

ウ ラ ン 分 析 法

平成14年改訂

文 部 科 学 省

科学技術・学術政策局

原子力安全課防災環境対策室

目 次

第1章 序 論.....	1
第2章 試料前処理法.....	6
2.1 水試料（海水、陸水）.....	6
2.2 土試料（土壌、海底土）.....	6
2.3 生物試料（海産生物、農産物）.....	7
2.4 大気浮遊じん.....	8
第3章 分離・精製法.....	10
3.1 キレート樹脂法.....	10
3.2 T B P抽出法.....	12
3.3 キレート樹脂・T B P抽出法.....	14
3.4 水酸化鉄(III)共沈・T B P抽出法.....	14
3.5 イオン交換法.....	15
第4章 測定法.....	19
4.1 吸光光度法.....	19
4.2 蛍光光度法.....	22
4.3 α 線スペクトロメトリー.....	26
第5章 I C P質量分析法.....	41
5.1 I C P質量分析装置.....	41
5.2 測定試料の調製.....	42
5.3 測定.....	46
5.4 計算.....	48

第1章 序論

本マニュアルは、核燃料製造工場、原子力発電所、核燃料再処理工場等の施設周辺における環境モニタリングのためのウラン分析法について定めたもので、昭和57年に制定されたウラン分析法マニュアルの改訂版である。なお、本マニュアルについては、特定物質の規制等によるオゾン層の保護に関する法律第3条第1項の規定に基づく同項第1号から第3号に掲げる事項を定める告示（昭和64年1月4日 環境庁・通商産業省告示第1号）を改訂する告示（平成5年9月22日 環境庁・通商産業省告示第1号）により、四塩化炭素等オゾン層を破壊する物質の生産量及び消費量の基準限度が改められたことを受け、平成8年に四塩化炭素の代替溶媒としてキシレン等を採用するため一部改訂を行った。

今回の改訂にあたっては、昭和57年度のマニュアルに記載されているオキシシン抽出法、T B P・オキシシン抽出法及び全 α 計測法はモニタリング実施機関で現在採用されていないことから、これらの方法を削除し、最近使用されているイオン交換法、水酸化鉄(III)共沈法及びI C P質量分析法を新たに採用した。

本マニュアルでは水試料（海水、陸水）、土試料（海底土、土壌）、生物試料（海産生物、農作物）及び大気浮遊じんを対象とした。それら試料の平均的ウラン含有量を表1に示す。

表1 環境試料の平均的ウラン含有量

水試料		土試料	生物試料		大気浮遊じん
海水	陸水	土壌、海底土	海産生物	農作物	
3 $\mu\text{g/L}$	$10^{-2} \sim 10^{-1}$ $\mu\text{g/L}$	1 $\mu\text{g/g}$ 乾土	10~20 $\mu\text{g/kg}$ 生	10 $\mu\text{g/kg}$ 生	$10^{-5} \sim 10^{-4}$ $\mu\text{g/m}^3$ (空気)

分析方法は目的や保有機器等により、試料前処理法、分離・精製法及び測定法を適当に組み合わせれば良いようにした。本マニュアルでとりあげたそれぞれの方法の一般的な組み合わせを下記に示す。また、それらの分析法と分析目標レベルを表2に示す。

本マニュアルは環境モニタリングを目的とするため、土試料については粒子表面の硝酸可溶性ウランを対象とした。従って、全溶解法によるウラン分析結果と必ずしも一致しない。また、ウランを同位体別に定量する場合は、 α 線スペクトロメトリーあるいはICP質量分析法により行う。

1) 水試料（海水、陸水）

- ①キレート樹脂法－吸光光度法（海水のみ）
- ②キレート樹脂法－蛍光光度法（陸水のみ）
- ③キレート樹脂・TBP抽出法－ α 線スペクトロメトリー
- ④水酸化鉄(Ⅲ)共沈・TBP抽出法－ α 線スペクトロメトリー
- ⑤ICP質量分析法

2) 土試料

- ①TBP抽出法－吸光光度法
- ②TBP抽出法－蛍光光度法
- ③TBP抽出法－ α 線スペクトロメトリー
- ④イオン交換法－ α 線スペクトロメトリー
- ⑤ICP質量分析法

3) 生物試料（海産生物、農作物）

- ①TBP抽出法－蛍光光度法
- ②TBP抽出法－ α 線スペクトロメトリー
- ③ICP質量分析法

4) 大気浮遊じん

- ①TBP抽出法－蛍光光度法
- ②TBP抽出法－ α 線スペクトロメトリー
- ③ICP質量分析法

表 2 分析法と分析目標レベル

水試料（海水、陸水）					
前処理	塩酸添加				
分離	キレート樹脂法		キレート樹脂・TBP 抽出法 あるいは水酸化鉄(III)共沈・TBP 抽出法	—————	
測定	吸光光度法 (海水)	蛍光光度法 (陸水)	α線スペクトロメリー	ICP 質量分析法	
分析供試量	2L	2L	2L	2ml	50ml
分析目標レベル* ¹ (μg/g)	1	0.1	0.04	0.04	0.002

土試料（土壌、海底土）				
前処理	硝酸浸出			
分離	TBP抽出法		イオン交換法	—————
測定	吸光光度法	蛍光光度法	α線スペクトロメリー	ICP 質量分析法
分析供試量	5g			
分析目標レベル* ¹ (μg/g)	0.4	0.04	0.02	0.008

生物試料（海産生物、農作物）			
前処理	硝酸浸出		
分離	TBP抽出法		—————
測定	蛍光光度法	α線スペクトロメリー	ICP 質量分析法
分析供試量	500g 生 (5g 灰* ²)		
分析目標レベル* ¹ (μg/kg 生)	0.4	0.2	0.008

	大気浮遊じん		
前処理	硝酸浸出		
分離	T B P 抽出法		——
測定	蛍光光度法	α線スペクトロメリー	ICP 質量分析法
分析供試量 (空気)	1000m ³		
分析目標レベル* ¹ (μg/m ³)	2×10 ⁻⁴	8×10 ⁻⁵	8×10 ⁻⁸

*¹

分析目標レベルは以下の条件で計算した。

- ① 吸光光度法：直接法によるブランク試料の吸光度の標準偏差の3倍
- ② 蛍光光度法：空試験のブランク試料の標準偏差の3倍
- ③ α線スペクトロメリー：回収率80%、測定時間20時間、計数効率20%、バックグラウンド計数率を1カウント/20時間とした場合の正味計数率に伴う計数誤差の3倍
- ④ ICP質量分析法：測定時間10秒、バックグラウンド計数率5cpsとした場合のバックグラウンド計数の標準偏差の3倍

*²

灰化率を1%とした場合。

本マニュアルの構成を以下に示す。

第2章から第4章は、水試料、土試料、生物試料及び大気浮遊じんについて、それぞれ試料前処理法、分離・精製法、測定法について記載した。

なお、環境試料の採取については、別に発行されている「環境試料採取法」(放射能測定法シリーズ16 昭和58年)によるものとする。

第5章は、第2章から第4章とはまったく独立に、ICP質量分析法を記載した。

なお、ICP質量分析法は検出感度が高く、他の定量法による場合より分析供試量を少なくすることができる。しかし、土試料、生物試料、大気浮遊じんの場合には供試量と硝酸の量がウランの溶出量に影響するため、他の分析法と同じ供試量とした。

第6章は、第2章から第5章で用いる試薬の調製法を記載した。

また、解説には本マニュアルの作成にあたっての検討結果を、付録にはウランの使用に関する法的手続きなど参考となる事項を記載した。

第 2 章 試料前処理法

2.1 水試料（海水・陸水）

この項において、次の理化学器材及び試薬が必要である。

・理化学器材

ろ紙 (No. 5C) 110mm φ、ブフナー漏斗、耐圧びん、アスピレーター、pH 試験紙、2L メスシリンダー、3L ビーカー

・試薬

塩酸〔または硝酸〕、 ^{232}U 標準溶液 (0.02Bq/ml : α 線スペクトロメトリーを行う際の回収率補正用トレーサー)^{*1}

①前処理操作

採取した試料に浮遊物が多い場合は、ろ過（ろ紙 (No. 5C) 110mm φ、ブフナー漏斗及び耐圧びん使用）する。試料に塩酸〔または硝酸〕を加えて pH を約 1 とする^{*2}。分析用試料として 2L を 3L ビーカーに分取する。ウランの定量を α 線スペクトロメトリーにより行う場合には、 ^{232}U 標準溶液 (0.02Bq/ml) 2ml を加え、よくかきまぜる。以下、第 3 章「分離・精製法」に従い分析を行う。

2.2 土試料（土壌、海底土）

この項において、次の理化学器材及び試薬が必要である。

・理化学器材

乾燥器、天秤、磁製るつぼ、電気炉、200ml ビーカー、200ml ビーカー用時計皿、ホットプレート、47mm φメンブランフィルター (0.45 μm)、47mm φガラス繊維ろ紙 (GA100 など)、分離型フィルターホルダー、耐圧びん、アスピレーター

*1 ウランが多量に含まれる試料を分析する場合には、 α 線スペクトロメトリーにおいて試料のウランの α 線ピーク面積と同程度の面積が得られるように ^{232}U を添加する。

*2 この時の添加量は、通常 1L につき約 5ml である。

・ 試薬

硝酸、硝酸(3+11)、²³²U標準溶液(0.02Bq/ml:α線スペクトロメトリーを行う際の回収率補正用トレーサー)^{*3}

①前処理操作

土試料を105℃に調節した乾燥器に入れ、十分に乾燥する^{*4}。5g程度を正確にはかりとり、磁製ろつぼに入れ、500℃に調節した電気炉で3~4時間加熱して有機物を分解する。放冷後、200mlビーカーに移し、硝酸30mlを加える。ウランの定量をα線スペクトロメトリーにより行う場合には、²³²U標準溶液(0.02Bq/ml)2mlを加える。時計皿でおおい、ホットプレート上で30分間煮沸する。放冷後、温かいうちに吸引ろ過(47mmφメンブランフィルターとその上に47mmφガラス繊維ろ紙を重ねる。分離型フィルターホルダー及び耐圧びん使用)する。残留物を温硝酸(3+11)30mlで洗浄する。ろ液及び洗液を200mlビーカーに移す。第3章「分離・精製法」以下に従い分析を行う。

2.3 生物試料(海産生物、農産物)

この項において、次の理化学器材及び試薬が必要である。

・ 理化学器材

磁製皿、乾燥器、電気炉、天秤、乳鉢、乳棒、200mlビーカー、200mlビーカー用時計皿、ホットプレート、47mmφメンブランフィルター(0.45μm)、分離型フィルターホルダー、耐圧びん、アスピレーター

・ 試薬

硝酸、硝酸(3+11)、過酸化水素水、²³²U標準溶液(0.02Bq/ml:α線スペクトロメトリーを行う際の回収率補正用トレーサー)^{*3}

*3 ウランが多量に含まれる試料を分析する場合には、α線スペクトロメトリーにおいて試料のウランのα線ピーク面積と同程度の面積が得られるように²³²Uを添加する。

*4 乾燥時に試料が塊状になった場合は粉砕する。

①前処理操作

500 g 程度の生物試料を 105°C で乾燥後、電気炉に移し 500°C で灰化する^{*5}。放冷後、灰の重量をはかり灰分率を求める。灰を乳鉢中ですりつぶし、よく混合する。灰 5 g 程度を正確にはかりとり、200ml ビーカーに移し、硝酸 30ml、過酸化水素水 1ml を加える。ウランの定量を α 線スペクトロメトリーにより行う場合には、²³²U 標準溶液 (0.02Bq/ml) 2ml を加える。時計皿でおおい、ホットプレート上で蒸発乾固する。灰の色が白くなるまで、硝酸 30ml、過酸化水素水 1ml を加え蒸発乾固の操作を繰り返す^{*6}。乾固物に硝酸(3+11)30ml を加え、ホットプレート上で加熱、溶解する。放冷後、吸引ろ過(47mm ϕ メンブランフィルター、分離型フィルターホルダー及び耐圧びん使用)する。残留物を温硝酸(3+11)30ml で洗浄する。ろ液及び洗液を 200ml ビーカーに移す。以下、第3章「分離・精製法」に従い分析を行う。

2.4 大気浮遊じん

この項において、次の理化学器材及び試薬が必要である。

・理化学器材

集じん器、セルロース繊維とガラス繊維からなるろ紙(アドバンテック HE-40T 相当品)またはガラス繊維ろ紙(アドバンテック GB-100R 相当品)、磁製皿、電気炉、200ml ビーカー、200ml ビーカー用時計皿、ホットプレート、ろ紙(No. 5B) 45mm ϕ 、分離型フィルターホルダー、耐圧びん、アスピレーター

・試薬

硝酸、硝酸(3+11)、²³²U 標準溶液 (0.02Bq/ml: α 線スペクトロメトリーを行う際の回収率補正用トレーサー)^{*7}

*5 灰化に要する時間は試料によって異なるが、おおよそ 24 時間である。

*6 2 回程度で灰の色が白くなる。米の場合には紫色になることがある。

*7 ウランが多量に含まれる試料を分析する場合には、 α 線スペクトロメトリーにおいて試料のウランの α 線ピーク面積と同程度の面積が得られるように²³²U を添加する。

①前処理操作

- (1) 大気を 1000m^3 以上吸引し、大気中の浮遊じんをろ紙^{*8} に捕集する。捕集した浮遊じん^{*9} はろ紙ごと電気炉に入れ、 500°C で灰化する。
- (2) 灰化した試料を 200ml ビーカーに移し、硝酸 30ml を加える。ウランの定量を α 線スペクトロメトリーにより行う場合には、 ^{232}U 標準溶液 (0.02Bq/ml) 2ml を加える。時計皿でおおい、ホットプレート上で 30 分間煮沸する。
- (3) この溶液を吸引ろ過 (ろ紙 (No. 5B) $45\text{mm}\phi$ 、分離型フィルターホルダー及び耐圧びん使用) する。残留物を温硝酸 ($3+11$) 30ml で洗浄する。ろ液及び洗液を 200ml ビーカーに移す。以下、第 3 章「分離・精製法」に従い分析を行う。

*⁸ ろ紙としては、セルロース繊維とガラス繊維からなるろ紙 (アドバンテック HE-40T 相当品)、ガラス繊維ろ紙 (アドバンテック GB-100R 相当品) 等がある。これらのろ紙のなかにはウランを $0.5\mu\text{g/g}$ (ろ紙 1 枚分がおおよそ 1g) 程度含むものもあり、そのようなろ紙を用いた場合には同じ製造番号のろ紙を分析して、ブランク値として差し引く必要がある。

*⁹ 土壌中のウラン濃度は一般に大気浮遊じんに比して高いので、砂じん等が舞い上っている場所では、高いウラン濃度を示すことがある。

第3章 分離・精製法

3.1 キレート樹脂法

本法は、水試料に含まれるウランの分離・精製に適用する。第2章「試料前処理法」を行った後、試料水中のウランを、トランス-シクロヘキサンジアミン四酢酸（以下、CyDTAと略す。）の共存のもと、キレート樹脂に捕集する。さらに、炭酸アンモニウム溶液で溶離する。溶離液を蒸発乾固し、ウランの定量に供する。測定は吸光光度法あるいは蛍光光度法による。

なお、第4章「測定法」で吸光光度法を選択する時は、直接法の場合にはウラン標準溶液からウラン0~20 μ g、還元法の場合には0~10 μ gを段階的に取り、分析試料と同様に以下の操作を行う。また、蛍光光度法を選択する時は、ウラン標準溶液からウラン0~2 μ gを段階的に取り、分析試料と同様に以下の操作を行う。

この項において、次の理化学器材及び試薬が必要である。

・理化学器材

砂浴、3L ビーカー用時計皿、かくはん機、キレート樹脂(Chelex-100 相当品)、pH メーター、ろ紙(No. 5B)45mm ϕ 、分離型フィルターホルダー、耐圧びん、アスピレーター、100ml ビーカー、ホットプレート、ガラス漏斗

・試薬

塩酸、CyDTA 溶液(5w/v%)、アンモニア水、炭酸アンモニウム溶液(3w/v%)、硝酸、過塩素酸、ウラン標準溶液(1 μ g/ml または 10 μ g/ml)

①分析操作

(1) 第2章「試料前処理法」より得られた試料2Lに塩酸20mlを加え、砂浴上で10分間煮沸し、溶存している二酸化炭素を追い出す。

(2) 時計皿をして放冷後、かくはん機でかくはんしながらCyDTA溶液(5w/v%)2mlとキレート樹脂5g(みかけの容積はおよそ8ml)を加え、アンモニア水を滴下し、pHメーターを用いてpHを4に調節する*¹。

(3) 約2時間静かにかきまぜる*²。樹脂の沈降を待ち、傾斜法で上澄み液を

捨て、吸引ろ過（ろ紙(No. 5B)45mmφ、分離型フィルターホルダー及び耐圧びん使用）する。ビーカーに残った樹脂は 20ml ずつの水（一旦煮沸して二酸化炭素を除去したもの）で 3 回洗浄しながらフィルターホルダーに移す。ろ液及び洗液は捨てる。

(4)樹脂を 100ml ビーカーに移し、炭酸アンモニウム溶液(3w/v%)40ml を加え、時々かきまぜながら 30 分間溶出した後、ろ過（ろ紙(No. 5B)45mmφ、分離型フィルターホルダー及び耐圧びん使用）する。ろ液は 100ml ビーカーに受ける。溶出に使用したビーカー及び樹脂を少量の炭酸アンモニウム溶液(3w/v%)で洗浄し、洗液はろ液に合わせる。

(5)溶液をホットプレート上で蒸発乾固する。放冷後、硝酸 3ml 及び過塩素酸 2ml を加え、白煙が生じなくなるまでホットプレート上で蒸発乾固する。この操作を更に 1 回繰り返す。以下、第 4 章「測定法」4.1「吸光光度法」あるいは、4.2「蛍光光度法」に従い分析を行う。

*¹ ウランの捕集は pH3~5 で完全であるが、pH が 5 を超えると二酸化炭素を吸収しやすくなり、回収率が急激に低下するので注意する必要がある。

*² 激しくかきまぜると空気中の二酸化炭素を吸収する。また長時間かきまぜると二酸化炭素の吸収により回収率が低下する。ウランの捕集は 1~2 時間のかきまぜで十分である。

3.2 T B P 抽出法

本法は、土試料、生物試料、大気浮遊じんに含まれるウランの分離・精製に適用する。

第2章「試料前処理法」を行った後、試料溶液を蒸発乾固して硝酸(3+11)に溶解し、リン酸三ブチル(以下、T B Pと略す。)をキシレンで希釈した溶液を用いて、ウランを抽出する。抽出されたウランを含む有機相を塩酸(1+1)で洗浄した後、塩酸(1+11)で水相に逆抽出し、蒸発乾固後ウランの定量に供する。以下、第4章「測定法」に従い分析を行う。

なお、第4章「測定法」で吸光光度法を選択する時は、直接法の場合にはウラン標準溶液からウラン0~20 μ g、還元法の場合には0~10 μ gを段階的に取り、分析試料と同様に以下の操作を行う。また、蛍光光度法を選択する時は、ウラン標準溶液からウラン0~2 μ gを段階的に取り、分析試料と同様に以下の操作を行う。

この項において、次の理化学器材及び試薬が必要である。

・理化学器材

ホットプレート、100ml分液漏斗、100ml分液漏斗用振とう機、
50mlビーカー

・試薬

硝酸、硝酸(3+11)、硝酸ナトリウム溶液(50w/v%)、
硝酸アルミニウム溶液(50w/v%)、T B P(10v/v%)ーキシレン*³溶液、
塩酸(1+1)、塩酸(1+11)、過塩素酸、
ウラン標準溶液(1 μ g/mlまたは10 μ g/ml)

①分析操作

(1)土試料、生物試料、大気浮遊じんについて、第2章「試料前処理法」により得られた硝酸溶液を、ホットプレート上で蒸発乾固する。乾固物に硝酸(3+11)30mlを加えて加熱、溶解し、放冷後、100ml分液漏斗に移す。また、200mlビーカーは硝酸(3+11)5mlずつで2回洗浄し、洗液は先の分液漏斗に合わせる。

*³ キシレンの他、トルエン及びシクロヘキサンも使用できる(解説1参照)。

- (2)分液漏斗に硝酸ナトリウム溶液(50w/v%)15ml、硝酸アルミニウム溶液(50w/v%)5ml、T B P (10v/v%)ーキシレン溶液 10ml を加え、振とう機を用いて5分間ふりまぜウランを抽出する*⁴。
- (3)水相を新たな 100ml 分液漏斗に移し、T B P (10v/v%)ーキシレン溶液 10ml を加え、5分間ふりまぜる。水相は捨てる。有機相は操作(2)の有機相に合わせる。
- (4)有機相に硝酸ナトリウム溶液(50w/v%)20ml を加え、振とう機を用いて5分間ふりまぜる。水相は捨てる。
- (5)有機相に塩酸(1+1)30ml を加え、振とう機を用いて15分間ふりまぜる*⁵。水相は捨てる。
- (6)有機相に塩酸(1+11)10ml を加え、振とう機を用いて5分間ふりまぜてウランを水相に逆抽出し、水相を50ml ビーカーに移す。この逆抽出操作をあと2回繰り返す、水相は先の50ml ビーカーに合わせる。
- (7)ホットプレート上で、蒸発乾固した後、ビーカーの内壁を洗いながら硝酸3ml と過塩素酸1ml を加えて残留物を溶解し、蒸発乾固する。再度、残留物に硝酸3ml と過塩素酸1ml を加え、蒸発乾固する。以下、第4章「測定法」に従い分析を行う。

*⁴ 硝酸酸性溶液からウランをT B P で抽出することにより、アルカリ金属、アルカリ土類金属、鉄等から分離できる。

*⁵ 塩酸(1+1)で洗浄することによりウランと共に抽出されたトリウム、希土類元素等の妨害元素が除去できる。

3.3 キレート樹脂・TBP抽出法

本法は、水試料に含まれるウランの測定法として α 線スペクトロメトリーを選択した場合に、ウランの分離・精製法として適用する。分離・精製法としては、3.1「キレート樹脂法」①分析操作(1)～(5)の蒸発乾固操作までを行い、以下3.2「TBP抽出法」①分析操作(1)の硝酸(3+11)で乾固物を溶解する操作から行う。

3.4 水酸化鉄(Ⅲ)共沈・TBP抽出法

本法は、水試料に含まれるウランの測定法として α 線スペクトロメトリーを選択した場合に、ウランの分離・精製法として適用する。分離・精製法としては、以下の水酸化鉄(Ⅲ)共沈操作を行い、引き続き、3.2「TBP抽出法」①分析操作(2)以下を行う。

この項の水酸化鉄(Ⅲ)共沈操作において、次の理化学器材及び試薬が必要である。

・理化学器材

砂浴、pH試験紙、3Lビーカー用時計皿、遠沈管、遠心分離器、薬さじ、200mlビーカー、ホットプレート、47mm ϕ メンブランフィルター(0.45 μ m)、分離型フィルターホルダー、耐圧びん、アスピレーター、100mlビーカー、100ml分液漏斗

・試薬

硝酸、硝酸(1+1)、硝酸(3+11)、鉄(Ⅲ)担体溶液(50 mg Fe³⁺/ml)、アンモニア水(二酸化炭素を含まないもの)*⁶、アンモニア水(1+100)(二酸化炭素を含まないもの)

*⁶ 試薬びんの封を切ってから時間が経過したアンモニア水は炭酸イオンを含んでおり、これがウランと錯体を形成して水酸化鉄(Ⅲ)に共沈しないことがあるので、試薬びんの封を切っていないものを使用する。あるいは第6章「試薬の調製」に従い調製したものを使用する。

①分析操作

- (1) 第2章「試料前処理法」により得られた試料 2L に、硝酸 20ml 及び鉄(Ⅲ)担体溶液 (50 mg Fe³⁺/ml) 1ml を加え、砂浴上で 30 分～40 分間加熱、沸騰し、十分に二酸化炭素を追い出す。
- (2) 溶液を少し温かい程度までに放冷した後、アンモニア水 (二酸化炭素を含まないもの) を加え、pH 試験紙で確認しながら pH を 9 とする。
- (3) 時計皿で蓋をし、砂浴上で加温し、十分に沈殿を熟成する。
- (4) 沈殿が沈降するまで放冷した後、傾斜法により上澄み液を捨てる。沈殿をアンモニア水 (1+100) で遠沈管に移し、遠心分離器を用いて遠心分離する。
- (5) 遠沈管の上澄み液を捨て、沈殿を葉さじで 200ml ビーカーに移す。残りの沈殿を温硝酸 (1+1) で溶解し、先の 200ml ビーカーに合わせる。
- (6) ホットプレート上で温硝酸 (1+1) 20ml に沈殿を加熱、溶解した後、乾固する。
- (7) 放冷後、乾固物に硝酸 (3+11) 30ml を加え、ホットプレート上で温めながら溶解する。
- (8) 溶液を吸引ろ過 (メンブランフィルター (0.45 μm) 47mm φ、分離型フィルターホルダー及び耐圧びん使用) し、ろ液を 100ml ビーカーに受ける。メンブランフィルターを硝酸 (3+11) 5ml ずつで 2 回洗浄し、ろ液と洗液を 100ml 分液漏斗に移す。引き続き、3.2「T B P 抽出法」①分析操作(2)以下の操作を行う。

3.5 イオン交換法

本法は、土試料に含まれるウランの測定法として α 線スペクトロメトリーを選択した場合に、ウランの分離・精製法として適用する。第2章「試料前処理法」を行った後、試料溶液を蒸発乾固して塩酸に溶解し、2,6-ジメチル-4-ヘプタノン(別名：ジイソブチルケトン、以下 D I B K と略す。)を用いて鉄を除去する。さらに、陰イオン交換樹脂カラムを用いて、トリウム、プルトニウム等からウランを分離する。この方法は、回収率補正用トレーサー²³²U の定量を妨害する(付録2参照)プルトニウムを除去できるので、特にプルトニウムが

