



# 重合度を調整したPADC 検出器の重イオンに対する特性評価

伊藤, 大洋 ; 楠本, 多聞 ; 金崎, 真聡 ; 小平, 聡 ; 石川, 一平 ; 山内, 知也

---

**(Citation)**

神戸大学大学院海事科学研究科紀要, 19:[32]-[43]

**(Issue Date)**

2022-07

**(Resource Type)**

departmental bulletin paper

**(Version)**

Version of Record

**(JaLCOI)**

<https://doi.org/10.24546/81013482>

**(URL)**

<https://hdl.handle.net/20.500.14094/81013482>



# 重合度を調整した PADC 検出器の重イオンに対する特性評価 Features of home-made PADC detectors for heavy ions

伊藤大洋<sup>1</sup>, 楠本多聞<sup>2</sup>, 金崎真聡<sup>1</sup>, 小平聡<sup>2</sup>, 石川一平<sup>3</sup>, 山内知也<sup>1</sup>  
Taiyo ITO<sup>1</sup>, Tamon KUSUMOTO<sup>2</sup>, Masato KANASAKI<sup>1</sup>, Satoshi KODAIRA<sup>2</sup>,  
Ippei ISHIKAWA<sup>3</sup>, Tomoya YAMAUCHI<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 神戸大学大学院海事科学研究科

<sup>1</sup> Graduate School of Maritime Sciences, Kobe University

<sup>2</sup> 量子科学技術研究開発研機構

<sup>2</sup> Quantum Science and Technology

<sup>3</sup> 舞鶴工業高等専門学校

<sup>3</sup> NIT. Maizuru collage

(令和4年 7月6日受付)

## Abstract

New home-made PADC detectors have been developed and applied to the educational experiments for elementary and/or junior high school students at the Maizuru National College of Technology. The home-made PADC have higher etching velocity, which make it possible for us to reduce etching time and keep safety during the experiments. An anti-polymerization agent was used to produce such a new type of PADC detector, which has lower degree of polymerization than that of commercially provided ones. Etching-tests have been made for the home-made PADC, as well as for commercially obtained PADC sheets, which were irradiated with various kind of heavy ions. In addition to these, a series of infrared ATR analysis (total reflection absorption measurement) has been performed, obtaining the changes in infrared absorption spectra with ion fluence for both kinds of PADC.

## 1. 緒言

エッチング型飛跡検出器はプラスチックやガラス等の誘電体中に形成される高エネルギーのプロトンや重イオンの潜在飛跡(イオントラック)を化学処理によって光学顕微鏡下で観察可能なマイクロメートルスケールにまで拡大し、その個数やサイズ、幾何形状から入射した放射線に関する情報(電荷やエネルギー、入射方向、フルエンス等)を読みとる受動型放射線検出器の一種である。原理的に電源を必要とせず、イオン種識別性を有し、安価で軽量であるため、宇宙放射線や個人用中性子線量計測、レーザー駆動粒子加速実験等の幅広い分野で利用されている[1-5]。1970年代後半にCR-39の商標で知られるポリアリルジグリコールカーボネート(PADC)樹脂が、高い感度を有する飛跡検出器であることが見出され[6]、数MeV以上のプロトンや中性子も検出可能となった。一方で、ガンマ線や電子線には基本的に不感であり、電磁パルス等の影響も受けないことから、慣性核融合実験や高強度レーザーと物質の相互作用によるイオン加速実験等に用いられている[7-9]。特にレーザー駆動イオン加速実験では、感度の異なる飛跡検出器を組み合わせた重イオン成分の弁別計測が行われ、代替のない計測方法として活躍している[10, 11]。PADC及び他の高分子材料中のイオントラックの構造と形成機構に関して、過去20年にわたって赤外線分光法による体系的な分析化学的研究が神戸大学を中心にして行われてきた。例えば、邦文としてもこれまでの研究がまとめられており[12]、特に最近の損傷形成機構における複数の電子による多段階損傷形成過程も詳しく紹介されている[13]。

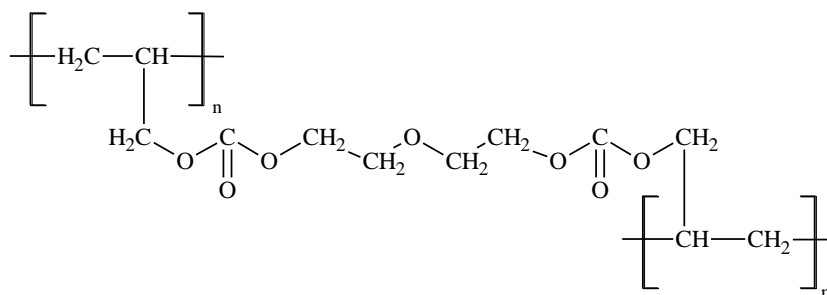


Fig.1 A repeat unit of PADC poly(allyl diglycol carbonate).

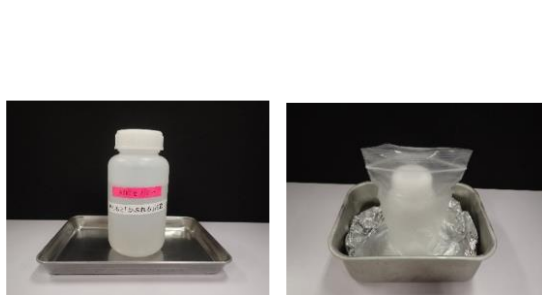
PADC の繰り返し構造を Fig. 1 に示す。繰り返し構造の長さは約 2nm であり、中心にエーテル基、その左右のエチレン基を介した対称な位置にカーボネートエステルが存在している。これらの領域は放射線感受性の高い領域として知られている。その両端には重合時に生じた放射線感受性の低いポリエチレン状の 3 次元構造的ネットワークがある。PADC は検出感度の高い代表的な検出器として知られているが、より感度の高い検出器を開発するため様々な改良も行われており、Fujii らによる SR-90 及び Ogura らによる TD-1 及び TNF-1 などの高感度の高分子系エッチング型飛跡検出器の開発などが広く知られている [14-16]。近年では、PADC 検出器が小・中学生を対象にした放射線教育に利用できると考えられており、市販品の PADC (フクビ化学社製、BARYOTRAK) より短時間でアルファ線のエッチピットが観察可能な PADC 素子を、舞鶴工業高等専門学校 (NIT, Maizuru, 以下、舞鶴高専) が中心となって株式会社サンルックスと共同で開発した [17]。放射線教育のための実験に PADC を利用するには、安全性を担保し、かつ、実験時間を短縮する必要がある。そこで、舞鶴高専では PADC に重合防止剤を添加することで、短時間でエッチピットが観察可能となる自作 PADC の開発が行われてきた [18]。自作 PADC は、イオン照射条件及びエッチング条件が同一の場合に、BARYOTRAK と比べエッチピット径が大きくなるがわかっているが、その理由については未だ解明されていない。

