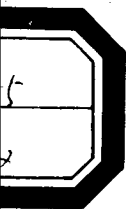


第四届全国
固体核径迹探测器会议
论文集

1990.11.7—10. 上海



CR-39 用于“冷聚变”现象的探索

王克礼 董师元 李兴中

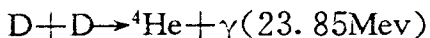
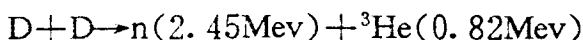
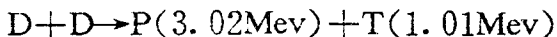
胡仁勇 冯玉英 周平利

(清华大学)

Fleischmann & Pons 和 Jones 宣布的“冷聚变”试验结果^{[1][2]}, 引起了全世界的广泛关注和激烈争论。众多的科学家进行了不同的实验验证和深入的理论探讨^{[3]-[8]}。

在“冷聚变”现象的实验研究中, 人们普遍遇到“幽灵”问题: 有时能捕捉到这一现象, 有时却得到完全否定的结果, 而且这一现象出现时, 通常其信号是很微弱的, 这使我们想到采用低本底积分记录的方法, 很可能更有助于我们进行实验摸索。

如果核聚变发生, 可能的核反应是



要严格验证“冷聚变”现象确实存在, 实验上要求同时探测到数据自洽的聚变四要素——热量, 中子, ${}^3\text{He}$, T 。在目前的实验条件下, 要实现这一目标, 对我们来说, 是极其困难的, 那么我们是不是可以先去摸索一些相关现象的规律呢。

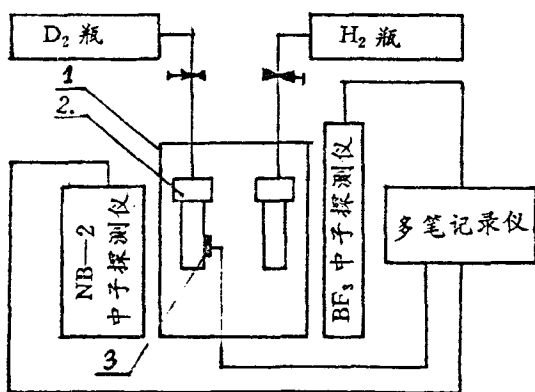
在我们的“冷聚变”探索试验中, 采用 CR-39 固体核径迹探测器对聚变产物中的带电粒子进行积分记录和量测。

CR-39 是一种对轻带电粒子极为灵敏的固体核径迹探测器, 其响应速度快, 实验中, 有利于记录到突发的带电粒子, 而且其本底低, 信噪比高, 探测效率接近 100%。通过对径迹进行测量和计算可以得出带电粒子的电荷、能量、出射角、产额等重要信息。

尤其对无电解池的压力充氙(Frascati 式)实验^[9], CR-39 可以贴近金属 Pd(或 Ti), 进入反应室内进行记录和量测, 得到一些在反应室外记录不到的信息。

CR-39 有四种可能妨碍我们记录和量测的本底径迹:①实验以前,长时间积分记录到的潜径迹,实验中,我们采取预刻蚀的方法,使这种本底径迹有别于实验过程中记录到的径迹,观察和记数时能消除这种本底的干扰。②宇宙射线的蜕变径迹。③空气中氡(Rn) α 衰变造成的径迹。④金属Pd(或Ti)中可能含有微量放射性核素(如 ^{238}U 和 ^{232}Th 等)产生的 α 径迹。实验中,尽管这三种本底径迹很少,我们亦采取对照的方法予以克服。

实验时,先将金属Pd进行表面清洗处理和高温除气处理,并将准备好的CR-39进行预刻蚀(6.25mol NaOH, 96℃)1小时。然后将金属Pd与CR-39紧贴放入不锈钢反应室中,将不锈钢反应室抽真空至 10^{-2} 托后,与装有9个大气压的氘气瓶连通并浸入液氮杜瓦中,不锈钢反应室温度迅速下降至77°K,为使Pd在77°K下充分吸入 D_2 ,维持不锈钢反应室在液氮温度下数小时,然后随着液氮渐渐蒸发,温度逐渐上升,至室温(300°K)后再加液氮。使装有Pd和高压 D_2 的不锈钢反应室从77°K至300°K之间反复,形成若干次温度循环,造成不平衡过程。实验装置如图1所示。



