

一般論文

局在表面プラズモン共鳴を用いた光学顕微鏡による微細放射線飛跡解析法

Analyzing System of Minute Radiation Tracks with Optical Microscope by the Use of Localized Surface Plasmon Resonance

久下謙一*・安達考洋*・梅本篤宏**・中 竜大***・小平 聡****

Ken'ichi KUGE*, Takahiro ADACHI*, Atsuhiko UMEMOTO**, Tatsuhiko NAKA***, Satoshi KODAIRA****

要 旨 高解像度の原子核乾板に記録された放射線飛跡は微小な現像銀微粒子からなり、これらは光学顕微鏡の分解能より小さくなると検出困難である。この現像銀粒子が落射光学系の光学顕微鏡では、局在表面プラズモン共鳴 (Localized Surface Plasmon Resonance; LSPR) による輝点として観察できることから、ここでは電子顕微鏡と光学顕微鏡で同じエリアを観察して、検出する粒子サイズと間隔を解析した。単独では 50 nm サイズの粒子も輝点として検出できた。さらに偏光照射により輝点の輝度や色が偏光の回転角に応じて変化することから、接近した粒子も区別しうることが示唆された。さらに光学的手法の改良による解像度、コントラストの向上も探った。LSPR を用いた飛跡検出法は、高い分解能とともに、偏光情報・色情報など多くの情報を与え、今後の放射線飛跡解析への有力な手段となりうる。

Abstract Radiation tracks recorded on nuclear emulsion plates with high-resolution are composed of fine developed silver-clusters and it is difficult to detect them with a usual optical microscope when their sizes were under the resolution of optical microscopes. We observed them as shining points with an epi-illumination optical system by the use of localized surface plasmon resonance (LSPR). Minimum cluster size and interval between clusters were analyzed by observing the same area with optical and electron microscopes. A cluster of 50 nm size was detected as a shining point. As brightness and color of the clusters changed along with the polarized angle of the illumination light, it is suggested that adjacent shining points were distinguishable by the change of polarized angle. This method using LSPR will become a useful method to detect minute radiation tracks because of not only the high resolution but also the track information about polarization or color.

キーワード：放射線飛跡，微細現像銀粒子，光学顕微鏡，局在表面プラズモン共鳴，超解像顕微鏡法

Key words: Radiation track, Fine developed silver grain, Optical microscope, Localized surface plasmon-resonance (LSPR), Super-resolving microscopy method

1. 序論

銀塩写真感光材料は高エネルギー荷電粒子にも感度を有し、原子核乾板と呼ばれる優秀な放射線飛跡検出器として利用されてきた^{1,2)}。原子核乾板は高い空間分解能と飛跡の3次元検出が可能という特長を持ち、飛跡の精細解析に威力を発揮する。超微粒子乳剤を用いた銀塩写真感光材料は最大 10000 本/mm という高い解像度を持つ³⁾。このような超微粒子乳剤を原子核乾板に適用すれば、 μm 以下の極微細な飛

跡も3次元方向を含めて検出可能となる。

これまで原子核乾板に記録させた飛跡は通常光学顕微鏡で観察されてきた。光学顕微鏡は操作が容易で比較的安価な検出器である。さらに原子核乾板のネックとされる肉眼での飛跡画像の読み取りも、近年の画像処理技術の進歩で自動飛跡解析技術が構築され、大面積を高速で解析できるようになってきている⁴⁾。

原子核乾板のセンサーはハロゲン化銀粒子であり、放射線のエネルギーを受けてハロゲン化銀が分解して銀原子からな

令和元年7月1日受付，令和元年8月31日受理 Received 1st, July 2019, accepted 31st, August 2019

*千葉大学；〒263-8522 千葉市稲毛区弥生町1-33

Chiba University; 1-33, Yayoi-cho, Inage-ku, Chiba 263-8522, Japan

**名古屋大学；〒464-8602 名古屋市千種区不老町

Nagoya University; Furo-cho, Chigusa-ku, Nagoya 464-8602, Japan

***東邦大学；〒274-8510 千葉県船橋市三山2-2-1

Toho University; 2-2-1, Miyama, Funabashi-shi, Chiba 274-8510, Japan

****量子科学技術研究開発機構 放射線医学総合研究所；〒263-8555 千葉市稲毛区穴川4-9-1

National Institutes of Quantum and Radiological Science and Technology, National Institute of Radiological Sciences; 4-9-1, Anagawa, Inage, Chiba 263-8555, Japan

