



PADC飛跡検出器中重イオントラック内におけるOH基生成密度とCH基損失密度の定量的分析

楠本, 多聞 ; 森, 豊 ; 金崎, 真聡 ; 上野, 琢也 ; 亀田, 結貴 ; 小田, 啓二 ; 小平, 聡 ; 北村, 尚 ; 山内, 知也

(Citation)

神戸大学大学院海事科学研究科紀要, 12:30-38

(Issue Date)

2015

(Resource Type)

departmental bulletin paper

(Version)

Version of Record

(JaLCOI)

<https://doi.org/10.24546/81009092>

(URL)

<https://hdl.handle.net/20.500.14094/81009092>



PADC 飛跡検出器中重イオントラック内における OH 基生成密度と CH 基損失密度の定量的分析

Quantitative analyses on the formation density of OH groups and loss density of CH groups along nuclear tracks in PADC detectors.

楠本 多聞*, 森 豊**, 金崎 真聡*, 上野 琢也*,
亀田 結貴*, 小田 啓二*, 小平 聡***, 北村 尚***, 山内 知也*
Tamon KUSUMOTO*, Yutaka MORI**, Masato KANASAKI*, Takuya UENO*,
Yuka KAMEDA*, Keiji ODA*, Satoshi KODAIRA***, Hisashi KITAMURA***,
Tomoya YAMAUCHI*

(平成 27 年 6 月 30 日受付)

Abstract

Modified structure along ion tracks in poly(allyl diglycol carbonate), PADC, films exposed to protons and heavy ions, He, C, Ne, Ar, Fe, Kr and Xe, in air has been examined by means of FT-IR spectroscopy, covering the stopping power ranging from 10 to 12000 keV/ μm . The damage density for the loss of CH groups and the amount of formed OH groups along each track are estimated and compared to the previous results on the ether and the carbonate ester bonds. The CH groups are lost in the center region of the track core with other functional groups and the OH groups are created as new end-points of the polymer network. We obtained the molar absorption coefficient for OH of water absorbed in PADC films as $9.7 \times 10^3 \text{ M}^{-1}\text{cm}^{-1}$. It has been assumed that the coefficient is applicable to the OH groups on the polymer. The amount of OH groups are found to be almost equivalent to the damage density of the ether bonds.

(Received 30. June 2015)

1. はじめに

固体飛跡検出器は軽量かつコンパクトにすることが可能な電源を必要としない受動型放射線検出器の一種である。高い電荷及びエネルギー分解能を有するポリアリルジグリコールカーボネート (PADC) が飛跡検出器として再発見されてから 40 年近くが経過した (Cartwright et al., 1978)。Fig. 1. は PADC の繰り返し構造であるが、中央にエーテル基があり、両側にエチレン基を介して、対称的な位置にカーボネートエステル基を有している。また、PADC の繰り返し構造長さは約 2

nm である。PADC はその高い電荷及びエネルギー分解能を有する優れた特性故に現在でも中性子線量計測 (Oda et al., 2005)、宇宙放射線計測 (Kodaira et al., 2009a, 2009b)、ラドン・トロン計測 (Font, 2009)、生物照射実験 (Konishi et al., 2005)、レーザー駆動電荷粒子加速 (Nishiuchi et al., 2015) などの分野で利用されている。ところで、PADC はしばしば検出感度の高さについて言及されるが、長時間のエッチング処理後にも荒れの少ない非常に綺麗な表面を保持する特性を有しており、そのことも結果的には高い検出感度の実現に寄与していることを指摘しておきたい。

高分子材料中イオントラックのサイズや構造評価には、種々の手法が適用されてきている

*神戸大学大学院 海事科学研究科 海事科学専攻

**神戸大学研究基盤センター

***放射線医学総合研究所

(Enge, 1995)。一般には、エッチングによるトラックの開口過程を電気伝導度の変化として捕らえる電気伝導度法や (Bean et al., 1970; Peterson et al., 1995; Apel et al., 1998; Oganessian et al., 2005; Yu et al., 2006)、透過型電子顕微鏡によってエッチング初期のトラックのレプリカを観察する手法 (Bernaola et al., 2006; Francisco et al., 2004) が用いられている。一方で、赤外線分光法は放射線が高分子に与える影響を評価するために広く利用されている (Balanzat et al., 1995; Hama et al., 1995; Barillon and Yamauchi, 2003)。PADC についても赤外線分光法を用いた研究が体系的に行われてきており、エーテル基の放射線感受性が最も高いことやカーボネートエステル基の損傷により、二酸化炭素が発生することも確認されている (Mori et al., 2009, 2011, 2013, Yamauchi, 2003, Yamauchi et al., 2005, 2008a, 2008b)。比較的早い段階でフランスの GANIL 研究所の化学分析ラインで赤外線分光のその場分析が行われた (Yamauchi et al., 2005)。ここではエーテル基の損失量は評価されたものの、カーボネートエステル基については試料の厚さが 15 μm と比較的分厚かったこともあり、定量分析はなされなかった。しかしカーボネートエステルの損傷の結果として生じる二酸化炭素の収率からその G 値が評価されており、同じ繰り返し構造内のエーテル基とカーボネートエステル基が損傷を受けるとすればその間からエチレン程度の長さの分子も生じて二酸化炭素と共に系外に失われているのではないかとするセグメントモデルが提唱された。PADC の高い検出感度と分子構造の特徴との関係が指摘されたのである。しかし、PADC の放射線感受性の高い部分を結ぶ分子鎖であるエチレン基の挙動に関する報告は報告者らのものを除くとほとんどないというのが現状である (Kusumoto et al., 2015)。最近になって、GC-Mass や MALDI-Mass を用いてエッチング後の溶液中に残っている分子鎖の分析が行われており、照射した PADC 試料からはジエチレングリコールだけでなく、エチレングリコールも検出されており先のセグメントも出ることが裏付けられようとしている (Kodaira et al., 2012)。そこで、本研究では CH 基の分析に 1 つ目の焦点を当てて

進められてきている研究の現状を紹介する。

また、損傷後の新たな端点としてヒドロキシル基が生成していることも明らかにされた (Mori et al., 2009)。このヒドロキシル基の生成密度は真空中でおこなった照射では大気中でおこなった照射と比較して鈍化していることも報告されている (Mori et al., 2013)。ところが新たに端点として形成されるヒドロキシル基の定量的な評価は未だされていない。未照射の PADC 中には、予期しない酸化反応がない限り、ほぼ存在していないヒドロキシル基の定量のためには、そのモル吸光係数をあらかじめ求めておく必要があり、これが分析の遅れている 1 つの理由である。

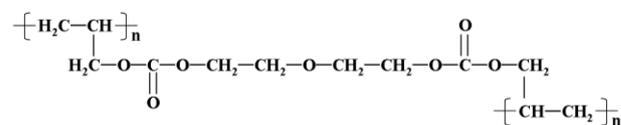


Fig. 1. A repeat unit of PADC.

以上のような研究の現状を踏まえ、本研究では赤外線分光法を用いて CH 基の実効的トラックコア半径及び新たな端点として形成するヒドロキシル基の生成密度を評価した。CH 基の実効的トラックコア半径は先に求めているエーテル基やカーボネートエステル基のそれよりも小さな値をとった。これにより、CH 基は放射線感受性の高いエーテル基やカーボネートエステル基が損傷を受けたときに同時に系外へ失われていることが明らかとなった。また、ヒドロキシル基の生成密度を先に求めているエーテル基の損失密度と比較したところ、ヒドロキシル基の生成密度はエーテル基の損失密度とほぼ同等の値をとることが明らかとなった。

2. 実験

PADC は公称厚さ 100 μm のフクビ化学社製の BARYOTRAK を用いた。この 100 μm の PADC を出発物質として、化学エッチング処理によって 3 μm 以下の PADC 薄膜を作成した。これにより吸光度がいずれのピークに対しても 2 以下となる未飽和の赤外線吸収スペクトルを得ることができ、定量的な分析が可能となる (Yamauchi et

al., 2008b)。

赤外線分光には光源と干渉計、検出器と共に試料室も真空排気可能な FT/IR6100S (日本分光社製) を使用し、大気中の水分や二酸化炭素の影響を排除した。

電子天秤には METTLER TOLEDO 社製の AG245 を使用した。

また、水への選択性の高いカール・フィッシャー電量滴定装置としては、平沼産業社製の AQ-2200 を用いた。この装置には最高温度 300°C の蒸発器が接続されており、水の検出限界は 10 μg である。

プロトン及び He から Xe までの重イオン照射には放射線医学総合研究所の HIMAC の中エネルギービーム照射室を利用した。評価した阻止能領域は 10~12000 keV/ μm であった。阻止能は SRIM コードを用いて計算した (Ziegler et al., 2004)。Table 1 に実験条件として入射エネルギーと薄膜内での平均阻止能を示す。

Table 1 Irradiation condition.

Ion	Incident energy	Stopping power
	(MeV/n)	(keV/ μm)
H	5.7	9.2
He	5.5	41
C	2.1	640
	4.7	370
Ne	1.2	1800
	4.1	1000
Ar	1.5	3600
Fe	2.6	5100
Kr	2.6	7300
Xe	2.3	12000

2. 結果と考察

2.1. CH 基の損失

Fig. 2. に未照射の PADC の赤外線吸収スペクトルを示す。PADC に関しては、これまでにいくつかの赤外線分光分析結果の報告がされてきてお

り、ピークの帰属も報告されている (Darraud et al., 1994, Gagnadre et al., 1993, Lounis-Mokrani et al., 2003, 森, 2014)。本研究では、これらの結果に加えて富士通社製の CAChe プログラムを用いた半経験的量子化学計算の結果をも用いて帰属を決定した (Table 2)。これによると、本研究で着目した CH 基には大きく分けて 3 つの吸収スペクトル