1. 液氮杜瓦 2. 不锈钢反应室 3. 热电偶

图1 实验装置示意图

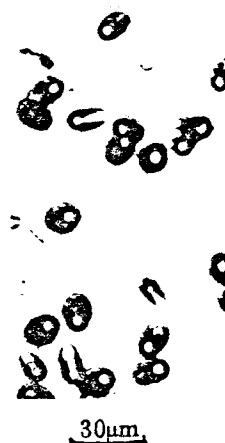


图2 CR-39在显微镜下的照片

取出CR-39经刻蚀(6.25mol NaOH, 96℃)1小时后,我们在显微镜下观察到CR-39上的径迹数明显增加,如图2是取出的CR-39在显微镜下的照片,最密处径迹数量大于 $10^5/\text{cm}^2$,平均径迹

数为 $10^3 \sim 10^4/\text{cm}^2$ 。

通过测量蚀刻厚度与径迹孔径的关系^[10],那种径迹主要是 $Z=2$ 的带电粒子所致,而且其能量主要集中于 $\sim 1\text{Mev}$ 。

这种径迹不可能是本底所致,因为在同样条件下,我们用高压氢气做对照实验,而从中取出的 CR-39 经同样的刻蚀后,未观察到明显增加的径迹,其径迹数小于 $10^2/\text{cm}^2$ 。

CR-39 探测到的带电粒子只是金属表面层的效应,考虑到带电粒子从金属中逸出并被探测到的有效深度(约为 $0.5\mu\text{m}$)和 CR-39 记录信号的积分时间(80 小时),我们可以估计出所测得的平均聚变率为 $\sim 3 \times 10^2/\text{cm}^3 \cdot \text{s}$ 或: $2 \times 10^{-20}/\text{dd} \cdot \text{s}$ (对 PdDx 有: $1\text{cm}^{-3} \text{s}^{-1} = [2x/(0.3925 + 0.0165x)^3] \times 10^{21}(\text{dd})^{-1}\text{s}^{-1}$, 且取 $x=0.5$)

实验中,我们观察到不同的表面清洗处理将影响这种表面效应,当我们用三氯甲烷和王水进行表面清洗时,这种效应立即消失,对这种现象,我们将做进一步的实验研究和理论探讨。

作者感谢郭士伦、丁大钊、崔浣华、王世成、康铁笙、周宏余等同志在各方面的帮助。

参 考 文 献

- [1] M. Fleischmann, S. Pons. and M. Hawkins. J. Electroanal Chem 261. 301(1989)
- [2] S. E. Jones et al. , Nature (London) 338, 737(1989)
- [3] J. F. Ziegler et al. , Phys. Rev. Lett. 62 , 2929(1989)
- [4] P. B. Price et al. , Phys, Rev. Lett. 63, 1926(1989)
- [5] P. M. Echenique et al. Phys. Rev. Lett. 64, 1413(1990)
- [6] R. J. Beuhler et al. , Phys. Rev. Lett. 63, 1292(1989)
- [7] M. Gai et al, Nature (London) 340, 29(1989)
- [8] Cold fusion Research DOE /S-0073 Nov. (1989)
- [9] A. De Ninno, et al. , "Evidence of Emission of Neutrons from a Titanium-Deuterium System", Submitted to Europhysics Lettets, (1989)
- [10] 朱润生著, 固体核径迹探测器的原理和应用, 科学出版社, 第一版(1987), 第 299 页

15th SSNTD 国际会议 (西(杰))

主要方面:

1. 测氦: 天然放射性元素中, 氦之含量占 60% 以上.

2. 材料改性: 超绝缘, 表面改性.

3. 核孔膜:

中子红模: 在氦化上, 15 最大; 加速出上, 美最大.

85/112 13 号半.

