

プルトニウム・アメリシウム逐次分析法

平成 2 年

文 部 科 学 省

目 次

第1章 序論	1
第2章 水試料	3
2. 1 試薬、器具および装置	3
2. 2 分析操作	5
第3章 灰試料	12
3. 1 試薬、器具および装置	12
3. 2 分析操作	14
第4章 土試料	20
4. 1 試薬、器具および装置	20
4. 2 分析操作	22
第5章 降下物	28
5. 1 試薬、器具および装置	28
5. 2 分析操作	30
第6章 大気浮遊じん	37
6. 1 試薬、器具および装置	37
6. 2 分析操作	40
第7章 焼結プルトニウムを含む環境試料	46
7. 1 試薬、器具および装置	46
7. 2 分析操作	48
第8章 電着方法	55
8. 1 試薬、器具および装置	55
8. 2 電着操作	58
8. 3 再電着操作	59
第9章 放射能測定	61
9. 1 計測装置	61
9. 2 測定	64
9. 3 計算	65

第10章 試薬の調製	7 3
10. 1 放射能標準溶液	7 3
10. 2 試薬	7 4
10. 3 陰イオン交換樹脂カラムの調製	7 7
(解説)	
〔解説 1〕 土試料の酸浸出法の違いによるプルトニウムとアメリシウム の抽出率	7 8
〔解説 2〕 本分析法におけるTh、Uの除染係数	8 0
(付録)	
〔付録 1〕 プルトニウム、アメリシウム同位体の核データ	8 2
〔付録 2〕 クロスチェック結果について	8 3
〔付録 3〕 プルトニウム・アメリシウム逐次分析法の流れ図	8 5
〔付録 4〕 参考文献	9 5

第 1 章 序論

原子力発電所、核燃料再処理施設等の原子力平和利用施設の増加に伴い、施設から排出される放射性核種の環境放射能レベルの把握が環境モニタリングとして行われている。このうち超ウラン元素は、環境試料中の放射能レベルは低いものの環境安全上重要な核種である。

これらの核種のうち、プルトニウムの分析法については、平成 2 年に改訂された「プルトニウム分析法」と平成 2 年に制定された「アメリシウム分析法」がある。今回、同一試料からプルトニウムとアメリシウムを逐次的に分析を行うことが望ましいこともあり、プルトニウム・アメリシウム逐次分析法を確立した。

本マニュアルは、超ウラン元素である $^{239+240}\text{Pu}^{*1}$ および ^{241}Am の分析、測定法を定めたものであるが、 $^{239+240}\text{Pu}$ と同時に ^{238}Pu を、 ^{241}Am と同時に ^{242}Cm も測定できる。

本マニュアルの対象試料は、水試料、灰試料、土試料、降下物、大気浮遊じん、焼結プルトニウムを含む環境試料である。

分析方法は、各対象試料に応じて前処理・濃縮を行ったのち、イオン交換法または溶媒抽出法による化学分離を行い、プルトニウムまたはアメリシウムを分離、精製した後、ステンレス鋼板上に電着して計測用試料とする。計測用試料について、シリコン半導体検出器による α 線スペクトロメトリーを行うことによりプルトニウムとアメリシウムを定量する。

*1 ^{239}Pu と ^{240}Pu はそれぞれの放出する α 線のエネルギー（付録 2 参照）がほぼ等しく、通常の α 線スペクトロメトリーだけでは区別して定量はできない。このため通常は両核種の合計量として定量する方法がとられる。

本マニュアルにおいては、プルトニウム分析法における濃縮・溶解、分離、精製、電着方法等の分析操作手順および測定方法について改良を行い、同一試料から系統的にアメリカシウムを分析できる方法とした。また、プルトニウムの定量と化学収率を求めるために使用する標準溶液*²として ^{236}Pu の他に ^{242}Pu を追加した。

本分析法によって実施した場合の供試量とその際の分析目標レベルを表－1に示す。なお、分析試料の採取ならびにその調製方法については、別に発行されている「環境試料採取法」*³によるものとする。

表－1 供試量と分析目標レベル

試料名	供試量	分析目標レベル* ($^{239+240}\text{Pu}$ 、 ^{241}Am とも)
水試料	100 ℓ	2×10^{-2} mBq/ℓ
灰試料	(500g生～1 kg生) 相当	4～2 mBq/kg生
土試料	50 g 乾土	40 mBq/kg乾土
降下物	0.5m ² 、1ヶ月	4 mBq/m ²
大気浮遊じん	10 ⁴ m ³	2×10^{-4} mBq/m ³

* 計数効率：20%、測定時間：24時間、核種からの α 線の全計数値が計数誤差の3倍とした場合

*² プルトニウムは、核燃料物質として定義されており、量に関係なく「核原料物質、核燃料物質および原子炉の規制に関する法律」により規制される。本法でトレーサ等の目的で使用する ^{242}Pu または ^{236}Pu は、科学技術庁原子力安全局核燃料規制課に対して核燃料物質使用許可申請を行う必要がある。

*³ 科学技術庁：放射能測定法シリーズ16 「環境試料採取法」（昭和58年）

第2章 水試料

試料は、陸水（湖沼水、河川水、水道水等）、海水等を対象とする。なお、降下物については第5章に記載する。

あらかじめ硝酸で酸性とした試料に鉄（Ⅲ）担体を加え、プルトニウムとアメリシウムを水酸化鉄（Ⅲ）に共沈させ、その後、陰イオン交換またはT O A－キシレン抽出によりプルトニウムを分離、精製する。アメリシウムは、プルトニウムを分離した後の溶液を、陰イオン交換またはT T A－キシレン抽出－陰イオン交換により分離、精製する。精製した試料中のプルトニウムまたはアメリシウムを、ステンレス鋼板上に電着して α 線計測用試料とし、シリコン半導体検出器による α 線スペクトロメトリーによって定量する。なお、化学収率を求めるため、あらかじめ試料に ^{242}Pu （または ^{236}Pu ）および ^{243}Am （または ^{244}Cm ）標準溶液を一定量加えておく。試料の化学分離から電着終了までに要する時間は、イオン交換法の場合、プルトニウムで約30時間、アメリシウムで約70時間であり、溶媒抽出－イオン交換法の場合、プルトニウムで約20時間、アメリシウムで約50時間である。供試量100 ℓ で本法を実施した場合、分析目標レベルはプルトニウム、アメリシウムとも 2×10^{-2} mBq/ ℓ である。

2. 1 試薬、器具および装置

2.1.1 試薬

(1) 標準溶液および担体溶液

^{242}Pu または ^{236}Pu 標準溶液 (0.02Bq/ ml)

^{243}Am または ^{244}Cm 標準溶液 (0.02Bq/ ml)

鉄（Ⅲ）担体溶液 (10mg Fe^{3+} / ml) , (50mg Fe^{3+} / ml)

カルシウム担体溶液 (100mg Ca^{2+} / ml)

(2) 酸

硝酸, 硝酸(3+2) , 硝酸(1+13)

塩酸, 塩酸(6+1) , 塩酸(5+1) , 塩酸(7+3)

過酸化水素水(30%)

過塩素酸(70%)

シュウ酸

(3) 塩基

アンモニア水, アンモニア水(1+100)

(4) 塩類

シュウ酸アンモニウム

シュウ酸アンモニウム溶液 (0.1W/V%)

塩化アンモニウム

酢酸アンモニウム溶液 (5W/V%)

(5) 有機試薬

メチルアルコール

キシレン

TOA (トリ-n-オクチルアミン) -キシレン溶液 (10W/V%)

TTA (テノイルトリフルオロアセトン) -キシレン溶液 (10W/V%)

(6) 混合溶液

ヨウ化アンモニウム溶液 (5W/V%) -塩酸 混液 [29+71]

1M硝酸 - 93%メチルアルコール混液

0.1M塩酸 - 0.5Mチオシアン酸アンモニウム - 80%メチルアルコール混液

1.5M塩酸 - 86%メチルアルコール混液

(7) 指示薬

フェノールフタレイン-エチルアルコール溶液 (0.5W/V%)

(8) 陰イオン交換樹脂*¹

Dowex[®] 1-X8 (100~200mesh)

Dowex[®] 1-X4 (100~200mesh)

*¹ 陰イオン交換樹脂カラムの調製方法については 第10章 試薬の調製を参照

2.1.2 器 具

ポリエチレン製容器（容量 100 ℓ 用）

分離型フィルタ

磁製皿

分液漏斗(100～500ml)

イオン交換樹脂カラム（内径 10～15mm、高さ 10～15cm）

2.1.3 装 置

遠心分離器

アスピレータ

振とう器

電気炉

2. 2 分析操作

2.2.1 試料の前処理

- (1) あらかじめ硝酸で酸性とした試料 100 ℓ をポリエチレン製容器（容量 100 ℓ）にはかり取り*2、鉄（Ⅲ）担体溶液（50mgFe³⁺/ml）50ml を攪拌しながら加える。
- (2) ²⁴²Pu または ²³⁶Pu 標準溶液（0.02Bq/ml）と ²⁴³Am または ²⁴⁴Cm 標準溶液（0.02Bq/ml）それぞれ 2ml を正確に加えてよく攪拌した後、1 時間以上放置する。
- (3) フェノールフタレイン-エチルアルコール溶液（0.5W/V%）2 ml を加え、攪拌しながら、試料水が赤色を呈するまでアンモニア水を加える。
- (4) 水酸化鉄（Ⅲ）の沈殿が沈降するまで放置した後、上澄み液を捨て、沈殿を残液と共に 5 ℓ ビーカーに移し、静置する。

*2 試料が著しく濁っている場合には、ろ紙（5 A）でろ過し、ろ液について分析を行う。

- (5) 傾斜法により上澄み液を捨て、沈殿を残液とともに 1ℓ または 2ℓ ビーカーに移し、加熱して沈殿を熟成する。
- (6) 放冷後、上澄み液を捨て、沈殿を残液と共に遠沈管に移し、3000rpmで10分間遠心分離を行い、上澄み液を捨てる。
- (7) 硝酸(3+2) 100mlを沈殿に加え、加熱溶解する。
- (8) 温かいうちに、ガラス繊維ろ紙(GA-100)で吸引ろ過する。ろ紙上の残留物は、少量の温硝酸(3+2)で洗浄する*³。
- (9) ろ液と洗液を合わせ、シロップ状になるまで加熱濃縮する*⁴。
- (10) 濃縮した溶液が温かいうちに、硝酸(3+2) 100mlと過酸化水素水 1mlを加え加熱する*⁵。発泡がなくなるまで充分加熱し、過酸化水素を分解する*⁶。
- (11) 放冷後、不溶物があればガラス繊維ろ紙(GA-100)で吸引ろ過し、ろ液は300mlビーカーに受ける。残渣は、少量の硝酸(3+2)で洗浄し、洗液はろ液に合わせる。

*³ 冷えるとプルトニウム、アメリシウムが不溶性ケイ酸塩等に取り込まれ、化学収率が悪くなることもある。ろ過時には硝酸の飛散に注意する。

*⁴ 乾固するとプルトニウム、アメリシウムが不溶性ケイ酸塩等に取り込まれ、化学収率が悪くなることもある。

*⁵ 過酸化水素水でプルトニウムをPu(IV)にそろえる。

*⁶ 過酸化水素の分解が不十分であると、プルトニウムの分離が不完全となり、化学収率が悪くなる。

2.2.2 プルトニウムの分離

A. 陰イオン交換法

- (1) 2.2.1 (1)で得られた試料溶液を、硝酸系陰イオン交換樹脂カラム(Dowex® 1-X8, 100~200mesh, 樹脂高 7cm) *⁷に毎分 2ml以下の流速で流し、硝酸(3+2) 120mlで洗浄する。流出液は洗液と合わせアメリカシウムの分析に供する。
- (2) 塩酸(5+1) 300mlでカラムを洗浄する。
- (3) ヨウ化アンモニウム溶液-塩酸 混液50mlでプルトニウムを溶離する。毎分 1ml以下で20ml流した後、コックを止めて30分~60分放置*⁸し、コックを開いてさらに30ml流す。
- (4) 溶出液を蒸発乾固し、硝酸 5mlと過塩素酸 1mlで乾固物を加熱溶解後、過塩素酸の白煙が発生しなくなるまで蒸発乾固し*⁹、電着用試料とする。
- (5) 第8章 電着方法 に従って電着操作を行い、 α 線計測試料を作製する。

*⁷ 陰イオン交換樹脂カラムの調製方法については 第10章 試薬の調製 を参照

*⁸ Pu(IV)をPu(III)に還元するための時間である。

(1)~(3)は連続しておこなう。

*⁹ 乾固物が着色している場合には、さらに硝酸 1mlと過酸化水素水数滴を加え、乾固する。

B. T O A - キシレン抽出法

- (1) 2.2.1 (1)で得られた試料溶液を、その量に応じて 200～ 500 ml の分液漏斗に移す。T O A - キシレン溶液 (10W/V%) 50 ml を加えて 2～ 3 分間振り混ぜ、プルトニウムを有機層に抽出する。
- (2) 水層は別の分液漏斗に移し、T O A - キシレン溶液 30 ml を加え、2～ 3 分振り混ぜる。有機層は、(1)で得られた有機層に合わせる。水層はアメリカシウムの分析に供する。
- (3) 有機層に硝酸(3+2) 100 ml を加え 2～ 3 分振り混ぜ、有機層を洗浄する。水層は、(2)で得られた水層と合わせアメリカシウムの分析に供する。
- (4) 有機層をさらに硝酸(3+2) 100 ml で 1 回、塩酸(5+1) 100 ml で 2 回洗浄する。洗液は捨てる。
- (5) 有機層にヨウ化アンモニウム溶液 - 塩酸 混液 40 ml を加え、2～ 3 分間振り混ぜ、プルトニウムを水層に逆抽出し、水層を別の分液漏斗に移す。この操作をもう一度繰り返し、水層を合わせる。
- (6) 水層にキシレン 30 ml を加え 2～ 3 分間振り混ぜ、洗浄する。
- (7) 水層はビーカーに受け蒸発乾固する。放冷後、硝酸 5 ml と過塩素酸数滴を加え、乾固物を加熱溶解後、過塩素酸の白煙が発生しなくなるまで蒸発乾固し^{*10}、電着用試料とする。
- (8) 第 8 章 電着方法 に従って電着操作を行い、 α 線計測用試料を作製する。

^{*10} 乾固物が着色している場合には、さらに硝酸 1 ml と過酸化水素水数滴を加え、乾固する。

2.2.3 アメリシウムの分離

A. 陰イオン交換法

- (1) 2.2.2 A(1)の操作で得られた流出液と洗液を、または2.2.2 B(3)の操作で得られた水層を 500ml ビーカに合わせ、蒸発乾固する。
- (2) 乾固物に硝酸(3+2) 50mlを加え、乾固物を加温溶解後、水を加え 300mlとする^{*11}。
- (3) カルシウム担体溶液(100mgCa²⁺/ml) 5ml、シュウ酸 10gおよびシュウ酸アンモニウム 10gを加える。加温溶解後、アンモニア水で pH 1.5に調整し、シュウ酸カルシウムの沈殿を生成させる。
- (4) 加熱熟成後、ろ紙(5種C)でろ過し、沈殿をシュウ酸アンモニウム溶液(0.1 W/V %)で洗浄する。
- (5) 沈殿をろ紙とともに磁製皿に移し、電気炉を使用して 550℃で2時間灰化する。
- (6) 灰化試料を濃塩酸で溶解した後、鉄(Ⅲ)担体溶液(10mgFe³⁺/ml) 2mlと塩化アンモニウム 2gを加える。加熱溶解後、アンモニア水で塩基性とし、水酸化物の沈殿を生成させる。
- (7) 加熱熟成後、ろ紙(5A)でろ過し、沈殿をアンモニア水(1+100)で洗浄する。ろ液、洗液は捨てる。
- (8) 沈殿は塩酸(7+3) 20mlで溶解後、蒸発乾固する。塩酸(6+1) 20mlを加え乾固物を溶解する。
- (9) 溶液を塩酸系陰イオン交換樹脂カラム(Dowex® 1-X8, 100~200mesh, 樹脂高 5cm) ^{*12} に毎分 1ml以下で流し、塩酸(6+1) 50mlで洗浄する^{*13}。流出液と洗浄液を合わせ蒸発乾固する。

^{*11} 不溶物がある時は、ろ別する。

^{*12} 陰イオン交換樹脂カラムの調製方法については 第10章 試薬の調製を参照

^{*13} 試料中に含まれている微量のBi, Po, U, Pu等の除去操作。

- (10) 乾固物に硝酸(3+2) 20mlと過酸化水素水数滴を加え、乾固物を加温溶解する。
- (11) 溶液を硝酸系陰イオン交換樹脂カラム(Dowex® 1-X8, 100~200mesh 樹脂高 5cm) *¹⁴ に毎分 1ml以下の流速で流し、硝酸(3+2) 30mlで洗浄する*¹⁵。洗浄液は流出液に合わせて蒸発乾固する。
- (12) 乾固物に硝酸 5mlと過酸化水素水数滴を加え加温溶解後蒸発乾固する。さらに乾固物に硝酸 1mlと過酸化水素水数滴を乾固物に加えて加温溶解する。
- (13) 放冷後、メチルアルコール 12.6mlを加えてよく攪拌する。
- (14) この溶液を陰イオン交換樹脂カラム(Dowex® 1-X4, 100~200mesh, 樹脂高 5cm) *¹⁴ に毎分 0.3~0.5mlの流速で流す。
- (15) 1M硝酸－93%メチルアルコール混液 20ml、0.1M塩酸－0.5Mチオシアン酸アンモニウム－80%メチルアルコール混液 60ml、1M硝酸－93%メチルアルコール混液 50mlで順次カラムを洗浄する*¹⁶。洗浄液は捨てる。
- (16) 1.5M塩酸－86%メチルアルコール混液 50mlを流し、アメリシウムを溶離する。溶出液を蒸発乾固する*¹⁷。
- (17) 乾固物に硝酸 5mlと過酸化水素水 1mlを加えて加温溶解し、蒸発乾固する。この操作をもう一度繰り返す。さらに過塩素酸 1mlを乾固物に加え、過塩素酸白煙が生じなくなるまで蒸発乾固し*¹⁸、電着用試料とする。
- (18) 第8章 電着方法 に従って電着操作を行い、 α 線計測試料を作製する。

*¹⁴ 陰イオン交換樹脂カラムの調製方法については 第10章 試薬の調製 を参照

*¹⁵ 試料中のThを完全に除去するための操作。

*¹⁶ 液が切れると気泡が入り、洗浄が不十分となる。

*¹⁷ 加温してメチルアルコールを完全に蒸発してから、加熱乾固する。

*¹⁸ 乾固物が着色している場合には、さらに硝酸 1mlと過酸化水素水数滴を加え、乾固する。

B. T T Aーキシレン抽出ー陰イオン交換法

- (1) 2.2.2 A(1)の操作で得られた流出液と洗液、または2.2.2 B(3)の操作で得られた水層を 500ml ビーカに合わせ、加熱し蒸発乾固する。
- (2) 硝酸(3+2) 50mlを加え、乾固物を加温溶解後、水を加えて300 mlとする*¹⁹。
- (3) 2.2.3 A(3)以下(5)までの操作に従って、アメリシウムをシュウ酸カルシウムに共沈分離し、沈殿を磁製皿中で灰化する。
- (4) 沈殿を灰化した試料を硝酸(3+2) 10mlに溶解し、水を加えて40mlとした後、アンモニア水でpHを2.0 に調整する。
- (5) 溶液を 100ml分液漏斗に移し、T T Aーキシレン溶液(10W/V%) 10mlを加えて、15分間振り混ぜ、有機層は捨てる*²⁰。水層について、この操作をもう1回繰り返す。
- (6) 水層をビーカに移し、酢酸アンモニウム溶液(5 W/V %) でpHを 4.0に調整する。
- (7) 溶液を 100ml分液漏斗に移し、T T Aーキシレン溶液(10W/V%) 10mlを加えて、5分間振り混ぜアメリシウムを有機層に抽出する。水層を有機層から分離後、水層についてこの操作をもう1回繰り返す。
- (8) 有機層を合わせ、硝酸(1+13) 25mlを加え、5分間振り混ぜアメリシウムを水層に逆抽出する。有機層を水層から分離後、有機層についてこの操作をもう1回繰り返す。
- (9) 水層を合わせ、キシレン 15mlを加え、1分間振り混ぜて洗浄した後、水層を 蒸発乾固する。
- (10) 乾固物に硝酸 5mlと過酸化水素水 1mlを加え、蒸発乾固する。
- (11) 2.2.3 A(12)以下(18)までの操作に従って α 線計測用試料を作製する。

