

京都大学	博士（工学）	氏名	加藤 隆久
論文題目	Liquid Scintillation Analysis of the Main Environmental Radioisotopes in Air Using a Liquid Collector with Absorption Properties (吸収溶剤を用いた空気中主要環境放射能の液体シンチレーション分析)		
(論文内容の要旨)			
<p>肺がんによる炭鉱労働者の死亡原因ともなった空気中の放射能を測定し、人体の内部および外部放射線被ばくを評価することは、人体を守るための第一歩である。本論文は、ガス状物質である ^3H, ^{14}C, ^{222}Rn の各放射能を測定するための液体シンチレーション法を検討したものであり、以下の9章から構成される。</p>			
<p>第1章 液体吸着剤エチレングリコールを用いて、空気中のトリチウム汚染を測定するシンチレーション法について検討した。この方法では、大気中のトリチウムを吸着剤に吸着させ、これを液体シンチレータに混入し、液体シンチレーションカウンターで測定する。このとき、トリチウムの蓄積量はサンプリング期間と、トリチウムが均一に収着した吸着剤のサンプル量に比例した。液体シンチレーションカウンターを用いて、液体シンチレータ内の混合試料の体積を変えた場合の計数率の変化を調べ、最適な混合試料量を決定し、最大の感度を与える吸着剤を確定した。その結果、空気中のトリチウムの検出濃度が $3.7 \times 10^{-3} \text{ Bq/mL}$ ($10^{-7} \mu\text{Ci/mL}$) 未満に達することを明らかにした。</p>			
<p>第2章 液体の吸着吸収（収着）剤として不揮発性のメチルフェニルシリコンオイルを選択し、空気中のトリチウム及びC-14を含む化合物を収着し、これを揮発性有機溶媒を用いるシンチレータに溶解して液体シンチレーション計数器で測定することで、これらの空気中濃度を求めた。その結果、トリチウムは $5.14 \times 10^{-2} \text{ Bq/mL}$、C-14は $2.18 \times 10^{-2} \text{ Bq/mL}$ の濃度を測定することができた。また、メチルフェニルシリコンオイルでは、液体シンチレーション測定の際の障害となるクエンチング現象が観測されないことを明らかにした。</p>			
<p>第3章 液体シンチレーション溶液中の計数率とクエンチング剤濃度の関係を与える数式を導出した。本研究で求めた式は、Stern-Volmer式よりも広い範囲のクエンチング剤濃度に適用可能であった。また、この式を用いて実際のクエンチング補正量を推定した。</p>			
<p>第4章 放射性ガスの分析用にメチルフェニルシリコンオイルに直接、シンチレータであるPPO (1,5-diphenyloxazole)及びPOPOP (2,2'-phenylenebis(5-phenyloxazole))を混合してシンチレータカクテルを作り、これに、トリチウム、C-14及びCs-137を含む化合物を収着させ、液体シンチレーション計数器で測定した。放射性ガスを吸収するこのシンチレータカクテルは、空気中の放射性ガスのサンプリング剤および測定媒体の両方として機能することができる。従来より使用されてきた揮発性のトルエンシンチレータ及びジオキサンシンチレータを用いてβ、γ線を計測した場合と比較したところ、遜色ない計数が得られることを明らかにした。</p>			
<p>第5章 シリコンオイルを原料とする不揮発性液体シンチレータ吸着剤に大気中のトリチウム水蒸気を吸着させ、定量分析する方法を検討した。収着したトリチウム水蒸気からのβ線放出放射能 $3.7 \times 10^{-3} \text{ Bq/mL}$ ($10^{-7} \mu\text{Ci/mL}$) を、収着剤を兼ねたシンチレータ溶液で直接</p>			