本研究では、自作 PADC のエッチング特性を理解するために、種々の重イオンに対する応答特性評価を行った。重イオンを照射した自作 PADC 及び参照用の市販 PADC に対して、エッチングテストを行い、感度やエッチング速度を求めることで、エッチピットの形成メカニズムの解明に資する定量的データを得た。また、赤外線分光分析を行い、重イオン照射前後の吸光度変化のフルエンス依存性から化学的損傷パラメータを求め、自作 PADC と市販 PADC 中に形成されるイオントラックの損傷構造の差異を明らかにした。

## 2. 実験概要

### 2.1 自作 PADC の作製方法

自作 PADC を製造する際の基本工程を説明する。PADC を形成するために必要な ADC (アリルジグリコールカーボネート) モノマーと重合開始材 IPP (ジイソプロピルパーオキシジカーボネート) の外観を Fig.2 に示す。また、PADC 製作手順を Fig.3 に示す。PADC は ADC モノマーと IPP の混合溶液から作られるため、マイクロピペットと電子天びんを用いて、ADC モノマー、IPP を 9:1 の割合で容器に入れる。本実験ではこれに加え、重合防止剤の一種であるヒドロキノンを微量添加する。そして容器を Fig. 3 (b) に示す攪拌・脱泡装置 (THINKY, AR-100) にて均一に混合する。その後、注射器を用いてモールド (型) に溶液を注入する。このモールドは 2 枚の丸いソーダガラスを用いて作製した。これを電気炉によって加熱することで PADC を作製する。本研究では、この PADC を PCB カッター (ホーザン株式会社, K-111) により 10 mm 四方に切り取り使用した。



(a) ADC

(b) IPP

Fig.2 Starting materials for PADC.

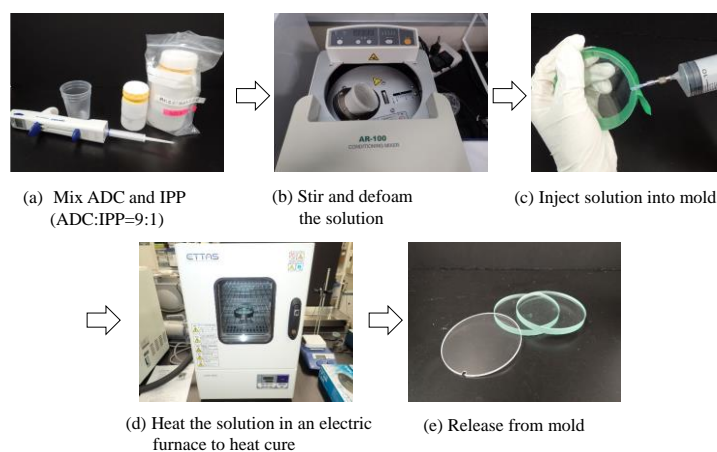


Fig.3 Manufacturing process of home-made PADC.

## 2.2 イオン照射

### 2.2.1 $^{241}\text{Am}$ 線源を用いたアルファ線照射

本研究におけるアルファ線照射は  $^{241}\text{Am}$  (アメリシウム-241) を使用している。アメリシウムは原子番号 95 の元素であり第三の超ウラン元素である。崩壊方式としては、アルファ線とガンマ線を放出し、アルファ線の放出の際に  $^{237}\text{Np}$  (ネプツニウム-237) になる。 $^{241}\text{Am}$  は人工的に作られる放射能であり、 $^{239}\text{Pu}$  (プルトニウム-239) の二重中性子捕獲によって生成する  $^{241}\text{Pu}$  (プルトニウム-241) がベータ崩壊して生じる。安定同位体は存在せず、 $^{241}\text{Am}$  の半減期は 433 年であり、アルファ線の放射エネルギーは 5.486 MeV (84%) と、5.443 MeV (13%) である。

Fig.4 に本研究室で使用している  $^{241}\text{Am}$  線源を示す(アルファ線源 162CE 公称放射能:4 MBq)。また、Fig.5 には実際に研究室で実験に使用している  $^{241}\text{Am}$  の外観を示す。この  $^{241}\text{Am}$  はホルダーが含まれ、真空内に入れた際にアルファ線を垂直に放射することができる。

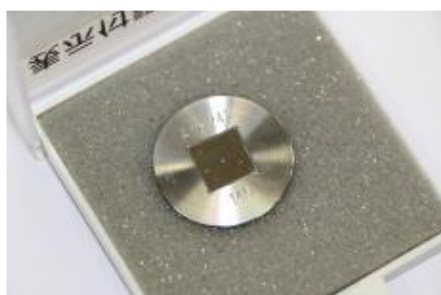


Fig.4 Radiation source  $^{241}\text{Am}$ .



Fig.5  $^{241}\text{Am}$  used in the experiment.

### 2.2.2 HIMAC における重イオン照射

本研究における重イオン照射は量子科学技術研究開発機構にある HIMAC (Heavy Ion Medical Accelerator in Chiba) 内の物理汎用照射室及び中エネルギーイオンビーム照射室を利用した。照射した核種は Ne と Si、Fe 及び Xe イオンである。

物理汎用照射室はシンクロトロンにて加速され、5 本に分けられたビームの内の 2 本が導入されている。同照射室には PH1 と PH2 の 2 つのビームコースがあるが、本研究ではビーム形状を調整する 3 連の電磁石とビーム出口との距離がより長い PH1 を使用した。中エネルギーイオン照射室のイオンは RFQ ライナック、アルバライナックの二つの線形加速器で加速された後にスイッチングマグネットにより曲げられ、照射室内に導入される。

本研究では赤外分光法には公称厚さ 0.9 mm の BARYOTARAK と自作 PADC に、中エネルギーイオンビーム照射室にて Xe イオンを照射した(Fig.6)。入射時のエネルギー、フルエンス、阻止能の範囲は Table 1 に示すとおりである。



Fig.6 Irradiation room for medium energy beam.