*¹⁹ 不溶物がある時は、ろ別する。

*²⁰ Thを除去するための操作である。

第 3 章 灰 試 料

穀類、野菜類、茶、牛乳、牧草、淡水産生物、日常食、海産生物等を 105℃で乾燥後 450℃で 2 4 時間灰化したものを対象とする。

試料を硝酸に溶解した後、陰イオン交換または T O A - キシレン抽出によりプルトニウムを分離、精製する。アメリシウムは、プルトニウムを分離した後の試料を、陰イオン交換または T T A - キシレン抽出 - 陰イオン交換により分離、精製する。精製した試料中のプルトニウムまたはアメリシウムを、ステンレス鋼板上に電着して α 線計測用試料とし、シリコン半導体検出器による α 線スペクトロメトリーによって定量する。なお、化学収率を求めるため、あらかじめ試料に ^{242}Pu (または ^{236}Pu) および ^{243}Am (または ^{244}Cm) 標準溶液を一定量加えておく。試料の化学分離から電着終了までに要する時間は、イオン交換法の場合、プルトニウムで約 30 時間、アメリシウムで約 70 時間であり、溶媒抽出 - イオン交換法の場合、プルトニウムで約 20 時間、アメリシウムで約 50 時間である。また供試量 500 g 生 ~ 1 kg 生で本法を実施した場合、分析目標レベルはプルトニウム、アメリシウムとも (4 ~ 2) mBq / kg 生である。

3. 1 試薬、器具および装置

3.1.1 試 薬

(1) 標準溶液および担体溶液

^{242}Pu または ^{236}Pu 標準溶液 (0.02Bq / ml)

^{243}Am または ^{244}Cm 標準溶液 (0.02Bq / ml)

鉄 (III) 担体溶液 (10mg Fe^{3+} / ml) ,

カルシウム担体溶液 (100mg Ca^{2+} / ml)

(2) 酸

硝酸, 硝酸 (3+2) , 硝酸 (1+13)

塩酸, 塩酸 (6+1) , 塩酸 (5+1) , 塩酸 (7+3) , 塩酸 (1+1)

過酸化水素水 (30%)

過塩素酸(70%)

シュウ酸

(3) 塩基

アンモニア水, アンモニア水(1+1), アンモニア水(1+100)

(4) 塩類

シュウ酸アンモニウム

シュウ酸アンモニウム溶液 (0.1W/V%)

塩化アンモニウム

酢酸アンモニウム溶液 (5W/V%)

(5) 有機試薬

メチルアルコール

キシレン

TOA (トリ-n-オクチルアミン) -キシレン溶液 (10W/V%)

TTA (テノイルトリフルオロアセトン) -キシレン溶液 (10W/V%)

(6) 混合溶液

ヨウ化アンモニウム溶液 (5W/V%) -塩酸 混液 [29+71]

1M硝酸- 93%メチルアルコール混液

0.1M塩酸- 0.5Mチオシアン酸アンモニウム- 80%メチルアルコール混液

1.5M塩酸- 86%メチルアルコール混液

(7) 陰イオン交換樹脂*¹

Dowex[®] 1-X8 (100~200mesh)

Dowex[®] 1-X4 (100~200mesh)

*¹ 陰イオン交換樹脂カラムの調製方法については 第10章 試薬の調製を参照

3.1.2 器 具

分離型フィルタ

磁製皿

分液漏斗(100~500ml)

イオン交換樹脂カラム (内径 10~15mm、高さ 10~15cm)

3.1.3 装 置

遠心分離器

アスピレータ

振とう器

電気炉

3. 2 分析操作

3.2.1 試料の前処理

- (1) 灰試料を 1 ℓ ビーカにはかり取り*²、少量の水で湿す。
- (2) ²⁴²Pu または ²³⁶Pu 標準溶液 (0.02Bq/ml) と ²⁴³Am または ²⁴⁴Cm 標準溶液 (0.02Bq/ml) それぞれ 2ml を正確に加える。
- (3) 硝酸 50ml を発泡に注意しながら徐々に加え、時計皿をしてホットプレート上または砂浴上で蒸発乾固する。
- (4) 乾固物に過酸化水素水 10ml を発泡に注意しながら徐々に加え*³、有機物を分解する。蒸発乾固直前に、硝酸を加え蒸発乾固する。試料が白色になるまでこの操作を繰り返す*⁴。
- (5) 乾固物に硝酸(3+2) 150ml を加え、加熱溶解する。放冷後、ガラス繊維ろ紙 (GA-100) で吸引ろ過し、ろ液は 300ml ビーカに受ける。少量の硝酸(3+2) で洗浄し、洗液はろ液に合わせる。

*² 供試量の目安としては、灰分率が 4 % 未満の試料は生 500 g ~ 1 kg 相当の灰を、4 % 以上の試料は灰 20g とする。

*³ 過酸化水素水でプルトニウムを Pu (IV) にそろえる。

*⁴ 米、茶等は紫色になることもある。

3.2.2 プルトニウムの分離

A. 陰イオン交換法

- (1) 3.2.1 (5)で得られた試料溶液を、硝酸系陰イオン交換樹脂カラム(Dowex® 1-X8, 100~200mesh, 樹脂高 7cm) *⁵に毎分 2ml以下の流速で流し、硝酸(3+2) 120mlで洗浄する。流出液は洗液と合わせアメリカシウムの分析に供する。
- (2) 塩酸(5+1) 300mlでカラムを洗浄する。
- (3) ヨウ化アンモニウム溶液-塩酸 混液 50mlでプルトニウムを溶離する。毎分 1ml以下の流速で20ml流した後、コックを止め30分~60分放置*⁶し、さらに 30ml流す。
- (4) 溶出液を蒸発乾固し、硝酸 5mlと過塩素酸 1mlで乾固物を加熱溶解後、過塩素酸の白煙が発生しなくなるまで蒸発乾固し*⁷、電着用試料とする。
- (5) 第8章 電着方法 に従って電着操作を行い、 α 線計測試料を作製する。

*⁵ 陰イオン交換樹脂カラムの調製方法については 第10章 試薬の調製 を参照

*⁶ Pu(IV)をPu(III)に還元するための時間である。

(1)~(3)は連続しておこなう。

*⁷ 乾固物が着色している場合には、さらに硝酸 1mlと過酸化水素水数滴を加え、乾固する。

B. T O A－キシレン抽出法

- (1) 3.2.1 (5)で得られた、試料溶液を、その量に応じて 200～ 500mlの分液漏斗に移す。T O A－キシレン溶液 (10W/V%) 50mlを加え、2～3 分間振り混ぜ、プルトニウムを有機層に抽出する。
- (2) 水層は別の分液漏斗に移し、T O A－キシレン溶液 30mlを加え 2～3 分振り混ぜる。有機層は、(1)で得られた有機層に合わせる。水層はアメリカシウムの分析に供する。
- (3) 有機層に硝酸(3+2) 100mlを加え 2～3 分振り混ぜ、有機層を洗浄する。水層は、(2)で得られた水層と合わせアメリカシウムの分析に供する。
- (4) 有機層をさらに硝酸(3+2) 100mlで 1 回、塩酸(5+1) 100mlで 2 回洗浄する。洗液は捨てる。
- (5) 有機層にヨウ化アンモニウム溶液－塩酸 混液 40mlを加え 2～3 分間振り混ぜ、プルトニウムを水層に逆抽出し、水層を別の分液漏斗に移す。この操作をもう一度繰り返し水層を合わせる。
- (6) 水層にキシレン 30mlを加え 2～3 分間振り混ぜ、洗浄する。
- (7) 水層はビーカに受け蒸発乾固する。放冷後、硝酸 5mlと過塩素酸数滴を加え、乾固物を加熱溶解後、過塩素酸の白煙が発生しなくなるまで蒸発乾固し*⁸、電着用試料とする。
- (8) 第 8 章 電着方法 に従って電着操作を行い、 α 線計測用試料を作製する。

*⁸ 乾固物が着色している場合には、さらに硝酸 1mlと過酸化水素水数滴を加え、乾固する。

3.2.3 アメリシウムの分離

A. 陰イオン交換法

- (1) 3.2.2 A(1)の操作で得られた流出液と洗液、または3.2.2 B(3)の操作で得られた水層を 500ml ビーカに合わせ、蒸発乾固する。
- (2) 硝酸(3+2) 50mlを加え、乾固物を加温溶解後、水を加え 300mlとする^{*9}。
- (3) カルシウム担体溶液(100mgCa²⁺/ml) 5ml、シュウ酸 10gおよびシュウ酸アンモニウム 10gを加える。加温溶解後、アンモニア水で pH 1.5 に調整し、シュウ酸カルシウムの沈殿を生成させる。
- (4) 加熱熟成後、ろ紙(5種C)でろ過し、沈殿をシュウ酸アンモニウム溶液(0.1 W/V %)で洗浄する。
- (5) 沈殿をろ紙とともに磁製皿に移し、電気炉を使用して 550℃で2時間灰化する。
- (6) 試料を濃塩酸で溶解した後、鉄(Ⅲ)担体溶液(10 mgFe³⁺/ml) 2mlと塩化アンモニウム 2gを加える。加熱溶解後、アンモニア水で塩基性とし、水酸化物の沈殿を生成させる。
- (7) 加熱熟成後、ろ紙(5A)でろ過し、沈殿をアンモニア水(1+100)で洗浄する。ろ液、洗液は捨てる。
- (8) 沈殿は塩酸(7+3) 20mlで溶解後、蒸発乾固する。塩酸(6+1) 20mlを加え乾固物を溶解する。
- (9) 溶液を塩酸系陰イオン交換樹脂カラム(Dowex® 1-X8, 100~200mesh, 樹脂高 5cm) ^{*10} に毎分 1ml以下の流速で流し、塩酸(6+1) 50mlで洗浄する^{*11}。流出液と洗浄液を合わせて蒸発乾固する。

^{*9} 不溶物がある時は、ろ別する。

^{*10} 陰イオン交換樹脂カラムの調製方法については 第10章 試薬の調製を参照

^{*11} 試料中に含まれている微量のBi, Po, U, Pu等の除去操作。

- (10) 硝酸(3+2) 20mlと過酸化水素水数滴を加え乾固物を加温溶解する。
- (11) 溶液を硝酸系陰イオン交換樹脂カラム(Dowex® 1-X8, 100~200mesh, 樹脂高 5cm) *¹² に毎分 1ml以下の流速で流し、硝酸(3+2) 30mlで洗浄する*¹³。洗浄液は流出液に合わせ蒸発乾固する。
- (12) 乾固物に硝酸 5mlと過酸化水素水数滴を加えて加温溶解後、蒸発乾固する。
さらに乾固物に硝酸 1mlと過酸化水素水数滴を加え、加温溶解する。
- (13) 放冷後、メチルアルコール 12.6mlを加えよく攪拌する*¹⁴。
- (14) この溶液を陰イオン交換樹脂カラム(Dowex® 1-X4, 100~200mesh, 樹脂高 5cm) *¹² に毎分 0.3~0.5mlの流速で流す。
- (15) 1M硝酸- 93%メチルアルコール混液 20ml、0.1M塩酸- 0.5Mチオシアン酸アンモニウム- 80%メチルアルコール混液 60ml、1M硝酸- 93%メチルアルコール混液 50mlで順次カラムを洗浄する*¹⁵。洗浄液は捨てる。
- (16) 1.5M塩酸- 86%メチルアルコール混液 50mlを流してアメリシウムを溶離する。溶出液は蒸発乾固する*¹⁶。
- (17) 乾固物に硝酸 5mlと過酸化水素水 1mlを加えて加温溶解後、蒸発乾固する。
この操作をもう一度繰り返す。さらに乾固物に過塩素酸 1mlを加え、過塩素酸白煙が生じなくなるまで蒸発乾固し*¹⁷、電着用試料とする。
- (18) 第8章 電着方法 に従って電着操作を行い、 α 線計測試料を作製する。

*¹² 陰イオン交換樹脂カラムの調製方法については 第10章 試薬の調製 を参照

*¹³ 試料中のThを完全に除去するための操作。

*¹⁴ メチルアルコールのかわりにエタノールを使わないこと。

*¹⁵ 液が切れると気泡が入り、洗浄が不十分となる。

*¹⁶ 加温してメチルアルコールを完全に蒸発してから、加熱乾固する。

*¹⁷ 乾固物が着色している場合には、さらに硝酸 1mlと過酸化水素水数滴を加え、乾固する。

B. T T Aーキシレン抽出ー陰イオン交換法

- (1) 3.2.2 A(1)の操作で得られた流出液と洗液、または3.2.2 B(3)の操作で得られた水層を 500ml ビーカに合わせ、加熱し蒸発乾固する。
- (2) 硝酸(3+2) 50mlを加え、乾固物を加温溶解後、水を加え 300mlとする^{*18}。
- (3) 3.2.3 A(3)以下(5)までの操作に従って、アメリシウムをシュウ酸塩沈殿として分離し、沈殿を灰化する。
- (4) 試料を硝酸(3+2) 10mlに溶解し、水を加えて40mlとした後、アンモニア水で pHを2.0 に調整する。
- (5) 試料溶液を 100ml分液漏斗に移し、T T Aーキシレン溶液 (10W/V%) 10mlを加え、15分間振り混ぜる。有機層は捨てる^{*19}。水層について、この操作をもう1回繰り返す。
- (6) 水層をビーカに移し、酢酸アンモニウム溶液(5 W/V %) でpHを 4.0に調整する。
- (7) 試料溶液を 100ml分液漏斗に移し、T T Aーキシレン溶液 (10W/V%) 10mlを加え、5分間振り混ぜてアメリシウムを有機層に抽出する。水層を有機層から分離後、水層についてこの操作をもう1回繰り返す。
- (8) 有機層を合わせ、硝酸(1+13) 25mlを加えて、5分間振り混ぜ、アメリシウムを水層に逆抽出する。有機層を水層から分離後、有機層についてこの操作をもう1回繰り返す。
- (9) 水層を合わせ、キシレン 15mlを加え、1分間振り混ぜ洗浄した後、水層を蒸発乾固する。
- (10) 乾固物に硝酸 5mlと過酸化水素水 1mlを加え、蒸発乾固する。
- (11) 3.2.3 A(12)以下(18)までの操作に従って α 線計測用試料を作製する。

*18 不溶物がある時は、ろ別する。

*19 Thを除去するための操作。

第 4 章 土 試 料

土試料は、土壌、河底土、湖底土、海底土等である。ただし、焼結プルトニウムを含む恐れのある試料については第 7 章による。

試料は電気炉を使用し 500℃で 4 時間加熱した後、硝酸で煮沸浸出する。その後、プルトニウムは陰イオン交換または T O A - キシレン抽出によりを分離、精製する。アメリシウムは、プルトニウムを分離した後の試料を、陰イオン交換または T T A - キシレン抽出 - 陰イオン交換により分離・精製する。精製した試料中のプルトニウムまたはアメリシウムを、ステンレス鋼板上に電着して α 線計測用試料とし、シリコン半導体検出器による α 線スペクトロメトリーによって定量する。なお、放射エネルギーと化学収率を求めるため、あらかじめ試料に ^{242}Pu (または ^{236}Pu) および ^{243}Am (または ^{244}Cm) 標準溶液を一定量加えておく。試料の化学分離から電着終了までに要する時間は、イオン交換法の場合、プルトニウムで約 40 時間、アメリシウムで約 80 時間であり、溶媒抽出 - イオン交換法の場合、プルトニウムで約 30 時間、アメリシウムで約 60 時間である。また供試量 50 g 乾土で本法を実施した場合、分析目標レベルはプルトニウム、アメリシウムとも 40 mBq/kg 乾土である。

4. 1 試薬、器具および装置

4.1.1 試 薬

(1) 標準溶液および担体溶液

^{242}Pu または ^{236}Pu 標準溶液 (0.02 Bq/ ml)

^{243}Am または ^{244}Cm 標準溶液 (0.02 Bq/ ml)

鉄 (Ⅲ) 担体溶液 (10 mg Fe^{3+} / ml) ,

カルシウム担体溶液 (100 mg Ca^{2+} / ml)

(2) 酸

硝酸, 硝酸 (3+2) , 硝酸 (1+13)

塩酸, 塩酸 (6+1) , 塩酸 (5+1) , 塩酸 (7+3) , 塩酸 (1+1)

過酸化水素水 (30%)

過塩素酸(70%)

シュウ酸

(3) 塩基

アンモニア水, アンモニア水(1+1), アンモニア水(1+100)

(4) 塩類

シュウ酸アンモニウム

シュウ酸アンモニウム溶液 (0.1W/V%)

塩化アンモニウム

酢酸アンモニウム溶液 (5W/V%)

(5) 有機試薬

メチルアルコール

オクチルアルコール

キシレン

T O A (トリ-*n*-オクチルアミン) -キシレン溶液 (10W/V%)

T T A (テノイルトリフルオロアセトン) -キシレン溶液 (10W/V%)

(6) 混合溶液

ヨウ化アンモニウム溶液 (5W/V%) -塩酸 混液 [29+71]

1M硝酸 - 93%メチルアルコール混液

0.1M塩酸 - 0.5Mチオシアン酸アンモニウム - 80%メチルアルコール混液

1.5M塩酸 - 86%メチルアルコール混液

(7) 陰イオン交換樹脂*¹

Dowex[®] 1-X8 (100~200mesh)

Dowex[®] 1-X4 (100~200mesh)

*¹ 陰イオン交換樹脂カラムの調製方法については 第10章 試薬の調製を参照

4.1.2 器 具

磁製皿（外径 12cm）

分離型フィルタ

磁製皿

分液漏斗(100～500ml)

イオン交換樹脂カラム（内径 10～15mm、高さ 10～15cm）

4.1.3 装 置

遠心分離器

アスピレータ

振とう器

電気炉

4. 2 分析操作

4.2.1 試料の分解

- (1) 乾燥細土50 gを磁製皿（外径 12cm）にはかり取り、電気炉に入れて 500℃で約 4 時間加熱し、有機物を分解する。
- (2) 放冷後、1 ℓ ビーカに移し、 ^{242}Pu または ^{236}Pu 標準溶液（0.02Bq/ml）と ^{243}Am または ^{244}Cm 標準溶液（0.02Bq/ml）をそれぞれ 2ml 正確に加える。
- (3) 硝酸(3+2) 約 250mlを発泡に注意しながら徐々に加える。発泡が激しくビーカからあふれる恐れがある場合には、オクチルアルコールを数滴を加える。
- (4) 時計皿をしてホットプレート上または砂浴上で、ときどき攪拌しながら 2 時間煮沸する。
- (5) 温かいうちに、ガラス繊維ろ紙（GA-100）で吸引ろ過する。ろ紙上の残留物は、少量の硝酸(3+2) で洗浄する*²。

*² 冷えるとプルトニウム、アメリシウムが不溶性ケイ酸塩等に取り込まれ、化学収率が悪くなることがある。ろ過時には硝酸の飛散に注意する。

- (6) ろ液と洗液を合わせ、シロップ状になるまで加熱濃縮する*³。
- (7) 濃縮した溶液が温かいうちに、硝酸(3+2) 100mlと過酸化水素水 1mlを加えて加熱する*⁴。発泡がなくなるまで充分加熱し、過酸化水素を分解する*⁵。
- (8) 放冷後、不溶物があれば、ガラス繊維ろ紙(GA-100)で吸引ろ過し、ろ液は500mlビーカーに受ける。少量の硝酸(3+2)で洗浄し、洗液はろ液に合わせる。

4.2.2 プルトニウムの分離

A. 陰イオン交換法

- (1) 4.2.1 (8)で得られた試料溶液を、硝酸系陰イオン交換樹脂カラム(Dowex® 1-X8, 100~200mesh, 樹脂高 7cm) *⁶に毎分 2ml以下の流速で流し、硝酸(3+2) 120mlで洗浄する。流出液は洗液と合わせアメリカシウムの分析に供する。
- (2) 塩酸(5+1) 300mlでカラムを洗浄する。
- (3) ヨウ化アンモニウム溶液-塩酸 混液 50mlでプルトニウムを溶離する。毎分 1ml以下の流速で20ml流した後、コックを止め30分~60分放置し*⁷、コックを開いてさらに30ml流す。
- (4) 溶出液を蒸発乾固し、硝酸 5mlと過塩素酸 1mlで乾固物を加熱溶解後、過塩素酸の白煙が発生しなくなるまで蒸発乾固し*⁸、電着用試料とする。
- (5) 第8章 電着方法 に従って電着操作を行い、 α 線計測試料を作製する。

*³ 乾固するとプルトニウム、アメリカシウムが不溶性ケイ酸塩等に取り込まれ、化学収率が悪くなることもある。

*⁴ 過酸化水素水でプルトニウムPu(IV)でそろえる。

*⁵ 過酸化水素の分解が不十分であると、以後のイオン交換樹脂カラムによるプルトニウムの分離が不完全となり、化学収率が悪くなる。

*⁶ 陰イオン交換樹脂カラムの調製方法については 第10章 試薬の調製 を参照

*⁷ Pu(IV)をPu(III)に還元するための時間である。
(1)~(3)は連続しておこなう。

*⁸ 乾固物が着色している場合には、さらに硝酸 1mlと過酸化水素水数滴を加え、乾固する。

B. T O A－キシレン抽出法

- (1) 4.2.1 (8)で得られた、試料溶液を、その量に応じた 200～ 500mlの分液漏斗に移す。T O A－キシレン溶液 (10W/V%) 50mlを加え 2～3 分間振り混ぜ、プルトリウムを有機層に抽出する。
- (2) 水層は別の分液漏斗に移し、T O A－キシレン溶液 30mlを加え 2～3 分振り混ぜる。有機層は、(1)で得られた有機層に合わせる。水層はアメリカシウムの分析に供する。
- (3) 有機層に硝酸(3+2) 100mlを加え 2～3 分振り混ぜ、有機層を洗浄する。水層は、(2)で得られた水層と合わせアメリカシウムの分析に供する。
- (4) 有機層をさらに硝酸(3+2) 100mlで 1 回、塩酸(5+1) 100mlで 2 回洗浄する。洗液は捨てる。
- (5) 有機層にヨウ化アンモニウム溶液－塩酸 混液40mlを加え 2～3 分間振り混ぜ、プルトリウムを水層に逆抽出し、水層を別の分液漏斗に移す。この操作をもう一度繰り返して水層を合わせる。
- (6) 水層にキシレン 30mlを加え、2～3 分間振り混ぜて洗浄する。
- (7) 水層はビーカーに受け蒸発乾固する。放冷後、硝酸 5mlと過塩素酸数滴を加え、乾固物を加熱溶解後、過塩素酸の白煙が発生しなくなるまで蒸発乾固し^{*9}、電着用試料とする。
- (8) 第 8 章 電着方法 に従って電着操作を行い、 α 線計測用試料を作製する。