世界强放射性国际会议 (伊朗)

CR-39在氡和中子测量中的应用

田志恒 左富琪 赵修良

衡阳工学院

摘 要

一、驻极体收集积分测氡法

^{222}Rn 衰变时产生的 ^{218}Po 带正电荷。利用驻极体在被动采样小室内形成静电场,将 $^{218}\text{Po}^+$ 离子收集到CR-39固体核径迹探测器上,极大地提高了探测器上的粒子径迹密度,将测氡灵敏度提高了500倍。该装置用于环境氡浓度测量时,采样周期可由常规被动采样法的半年缩短到两天,测氡浓度的探测下限为 0.31Bq m^{-3} 。这种测量装置与高压电源或电池组收集法相比较,具有结构简单,重量轻,成本低,灵敏度高等优点,例如,日本TaKa o I i d a等的电池组法测室内外氡暴露量和氡浓度的探测下限分别为 $1700\text{Bq m}^{-3}\text{h}$ 和 1.2Bq m^{-3} ,采样周期为2个月,比本研究的灵敏度低2个数量级。在被动采样小室内设干燥剂,克服了测量灵敏度对空气湿度的依赖性,测量结果准确可靠。在六所标准氡室中作比较时,本研究装置的测定值与六所给出的参考值在2.4%读差范围内一致。由于该方法灵敏度高,采样周期短,可放宽对CR-39本底径迹的要求,并可在腐

蚀性气氛等较恶劣条件下应用。本研究已通过部级鉴定，在一些城市试用，并正在一些厂矿推广应用。表1给出了几种被动采样法灵敏度对照表。其中本方法的数据是用日本产CR-39测定的。如果用新制片的本底小的CR-39，探测下限还可进一步降低，详细资料请参看《核电子学与探测技术》1991年第一期“利用驻极体提高测氡灵敏度的研究”一文。

表1 不同测氡法灵敏度对比

方 法	LLD_E $Bq\ m^{-3}h$	LLD_C $Bq\ m^{-3}$	采样周期
一般被动采样法	17000		2—6月
带电池组的被动采样法	1700	1.2	2月
本研究	15	0.31	2天

二、中子个人剂量计

中子在CR-39固体核径迹探测器和辐射体中产生的反冲质子及核反应生成粒子在CR-39上产生可蚀刻径迹。本研究利用CR-39和辐射体的组合结构，改善了CR-39作为中子个人剂量计的方向依赖性。本研究已初步应用，对能量响应的研究仍在继续进行中。

CR-39 Rn^{222} 累积测量研究

刘伯学* 盛琰* 李伯阳**

*防化研究院 固体探测器实验室

**中国核学会

摘要：本文介绍了CR-39固体径迹探测器在 Rn^{222} 累积测量中的一些考虑。计算了测量杯的几何因子，入射探测器表面的 α 能谱，讨论了在CR-39刻度与实际使用时滞留照射对刻度因子的修正。

关键词：氡，CR-39固体核径迹探测器，蒙特卡罗计算， α 能谱

一 引言

氡及其子体对人类的危害，已引起人们的高度重视，其监测是环境评价的重要内容之一。在地质堪探、地震研究等方面，氡的测量也能提供一些非常有价值的信息。氡及其子体的测量可分两类，瞬时和累积测量，测量方法及探测器也较多。其中CR-39固体径迹探测器，以其 α 探测效率高，响应能量范围宽，测量方法简单、实用、成本低等特点，在氡浓度时间积分测量中，获得了广泛的应用。本文主要介绍 Rn^{222} 累积测量时，测量杯的几何因子的计算，入射探测器表面 α 能谱的蒙特卡罗(Monte-Carlo)计算，以及在不同照射条件下，滞留 Rn^{222} 照射对刻度因子的修正方法。另外，还介绍了我们生产的CR-39的刻度结果。

二 几何因子及 α 能谱的计算

在一般环境条件下，与 Rn^{222} 相比， Rn^{220} 是很少的，由于 Rn^{220} 的半衰期比 Rn^{222} 小得多，在杯式累积测量方法中，可利用渗透和扩散两个过程来分离 Rn^{220} (1, 2, 3)使得位于带渗透的测量杯底的探测器，只能记录到 Rn^{222} 及其子体的 α 粒子。