比較的多く含まれる試料の分析に適している。

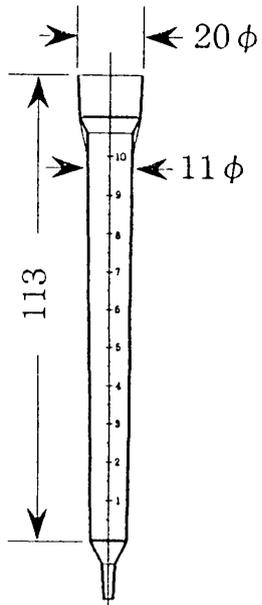
この項において、次の理化学器材及び試薬が必要である。

・理化学器材

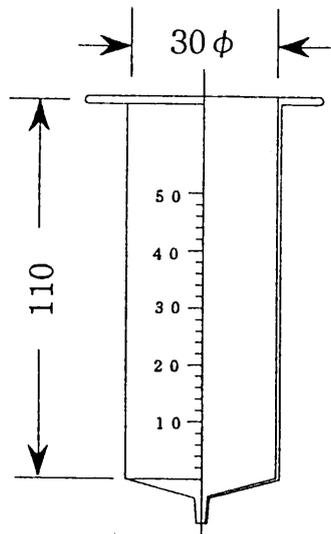
ホットプレート、50ml 分液漏斗、振とう機、50ml ビーカー、陰イオン交換樹脂カラム(図 3.1 参照)、陰イオン交換樹脂(Dowex1-×8、100~200 メッシュ)、100ml ビーカー

・試薬

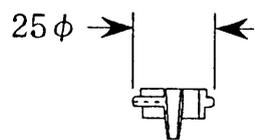
塩酸(2+1)、塩酸(1+5)、硝酸、過塩素酸、DIBK(あらかじめ同量の塩酸(2+1)と良く振り混ぜて予備平衡にしたもの)、ヨウ化アンモニウム(5w/v%)-塩酸混合溶液[3+7]



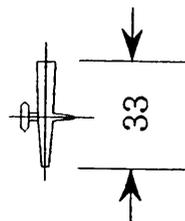
ミニカラム
(ポリブチレン)



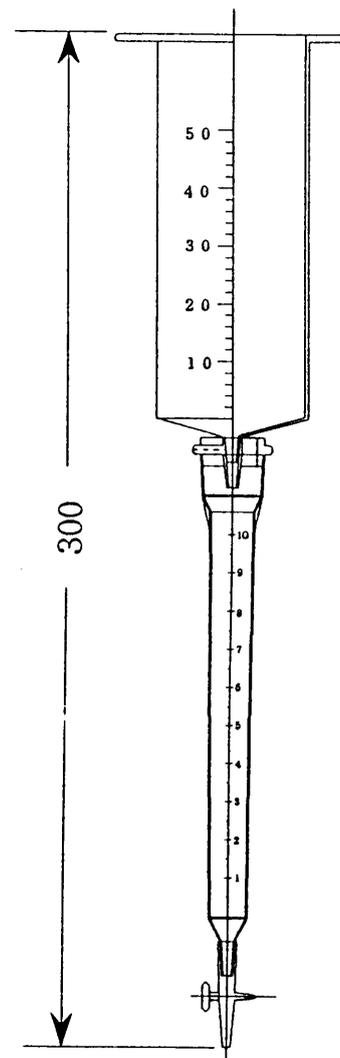
注射器
(ポリブチレン)



連結キャップ
(ポリブチレン)



三方ストップコック
(ポリブチレン)



組立図

単位：mm

図 3.1 カラム (例)

①分析操作

- (1) 土試料について、第2章「試料前処理法」により得られた硝酸溶液を、ホットプレート上で蒸発乾固する。
- (2) 塩酸(2+1)20mlを加え、ホットプレート上で加熱、溶解する。
- (3) 放冷後、D I B K 10mlを入れた50ml分液漏斗に移す。
- (4) 振とう機を用いて5分間ふりまぜ鉄を抽出除去する*⁷。水相を新たなD I B K 10mlを入れた50ml分液漏斗に移す。有機相は捨てる。
- (5) 振とう機を用いて5分間ふりまぜ、再度鉄を抽出除去する。水相を50mlビーカーに移す。有機相は捨てる。
- (6) ホットプレート上で蒸発乾固する。
- (7) 塩酸(2+1)20mlを加え、ホットプレート上で加熱、溶解する。
- (8) 放冷後、あらかじめ調製した陰イオン交換樹脂カラム(Dowex1-×8、C1形、100~200メッシュ、樹脂量5ml、樹脂高約5.5cm)*⁸に0.5ml/分の流速で流す。流出液は捨てる。
- (9) 塩酸(2+1)50mlを0.5ml/分の流速で流し、トリウムを除去する*⁷。この洗浄液は捨てる。
- (10) ヨウ化アンモニウム(5w/v%)-塩酸混合溶液[3+7]50mlを、0.5ml/分の流速で流し、プルトニウムを除去する。洗浄液は捨てる。
- (11) 塩酸(1+5)50mlを0.5ml/分の流速で流してウランを溶離する。溶離液は100mlビーカーに受ける*⁹。
- (12) ホットプレート上で蒸発乾固する。
- (13) 乾固物に硝酸5mlを加えて蒸発乾固する。さらに、硝酸5mlと過塩素酸1mlを加え、過塩素酸の白煙が生じなくなるまで蒸発乾固する。以下、第4章「測定法」4.3「 α 線スペクトロメトリー」に従う。

*⁷ 鉄及びトリウムの除染係数については、解説2を参照。

*⁸ 陰イオン交換樹脂カラムの調製方法については、第6章「試薬の調製」を参照。

*⁹ ウランの溶離曲線については、解説3を参照。

第4章 測定法

4.1 吸光光度法

本法は海水、土試料に含まれるウランの分析に用いる。吸光光度法の中でウランのアルセナゾⅢ錯体は感度が高く、広く用いられているため、ここでは、アルセナゾⅢ吸光光度法を採用した。アルセナゾⅢ吸光光度法は、ウランをVI価のままで発色させる直接法と、ウランをIV価に還元した後に発色させる還元法がある。直接法は還元法に比べておおよそ50%感度が劣るが、分析操作が簡便である。還元法は分析操作がやや煩雑ではあるが、呈色液の吸収極大波長がウラン(VI)のそれよりも10nm長波長側にあるため、アルセナゾⅢの吸収に基づくブランクが小さくなる利点がある。

直接法、還元法とも第3章「分離・精製法」の操作を行った後、ウラン(VI)あるいはウラン(IV)のアルセナゾⅢ錯体を生成させ、それぞれ655nm、665nmにおける吸光度を測定してウラン量を求める。

4.1.1 直接法

この項において、次の理化学器材及び試薬が必要である。

- ・理化学器材

ホットプレート、10ml全量フラスコ、吸収セル、分光光度計

- ・試薬

過塩素酸、塩酸ヒドラジン溶液(10w/v%)、アルセナゾⅢ溶液(0.1w/v%)

①発色及び定量操作

(1)第3章「分離・精製法」における操作により得られた蒸発乾固物を放冷した後、過塩素酸5.0mlに溶かし10ml全量フラスコに移す。この操作を再度行う。

(2)ビーカーをできるだけ少量の水で浄浄し、洗液を10ml全量フラスコに加える。

- (3) 塩酸ヒドラジン溶液(10w/v%)0.5mlを加えよく振り混ぜる*¹。
- (4) アルセナゾⅢ溶液(0.1w/v%)を正確に1ml加え、水で標線までうすめてよく振り混ぜる*²。
- (5) 溶液の一部を吸収セルにとり、上記の操作(1)から(4)に準じて作製したブランク試料を対照として655nmにおける吸光度を測定する。
- (6) 試料と同様に第3章「分離・精製法」を行ったウラン標準溶液について、上記の(1)から(5)の操作を行い、得られた検量線から試料溶液中のウラン量を算出する。

*¹ 過塩素酸中の低次酸化物が試薬を分解して発色を妨げることがあるので、塩酸ヒドラジンを加えて低次酸化物を除く。

*² 発色条件：アルセナゾⅢ自身の吸収（水対照）は過塩素酸濃度3M以上で著しく増大するが、これを対照に測定したウラン(VI)錯体の吸光度は過塩素酸溶液5.0～6.5Mの範囲で一定である。アルセナゾⅢの添加量に比例してブランクの吸光度は増大するが、これを対照に測定したウラン(VI)錯体の吸光度の増大は0.1%アルセナゾⅢ溶液1.6ml以上でゆるやかになる。したがってアルセナゾⅢ添加量は常に一定にする必要がある。本法の感度の一例を示せば、モル吸光係数は655nmにおいて 6×10^4 であった。呈色錯体は発色後、少なくとも24時間は安定である。

妨害成分：発色液25mlのとき5%以上の正の誤差を与える元素は次のとおりである。

かっこ内はその時の量(μg)；ジルコニウム(0.1)、トリウム(0.3)、チタン(1)、希土類元素(2～5)、ニオブ(3)、タングステン(6)、モリブデン(55)、カルシウム(140)、クロム(210)。また、硫酸イオン、塩化物イオンはそれぞれ0.2M、0.3M以下、及びリン酸イオン、フッ化物イオンはそれぞれ0.02M、0.05M以下ならば妨害しない。アンモニウムイオンは過塩素酸と不溶性の沈殿をつくり妨害となるから、あらかじめ除去しておく必要がある。

4.1.2 還元法

ウラン(VI)を金属亜鉛でウラン(IV)に還元した後、アルセナゾⅢで発色させ定量する。

この項において、次の理化学器材及び試薬が必要である。

・理化学器材

ホットプレート、秤量びん(18mmφ、高さ30mm)、吸収セル、分光光度計

・試薬

塩酸(3+1)、L-アスコルビン酸溶液(0.5w/v%)、砂状亜鉛、

アルセナゾⅢ溶液(0.1w/v%)

①発色及び定量操作

(1)第3章「分離・精製法」における操作により得られた蒸発乾固物に塩酸(3+1)5mlを加え、ホットプレート上で加熱、溶解する。

(2)放冷後、溶液を秤量びんに移す。ビーカーを少量の水で洗浄し、洗液も先の秤量びんに加える。

(3)ホットプレート上で蒸発乾固した後、塩酸(3+1)8mlを加え、ホットプレート上で加熱、溶解する。

(4)放冷後、L-アスコルビン酸溶液(0.5w/v%)1mlを加え、10分間放置する。

(5)秤量びんのふたをわずかずらせてのせ、砂状亜鉛0.5gを加え15分間放置する。

(6)アルセナゾⅢ溶液(0.1w/v%)を正確に1ml加え、ふたをしてよく振り混ぜる*³。

*³ 発色条件：塩酸濃度が高すぎると砂状亜鉛の溶解速度が大きくなり、還元が不十分になる。亜鉛末を用いた場合も溶解速度が大きくなり、還元が不十分になる。粒状亜鉛は逆に溶解に時間がかかりすぎる。これらのことから、本法では砂状亜鉛を使用することにした。本法の感度の一例を示せば、モル吸光係数は665nmにおいて 1.2×10^5 であった。

妨害成分：トリウム、ジルコニウム等が妨害する。しかし、20μgまでのジルコニウムはシュウ酸でマスクすることができる。鉄はL-アスコルビン酸で還元されるので400μgまでは妨害しない。また、硝酸塩はウランの還元を妨げるので、いずれも塩酸を加えて蒸発乾固し、除去しておかなければならない。

(7) 溶液の一部を吸収セルにとり、上記の(3)から(6)の操作に準じて調製したブランク試料を対照として 665nm における吸光度を測定する。

(8) 試料と同様に第3章「分離・精製法」を行ったウラン標準溶液について、上記の(1)から(7)の操作を行い、得られた検量線から試料溶液中のウラン量を算出する。

4.2 蛍光光度法

本法は、水試料の陸水、土試料、生物試料、大気浮遊じん中などの極微量のウラン分析に用いる。吸光光度法に比べ感度が高く、 $0.05 \mu\text{g}$ のウランの定量が可能であるが、再現性が劣る欠点がある。再現性の良否は、溶融体の調製時の技術によるところが大きい。また、溶融体は少なくとも1試料につき3個はつくり、測定値を平均することが望ましい。

第3章「分離・精製法」により得られた蒸発乾固物を硝酸により溶解した溶液からウランを酢酸エチルに抽出する。蒸発乾固後、溶融体を作り、蛍光光度計を用い紫外線照射により生ずる蛍光強度を測定してウランを定量する。

この項において、次の理化学器材及び試薬が必要である。

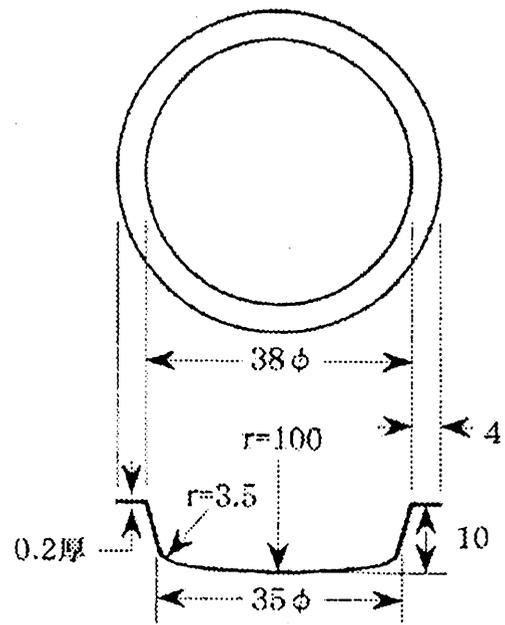
・理化学器材

ホットプレート、共栓付 50ml 試験管、ろ紙 (No. 5B)、共栓付 10ml 試験管、白金皿*⁴ (図 4.1 参照)、白金付るつぼばさみ、湯浴、バーナー、電気炉、ろ紙 (No. 5A)、アルミニウム板 (または鉄板)、デシケーター、蛍光光度計

・試薬

硝酸 (1+13)、硝酸アルミニウム、酢酸エチル、
融剤 (フッ化ナトリウム 9g+炭酸ナトリウム 45.5g+炭酸カリウム 45.5g)

*⁴ 白金皿は取り扱いに十分注意し、特に底部は変形させないようにする。使用に先だち、白金皿は熱塩酸(1+1)で表面の汚れを除く。なお、白金皿は白金 95%、ロジウム 5%の合金を使用すると強度が増し、取扱いが容易となる。



單位：mm

圖 4.1 白金皿（例）

① 定量操作

- (1) 第3章「分離・精製法」により得られた蒸発乾固物（ウランとして 0.2 μg 以上を含むもの）に硝酸(1+13) 5ml を加え、ホットプレート上で加熱、溶解し、共栓付 50ml 試験管に移す。
- (2) 硝酸アルミニウム 9.5g を加え、湯浴に浸して溶かす。
- (3) 放冷後、酢酸エチルを正確に 10ml 加え、栓をして 30 秒間激しく振り混ぜウランを抽出する。しばらく静置して両相を分離する。
- (4) 試験管を静かに傾け、上層の有機相を乾燥ろ紙(No. 5B)によりろ過して水分を除き、共栓付 10ml 試験管中に保存する。
- (5) 酢酸エチル溶液から正確に 2ml^{*5}をあらかじめ水 1ml を入れてある白金皿にとる。直ちに点火して酢酸エチルを燃焼除去する。この際、白金皿を水などで冷却して、液のはい上がりによるウランの逸失を防ぐ。
- (6) 湯浴上で白金皿中の水分を蒸発させた後、残留物をバーナーで徐々に加熱して残存する有機物を分解する。
- (7) 白金皿に融剤 3.0g を加え、バーナーで加熱して融解する。30 秒間静かに揺り動かした後、650℃に調節した電気炉に移し、更に 10 分間熔融状態に保つ^{*6}。
- (8) 白金皿を電気炉から取り出し、湿ったろ紙(No. 5A)、平らなアルミニウム板または鉄板上で手早く急冷固化する。この際、白金皿が傾かないように注意する。冷却後、熔融体を取り出し^{*7}、デシケーター中に保存する。

*⁵ ウラン濃度が高い時は、ここで採取する量を加減する。

*⁶ 蛍光光度法の再現性を左右する要因に熔融体を調製する際の温度と時間がある。溶解温度が 650℃のときは加熱時間 4～11 分の間で蛍光強度に大きな変化はないが、700℃を越えると加熱時間に影響される。このことから本法では、融解温度 650℃、加熱時間 10 分とした。

*⁷ 熔融体を取り出した後、白金皿の内部が褐色を帯びる事があるが、これは、バーナー上で強熱すれば消失する。

- (9) 蛍光光度計を用いて 556nm で溶融体の蛍光強度を測定する*⁸。
- (10) 試料と同様に第3章「分離・精製法」を行ったウラン標準溶液について、上記の(1)から(9)の操作を行い、得られた検量線から試料溶液中のウラン量を算出する。

*⁸ 蛍光光度法の定量範囲：蛍光光度法は感度が非常に高く、 $0.05\mu\text{g}$ のウランの定量も可能である。しかしその反面、再現性に乏しいので溶融体は3個以上調製し、各測定値を平均することが望ましい。このため本法は分析目標レベルを $0.2\mu\text{g}$ とした。一方、蛍光光度計の感度を切り換えることにより、 $10\mu\text{g}$ 以上のウランの定量も可能であるが、この場合は吸光光度法を採用する方が得策である。

蛍光光度法の妨害成分：多くの元素に消光作用があり妨害する。特に著しいのが、クロム、マンガン、コバルト、ニッケル、白金、金及び硫酸である。マグネシウム、鉄、銅、亜鉛、スズ、トリウムも妨害するが、やや弱い。またチタン、ランタン、セリウム、タングステンも弱い消光作用がある。これらの元素の妨害を除くために、第3章の分離・精製操作に加えて酢酸エチルによるウランの抽出を行う。アルカリ金属、カルシウム、ストロンチウム、バリウム、アルミニウムは妨害しない。

4.3 α 線スペクトロメトリー

本法は、水試料、土試料、生物試料及び大気浮遊じんを、第3章「分離・精製法」においてTBP抽出法、イオン交換法などによりウランを分離・精製した後、ステンレス鋼板上に電着した測定試料について、シリコン半導体検出器を用いた α 線スペクトロメトリーを行う。この方法は、ウランの同位体別の定量が可能である。

4.3.1 電着操作

この項において、次の理化学器材及び試薬が必要である。

・理化学器材

時計皿、ホットプレート、ステンレス鋼製電着板（厚さ1mm、24.5mm ϕ ）、電着セル（図4.2）、白金線（1mm ϕ 、長さ15cm）、電解装置（電圧0~30V、電流0~2Aが得られる定電圧定電流電源を備えたもの）、ピンセット、ガスバーナー

・試薬

硫酸(1+9)、チモールブルー溶液(0.1w/v%)、アンモニア水(1+1)、エタノール

① 定量操作

- (1) 第3章「分離・精製法」においてTBP抽出法（キレート樹脂・TBP抽出法及び水酸化鉄(III)共沈・TBP抽出法を含む）またはイオン交換法により得られた蒸発乾固物に、硫酸(1+9)5mlを加え、時計皿をしてホットプレート上で加熱、溶解する。
- (2) 放冷後、チモールブルー溶液(0.1w/v%)1滴を加え、よくかきまぜながら溶液が黄色に変るまで、アンモニア水(1+1)を加える。
- (3) よくかきまぜながら、溶液が桃色になるまで硫酸(1+9)を滴下する。桃色になった後、さらに硫酸(1+9)1滴を加える。
- (4) ステンレス鋼製電着板*⁹を取り付けた電着用セル(図4.2)に溶液を移す。ビーカーをできるだけ少量の水で洗浄し、洗液をセルに加える。

*⁹ 電着板は、あらかじめ中性洗剤などで洗い、水で洗浄して油分などを取り除いた後使用する。

- (5) 白金電極の先を電解液につけ*¹⁰、白金電極側をプラス(+)、ステンレス鋼製電着板側をマイナス(-)として電流 1.0A で 2~3 時間通電する。
- (6) 通電したままセル内へアンモニア水(1+1)1ml を注入し、さらに 1 分間通電した後、電流を止める。
- (7) 手早くセル内の溶液を操作(4)のビーカーにもどし、電着セル内を水で洗浄する。洗液は溶液に合わせる。
- (8) ステンレス鋼製電着板を、ピンセットを用いて取り出し、水、エタノールで順次洗浄する。次いで、ガスバーナーの炎で赤熱し、放冷後、測定を行う。

*¹⁰ 白金電極の先と電着板の距離が 5 mm 程度となるようにする。

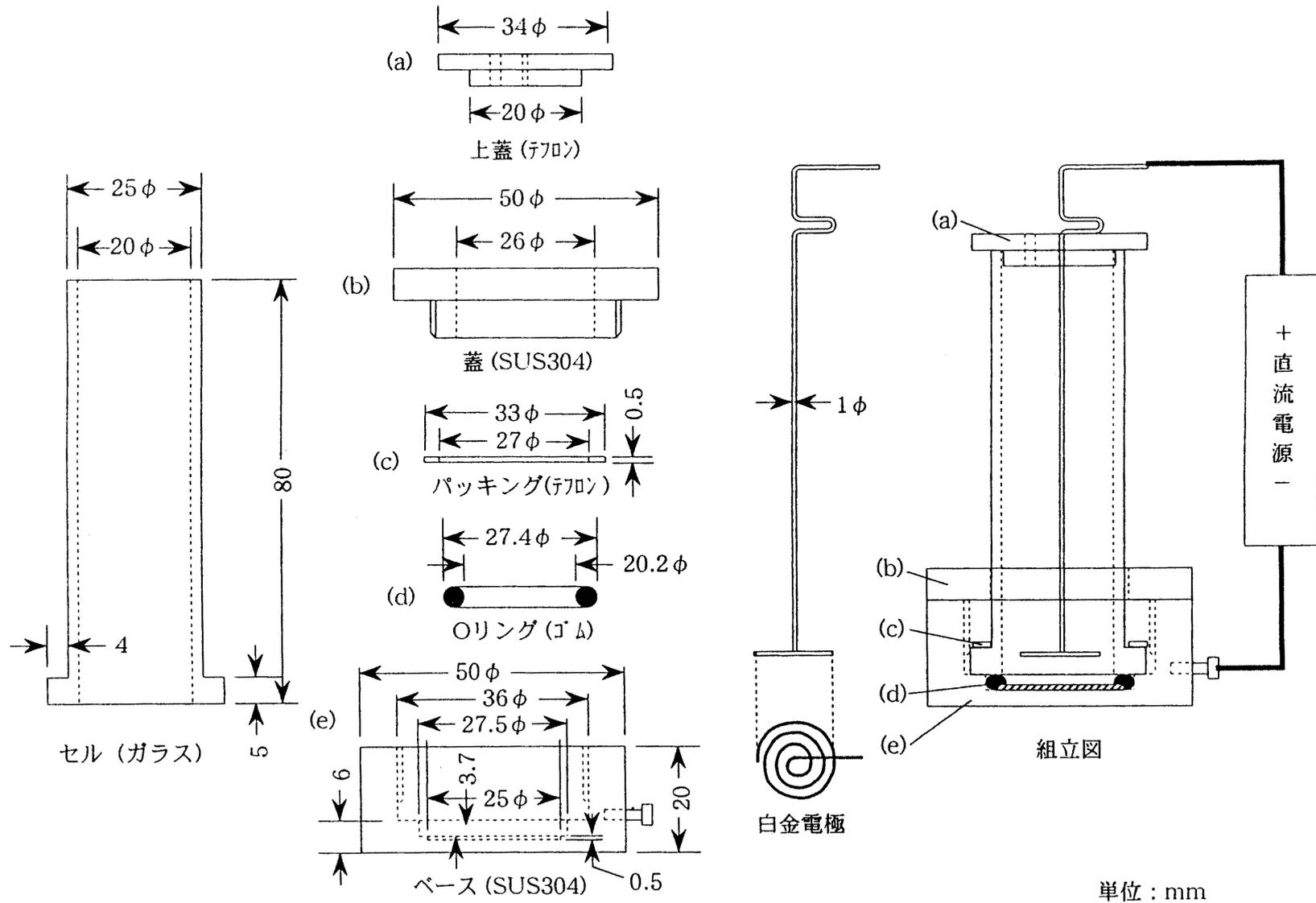


図 4.2 電着用セル (例)

4.3.2 α 線スペクトロメータ

1) 装置

装置は下記に示す①～⑨で構成されている。基本的なブロックダイアグラムを図 4.3 に示す。

- ①シリコン半導体検出器*¹¹ ②前置増幅器 ③主増幅器
- ④マルチチャンネル波高分析器*¹² ⑤プリンタ・プロッタ
- ⑥検出器用電源*¹³ ⑦ビン電源 ⑧真空チェンバー*¹⁴
- ⑨油回転式真空ポンプ

