

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 14 日現在

機関番号：82502

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2013

課題番号：24656067

研究課題名(和文)直鎖分子間長が異なるポリマーを用いた放射線飛跡生成メカニズム解明への試み

研究課題名(英文)Challenge for understanding radiation induced track formation mechanism in the polymers with different chain length

研究代表者

小平 聡 (Kodaira, Satoshi)

独立行政法人放射線医学総合研究所・研究基盤センター・研究員

研究者番号：00434324

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円、(間接経費) 840,000円

研究成果の概要(和文)：個人線量計として実用されているCR-39プラスチックの飛跡生成メカニズム解明の一つのアプローチとして、CR-39の化学構造と類似したポリマーにおける重イオンに対する応答感度と放射線照射に伴う分子結合切断を調べた。CR-39モノマーにおけるC=O間のエーテル結合の数・長さに着目し、分子間長の異なる4種類のポリマーを製作した。エッチング特性ならびに重イオン飛跡の生成の可否、重イオンのエネルギー損失量に対する応答感度を調べ、エッチング線形性とともにも重イオン飛跡生成を確認した。重イオン照射前後での赤外吸収スペクトルを顕微FT-IR法により測定し、全ポリマーについてC=O及びC-O-Cの同定に成功した。

研究成果の概要(英文)：We have verified the detection response for heavy ions and radiation induced bond breaking in the CR-39 polymer and other polymers with very similar structure for understanding the track formation mechanism in CR-39 plastic nuclear track detectors. We have fabricated 4 types polymers with different chain length. The basic performance such as etching properties, etch pit detection under the microscope and track formation sensitivity for various heavy ions has been carried out in HIMAC heavy ion accelerator. We have confirmed that these new polymers operate as nuclear track etch detectors. We have also measured the variation of infrared absorption spectra of polymers before and after the beam irradiation. The identification of C=O and C-O-C peaks and comparison among polymers have been successfully achieved.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎・応用物理学一般

キーワード：放射線損傷 粒子線 飛跡 検出器 高分子

1. 研究開始当初の背景

CR-39 ポリマー (Polyallyl diglycol carbonate) は、最も高感度な固体飛跡検出器として知られている。中性子線や宇宙放射線、ラドン濃度などの重荷電粒子を飛跡として観測するもので、先端的な研究だけでなく、様々な分野に広く普及している。実用化されて久しい検出器材料である一方で、「なぜ CR-39 が高感度なのか」、「どのようなメカニズムで飛跡が生成するのか」といった基本的な原理は未だ明らかになっていない。これが 40 年近く前に偶然発見されて以来、CR-39 を超える感度を持つ材料が見出されてこなかった原因となっている。

このメカニズムを明らかにしようと、神戸大学やストラスブル大学の研究グループでは、CR-39 の放射線照射による化学結合の変化を赤外分光法で測定する研究を進めている。我々は別のアプローチから、質量分析法を用いた放射線照射により切断されたポリマー成分の分析を進めている。これまでの実験では、PET (Polyethylene terephthalate) や PC (Polycarbonate) など異なる材料を比較に用いているが、このような既存の材料は一次直鎖構造しか持たないことや、ベンゼン環を有するなど、三次元網目構造を持つ CR-39 とは化学構造がかなり異なるため、体系的なメカニズム研究が困難であった。

2. 研究の目的

本研究では、CR-39 モノマーを構成する 2 つのカルボニル基で囲まれた直鎖分子間の長さに着目している。赤外分光の結果によると、この間に含まれるエーテル結合が飛跡生成と応答感度に深く関連していると報告されている。そこで、この直鎖分子間のエーテル結合の数を変化させ、CR-39 に非常に近い構造を持った材料を作製し、こ

れらの重粒子線に対する応答感度と化学構造変化との相関を調べ、CR-39 が高感度たる所以や飛跡生成メカニズムの解明を試みることを目的とした。

3. 研究の方法

CR-39 モノマー (Diallyl Diglycol Carbonate) における C=O 間のエーテル結合の数・長さに着目した。図 1 のように、Diallyl 化合物を基に、1,4-Butanediol diacrylate (BUT)、Triethylene glycol dimethacrylate (DM)、Tetraethylene glycol diacrylate (GD) の分子間長の異なる 4 種類のポリマーを製作した。作成したポリマーにおける固体飛跡検出器としての動作の可否に関する基礎データを放医研・HIMAC 重イオン加速器から得られる重イオンビームを用いて調べた。更に、重イオン照射前後での赤外吸収スペクトルを顕微 FT-IR 法により測定した。

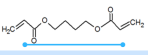
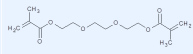
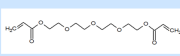
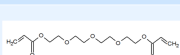
モノマー	ポリマー	モノマーの化学構造	C=O間の原子数 エーテル結合の数
1, 4-Butanediol diacrylate (BUT)	P-BUT		6 原子 0
Triethylene glycol dimethacrylate (DM)	P-DM		7 原子 1
Tetraethylene glycol diacrylate (GD)	P-GD		10 原子 2
Diethyleneglycol bis allyl carbonate (ADC)	P-ADC CR-39 (YAM)		13 原子 3

図 1. 作成した 4 種類のポリマーの構造と特徴。

4. 研究成果

異なる 4 種類のポリマーの合成を行い、何れも 1mm 厚程度で 50cm 角程度のプラスチック板として成形することに成功した。エッチング特性ならびに重イオン飛跡の生成の可否、重イオンのエネルギー損失量に対する応答感度を調べた結果、DM 以外の 3 種類は、図 2 に示すように、エッチング