^{*9} 乾固物が着色している場合には、さらに硝酸 1mlと過酸化水素水数滴を加え、乾固する。

4.2.3 アメリシウムの分離

A. 陰イオン交換法

- (1) 4.2.2 A(1)の操作で得られた流出液と洗液、または4.2.2 B(3)の操作で得られた水層を 500ml ビーカに合わせ、蒸発乾固する。
- (2) 硝酸(3+2) 50mlを加え、乾固物を加温溶解後、水を加え 300mlとする^{*10}。
- (3) カルシウム担体溶液(100mgCa²⁺/ml) 5ml、シュウ酸 10gおよびシュウ酸アンモニウム 10gを加える。加温溶解後、アンモニア水で pH 1.5 に調整し、シュウ酸カルシウムの沈殿を生成させる。
- (4) 加熱熟成後、ろ紙(5種C)でろ過し、沈殿をシュウ酸アンモニウム溶液(0.1 W/V %)で洗浄する。
- (5) 沈殿をろ紙とともに磁製皿に移し、電気炉を使用して 550℃で2時間灰化する。
- (6) 試料を濃塩酸で溶解した後、鉄(Ⅲ)担体溶液(10 mgFe³⁺/ml) 2mlと塩化アンモニウム 2gを加える。加熱溶解後、アンモニア水で塩基性とし、水酸化物の沈殿を生成させる。
- (7) 加熱熟成後、ろ紙(5種A)でろ過し、沈殿をアンモニア水(1+100)で洗浄する。ろ液、洗液は捨てる。
- (8) 沈殿は塩酸(7+3) 20mlで溶解後、蒸発乾固する。塩酸(6+1) 20mlを加えて乾固物を溶解する。
- (9) 溶液を塩酸系陰イオン交換樹脂カラム(Dowex® 1-X8, 100~200mesh, 樹脂高 5cm) ^{*11} に毎分 1ml以下の流速で流し、塩酸(6+1) 50mlで洗浄する^{*12}。流出液と洗浄液を合わせ蒸発乾固する。

^{*10} 不溶物がある時は、ろ別する。

^{*11} 陰イオン交換樹脂カラムの調製方法については 第10章 試薬の調製を参照

^{*12} 試料中に含まれている微量のBi, Po, U, Pu等の除去操作である。

- (10) 硝酸(3+2) 20mlと過酸化水素水数滴を加え乾固物を加温溶解する。
- (11) 溶液を硝酸系陰イオン交換樹脂カラム(Dowex® 1-X8, 100~200mesh, 樹脂高 5cm) *¹³ に毎分 1ml以下の流速で流し、硝酸(3+2) 30mlで洗浄する*¹⁴。洗浄液は流出液に合わせ蒸発乾固する。
- (12) 乾固物に硝酸 5mlと過酸化水素水数滴を加えて加温溶解後、蒸発乾固する。
さらに乾固物に硝酸 1mlと過酸化水素水数滴を加え、加温溶解する。
- (13) 放冷後、メチルアルコール 12.6mlを加えよく攪拌する。
- (14) この溶液を陰イオン交換樹脂カラム(Dowex® 1-X4, 100~200mesh, 樹脂高 5cm) *¹³ に毎分 0.3~0.5mlの流速で流す。
- (15) 1M硝酸- 93%メチルアルコール混液 20ml、0.1M塩酸- 0.5Mチオシアン酸アンモニウム- 80%メチルアルコール混液 60ml、1M硝酸- 93%メチルアルコール混液 50mlで順次カラムを洗浄する*¹⁵。洗浄液は捨てる。
- (16) 1.5M塩酸- 86%メチルアルコール混液 50mlを流しアメリシウムを溶離する。溶出液は蒸発乾固する*¹⁶。
- (17) 乾固物に硝酸 5mlと過酸化水素水 1mlを加えて加温溶解し、蒸発乾固する。
この操作をもう一度繰り返す。さらに乾固物過塩素酸 1mlをに加え、過塩素酸白煙が生じなくなるまで蒸発乾固し*¹⁷、電着用試料とする。
- (18) 第8章 電着方法 に従って電着操作を行い、 α 線計測試料を作製する。

*¹³ 陰イオン交換樹脂カラムの調製方法については 第10章 試薬の調製 を参照

*¹⁴ 試料中のThを完全に除去するための操作。

*¹⁵ 液が切れると気泡が入り、洗浄が不十分となる。

*¹⁶ 加温してメチルアルコールを完全に蒸発してから、加熱乾固する。

*¹⁷ 乾固物が着色している場合には、さらに硝酸 1mlと過酸化水素水数滴を加え、乾固する。

B. T T A－キシレン抽出－陰イオン交換法

- (1) 4.2.2 A(1)の操作で得られた流出液と洗液、または4.2.2 B(3)の操作で得られた水層を 500ml ビーカに合わせ、加熱し蒸発乾固する。
- (2) 硝酸(3+2) 50mlを加え、乾固物を加温溶解後、水を加え 300mlとする^{*18}。
- (3) 4.2.3 A(3)以下(5)までの操作に従って、アメリシウムをシュウ酸塩沈殿として分離し、沈殿を灰化する。
- (4) 試料を硝酸(3+2) 10mlに溶解し、水を加え40mlとした後、アンモニア水でpHを2.0 に調整する。
- (5) 試料溶液を 100ml分液漏斗に移し、T T A－キシレン溶液(10W/V%) 10mlを加え、15分間振り混ぜる。有機層は捨てる^{*19}。水層について、この操作をもう1回繰り返す。
- (6) 水層をビーカに移し、酢酸アンモニウム溶液(5 W/V %) でpHを 4.0に調整する。
- (7) 試料溶液を 100ml分液漏斗に移し、T T A－キシレン溶液(10W/V%) 10mlを加え、5分間振り混ぜてアメリシウムを有機層に抽出する。水層を有機層から分離後、水層についてこの操作をもう1回繰り返す。
- (8) 有機層を合わせ、硝酸(1+13) 25mlを加え、5分間振り混ぜてアメリシウムを水層に逆抽出する。有機層を水層から分離後、有機層についてこの操作をもう1回繰り返す。
- (9) 水層を合わせ、キシレン 15mlを加え、1分間振り混ぜて洗浄した後、水層を蒸発乾固する。
- (10) 乾固物に硝酸 5mlと過酸化水素水 1mlを加え、蒸発乾固する。
- (11) 4.2.3 A(12)以下(18)までの操作に従って α 線計測用試料を作製する。

^{*18} 不溶物がある時は、ろ別する。

^{*19} Thを除去するための操作。

第 5 章 降 下 物

降下物試料は、水盤に捕集された大気浮遊じん及び降水である。

水盤に溜まった水の量が10ℓ程度までの試料には蒸発濃縮法が簡便であるが、試料水が10ℓ以上の場合には水酸化鉄（Ⅲ）共沈法が適している。

降下物を蒸発濃縮法または水酸化鉄（Ⅲ）共沈法により濃縮した後、硝酸酸性溶液とし、陰イオン交換またはT O A－キシレン抽出によりプルトニウムを分離、精製する。アメリカシウムは、プルトニウムを分離した後の試料を、陰イオン交換またはT T A－キシレン抽出－陰イオン交換により分離、精製する。精製した試料中のプルトニウムまたはアメリカシウムを、ステンレス鋼板上に電着して α 線計測用試料とし、シリコン半導体検出器による α 線スペクトロメトリーによって定量する。なお、放射エネルギーと化学収率を求めるため、あらかじめ試料に ^{242}Pu （または ^{236}Pu ）および ^{243}Am （または ^{244}Cm ）標準溶液を一定量加えておく。試料の化学分離から電着終了までに要する時間は、イオン交換法の場合、プルトニウムで約30時間、アメリカシウムで約70時間であり、溶媒抽出－イオン交換法の場合、プルトニウムで約20時間アメリカシウムで約50時間である。また受水面積 0.5 m² で1カ月間の降下量を供試量として本法を実施した場合、分析目標レベルはプルトニウム、アメリカシウムとも 4mBq /m²である。

5. 1 試薬、器具および装置

5.1.1 試 薬

(1) 標準溶液および担体溶液

^{242}Pu または ^{236}Pu 標準溶液 (0.02Bq/ ml)

^{243}Am または ^{244}Cm 標準溶液 (0.02Bq/ ml)

鉄（Ⅲ）担体溶液 (10mgFe³⁺/ml) , (50mgFe³⁺/ml)

カルシウム担体溶液 (100mgCa²⁺/ml)

(2) 酸

硝酸, 硝酸(3+2), 硝酸(1+13)

塩酸, 塩酸(6+1), 塩酸(5+1), 塩酸(7+3)

過酸化水素水(30%)

過塩素酸(70%)

シュウ酸

(3) 塩基

アンモニア水, アンモニア水(1+100)

(4) 塩類

シュウ酸アンモニウム

シュウ酸アンモニウム溶液 (0.1W/V%)

塩化アンモニウム

酢酸アンモニウム溶液 (5W/V%)

(5) 有機試薬

メチルアルコール

キシレン

TOA (トリ-*n*-オクチルアミン) -キシレン溶液 (10W/V%)

TTA (テノイルトリフルオロアセトン) -キシレン溶液 (10W/V%)

(6) 混合溶液

ヨウ化アンモニウム溶液 (5W/V%) -塩酸 混液 [29+71]

1M硝酸 - 93%メチルアルコール混液

0.1M塩酸 - 0.5Mチオシアン酸アンモニウム - 80%メチルアルコール混液

1.5M塩酸 - 86%メチルアルコール混液

(7) 指示薬

フェノールフタレイン-エチルアルコール溶液 (0.5W/V%)

(8) 陰イオン交換樹脂*¹

Dowex[®] 1-X8 (100~200mesh)

Dowex[®] 1-X4 (100~200mesh)

5.1.2 器 具

共沈用容器 (容量 100 ℓ 用)

分離型フィルタ

磁製皿

分液漏斗(100~500ml)

イオン交換樹脂カラム (内径 10~15mm、高さ 10~15cm)

5.1.3 装 置

遠心分離器

アスピレータ

振とう器

電気炉

5. 2 分析操作

降下物中のプルトニウム・アメリシウムをあらかじめ濃縮するために、蒸発濃縮法または水酸化鉄(Ⅲ)共沈法を行ってからプルトニウム・アメリシウムを分離、精製する。

5.2.1 試料の濃縮、分解

A. 蒸発濃縮法

(1) 採取した降下物試料の全量を、その量に応じたビーカーに移す。硝酸を試料水

1 ℓ 当たり 1 ml の割合で試料に加え攪拌する。

(2) ^{242}Pu または ^{236}Pu 標準溶液 (0.02Bq/ml) と ^{243}Am または ^{244}Cm 標準溶液

(0.02Bq/ml) それぞれ 2ml を正確に加え、よく攪拌する。

*¹ 陰イオン交換樹脂カラムの調製方法については 第 10 章 試薬の調製を参照

- (3) 試料が5 ℓ以下の場合はそのまま、5 ℓ以上の場合は5 ℓビーカーに順次入れ、ガスコンロまたはホットプレート上で蒸発濃縮する。
- (4) 濃縮した試料は 500mlビーカーに移し、硝酸 50mlを加え、ホットプレート上または砂浴上で蒸発乾固する。
- (5) 乾固物に過塩素酸 10mlを発泡に注意しながら徐々に加え、有機物を分解する。蒸発乾固直前に、硝酸を加え、蒸発乾固する。
- (6) 放冷後、硝酸(3+2) 100 mlと過酸化水素水 1 mlを加え*²、時計皿をしてホットプレート上で加熱溶解し、過酸化水素を分解する*³。
- (7) 放冷後、不溶物があればガラス繊維ろ紙 (GA-100) で吸引ろ過し、ろ液は 300mlビーカーに受ける。少量の硝酸(3+2) で洗浄し*⁴、洗液はろ液に合わせ、プルトニウム分析用試料とする。

B. 水酸化鉄(Ⅲ) 共沈法

- (1) 採取した降下物試料の全量を、その量に応じたポリエチレン製容器に移す。試料水 1 ℓ 当たり 1 mlの割合で硝酸を加え、攪拌する。
- (2) ²⁴²Puまたは ²³⁶Pu標準溶液 (約0.02Bq/ml) と ²⁴³Am標準溶液または ²⁴⁴Cm (約0.02Bq/ml) それぞれ 2mlを正確に加え、よく攪拌する。
- (3) 鉄(Ⅲ) 担体溶液 (50mgFe³⁺/ml) を試料水 1 ℓ 当たり 0.2mlの割合で加え、攪拌した後、1 時間以上放置する。
- (4) フェノールフタレインーエチルアルコール溶液 (0.5W/V%) 2 mlを加え、攪拌しながら、試料水が赤色を呈するまでアンモニア水を加える。
- (5) 水酸化鉄(Ⅲ) の沈殿が沈降するまで放置した後、上澄み液を捨て、沈殿を残液と共に 5 ℓ ビーカーに移し、静置する。

*² 過酸化水素水でプルトニウムをPu (Ⅳ) にそろえる。

*³ 過酸化水素の分解が不十分であると、プルトニウムの分離操作が不完全となり、化学収率が悪くなる。

*⁴ ろ過時には硝酸の飛散に注意する。

- (6) 上澄み液を捨て、沈殿を残液とともに 1ℓ または 2ℓ ビーカーに移し、加熱して沈殿を熟成する。
- (7) 放冷後、上澄み液を捨て、沈殿を残液と共に遠沈管に移し、3000rpmで10分間程度遠心分離を行い、上澄み液を捨てる。
- (8) 硝酸を沈殿に加え加熱溶解後、蒸発乾固する。
- (9) 放冷後、硝酸(3+2) 10mlと過塩素酸 10 mlを発泡に注意しながら徐々に加え、有機物を分解する。蒸発乾固直前に、硝酸を加え蒸発乾固する。
- (10) 放冷後、硝酸(3+2) 100 mlを加え、時計皿をしてホットプレート上で加熱溶解する。
- (11) 放冷後、不溶物があればガラス繊維ろ紙 (GA-100) で吸引ろ過し、ろ液は 300mlビーカーに受ける。ろ紙上の残留物は、少量の硝酸(3+2) で洗浄し^{*5}、洗液はろ液に合わせ、プルトニウム分析用試料とする。

5.2.2 プルトニウムの分離

A. 陰イオン交換法

- (1) 5.2.1 A(7)または5.2.1 B(10)で得られた試料溶液を、硝酸系陰イオン交換樹脂カラム(Dowex[®] 1-X8, 100~200mesh, 樹脂高 7cm) ^{*6}に毎分 2ml以下の流速で流し、硝酸(3+2) 120mlで洗浄する。流出液は洗液と合わせアメリカシウムの分析に供する。
- (2) 塩酸(5+1) 300mlでカラムを洗浄する。
- (3) ヨウ化アンモニウム溶液-塩酸 混液 50mlでプルトニウムを溶離する。毎分 1ml以下の流速で20ml流した後、コックを止め30分~60分放置^{*7}し、さらに 30ml流す。

^{*5} ろ過時には硝酸の飛散に注意する。

^{*6} 陰イオン交換樹脂カラムの調製方法については 第10章 試薬の調製 を参照

^{*7} Pu(IV)をPu(III)に還元するための時間である。
(1)~(3)は連続しておこなう。

- (4) 溶出液を蒸発乾固し、硝酸 5mlと過塩素酸 1mlで乾固物を加熱溶解後、過塩素酸の白煙が発生しなくなるまで蒸発乾固し*⁸、電着用試料とする。
- (5) 第8章 電着方法 に従って電着操作を行い、 α 線計測試料を作製する。

B. TOA-キシレン抽出法

- (1) 5.2.1 A(7)または5.2.1 B(10)で得られた、試料溶液を、その量に応じた 200～500mlの分液漏斗に移す。TOA-キシレン溶液 (10W/V%) 50mlを加え、2～3分間振り混ぜて、プルトニウムを有機層に抽出する。
- (2) 水層は別の分液漏斗に移し、TOA-キシレン溶液 30mlを加え2～3分振り混ぜる。有機層は、(1)で得られた有機層に合わせる。水層はアリメシウムの分析に供する。
- (3) 有機層に硝酸(3+2) 100mlを加え、2～3分振り混ぜて有機層を洗浄する。水層は、(2)で得られた水層と合わせてアメリカシウムの分析に供する。
- (4) 有機層をさらに硝酸(3+2) 100mlで1回、塩酸(5+1) 100mlで2回洗浄する。洗液は捨てる。
- (5) 有機層にヨウ化アンモニウム溶液-塩酸 混液 40mlを加え、2～3分間振り混ぜてプルトニウムを水層に逆抽出し、水層を別の分液漏斗に移す。この操作をもう一度繰り返し、水層を合わせる。
- (6) 水層にキシレン 30mlを加え、2～3分間振り混ぜて洗浄する。
- (7) 水層はビーカーに受け蒸発乾固する。放冷後、硝酸 5mlと過塩素酸数滴を加え、乾固物を加熱溶解後、過塩素酸の白煙が発生しなくなるまで蒸発乾固し*⁸、電着用試料とする。
- (8) 第8章 電着方法 に従って電着操作を行い、 α 線計測用試料を作製する。

*⁸ 乾固物が着色している場合には、さらに硝酸 1mlと過酸化水素水数滴を加え、乾固する。

5.2.3 アメリシウムの分離

A. 陰イオン交換法

- (1) 5.2.2 A(1)の操作で得られた流出液と洗液、または5.2.2 B(3)の操作で得られた水層を 500ml ビーカに合わせ、蒸発乾固する。
- (2) 硝酸(3+2) 50mlを加え、乾固物を加温溶解後、水を加えて 300mlとする*⁹。
- (3) カルシウム担体溶液(100mgCa²⁺/ml) 5ml、シュウ酸 10gおよびシュウ酸アンモニウム 10gを加える。加温溶解後、アンモニア水で pH 1.5 に調整し、シュウ酸カルシウムの沈殿を生成させる。
- (4) 加熱熟成後、ろ紙(5C)でろ過し、沈殿をシュウ酸アンモニウム溶液(0.1 W/V %)で洗浄する。
- (5) 沈殿をろ紙とともに磁製皿に移し、電気炉を使用して 550℃で2時間灰化する。
- (6) 試料を濃塩酸で溶解した後、鉄(Ⅲ)担体溶液(10mgFe³⁺/ml) 2mlと塩化アンモニウム 2gを加える。加熱溶解後、アンモニア水で塩基性とし、水酸化物の沈殿を生成させる。
- (7) 加熱熟成後、ろ紙(5A)でろ過し、沈殿をアンモニア水(1+100)で洗浄する。ろ液、洗液は捨てる。
- (8) 沈殿は塩酸(7+3) 20mlで溶解後、蒸発乾固する。塩酸(6+1) 20mlを加え乾固物を溶解する。
- (9) 溶液を塩酸系陰イオン交換樹脂カラム(Dowex[®] 1-X8, 100~200mesh, 樹脂高 5cm) *¹⁰ に毎分 1ml以下の流速で流し、塩酸(6+1) 50mlで洗浄する*¹¹。流出液と洗浄液を合わせ蒸発乾固する。

*⁹ 不溶物がある時は、ろ別する。

*¹⁰ 陰イオン交換樹脂カラムの調製方法については 第10章 試薬の調製を参照

*¹¹ 試料中に含まれている微量のBi, Po, U, Pu等の除去操作。

- (10) 硝酸(3+2) 20mlと過酸化水素水数滴を加え乾固物を加温溶解する。
- (11) 溶液を硝酸系陰イオン交換樹脂カラム(Dowex® 1-X8, 100~200mesh, 樹脂高 5cm) *¹² に毎分 1ml以下の流速で流し、硝酸(3+2) 30mlで洗浄する*¹³。洗浄液は流出液に合わせ蒸発乾固する。
- (12) 乾固物に硝酸 5mlと過酸化水素水数滴を加えて加温溶解後、蒸発乾固する。
さらに乾固物に硝酸 1mlと過酸化水素水数滴を加え、加温溶解する。
- (13) 放冷後、メチルアルコール 12.6mlを加えよく攪拌する。
- (14) この溶液を陰イオン交換樹脂カラム(Dowex® 1-X4, 100~200mesh, 樹脂高 5cm) *¹² に毎分 0.3~0.5mlの流速で流す。
- (15) 1M硝酸- 93%メチルアルコール混液 20ml、0.1M塩酸- 0.5Mチオシアン酸アンモニウム- 80%メチルアルコール混液 60ml、1M硝酸- 93%メチルアルコール混液 50mlで順次カラムを洗浄する*¹⁴。洗浄液は捨てる。
- (16) 1.5M塩酸- 86%メチルアルコール混液 50mlを流しアメリシウムを溶離する。溶出液は蒸発乾固する*¹⁵。
- (17) 硝酸 5mlと過酸化水素水 1mlを乾固物に加え加温溶解し、蒸発乾固する。この操作をもう一度繰り返す。さらに過塩素酸 1mlを乾固物に加え、過塩素酸白煙が生じなくなるまで蒸発乾固し*¹⁶、電着用試料とする。
- (18) 第8章 電着方法 に従って電着操作を行い、 α 線計測試料を作製する。

*¹² 陰イオン交換樹脂カラムの調製方法については 第10章 試薬の調製 を参照

*¹³ 試料中のThを完全に除去するための操作。

*¹⁴ 液が切れると気泡が入り、洗浄が不十分となる。

*¹⁵ 加温してメチルアルコールを完全に蒸発してから、加熱乾固する。

*¹⁶ 乾固物が着色している場合には、さらに硝酸 1mlと過酸化水素水数滴を加え、乾固する。

B. T T A－キシレン抽出－陰イオン交換法

- (1) 5.2.2 A(1)の操作で得られた流出液と洗液、または5.2.2 B(3)の操作で得られた水層を 500ml ビーカに合わせ、加熱し蒸発乾固する。
- (2) 硝酸(3+2) 50mlを加え、乾固物を加温溶解後、水を加え 300mlとする^{*17}。
- (3) 5.2.3 A(3)以下(5)までの操作に従って、アメリシウムをシュウ酸塩沈殿として分離し、沈殿を灰化する。
- (4) 試料を硝酸(3+2) 10mlに溶解し、水を加え40mlとした後、アンモニア水でpHを2.0 に調整する。
- (5) 試料溶液を 100ml分液漏斗に移し、T T A－キシレン溶液(10W/V%) 10mlを加え、15分間振り混ぜる。有機層は捨てる^{*18}。水層について、この操作をもう1回繰り返す。
- (6) 水層をビーカに移し、酢酸アンモニウム溶液(5 W/V %) でpHを 4.0に調整する。
- (7) 試料溶液を 100ml分液漏斗に移し、T T A－キシレン溶液(10W/V%) 10mlを加え、5分間振り混ぜアメリシウムを有機層に抽出する。水層を有機層から分離後、水層についてこの操作をもう1回繰り返す。
- (8) 有機層を合わせ、硝酸(1+13) 25mlを加え、5分間振り混ぜアメリシウムを水層に逆抽出する。有機層を水層から分離後、有機層についてこの操作をもう1回繰り返す。
- (9) 水層を合わせ、キシレン 15mlを加え、1分間振り混ぜ洗浄した後、水層を蒸発乾固する。
- (10) 乾固物に硝酸 5mlと過酸化水素水 1mlを加え、蒸発乾固する。
- (11) 5.2.3 A(12)以下(18)までの操作に従って α 線計測用試料を作製する。

*17 不溶物がある時は、ろ別する。

*18 Thを除去するための操作。

第6章 大気浮遊じん

大気中の浮遊じんは固定ろ紙または連続移動ろ紙で集じんしたものを対象試料とする。
ただし、焼結プルトニウムを含む恐れのある試料については第7章による。

試料は電気炉を使用して 450℃で24時間加熱した後、硝酸で浸出する。その後、陰イオン交換またはT O A－キシレン抽出によりプルトニウムを分離、精製する。アメリシウムは、プルトニウムを分離した後の試料を、陰イオン交換またはT T A－キシレン抽出－陰イオン交換により分離・精製する。精製した試料中のプルトニウムまたはアメリシウムを、ステンレス鋼板上に電着して α 線計測用試料とし、シリコン半導体検出器による α 線スペクトロメトリーによって定量する。なお、放射エネルギーと化学収率を求めるため、あらかじめ試料に ^{242}Pu (または ^{236}Pu)および ^{243}Am (または ^{244}Cm)標準溶液を一定量加えておく。試料の化学分離から電着終了までに要する時間は、イオン交換法の場合、プルトニウムで約30時間、アメリシウムで約70時間であり、溶媒抽出－イオン交換法の場合、プルトニウムで約20時間、アメリシウムで約50時間である。また空気集じん量 10^4m^3 で本法を実施した場合、分析目標レベルはプルトニウム、アメリシウムとも $2 \times 10^{-4} \text{ mBq/m}^3$ である。

6. 1 試薬、器具および装置

6.1.1 試薬

(1) 標準溶液および担体溶液

^{242}Pu または ^{236}Pu 標準溶液 (0.02Bq/ mL)

^{243}Am または ^{244}Cm 標準溶液 (0.02Bq/ mL)

鉄(Ⅲ)担体溶液 (10mg Fe^{3+} / mL) ,

カルシウム担体溶液 (100mg Ca^{2+} / mL)

(2) 酸

硝酸, 硝酸(3+2) , 硝酸(1+13)

塩酸, 塩酸(6+1) , 塩酸(5+1) , 塩酸(7+3)

過酸化水素水(30%)

過塩素酸(70%)

シュウ酸

(3) 塩基

アンモニア水, アンモニア水(1+100)

(4) 塩類

シュウ酸アンモニウム

シュウ酸アンモニウム溶液 (0.1W/V%)

塩化アンモニウム

酢酸アンモニウム溶液 (5W/V%)

(5) 有機試薬

メチルアルコール

キシレン

TOA (トリ-n-オクチルアミン) -キシレン溶液 (10W/V%)

TTA (テノイルトリフルオロアセトン) -キシレン溶液 (10W/V%)

(6) 混合溶液

ヨウ化アンモニウム溶液 (5W/V%) -塩酸 混液 [29+71]

1M硝酸 - 93%メチルアルコール混液

0.1M塩酸 - 0.5Mチオシアン酸アンモニウム - 80%メチルアルコール混液

1.5M塩酸 - 86%メチルアルコール混液

(7) 陰イオン交換樹脂*¹

Dowex[®] 1-X8 (100~200mesh)

Dowex[®] 1-X4 (100~200mesh)

*¹ 陰イオン交換樹脂カラムの調製方法については 第10章 試薬の調製を参照

6.1.2 器 具

分離型フィルタ

磁製皿

分液漏斗(100～500 ml)

イオン交換樹脂カラム (内径 10～15 mm 、高さ 10～15 cm)

6.1.3 装 置

遠心分離器

アスピレータ

振とう器

電気炉

6. 2 分析操作

6.2.1 試料の分解

- (1) 試料*²を2～3 ℓ ビーカに入れ、²⁴²Puまたは²³⁶Pu標準溶液（0.02Bq/ml）と²⁴³Amまたは²⁴⁴Cm標準溶液（0.02Bq/ml）それぞれ2mlを正確に加える。
- (2) ろ紙の量に従って硝酸(3+2) 1～1.5 ℓを加え、時計皿をしてホットプレート上または砂浴上で、突沸しないように注意しながら3時間煮沸する。
- (3) 温かいうちに、ガラス繊維ろ紙（GA-100）で吸引ろ過し、ろ液は3 ℓ ビーカに受ける。ろ紙上の残留物は、少量の硝酸(3+2) で洗浄し*³、洗液はろ液に合わせる。
- (4) 浸出残渣をろ紙ごととのビーカに戻し、硝酸（3+2）を加え、時計皿をしてホットプレート上または砂浴上で、突沸しないように注意しながら、再度、3時間加熱浸出する。
- (5) 温かいうちに、ガラス繊維ろ紙（GA-100）で吸引ろ過する。ろ紙上の残留物は、少量の硝酸(3+2) で洗浄する*³。
- (6) ろ液と洗液を合わせシロップ状になるまで加熱濃縮する。
- (7) 濃縮した溶液が温かいうちに、硝酸(3+2) 100mlと過酸化水素水 1mlを加え、加熱する。発泡がなくなるまで充分加熱し、過酸化水素を分解する*⁴。
- (8) 放冷後、不溶物があればガラス繊維ろ紙（GA-100）で吸引ろ過し、ろ液は500mlビーカに受ける。少量の硝酸(3+2) で洗浄し、洗液はろ液に合わせてプルトニウム分析用試料とする。

*² 浮遊じん埃を捕集した固定ろ紙または連続移動ろ紙は、電気炉を使用して450℃で24時間加熱し、分析試料とする。高温にすると焼結プルトニウムになる恐れがある。ろ紙はセルロース・ガラス繊維系ろ紙（HE-40T）等がある。

*³ 冷えるとプルトニウム、アメリシウムが不溶性ケイ酸塩等に取り込まれ、化学収率が悪くなることがある。ろ過時には硝酸の飛散に注意する。

*⁴ 過酸化水素の分解が不十分であると、プルトニウムの分離が不完全となり、化学収率が悪くなる。

6.2.2 プルトニウムの分離

A. 陰イオン交換法

- (1) 6.2.1 (8)で得られた試料溶液を、硝酸系陰イオン交換樹脂カラム(Dowex® 1-X8, 100~200mesh, 樹脂高 7cm) *⁵に毎分 2ml以下の流速で流し、硝酸(3+2) 120mlで洗浄する。流出液は洗液と合わせアメリカシウムの分析に供する。
- (2) 塩酸(5+1) 300mlでカラムを洗浄する。
- (3) ヨウ化アンモニウム溶液-塩酸 混液 50mlでプルトニウムを溶離する。毎分 1ml以下の流速で20ml流した後、コックを止め30分~60分放置*⁶し、さらに 30ml流す。
- (4) 溶出液を蒸発乾固し、硝酸 5mlと過塩素酸 1mlで乾固物を加熱溶解後、過塩素酸の白煙が発生しなくなるまで蒸発乾固し*⁷、電着用試料とする。
- (5) 第8章 電着方法 に従って電着操作を行い、 α 線計測試料を作製する。

*⁵ 陰イオン交換樹脂カラムの調製方法については 第10章 試薬の調製 を参照

*⁶ Pu(IV)をPu(III)に還元するための時間である。
(1)~(3)は連続しておこなう。

*⁷ 乾固物が着色している場合には、さらに硝酸 1mlと過酸化水素水数滴を加え、乾固する。

B. T O A - キシレン抽出法

- (1) 6.2.1 (8)で得られた、試料溶液を、その量に応じた 200～ 500ml の分液漏斗に移す。T O A - キシレン溶液 (10W/V%) 50ml を加え 2 ～ 3 分間振り混ぜ、プルトリウムを有機層に抽出する。
- (2) 水層は別の分液漏斗に移し、T O A - キシレン溶液 30ml を加え 2 ～ 3 分振り混ぜる。有機層は、(1)で得られた有機層に合わせる。水層はアメリシウムの分析に供する。
- (3) 有機層に硝酸(3+2) 100ml を加え 2 ～ 3 分振り混ぜ、有機層を洗浄する。水層は、(2)で得られた水層と合わせアメリシウムの分析に供する。
- (4) 有機層をさらに硝酸(3+2) 100ml で 1 回、塩酸(5+1) 100ml で 2 回洗浄する。洗液は捨てる。
- (5) 有機層にヨウ化アンモニウム溶液 - 塩酸 混液 40ml を加え 2 ～ 3 分間振り混ぜ、プルトリウムを水層に逆抽出し、水層を別の分液漏斗に移す。この操作をもう一度繰り返し水層を合わせる。
- (6) 水層にキシレン 30ml を加え 2 ～ 3 分間振り混ぜ、洗浄する。
- (7) 水層はビーカに受け蒸発乾固する。放冷後、硝酸 5ml と過塩素酸数滴を加え乾固物を加熱溶解後、過塩素酸の白煙が発生しなくなるまで蒸発乾固し*⁸、電着用試料とする。
- (8) 第 8 章 電着方法 に従って電着操作を行い、 α 線計測用試料を作製する。

*⁸ 乾固物が着色している場合には、さらに硝酸 1ml と過酸化水素水数滴を加え、乾固する。

5.2.3 アメリシウムの分離

A. 陰イオン交換法

- (1) 6.2.2 A(1)の操作で得られた流出液と洗液、または6.2.2 B(3)の操作で得られた水層を 500ml ビーカに合わせ、蒸発乾固する。
- (2) 硝酸(3+2) 50mlを加え、乾固物を加温溶解後、水を加え 300mlとする*⁹。
- (3) カルシウム担体溶液(100mgCa²⁺/ml) 5ml、シュウ酸 10gおよびシュウ酸アンモニウム 10gを加える。加温溶解後、アンモニア水で pH 1.5に調整し、シュウ酸カルシウムの沈殿を生成させる。
- (4) 加熱熟成後、ろ紙(5種C)でろ過し、沈殿をシュウ酸アンモニウム溶液(0.1 W/V %)で洗浄する。
- (5) 沈殿をろ紙とともに磁製皿に移し、電気炉を使用して 550℃で2時間灰化する。
- (6) 試料を濃塩酸で溶解した後、鉄(Ⅲ)担体溶液(10mgFe³⁺/ml) 2mlと塩化アンモニウム 2gを加える。加熱溶解後、アンモニア水で塩基性とし、水酸化物の沈殿を生成させる。
- (7) 加熱熟成後、ろ紙(5種A)でろ過し、沈殿をアンモニア水(1+100)で洗浄する。ろ液、洗液は捨てる。
- (8) 沈殿は塩酸(7+3) 20mlで溶解後、蒸発乾固する。塩酸(6+1) 20mlを加え乾固物を溶解する。
- (9) 溶液を塩酸系陰イオン交換樹脂カラム(Dowex[®] 1-X8, 100~200mesh, 樹脂高 5cm) *¹⁰ に毎分 1ml以下の流速で流し、塩酸(6+1) 50mlで洗浄する*¹¹。流出液と洗浄液を合わせ蒸発乾固する。

*⁹ 不溶物がある時はろ別する。

*¹⁰ 陰イオン交換樹脂カラムの調製方法は 第10章 試薬の調製を参照

*¹¹ 試料中に含まれている微量のBi, Po, U, Pu等の除去操作。

- (10) 硝酸(3+2) 20mlと過酸化水素水数滴を加えて乾固物を加温溶解する。
- (11) 溶液を硝酸系陰イオン交換樹脂カラム(Dowex[®] 1-X8, 100~200mesh, 樹脂高 5cm) *¹² に毎分 1ml以下の流速で流し、硝酸(3+2) 30mlで洗浄する*¹³。洗浄液は流出液に合わせて蒸発乾固する。
- (12) 乾固物に硝酸 5mlと過酸化水素水数滴を加えて加温溶解後、蒸発乾固する。
さらに乾固物に硝酸 1mlと過酸化水素水数滴を加えて加温溶解する。
- (13) 放冷後、メチルアルコール 12.6mlを加えよく攪拌する。
- (14) この溶液を陰イオン交換樹脂カラム(Dowex[®] 1-X4, 100~200mesh, 樹脂高 5cm) *¹² に毎分 0.3~0.5mlの流速で流す。
- (15) 1M硝酸－ 93%メチルアルコール混液 20ml、0.1M塩酸－ 0.5Mチオシアン酸アンモニウム－ 80%メチルアルコール混液 60ml、1M硝酸－ 93%メチルアルコール混液 50mlで順次カラムを洗浄する*¹⁴。洗浄液は捨てる。
- (16) 1.5M塩酸－ 86%メチルアルコール混液 50mlを流しアメリシウムを溶離する。溶出液は蒸発乾固する*¹⁵。
- (17) 乾固物に硝酸 5mlと過酸化水素水 1mlを加えて加温溶解し、蒸発乾固する。
この操作をもう一度繰り返す。さらに乾固物に過塩素酸 1mlを加え、過塩素酸白煙が生じなくなるまで蒸発乾固し*¹⁶、電着用試料とする。
- (18) 第8章 電着方法 に従って電着操作を行い、 α 線計測試料を作製する。

*¹² 陰イオン交換樹脂カラムの調製方法については 第10章 試薬の調製 を参照

*¹³ 試料中のThを完全に除去するための操作。

*¹⁴ 液が切れると気泡が入り、洗浄が不十分となる。

*¹⁵ 加温してメチルアルコールを完全に蒸発してから、加熱乾固する。

*¹⁶ 乾固物が着色している場合には、さらに硝酸 1mlと過酸化水素水数滴を加え、乾固する。

B. T T Aーキシレン抽出ー陰イオン交換法

- (1) 6.2.2 A(1)の操作で得られた流出液と洗液、または6.2.2 B(3)の操作で得られた水層を 500ml ビーカに合わせ、加熱し蒸発乾固する。
- (2) 硝酸(3+2) 50mlを加え、乾固物を加温溶解後、水を加え 300mlとする^{*17}。
- (3) 6.2.3 A(3)以下(5)までの操作に従って、アメリシウムをシュウ酸塩沈殿として分離し、沈殿を灰化する。
- (4) 試料を硝酸(3+2) 10mlに溶解し、水を加え40mlとした後、アンモニア水でpHを2.0 に調整する。
- (5) 試料溶液を 100ml分液漏斗に移し、T T Aーキシレン溶液 (10W/V%) 10mlを加え、15分間振り混ぜる。有機層は捨てる^{*18}。水層について、この操作をもう1回繰り返す。
- (6) 水層をビーカに移し、酢酸アンモニウム溶液(5 W/V %) でpHを 4.0に調整する。
- (7) 試料溶液を 100ml分液漏斗に移し、T T Aーキシレン溶液 (10W/V%) 10mlを加え、5分間振り混ぜアメリシウムを有機層に抽出する。水層を有機層から分離後、水層についてこの操作をもう1回繰り返す。
- (8) 有機層を合わせ、硝酸(1+13) 25mlを加え、5分間振り混ぜアメリシウムを水層に逆抽出する。有機層を水層から分離後、有機層についてこの操作をもう1回繰り返す。
- (9) 水層を合わせ、キシレン 15mlを加え、1分間振り混ぜ洗浄した後、水層を蒸発乾固する。
- (10) 乾固物に硝酸 5mlと過酸化水素水 1mlを加えて蒸発乾固する。
- (11) 6.2.3 A(12)以下(18)までの操作に従って α 線計測用試料を作製する。

^{*17} 不溶物がある時はろ別する。

^{*18} Thを除去するための操作。

第7章 焼結プルトニウムを含む環境試料

高温加熱され硝酸に難溶性となったプルトニウム（焼結プルトニウム）が含まれる試料は、硝酸のみによる溶出方法では充分プルトニウムを溶出させることができない。このため、硝酸－フッ化水素酸混合溶液と硝酸で煮沸浸出し、陰イオン交換またはT O A－キシレン抽出によりプルトニウムを分離、精製する。アメリシウムは、プルトニウムを分離した後の試料を、陰イオン交換またはT T A－キシレン抽出－陰イオン交換により分離、精製する。精製した試料中のプルトニウムまたはアメリシウムを、ステンレス鋼板上に電着して α 線計測用試料とし、シリコン半導体検出器による α 線スペクトロメトリーによって定量する。なお、放射エネルギーと化学収率を求めるため、あらかじめ試料に ^{242}Pu （または ^{236}Pu ）および ^{243}Am （または ^{244}Cm ）標準溶液を一定量加えておく。試料の化学分離から電着終了までに要する時間は、イオン交換法の場合、プルトニウムで約40時間、アメリシウムで約80時間であり、溶媒抽出－イオン交換法の場合、プルトニウムで約30時間、アメリシウムで約60時間である。また供試量20 g 乾土で本法を実施した場合、分析目標レベルはプルトニウム、アメリシウムとも0.1 Bq/kg乾土である。

この章では、土試料を対象としているが、焼結プルトニウムを含む恐れのあるその他の環境試料にも適当な前処理をほどこした後、適用できる。

7. 1 試薬、器具および装置

7.1.1 試薬

(1) 標準溶液および担体溶液

^{242}Pu または ^{236}Pu 標準溶液 (0.02Bq/ ml)

^{243}Am または ^{244}Cm 標準溶液 (0.02Bq/ ml)

鉄(Ⅲ)担体溶液 (10mg Fe^{3+} / ml) ,

カルシウム担体溶液 (100mg Ca^{2+} / ml)

(2) 酸

硝酸, 硝酸(3+2) , 硝酸(1+13)

塩酸, 塩酸(6+1), 塩酸(5+1), 塩酸(7+3)

10M硝酸－ 0.1Mフッ化水素酸混液

過酸化水素水(30%)

過塩素酸(70%)

シュウ酸

(3) 塩基

アンモニア水, アンモニア水(1+100)

(4) 塩類

シュウ酸アンモニウム

シュウ酸アンモニウム溶液 (0.1W/V%)

塩化アンモニウム

酢酸アンモニウム溶液 (5W/V%)

(5) 有機試薬

メチルアルコール

キシレン

TOA (トリ-n-オクチルアミン)－キシレン溶液 (10W/V%)

TTA (テノイルトリフルオロアセトン)－キシレン溶液 (10W/V%)

(6) 混合溶液

ヨウ化アンモニウム溶液 (5W/V%)－塩酸 混液 [29+71]

1M硝酸－ 93%メチルアルコール混液

0.1M塩酸－ 0.5Mチオシアン酸アンモニウム－ 80%メチルアルコール混液

1.5M塩酸－ 86%メチルアルコール混液

(7) 陰イオン交換樹脂*¹

Dowex[®] 1-X8 (100～200mesh)

Dowex[®] 1-X4 (100～200mesh)

*¹ 陰イオン交換樹脂カラムの調製方法については 第10章 試薬の調製を参照

7.1.2 器 具

磁製皿容器（直径 12cm）

分離型フィルタ

磁製皿

分液漏斗(100～500ml)

イオン交換樹脂カラム（内径 10～15mm、高さ 10～15cm）

7.1.3 装 置

遠心分離器

アスピレータ

振とう器

電気炉

7. 2 分析操作

7.2.1 試料の前処理

- (1) 乾燥細土 20 gを磁製皿（直径 12cm）にはかり取り、電気炉に入れて 500℃で約 4 時間加熱し、有機物を十分に分解する。
- (2) 放冷後、200mlテフロンビーカに移し、 ^{242}Pu または ^{236}Pu 標準溶液（0.02Bq/ml）と ^{243}Am または ^{244}Cm 標準溶液（0.02Bq/ml）それぞれ 2mlを正確に加える。
- (3) 10M硝酸－0.1Mフッ化水素酸混液 50mlを発泡に注意して、攪拌しながら徐々に加える。
- (4) テフロン製時計皿をしてホットプレート上で、ときどき攪拌しながら 2 時間煮沸する。
- (5) 放冷後、試料を不溶物と共に遠沈管に移し 3000rpmで 1 0 分間程度遠心分離を行い、上澄み液を 500mlビーカに移す。
とする。
- (6) 遠沈管の不溶物を硝酸－フッ化水素酸混合溶液 50mlを用いてもとのテフロンビーカに移し、テフロン製時計皿をして、ホットプレート上で 1 時間煮沸する。

- (7) 放冷後、先の遠沈管を用いて同様に遠心分離し、上澄み液は先の上澄み液に合わせる。
- (8) 遠沈管の不溶物を硝酸(3+2) 50mlを用いてもとのテフロンビーカーに移し、テフロン製時計皿をして、ホットプレート上で1時間煮沸する。
- (9) 放冷後、先の遠沈管を用いて同様に遠心分離し、上澄み液は先の上澄み液に合わせる。
- (10) (8)～(9)の操作をもう一度繰り返す。
- (11) 溶液は砂浴上またはホットプレート上でシロップ状(約 50ml)になるまで加熱濃縮する*²。
- (12) 濃縮した溶液が温かいうちに、硝酸(3+2) 100mlと過酸化水素水 1mlを加え加熱する*³。発泡がなくなるまで充分加熱し、過酸化水素を分解する*⁴。
- (13) 放冷後、不溶物があればガラス繊維ろ紙(GA-100)で吸引ろ過し、ろ液は 300mlビーカーに受ける。残渣は、少量の硝酸(3+2) で洗浄し、洗液はろ液に合わせる。
-

*² 乾固するとプルトニウム、アメリシウムが不溶性ケイ酸塩等に取り込まれ、化学収率が悪くなることがある。

*³ 過酸化水素水でプルトニウムをPu(IV)にそろえる。

*⁴ 過酸化水素の分解が不十分であると、プルトニウムの分離が不完全となり、化学収率が悪くなる。

7.2.2 プルトニウムの分離

A. 陰イオン交換法

- (1) 7.2.1 (13)で得られた試料溶液を、硝酸系陰イオン交換樹脂カラム(Dowex[®] 1-X8, 100~200mesh, 樹脂高 7cm) *⁵に毎分 2ml以下の流速で流し、硝酸(3+2) 120mlで洗浄する。流出液は洗液と合わせアメリシウムの分析に供する。
- (2) 塩酸(5+1) 300mlでカラムを洗浄する。
- (3) ヨウ化アンモニウム溶液-塩酸 混液 50mlでプルトニウムを溶離する。毎分 1 ml以下の流速で流した後、コックを止め30~60分放置*⁶し、コックを開いてさらに30ml流す。
- (4) 溶出液を蒸発乾固し、硝酸 5mlと過塩素酸 1mlで乾固物を加熱溶解後、過塩素酸の白煙が発生しなくなるまで蒸発乾固し*⁷、電着用試料とする。
- (5) 第8章 電着方法 に従って電着操作を行い、 α 線計測試料を作製する。

*⁵ 陰イオン交換樹脂カラムの調製方法については 第10章 試薬の調製 を参照

*⁶ Pu(IV)をPu(III)に還元するための時間である。
(1)~(3)は連続しておこなう。

*⁷ 乾固物が着色している場合には、さらに硝酸 1mlと過酸化水素水数滴を加え、乾固する。

B. T O A - キシレン抽出法

- (1) 7.2.1 (13)で得られた、試料溶液を、その量に応じた 200～ 500mlの分液漏斗に移す。T O A - キシレン溶液 (10W/V%) 50mlを加え 2～3 分間振り混ぜ、プルトリウムを有機層に抽出する。
- (2) 水層は別の分液漏斗に移し、T O A - キシレン溶液 30mlを加え 2～3 分振り混ぜる。有機層は、(1)で得られた有機層に合わせる。水層はアメリカシウムの分析に供する。
- (3) 有機層に硝酸(3+2) 100mlを加え 2～3 分振り混ぜ、有機層を洗浄する。水層は、(2)で得られた水層と合わせアメリカシウムの分析に供する。
- (4) 有機層をさらに硝酸(3+2) 100mlで 1 回、塩酸(5+1) 100mlで 2 回洗浄する。洗液は捨てる。
- (5) 有機層にヨウ化アンモニウム溶液 - 塩酸 混液 40mlを加え 2～3 分間振り混ぜ、プルトリウムを水層に逆抽出し、水層を別の分液漏斗に移す。この操作をもう一度繰り返し、水層を合わせる。
- (6) 水層にキシレン 30mlを加え 2～3 分間振り混ぜ、洗浄する。
- (7) 水層はビーカーに受け蒸発乾固する。放冷後、硝酸 5mlと過塩素酸数滴を加え乾固物を加熱溶解後、過塩素酸の白煙が発生しなくなるまで蒸発乾固し^{*8}、電着用試料とする。
- (8) 第 8 章 電着方法 に従って電着操作を行い、 α 線計測用試料を作製する。

^{*8} 乾固物が着色している場合には、さらに硝酸 1mlと過酸化水素水数滴を加え、乾固する。

7.2.3 アメリシウムの分離

A. 陰イオン交換法

- (1) 7.2.2 A(1)の操作で得られた流出液と洗液、または7.2.2 B(3)の操作で得られた水層を 500ml ビーカに合わせ、蒸発乾固する。
- (2) 硝酸(3+2) 50mlを加え、乾固物を加温溶解後、水を加え 300mlとする^{*9}。
- (3) カルシウム担体溶液(100mgCa²⁺/ml) 5ml、シュウ酸 10gおよびシュウ酸アンモニウム 10gを加える。加温溶解後、アンモニア水で pH 1.5 に調整し、シュウ酸カルシウムの沈殿を生成させる。
- (4) 加熱熟成後、ろ紙(5種C)でろ過し、沈殿をシュウ酸アンモニウム溶液(0.1 W/V %)で洗浄する。
- (5) 沈殿をろ紙とともに磁製皿に移し、電気炉を使用して 550℃で2時間灰化する。
- (6) 試料を濃塩酸で溶解した後、鉄(Ⅲ)担体溶液(10mgFe³⁺/ml) 2mlと塩化アンモニウム 2gを加える。加熱溶解後、アンモニア水で塩基性とし、水酸化物の沈殿を生成させる。
- (7) 加熱熟成後、ろ紙(5種A)でろ過し、沈殿をアンモニア水(1+100)で洗浄する。ろ液、洗液は捨てる。
- (8) 沈殿は塩酸(7+3) 20mlで溶解後、蒸発乾固する。塩酸(6+1) 20mlを加え乾固物を溶解する。
- (9) 溶液を塩酸系陰イオン交換樹脂カラム(Dowex® 1-X8, 100~200mesh, 樹脂高 5cm) ^{*10} に毎分 1ml以下の流速で流し、塩酸(6+1) 50mlで洗浄する^{*11}。流出液と洗浄液を合わせ蒸発乾固する。

^{*9} 不溶物がある時はろ別する。

^{*10} 陰イオン交換樹脂カラムの調製方法については 第10章 試薬の調製を参照

^{*11} 試料中に含まれている微量のBi, Po, U, Pu等の除去操作。

- (10) 硝酸(3+2) 20mlと過酸化水素水数滴を加え乾固物を加温溶解する。
- (11) 溶液を硝酸系陰イオン交換樹脂カラム(Dowex® 1-X8, 100~200mesh, 樹脂高 5cm) *¹² に毎分 1ml以下の流速で流し、硝酸(3+2) 30mlで洗浄する*¹³。洗浄液は流出液に合わせ蒸発乾固する。
- (12) 乾固物に硝酸 5mlと過酸化水素水数滴を加えて加温溶解後、蒸発乾固する。
さらに乾固物に硝酸 1mlと過酸化水素水数滴を加え、加温溶解する。
- (13) 放冷後、メチルアルコール 12.6mlを加えよく攪拌する。
- (14) この溶液を陰イオン交換樹脂カラム(Dowex® 1-X4, 100~200mesh, 樹脂高 5cm) *¹² に毎分 0.3~0.5mlの流速で流す。
- (15) 1M硝酸－ 93%メチルアルコール混液 20ml、 0.1M塩酸－ 0.5Mチオシアン酸アンモニウム－ 80%メチルアルコール混液 60ml、 1M硝酸－ 93%メチルアルコール混液 50mlで順次カラムを洗浄する*¹⁴。洗浄液は捨てる。
- (16) 1.5M塩酸－ 86%メチルアルコール混液 50mlを流しアメリシウムを溶離する。溶出液は蒸発乾固する*¹⁵。
- (17) 乾固物に硝酸 5mlと過酸化水素水 1mlを加えて加温溶解し、蒸発乾固する。
この操作をもう一度繰り返す。さらに乾固物に過塩素酸 1mlを加え、過塩素酸白煙が生じなくなるまで蒸発乾固し*¹⁶、電着用試料とする。
- (18) 第 8 章 電着方法 に従って電着操作を行い、 α 線計測試料を作製する。

*¹² 陰イオン交換樹脂カラムの調製方法については 第 10 章 試薬の調製 を参照

*¹³ 試料中のThを完全に除去するための操作。

*¹⁴ 液が切れると気泡が入り、洗浄が不十分となる。

*¹⁵ 加温してメチルアルコールを完全に蒸発してから、加熱乾固する。

*¹⁶ 乾固物が着色している場合には、さらに硝酸 1mlと過酸化水素水数滴を加え乾固する。

B. T T Aーキシレン抽出ー陰イオン交換法

- (1) 7.2.2 A(1)の操作で得られた流出液と洗液、または7.2.2 B(3)の操作で得られた水層を 500ml ビーカに合わせ、加熱し蒸発乾固する。
- (2) 硝酸(3+2) 50mlを加え、乾固物を加温溶解後、水を加え 300mlとする^{*17}。
- (3) 2.2.3 A(3)以下(5)までの操作に従って、アメリシウムをシュウ酸塩沈殿として分離し、沈殿を灰化する。
- (4) 試料を硝酸(3+2) 10mlに溶解し、水を加え40mlとした後、アンモニア水でpHを2.0 に調整する。
- (5) 試料溶液を 100ml分液漏斗に移し、T T Aーキシレン溶液(10W/V%) 10mlを加え、15分間振り混ぜる。有機層は捨てる^{*18}。水層について、この操作をもう1回繰り返す。
- (6) 水層をビーカに移し、酢酸アンモニウム溶液(5 W/V %) でpHを 4.0に調整する。
- (7) 試料溶液を 100ml分液漏斗に移し、T T Aーキシレン溶液(10W/V%) 10mlを加え、5分間振り混ぜアメリシウムを有機層に抽出する。水層を有機層から分離後、水層についてこの操作をもう1回繰り返す。
- (8) 有機層を合わせ、硝酸(1+13) 25mlを加え、5分間振り混ぜアメリシウムを水層に逆抽出する。有機層を水層から分離後、有機層についてこの操作をもう1回繰り返す。
- (9) 水層を合わせ、キシレン 15mlを加え、1分間振り混ぜ洗浄した後、水層を蒸発乾固する。
- (10) 乾固物に硝酸 5mlと過酸化水素水 1mlを加え、蒸発乾固する。
- (11) 7.2.3 A(12)以下(18)までの操作に従って α 線計測用試料を作製する。

^{*17} 不溶物がある時はろ別する。

^{*18} Thを除去するための操作。

第 8 章 電着方法

プルトニウムまたはアメリシウムの分析・測定には、 α 線スペクトロメトリーを用いるが、本章では、各種環境試料から分離、精製して得られた電着用試料（第 2 章から第 7 章で作製）中のプルトニウムまたはアメリシウムを、電解装置でステンレス鋼板上に電着する方法を示す。

また、プルトニウムの α 線スペクトロメトリーにおいて、化学分離が不完全のため、スペクトルが大きくテールリングしている場合、ウランまたはトリウム等の影響を受けていると思われる場合は、再溶解、精製、再電着を行う必要があるので、その方法についても示す。

8. 1 試薬、器具および装置

8.1.1 電着操作

8.1.1.1 試薬

(1) 酸

硫酸(1+9)

(2) 塩基

アンモニア水

(3) 有機試薬

エチルアルコールまたはアセトン

(4) 指示薬

メチルレッドーエチルアルコール溶液 (0.1W/V%)

8.1.1.2 器具

電着セル (図. 1 参照)

白金電極 (直径 1mm、長さ 20 cm)

電着板 (ステンレス鋼製、直径 25mm、厚さ 1mm)

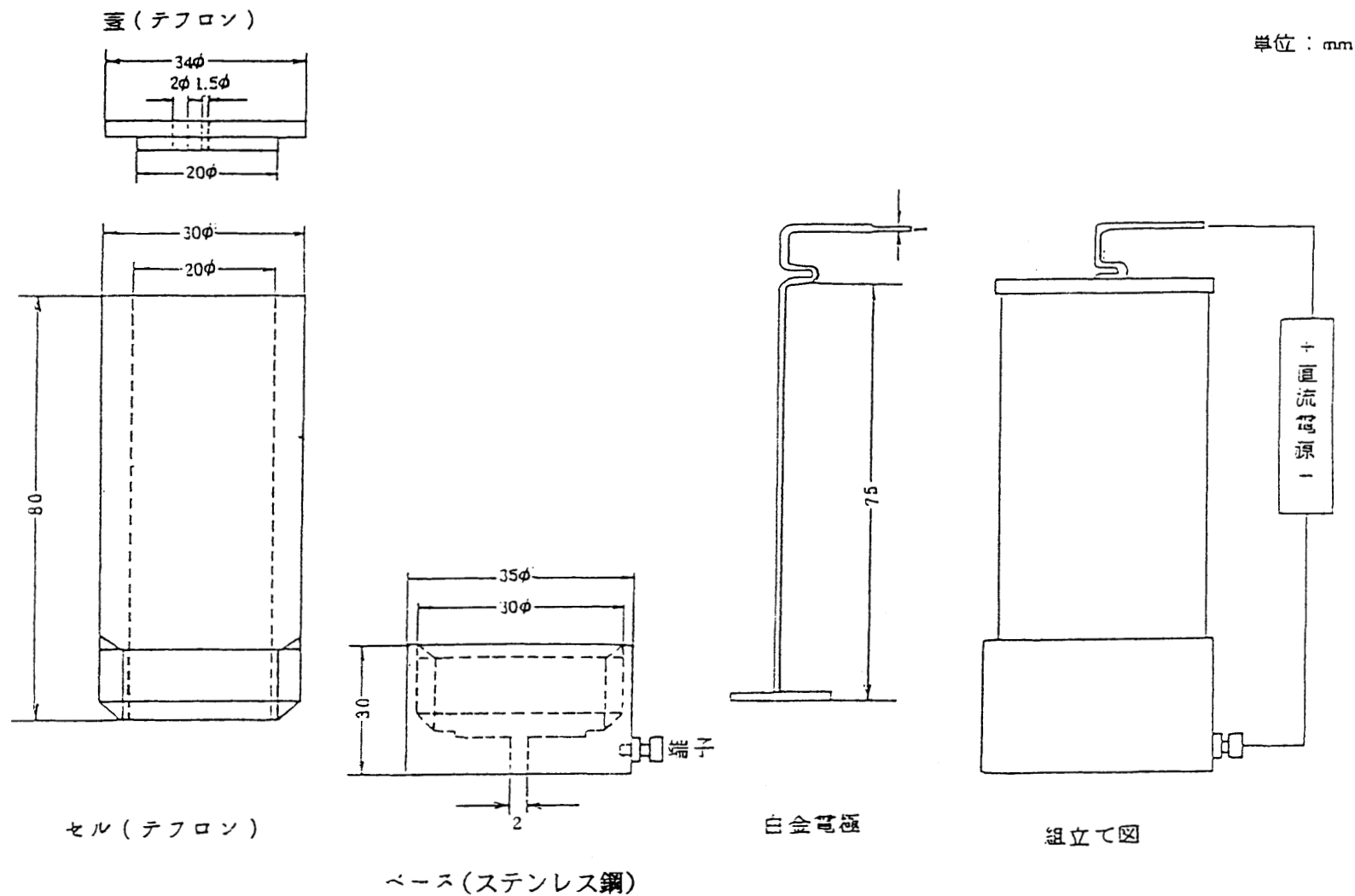


図. 1 電着セルの一例

8.1.1.3 装 置

電解用直流電源

電圧 0 ～ 30V、電流 0 ～ 2 A が得られる定電圧定電流装置

8.1.2 再電着操作

再電着操作においては、電着操作の試薬、器具、装置の他に以下に示すものが
必要である。

8.1.2.1 試 薬

(1) 酸

硝酸(3+2) ,

塩酸, 塩酸(5+1)

過酸化水素水

過塩素酸

10M硝酸－ 0.1Mフッ化水素酸混液

(2) 塩

2M 臭素酸ナトリウム溶液

(3) 混合溶液

ヨウ化アンモニウム溶液 (5W/V%)－塩酸 混液〔29+71〕

(4) 陰イオン交換樹脂*¹

Dowex[®] 1-X8 (100～200mesh)

8.1.2.2 器 具

イオン交換樹脂カラム (内径 10～15mm、高さ 10～15cm)

*¹ 陰イオン交換樹脂カラムの調製方法については 第 10 章 試薬の調製を参照

8. 2 電着操作

- (1) プルトニウムまたはアメリシウムを分離・精製して得られた電着用試料に、硫酸(1+9) 2～5ml^{*2}を加え、加熱溶解する。
- (2) 放冷後、メチルレッドーエチルアルコール溶液1滴を加え、溶液が赤色から黄色に変わるまでアンモニア水を滴加する。
- (3) 再び溶液の色が赤色に変わるまで硫酸(1+9)を滴加し、赤色を呈した後さらに1滴過剰に加える。
- (4) ステンレス鋼電着板^{*3}を取りつけた電着用セルに溶液を移し、ビーカをできるだけ少量の水で洗浄する。洗液はセルに加える。
- (5) 白金電極の先を電解液につけ^{*4}、電流1.0Aで2～3時間通電する。
- (6) 通電したままアンモニア水を2～3滴加え、さらに1分間通電した後電流を止める。
- (7) 電解終了後の溶液をもとのビーカに戻し、電着セル内を水で洗浄する。洗液は溶液に合わせる^{*5}。
- (8) 電着板を取りだし、水とアルコールで洗浄する。乾燥後、赤熱する程度で数秒間加熱し、放冷後、 α 線計数試料とする^{*6}。

^{*2} プルトニウムの場合は2ml、アメリシウムの場合は5ml加える。

^{*3} 電着板は、あらかじめ中性洗剤等で洗い、水でよく洗浄して油分を取り除いた後使用する。

^{*4} 白金電極の先と電着板との距離が5mm程度になるようにする。

^{*5} α 線計測後、再電着操作(8. 3)を行う場合があるので、 α 線計測終了まで残しておく。電着収率が悪い場合には、この溶液について(3)からの操作を再度行い、収率の悪かった試料とスペクトル上で合計する。

^{*6} 電着面には触れないようにする。

8. 3 再電着操作

プルトニウムの α 線スペクトロメトリーにおいて、プルトニウム同位体のスペクトルが大きくテーリングしたり、ウランまたはトリウムなどの影響を受けている試料適用する。

- (1) 計測後の電着板を 200ml テフロンビーカーに入れ、硝酸-フッ化水素酸混液 20ml を加え、ホットプレート上で 3 時間煮沸する。
- (2) 電着板をピンセットで取り出し、水で洗浄する。洗液は溶解液に合わせ、ホットプレート上で蒸発乾固する。
- (3) 放冷後、硝酸(3+2) 20ml と過酸化水素水 1 ml を加え、時計皿をしてホットプレート上で加熱溶解する*⁷。発泡がなくなるまで充分加熱し、過酸化水素を分解する*⁸。
- (4) 放冷後、ろ紙(5 C 9 cm) でろ過し、少量の硝酸(3+2) で洗浄する。洗液はろ液に合わせる。
- (5) ろ紙と不溶物を 100ml ビーカーに移し、硝酸(3+2) 20ml と 2 M 臭素酸ナトリウム溶液 5 ml を加え、時計皿をしてホットプレート上で加熱して不溶物を溶解する。
- (6) 過酸化水素水 2 ml を加え、加熱して臭素酸ナトリウムを分解する。
- (7) 放冷後、ろ紙(5 C 11 cm) でろ過し、少量の硝酸(3+2) で洗浄する。洗液はろ液に合わせホットプレート上で蒸発乾固する。
- (8) 放冷後、硝酸(3+2) 20ml と過酸化水素水 1 ml を加え、時計皿をかぶせ、ホットプレート上で加熱溶解する。発泡がなくなるまで充分加熱して過酸化水素水を分解し*⁹、操作(4)で得られた溶液に合わせる。
- (9) 試料溶液を、あらかじめ調製してある硝酸系陰イオン交換樹脂カラム(Dowex[®] 1-X8, 100~200mesh, 樹脂高 7cm) *¹⁰ に毎分 2 ml 以下の流速で流し、流出液は捨てる。

*⁷ 全部は溶けず、黒褐色のものが残る。

*⁸ 過酸化水素水でプルトニウム Pu (IV) そろえる。

*⁹ 過酸化水素の分解が不十分であると、プルトニウムの分離が不完全となり、化学収率が悪くなる。

*¹⁰ 陰イオン交換樹脂カラムの調整方法は第 10 章試薬の調整を参照。

- (10) 硝酸(3+2) 120 ml、塩酸(5+1) 300 mlで順次カラムを洗浄する。
 - (11) ヨウ化アンモニウム溶液 (5W/V%)－塩酸 混液〔29+71〕 50mlでプルトニウムを溶離する。毎分 1 ml以下の流速で 20mlを流した後、コックを止め30分～60分放置し^{*11}、コックを開いてさらに 30mlを流す。
 - (12) 溶離液を、8 . 2 (7)で保存してある電解終了液に合わせ蒸発乾固する。
 - (13) 硝酸 5 mlと過塩素酸数滴を加え、過塩素酸の白煙が発生しなくなるまで蒸発乾固する^{*12}。
 - (14) 8 . 2 (1)以下(8)までの操作に従って α 線計測試料を作製し、 α 線スペクトロメトリーを行う。
-

^{*11} Pu (IV) をPu (III) に還元させるための時間である。(9)～(11)までは連続して行う。

^{*12} 乾固物が着色している場合には、さらに硝酸 1 mlと過酸化水素水数滴を加え乾固する。

第9章 放射能測定

プルトニウムまたはアメリシウムを化学分離後、電着した計測試料について、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い、あわせて同位体別の定量と化学収率の測定を行う。

9. 1 計測装置

9.1.1 α 線スペクトロメータ

下記に示す①～⑨で構成されている。ブロックダイアグラムを図. 2に示す。

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

^{*1} 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。

^{*2} チャネル数を1000以上有するもの。

^{*3} 検出器所定の直流印加電圧 (通常 ± 100 V程度) を連続可変的に出し得るもの。

^{*4} 検出器および線源を所定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 10⁻²Torr以上の真空度を保持し得るもの。

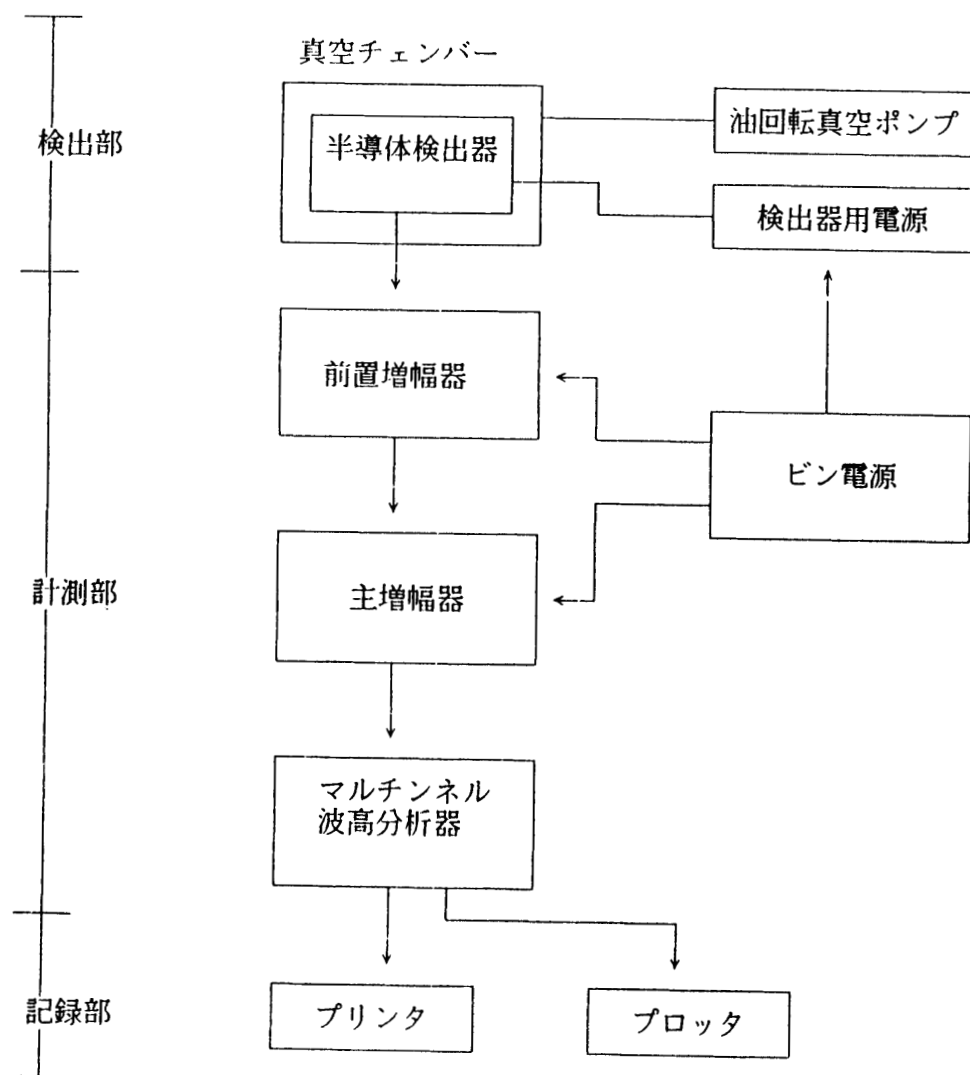


図. 2 α 線スペクトロメータの基本的なブロックダイヤグラム (例)

9.1.2 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）および大電流を消費する機器からできるだけ離して設置し、電源配線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、接地のとり方などに注意して、グラウンドループ等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) NIM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、波高分析器等はラックに取りつけて、通風をよくするように注意する。ただし、空調器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検出器部分を遮光し、また、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、酸等の蒸気にさらさないようにし、特に指定のあるものを除き手等を触れさせてはいけない。
- (9) シリコン半導体検出器の特性・劣化は、薄い α 線源を用いてエネルギー分解能を定期的に測定することで知ることができる。

9. 2 測定

- (1) 測定器の検出器用電源が零になっていることを確認する。高圧用バッファがついていないものは、電圧を徐々に下げる。
- (2) 真空弁を操作し、検出器チェンバー内を常圧にし、試料交換口を開ける。
- (3) ピンセット等を使用し、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5 mm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、検出器用電源を指定の電圧（75V～100V）まで上げる。高圧用バッファがついていないものは、電圧を徐々に上げる。
- (6) 測定は通常2 4時間行う。
- (7) 測定終了後^{*5}、スペクトルデータとグラフをプリンター等で打ち出す。
- (8) スペクトル図の各ピークは α 線エネルギーを対照してプルトニウムまたはアメリカシウムによるものであることについて確認する^{*6}。

^{*5} 試料を取り出す場合は、バイアス電圧を徐々に下げ、零としてから、リークバルブを開き、真空容器内を外圧と等しくしたのち試料交換口を開ける。

^{*6} 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等を推定することができる。

9. 3 計算

9.3.1 正味の計数率

分析対象核種および添加した核種それぞれのピークについて、正味の計数率を求める。

(1) 試料の計数率

- ① 核種のピーク領域における計数値を合計し、バックグラウンドを含む総計数値(N)を求める*⁷。
- ② 分析対象核種のピークがスペクトル中にある場合は、対象核種のピークが現れる領域を仮定して全計数値を求める*⁸。
- ③ 全計数値を測定時間(t)で割り、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 : 試料の総計数値(counts)

t : 試料の測定時間(sec)

σ : 試料の計数率の誤差 (cps)

*⁷ 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。テーリングが見られる場合には、ピーク領域全体のカウント数の1%以下になる部分については裾切りする。

*⁸ 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仮定する。²⁴²Pu、²³⁶Puなどの添加標準溶液のピークにチャンネルシフトがある時は、ピークと仮定した領域もトレーサ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^{*9}

- ① ブランク試料として、洗浄した電着板を試料の前後に測定し、バックグラウンドとする。
- ② 試料の前後に測定したバックグラウンドのスペクトルから試料中のピーク領域と同じ領域の総計数値(N_{b1} , N_{b2})を求める。
- ③ 両者の全計数値(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(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} : 前のバックグラウンドの総計数値(counts)

N_{b2} : 後のバックグラウンドの総計数値(counts)

N_b : 前後のバックグラウンドの総計数値の和(counts)

t_{b1} : 前のバックグラウンドの測定時間(sec)

t_{b2} : 後のバックグラウンドの測定時間(sec)

t_b : 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)

^{*9} α 線スペクトルを測定する際のバックグラウンドは、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) 正味の計数率

試料の計数率(n) とバックグラウンドの計数率(n_b) より、次式に従って正味の計数率(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 : 正味の計数率 (cps)

σ_s : 正味の計数率の計数誤差 (cps)

9.3.2 放射能濃度の算出

試料中の定量核種放射能濃度(A) を次式に従って求める。

$$A = \frac{n_s \cdot D}{n_{add} \cdot W}$$

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

A : 定量核種の放射能濃度 (Bq /kg、ℓ 等)

σ_A : 定量核種の放射能濃度の計数誤差 (Bq /kg、ℓ 等)

n_s : 定量核種の正味の計数率 (cps)

σ_s : 定量核種の正味の計数率に対する計数誤差 (cps)

W : 供試量 (kg、ℓ 等)

D : 添加核種の放射能量 (Bq)

σ_D : 添加核種の放射能量の誤差 (Bq)

n_{add} : 計測試料中の添加核種の正味の計数率 (cps)

σ_{add} : 計測試料中の添加核種の正味の計数率の計数誤差 (cps)

上の式で示されるように、放射能濃度の算出においては、定量核種と添加核種の正味の計数率、添加核種の放射能量および分析供試量のみが必要であり、計数効率や化学収率は必要ない。

また、実際の試料においては、化学分離が不十分のため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 線スペクトルにテーリングが見られ、また、不純物の α 線吸収のため計数効率が低くなり上記の方法で算出した化学収率は実際に電着している量より低くなる。しかし、化学収率は放射能濃度を算出する上で必要ないため問題とはならない。

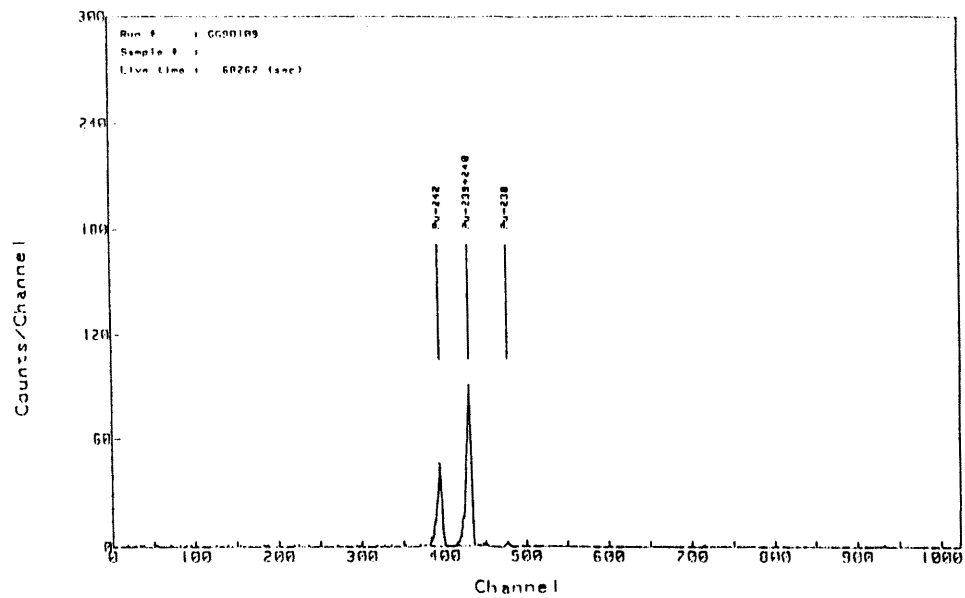


図. 3 プルトニウムの通常の α 線スペクトル (例)

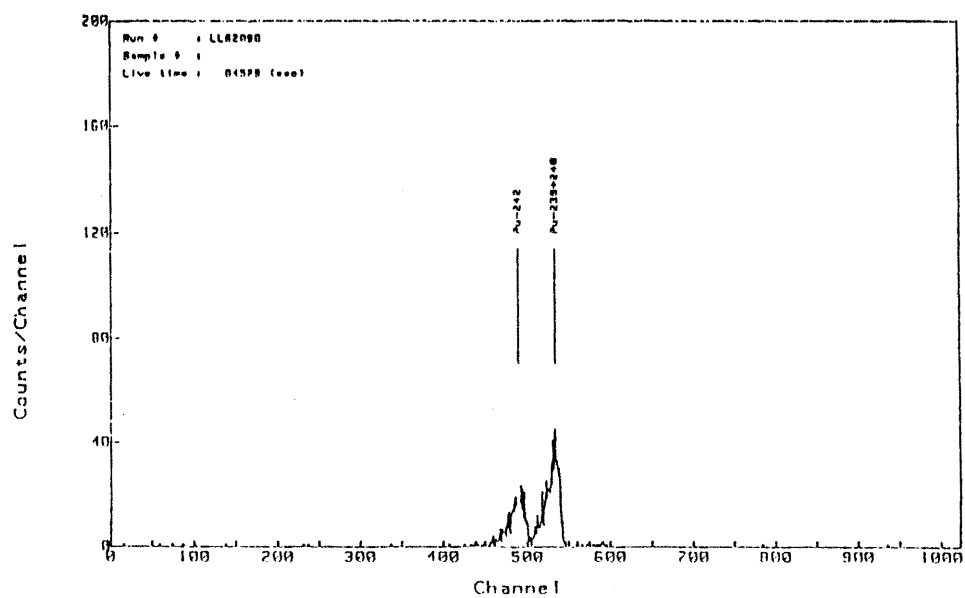


図. 4 プルトニウムのテーリングスペクトル (例)

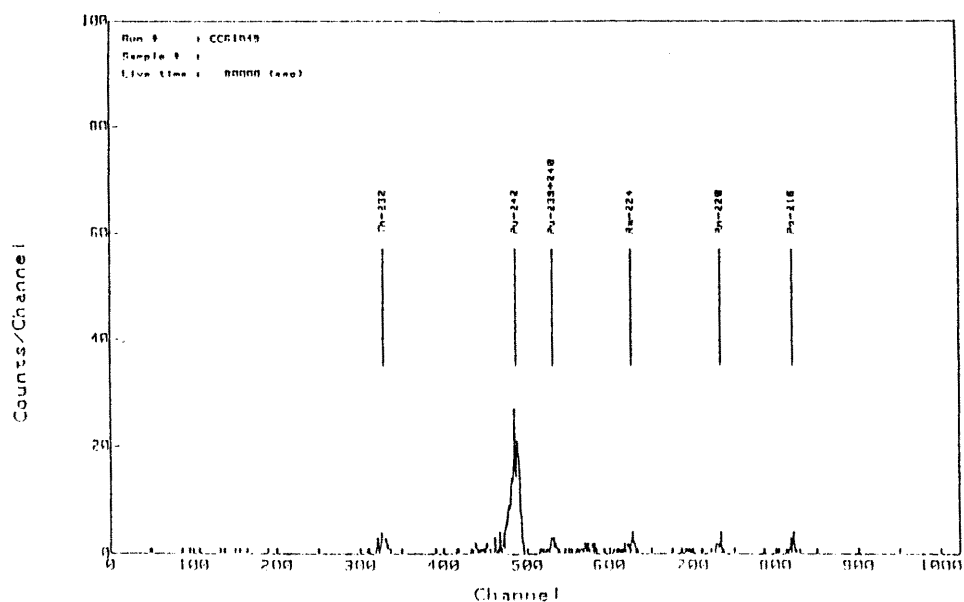


図. 5 プルトニウムの汚染スペクトル (例)

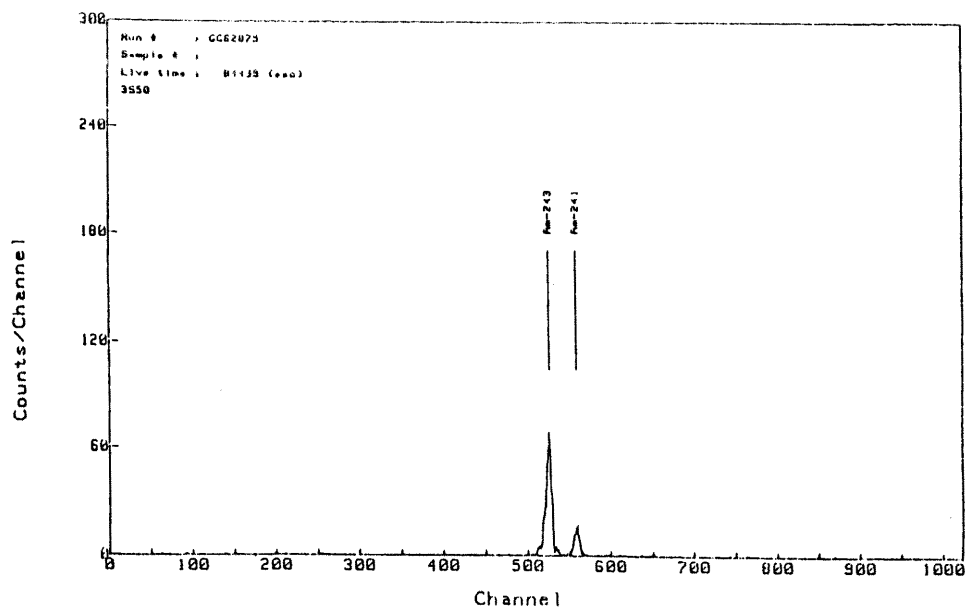


図. 6 アメリシウムの通常の α 線スペクトル (例)

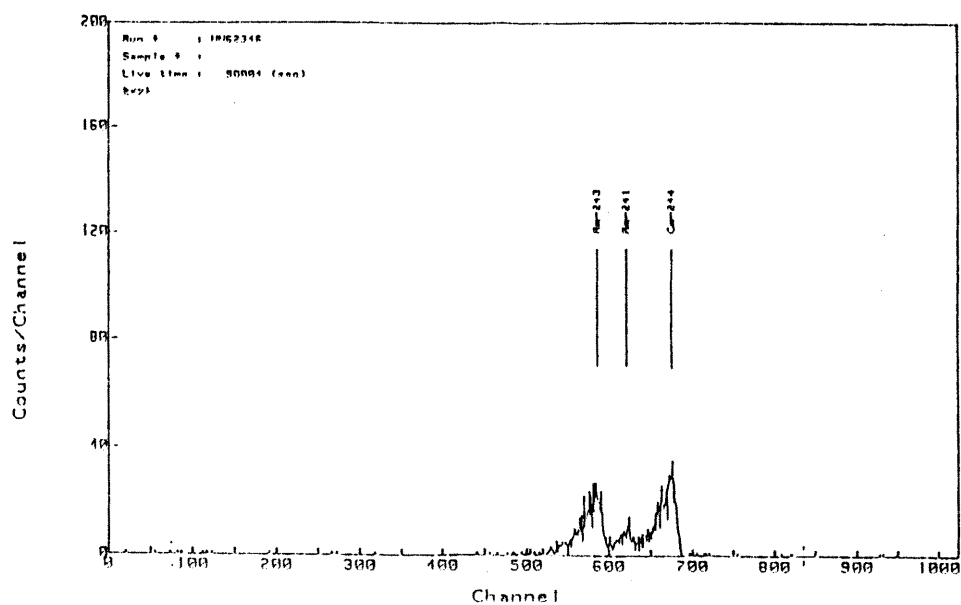


図. 7 アメリシウムのテーリングスペクトル (例)

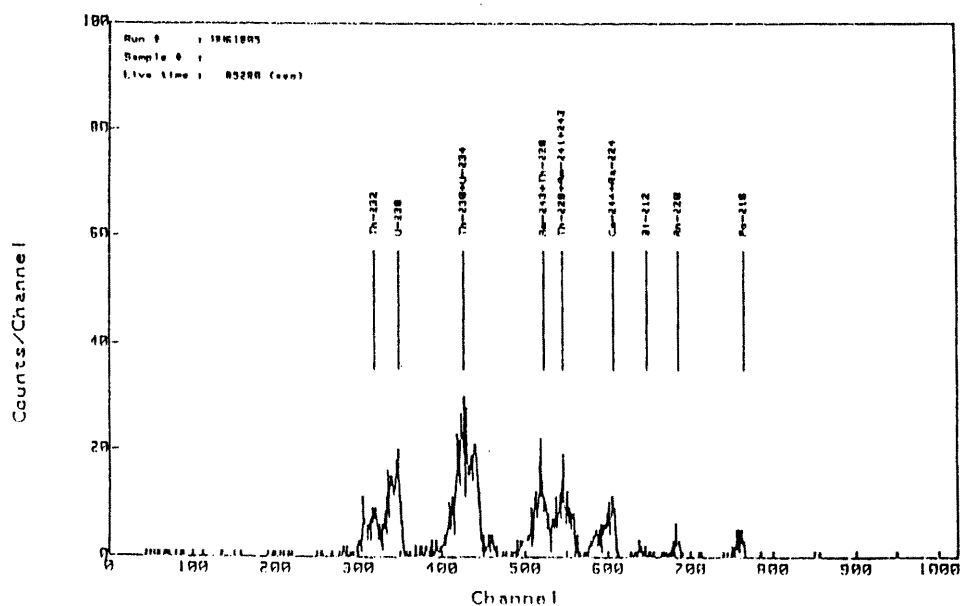


図. 8 アメリシウムの汚染スペクトル (例)

9.3.3 計数効率

放射能濃度を算出する上では、計数効率は必ずしも必要ないが、検出下限等を考えるためには必要である。また、分析操作が正しく行われているかどうかの確認のため、添加した核種がどの程度回収されているか知る必要がある。このため計数効率を求めておくことが望ましい。この場合、標準線源を計測し、検出器の計数効率を測定する。

(1) 標準線源

標準線源は、測定試料と同じ形状のものを使用し、可能であれば、分析対象核種と同じ核種のものが望ましい。もし、これがなければ、測定試料と同形、同面積の他の核種の標準線源を代用してもよい^{*10}。

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 放射性核種（添加トレーサ等）を測定試料の調製方法と同様に電着し、 2π ガスフロー比例計数管などで、標定を行い、標準線源としてもよい^{*11}。調製方法は 第8章 電着方法に従う。

*10 日本アイソトープ協会より、 α 線スペクトロメトリーに利用できるウランの α 線源を購入できる。ただし、ウラン量が多くなると、自己吸収があり、スペクトルのピークにテーリングが起こるので、 4 Bq/cm^2 程度のものを使用する。

*11 ピーク領域の総計数が 10000カウント以上になる様な濃度を設定する。

(2) 計数効率の算出

標準線源を計測し、計数効率(F) を次式に従って求める。

$$F = \left[\frac{N_{so}}{t_{so}} - \frac{N_b}{t_b} \right] \cdot (S_0)^{-1}$$
$$\sigma_F = F \cdot \left[\frac{N_{so} \cdot (t_b)^2 + N_b \cdot (t_{so})^2}{(N_{so} \cdot t_b - N_b \cdot t_{so})^2} + \frac{(\sigma_{so})^2}{(S_0)^2} \right]^{1/2}$$

F : 計数効率

σ_F : 計数効率の誤差

N_{so} : 標準試料の総計数値 (counts)

N_b : バックグラウンドの総計数値 (counts)

t_{so} : 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)

S_0 : 標準試料の放射能 (Bq)

σ_{so} : 標準試料の放射能の誤差 (Bq)

(3) 化学収率

添加核種の放射エネルギー(D)、計測試料中の添加核種の正味の計数率(n_{add}) および計数効率(F) から、化学収率(Y) を次式に従って求める。

$$Y = \frac{n_{add}}{F \cdot D}$$
$$\sigma_Y = Y \cdot \left[\frac{(\sigma_{add})^2}{(n_{add})^2} + \frac{(\sigma_F)^2}{(F)^2} + \frac{(\sigma_D)^2}{(D)^2} \right]^{1/2}$$

Y : 化学収率

σ_Y : 化学収率の誤差

第10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。

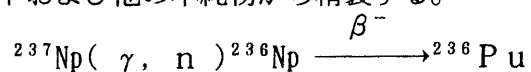
10. 1 放射能標準溶液

^{242}Pu 標準溶液*¹または ^{236}Pu 標準溶液*² : 0.02 Bq/ml

^{243}Am 標準溶液*¹または ^{244}Cm 標準溶液*¹ : 0.02 Bq/ml

*¹ 米国立標準技術研究所（N I S T）より、標準物質等として頒布されている。

*² 製造方法としては、 ^{237}Np に高エネルギー γ 線を照射することにより生じた ^{236}Pu をターゲットおよび他の不純物から精製する。



10. 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、溶解し、水で200mlとする。

鉄(Ⅲ)担体溶液($10\text{mgFe}^{3+}/\text{ml}$)

鉄(Ⅲ)担体溶液($50\text{mgFe}^{3+}/\text{ml}$) 1 溶を水 4 溶で 5 倍に希釈する。

カルシウム担体溶液($100\text{mgCa}^{2+}/\text{ml}$)

硝酸カルシウム四水和物294.6gを水に溶解し、500 mlとする。

(2) 酸

硝酸：J I S特級，約60%，比重約1.38

硝酸(3+2)：硝酸 3 容と水 2 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。

塩酸：J I S特級，約36%，比重約1.18

塩酸(6+1)：塩酸 6 容と水 1 容の割合で混合する。

塩酸(5+1)：塩酸 5 容と水 1 容の割合で混合する。

塩酸(7+3)：塩酸 7 容と水 3 容の割合で混合する。

塩酸(1+1)：塩酸 1 容と水 1 容の割合で混合する。

硫酸：J I S特級，約95%以上，比重約1.84

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 (70%)

フッ化水素酸：J I S特級，約47%

10M硝酸-0.1Mフッ化水素酸溶液

硝酸 370mlとフッ化水素酸 2 mlを混合し、水で 500mlとする。使用直前に調製する。

シュウ酸

過酸化水素水 (30%)

(3) 塩基

アンモニア水

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

水酸化ナトリウム溶液(1.2w/v%) : 水酸化ナトリウム12g を水に溶解し 1 ℓ とする。

(4) 塩類

シュウ酸アンモニウム

シュウ酸アンモニウム溶液(0.1w/v%) : シュウ酸アンモニウム1gを水に溶解し 1 ℓ とする。

塩化アンモニウム

チオシアン酸アンモニウム

酢酸アンモニウム

酢酸アンモニウム溶液(5w/v%) : 酢酸アンモニウム50g を水に溶解し、1 ℓ とする。

臭素酸ナトリウム

臭素酸ナトリウム溶液(2M) : 臭素酸ナトリウム151gを水に溶解し、1 ℓ とする。

ヨウ化アンモニウム

ヨウ化アンモニウム溶液(5w/v%) : ヨウ化アンモニウム 10.2gを水に溶解し、200 ml とする。

(5) 有機試薬

メチルアルコール

エチルアルコール

オクチルアルコール

キシレン

アセトン

フェノールフタレイン-エチルアルコール溶液(1w/v%)

フェノールフタレイン 100mgをエチルアルコール50mlに溶解し、水を加え 100ml とする。

メチルレッド－エチルアルコール溶液(0.1w/v%)

メチルレッドを 100mgをエチルアルコール 100mlに溶解する。

TOA (トリー n－オクチルアミン)

TOA－キシレン溶液(10w/v%)

TOA 25 gにキシレンを加え 250mlとする。使用直前に、同量の硝酸(3+2)
と振り混ぜ、予備平衡にしてから使用する。

TTA (テノイルトリフルオロアセトン)

TTA－キシレン溶液(10w/v%)

TTA 45gにキシレンを加え、400mlとする。

(6) 混合溶液

ヨウ化アンモニウム溶液(5w/v%)－塩酸 混液 [29+71]

ヨウ化アンモニウム溶液 145mlと塩酸 305mlを混合する。使用直前に調製する。

1M硝酸－93%メチルアルコール混液

硝酸75mlにメチルアルコールを加え、1 lとする。

1.5M塩酸－86%メチルアルコール混液

塩酸 130mlにメチルアルコールを加え、1 lとする。

0.1M塩酸0.5Mチオシアン酸アンモニウム－80%メチルアルコール混液

チオシアン酸アンモニウム 40gをメチルアルコール 800mlで溶解した後、
塩酸 8.6mlを加え、水で 1 lとする。

(7) 指示薬

フェノールフタレイン－エチルアルコール溶液(0.5w/v%)

フェノールフタレイン 500mgをエチルアルコール50mlに溶解し、水を加え
100mlとする。

(8) 陰イオン交換樹脂

Dowex® 1-X8 (100～200mesh)

Dowex® 1-X4 (100～200mesh)

他のメーカーの相当品も使用出来るが、溶離液の容量等若干の差があるので注
意する必要がある。

10. 3 陰イオン交換樹脂カラムの調製

(1) Dowex[®] 1-X8 (100~200mesh) ・ ・ ・ 硝酸系、塩酸系イオン交換用

- ① 樹脂 500 ml を 3 l ビーカに入れ、水 2 l を加えてよく攪拌し、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 水酸化ナトリウム溶液 (1.2W/V%) 1 l を加えてよく攪拌し、傾斜法により上澄み液を捨てる。
- ③ 水 1 l 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) 2 l を加えてよく攪拌し、傾斜法により上澄み液を捨てる。
- ⑤ ①の要領で樹脂を水洗する。
- ⑥ 水に浸したまま保存する。
- ⑦ 使用直前にカラムに詰め、樹脂量の10倍の水を流す。さらに、硝酸系イオン交換の場合は樹脂の10倍量の硝酸(3+2)を、塩酸系イオン交換の場合は樹脂の 5 倍量の塩酸(6+1)を流してから使用する。

(2) Dowex[®] 1-X4 (100~200mesh)

- ① 樹脂 500 ml を 3 l ビーカに入れ、水 2 l を加えてよく攪拌し、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 硝酸(1+13) 1 l を加えてよく攪拌し、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。
- ③ 1M硝酸-93%メチルアルコール混液1 l を加えてよく攪拌し、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。
- ④ 使用直前にカラムにつめ、樹脂の上部を1M硝酸-93%メチルアルコール 5 ml で満たし、フタをする。

(解説)

〔解説 1〕 異なる酸浸出法による土壌試料のプルトニウムとアメリシウムの抽出率

福井県奥越高原で採取した土壌試料を 500℃で 3 時間加熱処理後、化学収率補正用トレーサとして ^{242}Pu 、 ^{243}Am および ^{244}Cm 標準溶液を添加した。次に、酸浸出を行い、陰イオン交換樹脂カラム分離法によりプルトニウムとアメリシウムをそれぞれ単離した後、ステンレス鋼板上に電着し、シリコン半導体検出器による α 線スペクトル測定によって定量した。検討した酸浸出法は、硝酸浸出法および硝酸－過酸化水素浸出法の 2 法である。また、浸出残渣中のプルトニウムとアメリシウムを定量するために、残渣を硝酸－フッ化水素酸分解した後、上記の方法に従いプルトニウムとアメリシウムを定量した。結果を解表－1～3 に示す。プルトニウムとアメリシウムの抽出率は、硝酸浸出法および硝酸－過酸化水素浸出法ともに 90%以上であり、残渣中には 2～6 %しか検出されなかった。

分離、精製は陰イオン交換樹脂カラム分離法で行ったが、電着測定試料からは、妨害核種として考えられるウラン、トリウム等は検出されなかった。

また、化学収率補正用トレーサとして ^{243}Am および ^{244}Cm 標準溶液を用いて ^{241}Am の定量を行ったが、両核種から求めた値はよく一致し、化学収率もほとんどの試料が 80%以上であった。

解表－1 プルトニウムの抽出率

試料 No.	硝 酸 浸 出 法			過 酸 化 水 素 － 硝 酸 浸 出 法		
	浸 出 量 (Bq/kg乾土)	残 存 量 ^{*1} (Bq/kg乾土)	抽出率 (%) ^{*2}	浸 出 量 (Bq/kg乾土)	残 存 量 ^{*1} (Bq/kg乾土)	抽出率 (%) ^{*2}
1	6.2±0.5	0.67±0.09	91	7.4±0.6	0.52±0.07	94
2	8.5±0.7	0.67±0.09	93	6.7±0.6	0.52±0.08	93
3	7.0±0.6	0.70±0.08	91	7.4±0.6	0.52±0.08	94
4	7.4±0.6	0.52±0.08	94	7.4±0.6	0.48±0.07	94
5	7.8±0.6	0.56±0.07	93	6.7±0.5	0.67±0.07	91

*1 浸出残渣は、硝酸－フッ化水素酸分解後、定量した結果である。

*2 浸出量 / (浸出量 + 残存量) × 100

解表－ 2 硝酸浸出法によるアメリシウムの抽出率

試料 No.	^{241}Am (^{243}Am 標準溶液により計算)			^{241}Am (^{244}Cm 標準溶液により計算)		
	浸 出 液	浸 出 残 渣	抽出率	浸 出 液	浸 出 残 渣	抽出率
	(Bq/kg乾土)		(%)	(Bq/kg乾土)		(%)
1	2.2 ± 0.2	0.10 ± 0.06	96	1.7 ± 0.2	0.11 ± 0.06	99
2	2.4 ± 0.1	0.07 ± 0.03	97	2.4 ± 0.2	0.07 ± 0.03	97
3	2.1 ± 0.2	0.03 ± 0.07	99	2.0 ± 0.2	0.04 ± 0.08	98
4	2.3 ± 0.1	0.09 ± 0.05	96	2.2 ± 0.1	0.08 ± 0.04	97
5	2.1 ± 0.1	0.07 ± 0.02	97	2.2 ± 0.1	0.06 ± 0.02	96

解表－ 3 硝酸－過酸化水素浸出法によるアメリシウムの抽出率

試料 No.	^{241}Am (^{243}Am 標準溶液により計算)			^{241}Am (^{244}Cm 標準溶液により計算)		
	浸 出 液	浸 出 残 渣	抽出率	浸 出 液	浸 出 残 渣	抽出率
	(Bq/kg乾土)		(%)	(Bq/kg乾土)		(%)
6	2.5 ± 0.1	0.06 ± 0.02	98	2.4 ± 0.2	0.06 ± 0.02	98
7	2.1 ± 0.1	0.03 ± 0.02	99	2.3 ± 0.2	0.03 ± 0.02	99
8	2.3 ± 0.1	0.07 ± 0.02	97	2.1 ± 0.1	0.07 ± 0.02	97
9	2.3 ± 0.1	0.05 ± 0.02	98	2.4 ± 0.2	0.06 ± 0.02	98
10	2.5 ± 0.1	0.06 ± 0.02	98	2.4 ± 0.2	0.06 ± 0.02	98

〔解説 2〕 本分析法におけるTh、Uの除染係数

環境試料中のプルトニウム、アメリシウム分析において、環境試料中にもともと存在するTh、Uの計測試料への混入は重要な問題であり、これらの元素を分離する必要がある。このため、環境試料（土壌）にTh、Uを添加し、本分析法の各分析操作におけるTh、Uの除染係数を中性子放射化分析法で測定した。

$$\text{除染係数} = \frac{\text{分離操作前のTh、Uの量}}{\text{分離操作後のTh、Uの量}}$$

(1) プルトニウムの分析

A イオン交換法

分離操作	除染係数			
	Th		U	
陰イオン交換カラム分離 Dowex 1×8(硝酸系)	$> 3 \times 10^3$	$> 3 \times 10^3$	$> 4 \times 10^3$	$> 4 \times 10^3$

注) 左欄は個々の操作の値、右欄は初めの操作からの値

Th 樹脂に吸着

塩酸(5+1)で溶離洗浄

U 樹脂に吸着せず

塩酸(5+1)洗浄液 添加量の0.3 %

B 溶媒抽出法

分離操作	除染係数			
	Th		U	
TOA抽出	2×10^0	2×10^0	4×10^0	4×10^0
塩酸(5+1)洗浄	$> 1 \times 10^2$	$> 2 \times 10^2$	3×10^0	1×10^1
逆抽出	$> 8 \times 10^2$	$> 2 \times 10^3$	2×10^1	2×10^2

注) 左欄は個々の操作の値、右欄は初めの操作からの値

(2) アメリシウムの分析

A イオン交換法

分離操作	除染係数			
	T h		U	
陰イオン交換カラム分離 Dowex [®] 1×8(硝酸系)	$> 5 \times 10^2$	$> 5 \times 10^2$	1×10^0	1×10^0
シュウ酸塩沈殿分離	1×10^0	$> 5 \times 10^2$	1×10^1	1×10^1
陰イオン交換カラム分離 Dowex [®] 1×8(塩酸系)	1×10^0	$> 5 \times 10^2$	$> 1 \times 10^2$	$> 1 \times 10^3$
陰イオン交換カラム分離 Dowex [®] 1×8(硝酸系)	$> 3 \times 10^2$	$> 2 \times 10^4$	$> 3 \times 10^2$	$> 3 \times 10^3$
陰イオン交換カラム分離 Dowex [®] 1×4	$> 1 \times 10^4$	$> 5 \times 10^6$	$> 4 \times 10^3$	$> 4 \times 10^4$

注) 左欄は個々の操作の値、右欄は初めの操作からの値

B 溶媒抽出法

分離操作	除染係数			
	T h		U	
T O A抽出	2×10^0	2×10^0	4×10^0	4×10^0
シュウ酸塩沈殿	1×10^0	2×10^0	1×10^1	4×10^1
T T A洗浄(pH=2.0)	5×10^2	1×10^3	5×10^1	2×10^2
T T A抽出(pH=4.0)	$> 1 \times 10^0$	$> 1 \times 10^3$	1×10^0	2×10^2
逆抽出	$> 1 \times 10^0$	$> 1 \times 10^3$	1×10^0	2×10^2
陰イオン交換カラム Dowex 1×4	3×10^0	3×10^3	1×10^2	2×10^4

注) 左欄は個々の操作の値、右欄は初めの操作からの値

(付録)

[付録 1] プルトニウム、アメリシウム同位体の核データ

プルトニウムには16の同位体がある、アメリシウムには14の同位体がある。これらのうちプルトニウムについては ^{238}Pu 、 ^{239}Pu 、 ^{240}Pu が、アメリシウムについては ^{241}Am が主要な α 放射体である。

これらの核種とトレーサとして使用する核種 (^{236}Pu 、 ^{242}Pu 、 ^{243}Am 、 ^{244}Cm) の核データを付表-1に示す。

付表-1 核データ

核 種	α 線エネルギー (MeV)	放出率 (%)	半減期 (y)
^{238}Pu	5.50 5.46	71.0 28.8	87.7
^{239}Pu	5.16 5.11 5.14	73.1 11.5 15.0	2.411×10^4
^{240}Pu	5.17 5.12	72.9 27.0	6563
^{241}Am	5.44 5.49	13.1 85.2	432
^{236}Pu	5.77 5.72	68.9 31.0	2.85
^{242}Pu	4.90 4.80	76.5 23.5	3.735×10^5
^{243}Am	5.23 5.28	11.0 87.4	7370
^{244}Cm	5.76 5.80	23.6 76.4	18.1

〔付録 2〕 クロスチェック結果について

1. 方法

改訂案に従って同一試料の分析を行った。

試料	； 土壌、灰、海水	供試量
土壌	—— 福井県奥越高原で採取	乾土 50 g
灰	—— すり身に土壌抽出液30mlを添加後灰化した	生 1 kg相当
海水	—— 海水に土壌抽出液15mlを添加した	5 ℓ

