

固体飛跡検出器 CR-39 における重イオン飛跡 生成メカニズム研究の現状

(独)放射線医学総合研究所研究基盤センター
神戸大学大学院海事科学研究科

小平 聡*
山内 知也

It is well known that CR-39 plastic is the most sensitive nuclear track detector for proton and heavy ions. CR-39 is widely utilized for not only dosimetric fields such as personal neutron dosimetry, environment radiation monitoring, space radiation dosimetry but also various applications such as the spectroscopy of laser-driven ion beams, high energy cosmic ray physics and nuclear physics. However, the primary problems of “how is a nuclear track formed in CR-39?” and “why is CR-39 most sensitive material?” remain without clear explanation. This is reasons why we have no any materials superior than CR-39 since CR-39 was discovered about 40 years ago. In this paper, we summarize the current status of research work on nuclear track formation mechanism through the historical background, detection principle, the physical and chemical properties and the relationship between latent track and radiation induced chemical damage in CR-39.

Keywords: heavy ions, solid state nuclear track detector, polymer, radiation damage, radiation chemical yield, track core radius

1 固体飛跡検出器の歴史

1958年にYoung¹⁾によって、フッ化リチウム結晶中の自発核分裂片飛跡がエッチングにより拡大し光学顕微鏡で観察できることが発見され、固体飛跡検出器の幕開けとなった。これとは独立に、1959年にSilkとBarnes²⁾が、雲母に含まれる天然放射性元素から放出される自発核分裂片飛跡の電子顕微鏡観察を発表して以降、Price等^{3,4)}は雲母の薄片を化学エッチング処理し、雲母内に生成した飛跡の諸特性を光学顕微鏡観察により入念に調べ、簡便にして有用なトラック検出器として発展する道を拓いた。1965年にFleischer等⁵⁾は、荷電粒子の通過に伴い固体中に生ずる放射線損傷として残される潜在飛跡は、電離作用による物質の格子欠陥の結果であると主張した。その後、化学エッチング処理により飛跡を拡大して観察するという手法は、対象が鉱物に留まらず、プラスチックやガラスなどの様々な媒体へと応用され、各々の素材特有の性質を示す固体飛跡検出器として確立されていった。この固体中に残される飛跡を利用した放射線検出器は、その検出原理が詳しく研究されるとともに実用化が進められ、1975年にFleischer等により“Nuclear Tracks in Solids”として本に纏められた⁶⁾。我が国における成書としては坂上が著した「粒子トラックとその応用」がある⁷⁾。現在では、固体飛跡検出器は重荷電粒子の検出を目的として、低バックグラウンド（放射線混成場にあっても電子線やガンマ線に不感）で処理が簡単であること、また安価で大面積化が容易であるという性質を持ち、宇宙線物理学や原子核物理学、高強度レーザー駆動イオン加速などの科学研究だけでなく、加速器や原子力関連施設における放射線被ばく管理、宇宙飛行士や放射線治療場における線量計測、あるいはエッチング制御による材料の微細加工技術など、様々な分野に応用されている^{8,9)}。

Recent research progress on the nuclear track formation mechanism in CR-39 plastics
Satoshi KODAIRA* (National Institute of Radiological Sciences),
Tomoya YAMAUCHI (Kobe University),
〒263-8555 千葉県千葉市稲毛区穴川 4-9-1 (独)放射線医学
総合研究所研究基盤センター,
TEL: 043-206-3479, FAX: 043-206-3514,
E-mail: koda@nirs.go.jp

CR-39 は図 1 のような Allyl Diglicol Carbonate をモノマーとした 3 次元ネットワーク構造をもつ無色透明で非結晶性の熱硬化性の高分子で, 1978 年に Cartwright 等によって固体飛跡検出器として偶然見いだされた¹⁰⁾(CR-39 は商標名で, 物質名としては PADC (Polly Allyl Diglicol Carbonate)). CR-39 はそれまで固体飛跡検出器として用いられてきたセルロースナイトレート (CN)¹¹⁾, ポリカーボネート (PC)¹²⁾, ポリエチレンテレフタレート (PET)¹³⁾ 等のプラスチック検出器に比べて重荷電粒子に対する応答感度が格段に高いポリマーである. CR-39 については, 応答感度を更に高める研究が精力的になされ, 酸化防止剤の極微量添加が材質の安定化に寄与するばかりでなく, 低 Z/β 粒子に対する応答感度を飛躍的に向上させることが明らかにされた^{14,15)}. また, CR-39 をベースにした共重合体では, $Z^*/\beta \sim 4$ の相対論的速度のベリリウム核あるいは 27 MeV のプロトンが検出可能な HARZLAS/TNF-1 が現在最も高感度な CR-39 として知られている¹⁶⁾. 一方で, CR-39 の次に感度が高いポリマーは PC (検出閾値 $Z^*/\beta \sim 55$ ¹²⁾) になるため, CR-39 と PC の間に検出閾値を持つようなポリマーはこれまで存在しなかった. Tsuruta は極端に感度が悪いポリマーである DAP (diallyl phthalate) を CR-39 と共重合させた共重合体検出器を見出した^{17,18)}. CR-39 に対する DAP の共重合割合を調整することにより, 高 Z/β 領域への検出閾値のシフトと応答感度の制御が可能な検出器の開発も進められている¹⁹⁻²²⁾. 従って, CR-39 飛跡検出器のユーザーはその目的に応じて検出器材を選択して使用することになり, 我が国では, 個人被ばく線量計 (中性子検出部)²³⁾ に用いられているほか, CR-39 は個々の飛跡の LET (線エネルギー付与) 情報を得ることができるために, 宇宙放射線線量計測²⁴⁾ に用いられている. また, CR-39 は他のポリマー検出器に比べて, 優れた電荷・質量分解能²⁵⁻²⁷⁾ を有しており, 重イオンのスペクトロスコピーに最適で, 重イオンの核破碎反応断面積の高精度測定²⁸⁾ に利用されているほか, 宇宙線超鉄核の高精度観測²⁹⁾ に期待が寄せられている. ここまでは, 固体飛跡検出器の歴史と CR-39 飛跡検出器の現況について概観してきたが, ここからは純粋な CR-39 つまり PADC で得られたデータを紹介しながら議論を進めて行く.

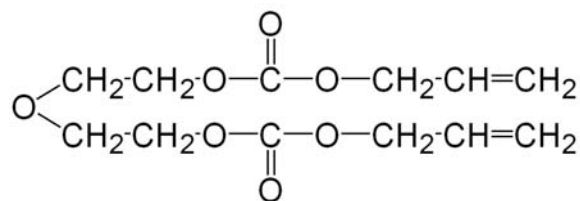


図 1 CR-39 のモノマー構造式.

2 重イオン飛跡検出の物理過程と電離損失モデル

2.1 飛跡生成原理の概要

プラスチックやガラスなどの絶縁体中を重荷電粒子が通過すると, その経路に沿って半径 20 Å 程度の円筒形状に放射線損傷が残され, 潜在飛跡が生ずると考えられている⁶⁾. 図 2 に示すように, 損傷がある程度以上になると, その部分は強アルカリ溶液などによる化学エッチング処理により, 損傷を受けた部分は損傷を受けていない部分よりもずっと速い速度で優先的に浸食される. その結果, 損傷を受けた部分はホイヘンスの原理に従って円錐状に浸食され, 飛跡が拡大し, 検出器表面にはマイクロサイズのエッチピット (etch pit) と呼ばれる円錐状の穴が生じる. 固体飛跡検出器表面に垂直に入射した重荷電粒子により生成されたエッチピットを上面から光学顕微鏡により観察すると, 図 3 のようにエッチピット開口部は円形に, 斜め入射のそれは楕円として認識される. 荷電粒子が通過していない部分の浸食速度はバルクエッチング速度と言い V_b と表記する. 一方, 重イオンの通過経路に沿った浸食速度はトラックエッチング速度と言い V_t と表記し, 放射線損傷の程度, 即ちその経路に沿って付与されたエネルギーに関係した量となる. V_b で V_t を除算したエッチング速度比を, 固体飛跡検出器の飛跡生成感度 (S) と呼び, 式 (1) で定義される.

$$S \equiv \frac{V_t}{V_b} - 1 \quad (1)$$

2.2 飛跡生成の物理過程

重荷電粒子と固体飛跡検出器との相互作用により失われる電離損失量を利用して, 固体飛跡検出器は入射粒子のエネルギーや電荷等を識別することができる. 固体物質中に重荷電粒子が入射すると標的原子が叩き出されるほか, 高密度の電子の励起や電離が引き起