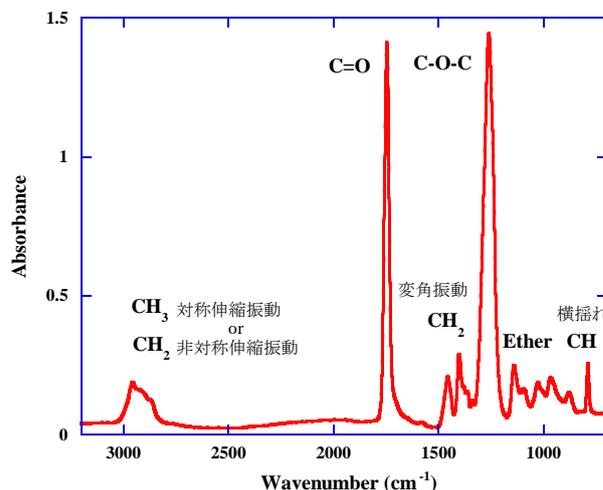


Fig. 2. An IR spectrum of pristine PADC film.

Table 2 Absorption assignment of PADC.

Bonds	Wavenumber (cm^{-1})			
	Present work	CAChe	Darraud et al., 1994	Lounis-Mokrani et al., 2003
v CH ₃	2956	3970		2951
v CH ₂	2911	3040	3092	2924
v CH ₂	2863	2960	2960	2853
v C=O	1750	1980	1745	1734
δ CH ₂	1456	1400	1458	1452
δ CH ₂	1401	1370	1400	1398
v C-O-C	1250	1440	1260	1226
v Ether	1142	1380	1140	1133
v Ether	1092	1290	1100	1080
v Ether	1028	1070	1028	1022
δ CH	878	960	878	871
δ CH	789	800	791	784

帯が存在する。2900 cm^{-1} 付近は伸縮振動の CH₂ 及び CH₃ の吸収スペクトルが重なり合って存在する。このため、少なくとも 3 つあるピークの分離が難しく、精度の高い分析が困難である。また、1400 cm^{-1} 付近の変角振動の CH₂ のピークはカーボネートエステル基等の他のピークの影響で形が歪んでおり、こちらも精度の高い分析が困難である。よって本研究では 789 cm^{-1} にほぼ単独で独立し、双方の裾野が明瞭に分離している横揺れの CH の吸収ピークを採用した。Fig. 3. に 2.1 MeV/n の C イオンを 4.0×10^{12} ions/ cm^2 のフルエンスで照射したときの照射前後の赤外線吸収スペクトルを示す。照射前後のスペクトルを比較すると、照射後

に吸光度の低下が見られた。これにより、照射によって生じたイオントラック内では CH 基が失われていることが分かる。Fig. 4.に相対吸光度をフルエンスの関数として表す。Fig. 4.より相対吸光度はフルエンスの増加に伴って線形的に減少していることが分かる。即ち、このようなフルエンス領域ではトラックの重なりが事実上無視できる。よって相対吸光度の減少は以下の式で記述できる。

$$A/A_0 = 1 - \sigma F. \quad (1)$$

ここで σ はトラック 1 本辺りの除去断面積を表す実験パラメータで、面積の次元を持つ。 σ が面積の次元をもつことから、損傷の広がりを表す実効的トラックコア半径は以下の式で定義される。

$$r = \sqrt{\sigma/\pi}. \quad (2)$$

Fig. 5.に CH 基の実効的トラックコア半径と阻止能の関係を示す。青の実線は CH 基の実効的トラックコア半径の傾向を示しており、赤の点線は先に求めているエーテル基、緑の破線はカーボネートエステル基のそれをそれぞれ表している。Fig. 5.よりエーテル基の実効的トラックコア半径が最も大きく、次いでカーボネートエステル基、そして CH 基が最も小さい。これはエーテル基の放射線感受性が最も高いことを示しており、エーテル基やカーボネートエステル基が損傷を受けたとき、その間に挟まれた CH を有する分子鎖も同時に系外へ失われていることを示唆している。

2.2. PADC 中のヒドロキシル基のモル吸光係数

Fig. 6.に未照射の PADC のヒドロキシル基周辺の赤外線吸収スペクトルを示す。この波数領域には3つの赤外線吸収ピークが存在する。3635 cm^{-1} に非対称伸縮振動の水の吸収ピーク(1)、3550 cm^{-1} に対称伸縮振動の水及び OH 基の吸収ピーク(2)、3470 cm^{-1} にカルボニル基の吸収ピークの第一倍音(3)が存在する (Malek and Chon, 2000)。緑色のスペクトルが大気中で測定したスペクトル、赤色のスペクトルが真空中で測定したスペクトルである。真空中で測定したスペクトルと大気中で測

定したスペクトルを比較すると、特に 3635 cm^{-1} の

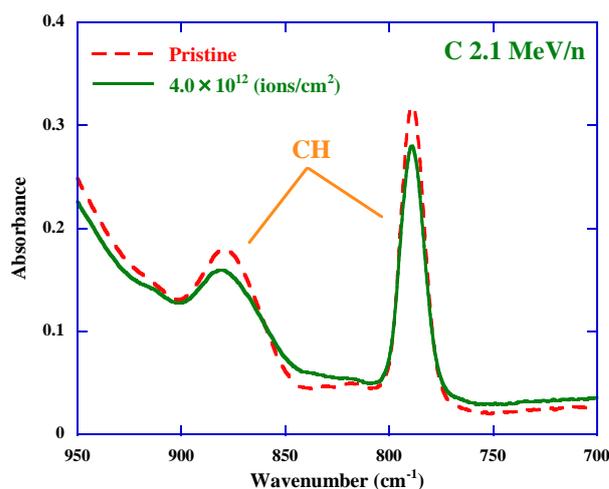


Fig. 3. IR spectra of PADC films before and after the exposure to C ions.