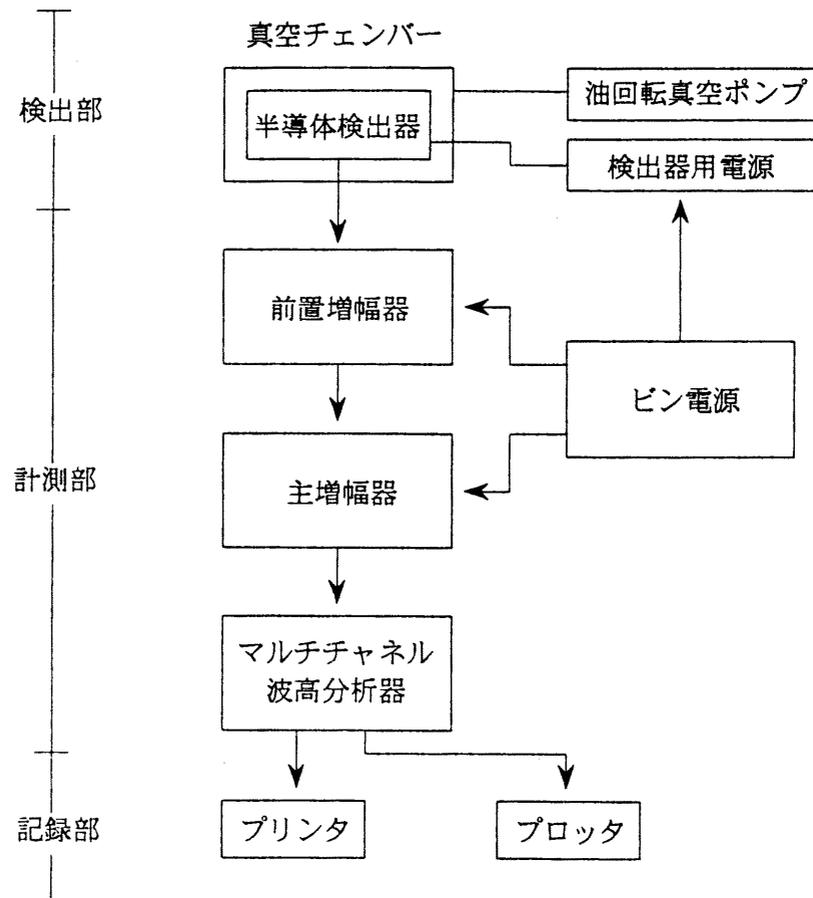


図 4.3 α 線スペクトロメータの基本的なブロックダイアグラム (例)

*¹¹ 有効面積 200mm² 以上、空乏層厚 100 μ m 程度で、5.3MeV の α 線に対するエネルギー分解能 (FWHM) が 35keV 程度の検出器。

*¹² チャンネル数を 1000 以上有するもの。

*¹³ 検出器の直流印加電圧 (通常 ± 100 V 程度) を連続的に可変できるもの。

*¹⁴ 検出器及び線源を所定の位置に確実に装着でき、かつ、油回転ポンプによる排気により 1 Pa 以下の真空を保持できるもの。

2) 測定機器に関する注意

- (1) 測定機器は、電氣的雑音を発生する他の機器（モータや電気遮断器など）及び大電流を消費する機器からできるだけ離して設置し、電源を別系統とすることが望ましい。
- (2) ケーブル類の配線はできるだけ短くし、接地のとり方に注意して、グラウンドループなどによる雑音を拾わないようにする。
- (3) 温度変化による増幅器のゲインドリフトなどを防ぐため、測定室を恒温恒湿にすることが望ましい。
- (4) 検出器用電源系統のケーブルの着脱は電圧が完全に零になったことを確かめてから行い、また、前置増幅器電源の ON-OFF は必ず検出器用電源が零になったことを確かめてから行う。
- (5) N I Mモジュールとなっている増幅器などをビン電源から着脱するときには、電源スイッチを切ってから行う。
- (6) 増幅器、検出器用電源、波高分析器などはラックに取りつけて、温度が過度に上昇しないように注意する。また、空調機などの風が直接あたらないようにする。
- (7) 機械的なショックを与えないようにするとともに、真空ポンプの振動が伝わらないようにする。
- (8) 検出器面を水銀、酸などの蒸気にさらさないようにする。

4.3.3 測定操作

- (1) 検出器に印加する電圧が零になっていることを確認する。
- (2) リークバルブを操作し、真空チェンバー内を大気圧と等しくした後、試料交換口を開ける。
- (3) ピンセットなどを使用し、所定の位置に測定試料を固定する。検出器から試料までの距離は 5mm 程度が適当である。
- (4) 試料交換口を閉じ、検出器チェンバー内を真空にする。
- (5) 充分排気し真空度が上がった後（数 Pa 以下程度）、検出器用電源を指定の電圧（75V～100V）まで上げる。フィルタ回路がついていないものは、電圧を徐々に上げる。
- (6) 通常、測定は 24 時間行う。
- (7) 測定終了後*¹⁵、各チャンネルにおける計数値とスペクトル図*¹⁶をプリンターなどで打ち出す。

*¹⁵ 試料を取り出す場合は、検出器印加電圧を徐々に下げて零にしてから、リークバルブを開き、真空チェンバー内を大気圧に等しくした後、試料交換口を開ける。

*¹⁶ α 線ピークの形状から電着試料の厚さや測定器系のドリフトなどを推定することができる。

4.3.4 計算

^{234}U 、 ^{235}U 、 ^{238}U などの分析対象核種*¹⁷及び回収率を求めるために添加した ^{232}U のそれぞれのピークについて正味計数率を求め、放射能を計算する。

1) 正味計数率

(1) 試料の計数率

- ① スペクトル図の各ピークを核データ（付録4参照）と比較して核種の同定を行う。
- ② 各核種について、ピーク領域における計数値を合計し*¹⁸、バックグラウンドを含む全計数値(N)を求める。
- ③ 分析対象核種のピークがスペクトル中にない場合は、対象核種のピークが現れる領域を想定して全計数値を求める*¹⁹。
- ④ 全計数値を測定時間(t)で除し、バックグラウンドを含む試料の計数率(n)を求める。

$$n = \frac{N}{t} \qquad \sigma = \frac{N^{1/2}}{t}$$

- n : 試料の計数率(cps)
N : 試料の全計数値(counts)
T : 試料の測定時間(sec)
 σ : 試料の計数率の誤差(cps)

*¹⁷ 環境中ウランの同位体については、付録3参照。

*¹⁸ ピーク領域は検出されたピークの半値幅の3倍程度を目標として選ぶとよい。
例えば半値幅が40keVの場合、低エネルギー側のテーリングを考慮してピーク中心から低エネルギー側に80keV、高エネルギー側に40keV、合計120keV程度をピーク領域とする。

*¹⁹ ^{232}U のピークにチャンネルシフトがある時は、分析対象核種のピーク領域も ^{232}U のピークと同様にシフトさせる。

(2)バックグラウンドの計数率*20

- ①洗浄した電着板を試料の前後に測定し、得られたスペクトルをバックグラウンドスペクトルとする。
- ②バックグラウンドのスペクトルから、試料を測定して得られたスペクトルのウランピーク領域と同じ領域の全計数値(N_{b1} 、 N_{b2})を求める。
- ③前後の全計数値(N_{b1} 、 N_{b2})と測定時間(t_{b1} 、 t_{b2})から、次式によりバックグラウンドの計数率(n_b)及びその計数誤差(σ_b)を求める。

$$n_b = \frac{N_{b1} + N_{b2}}{t_{b1} + t_{b2}} = \frac{N_b}{t_b}$$

$$\sigma_b = \frac{(N_{b1} + N_{b2})^{1/2}}{t_{b1} + t_{b2}} = \frac{(N_b)^{1/2}}{t_b}$$

- n_b : バックグラウンドの計数率(cps)
 N_{b1} : 試料測定前のバックグラウンドの全計数値(counts)
 N_{b2} : 試料測定後のバックグラウンドの全計数値(counts)
 N_b : 試料測定前後のバックグラウンドの全計数値の和(counts)
 t_{b1} : 試料測定前のバックグラウンドの測定時間(sec)
 t_{b2} : 試料測定後のバックグラウンドの測定時間(sec)
 t_b : 試料測定前後のバックグラウンドの測定時間の和(sec)
 σ_b : バックグラウンドの計数率の計数誤差(cps)

*20 α 線スペクトルを測定する際のバックグラウンド計数は、通常 24 時間測定しても、ピーク領域内では無視できる程度である。しかし、目的核種のピーク領域に相当するエネルギー範囲内のバックグラウンドの計数率を長時間測定して求めることが望ましい。

(3) 正味計数率

試料の計数率(n)とバックグラウンドの計数率(n_b)より、次式に従って正味計数率(n_s)を求める。

$$n_s = n - n_b$$

$$\sigma_s = \left(\frac{N}{(t)^2} + \frac{N_b}{(t_b)^2} \right)^{1/2}$$

n_s : 正味計数率(cps)

n : 試料の計数率(cps)

n_b : バックグラウンドの計数率(cps)

σ_s : 正味計数率に対する計数誤差(cps)

N : 試料の全計数値(counts)

N_b : 試料測定前後のバックグラウンドの全計数値の和(counts)

T : 試料の測定時間(sec)

t_b : 試料測定前後のバックグラウンドの測定時間の和(sec)

2) 放射能濃度

試料中の分析対象核種の放射能濃度(A)を次式に従って求める*^{2 1}。

$$A = \frac{n_s \cdot A_{232}}{n_{232} \cdot W \cdot F}$$

$$\sigma_A = A \cdot \left[\frac{(\sigma_s)^2}{(n_s)^2} + \frac{(\sigma_{232})^2}{(n_{232})^2} + \frac{(\sigma_{A232})^2}{(A_{232})^2} \right]^{1/2}$$

- A : 対象核種の放射能濃度(Bq/kg、Bq/L など)
- n_s : 対象核種の正味計数率(cps)
- A_{232} : 添加核種 ²³²U の放射能(Bq)
- n_{232} : 添加核種 (²³²U) の正味計数率(cps)
- W : 供試量(kg、L など)
- F : 強度比*^{2 2} (解析ピーク領域に相当する α 線の放出比の合計)
- σ_A : 対象核種の放射能濃度に対する誤差(Bq/kg、Bq/L など)
- σ_s : 対象核種の正味計数率に対する計数誤差(cps)
- σ_{232} : 添加核種 (²³²U) の正味計数率に対する計数誤差(cps)
- σ_{A232} : 添加核種 ²³²U の放射能の誤差(Bq)

*^{2 1} 放射能から重量への換算については、付録5参照。

*^{2 2} ピーク領域に含まれる α 線放出比の合計。²³⁸U (4.15、4.20MeV) 及び ²³⁴U (4.72、4.78MeV) の場合は、それぞれの核種から放出される α 線のエネルギーが近いので同一ピークとして取り扱うことができるが、²³⁵U の場合には種々のエネルギーの α 線を放出するので(付録4参照)、主要ピークが存在する 4.30MeV から 4.45MeV の領域のピークを対象とする。この時、その領域に相当する強度比(放出比の合計)はおおよそ 0.84 である。

式で示されるように、放射能濃度の計算においては、分析供試量、対象核種と添加核種 (^{232}U) の正味計数率、 ^{232}U の放射能及び対象核種の α 線放出比が必要であるが、計数効率や回収率は必要ない。

実際の試料においては、不十分な化学分離により電着板への微量不純物の混入も考えられる。このような場合には、 α 線ピークにテーリングが見られ、さらに、不純物による α 線吸収のため計数効率が低くなるので、算出した回収率はみかけ上低くなる。

通常得られるウランの α 線スペクトルとピークのテーリングが大きい α 線スペクトルの例を、それぞれ図 4.4 及び図 4.5 に示す。

また、測定は、 ^{232}U から生成する娘核種 ^{228}Th の影響を考慮し、化学操作終了後 2 週間以内に行うことが望ましい (付録 2 参照)。

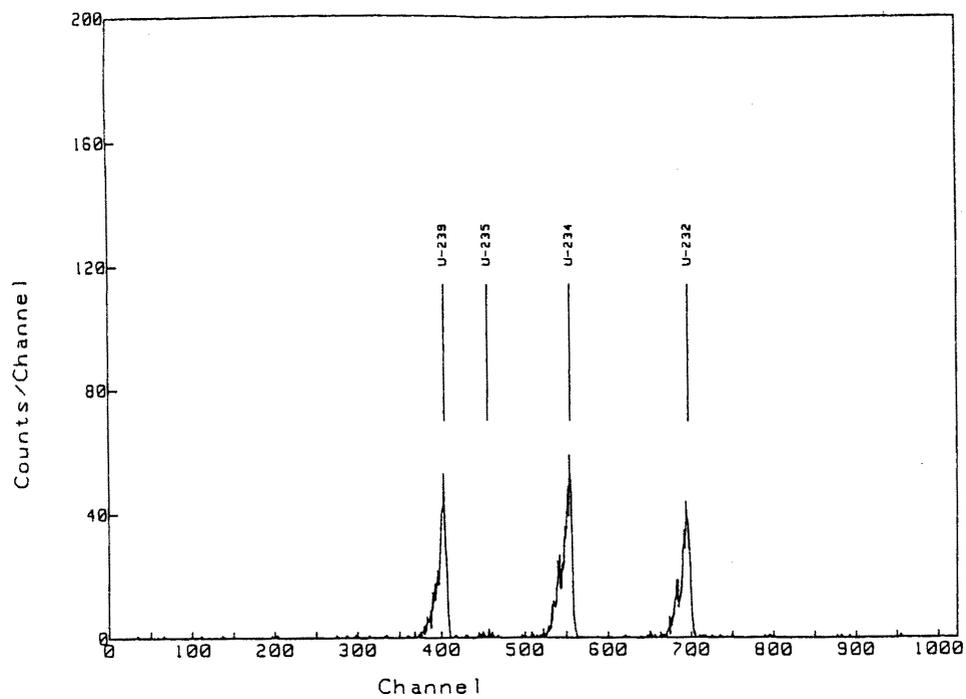


図 4.4 通常得られるウランの α 線スペクトル (例)

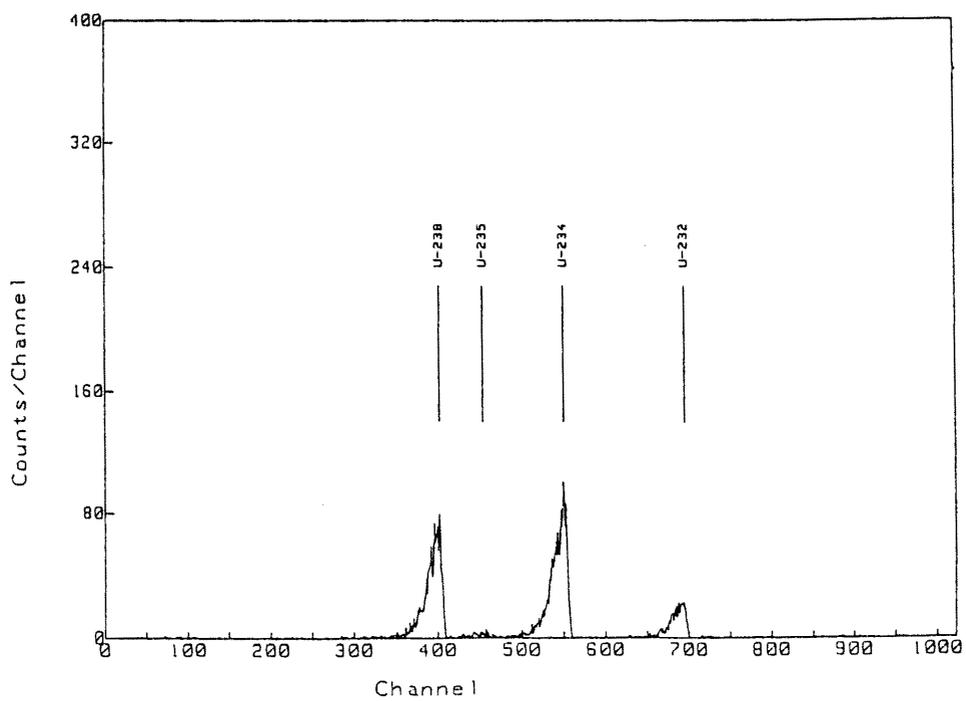


図 4.5 ピークのテーリングが大きい α 線スペクトル (例)

3) 計数効率と回収率

検出下限の算出、あるいは分析操作が正しく行われているかどうかの確認のためには計数効率や回収率が必要である。この場合、標準線源を測定して計数効率を求め、さらにその計数効率を用いて回収率を算出する。

(1) 標準線源

標準線源には測定試料と同じ形状のものを使用し、分析対象核種と同じ核種のものが望ましい。もし、それが入手できなければ、測定試料と同形で同一の線源面積をもつ他の核種の標準線源を代用してもよい*²³。

なお、上記のような標準線源が入手できない場合には、一定量の α 線放出核種(添加トレーサーなど)を測定試料の調製方法と同様に電着し、幾何学効率が 2π (50%)のガスフロー比例計数管などで α 線を測定し、標準線源としてもよい*²⁴。

*²³ 日本アイソトープ協会より、²⁴¹Amの α 線源を購入できる。

*²⁴ ピーク領域の全計数が10,000カウント以上になるような濃度を設定する。

(2) 計数効率

標準線源を測定し、計数効率(E)を次式に従って求める。

$$E = \left(\frac{N_{stn}}{t_{stn}} - \frac{N_b}{t_b} \right) \cdot (S_{stn})^{-1}$$

$$\sigma_E = E \cdot \left(\frac{N_{stn} \cdot (t_b)^2 + N_b \cdot (t_{stn})^2}{(N_{stn} \cdot t_b - N_b \cdot t_{stn})^2} + \frac{(\sigma_{stn})^2}{(S_{stn})^2} \right)^{1/2}$$

E : 計数効率

N_{stn} : 標準試料の全計数値 (counts)

N_b : バックグラウンドの全計数値 (counts)

S_{stn} : 標準試料の放射能 (Bq)

t_{stn} : 標準試料の測定時間 (sec)

t_b : バックグラウンドの測定時間 (sec)

σ_E : 計数効率の誤差

σ_{stn} : 標準試料の放射能の誤差 (Bq)

(3) 回収率

ウランの回収率補正のために添加した ^{232}U の放射能 (A_{232})、 ^{232}U の正味計数率 (n_{232}) 及び計数効率 (E) から、回収率 (Y) を次式に従って求める。

$$Y = \frac{n_{232}}{E \cdot A_{232}}$$

$$\sigma_Y = Y \cdot \left(\frac{(\sigma_{n_{232}})^2}{(n_{232})^2} + \frac{(\sigma_E)^2}{(E)^2} + \frac{(\sigma_{A_{232}})^2}{(A_{232})^2} \right)^{1/2}$$

Y : 回収率

n_{232} : 添加核種 (^{232}U) の正味の計数率 (cps)

E : 計数効率

A_{232} : 添加核種 ^{232}U の放射能 (Bq)

σ_Y : 回収率の誤差

$\sigma_{n_{232}}$: 添加核種 (^{232}U) の正味計数率に対する計数誤差 (cps)

σ_E : 計数効率の誤差

$\sigma_{A_{232}}$: 添加核種 ^{232}U の放射能の誤差 (Bq)

第5章 ICP質量分析法

水試料はそのまま希釈、土試料、生物試料及び大気浮遊じんはウランを酸で抽出した後に希釈し、ICP（誘導結合プラズマ、Inductively Coupled Plasma）質量分析装置による測定を行い、質量数／電荷（以下、 m/z という。）238 のイオン強度からウランの量を求める。この方法は、ウランの同位体別の定量が可能である。

5.1 ICP質量分析装置*¹

ICP質量分析装置（四重極型）の基本的な構造を図5.1に示す。

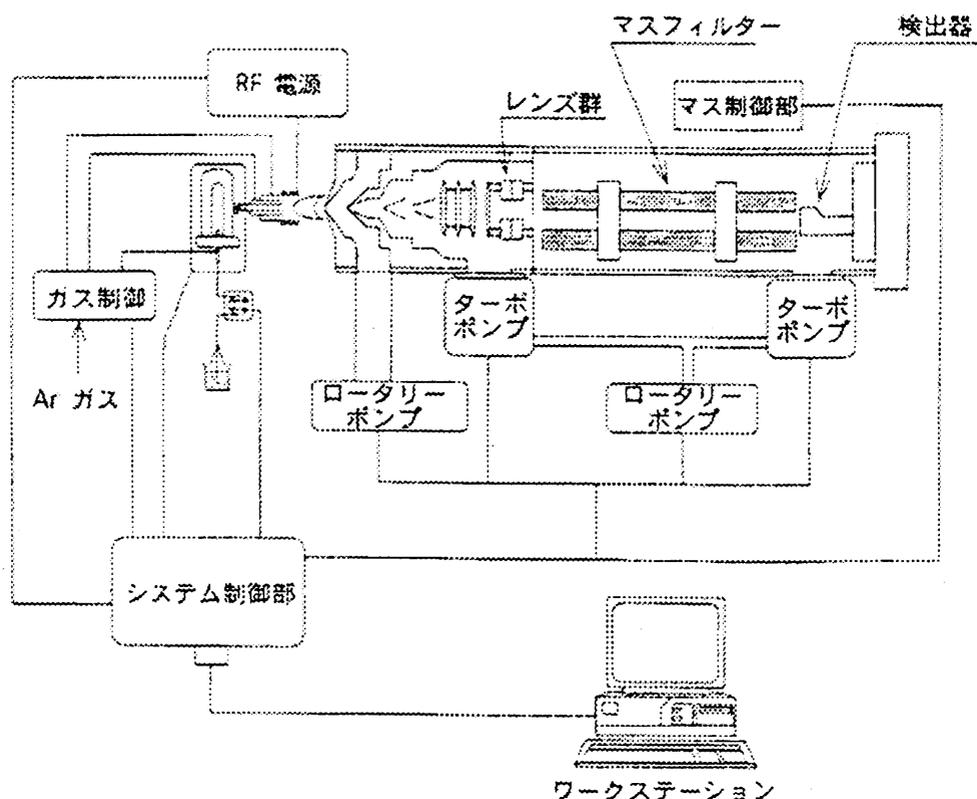


図 5.1 ICP質量分析装置（四重極型）

*¹ ICP質量分析装置には、四重極型ICP質量分析装置と二重収束型ICP質量分析装置がある。二重収束型は、四重極型に比べて価格は高いが、分解能、検出下限の面で優れている。しかし、水試料、土試料、生物試料及び大気浮遊じんに含まれるウランの測定には、分解能、検出下限を考慮すると四重極型で十分である。従って、ここでは、四重極型について記載する。

5.2 測定試料の調製

ICP質量分析装置による測定においては、マトリックスによる干渉*²を考慮しなければならない。そこで、試料中の全固形物含量（全塩濃度）が0.1%以下になるように希釈する。さらに、ウラン濃度未知の環境試料を測定する場合、試料中のおおよそのウラン濃度を測定し、ウランの濃度が0.01 $\mu\text{g/ml}$ 以下となるように、硝酸(1+13)で希釈する。また、ウランのイオン強度を補正するために添加するビスマス*³〔またはタリウム〕についても、試料中のおおよそのビスマスの濃度を測定し、添加する量の0.1%以下になるように希釈する。これらの条件を満たした希釈溶液を測定溶液*⁴とする。

5.2.1 水試料

この項において、次の理化学器材及び試薬が必要である。

・理化学器材

3L ビーカー、ろ紙(No. 5C)110mm ϕ 、ブフナー漏斗、耐圧びん、アスピレーター、2ml 全量ピペット、50ml 全量ピペット、100ml 全量フラスコ

・試薬

硝酸、ビスマス〔またはタリウム〕(0.1 $\mu\text{g/ml}$)、硝酸(1+13)

①前処理操作

採取した試料をろ過（ろ紙(No. 5C)110mm ϕ 、ブフナー漏斗及び耐圧びん使用）する。3L ビーカーに2L を分取し、硝酸を10ml 加える。

*² ウランの m/z238 の測定に対して、共存元素の分子イオンや2価イオン等の分光学的干渉（スペクトル上の妨害）の影響はないが、アルカリ金属や共存元素の原子量効果等の非分光学的干渉（イオン強度の増感、減感）の影響はある。

*³ 試料中にビスマスが多く含まれる場合には、タリウムを内部標準として用いる。

*⁴ 試料中に内部標準元素が多く含まれ、添加する内部標準元素の濃度に影響を及ぼす場合、あるいは全固形物含量（全塩濃度）が高い試料の場合は、例えば、6本の100ml全量フラスコに一定量の試料溶液を入れ、これにウラン標準溶液を0、0.2、0.4、0.6、0.8、1.0 μg と加えて（加えるウランの量は試料のウラン濃度で変える。）測定、定量する標準添加法を用いるとよい。

②希釈操作

海水は 2ml、陸水は 50ml を全量ピペットを用いて 100ml 全量フラスコにとり、内部標準としてビスマス [またはタリウム] ($0.1 \mu\text{g/ml}$) 1ml を加える。硝酸(1+13)を全量フラスコの標線まで加え、よく振り混ぜ測定溶液とする。

5.2.2 土試料

この項において、次の理化学器材及び試薬が必要である。

・理化学器材

乾燥器、天秤、磁製ろつぼ、電気炉、200ml ビーカー、200ml ビーカー用時計皿、ホットプレート、47mmφメンブランフィルター($0.45 \mu\text{m}$)、47mmφガラス繊維ろ紙 (GA100 など)、分離型フィルターホルダー、耐圧びん、アスピレーター、50ml 全量フラスコ、10ml 全量ピペット、100ml 全量フラスコ、1ml 全量ピペット

・試薬

硝酸、硝酸(3+11)、ビスマス [またはタリウム] ($1 \mu\text{g/ml}$)、硝酸(1+13)

①前処理操作

土試料を 105°C に調節した乾燥器に入れ、十分に乾燥する*⁵。5g 程度を正確にはかりとり、磁製ろつぼに入れ、 500°C に調節した電気炉で 3~4 時間加熱して有機物を分解する。放冷後、200ml ビーカーに移し、硝酸 30ml を加える。時計皿でおおい、ホットプレート上で 30 分間煮沸する。放冷後、温かいうちに吸引ろ過 (47mmφメンブランフィルターとその上に 47mmφガラス繊維ろ紙を重ねる。分離型フィルターホルダー及び耐圧びん使用) する。残留物を温硝酸(3+11) 30ml で洗浄する。ろ液及び洗液を 200ml ビーカーに移し、ホットプレート上で濃縮し、放冷後、50ml 全量フラスコに移し、水を全量フラスコの標線まで加え、よく振り混ぜ測定用原液とする。

*⁵ 乾燥時に試料が塊状になった場合は粉碎する。

②希釈操作

測定用原液 10ml を正確に 100ml 全量フラスコに分取し、硝酸(1+13)を全量フラスコの標線まで加え、よく振り混ぜる。さらに、その溶液 1ml を正確に 100ml 全量フラスコに分取し、内部標準としてビスマス[またはタリウム](1 μ g/ml) 1ml を加える。硝酸(1+13)を全量フラスコの標線まで加え、よく振り混ぜ、測定溶液とする。

5.2.3 生物試料（海産生物、農作物）

この項において、次の理化学器材及び試薬が必要である。

・理化学器材

乾燥器、電気炉、磁製皿、天秤、乳鉢、乳棒、200ml ビーカー、200ml ビーカー用時計皿、ホットプレート、47mm ϕ メンブランフィルター(0.45 μ m)、分離型フィルターホルダー、耐圧びん、アスピレーター、50ml 全量フラスコ、1ml 全量ピペット、100ml 全量フラスコ

・試薬

硝酸、過酸化水素水、硝酸(3+11)、ビスマス[またはタリウム](1 μ g/ml)

①前処理操作

500g 程度の生物試料を 105 $^{\circ}$ C で乾燥後、電気炉に移し 500 $^{\circ}$ C で灰化する*⁶。放冷後、灰の重量をはかり灰分率を求める。灰を乳鉢中ですりつぶし、よく混合する。灰 5g 程度を正確にはかりとり、200ml ビーカーに移し、硝酸 30ml、過酸化水素水 1 ml を加える。時計皿でおおい、ホットプレート上で蒸発乾固する。灰の色が白くなるまで、硝酸 30ml、過酸化水素水 1 ml を加え、蒸発乾固の操作を繰り返す*⁷。乾固物に硝酸(3+11)30ml を加え、ホットプレート上で加熱、溶解する。放冷後、吸引ろ過(47mm ϕ メンブランフィルター、分離型フィルターホルダー及び耐圧びん使用)する。残留物を温硝酸(3+11)30ml で洗浄する。ろ液及び洗液を 200ml ビーカーに移し、ホットプレート上で濃縮し、放冷後、50ml 全量フラスコに移し、水を全量フラスコの標線まで加え、よくふりまぜ測定用原液とする。

*⁶ 灰化に要する時間は試料によって異なるが、おおよそ 24 時間である。

*⁷ 2 回程度で灰の色が白くなる。米の場合には紫色になることがある。

②希釈操作

測定用原液 1ml を正確に 100ml 全量フラスコに分取し、内部標準としてビスマス〔またはタリウム〕($1\mu\text{g/ml}$) 1ml を加える。硝酸(1+13)を全量フラスコの標線まで加え、よく振り混ぜ、測定溶液とする。

5.2.4 大気浮遊じん

この項において、次の理化学器材及び試薬が必要である。

・理化学器材

集じん器、セルロース繊維とガラス繊維からなるろ紙(アドバンテック HE-40T 相当品)またはガラス繊維ろ紙(アドバンテック GB-100R 相当品)、磁製皿、電気炉、200ml ビーカー、200ml ビーカー用時計皿、ホットプレート、ろ紙(No. 5B)45mm ϕ 、分離型フィルターホルダー、耐圧びん、アスピレーター、100ml 全量フラスコ

・試薬

硝酸、硝酸(3+11)、ビスマス〔またはタリウム〕($1\mu\text{g/ml}$)

①前処理操作

大気を 1000m³以上吸引し、大気中の浮遊じんをろ紙*⁸に捕集する。捕集した浮遊じん*⁹はろ紙ごと電気炉に入れ、500℃で灰化する。灰を 200ml ビーカーに移し、硝酸 30ml を加え時計皿でおおい、ホットプレート上で 30 分間煮沸する。放冷後、吸引ろ過(ろ紙(No.5B) 45mm ϕ 、分離型フィルターホルダー及び耐圧びん使用)する。残留物を温硝酸(3+11) 30ml で洗浄する。ろ液及び洗液を 200ml ビーカーに移し、ホットプレート上で濃縮し、放冷後、100ml 全量フラスコに移し、内部標準としてビスマス〔またはタリウム〕($1\mu\text{g/ml}$)を 1ml を加える。硝酸(1+13)を全量フラスコの標線まで加え、よく振り混ぜ測定溶液とする。

*⁸ ろ紙としては、セルロース繊維とガラス繊維からなるろ紙(アドバンテック HE-40T 相当品)、ガラス繊維ろ紙(アドバンテック GB-100R 相当品)等がある。これらのろ紙のなかにはウランを 0.5 $\mu\text{g/g}$ (ろ紙 1 枚分がおおよそ 1g)程度含むものもあり、大気浮遊じんを捕集したろ紙と同じ製造番号のろ紙を分析して、ブランク値として差し引く必要がある。

*⁹ 土壌中のウラン濃度は一般に大気浮遊じんに比して高いので、砂じんなどの舞い上っている場所では、高いウラン濃度を示すことがある。

5.3 測定

この項において、次の理化学器材及び試薬が必要である。

・理化学器材

100ml 全量フラスコ、マイクロピペット(0.1ml を分取できるもの)、1ml 全量ピペット、10ml 全量ピペット、ICP質量分析装置

・試薬

ウラン標準溶液(0.01 $\mu\text{g/ml}$ あるいは 0.1 $\mu\text{g/ml}$)、硝酸(1+13)、
ビスマス〔またはタリウム〕(1 $\mu\text{g/ml}$)

①測定操作

測定溶液をプラズマ中に噴霧し、ウランの $m/z238$ と同時にビスマスの $m/z209^{*10}$ のイオン強度を測定し、ウランとビスマス〔またはタリウム〕のイオン強度の比を求める。データの取り込み時間(積分時間=滞在時間×掃引回数)は再現性を確保するため、最低1秒以上が望ましい。また、検量線に使用した標準溶液と試料溶液のデータの取り込み時間は同一にする。測定回数はそれぞれ5回とし、5回の繰り返し平均値を代表値とする。

別に、水、土及び大気試料の場合にはウラン標準溶液(0.01 $\mu\text{g/ml}$)を0、0.1、1、10mlをそれぞれ100ml全量フラスコに取り、ビスマス〔またはタリウム〕を試料と同様に加えた後、硝酸(1+13)を全量フラスコの標線まで加え、よく振り混ぜ、検量線用標準溶液とする。生物試料の場合には、ウラン標準溶液(0.1 $\mu\text{g/ml}$)を0、0.1、1、10mlをそれぞれ100ml全量フラスコに取り、以下水試料と同様な操作を行う。

なお、ここに記載した検量線用標準溶液の濃度範囲は一例であり、測定溶液のウラン濃度に応じた標準溶液を調製する。

*10 タリウムを内部標準として用いた場合は、 m/z は205を使用する。

各溶液を内部標準測定モードで測定し、検量線を作成する。この検量線から、試料について得たイオン強度比に相当するウランの量を求め、試料中のウランの濃度 ($\mu\text{g/ml}$) を求める。

土壌試料の ICP 質量スペクトルの例を図 5.2 に示す。

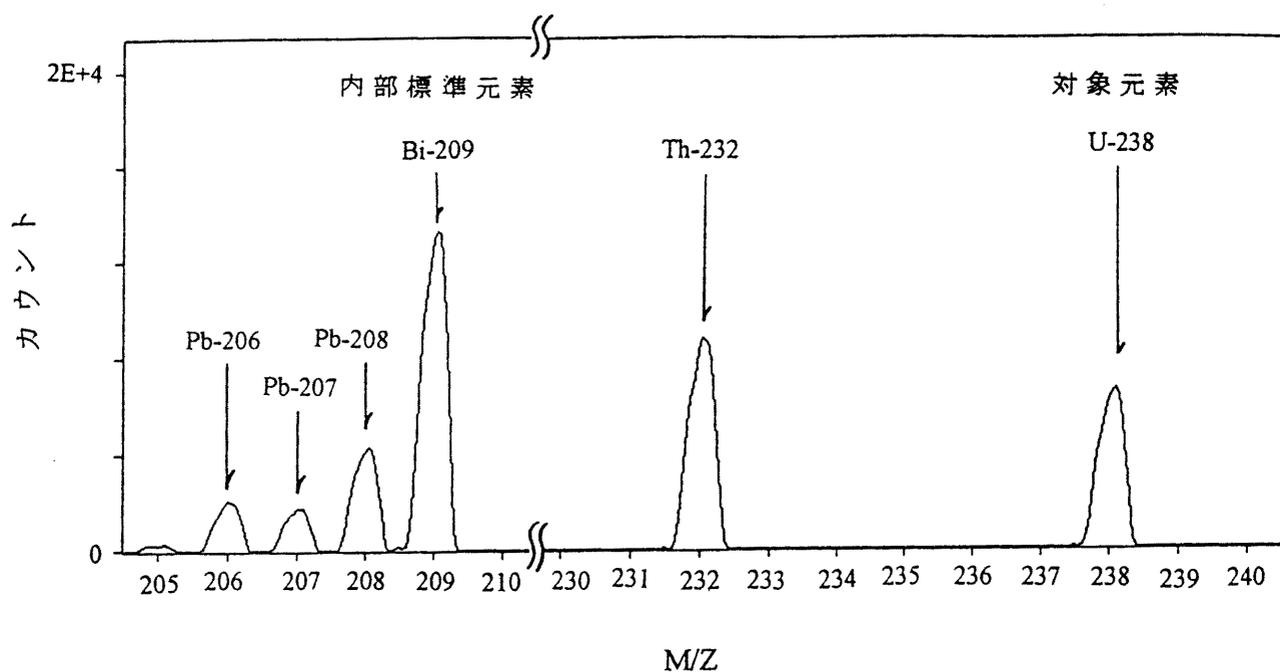


図 5.2 土壌試料の ICP 質量スペクトル (例)

5.4 計算

試料中のウラン濃度(A)を次式に従って求める。

$$A = \frac{n \cdot F}{W}$$

A : 試料中のウランの濃度(μg/g、μg/ml 等)

n : 測定試料中のウラン濃度(μg/ml)

F : 希釈容量(ml)

W : 供試量(g、ml 等)

試料名	供試量 (W)	希釈容量 (F)
海 水	2ml	100ml
陸 水	50ml	100ml
土 壤	5g	50/10×100/1×100ml ^{*11}
生 物	5g (灰)	50/1×100ml ^{*12}
大気浮遊じん	1000m ³	100ml

*11 5.2.2 土壌 ②希釈操作を行った場合の希釈容量を示す。

*12 5.2.3 生物試料 ②希釈操作を行った場合の希釈容量を示す。

第6章 試薬の調製

本分析法に記載された方法に従って分析を行う場合に必要な試薬とその調製方法を示す。

本文中の重量および容量の数字は、単に調製の割合を示したもので、調製にあたっては必要に応じて適宜、増減する。

試薬は日本工業標準規格（J I S）特級試薬を用い、規格に規定されていないものについては、できるだけ純度のよいものを用いる。

6.1 標準溶液

ウラン標準溶液（ $10\ \mu\text{g/ml}$ 、 $1\ \mu\text{g/ml}$ 、 $0.1\ \mu\text{g/ml}$ 及び $0.01\ \mu\text{g/ml}$ ）：

金属ウラン 1.00g または八酸化三ウラン（ U_3O_8 純度 99.9%） 1.18g を少量の硝酸に溶かし、水で正確に 1 L に希釈する（ $1.00\ \text{mg/ml}$ ）。使用に際してこれを正確に硝酸（1+13）で希釈して $10\ \mu\text{g/ml}$ 、 $1\ \mu\text{g/ml}$ 、 $0.1\ \mu\text{g/ml}$ あるいは $0.01\ \mu\text{g/ml}$ の溶液とする。

^{232}U 標準溶液： 0.02Bq/ml

ビスマス標準溶液（ $1\ \mu\text{g/ml}$ 及び $0.1\ \mu\text{g/ml}$ ）：

金属ビスマス 1.00g を少量の硝酸に溶かし、水で正確に 1 L に希釈する（ 1mg/ml ）。使用に際してこれを正確に硝酸（1+13）に希釈して $1\ \mu\text{g/ml}$ あるいは $0.1\ \mu\text{g/ml}$ の溶液とする。

タリウム標準溶液（ $1\ \mu\text{g/ml}$ 及び $0.1\ \mu\text{g/ml}$ ）：

硝酸タリウム 1.30g を少量の硝酸に溶かし、水で正確に 1 L に希釈する（ 1mg/ml ）。使用に際してこれを正確に硝酸（1+13）で希釈して $1\ \mu\text{g/ml}$ あるいは $0.1\ \mu\text{g/ml}$ の溶液とする。

6.2 試薬

(1) 担体溶液

鉄(Ⅲ)担体溶液（ $50\text{mgFe}^{3+}/\text{ml}$ ）：

塩化鉄（Ⅲ）六水和物 48g に塩酸（1+3）20ml を加えて溶解し、水で 200ml とする。

(2) 酸

硝酸：濃度約 60%

硝酸(1+1)：硝酸 1 容と水 1 容の割合で混合する。

硝酸(1+13)：硝酸 1 容と水 13 容の割合で混合する。

硝酸(3+11)：硝酸 3 容と水 11 容の割合で混合する。

塩酸：濃度約 35%

塩酸(1+1)：塩酸 1 容と水 1 容の割合で混合する。

塩酸(1+5)：塩酸 1 容と水 5 容の割合で混合する。

塩酸(1+11)：塩酸 1 容と水 11 容の割合で混合する。

塩酸(2+1)：塩酸 2 容と水 1 容の割合で混合する。

塩酸(3+1)：塩酸 3 容と水 1 容の割合で混合する。

硫酸(1+9)：水 9 容に硫酸 1 容をかきまぜながら徐々に加える。

過塩素酸：濃度約 70%

過酸化水素：濃度約 30%

(3) 塩基

アンモニア水(炭酸イオンを含まないもの)：

アンモニア水 500ml を蒸留フラスコにとり、水酸化ナトリウム 1g を加えて溶解し、電熱器で加熱する。発生ガス及び留出液を、煮沸して二酸化炭素を除いた水に氷水で冷やしながらか吸収させる。ただし、開栓直後のアンモニア水はそのまま使用できる。

アンモニア水(1+1)：アンモニア水 1 容と水 1 容の割合で混合する。

アンモニア水(1+100)：アンモニア水 1 容と水 100 容の割合で混合する。

水酸化ナトリウム溶液(10 w/v%)：

水酸化ナトリウム 100g を水に溶解し 1L とする。

(4) 有機試薬

エタノール

酢酸エチル

C y D T A (トランス-シクロヘキサンジアミン四酢酸溶液) (5w/v%)：

C y D T A 10g を水酸化ナトリウム(4w/v%)60ml に溶かし水で 200ml とする。

T B P (リン酸三ブチル) (10v/v%) - キシレン溶液 :

T B P 10ml にキシレン 90ml を加えよく振り混ぜる。

D I B K (2,6-ジメチル-4-ヘプタノン、ジイソブチルケトン) :

D I B K を D I B K と同量の塩酸 (2+1) とよく振り混ぜて予備平衡にしておく。

(5) その他の試薬

炭酸アンモニウム溶液 (3w/v%) :

炭酸アンモニウム 15g を水に溶かして 500ml とする。

硝酸ナトリウム溶液 (50w/v%) :

硝酸ナトリウム 500g を硝酸 70ml と水に溶かして 1L とする。

硝酸アルミニウム (9 水和物) *¹

硝酸アルミニウム溶液 (50w/v%) :

硝酸アルミニウム (9 水和物) 500g を硝酸 50ml と水に溶かして 1L とする。

ヨウ化アンモニウム溶液 (5w/v%) :

ヨウ化アンモニウム 5g を水に溶解し、100ml とする。

ヨウ化アンモニウム溶液 (5w/v%) - 塩酸混合溶液 [3+7] :

ヨウ化アンモニウム溶液 (5w/v%) 30ml と塩酸 70ml を混合する。使用直前に調製する。

アルセナゾ III 溶液 (0.1w/v%) :

アルセナゾ III 0.1g に水 100ml を加え、一夜かき混ぜて溶解する。

塩酸ヒドラジン溶液 (10w/v%) :

塩酸ヒドラジン 10g を水に溶解し、100ml とする。使用前に調製する。

L-アスコルビン酸溶液 (0.5w/v%) :

L-アスコルビン酸 0.5g を水に溶解し、100ml とする。

砂状亜鉛

*¹ 市販の硝酸アルミニウムには、微量のウランを含む場合があるのでロットごとにテストする必要がある。

塩化ナトリウム溶液 (3.5w/v%) :

塩化ナトリウム 35g を水に溶かして 1L とする。

融剤(蛍光光度測定用) :

フッ化ナトリウム 9g、炭酸ナトリウム及び炭酸カリウムをそれぞれ 45.5g の割合でよく混合する。白金皿中で一度融解し、冷却後乳鉢で碎き、更に粒径 250 μ m 以下になるようにすりつぶす。吸湿性があるので容器に密栓して保存する。

チモールブルー溶液 (0.1w/v%) :

チモールブルー粉末 0.1g をエタノール 20ml に溶かし、水を加えて 100ml とする。

6.3 樹脂

陰イオン交換樹脂 (Dowex1- \times 8、100~200 メッシュ)

- ①樹脂 500ml を 3L ビーカーに入れ、水 2L を加えよくかき混ぜる。静置して樹脂が沈降したら傾斜法により上澄み液を捨てる。この操作を 3 回繰り返す。
- ②水酸化ナトリウム (10w/v%) 1L を加えてよくかき混ぜ、傾斜法により上澄み液を捨てる。
- ③水 2L を加えてよく攪拌し、傾斜法により上澄み液を捨てる。
- ④塩酸 (1+1) 2L を加えてよくかき混ぜ、傾斜法により上澄み液を捨てる。
- ⑤①の要領で樹脂を洗浄する。
- ⑥水に浸したまま保存する。
- ⑦使用直前に樹脂 5ml をカラムにつめ、水 50ml、次いで塩酸 (2+1) 50ml を流す。

キレート樹脂 (DowexA-1 あるいは Chelex100、50~100 メッシュ)

- ①樹脂 500ml を 3L ビーカーに入れ、水 2L を加えよくかき混ぜる。静置して樹脂が沈降したら傾斜法により上澄み液を捨てる。この操作を 3 回繰り返す。
- ②塩酸 (1+5) 2L を加え、1 時間浸した後、上澄み液を傾斜法で捨てる。浸出中は、時々ガラス棒でかき混ぜる。

- ③水 2L を加えてよく攪拌し、傾斜法により上澄み液を捨てる。
- ④水酸化ナトリウム溶液(10w/v%)2L 中に 1 時間浸した後、上澄み液を傾斜法で捨てる。浸出中は、時々ガラス棒でかき混ぜる。
- ⑤水 2L を加えてよく攪拌し、傾斜法により上澄み液を捨てる。
- ⑥塩酸(1+5)2L を加え、1 日浸した後、上澄み液を傾斜法で捨てる。浸出中は、時々ガラス棒でかき混ぜる。この操作を上澄み液の pH がおよそ 7 になるまで繰り返す。
- ⑦塩化ナトリウム溶液(3.5w/v%)で洗浄後、同溶液中に保存する。

解

說

解説 1 T B P 希釈溶剤四塩化炭素の代替試薬の検討

①目的と実験概要

特定物質の規制等によるオゾン層の保護に関する法律第 3 条第 1 項の規定に基づく同項第 1 号から第 3 号に掲げる事項を定める告示（昭和 6 4 年 1 月 4 日 環境庁・通商産業省告示第 1 号）を改正する告示（平成 5 年 9 月 2 2 日 環境庁・通商産業省告示第 1 号）により、四塩化炭素等オゾン層を破壊する物質の生産量及び消費量の基準限度が改められた。

この改正は、四塩化炭素の生産量及び消費量を平成 8 年（1 9 9 6 年）1 月 1 日から 0 にすることなど、従来分析用試薬等に使用している物質に係わるものである。

そこで、T B P 抽出法に従来から用いられている希釈剤四塩化炭素の代替試薬の検討を行うこととした。

検討は、希釈溶剤としてトルエン、キシレン、4-メチル-2-ペンタノール（メチルイソブチルケトン、M I B K）、シクロヘキサン、ドデカン、ケロシン及びクロロホルムの 7 種類を選定し、それらについてウランおよびトリウムの回収率（トリウムについては除去の程度を確認する）を求めることとした。また、比較のため、従来から用いられている四塩化炭素についても行った。

検討手順は、解図 1 の分析流れ図に従った。実験回数はウランについては 3 回、またトリウムについては 1 回である。

②結果と考察

実験の結果得られたウラン及びトリウムの除去率を、それぞれ解表 1 及び解表 2 に示す。

なお、解表 1 に示した値は 3 回の平均値であるが、各回において得られた値はほぼ一致し、再現性が見られた。また、解図 1 中の①から⑦の数字は、解表中の数字と対応している。

ウランとトリウムの回収率から、四塩化炭素の代替試薬として、トルエン、キシレン、シクロヘキサン、ドデカン及びケロシンが使用できることが判った。本マニュアルでは、それらの中から試薬の純度、価格、沸点等を考慮して、キ

キシレン、トルエン、及びシクロヘキサンを選択した。それら試薬の性質等を解表3に示す。

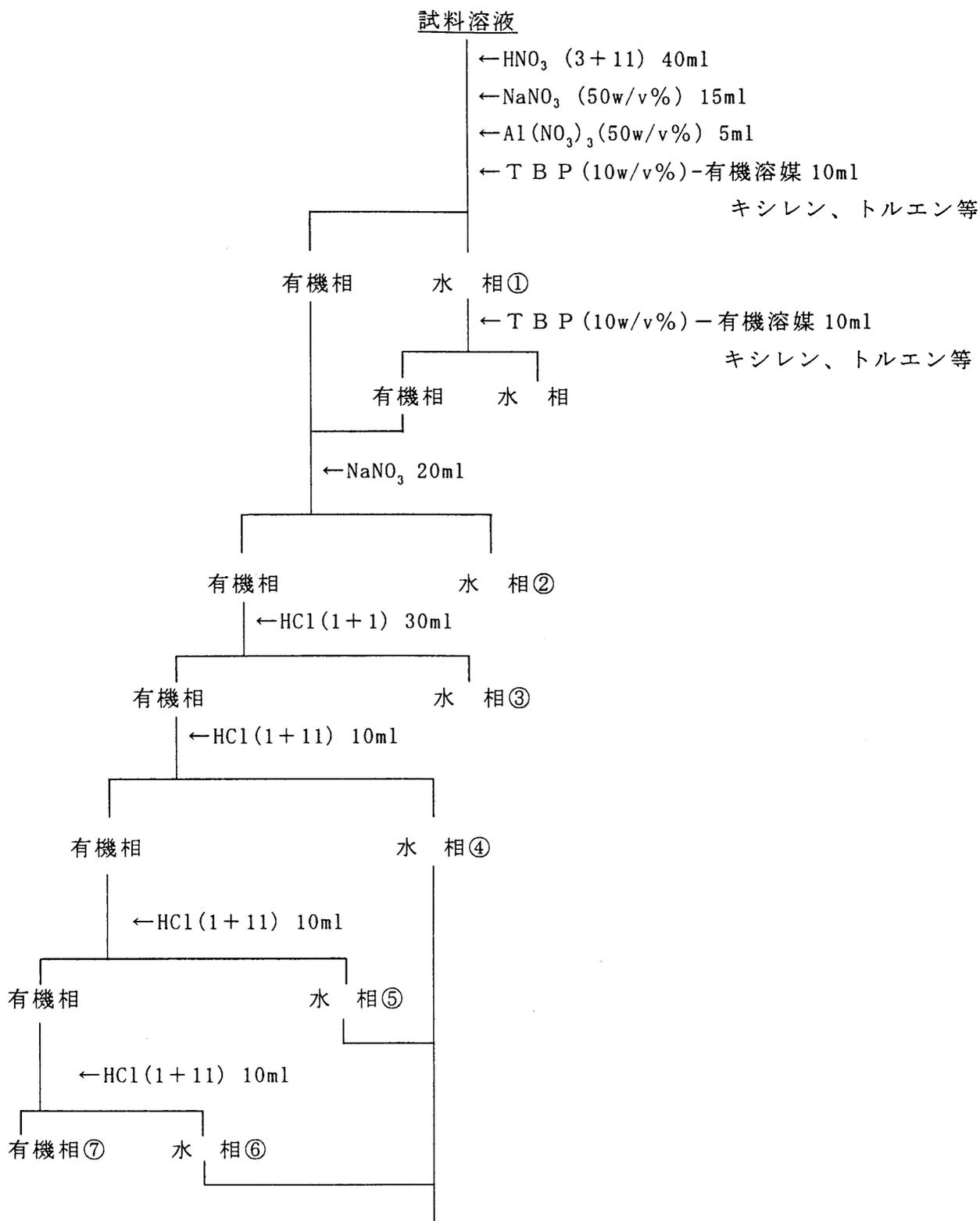
なお、使用する希釈溶剤としては安全性の配慮により、沸点と引火点の高い、キシレンが望ましく、その次に、トルエン、シクロヘキサンを選ぶのがよい。

解表1 TBP抽出法における各フラクション中のウラン
(3回の実験の平均値)

フラクションNo.	[%]							逆抽出したウラン ④+⑤+⑥
	①	②	③	④	⑤	⑥	⑦	
溶媒								
キシレン	1	0.7	8	19	41	24	4	84±3
トルエン	1	0.7	6	15	41	28	7	84±2
シクロヘキサン	1	0.7	11	19	41	24	4	83±3
ケロシン	2	0.8	11	23	41	17	2	81±1
ドデカン	2	0.8	13	26	39	14	2	80±2
MIBK	11	1	14	15	16	14	15	45±4
クロロホルム	55	4	20	9	0.8	0.5	0.5	10±2
四塩化炭素	2	0.9	10	40	37	6	0.6	82±2

解表2 TBP抽出法における各フラクション中のトリウム
(1回の実験値)

フラクションNo.	[%]							逆抽出したフラクション に含まれるトリウム ④+⑤+⑥
	①	②	③	④	⑤	⑥	⑦	
溶媒								
キシレン	80	3	16	1	0.1	0	0.1	1
トルエン	79	2	18	2	0.2	0.1	0.2	2
シクロヘキサン	67	2	28	2	0.2	0	0	2
ケロシン	65	2	24	2	0.1	0	0	2
ドデカン	66	2	29	2	0.1	0	0	2
MIBK	68	3	8	0.2	0.1	0	0	0.3
クロロホルム	97	0.1	0.6	0.2	0.1	0	0	0.3
四塩化炭素	68	2	16	0.8	0.1	0.1	0	1



解図 1 T B P 抽出法における分析流れ図

解表 3 四塩化炭素の代替試薬の性質

試薬名	比重 (水 = 1)	蒸気比重 (空気 = 1)	沸点 (°C)	引火点 (°C)	特徴
キシレン	0.88	3.7	144	27.2	有毒、可燃性
トルエン	0.87	3.18	110.6	4.4	有毒、可燃性
シクロヘキサ ン	0.77	2.91	80	-20	有毒、可燃性
(参考) 四塩化炭素	1.6	5.3	76.8	—	極めて有毒

解説 2 イオン交換法－ α 線スペクトロメトリーにおける鉄及びトリウムの除染係数

本マニュアルの「イオン交換法」－「 α 線スペクトロメトリー」においては、測定試料に鉄、トリウム等の不純物が混入すると、 α 線ピークにテーリングが生じる等ウランの α 線スペクトロメトリーに影響を及ぼす。そこで、本マニュアルでは、DIBK溶媒抽出操作において鉄を、イオン交換カラム分離操作においてトリウムを除去することとした。

ここでは、DIBK溶媒抽出操作及びイオン交換カラム分離操作における鉄、トリウムそれぞれの除染係数*を求めた。

①実験

土壌試料 5g に硝酸を加えて加熱し、ウランを溶出した。その溶液を乾固した後、塩酸(2+1)に溶解し、DIBKによる溶媒抽出法により鉄を除去した。この操作を2回行った。水相から一部を分取して乾固した後、硝酸溶液とし、ICP質量分析装置により鉄を定量した。残りの水相を乾固し、塩酸(2+1)とした。その溶液を陰イオン交換カラム(Dowex 1- \times 8、C1形 100~200メッシュ、樹脂量 5ml、樹脂高約 5.5 cm)に 0.5ml/分の流速で流した。塩酸(2+1)によりトリウムの除去を行った後、ウランの溶離液として塩酸(1+5)を流した。その溶離液を乾固後、硝酸溶液とし、ICP質量分析装置でトリウムを定量した。

②結果及び考察

結果を解表 4 に示す。

鉄は 10^3 以上、トリウムは 10^2 の除染係数が得られ、土壌試料に適用できることが分かった。

$$\text{* 除染係数} = \frac{\text{分離操作前の鉄あるいはトリウムの量}}{\text{分離操作後の鉄あるいはトリウムの量}}$$

解表 4 鉄及びトリウムの除染係数

	①DIBK 処理	②塩酸系陰イオン 交換分離
鉄	$> 1 \times 10^3$	—
トリウム	—	2×10^2

解説 3 ウランの陰イオン交換樹脂カラムからの溶離

本マニュアルの「イオン交換法」は、陰イオン交換樹脂を用いてトリウム、プルトニウム等からウランを分離・精製するものである。

ここでは、陰イオン交換樹脂カラムにおけるウランの溶離曲線を作成し、最適な溶離液量について検討した。

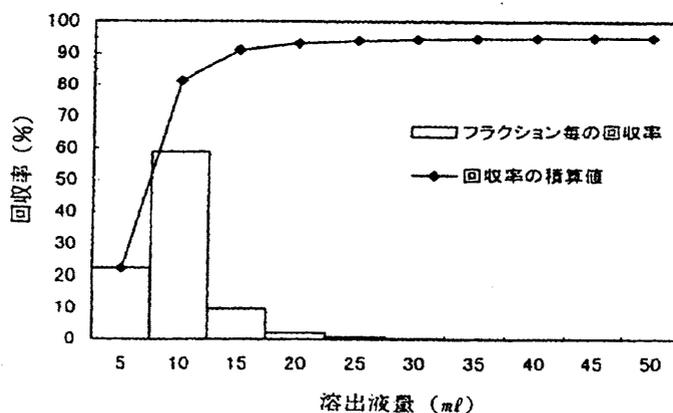
①実験

土壌試料 5g に硝酸を加えて加熱し、ウランを溶出した。その溶液を乾固した後、塩酸(2+1)に溶解し、DIBKによる溶媒抽出法により鉄を除去した。この操作を2回行った。水相を乾固し、塩酸(2+1)に溶解した。その溶液を陰イオン交換樹脂カラム(Dowex 1- \times 8、C1形 100~200メッシュ、樹脂量 5ml、樹脂高約 5.5 cm)に 0.5ml/分の流速で流した。塩酸(2+1)、 $\text{NH}_4\text{Cl-HCl}$ 混合溶液によりトリウム及びプルトニウムの除去を行った後、樹脂に吸着しているウランを塩酸(1+5)で溶離し、各フラクション毎のウラン量を ICP 質量分析装置で定量した。

②結果及び考察

得られたウラン溶離曲線を解図 2 に示す。

溶離液 25ml 流すことで、ほぼ 100% のウランが回収できた。本マニュアルにおいては、流速に多少の変化があっても一定の回収率が得られるように溶離液量を 50ml とした。



解図 2 ウランの溶離曲線

解説 4 環境モニタリングにおけるウラン同位体比情報の利用

ウランは通常環境に広く分布・存在しており、濃度レベルのみの評価からは、バックグラウンドレベルからかけ離れた特に高い値でないかぎり汚染の有無、または識別が困難である。したがって、汚染の評価には天然および核燃料関連のウランの組成および同位体比での検討が重要となる。解表 5 に種々のウラン製品中のウランの放射能比の例を示す。これからウランの汚染を評価する上で最も決定的になる核種はその存在量から見て ^{236}U になるだろう。 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ および $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比も天然のそれと比べると数倍から数十倍高いが、天然ウランで希釈されてしまうとそれらの識別は高感度・高精度の質量分析法での同位体測定が必須である。

解表 5 ウラン製品中の放射能比の例*

核種	半減期	^{238}U に対する放射能		
		天然ウラン	使用済み燃料 U	再処理後の燃料 U
^{232}U	71.7 年		0.13	0.89
^{233}U	1.5911×10^5 年		1.4×10^{-4}	9.7×10^{-4}
^{234}U	2.446×10^5 年	1.0 (普通)	3.9	25
^{235}U	7.038×10^8 年	0.047	0.0537	0.29
^{236}U	2.3415×10^7 年		1.1	4.1
^{238}U	4.4683×10^9 年	1	1	1

* G. Bulter, Re-enrichment of reprocessed uranium, ENC-86(1986)

付 録

付録1 ウランの使用にあたって

本分析法において、標準溶液に使用される金属ウランおよび八酸化三ウランならびに α 線スペクトロメトリーでトレーサーとして使用される ^{232}U は、原子力基本法の「核燃料物質、核原料物質、原子炉及び放射線の定義に関する政令」の中で核燃料物質または核原料物質として定義され、「核原料物質、核燃料物質及び原子炉の規制に関する法律」により規制される。

核燃料物質である金属ウランおよび八酸化三ウランについては、年間使用量がウランの量として300gを超える場合は、核燃料物質使用許可*が、また、300g以下の場合は、国際規制物資使用許可*がそれぞれ必要である。

ただし、プルトニウムの使用等により、すでに核燃料物質使用許可を得ている場合は、300g以下の数量であっても核燃料物質の使用に係る変更の許可が必要である。

核原料物質である ^{232}U の使用にあたっては、それが英国、米国、フランス、オーストラリアおよびカナダから輸入されたものである場合は、その放射能濃度および数量にかかわらず国際規制物資使用許可が必要である。また、上記5か国以外から輸入された ^{232}U については、放射能濃度が74Bq/g（固体状の核原料物質にあっては370Bq/g）を超え、数量が300gを超える場合においては、核原料物質の使用の届け出が必要である。

ただし、すでに国際規制物資の使用許可を得ている場合は国際規制物資使用変更届をしなければならない。

なお、申請に関する詳細については、文部科学省科学技術・学術政策局原子力安全課原子力規制室および文部科学省科学技術・学術政策局原子力安全課保障措置室に相談のこと。

* 国立機関においては承認とし、その他については許可とする。

付録2 ウランの α 線スペクトルに見られるピーク

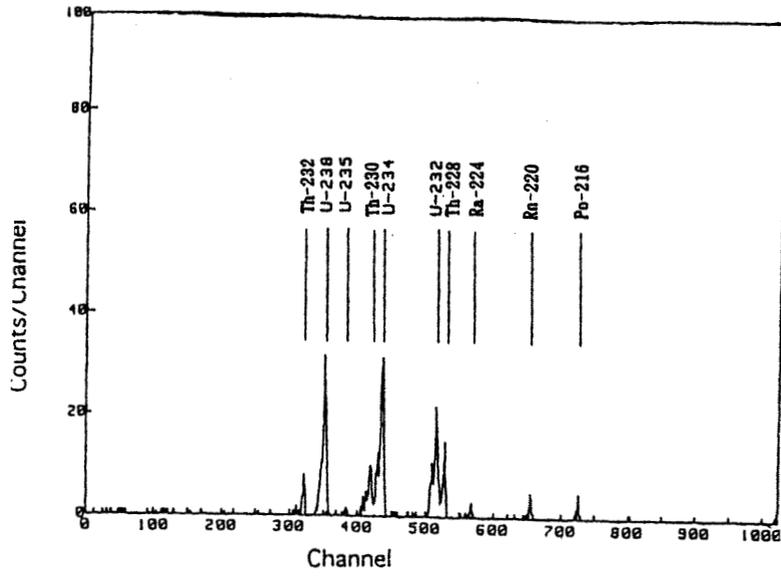
環境試料中のウランをSi半導体検出器による α 線スペクトロメトリーで定量する場合、 α 線スペクトル上で観測される主要な α 放出体は、 ^{234}U 、 ^{235}U 、 ^{238}U 及び回収率補正用トレーサーの ^{232}U である。しかし、ある種の土壌、海底土にはトリウムやフォールアウトに起因するプルトニウムが多く含まれることがあり、これらの除去が十分でないとうランとそれらの α 線ピークとが重なる為、ウランの定量に影響を及ぼす。土試料等の分析においてトリウムの除去が不十分であった時の α 線スペクトルを付図1に、プルトニウムが混入した場合の α 線スペクトル（模擬スペクトル）を付図2に示す。

また、回収率補正用に添加した ^{232}U から生成する娘核種 ^{228}Th （半減期1.9131y）の α 線エネルギー（5.34、5.42MeV）は ^{232}U （5.26、5.32MeV）のそれと近く、エネルギー分解能の低い検出器を用いた場合にはそれらのピークが重なり ^{232}U の回収率補正に影響を及ぼす。そのようなことを避けるため、ウランを分離・精製した後、2週間以内に測定を行うことが望ましい。 ^{232}U 分離後からの ^{228}Th の生成率を付表1に示す。ウラン電着後、数カ月後に測定して得られる α 線スペクトルを付図3に示す。

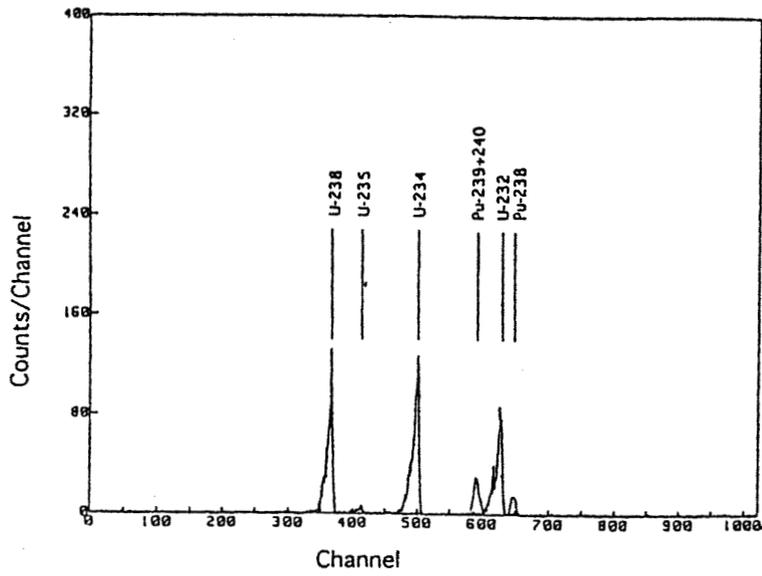
付表1に ^{228}Th とその娘核種である ^{224}Ra （5.69MeV、放出率94.9%）の生成率を示す。

付表 1 ^{232}U からの ^{228}Th 及び ^{224}Ra の生成率 (%)

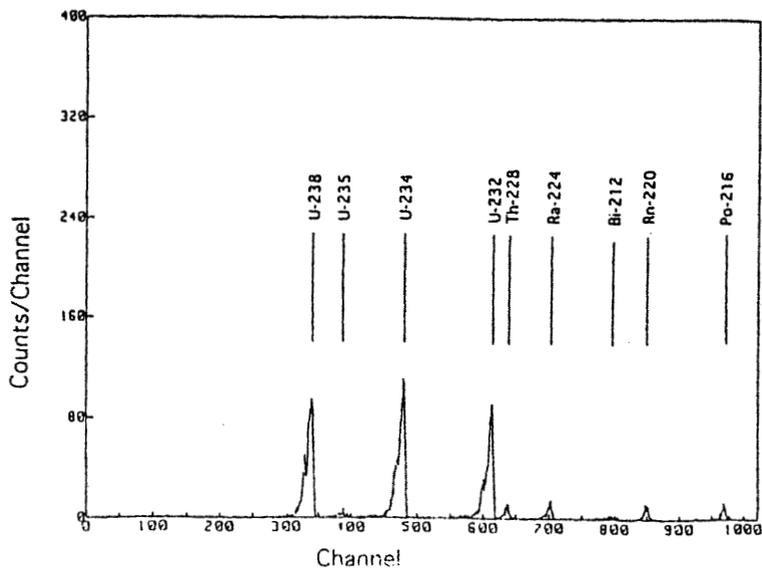
経過日数 (日)	^{232}U	^{228}Th	^{224}Ra
0	100	0	0
5	100	0.482	0.178
10	100	0.975	0.551
15	100	1.46	0.998
20	100	1.95	1.47
30	99.9	2.92	2.43
40	99.9	3.87	3.39
50	99.9	4.82	4.32
100	99.7	9.41	8.96
150	99.6	13.8	13.4



付図1 ウランとトリウムのア線スペクトル



付図2 ウランとプルトニウムのア線スペクトル (模擬)



付図3 ウランのア線スペクトル(ウラン分離後4か月経過)

付録3 環境中ウランの同位体について

天然ウランは質量数 234(存在比 0.0055%)、235(0.7200%)、238(99.2745%)の同位体より成り、すべて α 線放出核種である。 ^{238}U と ^{234}U はウラン系列に属し、 ^{235}U はアクチニウム系列に属する。ウラン系列の ^{238}U (半減期 4.468×10^9 年)はその娘核種として同位体 ^{234}U (半減期 2.446×10^5 年)を有しており、この両者の同位体比は通常の各種天然試料において放射平衡が成立して、放射能による測定を行えば、 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比が1.0になると考えられていた。しかし、実際には、河川水で1.2~1.5、海水で1.14と殆どの場合1以上の値を示すことが実測され、国内においては50に近い高い値をもつ温・鉱泉水も見いだされている。このような放射非平衡がおこるメカニズムとしていくつかのモデルが考えられてきたが、最近では直接の α 反跳現象で引き起こされるマトリックス鉱物の放射線損傷由来の機構よりも、反跳の結果として酸化環境(マトリックス鉱物の反跳核飛跡末端での多数の酸素原子の関与)での高い原子価状態への変化が最も寄与が大きいと考えられてきている。すなわち、本来鉱物中で U^{4+} として存在している親核種 ^{238}U から α 壊変でできる反跳核 ^{234}Th が β^- 壊変しながら $^{234}\text{UO}_2^{2+}$ へと酸化され、結果として水に溶出されやすい炭酸錯イオンを生成し、その結果高い $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比が環境水で観察されるとされる。

核燃料関連由来のウランのモニタリングにおいては、ウランが自然環境に広く分布しているため、濃度レベルよりウラン同位体比での評価、検討がより有効である。核燃料関連由来のウランは $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 及び $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比が天然のそれらと比べると数倍から数十倍高いことが予測されるが、天然ウランで希釈されるとそれらの識別は困難と考えられる。そこで、使用済みウラン燃料などに存在する人工的につくられた半減期の長い ^{236}U (半減期 2.342×10^7 年)などが施設からの汚染を評価する上で極めて重要な核種とされる。

付録4 ウラン同位体の核データ

ウランには14の同位体があり、このうち主要な α 放出体は ^{232}U 、 ^{233}U 、 ^{234}U 、 ^{235}U 、 ^{236}U 及び ^{238}U である。これら同位体の核データを付表2に示す。

付表2 ウラン主要同位体の核データ

同位体	半減期 (年)	主な α 線エネルギー(MeV) (放出率)	
^{232}U	71.7	5.2638 (31.2%)	5.3207 (68.6%)
^{233}U	1.5911×10^5	4.729 (1.61%) 4.8244 (84.4%)	4.783 (13.23%)
^{234}U	2.446×10^5	4.7229 (28%)	4.7744 (72%)
^{235}U	7.038×10^8	4.217 (5.7%) 4.345 (1.5%) 4.397 (57%) 4.503 (1.2%) 4.598 (4.6%)	4.324 (3%) 4.367 (18%) 4.416 (4%) 4.557 (3.7%)
^{236}U	2.3415×10^7	4.445 (26%)	4.494 (74%)
^{238}U	4.4683×10^9	4.149 (23%)	4.196 (77%)

付録5 ^{238}U 放射能 (Bq) から ^{238}U 重量 (μg)、ウラン重量 (μg) への換算

放射能 A (Bq) と重量 m (g) には次の関係がある。

$$A = \frac{\ln 2}{T} \times \frac{m}{M} \times N_A \quad \dots \dots \dots \textcircled{1}$$

A : 放射能 (Bq)

T : 半減期 (秒)

m : 重量 (g)

M : 原子質量

N_A : アボガドロ定数 ($6.0221 \times 10^{23} \text{mol}^{-1}$)

(1) ^{238}U 放射能 (Bq) から ^{238}U 重量 (μg) への換算

^{238}U の 1Bq に相当する ^{238}U 重量 (μg) を求めるため、

①式に $A = 1$ (Bq)、 $T = 4.4683 \times 10^9$ (年)、 $M = 238.05$ を代入する。

$$1 = \frac{\ln 2 \times m \times 6.0221 \times 10^{23}}{4.4683 \times 10^9 \times 365.25 \times 24 \times 60 \times 60 \times 238.05}$$

上式より、 $m = 8.042 \times 10^{-5} \text{g} = 80.42 \mu\text{g}$

よって、 ^{238}U の放射能 (Bq) に 80.42 を乗じると ^{238}U 重量 (μg) となる。

(2) ^{238}U 放射能 (Bq) からウラン重量 (μg) への換算 [天然ウランの場合]

天然ウラン中の ^{238}U の同位体存在比は 99.275% であるので、上記 (1) で求めた ^{238}U 重量 (μg) を 0.99275 で除すことにより、

$$80.42 \div 0.99275 = 81.01$$

となる。

よって、 ^{238}U の放射能 (Bq) に 81.01 を乗じると全ウラン重量 (μg) となる。

I C P 質量分析法は多くの元素に対して非常に感度が良いことから、極少量の供試量で分析が行える。最近では、高周波加熱分解装置により数百 m g の試料を酸等により分解し、直接 I C P 質量分析装置に供することが行われている。しかし、本マニュアルでは、土壌中のウランの定量は硝酸可溶性ウランを対象としていること、また生物試料等については分析供試量が極少量で済むことに由来するモニタリング用試料としての代表性等の問題から、この分解装置を用いた前処理法と I C P 質量分析法の組み合わせを採用しなかった。

しかし、高周波加熱分解装置は全溶解ウラン量を求めたい場合には非常に有効な前処理用装置である。ここでは、参考として、この装置を用いた土壌、生物試料の全溶解法について記載する。なお、この操作に続く I C P 質量分析法による操作は、本文に準じて行う。

1. 土壌試料の溶解手順

- ①土壌 0.5g を高周波加熱分解装置に付属している分解容器に正確にはかり取る。
- ②硝酸 10ml、フッ化水素酸 2ml を加え、高周波加熱分解装置により分解する。分解に要する時間は機種によって異なるが、1 時間程度である。
- ③得られた分解液を少量の水で 30ml テフロンビーカーに移す。
- ④ホットプレート上で蒸発乾固する。
- ⑤硝酸(1+13)で溶解し、蒸発乾固する。
- ⑥乾固物を硝酸(1+13)で溶解し、I C P 質量分析装置により定量する。

2. 生物試料の溶解手順

- ①野菜、精米、海藻等の生物試料 0.5g を高周波加熱分解装置に付属している分解容器に正確にはかり取る。
- ②硝酸 6ml、過酸化水素 1ml を加え、高周波加熱分解装置により分解する。分解に要する時間は機種によって異なるが、1 時間程度である。
- ③ホットプレート上で蒸発乾固する。
- ④乾固物を硝酸(1+13)で溶解し、I C P 質量分析装置により定量する。

付録 7 相互比較分析

本マニュアルに新たに加えた I C P 質量分析法の信頼性を確認するために、以下に記す相互比較分析を実施した。

1. 分析試料

相互比較分析用試料として、海水、灰および土壌試料を用いた。

なお、灰および土壌試料については、分析試料中のウランの均一性や硝酸浸出法に起因する定量値の変動を除くため、硝酸によりウランを溶出した抽出液を相互比較分析用試料とした。

1) 海水

浮遊物をメンブランフィルターでろ過した海水 1L につき、塩酸 1ml を加えたもの。

2) 生物

海藻（こんぶ）を 450℃で 24 時間灰化して得られた灰 5g につき、硝酸 30ml を加えて加熱し、その抽出液をメンブランフィルター(0.45 μ m)でろ過したろ液。

3) 土壌

土壌 5g につき硝酸 30ml を加えて加熱し、その抽出液をメンブランフィルター(0.45 μ m)でろ過したろ液。

2. 分析実施機関

農林水産省 農業環境技術研究所

財団法人 日本分析センター

3. 結果

相互比較分析結果を付表 3 に示す。また、表中には従来から用いられている α 線スペクトロメトリーによる分析結果も記した。

なお、付表 4 に、昭和 57 年のウラン分析法マニュアル制定の際に行われた吸光光度法、蛍光光度法等についての相互比較分析結果を昭和 57 年

版ウラン分析法マニュアルから抜粋して示した。さらに、土壌試料について、一連の分析操作を行った結果も付表5に示した。

付表3 相互比較分析結果

[ng/ml]

試料名	分析機関	ICP質量分析法による結果 平均値 (変動係数%) *	α線スペクトロメリーによる結果 平均値 (変動係数%) *
海水	A	3.35 (1.6)	—————
	B	3.19 (0.9)	3.36 (7.0)
こんぶ 抽出液	A	76.1 (0.7)	—————
	B	79.9 (1.2)	79.6 (5.5)
土壌 抽出液	A	109 (1.2)	—————
	B	113 (0.5)	115 (2.6)

* 5 試料の平行分析結果から求めた

付表4 相互比較分析結果（昭和57年版マニュアルから抜粋）

試料名	分析 機関数	ウラン濃度	平均値	分離方法	測定方法
海水	7	2.8 $\mu\text{g/L}$	3.0 $\mu\text{g/L}$	キレート樹脂法 (4.1章)	アルセナゾⅢ吸光光度法
		2.5		〃 (〃)	アルセナゾⅢ吸光光度法 (直接法)
		2.7		〃 (〃)	〃 (還元法)
		3.3		〃 (〃)	〃 (〃)
		3.2		〃 (〃)	アルセナゾⅢ吸光光度法 (直接法)
		2.7		〃 (〃)	〃 (還元法)
		2.9		〃 (〃)	α 線スペクトロメトリー
陸水	4	0.5 ₅ $\mu\text{g/L}$	0.5 $\mu\text{g/L}$	キレート樹脂法 (4.1章)	蛍光光度法
		0.6 ₀		〃 (〃)	〃
		0.4 ₇		〃 (〃)	〃
		0.4 ₈		〃 (〃)	〃
土壌	3	1.1 $\mu\text{g/g}$	1.0 $\mu\text{g/g}$	TBP抽出法 (4.2章)	アルセナゾⅢ吸光光度法 (還元法)
		1.4		〃 (〃)	アルセナゾⅢ吸光光度法 (直接法)
		0.8 ₅		TBP抽出法 (4.2章)	〃 (還元法)
		0.8 ₁		〃 (〃)	α 線スペクトロメトリー

付表5 土壌試料を用いた相互比較分析結果

U-238(Bq/kg 乾土)

試料 \ 方法	I C P 質量分析法	α 線スペクトロメトリー
1	131 ± 1.4	135 ± 6.3
2	57.1 ± 2.0	60.7 ± 2.4
3	132 ± 0.9	135 ± 4.8
4	140 ± 1	141 ± 5.8
5	130 ± 1	136 ± 3.5

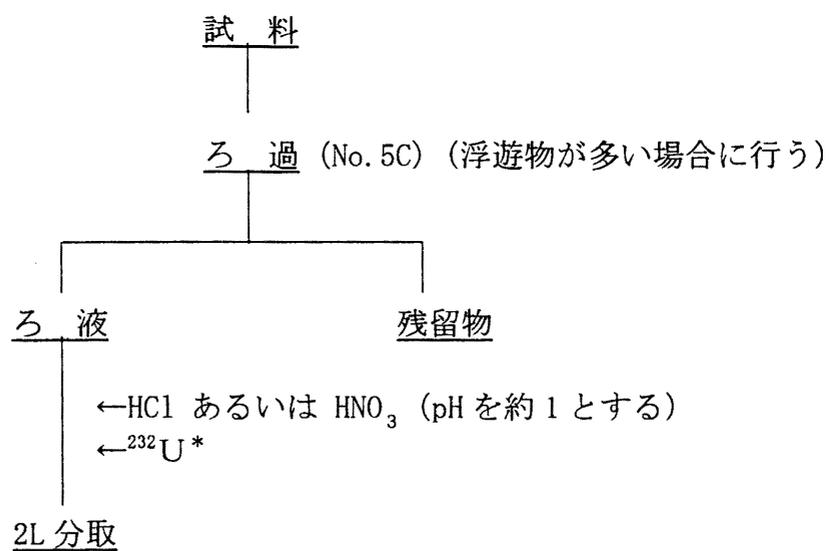
(注1) I C P 質量分析法の分析結果は、繰り返し5回測定の平均値とその標準偏差を示す。また、 α 線スペクトロメトリーの分析結果は、6回並行分析の平均値とその標準偏差を示す。

(注2) 分析供試量は、5g 乾土である。

付録8 分析法の流れ図

1. 試料前処理法

1.1 水試料（海水、陸水）

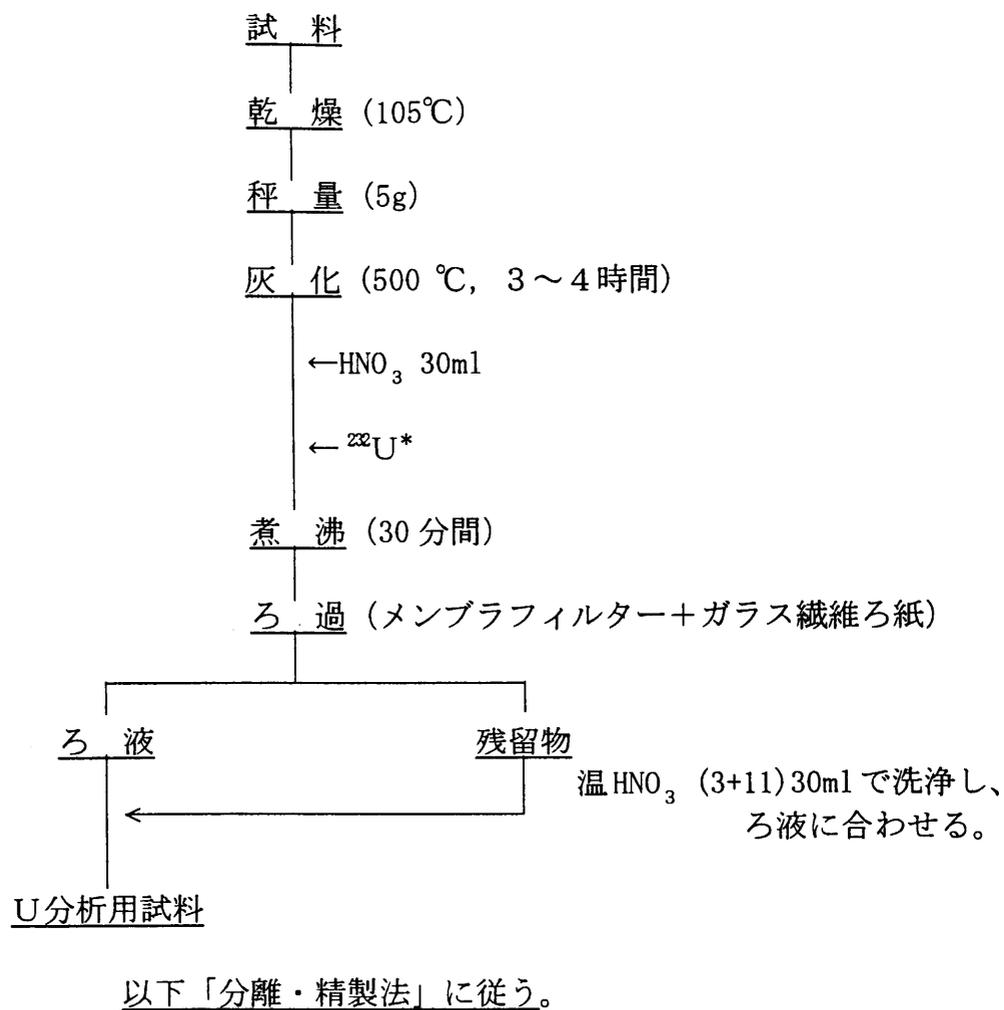


U分析用試料

以下「分離・精製法」に従う。

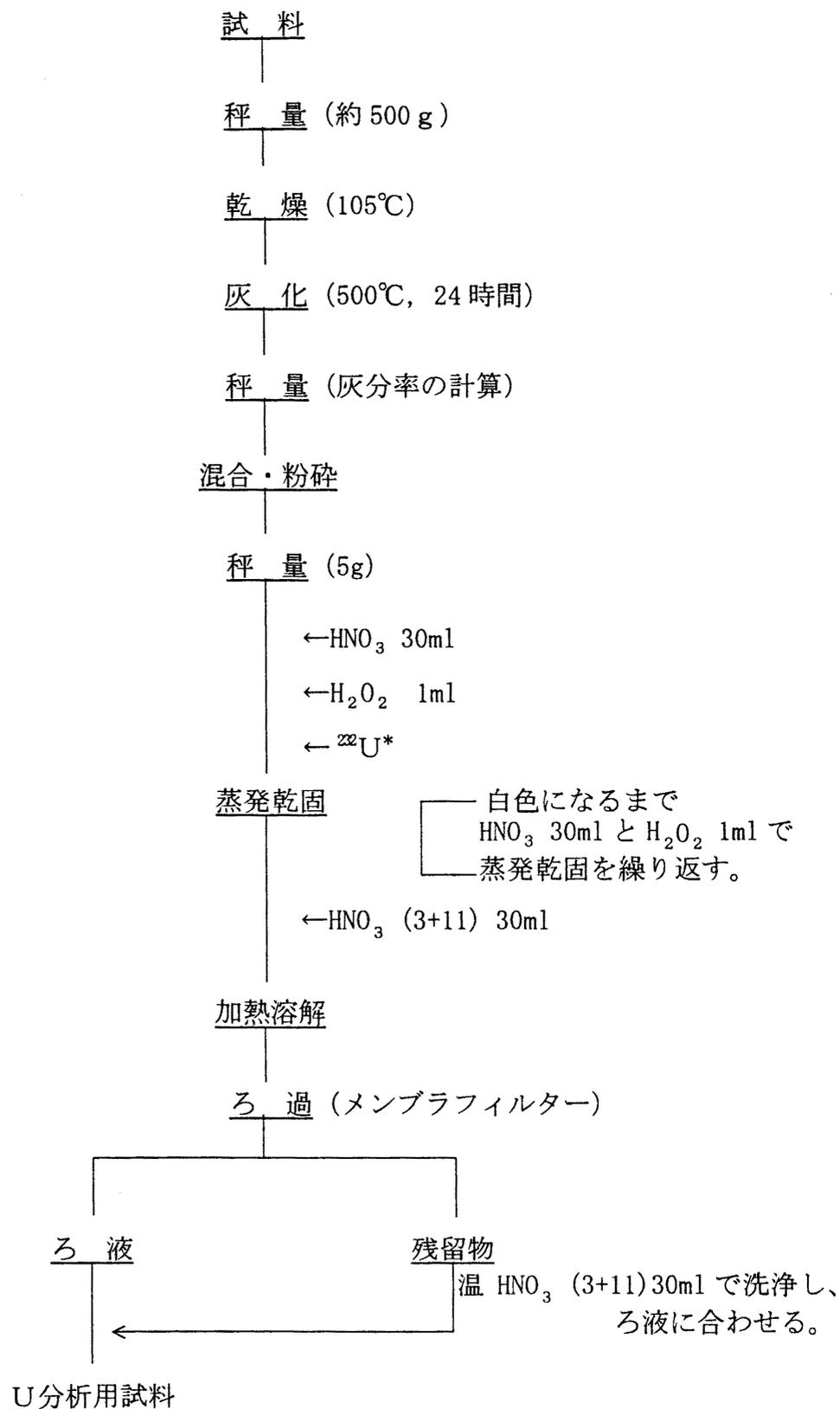
* α 線スペクトロメリーを行う場合には、 ^{232}U 標準溶液(0.02Bq/ml)を2ml添加する。

1.2 土試料（土壌、海底土）



* α線スペクトロメトリーを行う場合には、²³²U標準溶液(0.02Bq/ml)を2ml添加する。

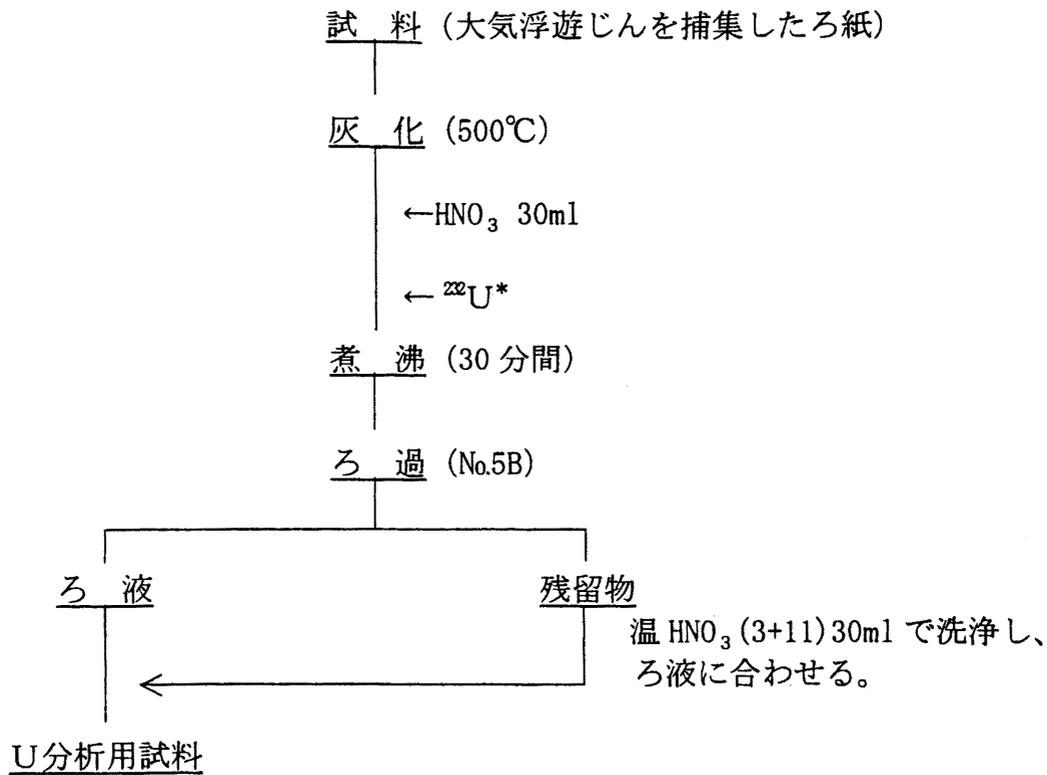
1.3 生物試料（海産生物、農作物）



以下「分離・精製法」に従う。

* α線スペクトロメトリーを行う場合には、²³²U標準溶液(0.02Bq/ml)を2ml添加する。

1.4 大気浮遊じん

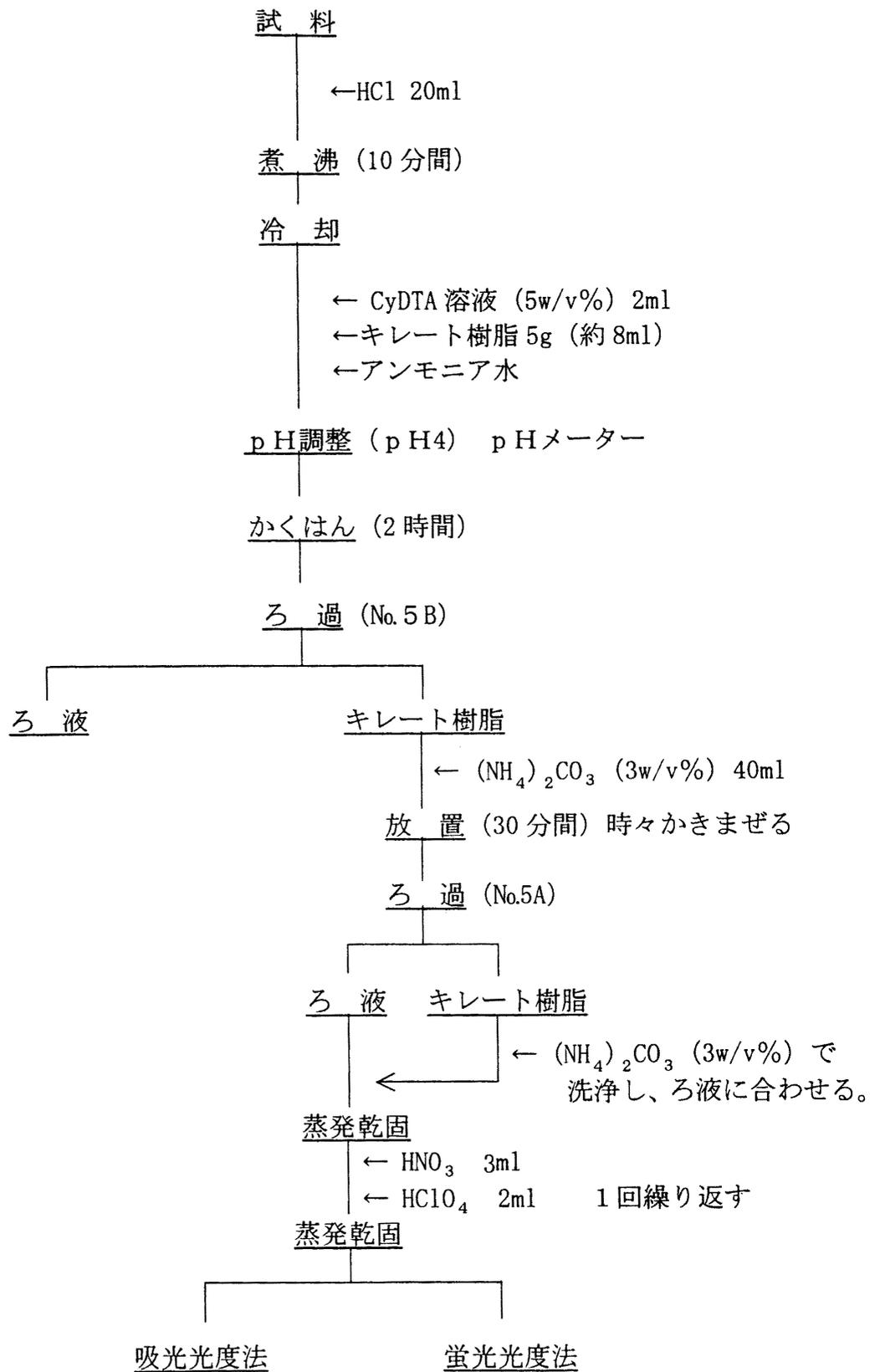


以下「分離・精製法」に従う。

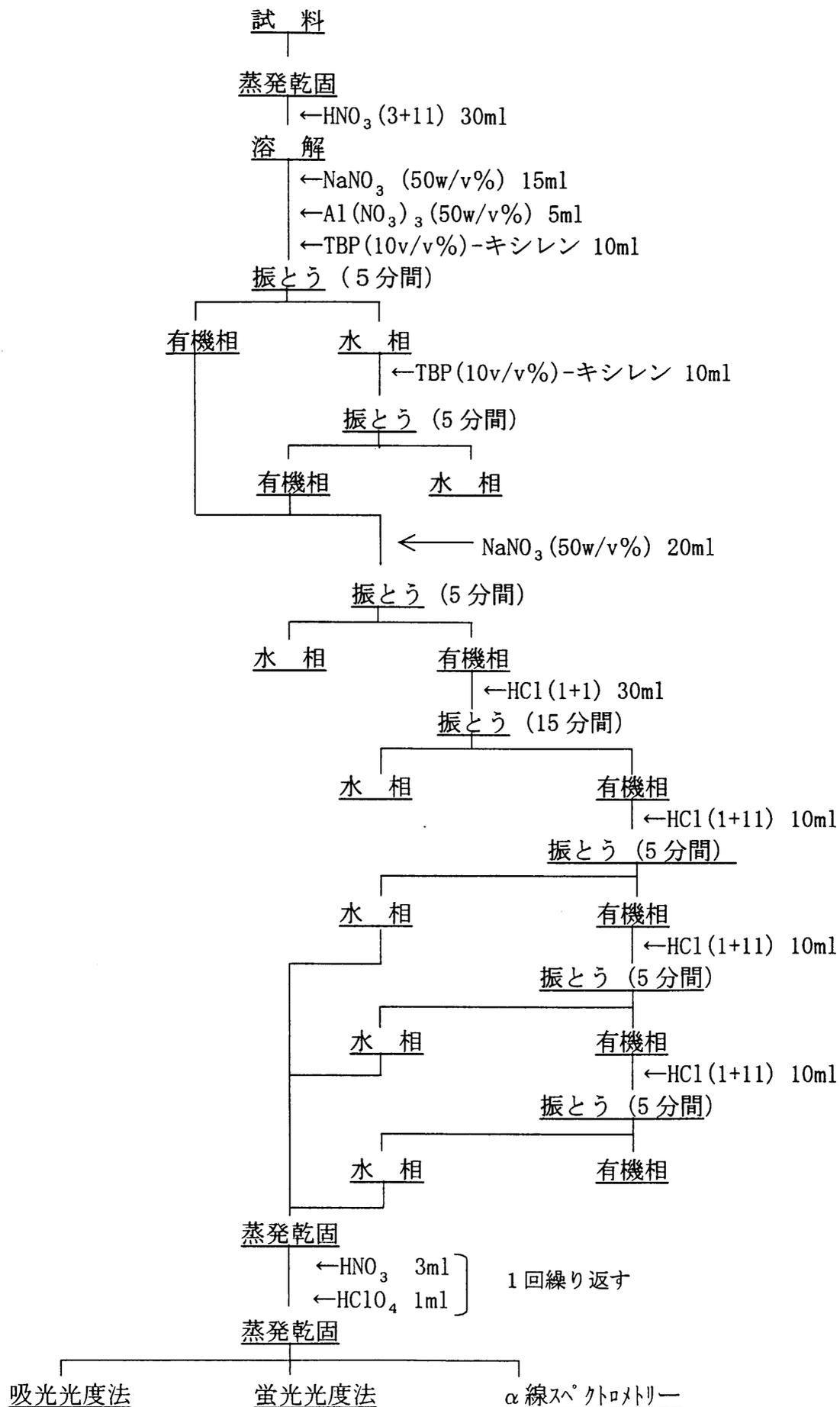
* α 線スペクトロメトリーを行う場合には、²³²U標準溶液(0.02Bq/ml)を2ml添加する。

2. 分離・精製法

2.1 キレート樹脂法 (水試料)



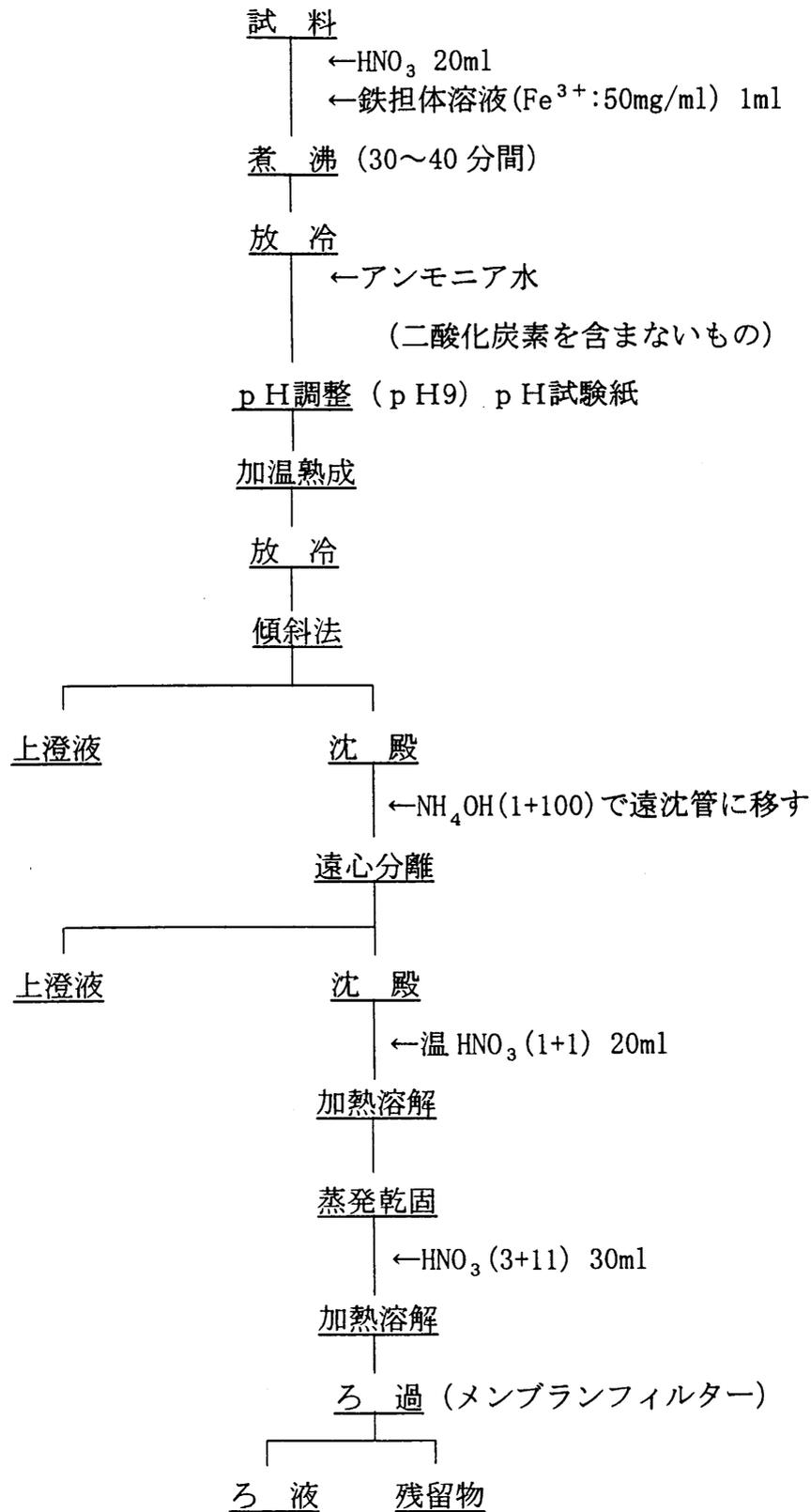
2.2 TBP抽出法 (土試料、生物試料、大気浮遊じん)



2.3 キレート樹脂・TBP抽出法（水試料）

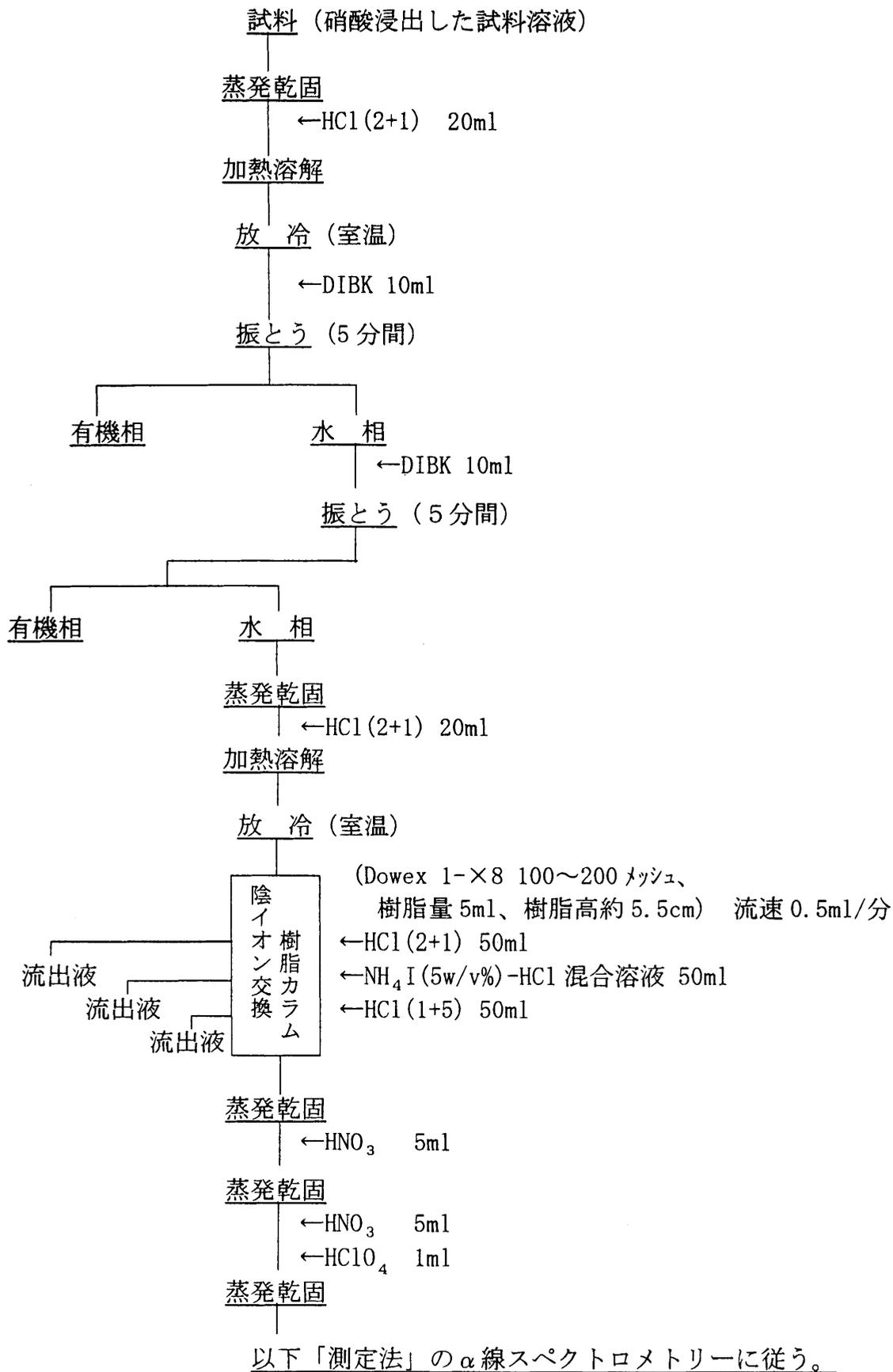
2.1 「キレート樹脂法」により分析操作を行った後、2.2「TBP抽出法」を行う。

2.4 水酸化鉄(III)共沈・TBP抽出法 (水試料)



以下「TBP抽出法」のTBP抽出操作に従う。

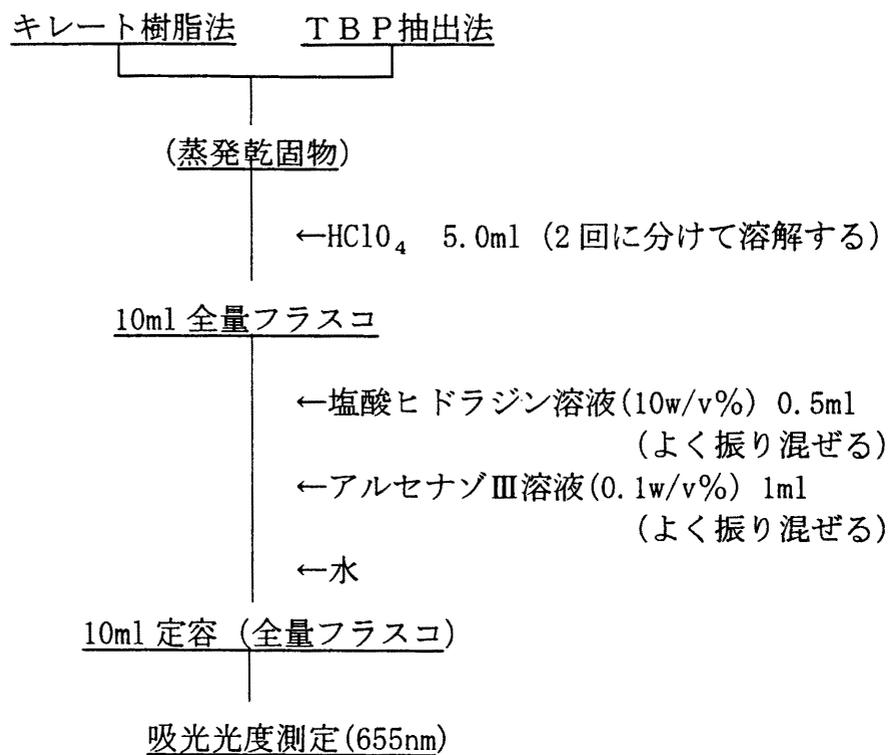
2.5 イオン交換法 (土試料)



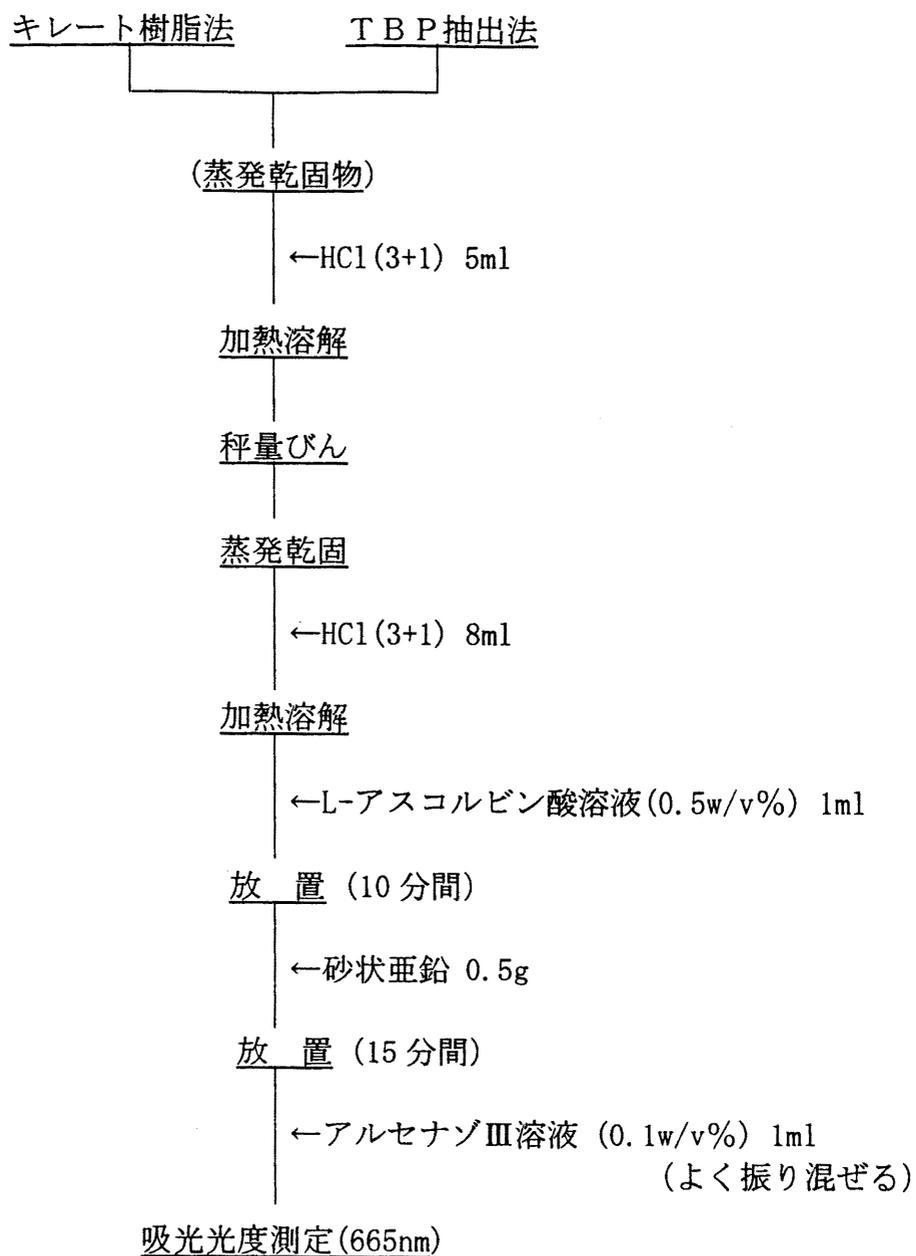
3. 測定法

3.1 吸光光度法

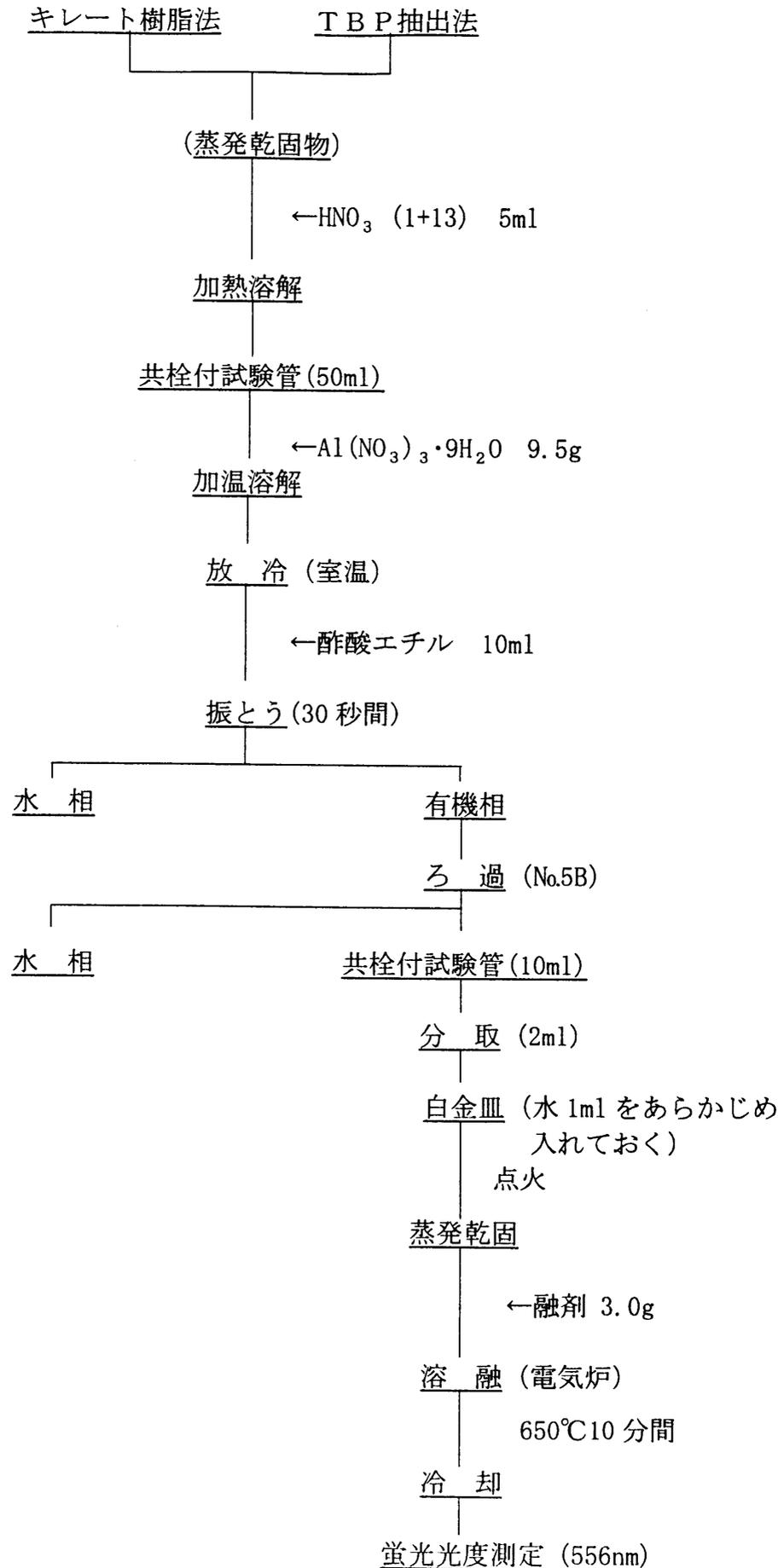
3.1.1 直接法



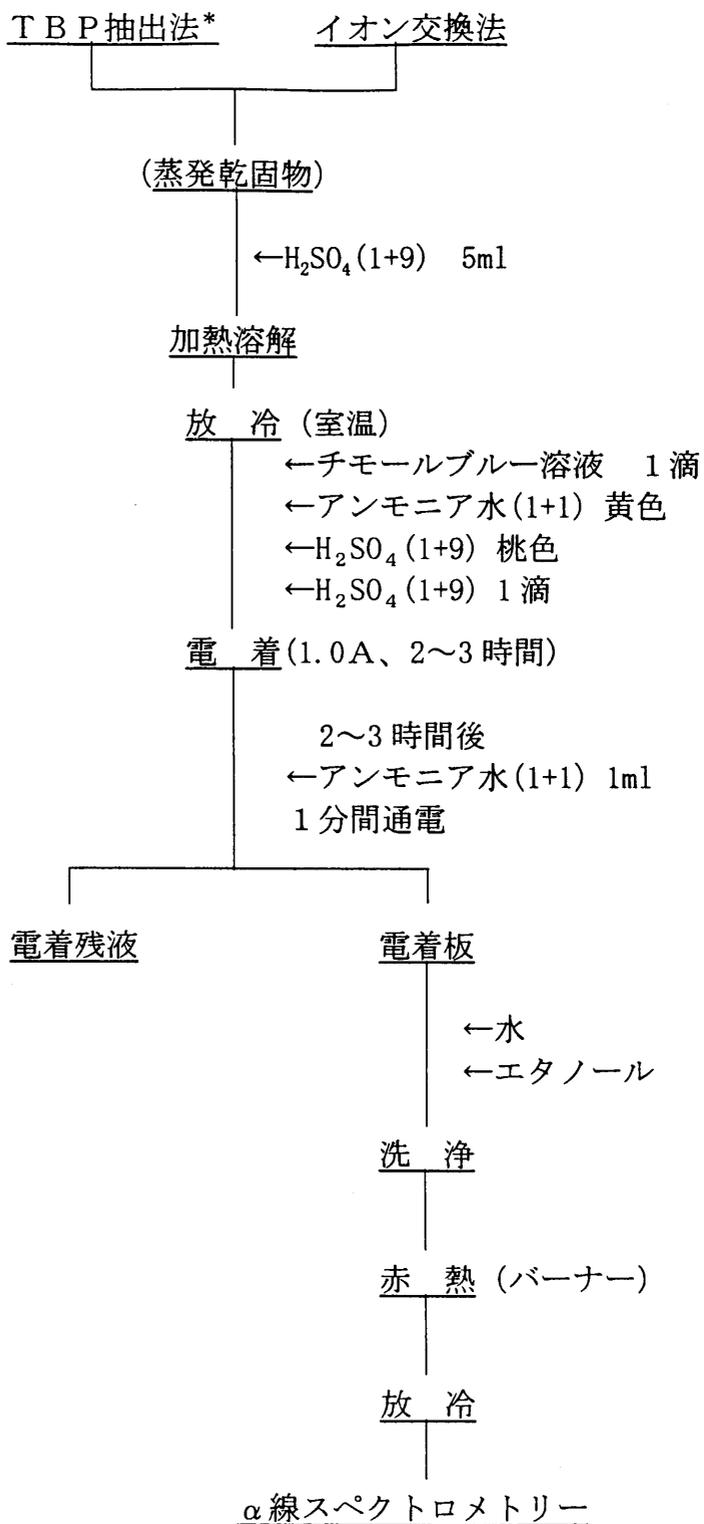
3.1.2 還元法



3.2 蛍光光度法



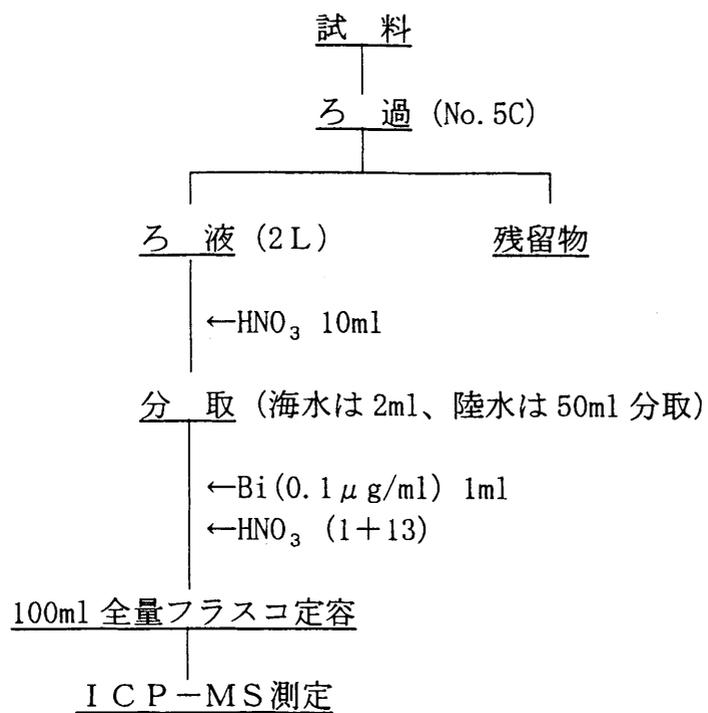
3.3 α 線スペクトロメトリー（電着操作）



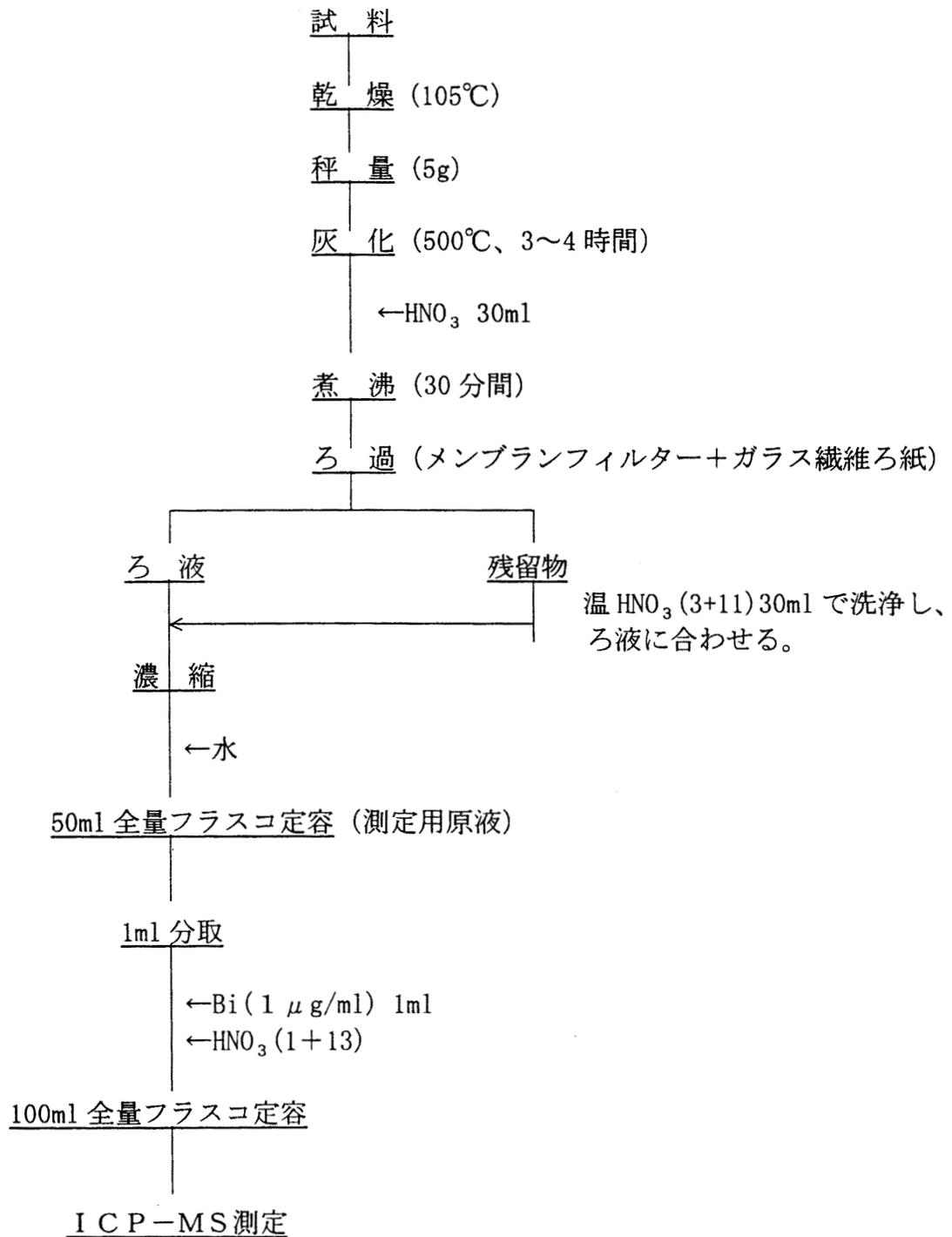
* 「キレート樹脂・TBP抽出法」及び「水酸化鉄(Ⅲ)共沈・TBP抽出法」も含む。

4. ICP質量分析法

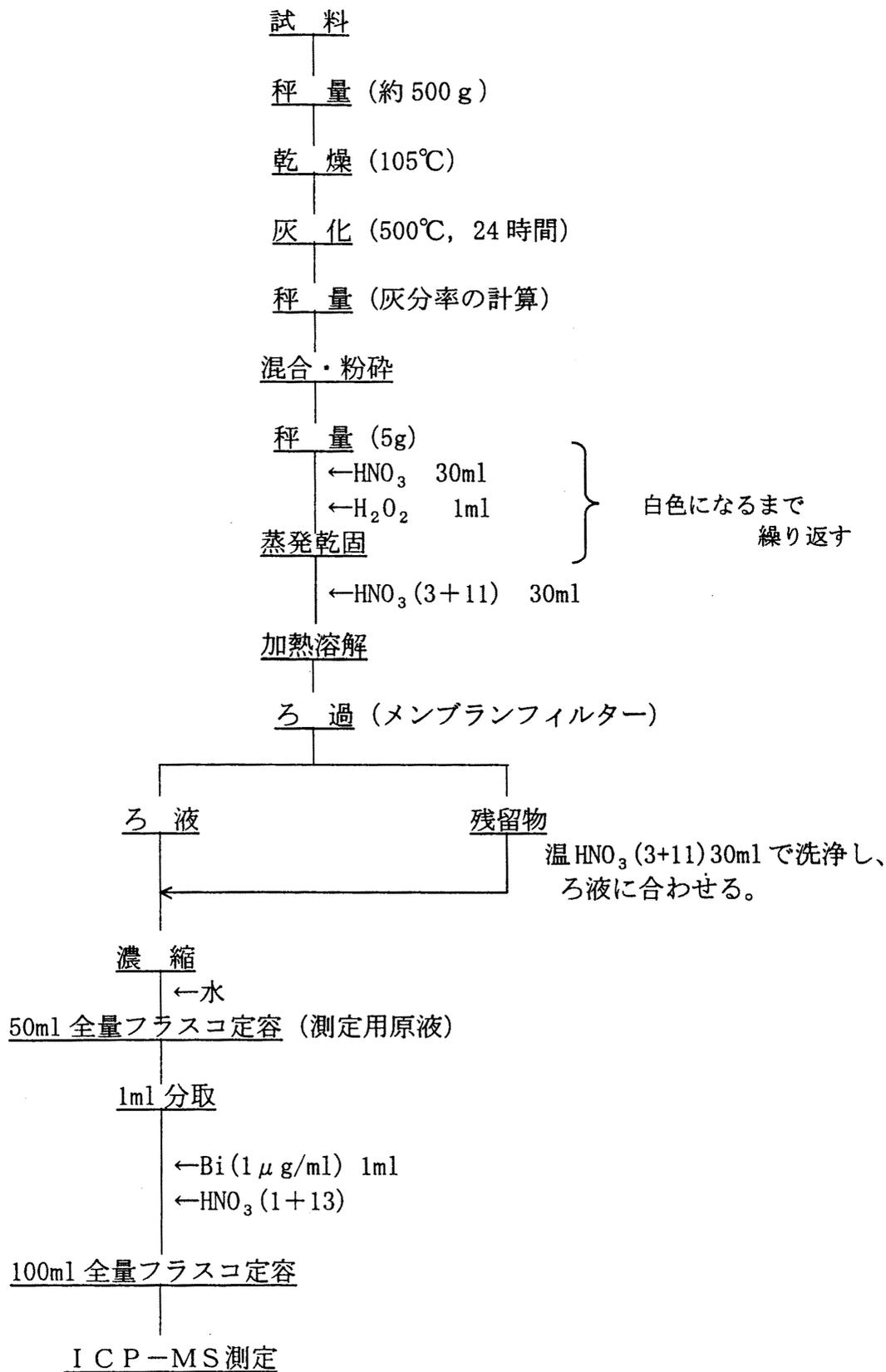
4.1 水試料（海水、陸水）



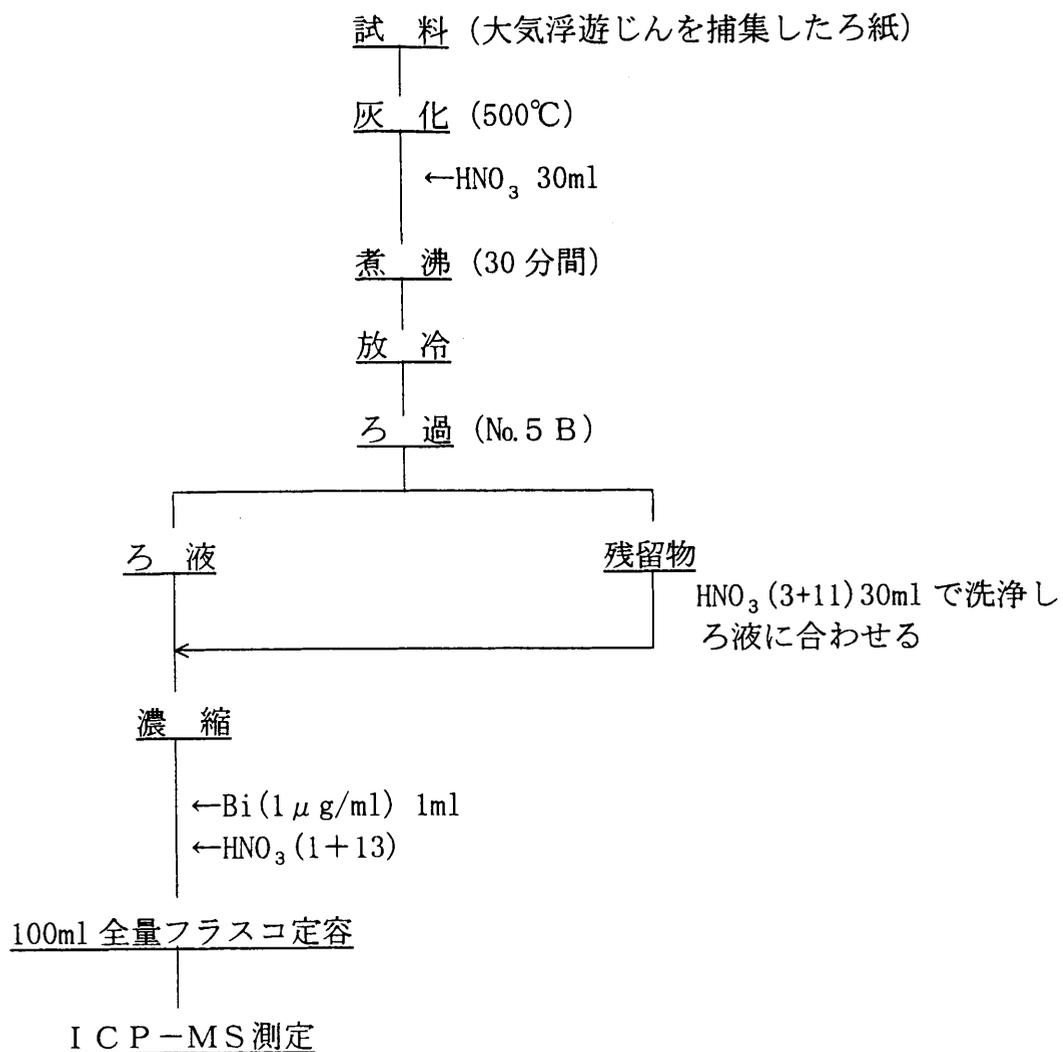
4.2 土試料（土壌、海底土）



4.3 生物試料（海産生物、農作物）



4.4 大気浮遊じん



付録9 参考文献

〔概論〕

- 金井豊：地質ニュース, 426, 34-41 (1990)
「ウランと先端産業 — マクロとミクロの世界」
- 地質調査所：地質調査所化学分析法「地球化学的試料の化学分析法 I」トリウム, 218-226 (1976)
- 地質調査所：地質調査所化学分析法「地球化学的試料の化学分析法 I」ウラン, 229-238 (1976)
- J. E. GRINDLER: Subcommittee on Radiochemistry National Academy of Sciences-National Research Council, Washington USA (1962)
"The Radiochemistry of Uranium"
- 三宅泰雄他：「カツ・シーボーグ アクチニドの化学」
朝倉書店 (1962)
- 阪上正信：Natl. Inst. Radiol. Sci., 46, 239-250 (1982)
「ウラン・トリウムの分析」
- 山本政儀：NIRS-M (Natl. Inst. Radiol. Sci.), 80, 105-116 (1991)
「長半減期放射性核種」
- 橋谷博, 安達武雄：Annual Review, 137R-151R (1972)
「12 核燃料分析・原子炉材料分析」