線形性ととも、重イオンの飛跡生成を確認した。DM はアリル基に結合するメチル基が立体障害となり、加水分解を阻害することが分かった。また、さまざまな重イオンビームを照射し、重イオンの速度電荷比に対する応答感度(飛跡生成感度 S と呼ぶ)の関係を調べた。この結果、図 3 のような応答関係が得られ、BUT と GD は CR-39 と同様に固体飛跡検出器として動作可能であることを明らかにした。

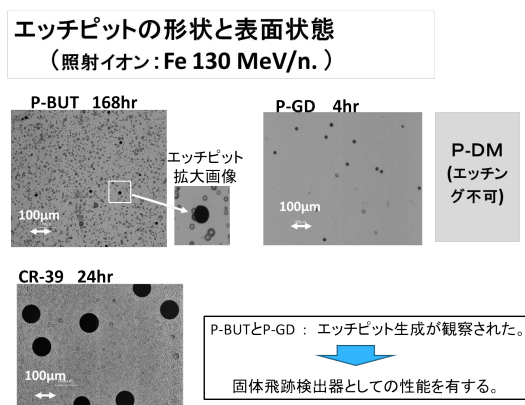


図 2. 作成したポリマー (BUT, GD, CR-39) において生成したエッチピットの顕微鏡画像。

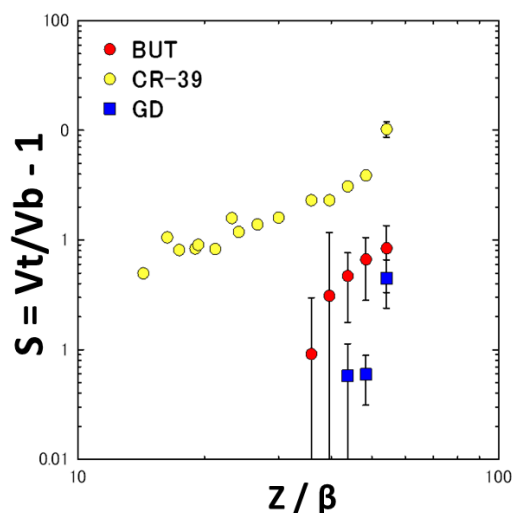


図 3. 各ポリマーにおける重イオンの Z/β (速度電荷比) に対する応答感度 (飛跡生成感度) の関係。

さらに、重イオン照射前後での赤外吸収スペクトルを顕微 FT-IR 法により測定した。図 4 に示すように、全てのポリマーについて、その化学構造を成す $C=O$ 及び $C-O-C$ の同定に成功した。CR-39 および BUT は重イオン照射による吸光度の減少を確認した一方、DM・GD については増加傾向を確認した。イオン照射による分子結合切断だけでなく、架橋効果の可能性が考えられる。

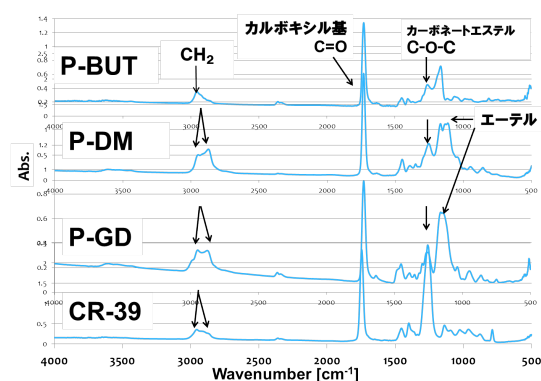


図 4. 各ポリマーにおける赤外吸収スペクトルの比較。

本研究において、直鎖分子間長が異なる 4 種ポリマーの重イオンに対する応答と化学損傷について比較・検討することができた。今後の展開として、生成ラジカルや分子フラグメント等の測定データを集約し、多角的に議論することで、飛跡生成メカニズム問題の解決につなげていきたいと考えている。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 0 件)

[学会発表](計 3 件)

川嶋元、小平聡、安田仲宏、松川兼也、

森豊、山内知也、小林啓一、「分子間長の異なるモノマーから合成されたポリマーの荷電粒子に対するレスポンスの顕微FT-IR測定」, 第28回固体飛跡検出器研究会, 2014年3月27日~2014年3月28日, 神戸大学

小平聡, 「固体飛跡検出器における局所放射線損傷と飛跡生成」, 放射線物理学研究会, 2014年3月10日~2014年3月11日, 東京大学

川嶋元, 小平聡, 中川健太, 安田仲宏, 小林啓一, 「分子間長の異なる固体飛跡検出器の応答感度の研究」, 第27回固体飛跡検出器研究会, 2013年3月21日~2013年3月22日, 神戸大学

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況(計 0 件)

名称:

発明者:

権利者:

種類:

番号:

出願年月日:

国内外の別:

○取得状況(計 0 件)

名称:

発明者:

権利者:

種類:

番号:

取得年月日:

国内外の別:

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1)研究代表者

小平 聡 (KODAIRA, Satoshi)

独立行政法人放射線医学総合研究所・研究
基盤センター・研究員

研究者番号: 00434324

(2)研究分担者

()

研究者番号:

(3)連携研究者

()

研究者番号: