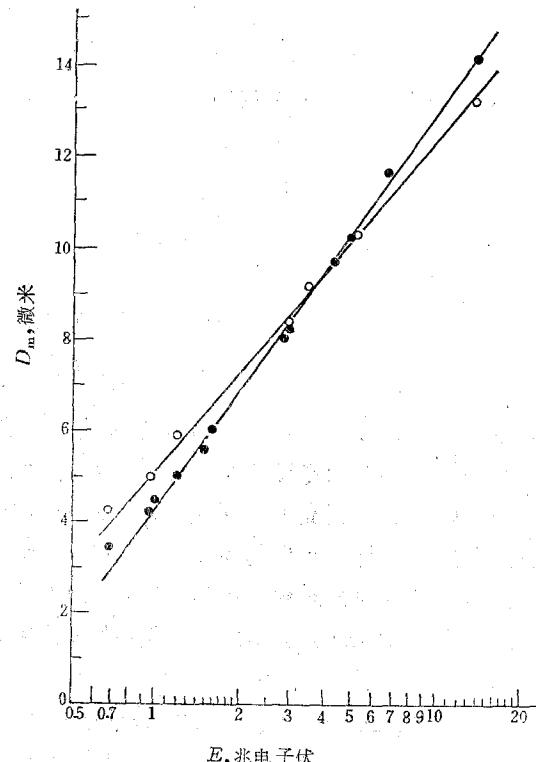


图5 硝化纤维膜的最大反冲径迹

直径和中子能量的关系

●——硝化纤维膜I (6N KOH, 24°C, 5小时);

○——硝化纤维膜II (6N KOH, 22°C, 4.7小时)。

另外，实验观察了紫外线照射对聚碳酸酯中反冲径迹的效应。在蚀刻前，将在同样条件下被快中子照射过的聚碳酸酯样品，置于30瓦紫外线荧光灯下，样品距灯管7毫米左右，照射7.3天(如用强紫外线灯，照射时间可大为缩短)。这灯光的波长为280—370毫微米，顶峰在320毫微米附近。结果发现径迹明显地扩大，而且比较清晰；入射中子能量越高，效应越大。实际测得最大反冲径迹直径对中子能量的关系亦描在图4上。在大约2.5兆电子伏以上， D_m 与 E 的对数仍保持直线关系： $D_m = 6.25 \ln E + 3.78$ 。同未经紫外线照射的样品比较，直线斜率增大，相同的中子能量改变导致 D_m 的改变量增大1倍左右。而对于1.5兆电子伏以下的中子能量，径迹的扩大不很明显。

上述最大反冲径迹随中子能量变化的特性，提供一测量中子能量的新方法。如图1表明，从最大反冲径迹直径 D_m 可以分辨5.0和4.4兆电子伏中子。利用紫外线照射效应可以提高这方法的分辨本领。随着径迹直径测量技术的发展和进一步自动化，这方法是可行的。

3. 中子探测效率与能量的关系

聚碳酸酯的分子式为 $(C_{16}H_{16}O_3)_n$ ，硝酸纤维素的分子式为 $(C_{12}H_{16}N_4O_{18})_n$ 。快中子同这些物质中的原子核相互作用而导致径迹产生的，主要是快中子同C，O和N核的弹性和非弹性碰撞，其次是快中子同这些核的 (n, α) 反应： $^{12}C(n, \alpha)^9Be$, $^{12}C(n, n')^{12}C^*(\alpha)^8Be^*(2\alpha)$, $^{16}O(n, \alpha)^{13}C$, $^{16}O(n, n'4\alpha)$, $^{14}N(n, \alpha)^{11}B$ 以及 $^{14}N(n, 2\alpha)^7Li$ 等。单位通量的中子在单位体积固体中产生的径迹数 ρ/ϕ ，决定于它在单位体积内产生的核反冲和 (n, α) 反应数 N/ϕ 。

$$\frac{\rho}{\phi} = K \frac{N}{\phi}, \quad (2)$$

$$\frac{N}{\phi} = \sum_i n_i a_i = \frac{d}{A} N_0 \sum_i M_i a_i. \quad (3)$$

这里 ϕ 为中子通量， N_0 为阿伏伽德罗常数， d 和 A 为聚碳酸酯或硝酸纤维素塑料的密度和分子量， n_i 为分子中第 i 种元素的原子密度， M_i 为分子中第 i 种元素的原子数， a_i 为分子中第 i 种元素的原子截面，包括弹性、非弹性碰撞和 (n, α) 反应截面。而单位通量的中子在单位面积固体表面上产生的径迹数 P/ϕ 应比例于 ρ/ϕ ，从而