Table 1 Xe ion irradiation conditions.

ion	Incident energy (MeV/u)	Fluence (ions/cm <sup>2</sup> )	Stopping power (eV/nm)
Xe	3.36	2.0 x 10 <sup>10</sup>	11980
		3.0 x 10 <sup>10</sup>	
		5.0 x 10 <sup>10</sup>	

## 2.3 分析方法

### 2.3.1 エッチングテスト

化学エッチング処理とは使用したエッチング型飛跡検出器中に形成される潜在飛跡を拡大、可視化するための方法である。本研究では、70°C で一定に保った 6M-KOH 溶液中で化学エッチング処理を行った。化学エッチング処理後、PADC 試料表面のエッチピットの観察には Fig.7 に示すオリンパス株式会社製の光学顕微鏡 BX53M を用いた。

公称厚さ 0.9 mm 厚の BARYOTRAK と Techno Trak 及び自作 PADC をスタックしたものに Ne イオンと Si イオン及び Fe イオンを照射した。また、スタックの前面に減速材であるエネルギーフィルターをとりつけ、入射エネルギーを変化させた Ne イオンと Si イオン及び Fe イオンの照射を行い、エッチピット生成の有無や感度やトラックエッチング速度を調べ、各 PADC 試料に対するエッチング速度の解析を試みた。照射条件は Table 2 の通りである。



Fig.7 Optical microscope (BX53M).

エッチング型飛跡検出器の潜在飛跡に沿った溶出速度はトラックエッチング速度  $V_t$  と呼ばれ、それ以外の部分の溶出速度はバルクエッチング速度  $V_b$  と呼ばれる。また、それらの比はエッチ率比  $V$  と呼ばれる。 $V_t$  と  $V_b$  の比が大きいほどエッチング型飛跡検出器の感度は高くなる。 $V$  と  $V_t$  及び  $V_b$  の関係を式 (1) に示す。

$$V = \frac{V_t}{V_b} \quad (1)$$

また、エッチ率比  $V$  から 1 引いた、 $V-1$  (Reduced etch ratio) はエッチピット生成感度  $S$  となる。本実験ではバルクエッチング速度の測定には核分裂片のエッチピット半径を用いた。

### 2.3.2 赤外線分光法

化学組成の分布状況を観察するには ESCA (X 線光電子分光) や AES (オージェ電子分光)、EPMA (電子線マイクロアナライザ) といった方法が利用されるが、これらは高い感度を持つ一方、高真空を必要としエネルギーの高い光子や電子を試料に照射するため試料を損なう危険性が高く、とくに有機材料の場合にはその影響には著しいものがある。本研究で使用した iR7 ATR は試料を損なうことなく材料の微小領域の赤外吸収スペクトルを測定することができる全反射測定法である (Fig.8)。



Fig.8 Infrared microscope (iD7 ATR).

### 3. 実験結果

#### 3.1 自作 PADC の特性とアルファ線に対するエッチングテスト

重合防止剤を 0.085, 0.169, 0.254, 0.338, 0.422 wt% 添加し 90°C の直線熱履歴で加熱した PADC の熱硬化直後の写真を Fig.9 に示す。熱硬化後の自作 PADC は、重合防止剤の添加量を増やすほど柔らかくなり、黄色く変色する。また、重合防止剤の添加量が 0.169 wt% を超えた辺りから重合が不完全な箇所が増え始める。ヒドロキノン を 0.338 wt% 添加した場合は、PADC を 1 mm 四方に切り出すことができないため、エッチング型飛跡検出器としての使用は困難であることがわかった。

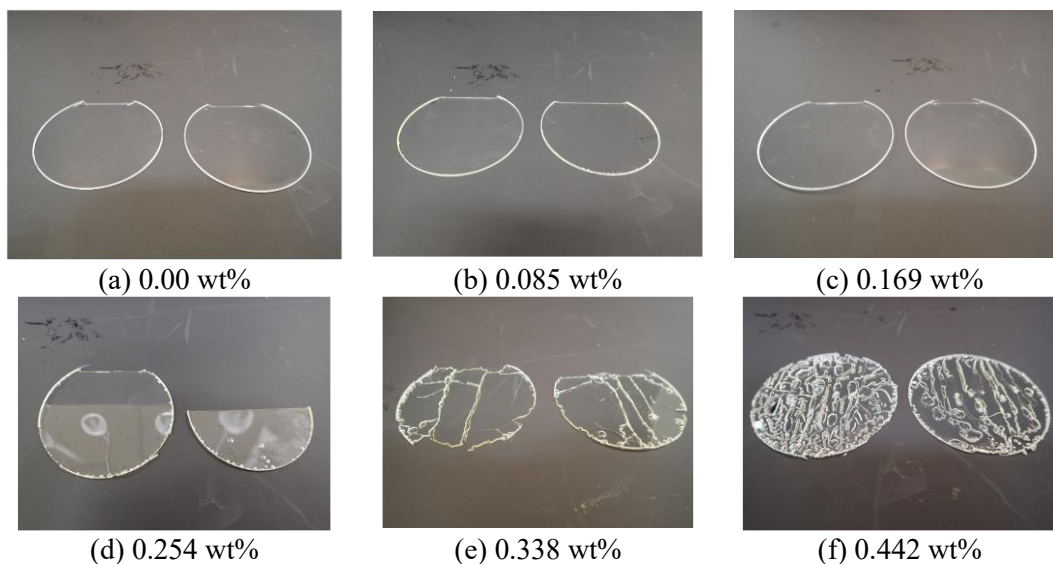


Fig.9 Photos of home-made PADC after heat curing.