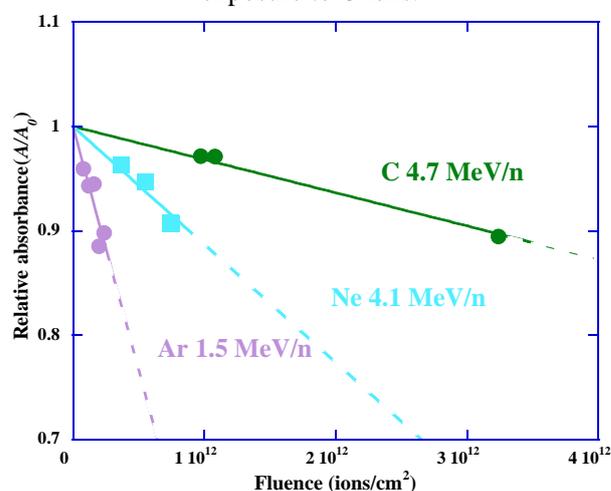


Fig. 4. Reduction of the relative absorbance of CH groups in PADC exposed to protons, He and C ions.

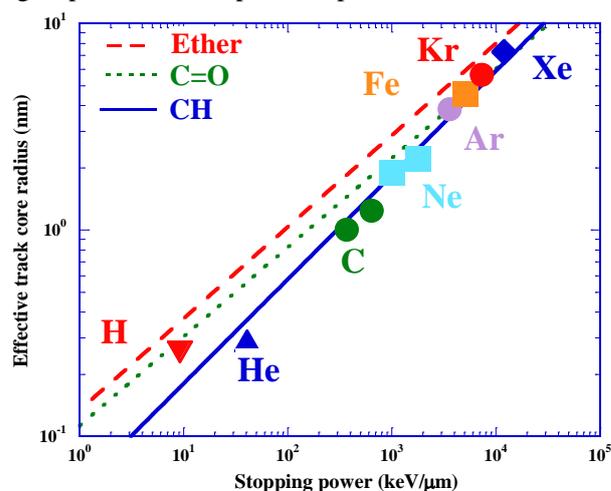


Fig. 5. Effective track core radius for the losses of ether, carbonyl and CH groups against the stopping power (Kusumoto et al., 2015).

水の非対称伸縮振動のピークでの吸光度が大気中で測定した吸光度より真空中で測定した吸光度が小さいことが分かる (Yamauchi et al., 2003b)。したがってこのピークはPADCが吸収した大気中の水の吸収ピークであると考えられる。本研究では、この試料中の水分と照射後に新たな端点として生成するヒドロキシル基を区別して定量的に評価することに取り組んだ。

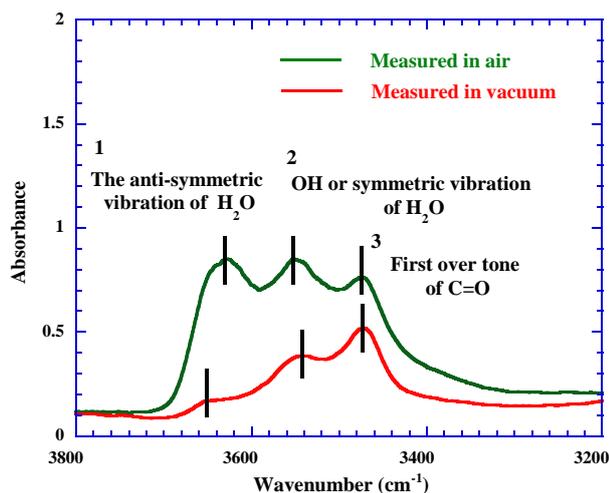


Fig. 6. IR spectra of pristine PADC in air and in vacuum before irradiation.