$$\frac{P}{\phi} = k \frac{N}{\phi}. \quad (4)$$

ρ/ϕ 和 P/ϕ 都定义为中子探测效率，而用 P/ϕ 表示较为普遍。式中 K 或 k 为能量的函数，与探测固体的特性有关。

实验测定了0.4—14兆电子伏范围内几种不同中子能量的 P/ϕ 值，表示在图6和图7中。

对于聚碳酸酯，5兆电子伏中子的 P/ϕ 值为 1.53×10^{-5} 径迹/中子，和文献[5]的实验值 1.48×10^{-5} 径迹/中子以及文献[6]的实验值在10%以内符合。14兆电子伏中子的 P/ϕ 值和文献[2]的实验值(30% KOH, 60°C, 6.5小时条件下的值)也比较一致。而对于硝化纤维膜，这里测得的 P/ϕ 值大致接近于Dai Cell硝膜，后者对14兆电子伏中子 $P/\phi \sim 6 \times 10^{-5}$ 径迹/中子，对裂变中子 $P/\phi \sim 1 \times 10^{-5}$ 径迹/中子^[3]。另外，按照第1小节所述的方法，实际测定聚碳酸酯对14兆电子伏中子的 ρ/ϕ 值为 4.45×10^{-2} (径迹/厘米³)/(中子/厘米²)，

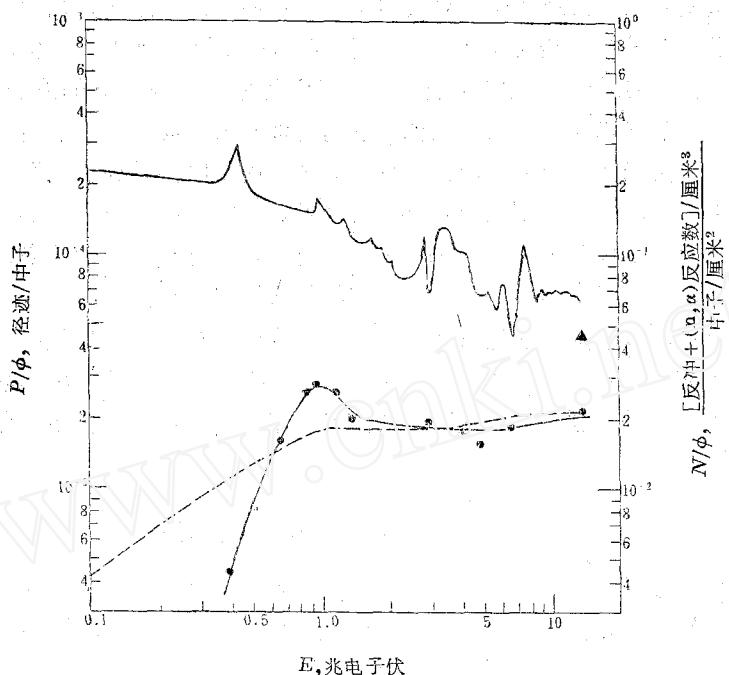


图 6 聚碳酸酯薄膜的中子探测效率和反冲 $+(n, \alpha)$ 反应数对中子能量的关系
 —•— P/ϕ 的实验测量值; —— N/ϕ 的计算值, 即聚碳酸酯中 C 和 O 的反冲 $+(n, \alpha)$ 反应总数;
 ▲实验测定的对 14 兆电子伏中子的 ρ/ϕ 值为 4.45×10^{-2} (径迹/厘米³)/(中子/厘米²);
 ---雷姆响应曲线。

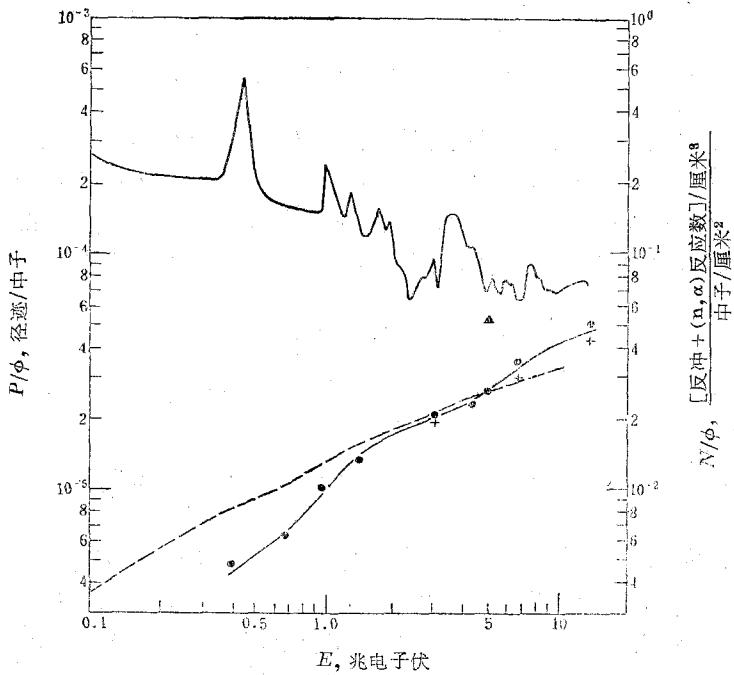


图 7 硝化纤维膜的中子探测效率和反冲 $+(n, \alpha)$ 反应数对中子能量的关系
 —•—硝化纤维膜 I 的 P/ϕ 的实验值; + 硝化纤维膜 II 的 P/ϕ 的实验值; —— N/ϕ 的计算值, 即硝化纤维膜中 C, O 和 N 的反冲 $+(n, \alpha)$ 反应总数, ▲ 实验测定的硝化纤维膜 I 对 Ra-Be 源中子的 ρ/ϕ 值为 5.3×10^{-2} (径迹/厘米³)/(中子/厘米²); --- 中子一次碰撞剂量曲线。

而文献[2]的实验值为 4.06×10^{-2} (径迹/厘米³)/(中子/厘米²)，在误差范围内相符。同时测定的硝化纤维膜Ⅰ对Ra-Be源中子的 ρ/ϕ 值为 5.3×10^{-2} (径迹/厘米³)/(中子/厘米²)(P/ϕ 值为 2.5×10^{-5} 径迹/中子)。

根据C、O、N的弹性、非弹性碰撞和(n, α)反应截面值^[7,8]，按照公式(3)计算了0.1—14兆电子伏范围内不同能量的 N/ϕ 值，亦同时描在图6和7上。计算表明，(n, α)反应数所占比例一般为百分之几到十几，与中子能量有关，最大不超过大约23%。和实验结果对照，对于聚碳酸酯，14兆电子伏中子的 ρ/ϕ 值约为 N/ϕ 值的59%，说明 K 值小于1，并非所有反冲核都能产生蚀刻径迹，而H核的反冲对径迹无贡献。聚碳酸酯的 P/ϕ 值随中子能量的变化趋势，在1兆电子伏以上大致接近于 N/ϕ 随能量的变化趋势，在1兆电子伏以下明显下降。而硝化纤维膜的 P/ϕ 值随中子能量的变化趋势则与 N/ϕ 相差较大，在大约2.5兆电子伏以下其 P/ϕ 值明显地比聚碳酸酯小，这可归之于其 V_F/V_T 值或临界角比聚碳酸酯大，从而低能反冲核不能形成径迹而损失的部分增大；在2.5兆电子伏以上，硝化纤维膜的中子探测效率比聚碳酸酯高，例如在14兆电子伏处大1倍以上，这除了由于其 N/ϕ 值稍许大些以外，主要还是在于硝酸纤维素塑料的径迹形成阈值比较低，其限定能量损失率为1.1兆电子伏/(毫克/厘米²)，而聚碳酸酯为3.3兆电子伏/(毫克/厘米²)（见图8）^[9]。可以预料，不同成份因而 V_F/V_T 大小不同的硝酸纤维素塑料的中子探测效率曲线的形状，将有明显的差异，特别是在2.5兆电子伏以下。聚碳酸酯的 $\frac{P}{\phi}$ -E关系呈现较好的阈探测器特性，因而可以作为一种快中子阈探测器，有效阈大约在0.7—1兆电子伏，这与文献[10]的结果基本一致。而硝化纤维膜的 $\frac{P}{\phi}$ -E关系呈现较为单调的变化特性。关于能产生径迹的最小中子能量，对于聚碳酸酯，估计在0.3兆电子伏左右，而对于硝化纤维膜比这值还要低。