る潜像核が形成される。これがその後の現像処理過程においての触媒となり、ハロゲン化銀は還元されて現像銀粒子となり、飛跡はこの銀粒子が光を吸収して生じる白黒明暗像として認識され、主に光学顕微鏡で観察されてきた。しかしながら、光学顕微鏡の分解能はレンズの開口数と観察する光の波長に依存する理論的な限界があり、可視光ではたかだか 200 nm 程度である⁵⁾。

高解像度の得られる超微粒子乳剤ではハロゲン化銀粒子サイズが数 10 nm であり、現像銀粒子はフィラメント形成によりこれより大きくなるが、それでも光学顕微鏡で個々の現像銀粒子を解像して検出するのは困難である。このようなレンズ系の光学分解能を超える微細像を検出するための超解像顕微鏡法が種々提案されており^{6~8)}、2014 年のノーベル化学賞にもなっている。超微粒子乳剤からなる原子核乾板に記録された微細飛跡に対応して解像しうる超解像顕微鏡法が求められている。

超解像顕微鏡法の基本的な原理は対象を光らせて検出することであり、種々の光らせ方が工夫されている。以前飛跡に蛍光色素をつけて光らせる蛍光標識化法を報告した^{9,10)}。一方、nm サイズの金属微粒子は局在表面プラズモン共鳴 (Localized Surface Plasmon Resonance, 以後 LSPR と略す) により強い散乱光を発する。現像銀粒子も微細な金属粒子であるため LSPR により光るので、これを用いて検出することが考えられる。共著者の Umemoto らは LSPR が光学顕微鏡の透過像で解像しえない微細な現像銀粒子も光学顕微鏡で観察できる超解像顕微鏡法として用いることや、さらに偏光を用いて観察するとフィラメント状現像銀粒子のように形状異方性を持つ場合に偏光角度への依存性を持つことを報告した^{11,12)}。

本研究では高解像度原子核乾板に記録された微細飛跡の検出に LSPR を利用し、光学顕微鏡を用いた超解像顕微鏡法により検出される微細飛跡像の検出能力を検証した。そのために同じ現像銀粒子を光学顕微鏡と電子顕微鏡の両方で観察することにより、この方法の解像力を直接比較した。さらに偏光を用いた解像度の向上効果や、よりコントラストの高い像を得るための光学顕微鏡の観察条件についても検討し、この方法の有用性を検証した。

2. 実験方法

粒径 0.52 μm の AgBr 八面体粒子からなる未増感乳剤をガラス板に塗布して乾板とした。現像銀粒子の形状観察のために、この乾板に露光時間 10^{-3} s のフラッシュランプ露光を均一に与えた。放射線飛跡を記録するために、放射線医学総合研究所の加速器 HIMAC により 290 MeV/n の炭素イオンまたは 150 MeV/n のヘリウムイオンを乾板に水平に照射した。

微細現像銀粒子を作製する方法を種々試した結果、D72 写真現像液を希釈したものが感度低下が少なく、良好な現像銀粒子を作製できた。これらの乾板を 200 倍に希釈した D-72 現像液を用いて、現像温度 20 $^{\circ}\text{C}$ で 5 ~ 40 分間抑制現像した。

現像銀粒子の電子顕微鏡観察のために、これまでの報告¹³⁾と同じく乳剤膜の一部を削り取り、溶解して遠心分離することで現像銀粒子を取り出し、電子顕微鏡用膜張りグリッドの上のせて検鏡試料とした。ハロゲン化銀粒子上にある状態の現像銀粒子を観察するために、ゼラチンゲルカプセル法^{14,15)}による検鏡試料も作製した。これらの試料を透過型電子顕微鏡 (日立 H-7650) で観察した。

微細現像銀粒子の LSPR の観察は文献 11,12 を参考にした。落射像観察の可能な蛍光顕微鏡 (ニコン ECLIPSE Ni-U) を用い、光源の水銀ランプにユニバーサル落射照明装置 (ニコン U-EPI DFL) を取り付け、試料からの反射光を分ける落射照明キューブ (ニコン D-FLE) を用いて試料の上から観察した。透過像は試料の下にあるハロゲンランプを光源として照明し、同じく試料の上から観察した。100 倍の対物レンズを用いて、試料はレンズのガラスと同様の屈折率のイマージョンオイル (ニコン, index ne=1.518) に浸す油浸法で行った。光源と試料の間と、カメラの前の光路に、それぞれ回転可能な偏光フィルターを挿入して偏光での観察を行った。ここで用いた落射光学系を備えた光学顕微鏡の写真を Fig.1 に示す。落射光学系と透過光学系のそれぞれの光源の位置を矢印 D, E で示す。落射と透過の両方で観察可能である。また D の光源と B のキューブ内のハーフミラーの間と、A のカメラの前の 2 箇所 C の位置に回転可能な偏光フィルターを挿入することができ、偏光角度を変えて観察できるように組み立てた。2 箇所の偏光フィルターの角度をそれぞれ変えたときの、LSPR による散乱光像の解像度を比較し、見え方の違いを調べた。

上記の電子顕微鏡で観察するためにグリッド上に作製した現像銀粒子の試料を、光学顕微鏡でも観察した。グリッド上のマーカーをもとに同一エリアを特定し、同じエリアを電子顕微鏡と光学顕微鏡の両方で観察した。これより同じ現像銀粒子に対する、光学顕微鏡の透過像と落射光学系での LSPR

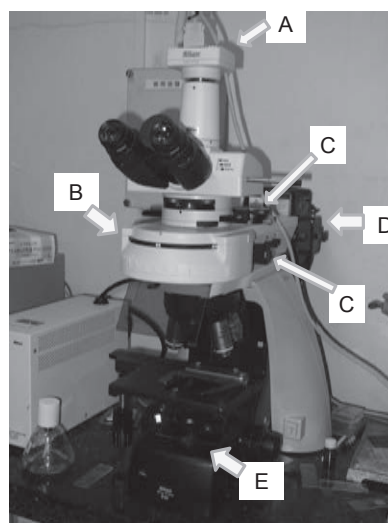


Fig. 1 Photograph of epi-illumination optical microscope to observe the localized surface plasmon resonance (LSPR) of developed silver clusters. A: camera, B: reflection-exposing cube, C: polarizing filters D: mercury lamp for epi-illumination system, E: halogen lamp for transmitted system.

像, 透過型電子顕微鏡像の3つを得て, その解像度を比較した.

3. 実験結果

露光乾板を現像時間を 20, 30, 40 分間と変えて現像した時の現像銀粒子の電子顕微鏡写真を Fig. 2 に示す. ゼラチンゲルカプセル法を用いているので, 円形状に白く抜けたところがハロゲン化銀粒子のあったところである. ハロゲン化銀粒子の粒径は 520 nm であるが, 空洞はおよそ 300 ~ 500 nm とやや収縮したものとなっている. その中にある黒い球状やフィラメント状の点が現像銀粒子である. 現像初期は現像銀粒子は球形か楕円形であるが, 現像時間の延長とともにフィラメント状の細長い現像銀へ変化していく. 一方, 現像時間にかかわらず, 球状の微小な現像銀粒子も混在している. これは途中から現像が開始されて形成された粒子と思われる. 一つのハロゲン化銀粒子上に複数の現像銀が生じているものがあり, 潜像核の分散が生じていることを示す.

高エネルギーの炭素イオンを照射して現像した乾板に記録された飛跡の光学顕微鏡写真を Fig. 3 に示す. 図の上は透過

像, 下は落射像であり, 図の左は現像時間 5 分間, 右は 15 分間である. 右図では現像銀粒子も大きく成長しているため, 透過像でも飛跡を認識できるが, 左図の短い 5 分の現像時間においては, 飛跡を作る現像銀粒子はまだ小さいため透過像では解像せず, 飛跡は淡い影としてわずかに認識できるだけである. 一方, 落射像では現像銀粒子は黒いバックの中に LSPR による小さな輝点としてはっきり識別でき, それぞれの輝点の列として飛跡を認識できる. 色は黄色が多いが, 黄緑や橙色のものもある. ただカメラ側で明るさに合わせて自動補正を行っているので, 目視の色とずれている場合が多々あった. 15 分間の現像では透過像でも飛跡が認識できるが, LSPR 像では輝点の輝度が増大している. ピントが深いところにある飛跡に合っているのが, 深さの違う中央の飛跡は LSPR 像でもぼやけて広がっているが, 透過像より飛跡の認識は容易である.

Fig. 2 と同じ方法で作製した電子顕微鏡用グリッド上にある同一試料を, 電子顕微鏡と光学顕微鏡でそれぞれ観察した写真を Fig. 4 に示す. 現像時間は 20 分間である. Fig. (a) は電子顕微鏡像であり, Fig. (b) は同じ場所をマーカーに

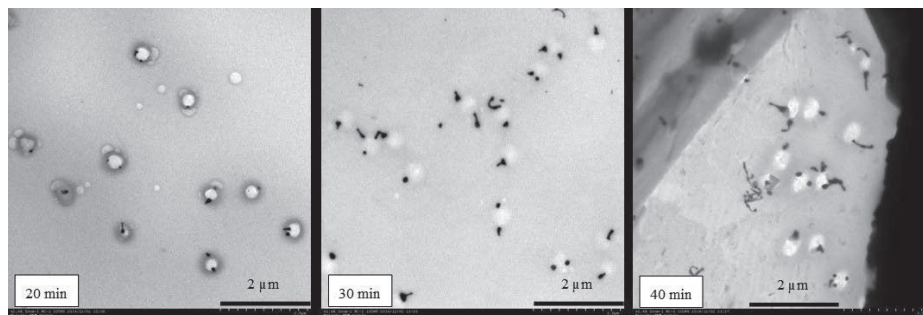


Fig. 2 Electron micrograph of developed silver clusters for development periods of 20 (left), 30 (center) and 40 (right) min by D72 developer diluted 200 times. Samples were obtained by gelatin-gel capsular method; white circles are the envelope of silver-halide grains, and black spheres or filaments are developed silver clusters.

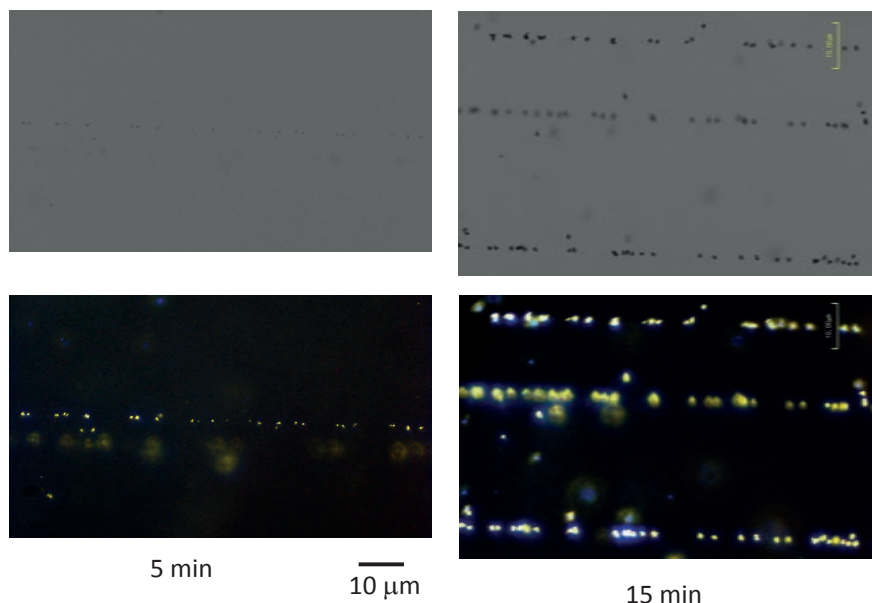


Fig. 3 Optical micrographs of radiation tracks by carbon ions of 290 MeV/n recorded on nuclear emulsion plates with development periods of 5 (left) and 15 (right) min. Top: transmitted-light image, bottom: LSPR image

より位置を特定して透過で見た光学顕微鏡像である。電子顕微鏡写真と同じスケールで表示している。電子顕微鏡では赤い円で囲ったところに T 字状に球形やフィラメント状の現像銀粒子が分布しており、個々の粒子も鮮明に解像している。ゼラチンゲルカプセル法を用いているが、硬膜が不十分だったためかハロゲン化銀粒子の空洞がつぶれてしまっており不明瞭である。一方光学顕微鏡の透過像では同じ場所にはぼんやりとした淡い影が映っているだけであり、そこに現像銀粒子が存在しているとは認識できない。

この同じ場所を落射光学系で観察したときの LSPR 像を Fig. 4 (c) に示す。ここでは光源側に偏光フィルターを挿入して観察している。

電子顕微鏡像では球形粒子は粒径 30 nm から 50 nm ぐらい、フィラメント状現像銀粒子は長さ 200 nm 程度と判別できる。矢印 A で示す粒子は、左の電子顕微鏡像では粒径 50 nm 程度である。この大きさの粒子は光学顕微鏡の透過像では解像しえないが、落射像では LSPR による輝点としてその存在がはっきり検知できる。数個のまとまった現像銀の群は、例えば矢印 B で示す 3 個の現像銀粒子のように、その広がり具合から同一のハロゲン化銀粒子上に形成されたものと思われる。これを落射像でみた場合、LSPR による像は 1 個の輝点として見えている。これらの粒子の色は黄色、橙色、緑色と粒子ごとに異なる変化を示した。

この同じ場所を落射光学系に挿入した偏光フィルターの角度を 30° ずつ変えて撮った 6 枚の写真を Fig 5 の右に示す。右図中の両矢印は偏光の方向である。Fig. (f) の図が Fig. 4 (c) と同じものである。左に対比のために同じ場所の電子顕微鏡像を示す。矢印 B で示すような数個のまとまった現像銀の群は、LSPR による像では 1 個の輝点として見えているが、偏光の方向を回転させると右上にしっぽが出るような、

形状が変化する光り方をする。また色も黄色から橙色、緑色へと変化した。このような偏光角度による光り方の変化は Umemoto らの報告¹²⁾と一致する

矢印 C の先にある上下方向に細長い粒子も、偏光角度の変化により明るくなったり暗くなったりする偏光応答を示している。偏光角度と粒子の長軸が直交するとき強く緑色に輝き、平行するときは暗くなっている。ただ、その左隣の丸い粒子も同じ角度で明滅しており、単に形状の効果だけではないとも言える。矢印 D の先の 2 個の粒子の組は間隔が 300 nm ほどであり、やはり同一ハロゲン化銀粒子上に形成されたものであろう。1 個の楕円形粒子のように輝いており、2 つの粒子を結ぶ方向と偏光角度が直交するとき強く輝き、平行になるときは弱くなっている。ただ、右半分は明滅が強く、左半分は弱いので 2 つの粒子と認識できる。右の粒子は右下方向に細長く伸びていて完全な球形では無いため、偏光応答が強く出たと思われる。

光学顕微鏡では解像度以下の接近した複数の粒子は分離されず、1 個の点として認識される。Fig. 4 で単一の粒子からなり単一の輝点として観察された A と C の粒子について、それぞれ近接している粒子との間隔をとると、A 点：280, 300, 330, 420 nm, C 点：320 nm, 440 nm であり、複数の粒子が 1 つの輝点として観察された B と D の粒子については、B 点：100, 180, 190 nm, D 点：190 nm である。A 点のように約 280 nm 離れていれば、独立した輝点として認識された。これはほぼ光学系の解像度に近い値である。

このように LSPR 像でも細長い 1 つの輝点として観察された場合、単一の粒子であるか、2 個の粒子の合わさったものかは判然としない。しかし矢印 D の先の粒子のように偏光角度が変わるとこの輝点の左右の明るさが変わるので、異方性を持った 2 つの現像銀粒子の輝点が合わさった像であるこ

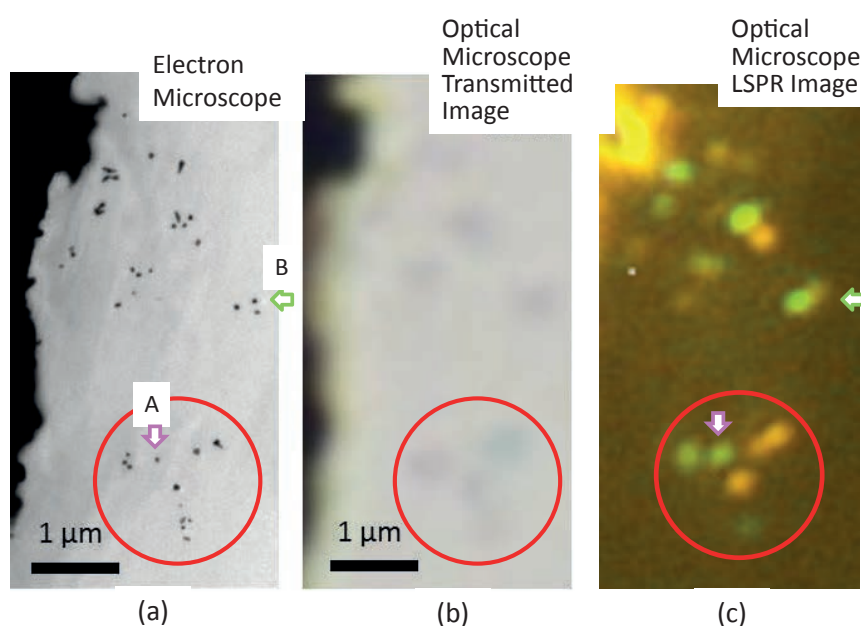


Fig. 4 Electron and optical micrographs of the same area on a grid with developed silver clusters after 20 min development. (a) : Electron micrograph, (b) : optical micrograph with transmitted-light image, (c) : Optical micrograph with LSPR image observed through a polarized filter. Clusters A and B are designated by the color of the arrows.

とがそこから見て取れる。Umemoto らが報告したように¹²⁾、偏光で観察することで1個の粒子か、接近した2個の粒子かを区別することが可能となる。

LSPR による観察では落射光学系を用いているため、基板も一般的な反射光を発する。反射光が強いと全体が光るため、LSPR による輝点はその中に埋没してしまう。反射光の強さは基板の屈折率と関係しており、原子核乾板の基板として用いられるガラス板、PET フィルム、TAC フィルムのうち、ガラス板は反射が少なく、良好な LSPR による輝点像が観察されたが、PET や TAC フィルムでは基板の反射が強く、観察が困難であった。ここで PET をベースとする乾板に高エネルギーのヘリウムイオンを照射し、現像して得られた飛跡を光学顕微鏡で観察した結果を Fig. 6 に示す。光源側とカメラ側それぞれに2枚の偏光フィルターとさらに観察域のみ照明する視野絞りを挿入している。上から透過像、偏光フィルターを挿入していない LSPR 像、視野絞りを入れた場合の LSPR 像、さらに2枚の偏光フィルターを直交するように入れた場合の LSPR 像である。直交する偏光フィルター2枚と視野絞りの挿入により LSPR による輝きも弱くなるが、それ以上に基板の反射が弱まるためコントラストが向上し、LSPR による輝点像が明瞭に識別できるようになった。

4. 考察

通常の透過像の光学顕微鏡観察では解像しないような 50 nm 程度の微小な現像銀粒子も、落射光により粒子が示す LSPR により存在が検知された。透過像では飛跡として認識できない小さな粒子の連なりからなる飛跡も、Fig. 3 の左図

に示すような明瞭な輝点の列として検出可能となり、この方法が微細な放射線飛跡の検出に有用であることを示す。近年飛跡検出の原子核乾板において、微細飛跡検出のために数 10 nm のハロゲン化銀粒子からなる超微粒子乳剤が用いられている¹⁶⁾。このとき現像銀粒子も小さくなるため、通常の光学顕微鏡観察では飛跡を認識できない恐れがある。実際に現像銀粒子が小さいと、Fig. 3 のように透過像ではほんやりした1つの大きな影としか見えない。一方、落射像では飛跡は複数の点の集まりとして個々に認識できており、LSPR が微細飛跡検出のための超解像顕微鏡法として利用できることを示している。

1個のハロゲン化銀粒子上に形成された複数の現像銀粒子のように、光学的解像度以下の近接した粒子群では大きな1個の輝点となってしまふ。ただ現像銀はフィラメント状になりやすく、形状異方性を持ち、偏光で観察するとこれらの粒子の輝き方が偏光角度に応じた強弱を示す。偏光角度を回転させると別々に光らせることができ、Fig. 5 の粒子 D のように近接して識別困難な現像銀粒子の集団においても、Umemoto らの報告¹²⁾にあるように、個々の粒子をさらに細かく区別して検出できる可能性がある。個々の粒子は球形から成長してフィラメント状になるが、このときにどのような LSPR や偏光応答の挙動を示すかの検証が必要である。また偏光を用いるにあたっては、粒子の形状をなるべくそろえる現像法も今後の課題である。現像速度が異なると、フィラメント状銀の伸び方が異なり、現像の開始が遅れたものは球形粒子のままとなる。フィラメントを形成しても現像銀粒子の形状や大きさのそろった粒子を形成する現像法の探索が必要である。

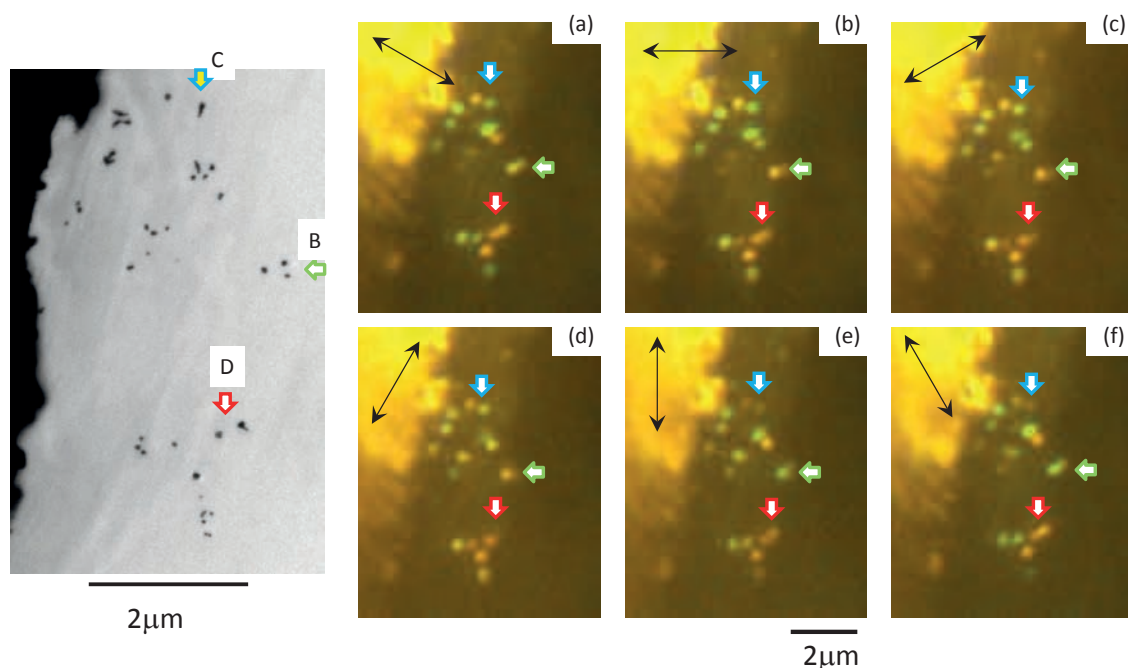


Fig. 5 Optical micrographs with LSPR image of developed silver clusters after 20 min development at the same area on a grid observed through a polarized filter are shown as six pictures on the right side. Polarized angle is represented as the arrows on the left-top side. The electron micrograph same as the one in Fig. 4 is also shown for the comparison on the left side. Clusters B, C and D are designated by the color of the arrows. Fig. (f) is the same picture in Fig. 4.

光学顕微鏡では色情報を含めた観察が可能である。現像銀粒子は透過像ではすべて黒色であるが、落射像では黄～橙～緑と異なる色変化を示した。また偏光で観察すると、同一粒子が偏光角度により、同様に黄～橙～緑の色変化を示した。銀の微粒子は LSPR により主に黄色を示すが、粒子のサイズや形状により変化する。ここで見られた色変化も、現像銀粒子のサイズや形状の違いによるものと思われ、逆にこの色の違いから粒子のサイズや形状の特性が得られる可能性がある。ただ、今回デジタルカメラで像を取得した場合、出力画像はカメラの現像処理の過程で修正を受けており、目視と写真像で異なる色を示すことがあった。色情報の利用には、直接ローデータの色情報を取り込むシステムが必要であり、そのような光学系と解析システムの構築は今後の課題である。また逆に上記のように形状を制御した現像銀粒子の観察結果を解析することで、偏光応答からフィラメント形状の情報を得ることも可能となる。

Fig. 6 に示すように LSPR による輝点の観察にあたっては、基板の反射の違いも影響を与える。2 枚の偏光板の使用など光学系の改良の余地も大きく、さらなる観察方法の検討が必要である。これらの改良を加えることで、微細飛跡を光学顕微鏡で観察するにあたっての有力な方法へと発展させることができるかと期待される。

結論

1. 同一の現像銀粒子を電子顕微鏡と光学顕微鏡で直接比較

することで、通常の光学顕微鏡では解像しえない 50 nm 程度の現像銀粒子も、落射光学系での LSPR による輝点として光学顕微鏡で検出できることが示された。微細な現像銀粒子からなる放射線飛跡も LSPR で観察することで検出可能となった。

2. 現像銀粒子は偏光で観察すると、Umemoto の報告¹²⁾と同じく偏光角度に応じた輝度の強弱を示した。フィラメント状など形状異方性のある粒子で顕著であった。現像条件の調整などにより形状を制御した現像銀粒子の形状を観察することで、偏光応答からフィラメント形状の情報が得られると考えられる。
3. 数 100 nm に近接して形成された複数の現像銀粒子は、LSPR 法では 1 個の輝点として観察されるが、偏光で観察することにより分離できる可能性があることが示された。
4. LSPR で観察される粒子は黄～橙～緑の色変化を示した。この色情報は現像銀粒子の特性を含むと考えられ、色情報の解析から飛跡の特性のさらなる情報が引き出せると期待される。
5. LSPR による観察法は光学顕微鏡の光学系の改良も加えることで、微細飛跡像を観察できる超解像顕微鏡法として有用である。

謝辞

本研究は放射線医学総合研究所の共同利用研究 15H212 により行われました。本研究は JSPS 科研費 26287037 と 15K13476 の助成を受けたものです。落射照明の光学系の組

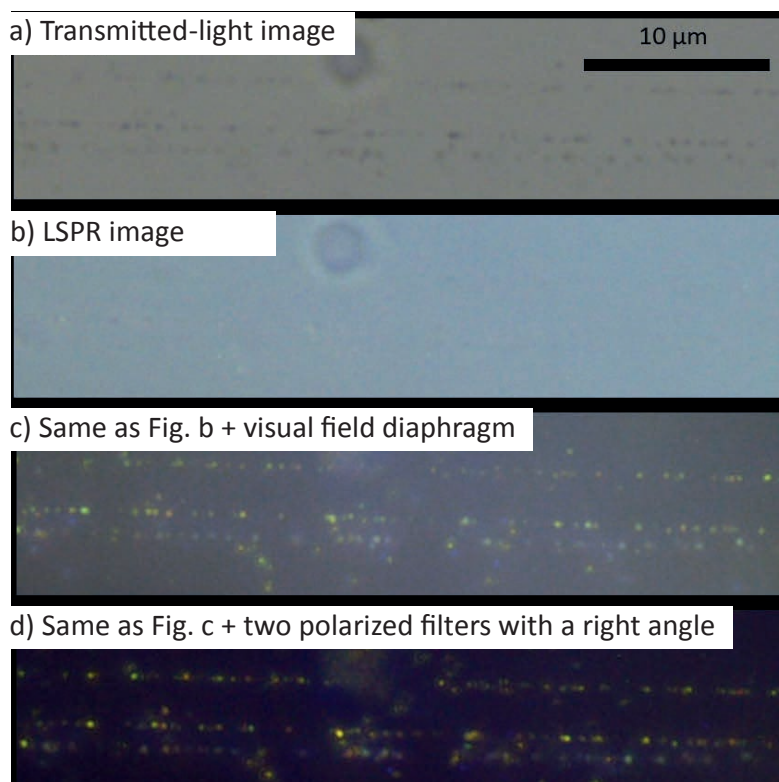


Fig. 6 Optical micrographs of radiation tracks by helium ions of 150 MeV/n recorded on nuclear emulsion plates with PET base. a: transmitted-light image, b: LSPR image, c: the same image as Fig. b with visual field diaphragm. D: the same image as Fig. c with two polarized filters on the light-source side and the camera side. Both are arranged to make a right angle.

立にあたっては、(株)ニコンインステックの刈込淳一氏のお世話になりました。ここに感謝の意を表します。

参 考 文 献

- 1) C.F.Powell, P.H.Fowler, and D.H.Perkins, "The Study of Elementary Particles by the Photographic Method", Pergamon Press, London, 1959.
- 2) 丹羽公雄, 日本写真学会誌, K.Niwa, J.Soc.Photogr.Sci.Tech.Jpn., **67**, 561 (2004).
- 3) 久保田敏弘, 日本写真学会誌, T.Kubota, J.Soc.Photogr.Sci.Tech.Jpn., **65**, 15 (2002).
- 4) 中野敏行, 吉本雅弘, 駒谷良輔, 日本写真学会誌, T.Nakano, M.Yoshimoto, R.Komatani, J.Soc.Photogr.Sci.Tech.Jpn., **79**, 54 (2016).
- 5) 小松啓, 応用物理, H.Komatsu, Applied Physics, **60**, 816 (1991).
- 6) 岡田康志, パリティ, Y.Okada, Parity, **28**, 25 (2013).
- 7) 加地範匡, 渡慶次学, 馬場嘉信, 現代化学, N.Kaji, M.Tokeiji, Y.Baba, Chemistry Today, 1月号, Jan., 50 (2013).
- 8) 藤田克昌, 生物物理, K.Fujita, Biological Physics, **50**, 174 (2010).
- 9) K.Kuge, R.Inoue, Y.Oishi, N.Yasuda, S.Kodaira, O.Sato, Jpn. J.Appl.Phys., **52**, 106402 (4) (2013).
- 10) 久下謙一, 水口剛太郎, 伊瀬谷夏輝, 宮川信一, 日本写真学会誌, K.Kuge, G.Mizuguchi, N.Iseya, S.Miyagawa, J.Soc.Photogr.Sci.Tech.Jpn., **78**, 169 (2015).
- 11) 梅本篤宏, 中竜大, 浅田貴志, 桂川貴義, 放射線, A.Umemoto, T.Naka, T.Asada, T.Katsuragawa, Ionizing Radiation., **40**, 225 (2015).
- 12) A.Umemoto, T.Naka, A.Alexandrov, M.Yoshimoto, Prog.Theor.Exp.Phys., **2019**, 063H02 (2019).
- 13) 久下謙一, 安達考洋, 富松秀崇, 日本写真学会誌, K.Kuge, T.Adachi, H.Tomimatsu, J.Soc.Photogr.Sci.Tech.Jpn., **81**, 41 (2018).
- 14) V.Buschmann, D.Schryvers, J.Van Landuyt, C.Van Roost, R.De Keyser, J.Imag.Sci.Tech., **40**, 189 (1996).
- 15) K.Kuge, H.Tomimatsu, F.Shiba, Bull.Soc.Photogr.Imag.Jpn. **26**, 23 (2016).
- 16) T.Asada, T.Naka, K.Kuwabara, M.Yoshimoto, Prog.Theor.Exp.Phys., **2017**, 063H01 (2017).