

京都大学	博士（工 学）	氏名	長田 直之
------	---------	----	-------

論文題目	Behavior and formation mechanism of radioactive aerosol in accelerator facilities (加速器施設において生成する放射性エアロゾルの生成機構と挙動)
------	---

(論文内容の要旨)

本論文は、放射線施設、特に加速器施設において生成する放射性エアロゾル粒子の生成機構に関してその粒径分布を測定し、系統的に検討を行った結果をまとめたものであって、6章から構成されている。

第1章は序論であり、放射性エアロゾル粒子には自然起源と人間活動起源のものがありそれらの種類と生成機構、人や環境に与える影響について説明している。また放射線によって誘起される化学反応の結果生成するエアロゾル粒子についての先行研究の結果を示している。ついで第2章以降の概要を示し、本論文でエアロゾル粒子の粒径分布に用いた測定法とその原理について記している。

第2章は加速器施設内で生成する放射性エアロゾル粒子の粒径分布測定について、適切な測定法を検討し開発したことを述べている。加速器由来放射性 $^{13}\text{N}$ エアロゾル粒子は、これまで放射性エアロゾル粒子粒径分布測定に広く用いられてきた拡散バッテリー法などにより粒径分布測定が試みられてきたが、正確な粒径分布は得られていなかった。本論文では従来法では測定が困難な原因を放射性エアロゾル粒子と同時に生成する放射性ガスによるためと明らかにし、その影響の程度と除去方法を検討している。また照射時間の経過による粒径分布の変化を捉えるために、少量の試料かつ短時間で測定が可能な Graded Screen Array 法を新たに適用し従来方法の約10分の1の時間で測定を行い、従来方法と同様の結果が得られることを示した。

第3章は電子線型加速器室内で、エアロゾルを含まない清浄空気を電子線照射し生成した放射性 $^{13}\text{N}$ エアロゾル粒子の粒径分布を、第2章で得られた改善された手法を用いて測定しその生成機構を検討した結果を示している。測定した放射性エアロゾル粒子とエアロゾル粒子全体の粒径分布の関係から、数十ナノメートル程度以下の粒径範囲では生成した粒子に放射性 $^{13}\text{N}$ を含む放射線化学反応生成物（主に硝酸と考えられる）が凝縮によって取り込まれ、放射性エアロゾル粒子となることを初めて示した。空気中にエアロゾル粒子が既に存在する場合は、既存のエアロゾル粒子表面に放射性核種が拡散運動によって付着し放射性エアロゾル粒子が生成する過程と考えられている。粒子生成の最初期にはイオン核生成により凝縮が起こり粒子を生成し、そのイオンの電荷は核反応の結果生成した放射性核種やそれらから放出される放射線由来であることが示された。また、そのエアロゾル粒子生成に重要な役割を果たすと考えられる

京都大学	博士（工 学）	氏名	長田 直之
<p>放射線化学反応によって生成する硝酸量を測定した。</p> <p>第4章は放射性エアロゾル粒子の粒径分布に深い関係を持つ非放射性エアロゾル粒子の粒径分布測定を行い、その生成機構を検討した。<sup>60</sup>Coガンマ線照射装置と陽子サイクロトロンにより空気を照射し、生成した粒径分布測定を行った。どちらの実験においても空気に付与するエネルギーと粒径には関係があり、付与エネルギーが大きいと粒径も大きくなった。それらの粒子の成長は短時間のうちには粒子同士の衝突ではなく、気相中の放射線化学反応生成物が粒子上に凝縮して成長することに支配されると示された。生成した粒子の安定度についても測定を行い照射空気中の水分が粒子の安定に関係することが示された。しかし水分の存在は粒子の安定に寄与するが、ある程度以上の水分はイオン核生成機構による粒子の生成を妨げるために照射して生成する個数濃度はむしろ減少することが示された。</p> <p>第5章は加速器で生成する放射性エアロゾル粒子の粒径分布の変化をモンテカルロシミュレーションによって模擬し、上記の測定結果とあわせて生成機構の検討を行い、また含まれる核種の半減期の粒径分布への影響についてもその結果を示している。放射性エアロゾル粒子の生成機構を粒子上への放射性核種の拡散運動による付着、放射性核種を含む放射線化学反応生成物の粒子への凝縮、放射性核種をイオン核とする粒子生成と3通り仮定し、それぞれのプロセス上で放射性エアロゾルとその他のエアロゾルについて粒子を成長させて粒径分布を計算し放射性核種の半減期との関係を求めている。拡散付着と凝縮を仮定した生成機構では、これまで知られているのと同様の粒径分布が見られ半減期の違いによる影響はなかった。放射性核種がイオン核となり粒子生成を起こすとした計算条件では半減期が長い核種を含む放射性エアロゾル粒子では大粒径の粒子が存在し、短半減期核種では小粒径の粒子のみが示された。短半減期核種では、粒子が成長する間に壊変して放射性エアロゾルでは無くなるためであると考えられる。この結果はフェルミ国立加速器研究所の120GeVシンクロトロンで初めて測定された多くの核種を含む加速器エアロゾルの測定結果と一致しており、その生成機構を説明できるとしている。</p> <p>第6章は結論であり、本論文で得られた内容を要約している。</p>			

## (論文審査の結果の要旨)

本論文では、高エネルギー放射線により空気中に生成する放射性エアロゾル粒子の生成機構について系統的に検討を行った。得られた成果は以下の通りである。

- (1) 電子線型加速器室内で照射により生成した放射性 $^{13}\text{N}$ エアロゾル粒子の粒径分布測定を行いその生成機構を検討した。放射性エアロゾル粒子と他に存在するエアロゾル粒子の粒径分布の関係から、数ナノから数十ナノメートル程度の微小放射性エアロゾル粒子は、生成した粒子に放射性 $^{13}\text{N}$ を含む化学種が凝縮により取り込まれて放射性エアロゾル粒子になることを明らかにした。数百ナノメートル程度の粒径の放射性エアロゾルでは、室内空気中の既存エアロゾル粒子に放射性核種が拡散運動により付着し放射性エアロゾル粒子を生成することを示した。
- (2) 加速器室内で同時に生成する放射性ガスが粒径分布測定に大きな影響を与えることを見だしその補正法を考案し、迅速測定に適した Graded Screen Array 法を改良し実際の加速器エアロゾルに適用した。
- (3) 陽子サイクロトロンや $^{60}\text{Co}$ ガンマ線照射施設を用いて照射により空気に付与されたエネルギーと生成した粒子の粒径との関係を測定し粒子の生成に必要なエネルギーと生成の閾値を得た。放射線化学反応生成物の分圧が粒子の成長速度と相関を持ち、生成物の凝縮により粒子が成長していることがわかった。

加速器室内で生成する放射性エアロゾルには粒径と含まれる核種の半減期とが相関を持つものがあることが測定により初めて示された。さらにシミュレーションによりその粒子生成機構は核反応で生成した原子核が持つ電荷によるイオン核生成であることが明らかになった。

本論文は、加速器施設において生成する放射性エアロゾル粒子の生成機構について重要な知見を得た物であり、学術上、実際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士(工学)の学位論文として価値あるものと認める。また、平成24年3月16日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行って、申請者が博士後期課程学位取得基準を満たしていることを確認し、合格と認めた。