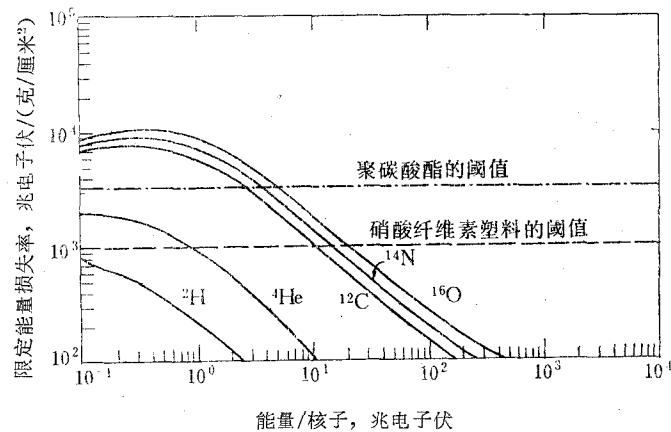


图8 ^{12}C , ^{14}N , ^{16}O 核在硝酸纤维素塑料中的限定能量损失率和能量的关系

另外，实验发现，经过如上节所述的紫外线照射处理的聚碳酸酯样品，在相同的蚀刻条件下，中子探测效率有所提高，例如5兆电子伏中子的 $\frac{P}{\phi}$ 值增大63%，而14兆电子伏中子的值增大1倍左右。中子能量越高，增加越显著。

4. 剂量响应特性

在图6上，我们用雷姆响应曲线^[11]和实验点对比，可以看出，聚碳酸酯的 $\frac{P}{\phi}$ -E关系

和它较好地一致。因此聚碳酸酯能够作为比较好的测量快中子剂量的雷姆计数器，即直接从径迹数给出快中子的雷姆剂量而与能量无关。从和实验点对应的雷姆响应曲线直接得出，单位面积上 1 个径迹相应的雷姆数 $D/P = 1.98 \times 10^{-3}$ 雷姆/(径迹/厘米²) (0.5—14 兆电子伏)。从硝化纤维膜的 $\frac{P}{\phi} - E$ 关系来看，和雷姆响应曲线相差较大，但它和一次碰撞剂量曲线^[11]又比较接近，用后者和实验点对比，得到 $D/P = 1.75 \times 10^{-4}$ 拉德/(径迹/厘米²) (0.8—14 兆电子伏)，即从单位面积上的径迹数给出快中子一次碰撞剂量，在一定的误差范围内，可以认为与中子能量无关。根据所用的聚碳酸酯和硝化纤维膜 I 的表面上的杂点干扰情况以及辐射本底的大小，从一般情况估计，可以测量大约 1—1000 拉德的快中子剂量。而对于能量较高(>5 兆电子伏)的快中子，可测剂量下限约为几百毫拉德。用作超临界事故剂量是适合的。如果进一步采用电化学蚀刻技术扩大径迹，并选用新鲜的聚碳酸酯塑料膜，则剂量测量下限可降低到几毫拉德的数量级。从而可期望用作常规的中子个人剂量测量。

上面的所有讨论，都是指中子束垂直于径迹探测固体表面($\theta = 0^\circ$)入射而言的。实验表明，径迹响应与中子入射角有关。图 9 为在水慢化堆上测得的硝化纤维膜的中子探测效率对中子入射角的关系， $\theta = 45^\circ$ 时的 P/ϕ 值为 0° 入射时的 78%，而平行入射($\theta = 90^\circ$)时减小到 44%。聚碳酸酯亦具有类似的方向性响应特性^[10]。

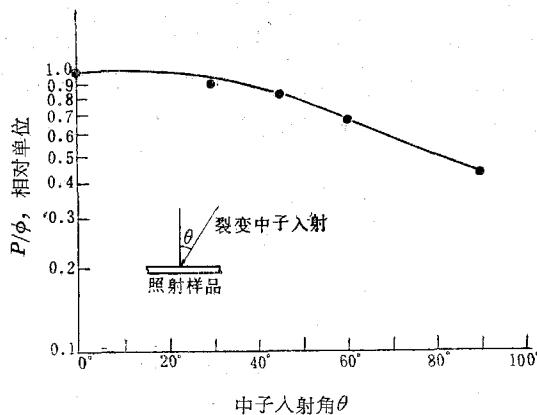


图 9 硝化纤维膜 I 的中子探测效率和入射角的关系
蚀刻条件：6 N KOH, 22°C, 3.7 小时。

三、讨 论

以上结果表明，塑料中快中子反冲径迹的探测，可以用来测量中子源、反应堆和加速器的快中子通量和剂量。其中聚碳酸酯能用作快中子阈探测器和雷姆计数器；而硝化纤维膜的探测效率更高。另外，从反冲径迹直径的分析，能够确定快中子的能量。自 1967 年前后以来，文献上先后发表了若干有关这方面的研究工作。总的说来，对于高能快中子，无疑是很有用的。但对于一般能量较低的快中子，由于反冲径迹较小，在实用方面受到一定的限制。近几年来，随着固体径迹探测器技术的发展，产生了一种电化学蚀刻技术^[12]，蚀刻时加一高频高压(～2 千赫兹和 2 千伏)产生的强高频电场，可以使径迹扩大到甚至肉

眼可见的程度，从而使径迹测量简化，同时也增进对膜表面杂质本底的甄别能力。这技术尚在研究中，它已使聚碳酸酯测量快中子个人剂量的灵敏度提高很多^[13]。另外，从本实验观测结果来看，用强紫外线照射(加冷却条件)促进反冲径迹蚀刻，对于增进测量快中子能量的分辨和观察高能中子的反应机制都有意义。在聚碳酸酯和硝化纤维膜中，1兆电子伏以下的中子产生的反冲径迹都很小，而蚀刻时膜表面背景上同时出现小杂坑点，干扰小径迹的观测，这是一个问题。如何制备具有较好的表面状态的塑料膜是需要考虑的。本实验表明，朝阳聚碳酸酯用作快中子反冲径迹记录还是比较适合的，性能也比较稳定；用香蕉水作溶剂制备的硝化纤维膜的径迹也比较清楚，但是，制备硝化纤维膜用的硝棉需要纯净，否则膜表面上的小杂坑点将严重影响低能反冲核径迹的观测。此外，实际应用中，为了减少辐射本底，需要注意防止大气氡 α 的长期照射。

参 考 文 献

- [1] P. B. Price et al., U. S. Patent 3564250, 16 Feb 1971, Filed 3 Jan 1967.
- [2] Yasushi Nishiwaki et al., *J. Nucl. Sci. Technol.*, **8**, 162 (1971).
- [3] K. Becker, Proceedings of the International Topical Conference on Nuclear Track Registration in Insulating Solids and Applications, Clermont-Ferrand, France (6 May 1969), vol. 2, p. V2.
- [4] J. W. N. Tuyn, *Trans. Amer. Nucl. Soc.*, **13**, 523 (1970).
- [5] 郭士伦等, 物理, **1**, 121 (1972).
- [6] K. Jozefowicz, Proceedings of the 8th International Conference on Nuclear Photography and Solid State Track Detectors, 1972/7/10-15 Bucharest, vol. 1-2, p. 347 (1972).
- [7] BNL-325, Neutron Cross Sections, Suppl. No. 2, 2ed (1964).
G. D. Joanon et al., *Nucl. Sci. Eng.*, **13**, 171 (1962).
- [8] A. W. Obst et al., *Phys. Rev.*, C, **5**, 738 (1972).
P. G. Young et al., LA-4725 (1972).
H. Lustig et al., NDA-86-1 (1957).
- [9] E. V. Benton et al., *Nucl. Instrum. Methods*, **67**, 343 (1969).
- [10] E. Piesch, Advances in Physical and Biological Radiation Detection, IAEA, Vienna, 1971, p. 399.
- [11] Protection against Neutron Radiation up to 30 Million Electron Volts, National Bureau of Standards Handbooks 63, Washington, (1957).
- [12] L. Tonnasino, CNEN Report RT/PROT-(71) 1 (1970).
- [13] M. Sohrabi, *Health Phys.*, **27**, 598 (1974).

(上接第44页)

限制)，但是要确定仪表的能量响应特性，不仅需要对仪表的全部能量区域进行刻度，而且也要求对仪表的全部量程（包括高、低量程）进行刻度。

在工作中得到北京计量标准管理处和国家计量院的大力协助，在此表示衷心的谢意。

参 考 文 献

- [1] H. V. Larson et al., Advances in Physical & Biological Radiation Detectors, IAEA, Vienna, 1971, p. 533.
- [2] I. M. G. Thompson et al., idib, 1971, p. 505.
- [3] E. Storm et al., *Health Phys.*, **26**, 179 (1974).
- [4] R. W. Clarke et al., *Health Phys.*, **13**, 73 (1967).
- [5] M. F. Yudin, Radiation Protection Monitoring, IAEA, Vienna, 1969, p. 373.
- [6] W. V. Mayneord et al., *Brit. J. Radiol.*, **10**, 365 (1937).
- [7] E. G. A. Aird et al., *Phys. Med. Biol.*, **17**, 169 (1972).
- [8] F. W. Sanders et al., *Health Phys.*, **2**, 308 (1960).