京都大学	博士（工学）	氏名	加藤 隆久
<p>測定した。液体シンチレータ吸着剤に吸着された気化トリチウム水の量は、空気中のトリチウム水の蒸気分圧の変化に比例した。この関係は吸着等温線として表され、Langmuir 吸着等温線における極めて低分圧での式で表されることを示した。</p> <p>第 6 章 比放射能が高い ^{35}S-アミノ酸から発生するガス成分中のフラグメント分子の形態について検討した。β-エミッターで標識された分子の自己分解様式は、おおよそ有機質量分析法で加速電子によって衝撃を受けた有機化合物の断片化様式と類似していた。^{60}Co γ 線を照射した非標識アミノ酸の分解生成物との比較から、外部 γ 線照射による分解モードは、^{35}S 標識化合物の自己分解モードとは異なることを示した。</p> <p>第 7 章 空气中ラドンをメチルフェニルシリコンオイルのシンチレータ溶剤で吸着し、液体シンチレーション計数器で最初の 1 時間で測定出来る ^{214}Po の α 線の計数を、逐次壊変の方程式を使用して 4 時間後の計数値に変換してラドンの検量線を作成した。作成した検量線で室内の空气中ラドン濃度を求めたところ、市販のアルファガードイオンチェンバー計測器での測定濃度と良く一致することを示した。不揮発性液体シンチレーション吸収剤（NLSA）に吸収されたラドン量は、大気中のラドン濃度（誤差 $\pm 4\%$ 以内）に比例していた。大気中 500 Bq m^{-3} から 8000 Bq m^{-3} までの信頼性の高い定量的直線性を示す検量線は、実用的には最小二乗法を用いて 500 Bq m^{-3} 以下の濃度まで外挿することができると考えられる。また、使用済みシンチレータカクテル 100mL に活性炭粉末 3g を加え、3 日間攪拌後、ガラス繊維フィルターでろ過して、さらにシンチレータを追加することで、ラドンを除去し、シンチレータカクテルを何度も再利用できること、さらにこのラドン除去の前に、シンチレータカクテルを 60°C で 5 日以上過熱することで、トリチウム水と通常の水分も除去することができることを明らかにした。また、ラドンの吸収において、温度と湿度の変動が影響すること、NLSA の健康および環境への影響は小さいことを示した。</p> <p>第 8 章 大気中ラドンは、ほぼ 0 に近い濃度から 8000 Bq m^{-3} の濃度範囲で、ラドンと ^{218}Po の検量線に基づいて測定することができることを示した。このとき、大気試料はラドン測定前に樹脂製バッグに保管し、放射性壊変によるトロン濃度の低下と、ラドン濃度の均一化を図ることが有効であった。</p> <p>第 9 章 第 9 章は結論であり、研究の総括を行うとともに、今後の課題について言及した。</p>			

(論文審査の結果の要旨)

本論文は、人の放射線防護において必要となる空気中のトリチウムやラドンなど、主要な放射性核種濃度を、サンプリング中に空気を汚染しない不揮発性の液体捕集剤を用いて測定する方法について検討したものである。本論文の学術的意義は、以下の通りである。

- 1) 液体の吸着吸収（収着）剤として不揮発性のメチルフェニルシリコンオイルを選択し、空気中のトリチウム及びC-14を含む化合物を収着し、これを揮発性有機溶媒を用いるシンチレータに溶解して液体シンチレーション計数器で測定することで、これらの空気中濃度を求めた。その結果、トリチウムは 5.14×10^{-2} Bq/mL、C-14は 2.18×10^{-2} Bq/mLの濃度を測定することができた。また、メチルフェニルシリコンオイルでは、液体シンチレーション測定の際の障害となるクエンチング現象が観測されないことを明らかにした。
- 2) メチルフェニルシリコンオイルに直接、シンチレータであるPPO (1,5- diphenyloxazole)及びPOPOP(2,2'-phenylenebis(5-phenyloxazole))を混合してシンチレータカクテルを作り、これに、トリチウム、C-14及びCs-137を含む化合物を収着させ、液体シンチレーション計数器で測定した。従来より使用されてきた揮発性のトルエンシンチレータ及びジオキサンシンチレータを用いて β 、 γ 線を計測した場合と比較したところ、遜色ない計数が得られることを明らかにした。
- 3) 空気中ラドンをメチルフェニルシリコンオイルのシンチレータカクテルで収着し、液体シンチレーション計数器で最初の1時間で測定出来る ^{214}Po の α 線の計数を、逐次壊変の方程式を使用して4時間後の計数値に変換してラドンの検量線を作成した。作成した検量線で室内の空気中ラドン濃度を求めたところ、市販のアルファガードイオンチェンバー計測器での測定濃度と良く一致することを明らかにした。また、使用済みシンチレータカクテル100mLに活性炭粉末3gを加え、3日間攪拌後、ガラス繊維フィルターでろ過して、さらにシンチレータを追加することで、ラドンを除去し、シンチレータカクテルを何度も再利用できること、さらにこのラドン除去の前に、シンチレータカクテルを60°Cで5日以上過熱することで、トリチウム水と通常的水分も除去できることを明らかにした。

以上のように、本論文は空気中主要放射性核種の濃度を不揮発性の液体収着剤とシンチレーション検出器を用いて測定する方法の実用性を示したものであり、人の空気中放射性核種からの被ばく管理手法を確立するために大きく貢献するものであって、学術上、實際上寄与するところが大きい。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、令和5年1月25日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。