ところで、この新たな端点として生成するヒドロキシル基を定量的に評価するためにはまず、ヒドロキシル基のモル吸光係数を求めなければならない。ヒドロキシル基のモル吸光係数は以下のランベルト・ベールの式に基づいた予備実験より得られる検量線を利用して求めた。

$$A = \epsilon cl. \quad (3)$$

ここで、 ϵ はPADC中のヒドロキシル基のモル吸光係数、 c は水のモル濃度、 l は試料厚さである。まず、PADCを純水に約1日浸し、水を飽和レベルまで吸蔵させる。吸蔵終了後、PADCを大気中に取り出すと乾燥が進むことになるが、ほぼ一定の室温と湿度の中で、質量測定と赤外線吸収スペクトルの測定を交互におこなった。吸蔵終了から2分後にPADCの質量を測定し、その3分後、吸蔵終了から5分後に赤外線吸収スペクトルを計測し、さらに2分後、吸蔵終了から7分後に再び質量を測定した。以後、質量測定は吸蔵終了から15, 25, 35,...145分、赤外線吸収スペクトルの測定は

吸蔵終了から10, 20, 30,...150分とそれぞれ10分毎に行った。Fig. 7.に水の質量と吸光度との関係を示す。

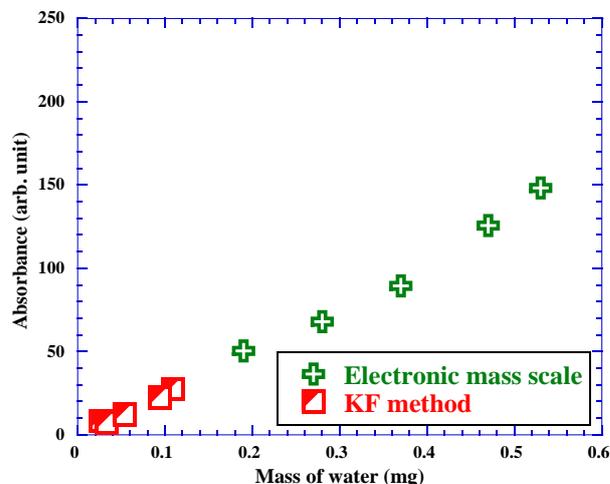


Fig. 7. Proportional relation between the absorbance of IR spectra and the mass of water absorbed in PADC.

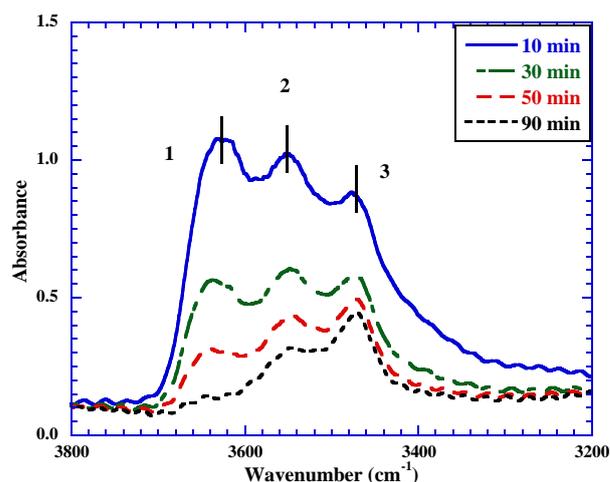


Fig. 8. IR spectra indicating the drying process in air.

低質量の領域ではカール・フィッシャー法も用いて水の質量を決定したが、こちらの場合には先に述べたように厚さの異なる試料を用いた。なお、Fig. 8.はPADCのヒドロキシル基周辺の赤外線吸収スペクトルの時間変化の様子であり、時間と共に水に関するピークの吸光度が低下していることが分かる。Fig. 7.に示すようにカールフィッシャー法と重量法という異なる方法で得た水の質量と吸光度がよい相関関係を示しており、このことはここでの分析の妥当性を表すと考えてよい。以上の結果にしたがって、Fig. 9.に示す検量線を得た。横軸はモル濃度、縦軸は吸光度を試料厚

さで割った値である。この検量線の傾きより PADC 中のヒドロキシル基のモル吸光係数は $9.7 \times 10^3 \text{ M}^{-1} \text{ cm}^{-1}$ と求められた。

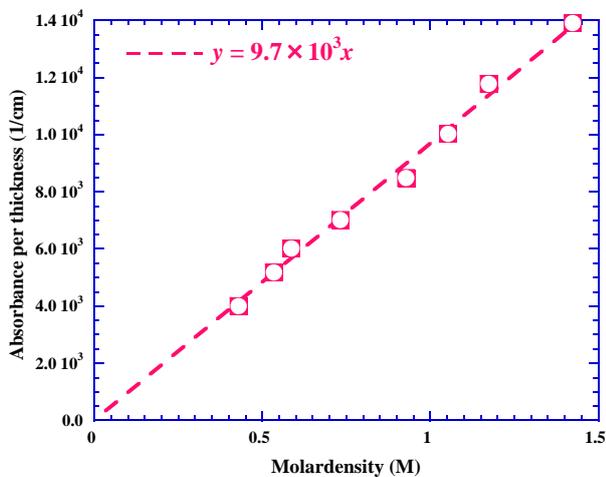


Fig. 9. Proportional relation between the absorbance per thickness and the molar density of OH groups in PADC.