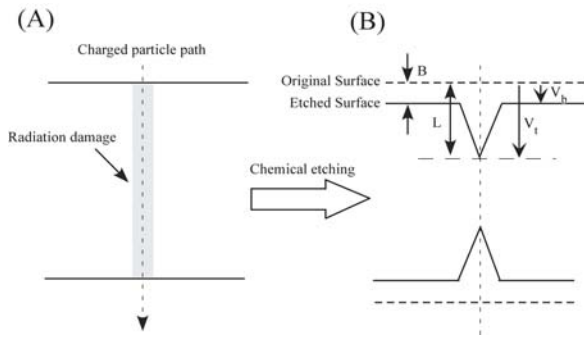


図2 固体飛跡検出器における荷電粒子通過に伴う飛跡生成の様子を検出器断面から模式的に表した図。(A) 荷電粒子の軌跡に沿って放射線損傷を受け潜在飛跡が生ずる。(B) 荷電粒子曝露後の化学エッチング処理によって、固体飛跡検出器の表裏両面から荷電粒子の軌跡に沿って浸食が進み、円錐状の穴(エッチピット)が生ずる。

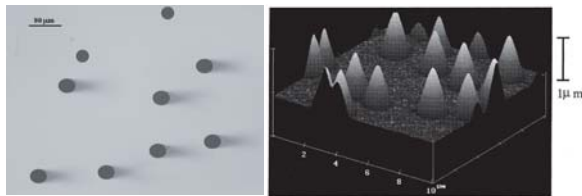


図3 CR-39 に生成したエッチピットの光学顕微鏡画像(左図)と原子間力顕微鏡画像(右図)。左図において、真円に近い形状のエッチピットは CR-39 に対して垂直に入射した 500 MeV/n Fe イオンの飛跡で、開口部が楕円になっている大きい方のエッチピットは CR-39 に対して 60°の角度で入射した 500 MeV/n Fe イオンの飛跡である。右図は、極微量のエッチングにより成長した 490 MeV/n Si イオンによる円錐状エッチピットの深さ情報を反転させて表示している³⁰⁾(安田仲宏氏より提供)。山の頂点が、エッチピットの先端部分に対応する。

こされる。一般には、重荷電粒子の経路に沿ったある体積内に放射線損傷を引き起こし、それがエッチピットの種となる潜在飛跡を作ると考えられている。物質内部で起きる構造変化と飛跡生成機構に関する物理的解釈については諸説が提案されており、1969年に道家³¹⁾によって4つの説(Displacement cascade 説³²⁾、

Electron thermal spike 説³³⁾、Ion explosion 説³⁴⁾、Direct ionization damage 説⁶⁾が詳細に解説されている。固体飛跡検出器はその材質により飛跡生成の仕組みが異なる。Direct ionization damage 説は有機物質中における飛跡生成について良く説明できると考えられているが、高分子中のどの結合が優先的に切断され、結果として飛跡を生成し得るのかはいまだ結論は出されていない。「4 CR-39 に形成される潜在飛跡と放射線化学損傷」で紹介するように、高分子を材料とした固体飛跡検出器としては幾つか存在するが、その中で CR-39 は抜きん出た感度を有する材料である。CR-39 は3次元ネットワーク構造をもつ高分子であり、放射線反応は結合の切断が支配的で、エネルギーの吸収作用をもつベンゼン環を含まないことが高感度を示す所以であると考えられている³⁵⁾。同じ高分子であっても、その構造によって飛跡生成感度は大きく異なる。高分子の放射線照射効果と潜在飛跡の関係については、「4 CR-39 に形成される潜在飛跡と放射線化学損傷」で詳しく議論する。次節では、飛跡生成感度が従う電離損失モデルについて解説する。

2.3 電離損失モデル

固体飛跡検出器に飛跡が形成されるためには、荷電粒子の通過経路に沿った単位長さ当たりにある一定以上のエネルギーが付与されなければならない。一般に、Bethe-Bloch の式で表されるような全電離損失量(dE/dx)³⁶⁾が考えられるが、この指標では飛跡生成の閾値を説明できないことが報告されている³⁷⁾。つまり、阻止能 dE/dx が同じであっても、エネルギーや電荷によって飛跡が生成する場合と生成しない場合が混在する場合がある。Fleischer 等は、荷電粒子の経路に沿った電離損失のみを与える第一イオン化比(Primary Ionization: dJ/dx)を用いることを提唱し、飛跡生成の閾値を良く説明できることを示した³⁸⁾。しかしながら、 dJ/dx の閾値が一定値として与えられるためには平均イオン化ポテンシャルとして 2 eV というあまりにも低い値を使用しなければならなかった。これは有機物質のイオン化ポテンシャルが 9 eV-15 eV 程度であるのに対して、2 eV という値ではイオン化は不可能であるために不適切であった。更には、この説では荷電粒子の通過に伴い放出される 2 次電子(δ 線)の放射線損傷への寄与を全て無視することになり不自然である。

そこで、1967年に Katz 等³⁹⁾は荷電粒子の通過経路を中軸とした円筒を考え、その軸から半径 r だけ

離れた点における δ 線によるエネルギー付与 D_r (径方向線量分布) が飛跡生成に関する最適の変数と考えた. PC や CN を使用した実験から, 半径 r の値としてエッチング溶液が自由に出入りできる最小の大きさをとり, おおよそ 20 \AA とした. 飛跡生成のための $D_{20 \text{ \AA}}$ に閾値が存在し, 尚且つその値は 10^6 rad – 10^7 rad (10^4 Gy – 10^5 Gy) の γ 線照射により有効な放射線損傷が起こり始める線量と一致することを示した.

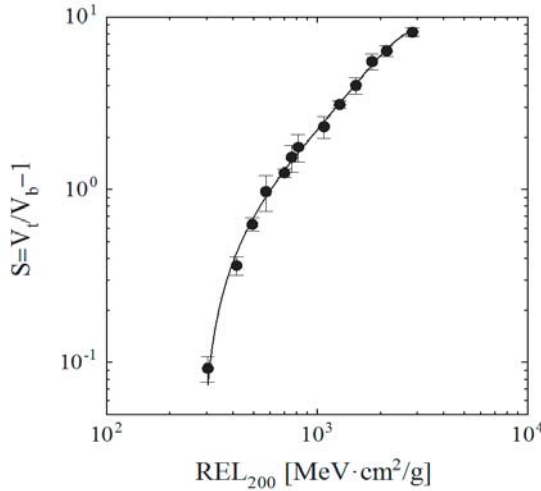


図4 限定電離損失量 REL ($\omega_0=200 \text{ eV}$) に対する CR-39 の飛跡生成感度 (S) の関係. 5次関数を用いた近似曲線 (実線) を得ることで, 未知のイオンに対する REL を求めることができるために, 較正曲線とも呼ばれている.

Katz 等の提案した荷電粒子の通過経路に沿った線量分布は飛跡生成機構を理解する上で非常に重要であるが, その計算は非常に煩雑で, これを飛跡生成感度の指標として実際に飛跡検出器に適用するには扱いにくいものであった. そこで, 計算が平易で実験データを再現し得る量として, 限定エネルギー損失 (Restricted Energy Loss: REL) を 1969 年に Benton 等が提唱した⁴⁰⁾. これは, 荷電粒子によって叩き出された δ 線のうち, エネルギーの高いものは粒子の経路から遠くまで飛び去ってしまい飛跡生成には寄与せず, エネルギーの低いもののみがその経路近傍にエネルギーを付与し, そのエネルギー付与量だけが飛跡生成に関与するという説である. つまり, あるエネルギー以上の δ 線の寄与を除外した限定的な電離損失を考えるというものである. したがって, REL は Bethe-Bloch の式

で表される荷電粒子のエネルギー損失のうち, ある一定エネルギー (ω_0) 以上の δ 線が飛跡近傍から持ち去るエネルギー損失を差し引いた量, 即ちある閾値よりもエネルギーの高い δ 線による寄与を考慮しないエネルギー損失として定義される. ω_0 は実験値と整合するように調整できるパラメータとして取り扱われ, 物質に固有な値として使用される. CR-39 については, 1979 年に Fowler 等が, 高エネルギー宇宙線観測を行ううえで ω_0 の値を 200 eV に設定すると実験値を説明し得ると提案した⁴¹⁾. 現在ではこの 200 eV を実用上の閾値として使用して, 図 4 のように CR-39 の応答関数を求めるのが通例になっている. 最近になって, HIMAC を用いた様々な電荷とエネルギーの重イオンビームと原子間力顕微鏡を用いた飛跡精密計測技術によって, 200 eV というカット値が広いエネルギーのイオンに対してユニバーサルなスケールング・パラメータになっていることが実証されてきている⁴²⁾.