重合防止剤を 0.085, 0.169, 0.254, 0.338, 0.422 wt% 添加した PADC に対してアルファ線を照射した場合のエッチング結果を Fig.10 に示す。重合度を調整した自作 PADC と BARYOTRAK におけるエッチピットの直径の比較を Fig.11 に示す。縦軸をエッチピットの直径 [ $\mu\text{m}$ ]、横軸をエッチング時間 [min] としている。熱履歴を直線 90°C とし熱硬化した場合において、添加量が 0.085 wt% 及び 0.169 wt% で、エッチピットの拡大化が著しかった。しかし、添加量を 0.254 wt% 以上添加すると、表面の荒れが大きくエッチピットが難しくなった。よって重合防止剤の添加量は 0.169 wt% が最適であることがわかった。また、エッチング時間 30 分において、重合防止剤を添加していない自作 PADC (0.00 wt%) のエッチピット直径は 7.82  $\mu\text{m}$  であり、重合防止剤を 0.254 wt% 添加した自作 PADC のエッチピット直径は約 2.2 倍の 16.95  $\mu\text{m}$  となった。即ち、重合防止剤によるエッチピットの成長を促進する十分な効果を見出すことができた。

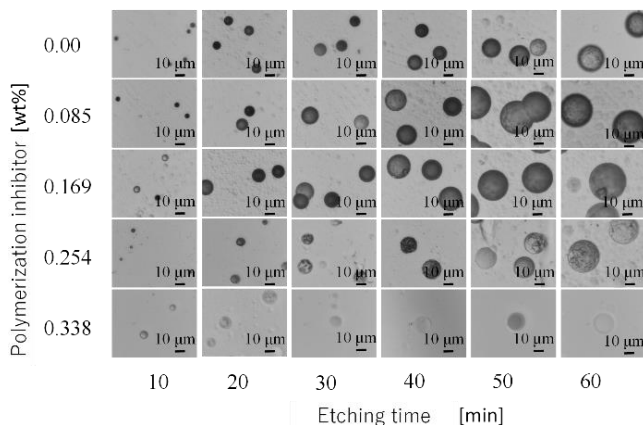


Fig.10 Etch-pits of alpha-particles on home-made PADC with indicating different amount of polymerization inhibitor.

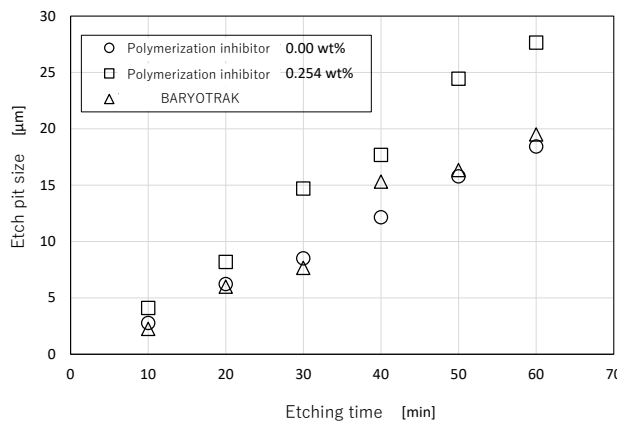


Fig.11 Growth behaviors of etch-pits of alpha-particles on home-made PADC with indicating different amount of polymerization inhibitor.

### 3.2 重イオンに対するエッチングテスト

#### 3.2.1 感度

各 PADC 試料において、Si イオンおよび Ne イオン、Fe イオン照射に対する感度を比較した結果を Fig. 14 に示す。正方形のシンボルで表している Techno Trak が最も高い感度を示し、三角形のシンボルで表している自作 PADC が最も低い感度を示した。円形のシンボルで表した BARYOTRAK は期待された通り、Techno Trak よりもやや感度は低い。自作 PADC の感度が特に低くなっているのは、重合が不十分でありバルクエッチング速度が速いことが原因であると考えられる。

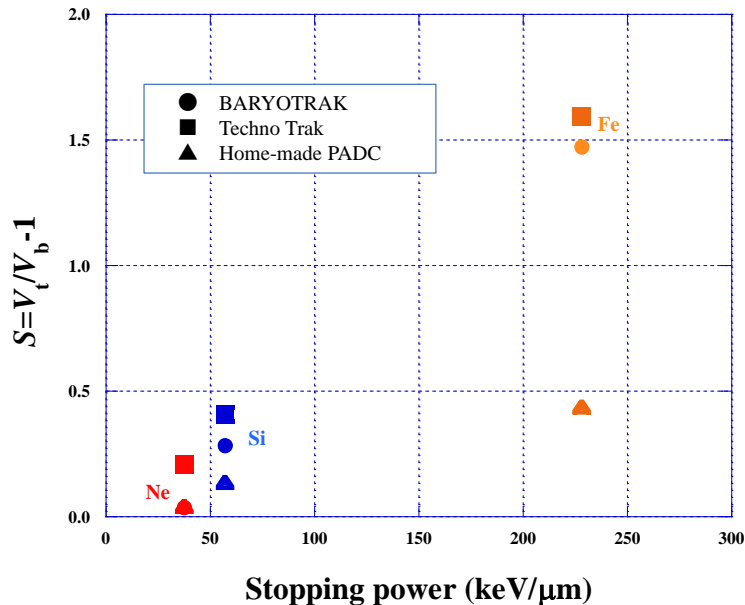


Fig.12 Sensitivity of home-made and other commercial PADC detectors for Ne, Si and Fe ions.

#### 3.2.2 トラックエッチング速度

各 PADC 試料において、Si イオンおよび Ne イオン、Fe イオン照射に対するトラックエッチング速度を比較した結果を Fig. 15 に示す。トラックエッチング速度は自作 PADC が最も高い値を示し、BARYOTRAK が最も低い値を示した。自作 PADC は、同じエッチング時間において BARYOTRAK に比べてトラックエッチング速度が大きいことから、より短時間のエッチングでもエッチピット観測が可能である事がわかった。

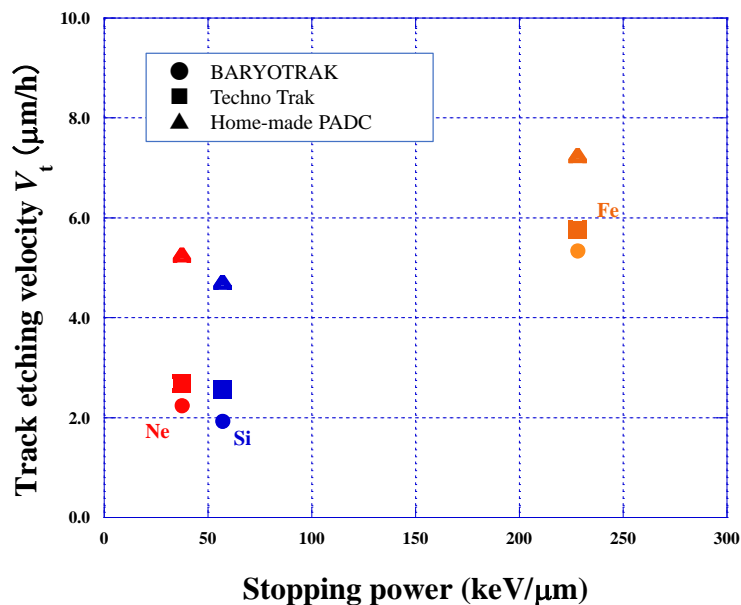


Fig.13 Track etching rate of home-made and other commercial PADC detectors for Ne, Si and Fe ions.

### 3.3 赤外線分光法による損傷評価

照射前後の赤外線分光器で測定した自作 PADC のスペクトルを Fig.14 に、また、主要な官能基の吸収ピークの帰属を Table 3 に示す。

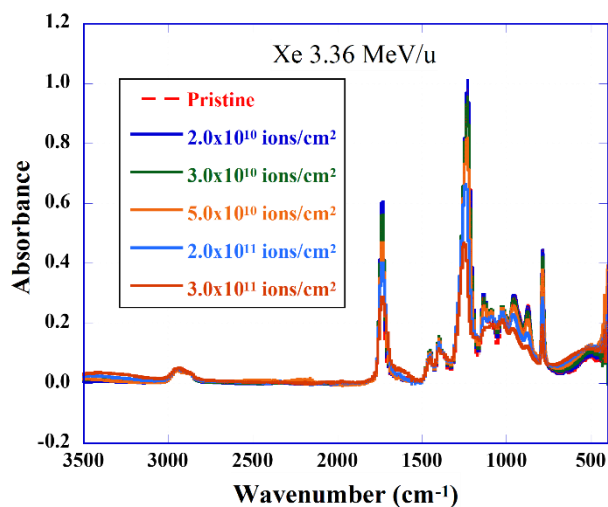


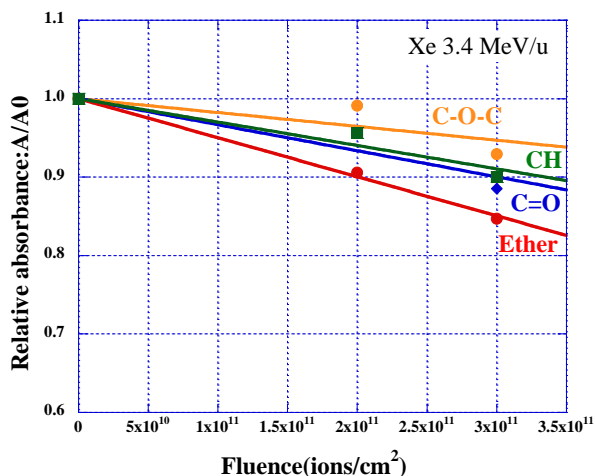
Fig.14 IR spectra of home-made PADC before and after the exposure to Xe ions.

Table 3 Assignment of IR absorption peaks of PADC.

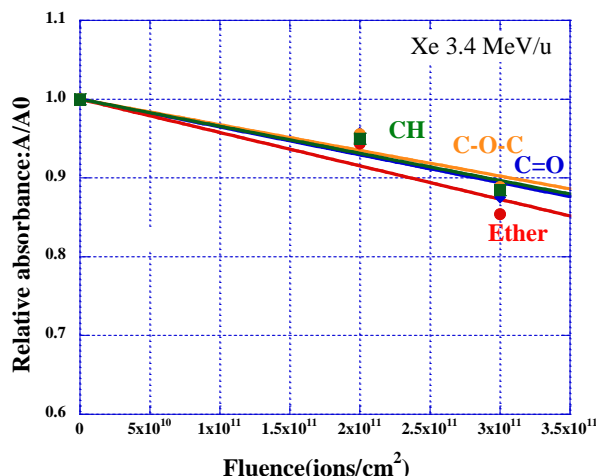
帰属	振動	波数(cm <sup>-1</sup> )
C=O	伸縮振動	1750
C-O-C	伸縮振動	1250
Ether	伸縮振動	1092
CH	変角振動	789

Fig.14 に示す赤外線吸収スペクトルのフルエンス依存性から分かるように、照射前後で主要な官能基のピークは低下していることが確認できる。本研究では Table 3 に示す 1750 cm<sup>-1</sup> のカルボニル基のピークに着目して行った吸光度の測定結果と分析結果について述べる。

高分子試料に重イオンを照射すると、通過するイオンにより官能基が損傷を受ける。Beer-Lambert の法則によると、吸光度は試料中の着目している官能基の密度と試料厚さの積に比例する。照射前後で試料の厚さは不変であるが、官能基密度が減少し吸光度が低下する。未照射試料の吸光度  $A_0$  とし、照射後の吸光度  $A$  を比に取った相対吸光度  $A/A_0$  は、特定のフルエンスにおける官能基密度の減少を表している。後に述べる化学的損傷パラメータを算出するために、まずは相対吸光度とフルエンスの関係を算出し、その変化から除去断面積を求める必要がある。Fig. 15 に iR7 ATR で測定した相対吸光度とフルエンスの関係を示す。



(a) BARYOTRAK



(b) home-made PADC

Fig. 15 Relationship between relative absorbance and fluence of Xe ions.

イオントラックの重なりが無視できる範囲では、フルエンスが増加するにつれて相対吸光度が一次関数的に減少することが確認できる。つまり、相対吸光度が減少することはフルエンス  $F$  に依存しており、相対吸光度  $A/A_0$  とフルエンス  $F$  は直線の傾き  $\sigma$  を用いて次の式(2)で表すことができる。

$$\frac{A}{A_0} = 1 - \sigma \cdot F \quad (2)$$

このフィッティング直線の傾きは除去断面積 $\sigma$ とよばれ、面積 (cm<sup>2</sup>) の次元を有するものである。相対吸光度とフルエンスの関係から得られた除去断面積 $\sigma$ を用いて化学的損傷パラメータを算出することができる。そして、算出した結果を過去のブラッグピーク付近の低エネルギー重イオンを用いた BARYOTRAK に対する実験での結果と比較する。次に 3 つの化学的損傷パラメータについて説明する。

#### ① 実効的トラックコア半径

イオン照射によって形成されるイオントラックが単純な円柱形をしており、各官能基の損傷はその円柱内で生じていると仮定する。このときの面積の次元を持つ $\sigma$ はその円柱の底面積に対応している。よって除去断面積と実効的トラックコア半径  $r$  の間には以下の関係が成り立つ。

$$r = \sqrt{\frac{\sigma}{\pi}} \quad (3)$$

ここで実効的とは、着目する官能基がイオン軌跡に近いものから順番に損傷を受けて失われると仮定し、さらにその分布が未照射時の空間分布を保っているとした場合にその内部の官能基が失われている平均的な広がりであることを意味している。即ち実際にそのようなサイズのナノホールが形成しているのではなく、あくまでトラック径方向の損傷の広がりを表す指標である。

#### ② 損傷密度

エッチング型飛跡検出器中に生成するトラックの構造について議論する際は、トラック単位長さ当りの各官能基の損傷数が重要な意味を持つ。それはエッチングによって損傷を可視化するエッチング型飛跡検出器においてはトラックに沿った損傷数がエッチング速度と直接的に関係づけられると考えられるからである。トラックに沿った単位長さ当りの損傷数を表す損傷密度は、着目する官能基の未照射試料中での数密度  $N_0$  と  $\sigma$  の積として次の式(4)のように表される。

$$L = \sigma N_0 \quad (4)$$

#### ③ 放射線化学収率(G 値)

放射線化学的な観点からは、損傷の空間的な密度だけでなく単位エネルギー当たりの損傷数である放射線化学収率 (G 値) を算出することが求められる。式(5)に示すように、G 値は先に求めた損傷密度を阻止能で除することで求めることができる。単位は (scissions/100 eV) であるため、損傷密度を阻止能 (keV/ $\mu$ m) で除する際の単位換算に注意が必要である。

$$G = \frac{L}{(-\frac{dE}{dx})} \quad (5)$$

##### 3.3.1 実効的トラックコア半径

BARYOTRAK と自作 PADC に Xe イオン (3.4 MeV/u) を照射し、Fig. 15 に示す測定結果を得た。式(2)に基づいて行った最適直線の勾配に対する分析から得られる除去断面積に基づいて 3 つの化学的損傷パラメータを導出した。除去断面積と実効的トラックコア半径との関係を表す式(3)に従って、同コア半径を求めることができる。Fig. 16 にカルボニル基 (C=O) 基損失の実効的トラックコア半径と阻止能の関係を示す。図中、右上に位置する塗りつぶしたダイヤ型シンボルが本研究において ATR 法を用いて得た結果である。背景に回っているやや大きく濃い青色のシンボルが BARYOTRAK についての結果であり、淡い水色のシンボルは自作 PADC の結果を表している。双方の結果は、シンボルサイズの大きさ以内で一致している。過去の BARYOTRAK について蓄積されている実験データは、電子線 (28 MeV) も含めて、プロトンや重イオンについて、白抜きプロットで示しており、これらは ATR 法ではなくて、薄膜を用いた実験で決定されたものである。ATR 法による結果は、薄膜による値に比べてやや大きな値になっている。感度やトラックエッチング速度には大きな違いがあったにもかかわらず、実効的コア半径は自作 PADC と BARYOTRAK の双方でほぼ同一と言える値を持つ。

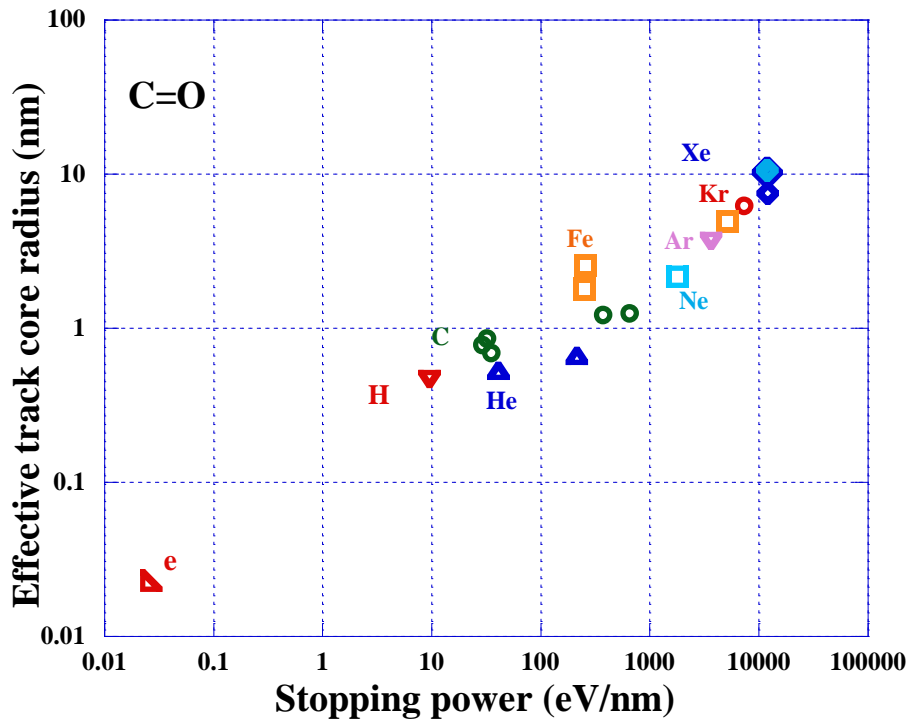


Fig.16 Effective track core radius for the loss of carbonate ester bonds .

### 3.3.2 損傷密度

除去断面積と損傷密度との関係を表す式(4)に従って、実験的に得た除去断面積から Xe イオンについての損傷密度を求めた結果を得ることができる。Fig.17 にカルボニル基の損傷密度と阻止能の関係を示す。実効的トラックコア半径と同じく、図中、右上に位置する塗りつぶしたダイヤ型シンボルが本研究において ATR 法を用いて得た結果であり、過去の実験データで得られたデータは白抜きプロットで示している。期待される通り、カルボニル基の損傷密度についても、ATR 法による結果は従来の分析よりもやや大きな値を示しているが、自作 PADC と BARYOTYRAK の値は互いによく一致している。

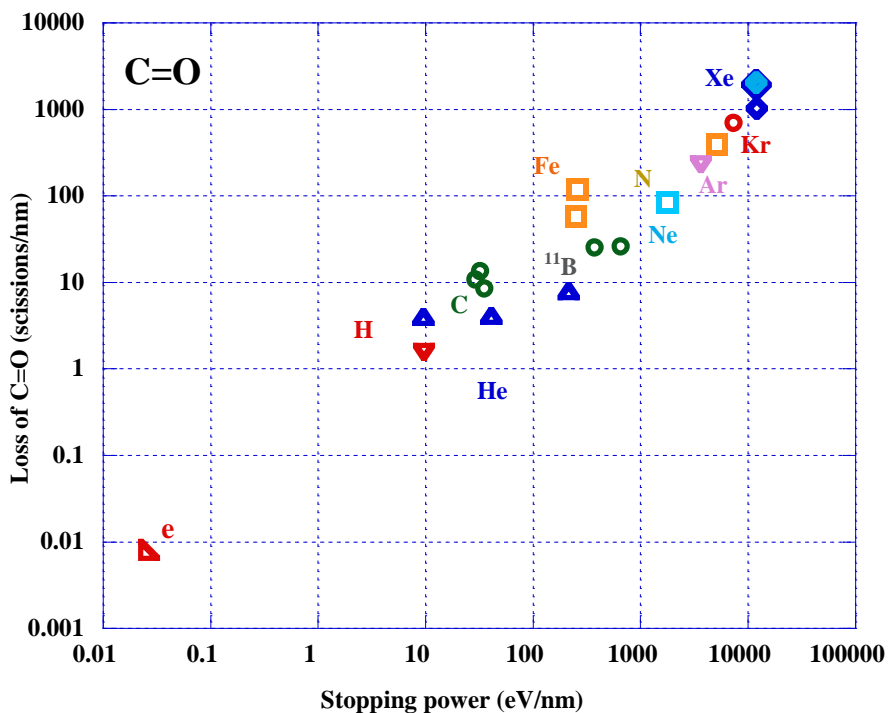


Fig.17 Relation between the damage density for loss of carbonate ester bonds and the stopping power.

### 3.3.3 放射線化学収率(G 値)

放射線化学収率 (G 値) については、損傷密度及び阻止能との関係を表す式(5)に従って、評価することができる。Fig.18 にカルボニル基の損失の G 値と阻止能の関係を示す。実効的トラックコア半径や損傷密度と同じく、図中、右端の上端にある塗りつぶしたダイヤ型シンボルが本研究において ATR 法を用いて得た結果であり、過去の実験データで得られたデータは白抜きシンボルで示している。ここには電子線 (28 MeV) の結果とともに、ガンマ線 (Co-60) の結果についても示している。PADC は他の高分子系エッチング型飛跡検出器である PET (ポリエチレンテレフタレート) や PC (ビスフェノール A ポリカーボネート) とは異なり、同一イオンであれば阻止能が大きいほど G 値が小さくなる [19]。G 値で比較すると、ATR 法の結果と従来の薄膜を使った結果との違いはより明確になるが、自作 PADC と BARYOTRAK の結果がほぼ同一であることが明らかになる。イオントラックに沿ったトラックエッチング速度では自作 PADC がはつきりとより大きな値を持つにもかかわらず、カルボニル基損失の G 値については、BARYOTRAK の値と変わらないことについて考察が必要であろう。同一のイオンを照射し、検出感度には明確な違いがあったが、化学的損傷パラメータが同一であった例として、真空中照射の例を挙げることができる [20]。照射前の真空中保持時間が長くなると PADC の感度は有意に低下することは古くから知られていた。Mori らは PADC の薄膜を用いて真空中での照射実験を行い、ブラッグピーク近傍の He と C イオンについて、真空照射と大気中照射の結果がカルボニル基やエーテル基の損失についてほぼ同一であることを見出している[20]。その一方で、真空中照射ではヒドロキシル基の生成が抑制されることを明らかにした。ヒドロキシル基の生成密度が、物理的なパラメータに比べて、検出感度と格段に高い相関を示すことが知られており、親水基であるヒドロキシル基の生成密度がエッチング溶液の侵入速度、すなわち、トラックエッチング速度を決定しているのではないかとするモデルが提唱されている [21]。本研究で得られた結果は、ヒドロキシル基の生成密度が重要であるとするこれまでに蓄積してきた知見を、自作 PADC を利用した重合度の観点から補うものであると言えるだろう。

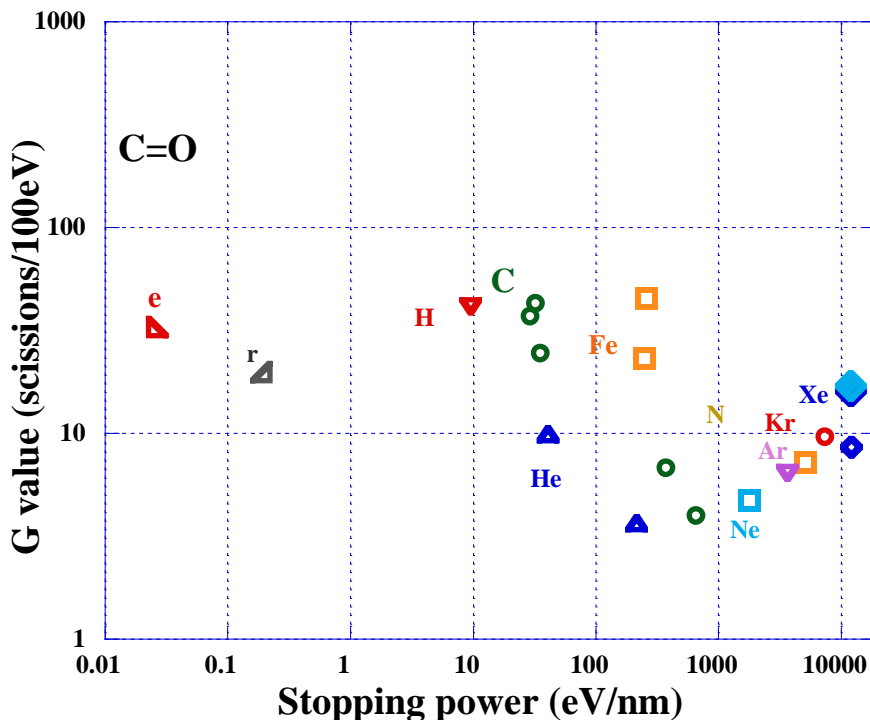


Fig.18 Relation between G value for loss of carbonate ester bonds and the stopping power.

## 4. まとめ

小・中学生を対象にした放射線教育の教材として、短時間の化学エッチングでエッチピットが観察可能となる新しい PADC 素子の開発に取り組んだ。重合を抑制することでより大きなエッチング速度を実現させるという考えに基づいて、重合抑制剤の添加を試みた。放射線検出器としては、自身の形状を保ち、透明性についても保持している必要があるが、感度の高さも含めて、最も優れたエッチピットの拡大の効果が得られる重合防止剤の添加量は 0.165 wt%であった。これを自作 PADC とし、その検出感度

とイオントラック中のカルボニル基の損傷について評価した。検出感度を求めるエッチングテストについては、Ne イオン (400 MeV/u) と Si イオン (800 MeV/u)、Fe イオン (500 MeV/u) を自作 PADC と市販の PADC 検出器である BARYOTRAK と Techno Trak に照射した。各試料に対する感度とトラックエッチング速度を求めたところ、自作 PADC の感度は最も低いが、トラックエッチング速度は最も高かった。感度が低くなったのはトラックエッチング速度とともにバルクエッチング速度も高くなったからである。自作 PADC と BARYOTRAK 中のイオントラック構造を比較するために、薄膜試料を必要としない ATR 法を用いた赤外分光分析を行った。照射に用いたのは Xe イオン (3.4 MeV/u) であった。カルボニル基の損傷についての ATR 法を用いた結果は、過去の BARYOTRAK に対する薄膜を用いた結果を比べると、実効的トラックコア半径や損傷密度、放射線化学収率といった、いずれの化学的損傷パラメータについてもやや大きな値となった。しかし、自作 PADC と BARYOTRAK の ATR 法による結果が実験誤差の範囲で一致していることから、このずれは手法の違いによると考えられた。その一方で、同一の手法であれば自作 PADC と BARYOTRAK との間に違いが認められなかった。このことはカルボニル基の損傷の放射線化学収率が、あるいは、同損傷の空間的広がりが重合度に関係していないことを示唆する。その一方で、双方の検出器のトラックエッチング速度は重合度の違いに大きく依存する。トラックエッチング速度を決定している損傷構造を理解する上で、本研究で得られた結果はヒドロキシル基の生成密度が重要であるとするこれまでに蓄積してきた知見を重合度の観点から補うものである。今後は、他のイオン種や、他の官能基についての分析を行う必要があるだろう。

## 5. 参考文献

- [1] K. Oda, et al., “Several techniques for improving energy dependence of a commercial personal neutron dosimeter package based on PADC track detector”, *Radiat. Meas.*, 44 (2009)977.
- [2] D. Nikezic, et al., “Formation and growth of tracks in nuclear track materials”, *Mater. Sci. Eng. R.*, 46(2004)51.
- [3] M. Kanasaki, et al., “A high energy component of the intense laser-accelerated proton beams detected by stacked CR-39”, *Radiat. Meas.*, 50 (2013) 46.
- [4] Y. Fukuda, et al., “Identification of high energy ions using backscattered particles in laser-driven ion acceleration with cluster-gas targets”, *Radiat. Meas.*, 50 (2013) 92.
- [5] M. Nishiuchi, et al., “Quasi-monochromatic pencil beam of laser-driven protons generated using a conical cavity target holder”, *Physics of Plasma.*, 19 (2012) 030706.
- [6] B.G. Cartwright, et al., “A nuclear-track-recording polymer of unique sensitivity and resolution”, *Nucl. Instrum. Methods.*, 153 (1987) 457.
- [7] S. Kodaira, H. Kawashima, H. Kitamura, M. Kurano, et al., “Analysis of radiation dose variations measured by passive dosimeters onboard the International Space Station during the solar quiet period (2007–2008)”, *Radiat. Meas.*, 49, 95–102 (2013)
- [8] Zylstra, A. B., Frenje, J. A., Seguin, F. H., Gatu Jhonson, M., et al., “A new model to account for track overlap in CR-39 data, *Nucl. Instrum. Meth. A*, 681, 84–90 (2012)
- [9] Y. Fukuda, Faenov, A. Ya., M. Tampo, T. A. Pikuz, et al., “Energy increase in multi-MeV ion acceleration in the interaction of a short laser with a cluster-gas target”, *Phys. Rev. Lett.*, 103, 165002 (2009)
- [10] M. Nishiuchi, H. Sakaki, Esirkepov, T. Zh., K. Nishio, et al., “Acceleration of highly-charged GeV Fe ions from a low-Z substrate by intense femtosecond laser”, *Phys. Plasmas*, 22, 033107 (2015)
- [11] T. Hihara, M. Kanasaki, T. Asai, T. Kusumoto, S. Kodaira, et al., “Discriminative detection of laser-accelerated multi-MeV carbon ions utilizing solid state nuclear track detectors”, *Scientific Reports*, 16283 (2021)
- [12] 山内知也, 楠本多聞, 高分子系エッチング型飛跡検出器中に形成されるイオントラックの構造, *RADIOISOTOPES*, Vol. 68, pp.247-258, (2019)

- [13] 楠本多聞, PADC 飛跡検出器の放射線高感受性部に見られる段階的な損傷形成, 放射線化学, 103, 41-45 (2017)
- [14] M. Fujii, et al., “Ageing effects on a new polymeric track detector SR-90 and a model of the nuclear track formation”, Nucl. Tracks Radiat. Meas., 22(1993)199.
- [15] K. Ogura, et al., “Proton response of high sensitivity CR-39 copolymer”, Radiat. Meas., 28(1997)197.
- [16] K. Ogura, et al., “Properties of TNF-1 track etch detector”, Nucl. Instrum. Methods, B 185(2001)222.
- [17] 石川一平, 清原修二, “放射線飛跡を可視化するプラスチック教材を用いた教育方法の実践”, 応用物理教育, Vol.40, No.2, pp.101-106, (2016)
- [18] 伊藤大洋, 石川一平, 清原修二: 放射線教育プラスチック検出器のエッチング液の改良による危険性の低減, 第 26 回日本高専学会 年回講演会, pp.61-62, (2020)
- [19] T. Yamauchi, et al., “Thresholds of etched track formation and chemical damage parameters in poly(ethylene terephthalate), bisphenol A polycarbonate, and poly(allyl diglycol carbonate) films at the stopping power ranging from 10 to 12,000 keV/ $\mu\text{m}$ ”, Jpn. J. Appl. Phys. 51, 056301 (2012)
- [20] Y. 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)
- [21] T. Yamauchi, et al., “Methodological and conceptual progresses in studies on the latent tracks in PADC”, Polymers. 13 (16), 2665 (2021)