2.2. プロトン及び重イオン照射効果

Fig. 10. に 4.1 MeV/n の Ne イオン照射前後の PADC のヒドロキシル基周辺の赤外線吸収スペクトルを示す。イオン照射は大気中でおこなったが、スペクトルの測定は PADC が吸収する大気中の水分の影響を除去するために、真空中でおこなった。

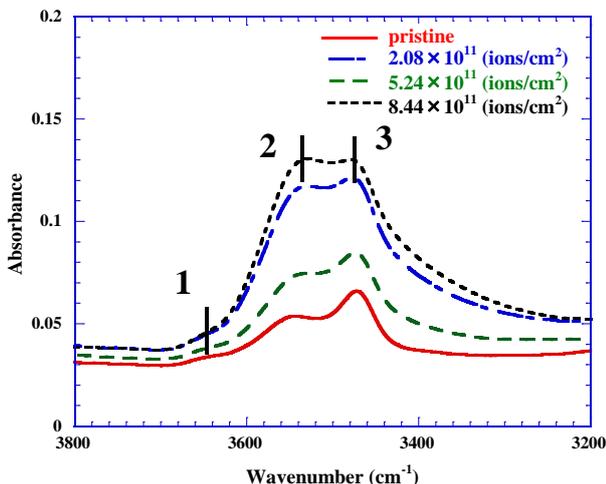


Fig. 10. Changes in the IR spectra before and after the exposure to 4.1 MeV/n Ne ions (Kusumoto et al., 2015).

Fig. 10. よりフルエンスの増加に伴って吸光度の増加が見られた。これは照射後に PADC 内にヒドロキシル基が増加したことを意味する。照射前後の吸光度の差よりヒドロキシル基の生成密度 ΔC

は以下の式で記述することができる。

$$\Delta C = (A - A_0) / \epsilon l. \quad (4)$$

照射によってヒドロキシル基の吸収は強くなっているが、その一方でカルボニル基の吸収は損傷によって弱くなっている。しかしながら Fig. 11. に示すようにカルボニル基の密度低下は最大のフルエンスでも 10% 程度であり、その影響は小さい。そこでここでの分析では A_0 が一定であると仮定した。

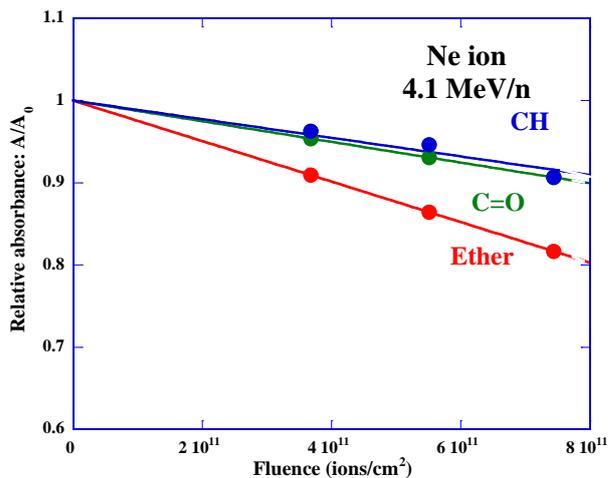


Fig. 11. Reduction of the relative absorbance of ether, C=O and CH groups in PADC exposed to 4.1 MeV/n Ne ions.

Fig. 12. にヒドロキシル基の生成密度とフルエンルエンスの関係を示す。ヒドロキシル基の生成密度はフルエンスの増加に伴って一次関数的に増加していることが分かる。よってヒドロキシル基の生成密度はフルエンス F の関数として以下のように記述される。

$$\Delta C = mF. \quad (5)$$

ここでの比例定数 m はトラック単位距離当たり生成するヒドロキシル基の生成密度に相当する。Fig. 13. にトラック単位距離当たり生成するヒドロキシル基の生成密度と阻止能の関係を示す。ヒドロキシル基の生成密度は阻止能の増加に伴って概ね単調に増加している。ここで、白抜きプロットが大気中での測定結果を示しており、塗りつぶしてあるプロットが真空中での測定結果である。Fig. 13. より大気中での測定結果の方が真空中での測定結果より優位に大きな値をと

ることが分かる。この両者の差は、PADC が吸収した水の影響であると考えられる。このことより、本研究では PADC が吸収した大気中の水のヒドロキシル基と照射後に新たな端点として生成したヒドロキシル基を区別して定量的に評価することに成功したといえる。次に Fig. 14. に先に求めているエーテル基の損失密度と本研究で求めたヒドロキシル基の生成密度の関係を示す。ヒドロキシル基の生成密度は最大でエーテル基の損失密度の最大で 2 倍程度となった。この結果は先に示したヒドロキシル基のモル吸光係数の値の妥当性を示すものである。

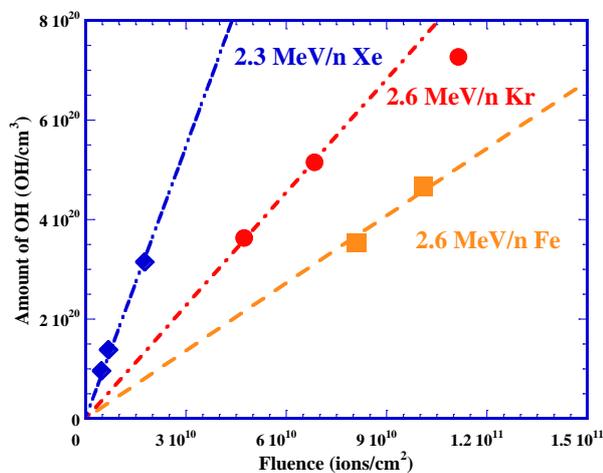


Fig. 12. Increase of OH groups with the fluence of heavy ions (2.6 MeV/n Fe, 2.6 MeV Kr and 2.3 MeV/n Xe ions).

