

氏名(本籍)	きむ	ちやん	きゆ	奎(韓国)
学位の種類	理学博士			
学位記番号	博甲第741号			
学位授与年月日	平成2年3月23日			
学位授与の要件	学位規則第5条第1項該当			
審査研究科	化学研究科			
学位論文題目	Radioanalytical and environmental studies on long-lived radionuclides. (長半減期放射性核種の放射化学分析および環境論的研究)			
主査	筑波大学教授	理学博士	河	寛 拓 治
副査	筑波大学教授	理学博士	日	高 人 才
副査	筑波大学教授	理学博士	菊	池 修
副査	筑波大学教授	工学博士	古	川 尚 道

### 論 文 の 要 旨

環境中には核実験による人工放射性核種が広範囲に分布している。さらに、近年原子力発電や核燃料再処理、放射性廃棄物の処理に伴い、超ウラン元素その他の長半減期放射性核種の環境中への放出が増大している。このため、環境におけるこれらの放射性核種の分布、蓄積の実態ならびに挙動に関する研究は、環境保全上重要な早急に解明すべき問題である。本研究はこのような見地から、ネプツニウム、プルトニウム、テクネチウムなどの長半減期放射性核種の新しい定量法を開発し、土壌や堆積物中におけるこれらの核種の分布、挙動などを明らかにすることを目的として行ったものである。

本論文は7章より成る。第1章では環境試料中の超微量の $^{237}\text{Np}$ の定量法として、放射化分析法を、また第2章では誘導結合プラズマ質量分析法(ICP-MS)による新しい分析方法を検討、開発し、フォールアウトの影響が大きい土壌や海底土の試料の分析を行った結果について述べている。これらの両方法と従来の $\alpha$ 線スペクトロメトリーによる結果とは、たがいによく一致を示すことから分析法の実用性が確かめられた。とくにICP-MSの検出限界は0.02mBqであり、放射化分析の0.2mBqと比較して10倍も高感度である。その結果従来法では検出が困難であった $^{237}\text{Np}$ の定量が容易となった。また、分析操作も迅速簡便であるので、 $^{237}\text{Np}$ の定量だけでなく、他の長半減期核種の定量にも有効であることが示唆されている。第3章では環境試料中の $^{99}\text{Tc}$ の定量へのICP-MSの応用について論じている。定量のさい $^{99}\text{Ru}$ が妨害するが、シクロヘキサノンによる $^{99}\text{Ru}$ の抽出によりその影響を完全に除いている。土壌試料の分析結果は、さきに筆者らが開発した液体シンチレーション法による結果とよい一致を示している。第4章ではICP-MSとFission track法によるプルトニウ

ムの同位体比 ( $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ ) の測定について論じている。従来の  $\alpha$  線スペクトロメトリーでは、 $^{239}\text{Pu}$  と  $^{240}\text{Pu}$  の  $\alpha$  線エネルギーが接近しているため、その同位体比の測定は困難であったが、本研究により、両核種の分別定量が可能となり、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  比について、新しい重要な情報が容易に得られるようになった。第5章では $^{99}\text{Tc}$ 、 $^{232}\text{Th}$ 、 $^{238}\text{U}$ 、 $^{237}\text{Np}$ 、 $^{239}\text{Pu}$  について、ICP-MSのイオン検出効率と検出限界について論じている。検出限界は約 $0.4\text{pg}/\text{ml}$ で、放射化分析法に比して約 $1/10$ 低い値を示し、ICP-MSがこれらの長半減期放射性核種の定量に非常に有効であることを実証している。第6章ではICP-MSを用いて、土壌中の長半減期核種の深度分布を深さ $30\text{cm}$ まで、 $5\text{cm}$ ごとに測定した結果について述べている。 $^{99}\text{Tc}$ 、 $^{237}\text{Np}$ 、 $^{239}\text{Pu}$ 、 $^{241}\text{Am}$ はいずれも表層 $10\text{cm}$ までに全放射能の $90\%$ が吸着保持されていることを明らかにした。第7章では実際のフィールド実験への適用の例として、イギリスのSellafield核燃料再処理施設のあるIrish Seaの海岸および河口堆積物中の $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{237}\text{Np}$ 、 $^{239}\text{Pu}$ 、 $^{240}\text{Pu}$ ならびに $^{241}\text{Am}$ を定量し、環境科学的な考察を行っている。核燃料再処理施設から遠くなるほど放射性核種濃度は指数関数的に減少することやCsはPuやNp、Amなどの超ウラン元素に比べて、海水中で拡散しやすいこと、さらに $^{241}\text{Am}/^{239}\text{Pu}$ 、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ の同位体比がフォールアウトの値と違うことなど、多くの有益な知見を得ている。

以上のように、ICP-MSが超低レベルの長半減期放射性核種の定量に、とくに有効な手段であることが実証された。

## 審 査 の 要 旨

環境における $^{237}\text{Np}$ 、 $^{99}\text{Tc}$ などの長半減期放射性核種は、存在量が非常に少なく、直接放射能を測定する従来法ではほとんど検出が不可能であった。著者はその定量に放射化分析法、ICP-MSを適用し、従来法に比して、極めて高い感度で検出、定量することに成功した。とくにICP-MSによる $^{237}\text{Np}$ 、 $^{99}\text{Tc}$ などの定量は本研究が世界でも最初であり、分析化学的に非常に価値が高い。またこの方法の有用性を実際のフィールド実験について実証したことは、原子力環境保全の見地から重要であり、また環境科学に貢献するところが大きい。独創性、実用性に富むすぐれた論文として、高く評価される。

よって、著者は理学博士の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。