以上のように, CR-39 の飛跡生成感度をスケールする電離損失モデルとしては, 限定電離損失量 REL ($\omega_0=200 \text{ eV}$) が適切であると考えられる. 一方で, この 200 eV というエネルギー閾値は, 放出される δ 線の最大飛程と CR-39 の飛跡生成に関与する分子構造の幾何学的距離に密接に関係していると推察しており, 現在シミュレーションを用いた考察を進めている.

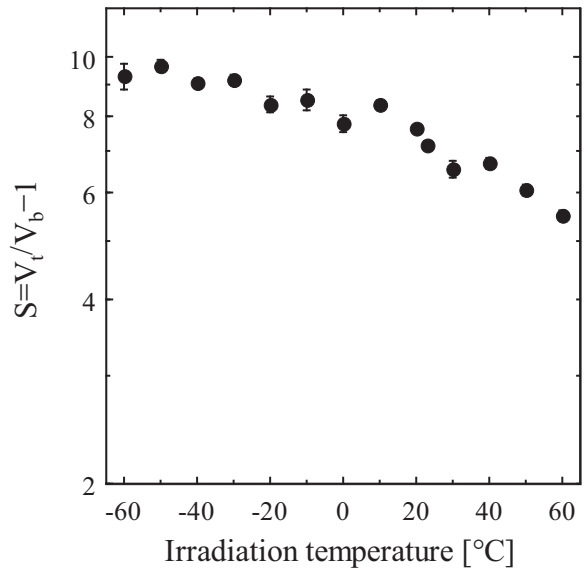


図5 照射時温度 (T) に対する CR-39 の飛跡生成感度 (S) の関係⁴⁸⁾.

3 重イオン照射時環境による飛跡生成感度依存性

これまで重イオン飛跡検出の物理過程と電離損失モデルについて述べてきたが、CR-39 を飛跡検出器として利用する際、イオン照射時の環境（温度や圧力など）が飛跡生成感度に及ぼす影響がしばしば問題となる。これらは本質的には、高分子としての化学的性質や放射線化学作用に密接に関連していると考えられる。特に真空効果については「4.6 真空効果とヒドロキシル基生成の抑制」で詳細を述べる。ここではそれらが検出器に及ぼす影響の物理的性質についてまとめる。

3.1 照射時温度効果

O'Sullivan 等^{43,44)}により固体飛跡検出器の飛跡生成感度が重荷電粒子照射時の温度に大きく影響を受けることが明らかにされて以降、小倉等⁴⁵⁾や Hamasaki 等⁴⁶⁾により照射時温度の感度変動が研究され、潜在飛跡生成時に温度が高くなるほど飛跡生成感度が低下することが報告されている。これを照射時温度効果 RTE (registration temperature effect) と呼んでいる。現象論的には、潜在飛跡生成時の固体飛跡検出器の温度が高い、即ち分子の熱運動が活発化しているために切断された結合が再結合し、飛跡生成感度を低下させるものと解釈される⁴⁷⁾。しかしながら、RTE のおよその傾向はあるものの、固体飛跡検出器の材質や同じ材質でも重合条件によっても RTE の程度は様々である⁴³⁻⁴⁷⁾。CR-39 の RTE については、図 5 のように照射時温度 (T) が高くなるほど飛跡生成感度 S は小さくなる傾向が見られ、 -60°C から -30°C と -30°C から $+60^{\circ}\text{C}$ では S の変動の割合が異なることが示されている⁴⁸⁾。

3.2 照射時圧力効果

Henke 等⁴⁹⁾により、重荷電粒子照射時の大気中での圧力変動による固体飛跡検出器の飛跡生成感度の変動が確認されて以降、様々な実験がなされた結果^{14,50-54)}、重イオン照射時に限らず、有機材質の固体飛跡検出器については酸素が潜在飛跡生成に大きく関与していることが報告されている。大まかには、酸素濃度が少ないほど飛跡生成感度は低下する傾向にあり、これは飛跡生成機構に密接に関係していると考えられる。CR-39 の照射時圧力効果については、図 6 のように、圧力が下がるほど、 S が低下する傾向が見られる、CR-39 中の酸素の消失量に依存していると考えられる。また、圧力が 100 Torr 付近で急激に S の変動傾向

が変わることも示されている。CR-39 内の酸素効果については「4.6 真空効果とヒドロキシル基生成の抑制」で詳しく議論する

3.3 入射角度効果

Hayashi 等⁵⁵⁾は気球実験により相対論的エネルギーにある宇宙線を CR-39 を用いて観測を行った際に、飛跡生成感度が宇宙線重粒子の入射角度に依って大きく変化することを見出した。その後、Doke 等はこの現象を受け入れ、CR-39 を用いた宇宙放射線計測の場では観測された宇宙線の LET に対して入射角の補正パラメータを導入した⁵⁶⁾。藤井はこの入射角度依存性は固体飛跡検出器の表面からの深さ方向に特性が異なっていたためであると指摘したが³⁵⁾、決定的な原因はいまだに明らかとなっていない。一般に、固体飛跡検出器では化学エッチングをした結果、検出器に対してある臨界角^{*1}より浅い角度で入射した粒子の飛跡は消滅して観測されなくなるが、このこととは別に CR-39 においては、図 7 のように、入射角度が浅くなるにつれて S が低下する傾向が見られている⁵⁷⁾。

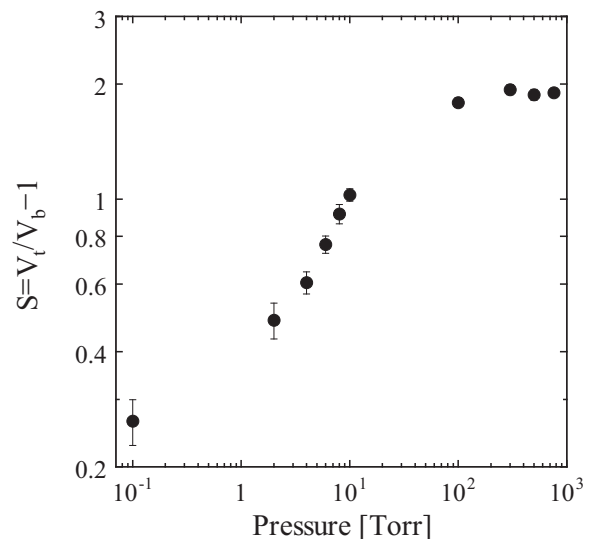


図 6 照射時圧力 (P) を 0.1 Torr–760 Torr まで変化させた時の CR-39 の飛跡生成感度 (S) の変化⁴⁸⁾。

*1 荷電粒子の入射角度がある一定値 θ_c より小さくなるとバルクエッチング速度 (V_b) が飛跡に沿ったトラックエッチング速度 (V_t) よりも先行するため飛跡が形成されない。この角度 $\theta_c (= \sin^{-1} V_b/V_t)$ を臨界角と呼び、その大きさは飛跡生成感度により決定されることがわかる。

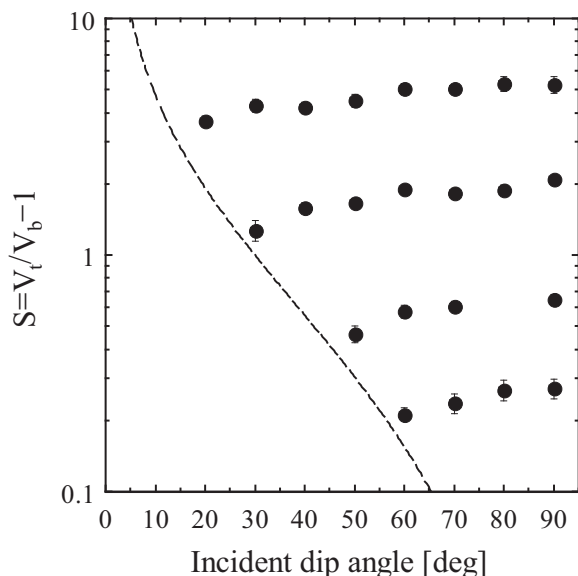


図7 入射角度 (θ) と CR-39 の飛跡生成感度 (S) の関係。破線は臨界角の境界線で、この境界の左側の角度領域では飛跡を生成し得ない。

4 CR-39 に形成される潜在飛跡と放射線化学損傷

これまで CR-39 の重イオン検出器としての性質と物理過程について述べてきたが、ここからは放射線化学損傷の観点から飛跡生成に関わる化学過程について解説する。そのため以下では REL にかえて阻止能を放射線損傷の指標とし議論していく。

4.1 高分子型エッチング検出器の分子構造

CR-39 という名称は一般的に使用されているが、ここでは他の高分子との比較・議論を行うため、物質名称である PADC として以降呼ぶこととする。最も高い検出感度を有する PADC 中に形成する潜在飛跡の特徴を他の高分子中に生じるそれらとの比較において理解できると、これはさらに飛跡記録特性に優れた分子配列を知るための有益な情報になるだろう。PADC の構造式を、数世代前のエッチング型飛跡検出器である PET や PC のそれらとともに図 8 に示す。PADC の繰り返し構造単位の中央にはエーテル結合がある。また、2 つのカーボネートエステル結合がエチレン基を介した対称の位置に存在している。これらは PADC 中で放射線感受性の高い部分である。繰り返し構造の

両端は重合の際に生まれるポリエチレン状の 3 次元ネットワークにつながっている。これは PADC の骨格となっており、耐放射線性が比較的高い部分である。繰り返し構造単位の長さは 2 nm 程度であり、ブラッグピーク近傍のエネルギーであれば、これは炭素イオンのトラックコア半径に匹敵する。ここに言うトラックコアの定義については「4.3 損傷密度とトラックコア半径」で述べる。プロトンの場合にはトラックコアは単一の繰り返し構造内に形成されるが、重イオンの場合には複数の繰り返し構造にまたがって損傷が形成される。PET にはエーテル結合が存在しており、フェニルリングとメチル基がこれに続いている。PC には PADC と同じカーボネートエステル結合が存在し、フェニルリングとメチル基が存在する。PET や PC これらは基本的に直線構造をしており、PADC のような 3 次元ネットワークを持たない。我々の最近の研究によって、これら 3 つの高分子において最も切断されやすい部分はエーテルやエステル、カーボネートエステル結合にある C-O 結合であることが明らかになっている⁵⁸⁻⁶¹⁾。また、C-O 結合が切断された結果として、エチレングリコールが分子フラグメントとしてエッチング溶液中に存在することが質量分析法により確認されている⁶²⁾。特にカーボネートエステルの切断は二酸化炭素の生成を伴うことも明らかになっている⁶³⁻⁶⁷⁾。

4.2 赤外線分光による定性分析と定量分析

高分子材料の分析にはいくつかの手法があるが、我々は汎用の赤外線分光法 (FT-IR) を採用している。同手法を用いて種々の高分子材料に対する照射効果に関する数多くの研究が行われてきている⁶⁸⁻⁸⁰⁾。これは分子の振動スペクトルのうち双極子モーメントに変化が生じるものを見ている (ラマン分光とは相補的な関係にある)。二酸化炭素のような小さな分子であれば、振動準位の遷移だけでなく回転準位の遷移に由来する吸収ピークも明確にあらわれ、そのような分子の回転運動が束縛される高分子中にあるのか、あるいは大気中にあるかについての情報も得られる。表 1 に PADC に見られる吸収帯の波数と帰属を示す。

我々が特に注目しているのはエーテル結合とカーボネートエステル結合である。前者は 3 つの吸収ピークがいわゆる指紋領域 (通常 1300 から 650 cm^{-1} の領域を指す) に現れているが、定量分析のためには他の吸収帯との重なりが比較的少ない 1030 cm^{-1} のピークを利用した。後者のカーボネートエステルに関連するピークとしては、1260 cm^{-1} の C-O-C 結合と 1745 cm^{-1} の

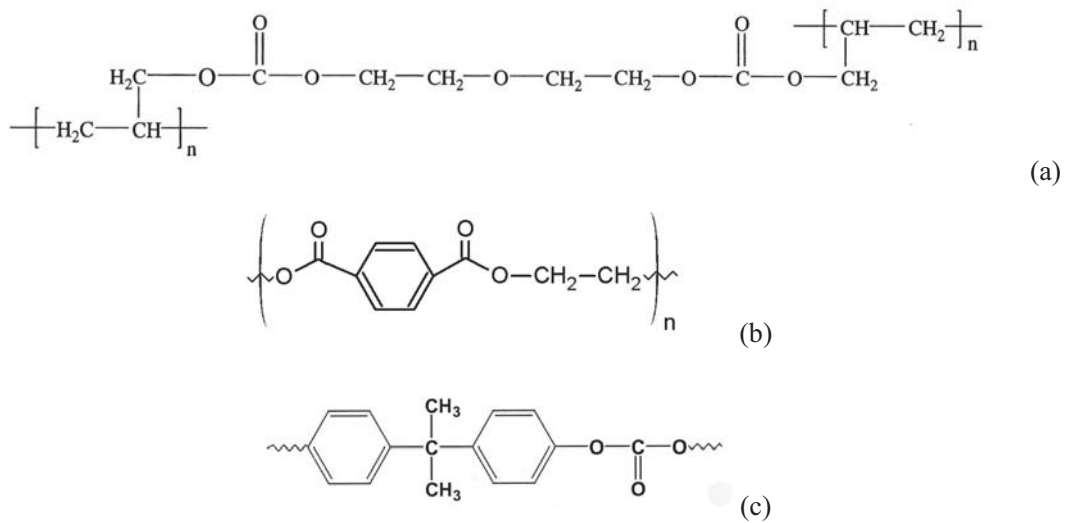
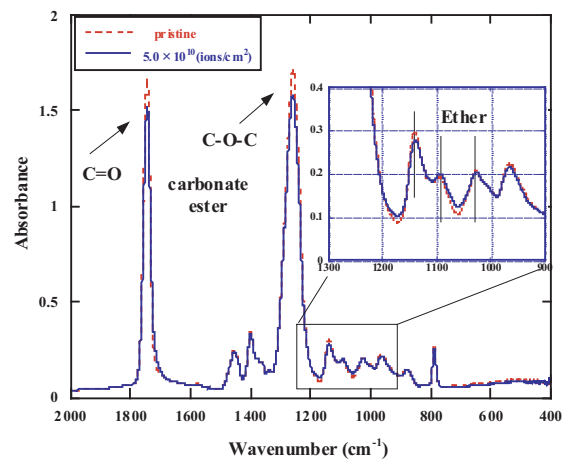


図 8 PADC (a) と PET (b) , PC (c) の繰り返し構造単位 .

表 1 PADC の赤外線吸収帯 .

Wavenumber(cm^{-1})	Group
3460	OH
2962	CH_2
1745	C=O carbonate ester
1458	CH_2
1400	CH_2
1260	C-O-C carbonate ester
1140	C-O-C ester
1100	C-O-C ester
1030	C-O-C ester


 図 9 2.7 μm 厚さの PADC フィルムの Xe イオンを照射する前後の赤外線吸収スペクトル⁵⁹⁾ .

カルボニル結合 (C=O) がある . これらは吸光度が高いので数 μm 厚の PADC フィルムでない限り , 未飽和のピークとして計測することが困難である . ATR 法や錠剤法についても検討を進めたが , 厚さ約 100 μm の PADC を化学エッチングによって 2 μm 程度の薄膜にし , それを試料として利用することにした

照射前後の IR スペクトルを図 9 に示す . 照射したイオンは 200 MeV の Xe イオンであり , フルエンスは 5.0×10^{10} ions/ cm^2 であった . カーボネートエステルを構成する C=O と C-O-C の吸光度が有意に低下している . またエーテルの吸光度も低下している (山が低くなるだけでなく谷が浅くなっているが , 低分子成分の

生成との関係が議論されている . 我々は谷をベースにして正味の吸光度を計測している) . 試料の厚さが全て異なることもあり , 照射前後の正味の吸光度の比率を計測量として利用している . 照射前の吸光度が A_0 であって , 照射後にそれが A に変化したとすれば , 相対吸光度は A/A_0 と表される . 着目している官能基が減少すれば , 相対吸光度は低下する . その低下挙動がフルエンスに対して線形であれば潜在飛跡 (以降 , ト

ラックと呼ぶ)の数の増加がそれに影響しているのであってトラック相互の重なりは事実上無視できると考えてよいだろう。図9に示すように表示しているフルエンス域では相対吸光度はそれに対して直線的に減少している。フルエンスを F とするとき、我々は次のような実験式を導くことが可能であった：

$$A/A_0 = 1 - \sigma_i \cdot F \quad (2)$$

ここに σ_i は実験的に決定される定数であって、面積の次元を有する。これはトラック1本当たりの着目している官能基の除去断面積を表しており、以下では実効的トラックコア断面積として扱う。