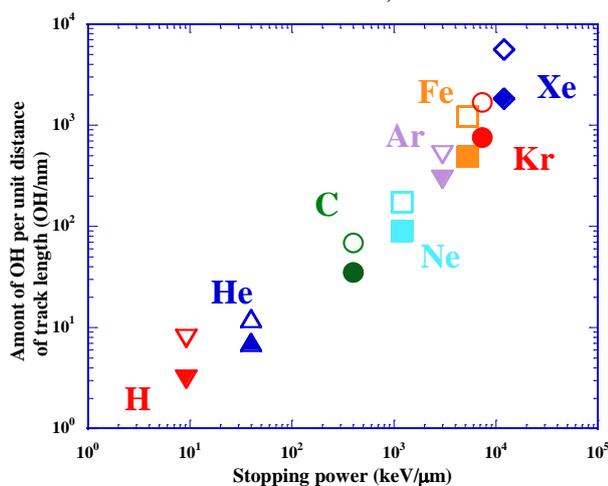


Fig. 13. Amount of OH per unit distance of track length as a function of the stopping power (Kusumoto et al., 2015).

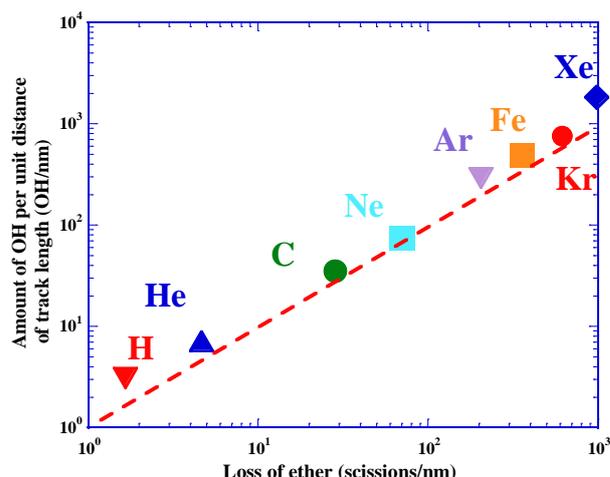


Fig. 14. Correlation between the amount of OH groups and the damage density of the ether. Line is a guide for the eye (Kusumoto et al., 2015).

まとめ

1. PADC のポリマー中で放射線感受性の高いエーテル基やカーボネートエステル基を結ぶ CH 基の実効的トラックコア半径を求めた。その結果、CH 基の放射線感受性は相対的に低く、エーテル基やカーボネートエステル基が放射線損傷を受けた時、それらに挟まれた分子鎖に含まれる CH 基も同時に系外へ失われていることが明らかとなった。
2. PADC に水を飽和レベルまで吸収させ、その拡散過程より PADC 中の水のもつヒドロキシル基のモル吸光係数を評価し $9.7 \times 10^3 \text{ M}^{-1} \text{ cm}^{-1}$ という値を得た。
3. プロトン及び重イオン照射後に新たな端点として生成するヒドロキシル基の生成密度を求めた。先に求めているエーテル基の損失密度と比較すると、ヒドロキシル基の生成密度は最大でエーテル基の損失密度の 2 倍程度となった。これは、先に求めたヒドロキシル基のモル吸光係数の値の妥当性を証明する結果であった。

謝辞

本研究は放射線医学総合研究所 HIMAC の共同利用研究として行われました (11H138 高分子系

飛跡検出器の応答特性を表す化学的クライテリオン（の確立）。実験に際し、ご支援を頂いた NIRS-HIMAC のスタッフの皆様に対しここに記して感謝の意を表します。

参考文献

Apel et al., “Track size and track structure in polymer irradiated by heavy ions”, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B*, 146 468-474 (1998).

Balanzat et al., “Swift heavy ion modification of polymers”, *Nucl. Instrum. Meth. B*, 105, 46-54 (1995).

Barillon and Yamauchi, “Chemical bond scission induced by H^+ , $^{16}\text{O}^{8+}$, and γ -rays in a cellulose nitrate detector”, *Nucl. Instrum. Meth. B*, 208, 336-339 (2003).

Bean et al., “Etching of Submicron Pores in Irradiated Mica”, *J. Appl. Phys.*, 41 1454-1459 (1970).

Bernaola et al., “Submicroscopic analysis of damage structure in nuclear tracks”, *Radiat. Meas.*, 41 247-252 (2006).

Cartwright et al., “A nuclear-track-recording polymer of unique sensitivity and resolution”, *Nucl. Instrum. Meth.*, 153, 457-460 (1978).

Darraud et al., “Optical modification of polymers by ion beam irradiation”, *Polymer*, 35, 2447-2451 (1994).