对于进入杯子的 Rn^{222} 气体，有三种核素，即 Rn^{222} ， Po^{218} ， Po^{214} ，它们衰变产生的 α 粒子对探测器有贡献。 Rn^{222} 是以气态的方式存在的，而 Po^{218} ， Po^{214} 则以相

当大的比例沉积于测量杯的内表面，还有一部分与空气中的气溶胶结合，以气态方式存在^[4]。

处于气态的核素，对位于杯底中心处的探测器，其响应可由下式计算^[5]

$$\rho = C \cdot T \cdot f \cdot K_v \quad \dots\dots\dots (1)$$

式中， ρ 代表径迹密度 Tracks/cm²。 $C \cdot T$ 代表照射条件下Rn²²²的时间积分，单位为 Bq·cm⁻³·S。 f 为探测器的 α 效率，对 CR-39而言，它接近于1^[1]，不过，对不同的蚀刻条件及径迹判读方法，它的差别是较大的。 K_v 是气态 α 核素的几何因子

$$K_v = \int [\sin \theta / (4 \pi r^2)] \cdot dv \quad \dots\dots\dots (2)$$

其中， θ 为入射到探测器中心的 α 粒子方向与探测器法线之夹角（图1）， r 为 α 粒子产生点到探测器中心之距离，以 cm 为单位，积分区域为可能入射到探测器中心的所有空间。 K_v 以 cm 为单位。

若 Po²¹⁴, Po²¹⁸ 完全均匀沉积于测量杯内表面，则

$$\rho = C \cdot T \cdot f \cdot V/S \cdot K_s \quad \dots\dots\dots (3)$$

$$K_s = \int \sin \theta / 4 \pi r^2 \cdot ds \quad \dots\dots\dots (4)$$

其中， V, S 分别为测量杯的体积和总内表面积， K_s 为沉积于内表面的 α 核素的几何因子，其积分区域为可能有 α 入射到探测器中心处的所有内表面，包括探测器表面。其余各项与式①②相同。

对规则、对称的几何体，如果了解氡子体沉积的比例，测量杯的总几何因子是很容易计算的。实际使用中，杯几何往往比较复杂，对这种情况，可采用蒙特卡罗方法作模拟计算。 K_v, K_s 的计算，可依式②，④，在相应的积分区域（空间或表面）上，随机、均匀地选取衰变核位置，计算积分核 $\sin \theta / 4 \pi r^2$ 即可获得。如果把入射到探测器表面的 α 粒子按能量记录，也可得到入射 α 的能谱^[7]。

图1为我们用于 Rn²²²测量的一种杯子，图2给出了这种杯子探测器表面中心处的 α 能谱的计算结果，其假设条件是 Rn²²²以气态方式存在，而 Po²¹⁸, Po²¹⁴ 完全均匀沉积于杯内表面。在这种条件下，杯子几何因子 K 为1.21cm，从图中可以看出，沉积于探测器表面的子体，形成了两个很突出的峰，而其余表面及Rn²²²形成了一个连续的 α 谱，

由于杯子较小，几乎没有低于 3Mev 的 α 粒子。

McLaughlin等人用金硅面探测器测量了一系列不同直径的测量杯，其气态和沉积态的 α 粒子对探测器的贡献^[8]。其结果如表1所示。

表1 气态 α 核素对计数的贡献比例 (%)

Table 1 Percentage Contribution to
 α Counts from Airborne

圆柱半径(cm) Cylinder Radius(cm)	测量值 Calculated Value	计算值 Measured Value
2.0	36	25.5
2.4	36	35.7
2.7	42	25.8
3.6	38	35.8
5.0	32	35.0
15.6	36	25.2

表中同时也列出了我们计算的结果，很显然，除半径为15.6cm杯子外，计算结果与实验测量很附合。然而，我们计算的来自 Po^{218} ， Po^{214} 沉积态对探测器的贡献，与测量值有一些差别。能否认为对小空间的测量杯， Po^{218} ， Po^{214} 完全处于沉积态，尚有待进一步的计算和测量分析。