〔陰イオン交換樹脂に関する論文〕

- 日本規格協会：「鉱石中のトリウム定量方法 (JIS M 8403)」
- 日本規格協会：「ジルコニウム及びジルコニウム合金中のウラン定量方法 (JIS H 1672)」
- 望月常一, 大場きみじ：地質調査所化学分析法「岩石中のウラン分析法」, 46, 1-7 (1977) 「分析法」
- 金井豊, 坂巻幸雄, 瀬尾俊弘：地球化学, 24, 123-132 (1990)
「岐阜県東濃ウラン鉱床地域における地下水・地表水中のウラン系列核種 (^{238}U , ^{234}U , ^{226}Ra , ^{222}Rn) の挙動」

- L. WISH : Anal. Chem. , 31, 3, 327-330 (1959)
 "Quantitative Radiochemical Analysis by ion exchange - Anion exchange behavior in mixed acid solutions and development of a sequential separation scheme"
- 桐山哲也 : 日化, 11, 1609-1611 (1979)
 「陰イオン交換分離 アルセナゾⅢ吸光光度法によるケイ酸塩岩石中のジルコニウム, ウランの定量」
- H. HAMAGUCHI, K. ISHIDA, R. KURODA : Anal. Chim. Acta. , 33, 91-97 (1965)
 "Anion-Exchange Behavior of Rare Earths, Thorium, Protactinium and Uranium in Thiocyanate-Chloride Media"
- 小村和久, 阪上正信 : Japan Analyst, 16, 114-117 (1967)
 「陰イオン交換による鉄担体からのラジウム, トリウム, プロトアクチニウムおよびウランの逐次分離」
- B. PARSA : J. Radioanal. Nucl. Chem. , 157 (1), 65-73 (1992)
 "A Sequential Radiochemical Procedure for Isotopic Analysis of Uranium and Thorium in Soil"
- T. BALTAKMENS : Anal. Chem. , 47 (7), 1147-1149 (1975)
 "Simple Method for the Determination of Uranium in Soils by Two Stage Ion Exchange"
- J. D. NAVRATIL : J. Radioanal. Chem. , 43, 31-35 (1978)
 "Evaluation of Anion Exchange Resins for Plutonium-Uranium Separations in Nitric Acid"
- G. R. PARSLOW, I. DWAIRI : Journal of Geochemical Exploration, 8, 541-547 (1977)
 "Extraction of Uranium Ions from Water: A Rapid and Convenient Method Using Prepackaged Ion Exchange Resins"
- K. D. KAMAT : Government of India Atomic Energy Commission, BARC-731, 1-19 (1974)
 "Application of the Weak Base Anion Exchange Resin, Amberlite XE-270 for Recovery of Uranium from Sulphate Leach Solutions-A Preliminary Study"

- M. VIGVARI, M. ERDELYI, B. CZEGLEDI: J. Chromatogr., 102, 433-436 (1974)
 "Countercurrent Elution of Uranium(VI) and Iron(III)
 from an Anion-Exchange Resin"
- M. STOEPPLER, K. MAY: Radiochem. Radioanal. Lett., 33, 413-416 (1978)
 "Plutonium Decontamination During Uranium Separation
 from Fission Products"
- W. FLOETER: ERZMETALL, 32, 326-328 (1979)
 "Solid Ionexchange and Solvent Extraction for Uranium"
- 加藤清, 垣花秀武: 日化, 7, 1182-1185 (1981)
 「イオン交換樹脂粒を使用するウラン(IV) およびウラン(VI) の微量検出法
 — アルセナゾⅢによる検出 — 」

〔溶媒抽出に関する論文〕

- 日本規格協会: 「鉱石中のウラン定量方法(JIS M 8402)」
- 鞍馬寿雄, 石原義博, 小南文四郎, 石川利夫, 伊藤二郎:
 Japan analyst, 6, 3-6 (1957)
 「鉱石中のウランの定量」
- 関根節郎, 貴志晴雄, 望月常一, 阿部智彦: 地質調査所技術部化学課, 1-12 (1960)
 「鉱石中のウラン分析」
- 金井豊, 今井登, 寺島滋: 分析化学, 34(4), 199-202 (1985)
 「トリオクチルホスフィンオキシド抽出分離
 — アルセナゾⅢ吸光光度法による地質試料中の微量ウランの定量」
- 木羽敏泰: Japan Analyst, 6, 597-603 (1957)
 「TBP(Tributyl Phosphate) 」
- N. SUZUKI, K. YOSHIDA, H. IMURA: Anal. Chim. Acta, 129, 221-229 (1981)
 "Substoichiometric isotope dilution analysis for uranium
 by synergic extraction"
- M. CASSIR, J. CRUCES, G. PEREZ C., M. JIMENEZ-REYES, A. SANCHEZ-OCAMPO:
 J. Radioanal. Nucl. Chem., 99, 1, 39-44 (1986)
 "Separation of lanthanum, cerium and samarium from uranium samples"

- A. MARTINEZ-AGUIRRE, M. GARCIA-LEON: J. Radioanal. Nucl. Chem., Lett.,
155(2), 97-106 (1991)
"Natural Radioactivity enhancement by human activities in rivers
of southwest of Spain"
- A. DYER: Analyst, 114(3), 265-267 (1989)
"Aspects of Radioanalytical Chemistry"
- A. SAITO, G. R. CHOPPIN: Anal. Chem., 55, 2454-2457 (1983)
"Separation of Actinides in Different Oxidation States from
Neutral Solutions by Solvent Extraction"
- N. DESAI, G. H. KRAMER: At. Energy, Can. Lid., Aecl-7986, 19 (1983)
"An improved radiochemical method for the isolation of
uranium from other actinides in urine"
- H. GABELMANN, M. LERCH, K. -L. KRATZ: Nucl. Instrum. Methods. Phys. Res. Sect. A.,
223(2/3), 544-548 (1984)
"Determination of Uranium in Urine Samples of Fuel Element
Fabrication Workers by Beta-Delayed Neutron Counting"
- A. A. HALOUMA, R. B. FARRAR, E. A. HESTER, R. W. MORROW: Anal. Chem. Symp. Ser.,
19, 201-202 (1984)
"Determination of Trace Impurities in Matrices by Inductively
Coupled Plasma-Atomic Emission Spectrometry"
- C. J. COLEMAN: Anal. Chem. Symp. Ser., 19, 195-199 (1984)
"Analyses of Nuclear Fuel and High-Level Waste by Inductively
Coupled Plasma-Emission Spectroscopy"
- E. HAAS, B. GEORGI, W. KUHN: Atomkernenerg. Kerntech., 39, 1, 17-19 (1981)
"The Determination of Uranium in Soils of the Northern part of
Lower Saxony"
- R. L. WILLIAMS, G. E. GROTHAUS: Nucl. Instrum. Methods. Phys. Res. Sect. A.,
223(2/3), 200-203 (1984)
"Determination of Actinides at the Radiological and Environmental Sciences
Laboratory"

- 福島政法, 中岡章: 電力中央研究所報告, 283035, 1-13(1984)
「環境試料中の微量ウラン定量分析法」
- N. P. SINGH, C. J. ZIMMERMAN, L. L. LEWIS, M. E. WRENN: Nucl. Instrum. Methods. Phys. Res. Sect. A., 223(2/3), 558-562(1984)
"Quantitative Determination of Environmental Levels of Uranium, Thorium and Plutonium in Bone by Solvent Extraction and Alpha Spectrometry"
- 大西寛, 樋田行雄: Japan Analyst, 14, 1141-1145(1965)
「トリウムからウランの抽出分離およびアルセナゾⅢによるウランの光度定量」
- 大西寛, 樋田行雄: Japan Analyst, 18, 1134-1136(1969)
「ジルコニウムおよびジルカロイ中のウランの吸光光度定量」
- S. C. DUBEY, M. N. NADKARNI: Talanta, 24, 266-267(1977)
"Extractive Spectrophotometric Determination of Uranium with Malachite Green"
- K. NAITO: Bull. Chem. Soc. Jpn, 33(3), 363-371(1960)
"On The Mechanism of the Extraction of Uranyl Nitrate by TBP (Partition Study)"

[ICP-MSに関する論文]

- K. E. JARVIS, A. L. GRAY, R. S. HOUK: Blackie & Son Ltd, NY USA(1992)
"Handbook of Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry"
- A. R. DATE, A. L. GRAY: Blackie & Son Ltd, NY USA(1992)
"Applications of Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry"
- D. BEAUCHEMIN, J. W. MCLAREN, A. P. MYKYTIUK, S. S. BERMAN: J. Anal. At. Spectrom., 3(2), 305 -308(1988)
"Determination of trace metals in an open ocean water reference material by inductively coupled plasma mass spectrometry"
- P. HERZNER, K. G. HEUMANN: Mikrochim. Acta, 106(3/6), 127-135(1992)
"Ultra-Trace Analysis of U, Th, Ca and Selected Heavy Metals in High Purity Refractory Metals with Isotope Dilution Mass Spectrometry"

- G. Price, Russ, III, J. M. Bazan: Spectrochim. Acta, 42B(1/2), 49-62 (1987)
 "Isotopic ratio measurements with an inductively coupled plasma source mass spectrometer"
- E. S. GLADNEY, W. D. MOSS, M. A. GAUTIER, M. G. BELL: Health Phys., 57, 1, 171-175 (1989)
 "Determination of U in urine: Comparison of ICP-mass spectrometry and delayed neutron assay"
- J. W. McLAREN, D. BEAUCHEMIN, S. S. BERMAN: Anal. Chem., 59, 610-613 (1987)
 "Application of isotope dilution inductively coupled plasma mass spectrometry to the analysis of marine sediments"
- 小野孝: 環境と測定技術, 19(4), 50-53 (1992)
 「固体試料中のウラン及びトリウムの分析についての一考察」
- D. J. ASSINDER, M. YAMAMOTO, C. K. KIM, R. SEKI, Y. TAKAKU, Y. YAMAUCHI, K. KOMURA, K. UENO, G. S. BOURNE: J. Environ. Radioact., 14(2), 135-145 (1991)
 "Neptunium in Intertidal Coastal and Estuarine Sediments in the Irish Sea"
- S. NICHOLSON, T. W. SANDERS, L. M. BLAINE: Sci. Total. Environ., 130/131, 275-284 (1993)
 "The determination of low levels of ⁹⁹Tc in environmental samples by inductively coupled plasma-mass spectrometry"
- J. TOOLE, A. S. HURSTHOUSE, P. MCDONALD, K. SAMPSON, M. S. BAXTER, R. D. SCOTT, K. MCKAY: Spec. Publ. R. Soc. Chem., 85, 155-162 (1990)
 "The determination of actinides in environmental samples by ICP-MS"
- 津村昭人, 山崎慎一, 木方展治: Radioisotopes, 40(7), 279-286 (1991)
 「誘導結合プラズマ質量分析法による河川水の希土類元素, トリウムおよびウランの定量」
- H. KAWAMURA, Y. IGARASHI, K. SHIRAIISHI: J. Radioanal. Nucl. Chem., 138(1), 103-109 (1990)
 "Determination of Th and U in bone ash by ICP-ion source mass spectrometry"

- 金昌奎, 池田長生 : *Isotope. News*, 437, 6-9 (1990)
「放射能測定によらない放射能分析— I C P 質量分析法の応用」
- 五十嵐康人, 白石久二雄, 高久雄一 : *Radioisotopes*, 40(1), 44-54 (1991)
「環境放射能分野への誘導結合プラズマ質量分析法の応用」
- 五十嵐康人 : *ぶんせき*, 3, 174-180 (1993)
「長半減期放射性核種と ICP 質量分析」
- 山崎慎一 : *ぶんせき*, 10, 826-827 (1990)
「ICP-MS による Tc, Np 及び Pu の分析」
- C. K. KIM, Y. OURA, Y. TAKAKU, H. NITTA, Y. IGARASHI, N. IKEDA :
J. Radioanal. Nucl. Chem., Lett., 136(5), 353-362 (1989)
"Measurement of $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ ratio by fission track method and
inductively coupled plasma mass spectrometry"
- Y. IGARASHI, K. SHIRAIISHI, Y. TAKAKU, K. MASUDA, R. SEKI, M. YAMAMOTO :
Anal. Sci., 8(4), 475-479 (1992)
"Application of Isotope Dilution for the Determination of Thorium in
Biological Samples by Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry"
- 津村昭人, 岡村玲子, 高久雄一, 山崎慎一 : *Radioisotopes*, 44(2), 85-92 (1995)
「二重収束型高分解能誘導結合プラズマ質量分析装置による降水中のウランの直
接分析」
- 津村昭人, 山崎慎一 : *Radioisotopes*, 41(4), 185-192 (1992)
「二重収束型高分解能誘導結合プラズマ質量分析法による陸水の超微量希土類元
素およびアクチノイドの直接定量」
- 駒村美佐子, 津村昭人 : *Radioisotopes*, 43(1), 1-8 (1994)
「誘導結合プラズマ質量分析法による土壌から白米への放射性核種の移行係数算定」
- S. YAMASAKI, A. TSUMURA, Y. TAKAKU : *Microchem. J.*, 49, 305-318 (1994)
"Ultratrace Elements in Terrestrial Water as Determined by High-Resolution
ICP-MS"
- 高橋純一 : *ぶんせき*, 2, 136-145 (1990)
「 I C P 質量分析法」

- Sergei F. Boulyga, Corrado Testa, Donatella Desideri and J. Sabine Becker: Optimisation and application of ICP-MS and alpha-spectrometry for determination of isotopic ratios of depleted uranium and plutonium in samples collected in Kosovo, *J. Anal. At. Spectrom.*, 16, 1283-1289, (2001).
- 山崎 慎一: 誘導結合プラズマ質量分析法による土壌分析、*Bunseki Kagaku*, 49 (No. 4)、217-224、2000
- 村松康行, 吉田 聡: ICP-MSを用いた環境試料中のPu, U, Thの分析, *RADIOISOTOPES*, VOL. 48, 472-487, (1999)
- Yukawa, M., Watanabe, Y., Nishimura, Y., Guo, Y., Yongru, Z., Lu, H., Zhang, W., Wei, L. and Tao, Z.: Determination of U and Th in soil and plants obtained from a high natural radiation area in China using ICP-MS and γ -counting, *Fresenius J. Anal. Chem.*, 363, 760-766, 1999
- Heumann, K. G., Gallus, S. M., Radlinger, G. and Vogl, J.: Precision and accuracy in isotope ratio measurements by plasma source mass spectrometry, *J. Anal. At. Spectrometry*, 13, 1001-1008, 1998
- Werner, E., Roth, P., Wendler, I., Schramel, P., Hellmann, H. and Kratzel, U.: Feasibility of ICP-MS for the assessment of uranium excretion in urine, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 226(1-2), 201-203, 1997
- Kerl, W., Becker, J. S., Dietze, H. -J. and Dannecker, W.: Isotopic and ultratrace analysis of uranium by double-focusing sector field ICP mass spectrometry, *Fresenius J. Anal. Chem.*, 359, 407-409, 1997

[α 線スペクトロメトリー]

- 金井豊, 坂巻幸雄, 笹田政克: *Radioisotopes*, 42(3), 143-150 (1993)
「筑波トンネル掘削に伴う湧水中のウラン, $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比および水質について」
- 杉山英男, 高城裕之, 小山包博, 岩島清: *衛生化学*, 36(1), 36-42 (1990)
「大気浮遊じん及び土壌中ウランの定量値の評価と環境動態」

[吸光光度法]

- 大西勝利, 堀良万, 泊康雄: 分析化学, 26, 74-77 (1977)
「海水中の微量ウランの迅速吸光光度定量」
- ジルコニウムおよびジルコニウム合金の分析・分析方法編: JAERI 4050, 126-136
「27. ウラン」
- 石橋雅義, 藤永太郎, 桑本融, 荻野善紀: 日本化学雑誌, 88(1), 73-76 (1967)
「ウラン (VI) の水酸化鉄 (III) 沈殿による共同沈殿」

[けい光光度法]

- F. S. GRIMALDI, I. MAY, M. H. FLETCHER: Geological Survey Circular, 199, 1-20
"U.S. Geological Survey fluorimetric methods of uranium analysis"
- 尾方昇: 日本原子力学会誌, 10(12), 672-678 (1968)
「481. 海水中のウランの採取, (I)」
- J. AKAISHI: 日本原子力学会誌, 2(7), 379-388 (1960)
"67. The Fluorophotometric Determination of Uranium in Human Urine"
- 原研: JAERI 5002, 118-125
「4.3.2 固体ケイ光法による尿中のウランの定量」
- 藤波雅久, 長島弘三, 杉谷嘉則: 分析化学, 28, 616-618 (1979)
「けい光測定による微量ウランの簡易迅速定量」
- 青山安雄: 日本化学雑誌, 82(3), 336-339 (1961)
「透過型フルオロメーターによる微量ウランの定量 (第一報)
天然水中の微量ウランの定量」

[その他]

- S. MOBIUS, P. KAMOLCHOTE, W. ROEKSBUTR:
Sci. Total. Environ., 130/131, 467-471 (1993)
"Use of Extractive Scintillation and Pulse Shapes Analysis for
Environmental Alpha-Assay"

- H. B. L. PETTERSSON, L. HALLSTADIUS, R. HEDVALL, E. HOLM:
J. Environ. Radioact., 6, 25-40 (1988)
"Radioecology in the Vicinity of Prospected Uranium Mining Sites in
a Subarctic Environment"
- 溝畑朗, 松並忠男, 真室哲雄: 保健物理, 12, 175-179 (1977)
「自然環境のウラン分析」
- B. B. JABLONSKI, D. E. LEYDEN: Anal. Chem., 51, 681-683 (1979)
"X-ray fluorescence determination of uranium as the barium diuranate
precipitate"
- H. F. ALY: J. Radioanal. Chem., 30, 425-431 (1976)
"Fast and simple Radiochemical Method for the Separation of Uranium,
Thorium and Lanthanum"
- 阪上正信: Japan Analyst, 7, 292-295 (1958)
「前線反応を利用するペーパークロマトグラフィーによるウランの簡易微量定量
法」
- Yamagata, N. & Iwashima, K.:
Terrestrial background radiation in Japan. *Health Phys.* 13, 1145-1148
(1967)
- 植頭康裕, 渡辺均, 武石稔, 篠原邦彦: 質量分析法と放射化学分析法を組み合わせた
回収ウランのバイオアッセイ分析法、サイクル機構技報 No. 14, 181-212 (2002)
- Yoshida, S., Muramatsu, Y., and Tagami, K.: Determination of Uranium
Isotopes in Soil Core Samples Collected on the JCO Grounds after the
Criticality Accident. *Environ. Sci. & Technol.* 35, 4174-4179 (2001)
- Yoshida, S., Muramatsu, Y., Tagami, K., Uchida, S., Ban-nai, T., Yonehara,
H. and Sahoo, S.: Concentrations of uranium and $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ ratios in soil and
plant samples collected around the uranium conversion building in the JCO
campus. *J. Environ. Radioactivity*, 50, 161-172 (2000).
- Yoshida, S., Muramatsu, Y., Tagami, K. & Uchida, S.: Concentrations of
lanthanide elements, Th, and U in 77 Japanese surface soils. *Environmental
International* 24, 275-286 (1998)

本分析法の制定に関する調査検討、及び本マニュアルの作成は、下記の方々のご協力を
得て行いました。ご尽力に対し深く御礼申し上げます。

池田 長生	(社) 日本アイソトープ協会
石黒 秀治	(財) 原子力研究バックエンド推進センター
磯貝 啓介	(財) 日本分析センター
今澤 良章	(財) 日本分析センター
今村 博香	鹿児島県
岩島 清	(株) 環境管理センター、放射線審議会測定部会長
植頭 康裕	核燃料サイクル開発機構
小村 和久	金沢大学
佐藤 兼章	(財) 日本分析センター
白石 文夫	元立教大学
杉山 広和	岡山県
関根 敬一	日本原子力研究所
殿内 重政	新潟県
中村 吉秀	(社) 日本アイソトープ協会
樋口 英雄	(財) 日本分析センター
福嶋 浩人	(財) 日本分析センター
村上 博幸	日本原子力研究所
村松 康行	放射線医学総合研究所
森本 隆夫	(財) 日本分析センター
山崎 慎一	農業環境技術研究所
山本 政儀	金沢大学
渡辺 均	動力炉・核燃料開発事業団

(敬称略・五十音順)

(所属は、ご協力を頂いた時点における所属機関名を記した。)

放射能測定法シリーズ

- | | |
|--|---------------|
| 1. 全ベータ放射能測定法 | 昭和51年 9月 (2訂) |
| 2. 放射性ストロンチウム分析法 | 昭和58年12月 (3訂) |
| 3. 放射性セシウム分析法 | 昭和51年 9月 (1訂) |
| 4. 放射性ヨウ素分析法 | 平成 8年 3月 (2訂) |
| 5. 放射性コバルト分析法 | 平成 2年 2月 (1訂) |
| 6. NaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータ
機器分析法 | 昭和49年 1月 |
| 7. ゲルマニウム半導体検出器による
ガンマ線スペクトロメトリー | 平成 4年 8月 (3訂) |
| 8. 放射性ジルコニウム分析法 | 昭和51年 9月 |
| 9. トリチウム分析法 | 平成14年 7月 (2訂) |
| 10. 放射性ルテニウム分析法 | 平成 8年 3月 (1訂) |
| 11. 放射性セリウム分析法 | 昭和52年10月 |
| 12. プルトニウム分析法 | 平成 2年11月 (1訂) |
| 13. ゲルマニウム半導体検出器等を用いる
機器分析のための試料の前処理法 | 昭和57年 7月 |
| 14. ウラン分析法 | 平成14年 7月 (2訂) |
| 15. 緊急時における放射性ヨウ素測定法 | 平成14年 7月 (1訂) |
| 16. 環境試料採取法 | 昭和58年12月 |
| 17. 連続モニタによる環境 γ 線測定法 | 平成 8年 3月 (1訂) |
| 18. 熱ルミネセンス線量計を用いた環境 γ 線量測定法 | 平成 2年 2月 (1訂) |
| 19. ラジウム分析法 | 平成 2年 2月 |
| 20. 空間 γ 線スペクトル測定法 | 平成 2年 2月 |
| 21. アメリシウム分析法 | 平成 2年11月 |
| 22. プルトニウム・アメリシウム逐次分析法 | 平成 2年11月 |
| 23. 液体シンチレーションカウンタによる
放射性核種分析法 | 平成 8年 3月 (1訂) |
| 24. 緊急時におけるガンマ線スペクトロメトリー
のための試料前処理法 | 平成 4年 8月 |
| 25. 放射性炭素分析法 | 平成 5年 9月 |
| 26. ヨウ素-129分析法 | 平成 8年 3月 |
| 27. 蛍光ガラス線量計を用いた環境 γ 線量測定法 | 平成14年 7月 |
| 28. 環境試料中プルトニウム迅速分析法 | 平成14年 7月 |

ウ ラ ン 分 析 法 (2 訂)

平成 9 年 1 月 31 日 第 1 刷 発行
平成 14 年 7 月 31 日 第 4 刷 発行

発 行 所

財 団 法 人 日 本 分 析 セ ン タ ー

〒263-0002 千葉県千葉市稲毛区山王町 295-3
電 話 (0 4 3) 4 2 3 - 5 3 2 5 (代 表)
(0 4 3) 4 2 4 - 8 6 6 3 (直 通)
F A X (0 4 3) 4 2 3 - 4 0 7 1