Dehaye et al., “Chemical modifications induced in bisphenol A polycarbonate by swift heavy ions”, *Nucl. Instrum. Meth. B*, 209, 103-112 (2003).

Enge, “On the question of nuclear track formation in plastic material”, *Radiat. Meas.*, 25 11-26 (1995).

Font, “On radon surveys: Design and data interpretation”, *Radiat. Meas.*, 44,964-968 (2009).

Francisco et al., “Radial variation of track damage in polycarbonate”, *Nucl. Instrum. Meth. B*, 218 461-465 (2004).

Gagnadre et al., “IR spectroscopy studies of polycarbonate irradiated by H^+ and Li^+ ions”, *Nucl. Instrum. Meth. B*, 73, 48-52 (1993).

Hama et al., “Inhomogeneous degradation of polymers irradiated by x-ray, gamma-ray and ion-beam as studied by micro-FT-IR”, *Radiat. Phys Chem.*, 46, 819-822

Kodaira et al., “Characteristics of the copolymerized CR-39/DAP track detector for the observation of ultra heavy nuclei in galactic cosmic rays”, *Radiat. Meas.*, 44, 775-778 (2009a).

Kodaira et al., “Control of the detection threshold of CR-39

PNTD for measuring ultra heavy nuclei in galactic cosmic rays”, *Radiat. Meas.*, 44, 861-864 (2009b).

Kodaira et al., “Mass spectrometry analysis of etch products from CR-39 plastic irradiated by heavy ion”, *Nucl. Instrum. Meth. B*, 286, 229-232 (2012).

Konishi et al., “A New Method for the Simultaneous Detection of Mammalian Cells and Ion Tracks on a Surface of CR-39”, *Rev. Sci. Instrum.*, 76, 114302(2005).

Kusumoto et al., “Yields on the formation of OH groups and the loss of CH groups along the nuclear tracks in PADC films”. *Radiat Meas.*, (2015)

<http://dx.doi.org/10.1016/j.radmeas.2015.04.008>

Lounis-Mokrani et al., “Characterization of chemical and optical modifications induced by 22.5 MeV proton beams in CR-39 detectors”, *Radiat. Meas.*, 36, 615-620 (2003).

Malek and Chong, “FTIR study of H_2O in polyallyl diglycol carbonate”, *Vibrational Spectroscopy*, 24, 181-184 (2000).

Mori et al., “Radiation chemical yield for loss of carbonate ester bonds in PADC films exposed to gamma ray”, *Radiat. Meas.*, 44, 211-213 (2009).

Mori et al., “Radiation chemical yields for loss of ether and carbonate ester bonds in PADC films exposed to proton and heavy ion beams”, *Radiat. Meas.* 46, 1147-1153 (2011).

Mori et al., “Greater radiation chemical yields for losses of ether and carbonate ester bonds at lower stopping powers along heavy ion tracks in poly(allyl diglycol carbonate) films”, *Appl. Phys. Express* 5, 086401 (2012).

Mori et al., “Vacuum effects on the radiation chemical yields in PADC films exposed to gamma rays and heavy ions”. *Radiat. Meas.*, 50, 97-102 (2013).

Nsihiuchi et al., “Acceleration of highly-charged GeV Fe ions from a low-Z substrate by intense femtosecond laser”, *Phys. Plasmas*, 22, 033107 (2015).

Oda et al., “Radiator design for detecting high-energy neutrons with a nuclear track detector”, *Radiat. Meas.*, 40, 570-574 (2005).

Oganessian et al., “Investigation of the response of thin CR-39 polymer foils irradiated with light ions”, *Nucl. Instrum. Meth. B*, 236 289-294 (2005).

Peterson et al., “Energy loss dependent transversal etching rates of heavy ion tracks in plastic”, *Radiat. Meas.*, 25 43-46 (1995).

Yamauchi, “Studies on the nuclear tracks in CR-39 plastics”, *Radiat. Meas.*, 36, 73-81 (2003).

Yamauchi et al., “Surface layer in CR-39 plastic track detector where the bulk etch rate is enhanced”, *Radiat. Meas.*, 37, 119-125 (2003b).

Yamauchi et al. “Yields of CO₂ formation and scissions at ether bonds along nuclear tracks in CR-39”, *Radiat. Meas.* 40, 224-228 (2005).

Yamauchi et al., “Structural modification along heavy ion tracks in poly(allyl diglycol carbonate) films”, *Jpn. J. Appl. Phys.* 47, 3606-3609 (2008a).

Yamauchi et al., “Loss of carbonate ester bonds along Fe ion tracks in thin CR-39 films”, *Radiat. Meas.*, 43, 106-110 (2008b).

Yu et al., “Etching of nanopores in polycarbonate irradiated with swift heavy ions at 15 K”, *Nucl. Instrum. Meth. B*, 245, 284-287 (2006).

Ziegler, “SRIM-2003”. *Nucl. Instrum. Meth. B*, 219-220, 1027-1036 (2004).

森, “ポリアリルジグリコールカーボネート中に形成されるプロトン及び重イオントラックの構造”, *神戸大学博士学位論文*, (2014).