トラックの重なりが無視できるときには、相対吸光度は考えている官能基の「生存率」に一致する。この「生存率」は官能基の元の密度を N_0 、照射後のそれを N とすれば、これらの比 N/N_0 によって与えられる。我々は $N/N_0 = A/A_0$ という関係を以下の議論において最大限活用できる。ランベルト・ベールの法則によれば、吸光度は官能基の密度と試料厚さ、そして、官能基のモル吸光係数の積として表される。照射の前後で試料の厚さとモル吸光係数は不変なので、相対吸光度から知ることができるのは密度の変化率である「生存率」である。我々は代表的なエッチング型飛跡検出器である PADC や PC, PET, CN, PI (ポリイミド) に対して、種々のエネルギーを持ったプロトンや重イオンを照射し、様々な官能基に対する実効的トラックコア断面積をデータベースとして確立してきている。

4.3 損傷密度とトラックコア半径

ある官能基について実験的に得られる除去断面積 σ_i と元の密度 N_0 との積は、トラックの単位長さ当りに失われているその官能基の数、すなわち損傷密度を与える。エーテル結合について得られた損傷密度を阻止能の関数として図10に示す。阻止能の増加とともにほぼ単調に損傷密度が高くなっていることが示されている。PADCの繰り返し構造単位の長さは約2nmであるので、1 μ m長さの内には少なくとも500個の構造単位が含まれることになる。ここに示されている損傷密度はこれに対しては十分に密であり、エーテル結合が失われている領域の径方向への広がりを見積もる必要があるだろう。

着目する官能基が失われているとして、2次電子(δ 線)による局所線量分布を参考にすれば、イオンの軌跡により近いものから順番にそれらが失われていると考えることは自然である。こうしてその内側の官能

基が全て失われているような半径をトラックコア半径と定義した。これはある意味の近似であり、例えば、高いエネルギーの δ 線によってイオンの軌跡からかなり離れた位置の官能基が損傷を受けるような場合には訂正を迫られることになる。また分子鎖がトラックに沿って切断・変成している以上、照射後の官能基密度がトラックの近傍においても元の密度 N_0 のままであると考えるのは困難である。このような意味でこれは実効的トラックコア半径であって、照射前の状態を考えたときにイオンの軌跡からどの程度の距離まで着目する官能基に影響を及ぼすかを理解するための指標であると理解している。実効的トラックコア半径の値は実験によって得られる除去断面積から計算される。エーテル結合についての結果を図11に示す。C以上の重イオンではトラックコアは複数の繰り返し構造単位にまたがって広がっていると考えられるが、プロトンとHeイオンの場合には単一の構造単位内におさまっていると見られる。

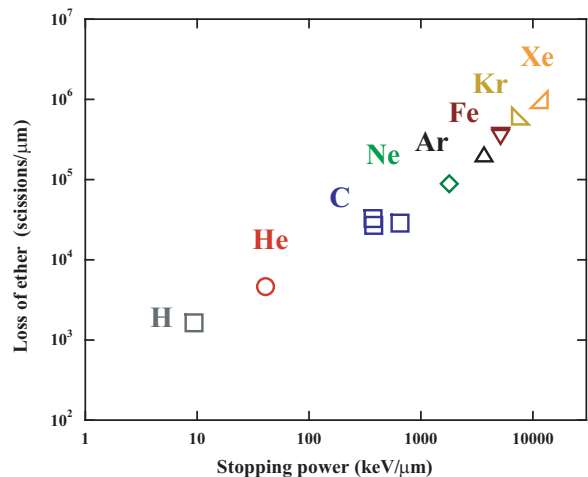


図10 PADC中における阻止能の関数として表したエーテル結合損失の損傷密度⁵⁹⁾。

4.4 他の分析方法との比較

我々はもっぱら赤外線分光法の助けを借りてPADC中の重イオントラックについての分析を進めているが、他の手法による結果についてもまとめておきたい。電気伝導度法は、電極を有する電解溶液を含む2つのセルを、単一あるいは複数のイオントラックを含む高分子フィルムによって隔離した体系において、エッチングによるトラックの開口挙動を電流の変化と

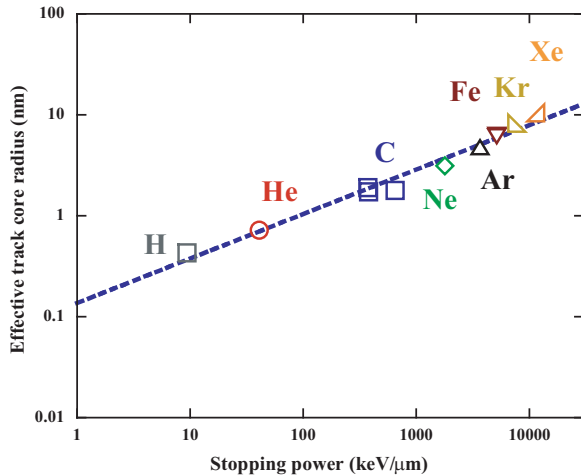


図 11 PADC 中における阻止能の関数として表したエーテル結合損失の実効的トラックコア半径⁵⁹⁾。

して計測し、径方向のトラックエッチング速度を評価する手法である。PET や PC についての研究は数多く報告されているものの、PADC についての研究例は少ない。図 12 中の (1) に示すように、プロトンについての結果が Oganessian らによって報告されている⁸¹⁾。この手法によるコア半径はエッチング速度が周辺よりも有意に高くなっている領域であるとされる。またプロトンのトラックの広がりについて、密度が有意に低下している領域を表す中性子小角散乱法による結果が Lounis-Mokrani らによって同図中の (2) に示すように与えられている⁸²⁾。ESR (電子スピン共鳴法) によって計測したラジカル密度からトラックサイズを評価する試みも行われており⁸³⁾、その結果は同図中 (3) に示している。

我々も独自の試みとして、紫外可視分光スペクトルの照射フルエンス依存性とトラックオーバーラッピングモデルに従ってトラックコア半径を評価してきている (図中 UV 法 (5) と (6))^{84,85)}。高いフルエンスで照射すると PADC 素子は琥珀色に着色することが知られている。UV 法で示される半径は、そのような変色した領域の広がりであると言えるが、本論で紹介している IR 法の結果との比較で言えば、図中に実線で示したようにエーテル結合損失のコア半径とよく一致している。また AFM 法としているのは原子間力顕微鏡による計測結果に基づくものであり、その表面観察は 1 分以内の短時間エッチングにおけるエッチピットの成長挙動からも求められるものである。具体的には横

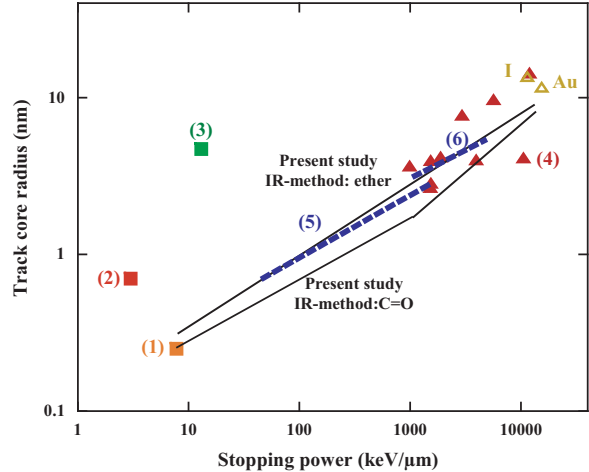


図 12 赤外線吸収スペクトル法 / IR 法を含む、種々の手法で評価された PADC 中トラックコア半径: (1) 電気伝導法⁸¹⁾; (2) 中性子微小角散乱⁸²⁾; (3) 電子スピン共鳴法⁸³⁾; (4) 原子間力顕微鏡 / AFM 法^{84,85)}; (5) 紫外線吸収スペクトル法 / UV 法 (神戸大学タンデム加速器による結果); (6) 紫外線吸収スペクトル法 / UV 法 (HIMAC による結果)。

軸にエッチング時間、縦軸にピット半径をとった成長パターンを直線フィッティングした際の切片がいずれの場合にも原点を通らず正の切片を有するという実験結果に基づいており、その切片の大きさをコア半径とした。この手法ではコア半径は径方向に有意に大きくなっている広がりとして定義されている。幾つかの計測例を除くと、IR 法や UV 法が与える値よりも AFM 法が与える値が大きくなっている。実効的トラック半径ではなくて、実際の損傷の広がりを理解する場合には、このような異なった手法が与える結果を系統的に求めておくことは重要であろう。

4.5 放射線化学収率に見る PADC の特徴

PADC 中の官能基損失の放射線化学収率 (G 値) の特徴は阻止能に対する複雑な依存性であり、特に、ガンマ線やプロトンに対して高い値を持つということである。図 13 に PET と PC, PADC の特性を相互比較するために何れの高分子にも含まれているカルボニル (C=O) の結果を示している。ガンマ線は Co-60 線源を使った実験であり、2 次電子の平均的な LET は 0.4 keV/μm 程度である⁵⁸⁾。PET においては 300 keV/μm 付近の He イオンと C イオンの境界に明

瞭なステップが見られるが、エッチング可能なトラックが形成される閾値がこの阻止能に一致している。トラックコア半径と分子構造との比較によれば、2つ以上のC-O結合の切断がトラックコア内で生じるとなるとそのトラックはエッチング可能になると見られる⁶¹⁾。PCについてはほぼ阻止能依存性が無いと言える。PC中のC=O結合の減少数を計測することができると、ガンマ線からXeイオンまでの広いLET範囲においてGy単位で表される吸収線量を評価できると期待される⁵⁵⁾。PADCについては1000 keV/μmまでは阻止能とともにG値は小さくなり、それ以上の値では再び増加すると読み取れる。まだまだ実験点が少ないことに注意が必要であるが、PETやPCとは異なり、異なるイオン種になると阻止能が同じでもG値が有意に異なることが確認されてきている⁸⁶⁾。HeイオンとCイオン、そしてFeイオンについての最近の計測結果によれば、同一のイオン種では阻止能が小さいほどG値は大きくなる。また、実験条件となった300 keV/μm付近の阻止能においては、Heイオン、Cイオン、Feイオンの順番にG値は大きくなることが確認された。これはガンマ線に対してG値が大きいことと関係していると考えられている。PADC中のカーボネートエステル結合を構成するC=Oは、高エネルギーの電子によっても効率的に損傷されるのであり、阻止能が小さい領域、すなわち高エネルギー領域で生まれる高いエネルギーを持ったδ線によってイオンの軌跡からやや離れたところでもC=Oが損傷を受けている結果であると考えられる。実際に、高いエネルギーの電子に対しては一定の放射線耐性を示すPETやPCではこのような傾向は見られていない。

4.6 真空効果とヒドロキシル基生成の抑制

飛跡生成感度におよぼす真空効果については、真空中におけるヒドロキシル基形成効率の低下が関係していると考えられている。図14は真空中及び大気中で48 MeVのCイオンを照射する前後のPADCの赤外線吸収スペクトルである。示している波数域にはヒドロキシル基の伸縮振動ピークが現れている。真空中ではヒドロキシル基の生成が抑制されている。その一方で、エーテル結合やカーボネートエステル結合の損失については大気中でも真空中でも大差がないことが重イオンに対して示されるようになってきている(ガンマ線照射では大きな差異が見れる)。

以上のようなFT-IRによる分析結果から、我々は図15に示すような重イオントラックの形成モデルを提

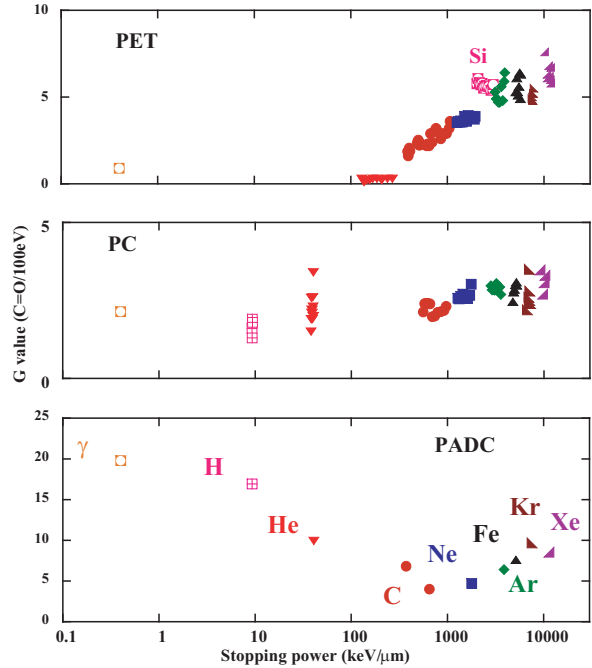


図13 PETとPC, PADC中のC=O結合損失の放射線化学収率⁶¹⁾。

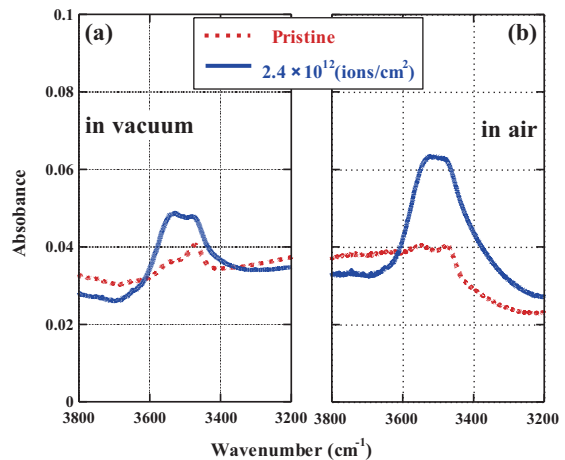


図14 真空中(a)及び大気中(b)において48 MeVの炭素イオンを照射したPADCフィルムの赤外線吸収スペクトルの変化⁸⁷⁾。

案してきている⁸⁷⁾。大気中であっても真空中であってもトラックコア内においてはエーテルやカーボネートエステルが損傷を受ける。その結果、カーボネートエステルからは二酸化炭素が放出され、エーテルとカー

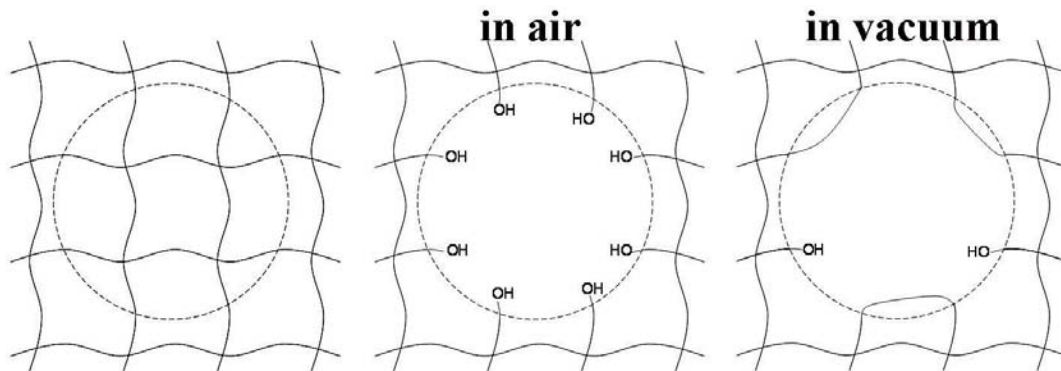


図 15 PADC 検出器中に真空中 (a) 及び大気中 (b) で形成される潜在飛跡の模式図⁸⁷⁾。

ボネートエステルが損傷したためにその間のエチレン状の小さな分子も系外に放出されることになる⁸⁵⁾。このような比較的長い範囲のセグメント化によって元の状態に再結合することは極めて困難である。大気中においては酸素や水分の影響もあり、変成を伴うような再結合も抑制され、ヒドロキシル基を新しい端点とする安定した分子鎖の切断点が生まれる。真空中においては変成を伴う再結合の確率が高くなり、ヒドロキシル基の生成率は低くなる。トラックコア半径は大気中でも真空中でもほとんど同じであるが、親水基であるヒドロキシル基の密度が異なるために真空中で生まれたトラックへのエッチング溶液の侵入速度は大気中で生まれたトラックに比較すると遅くなるだろう。ヒドロキシル基の生成密度を正確に評価し、それを含む端点の構造を詳しく理解することがひとつの研究課題になっている。

5 まとめと今後の展望

固体飛跡検出器の歴史的経緯や検出原理、物理・化学的性質を通じて、CR-39 がなぜ高感度なのか、どのようなメカニズムで飛跡が生成するのか、といった基本的な動作原理を解明する研究の現状について解説を試みた。トラックコア半径と分子構造との比較から、2 つ以上の C-O 結合の切断がトラックコア内で生じるとなるとそのトラックはエッチング可能になるとする仮説を現在様々な材料で検証中である。とりわけ CR-39 は他のポリマーにはない 3 次元ネットワーク構造を持ち、重イオン照射により最も切断されやすい C-O 結合をそのモノマー中心にあるエーテルと 2 つのカーボネートエステルに有しており、その「絶妙の

構造」が最高感度であることに強く関連している。また、ガンマ線(電子)・プロトンと重イオンを用いた総合的な考察から、放射線照射によって引き起こされる全ての化学損傷がエッチピットの成因になるとは限らず、それが飛跡生成の閾値を決める要因となっているものと考えられる。物理計測として用いる飛跡生成感度と電離損失モデルの関係は、CR-39 のモノマー構造の幾何学的距離に依存していると考察を始めているところである。今後、照射時に生成するラジカルの系統的測定や新しい端点として生まれているヒドロキシル基の定性的・定量的分析を進めることで、発見されて以来 40 年近く不明であった CR-39 が高感度である理由付けと、飛跡生成メカニズムの解明を試みたい。この研究が成功すれば、これまでにない超高感度材料や新しい機能性材料をフレキシブルにデザインできるようになるものと期待される。必ずしも放射線化学を主たる専門とはしていない我々が、固体飛跡検出器というひとつの検出器の動作原理を理解するためにこのような研究を進めている。著者らの浅学のために大きな誤解のあることも危惧している。放射線化学や高分子化学などを専門とする違った視点から、さまざまな助言や議論を賜れば幸甚である。

6 謝辞

本研究はさまざまな共同研究者や学生の協力の元で進められている現在進行形の研究であります。中心となって研究を進めている神戸大学海事研究科の学生・院生諸兄に感謝致します。本研究は放射線医学総合研究所の重粒子線がん治療装置 HIMAC における共同利用研究課題の一部として行われました。HIMAC 関係

者各位に感謝致します。

参考文献

- 1) D.A. Young, *Nature*, 182 (1958) 375.
- 2) E.C.H. Silk and R.S. Barnes, *Philos. Mag.*, 4 (1959) 970.
- 3) P.B. Price and R.M. Walker, *Phys. Lett.*, 3 (1962) 113.
- 4) P.B. Price and R.M. Walker, *J. Appl. Phys.*, 33 (1962) 3400.
- 5) R.L. Fleischer, P.B. Price and R.M. Walker, *J. Geophys. Res.*, 70 (1965) 1497.
- 6) R.L. Fleischer, P.B. Price and R.M. Walker, *Nuclear Tracks in Solids*, University of California Press (1975).
- 7) 坂上正信, 化学の領域選書 6 「粒子トラックとその応用」 南江堂 (1973).
- 8) P.B. Price, *Radiat. Meas.*, 40 (2005) 146.
- 9) Y. Fukuda, A.Ya. Faenov, M. Tampo, T. A. Pikuz, T. Nakamura, M. Kando, Y. Hayashi, A. Yogo, H. Sakaki, T. Kameshima, A. S. Pirozhkov, K. Ogura, M. Mori, T. Zh. Esirkepov, J. Koga, A.S. Boldarev, V.A. Gasilov, A.I. Magunov, T. Yamauchi, R. Kodama, P.R. Bolton, Y. Kato, T. Tajima, H. Daido, S.V. Bulanov, *Phys. Rev. Lett.*, 103 (2009) 165002.
- 10) B.G. Cartwright, E.K. Sirk and P.B. Price, *Nucl. Instr. Meth.*, 153 (1978) 457.
- 11) E.V. Benton, Study of charged particle tracks in cellulose nitrate, USNRDL-TR-68-14 (1968).
- 12) Shi-Lun Guo, J. Drach, P.B. Price, M.H. Salamon, M.L. Tincknell, S.P. Ahlen, G. Tare, *Nucl. Tracks and Radiat. Meas.*, 9 (1984) 183.
- 13) J. Drach, P.B. Price, M.H. Salamon, *Nucl. Instr. Meth. B*, 28 (1987) 49.
- 14) S.W. Barwick, K. Kinoshita, P.B. Price, *Phys. Rev. D* 28 (1983) 2338.
- 15) T. Doke, H. Tawara, T. Hayashi, H. Ichinose, K. Kuwahara, S. Nakamura, S. Orito, K. Ogura, *Nucl. Instr. Meth. B*, 34 (1988) 81.
- 16) K. Ogura, M. Asano, N. Yasuda, M. Yoshida, *Nucl. Instr. Meth. B*, 185 (2001) 222.
- 17) T. Tsuruta, *Radiat. Meas.*, 31 (1999) 99.
- 18) T. Tsuruta, *Radiat. Meas.*, 32 (2000) 289.
- 19) Y. Koguchi, T. Tsuruta, *Radiat. Meas.*, 35 (2005) 171.
- 20) T. Tsuruta, Y. Koguchi, N. Yasuda, *Radiat. Meas.*, 43 (2008) S48.
- 21) S. Kodaira, M. Asaeda, T. Doke, M. Hareyama, N. Hasebe, K. Ogura, N. Yasuda, T. Tsuruta, Y. Kori, *Radiat. Meas.*, 43 (2008) S52.
- 22) S. Kodaira, N. Yasuda, H. Kawashima, M. Kurano, N. Hasebe, T. Doke, S. Ota, T. Tsuruta, H. Hasegawa, S. Sakai, T. Nishi, K. Ogura, *Radiat. Meas.*, 44 (2009) 775.
- 23) E.V. Benton, R.A. Oswald, A.L. Frank, R.V. Wheeler, *Health Phys.*, 40 (1981) 801.
- 24) T. Doke, T. Hayashi, S. Nagaoka, K. Ogura, R. Takeuchi, *Radiat. Meas.*, 24 (1995) 75.
- 25) S. Ota, N. Yasuda, L. Sihver, S. Kodaira, M. Kurano, S. Naka, Y. Ideguchi, E.R. Benton, N. Hasebe, *Nucl. Instr. Meth. B*, 269 (2011) 1382.
- 26) S. Kodaira, S. Naka, N. Yasuda, H. Kawashima, M. Kurano, S. Ota, Y. Ideguchi, N. Hasebe, K. Ogura, *Nucl. Instr. Meth. B*, 274 (2012) 36.
- 27) S. Kodaira, N. Yasuda, N. Hasebe, T. Doke, S. Ota, M. Sato, H. Tawara, K. Ogura, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 46 (2007) 5281.
- 28) A.N. Golovchenko, J. Skvarc, N. Yasuda, M. Giacomelli, S.P. Tretyakova, R. Ilic, R. Bimbot, M. Toulemonde, T. Murakami, *Phys. Rev. C* 66 (2002) 014609.
- 29) S. Kodaira, T. Doke, N. Hasebe, M. Hareyama, T. Miyachi, M. Miyajima, K. Sakurai, S. Ota, M. Sato, Y. Shimizu, M. Takano, S. Torii, N. Yasuda, S. Nakamura, H. Tawara, K. Ogura, S. Mikado, H. Shibuya, K. Nakazawa, *J. Phys. Soc. Jpn.*, 78 (Suppl. A) (2009) 138.
- 30) M. Yamamoto, N. Yasuda, M. Kurano, T. Kanai, A. Furukawa, N. Ishigure, K. Ogura, *Nucl. Instr. Meth. B*, 152 (1999) 349.
- 31) 道家忠義, *応用物理*, 38 (1969) 1065.
- 32) J.A. Brinkman and N. Amer. *Aviation Rep.*, (1962) SR-6642.
- 33) K.M. Merkle, *Phys. Rev. Lett.*, 9 (1962) 150.
- 34) R.L. Fleischer, P.B. Price and R.M. Walker, *J. Appl. Phys.*, 36 (1965) 3645.
- 35) 藤井正美, 宇宙科学研究所報告, 第 22 号 (1984).
- 36) W.H. Bragg, R. Kleeman, *Philos. Mag.*, 10 (1905) 318.
- 37) R.L. Fleischer, P.B. Price, R.M. Walker, R.C. Filz, K. Fukui, M.W. Friedlander, E. Holeman, R.S. Rajan, A.S. Tamhane, *Science*, 155 (1967) 187.
- 38) R.L. Fleischer, P.B. Price and R.M. Walker, *Phys. Rev.*, 156 (1967) 353.