三 Rn^{222} 的刻度

在我们实验室，化学蚀刻的CR-39，用约600倍的透射光显微镜作径迹计数，最小可测径迹约 $2\mu\text{m}$ ，对 Pu^{239} 平面 α 源，最佳的蚀刻条件为6.25 N KOH 70℃，8-10hr，图3给出了我们生产的CR-39对 Pu^{239} α 源的响应，线性相关因子为0.9996，这是 90年4月生产的CR-39，厚度为 0.2mm，大小为 $2\times 2\text{cm}^2$ ，其本底约为 2.15 Tracks/cm^2 （8个样品各100个视场计数）。

在 Rn^{222} 的测量中， α 的能量范围较宽，这对化学蚀刻时间的选择造成了一定的困难。图4 给出了 Rn^{222} 照射时，灵敏度随蚀刻时间的变化。即是在6-8hr，仍有小而尖的径迹开始发育，而另一些大而圆的径迹，从4hr就开始退化，在我们的测量中，选用 5hr 作为蚀刻时间。

受实验条件的限制,我们制作了一套以密封手套为基础的 Rn^{222} 标定装置。 $Ra-Rn$ 源是国家标准物质——碳酸钍(GBW04312)。使用时先将箱体抽去约5L的空气,然后,由此负压将累积的 Rn^{222} 吸入箱内,箱内 Rn^{222} 浓度由封闭时间控制,照射时间为2天,测量杯用30 μm 厚的聚乙烯袋子封装,照射后立即取出CR-39,进行蚀刻。

实验选用的是90年8月生产的 CR-39,大小为20 $\times$ 20 $\times$ 0.2mm。取 6个样品测本底,每个测100视场,本底为 24.1 ± 3.8 T/cm², 刻度三个浓度,结果如表2所示。表中同时给出了另一种杯子的标定结果。

表2 Rn^{222} 照射刻度

Table 2 Calibration of Rn^{222} exposure		
Rn222积分浓度 Bg $\cdot$ cm ⁻³ $\cdot$ S Time-Integrated Rn222 Con.	A测量杯径迹密度 Tracks/cm ² Track Densities for A can	B测量杯径迹密度 Tracks/cm ² Track Densities for B can
9.57×10^3	6.649×10^3	5.493×10^3
8.208×10^3	5.981×10^3	4.254×10^3
5.027×10^3	3.071×10^3	2.819×10^3

注: A 为图1所示测量杯, B 为 $\Phi 31$, 高为12(mm)的测量杯。

Note: A is the can of Fig.1, B is the can ($\Phi 31$, height of 12 mm)

对图1测量杯, 其径迹响应为 2.44 ± 0.14 Tracks/cm²/KBq.m⁻³.hr, 若以本底的两倍作测量下限, 则为19.7 KBq.m⁻³.hr, 若测量时间为 2周、1个月、半年(180天), 则相应的可探测的最低 Rn^{222} 浓度分别为58.6, 27.4, 4.6 Bq.m⁻³。

对B 测量杯, 响应为 1.99 ± 0.04 T/cm²/KBq.m⁻³.hr, 测量下限为24.2KBq.m⁻³.hr。

四 滞留 Rn^{222} 照射修正

在我们的刻度条件下, 箱内 Rn^{222} 浓度 Co' 是变化的 即

$$Co' = Co \cdot \exp(-\lambda_r \cdot t) \quad \dots\dots\dots (5)$$

测量杯内浓度, 可用下式表达^[2]

$$dc/dt = -C \cdot \lambda_r + (Co' - C) \lambda_m \quad \dots\dots\dots (6)$$

式中, λ_R 为 Rn^{222} 的衰变常数, λ_m 为氡在渗透膜中延迟常数。

$$\lambda_m = DA / \delta V \quad \dots\dots\dots (7)$$

式中, D 为 Rn^{222} 在渗透膜中的扩散常数, 对聚乙烯, D 为 $7.8 \times 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{S}^{[1]}$, δ , S 分别为渗透膜厚度及面积, V 为测量杯体积, 若 $\lambda = \lambda_m + \lambda_R$, 则

$$C(t) = C_0 \cdot \exp(-\lambda_R t) [1 - \exp(-\lambda_m t)] \quad \dots\dots\dots (8)$$

照射时间为 T_1 , 并立即取出 CR-39。 则

$$C \cdot T_1 = C_0 \cdot ([1 - \exp(-\lambda_R T_1)] / \lambda_R - [1 - \exp(-\lambda T_1)] / \lambda) \quad \dots\dots\dots (9)$$

若 T_1 之后, 将杯子移到一个自由空间, 任杯内 Rn^{222} 扩散, 并继续对 CR-39 照射 T_2 , 且 $T_2 \gg 1/\lambda$, 则 T_2 时间内, 杯内 Rn^{222} 的浓度为

$$C'(t) = C(T_1) \cdot \exp(-\lambda t) \quad \dots\dots\dots (10)$$

$$C' \cdot T_2 = C(T_1) / \lambda \quad \dots\dots\dots (11)$$

如果仅有 T_1 时间的照射, 则有效照射因子 K_{eff} 为

$$K_{eff} = 1 - \lambda_R \cdot \exp(-\lambda_R T_1) [1 - \exp(-\lambda_m T_1)] / [\lambda_m (1 - \exp(-\lambda_m T_1))] \quad \dots\dots\dots (12)$$

对图1的测量杯, $T_1 = 2d$, 则 K_{eff} 为 0.747

如果照射 Rn^{222} 浓度为常数 C_0 则

$$K_{eff} = 1 - [1 - \exp(-\lambda t_1)] / (T_1 \cdot \lambda) \quad \dots\dots\dots (13)$$

同样对图1的测量杯, $T_1 = 2d$, K_{eff} 为 0.723, 而在实际 Rn^{222} 监测中, T_1 为 1 个月, 则 K_{eff} 为 0.981, 由于刻度条件与实际监测时 T_1 及浓度不同, K_{eff} 也不同。如果在照射刚结束就取出探测器, 则必须对刻度因子进行修正, 同样可以采用滞留照射, 即 T_2 时间

自由扩散照射, 并且使 $T_2 \gg 1/\lambda$ 。

在某些测量中, 人们往往使用比较大的测量杯, 以提高CR-39对 Rn^{222} 的响应, 然而, 大的测量杯, 其渗透延迟时间相应增长。例如, 对 $\Phi 80 \times 100\text{mm}$ 的测量杯其灵敏度会比图1所示测量杯提高1倍多, 但其延迟时间 τ (即 $1/\lambda$) 为59.1 hr, 若照射 3d 后, 立即取出CR-39, 其 K_{eff} 为0.34。如果要作滞留照射, 则 T_2 又比较长。

五 讨论

在我们的刻度中, 选用的是较高的 Rn^{222} 浓度, 照射时间也较短, 尽管刻度的一致性较好, 但缺乏低浓度的刻度结果, 低浓度时, 径迹密度降低, 这会给径迹计数增加困难。

对刻度因子的滞留照射修正, 这里只作了一些计算探讨, 至于 Rn^{222} 在聚乙烯中的扩散常数, 测量杯的渗透延迟时间, 滞留修正因子等, 有待实验测量。

测量杯的形状、大小, 不仅影响渗透平衡过程, 而且也影响 Rn^{222} 子体在杯内表面的沉积及入射CR-39的 α 能谱, 小型的杯子, 尽量响应比较小, 但入射 α 能量峰位明显, 这对选择最佳的化学及电化学蚀刻时间是有利的。在实际使用中, 大型的杯子, CR-39的固定也有一定困难。

对连续能谱的 α 粒子, CR-39的化学蚀刻时间的选择比较困难, 电化学蚀刻对连续能谱有一定优点, 特别是在中子剂学中广泛使用的两步电化学蚀刻, 一旦电场在径迹尖端造成断裂现象 (Break down), 其形成的树状径迹就只能在以后的蚀刻中进一步放大, 而不会退化、消失, 这有可能在一个比较宽的能量范围内记录所有的 α 径迹, 另外, 电化学蚀刻形成的树状径迹比较大, 而且便于识别, 这对大面积 Rn^{222} 浓度监测的径迹计数测量是很有利的。

参考文献:

- [1] Abdel-Fattah Hafez and G.Semogyi, Nucl. Tracks, 12(1-6), 697-1000 (1986).
- [2] G.Somogyi, et al, Nucl. Tracks, 8(1-4), 423-427 (1984).
- [3] R.L.Fleischer, et al, Healthphys. 39, 957-962 (1980).
- [4] M.Urban, Nucl Tracks, 8(1-4), 429-432 (1984).
- [5] R.L.Fleischer and A.Mogro-Campero, J.Geophys.Res., 83, 3539-3549 (1978).
- [6] S.A.Amin and D.L.Henshaw, Nucl. Instr. and Methods, 190, 415-421 (1981).
- [7] 刘伯学, 累积测氡中杯几何因子及 α 能谱的蒙特卡罗计算, 未发表, 1990。

[8] J.P. McLaughlin and F.D. O'Byrne, Radia. Prot. Dosim. 7(1-4), 115-119 (1981).

Study of Rn^{222} time-integrated measurement with CR-39 Track detectors.

Liu Bo-xue, Shen Yan, Li Bo-yang

(Solid Dosimetric Detector and Method Laboratory)

Abstract--Some studies have been done in Rn^{222} time-integrated measurements with CR-39 track detectors. Geometry factor was calculated for can-technique. The Alpha-spectra of radon detector was determined with Monte-Carlo method. For calibrating and monitoring exposures of CR-39, it has been discussed how calibrated factor can be corrected by trapped Rn^{222} exposure.

Keywords. Radon, CR-39 SSNTD, Monte-Carlo Calculation, α -spectra.

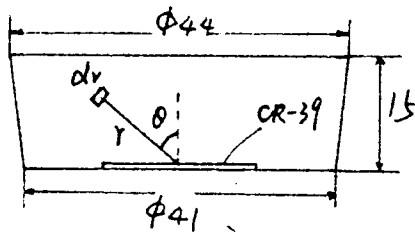
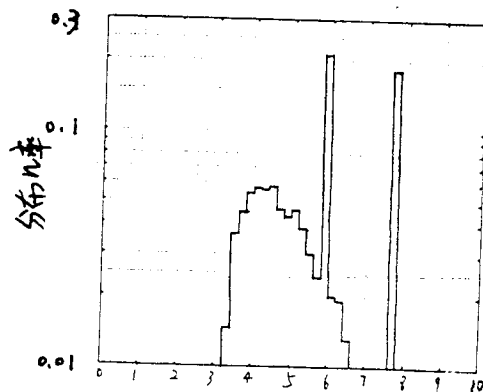


图1, 测量杯 (mm)
Fig. 1, Measurement can



α 能谱 (mev)
图2, α 能谱
Fig. 2, α-spectra

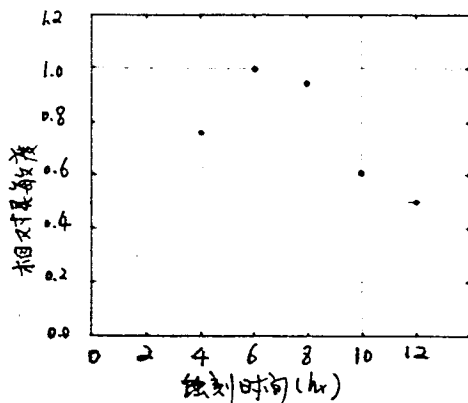


图4, R_m 相对灵敏度
Fig. 4, Relative Response for R_m

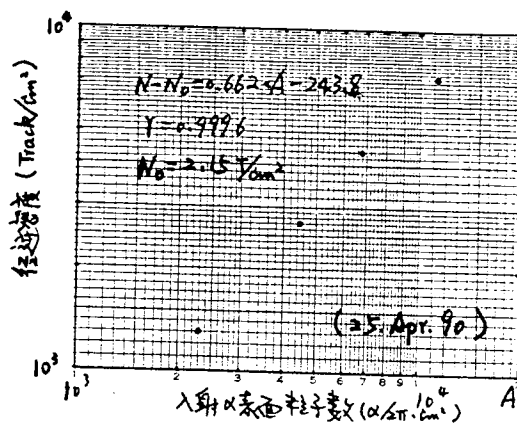


图3, Pu^{239} α 源响应
Fig. 3, The Response for Pu^{239} source

国产CR-39固体核径迹探测器蚀刻技术

肖 德 涛

(衡 阳 工 学 院)

一九九〇年十月三十日