- 39) E.J. Kobetich and R. Katz, *Phys. Rev.*, 170 (1968) 391.
- 40) E.V. Benton and W.D. Nix, *Nucl. Instr. Meth.*, 67 (1969) 343.
- 41) P.H. Fowler, S. Amin, V.M. Clapham, D.L. Henshaw, *Proc. of the 16th Int. Cosmic Ray Conf.*, 11 (1979) 97.
- 42) S. Kodaira, N. Yasuda, T. Konishi, H. Kitamura, M. Kurano, H. Kawashima, Y. Uchihori, K. Ogura, E.R. Benton, Submitted to *Radiat. Meas.*
- 43) D. O'Sullivan and A. Thompson, *Nucl. Tracks*, 4 (1980) 271.
- 44) D. O'Sullivan, A. Thompson, J.A. Adams, L.P. Beahm, *Nucl. Tracks Radiat. Meas.*, 8 (1984) 143.
- 45) 小倉紘一, 尾形正広, 白井幸一, 玉井英次, *放射線*, 10 (1983) 101.
- 46) R. Hamasaki, T. Hayashi and T. Doke, *Nucl. Tracks*, 9 (1984) 149.
- 47) P.Yu. Apel, A.YU. Didyk, B.I. Fursov, L.I. Kravets, V.G. Nesterov, L.I. Samoilo, G.S. Zhdanov, *Radiat Meas.* 28 (1997) 19.
- 48) S. Kodaira, N. Yasuda, H. Tawara, K. Ogura, T. Doke, N. Hasebe, T. Yamauchi, *Nucl. Instr. Meth. B*, 267 (2009) 1817.
- 49) R.P. Henke, E.V. Benton and H.H. Heckman, *Radiat. Eff.*, 3 (1970) 43.
- 50) G. Somogyi, in: *Proc. 11th Int. Conf. Solid State Nuclear Track Detectors*, 1981, p.101.
- 51) M. Fujii, I. Csige and G. Somogyi, *Proc. of the 20th Int. Cosmic Ray Conf.*, 2 (1987) 414.
- 52) J. Drach, M. Solarz, REN Guoxiao, P.B. Price, *Nucl. Instr. Meth. B*, 28 (1987) 364.
- 53) I. Csige, I. Hunyadi, J. Charvat, *Nucl. Tracks Radiat. Meas.*, 19 (1991) 151.
- 54) T. Yamauchi, K. Oda and H. Miyake, *Nucl. Tracks Radiat. Meas.*, 20 (1992) 615.
- 55) T. Hayashi and T. Doke, *Nucl. Instr. Meth.*, 174 (1980) 349.
- 56) T. Doke, T. Hayashi, M. Kobayashi, A. Watanabe, *Radiat. Meas.*, 28 (1997) 445.
- 57) N. Yasuda, D.H. Zhang, S. Kodaira, Y. Koguchi, S. Takebayashi, W. Shinozaki, S. Fujisaki, N. Juto, I. Kobayashi, M. Kurano, D. Shu, H. Kawashima, *Radiat. Meas.*, 43 (2008) S269.
- 58) Y. Mori, T. Ikeda, T. Yamauchi, A. Sakamoto, H. Chikada, Y. Honda, K. Oda, *Radiat. Meas.*, 44 (2009) 211.
- 59) Y. Mori, T. Yamauchi, M. Kanasaki, Y. Maeda, K. Oda, S. Kodaira, T. Konishi, N. Yasuda, R. Barillon, *Radiat. Meas.*, 46 (2011) 1147.
- 60) T. Yamauchi, Y. Mori, K. Oda, S. Kodaira, N. Yasuda, R. Barillon, *KEK Proceedings-2010 RADIATION DETECTORS AND THEIR USES* (2010), p.1.
- 61) T. Yamauchi, Y. Mori, A. Morimoto, M. Kanasaki, K. Oda, S. Kodaira, T. Konishi, N. Yasuda, S. Tojo, Y. Honda, R. Barillon, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 51 (2012) 056301.
- 62) S. Kodaira, D. Nanjo, H. Kawashima, N. Yasuda, T. Konishi, M. Kurano, H. Kitamura, Y. Uchihori, S. Naka, S. Ota, Y. Ideguchi, N. Hasebe, Y. Mori, T. Yamauchi, *Nucl. Instr. Meth. B*, 286 (2012) 229.
- 63) T. Yamauchi, *Radiat. Meas.*, 36 (2003) 73.
- 64) T. Yamauchi, H. Nakai, Y. Somaki, K. Oda, *Radiat. Meas.*, 36 (2003) 99.
- 65) T. Yamauchi, R. Barillon, E. Balanzat, T. Asuka, K. Izumi, T. Masutani, K. Oda, *Radiat. Meas.*, 40 (2005) 224.
- 66) T. Yamauchi, Y. Mori, K. Oda, N. Yasuda, H. Kitamura, R. Barillon, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 47 (2008) 3606.
- 67) T. Yamauchi, S. Watanabe, A. Seto, K. Oda, N. Yasuda, R. Barillon, *Radiat. Meas.*, 43 (2008) S106.
- 68) E. Balanzat, N. Betz, S. Bouffard, *Nucl. Instr. Meth. B*, 105 (1995) 46.
- 69) R. Barillon and T. Yamauchi, *Nucl. Instr. Meth. B*, 208 (2003) 336.
- 70) C. Gagnadre, J. L. Decossas, and J. C. Vareille, *Nucl. Instr. Meth. B*, 73 (1993) 48.
- 71) C. Darraud, B. Bennamane, C. Gagnadre, J.L. Decossas, J.C. Vareille, *Polymer*, 35 (1994) 2447.
- 72) Y. Wang, Y. Jin, Z. Zhu, C. Liu, Y. Sun, Z. Wang, M. Hou, X. Chen, C. Zhang, J. Liu, B. Li, *Nucl. Instr. Meth. B*, 164 (2000) 420.
- 73) Z. Zhu, Y. Sun, C. Liu, J. Liu, Y. Jin, *Nucl. Instr. Meth. B*, 193 (2002) 271.
- 74) F. Dehaye, E. Balanzat, E. Ferain, R. Legras, *Nucl. Instr. Meth. B*, 209 (2003) 103.
- 75) Y. Sun, Z. Zhu, Z. Wang, Y. Jin, J. Liu, M. Hou, Q. Zhang, *Nucl. Instr. Meth. B*, 209 (2003) 188.
- 76) Y. Sun, Z. Zhu, Z. Wang, J. Liu, Y. Jin, M. Hou, Y. Wang, J. Duan, *Nucl. Instr. Meth. B*, 212 (2003) 211.
- 77) R. Kumar, H.S. Virk, K.C. Verma, U. De, A. Saha, R. Prasad, *Nucl. Instr. Meth. B*, 251 (2006) 163.
- 78) S. Singh and S. Prasher, *Nucl. Instr. Meth. B*, 244

- (2006) 252.
- 79) L. Singh, and K. S. Samra, Nucl. Instr. Meth. B, 263 (2007) 485.
- 80) A.O. Delgado, M.A. Rizzutto, M.H. Tabacniks, N. Added, D. Fink, Nucl. Instr. Meth. B, 267 (2009) 1546.
- 81) V.R. Oganesyan, V.V. Trofimov, S. Gaillard, M. Fromm, M. Danziger, D. Hermsdorf, O.L. Orelovitch, Nucl. Instr. Meth. B236 (2005) 289.
- 82) Z. Lounis-Mokrani, A. Badreddine, D. Mebhah, D. Imatoukene, M. Fromm, M. Allab, Radiat. Meas., 43 (2008) S41.
- 83) S. Bohlke, and D. Hermsdorf, Radiat. Meas., 43 (2008) S65.
- 84) T. Yamauchi, D. Mineyama, H. Nakai, K. Oda, N. Yasuda, Nucl. Instr. Meth. B, 208 (2003) 149.
- 85) T. Yamauchi, N. Yasuda, T. Asuka, K. Izumi, T. Masutani, K. Oda, R. Barillon, Nucl. Instr. Meth. B, 236 (2005) 318.
- 86) Y. Mori, T. Yamauchi, M. Kanasaki, A. Hattori, Y. Matai, K. Matsukawa, K. Oda, S. Kodaira, H. Kitamura, T. Konishi, N. Yasuda, S. Tojo, Y. Honda, R. Barillon, Appl. Phys. Express 5 (2011) 086401.
- 87) Y. Mori, T. Yamauchi, M. Kanasaki, A. Hattori, K. Oda, S. Kodaira, T. Konishi, N. Yasuda, S. Tojo, Y. Honda, R. Barillon, Radiat. Meas. (in press) [DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.radmeas.2012.07.013>].

著者略歴

小平 聡：（独）放射線医学総合研究所研究基盤センター研究員。2003 年早稲田大学理工学部応用物理学科卒。2007 年同大学院理工学研究科物理学及応用物理学専攻修了。博士（理学）。2006 年より早稲田大学理工学術院助手，放射線医学総合研究所博士研究員，日本学術振興会特別研究員（PD）を経て，2011 年より現職。専門は放射線物理学，放射線計測学，宇宙放射線物理学。最近の趣味は料理。

山内 知也：神戸大学大学院海事科学研究科教授。1985 年大阪大学工学部卒。1988 年同大学院工学研究科博士後期課程中途退学。博士（工学）。1988 年より神戸商船大学助手，同大助教授，神戸大学助教授を経て，2007 年より現職。専門は放射線計測学，放射線物理学，放射線化学。趣味は絵画鑑賞。