2. 分析機関

- No 1 茨城県公害技術センター
2 動力炉・核燃料開発事業団
5 日本分析センター

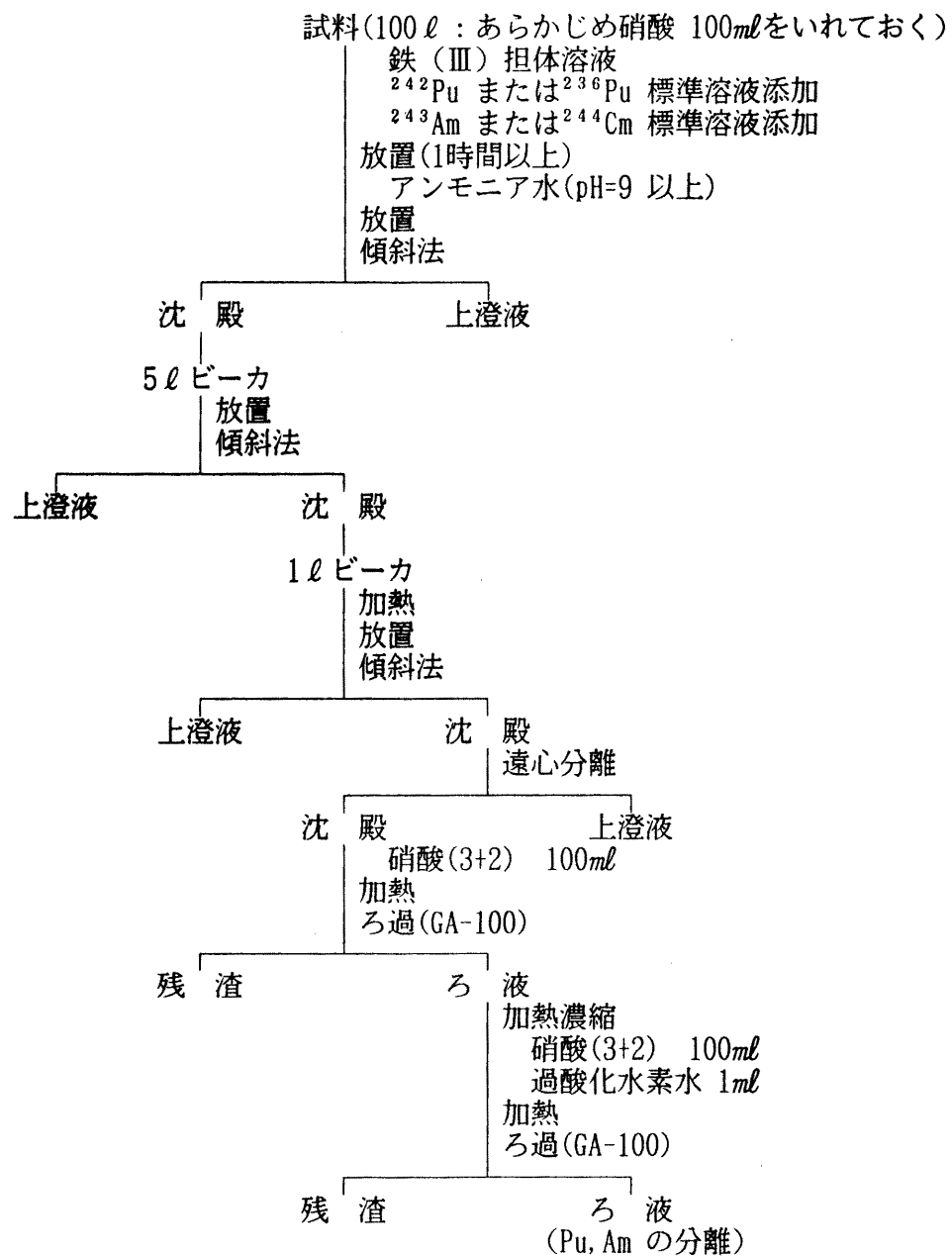
3. 分析結果

試料名	分析機関 No	分析方法	プルトニウム			アメリシウム		単位
			^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$	化学収率	^{241}Am	化学収率	
土壌 (20 ~ 50g乾 土)	1	イオン交換法	0.241 ± 0.074	6.93 ± 0.85	0.50	1.59 ± 0.14	0.40	Bq/kg 乾土
	2	イオン交換法	0.276 ± 0.019	7.01 ± 0.009	0.679	2.09 ± 0.03	0.781	
	5	イオン交換法	0.192 ± 0.034	6.06 ± 0.38	0.70	2.06 ± 0.11	1.00	
		イオン交換法	0.233 ± 0.032	5.88 ± 0.32	0.88	2.13 ± 0.12	0.82	
		溶媒抽出法	0.278 ± 0.040	7.46 ± 0.44	0.72	2.28 ± 0.12	1.00	
		溶媒抽出法	0.276 ± 0.035	6.34 ± 0.34	0.76	2.02 ± 0.10	1.00	
	平均		0.249 ± 0.034	6.61 ± 0.61	0.71	2.02 ± 0.23	0.83	
灰試料 (生 1kg 相 当)	1	イオン交換法	2.52 ± 0.85	84 ± 12	0.60	20.3 ± 2.2	0.42	mBq/kg生
	2	イオン交換法	2.09 ± 0.32	60.9 ± 1.71	0.900	19.4 ± 1.06	0.815	
	5	イオン交換法	2.12 ± 0.42	59.8 ± 3.5	0.79	17.3 ± 1.1	1.00	
		イオン交換法	2.21 ± 0.41	59.6 ± 3.4	0.80	19.3 ± 1.5	0.84	
		溶媒抽出法	4.17 ± 0.95	61.8 ± 5.6	0.34	————	————	
		溶媒抽出法	1.52 ± 0.47	59.0 ± 4.6	0.45	————	————	
	平均		2.44 ± 0.90	64.2 ± 9.8	0.65	19.0 ± 1.3	0.77	
海水 (5ℓ)	1	イオン交換法	0.236 ± 0.069	5.64 ± 0.72	0.85	2.19 ± 0.30	0.35	mBq/ℓ
	2	イオン交換法	0.288 ± 0.025	5.98 ± 0.25	0.831	2.10 ± 0.12	0.468	
	5	イオン交換法	0.245 ± 0.056	6.08 ± 0.37	0.93	1.67 ± 0.15	0.93	
	平均		0.256 ± 0.027	5.90 ± 0.23	0.87	1.99 ± 0.27	0.58	

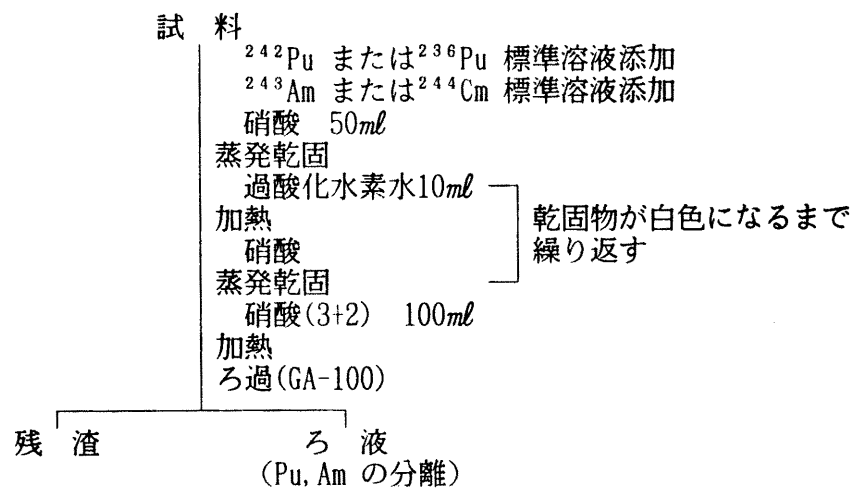
〔付録 3〕 プルトニウム・アメリシウム逐次分析法の流れ図

1. 試料の前処理

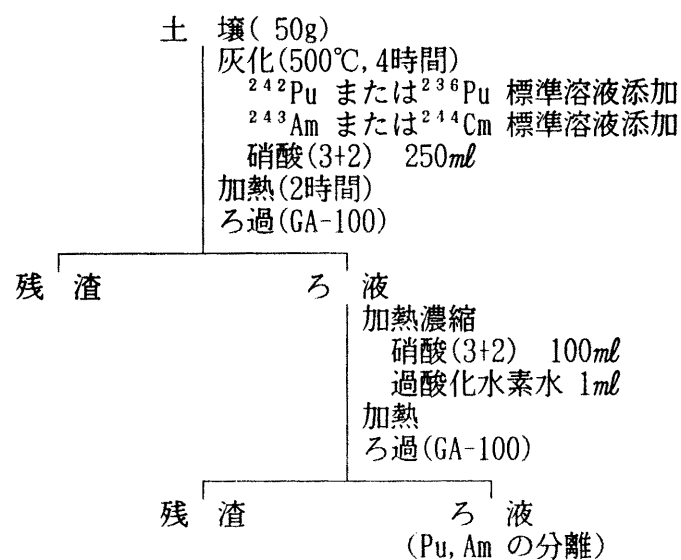
1. 1. 水試料



1. 2. 灰試料

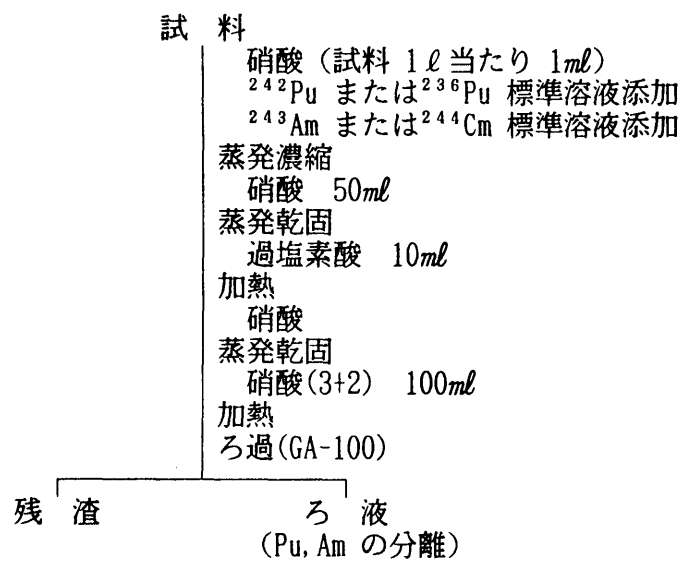


1. 3. 土試料

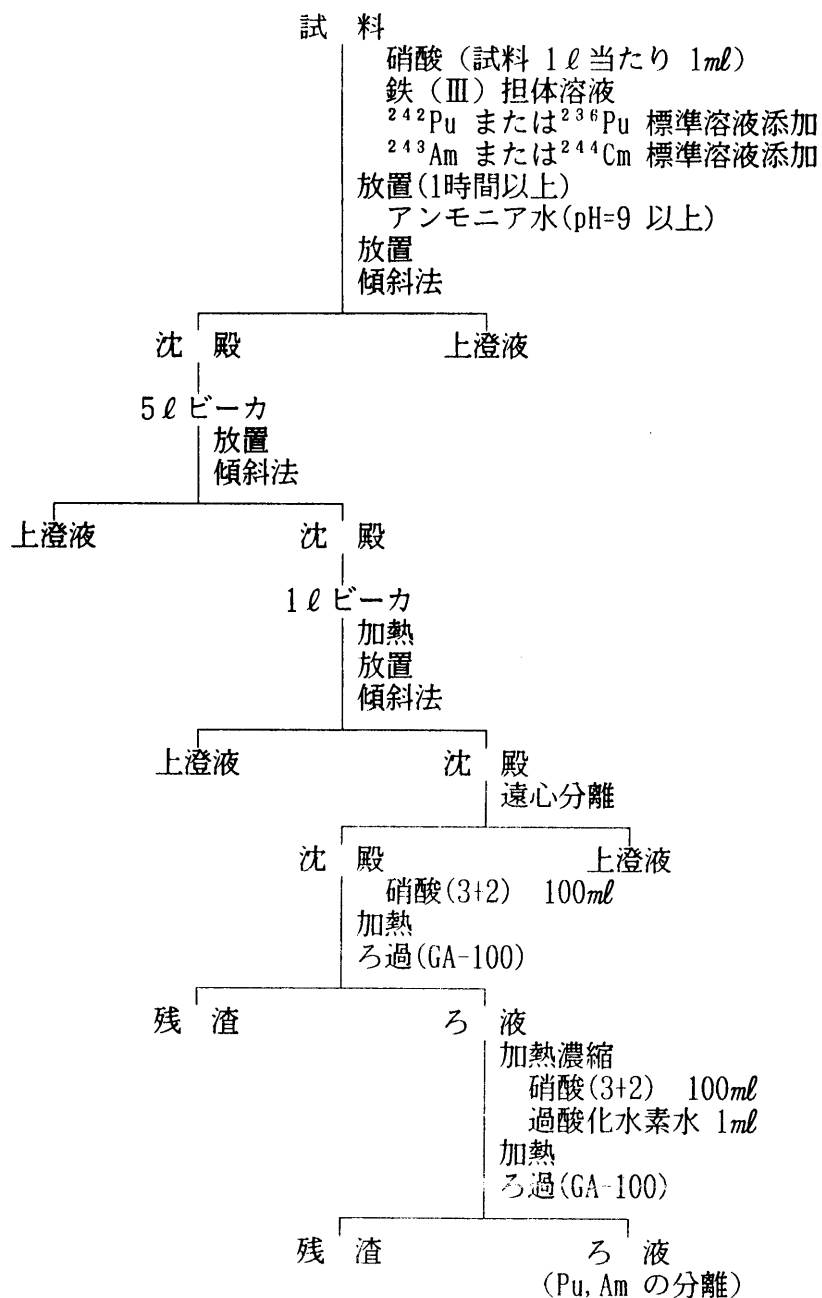


1. 4. 降下物

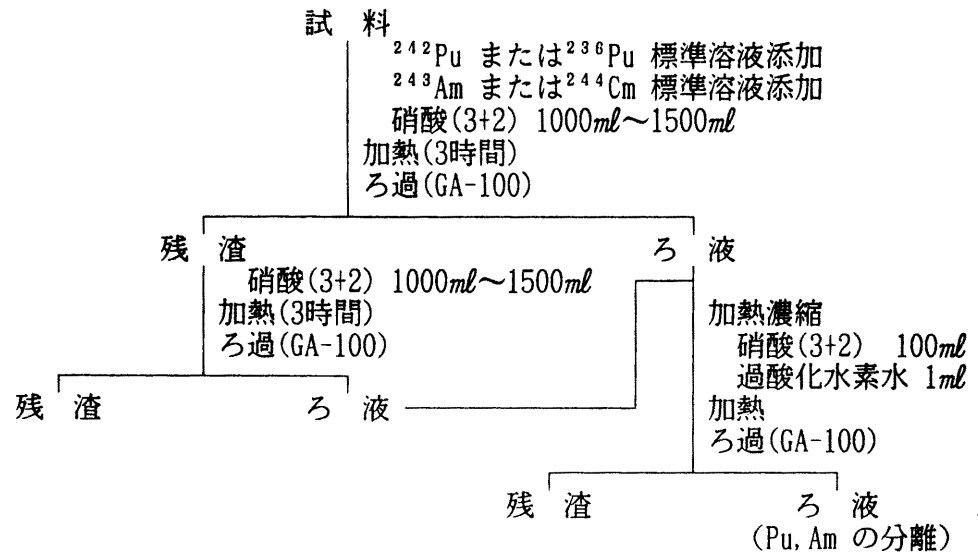
A 蒸発濃縮法



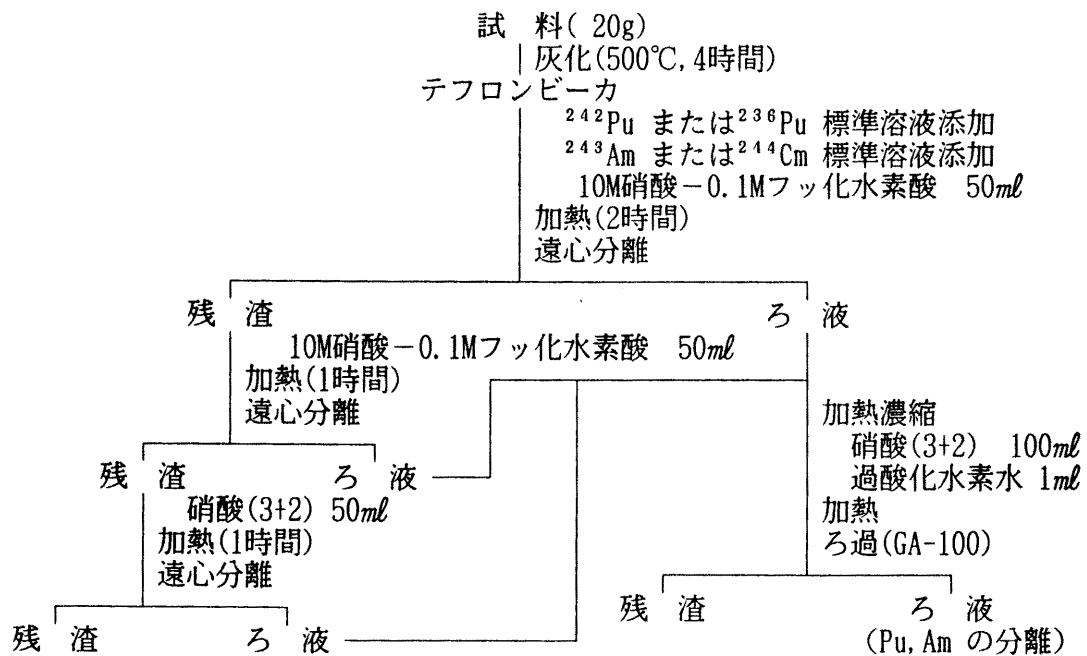
B 水酸化鉄（Ⅲ）共沈法



1. 5. 大気浮遊じん

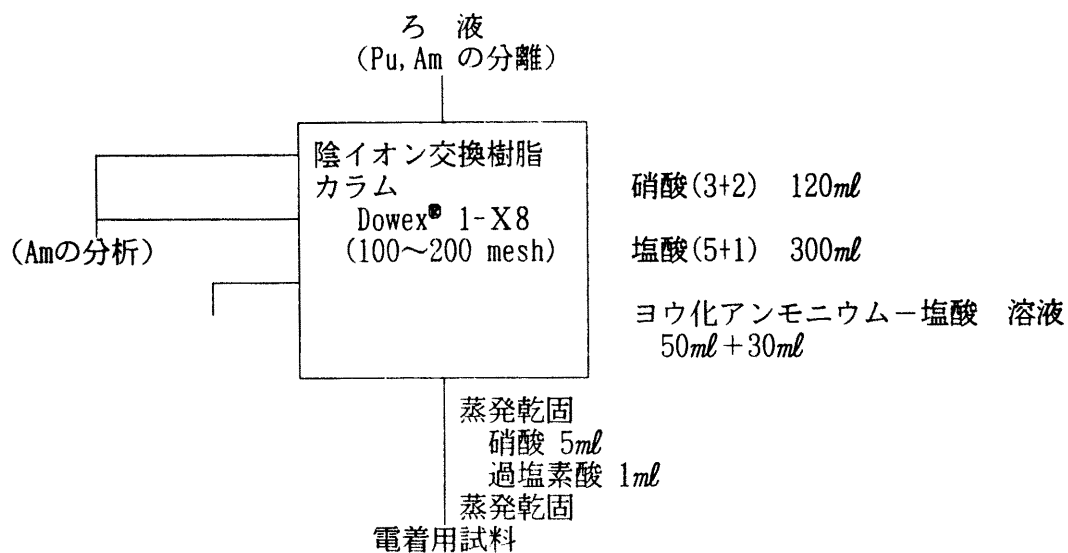


1. 6. 焼結プルトニウムを含む環境試料

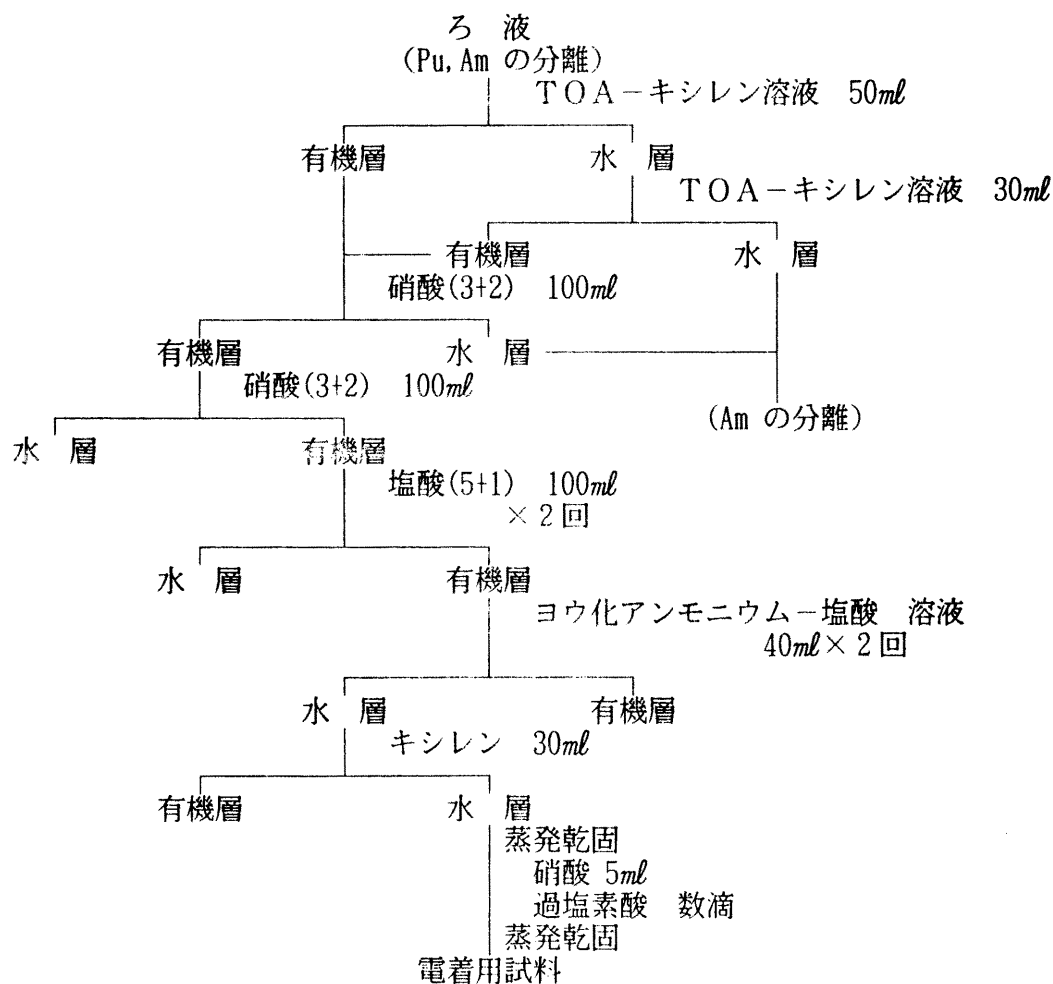


2. プルトニウムの分離

A イオン交換法

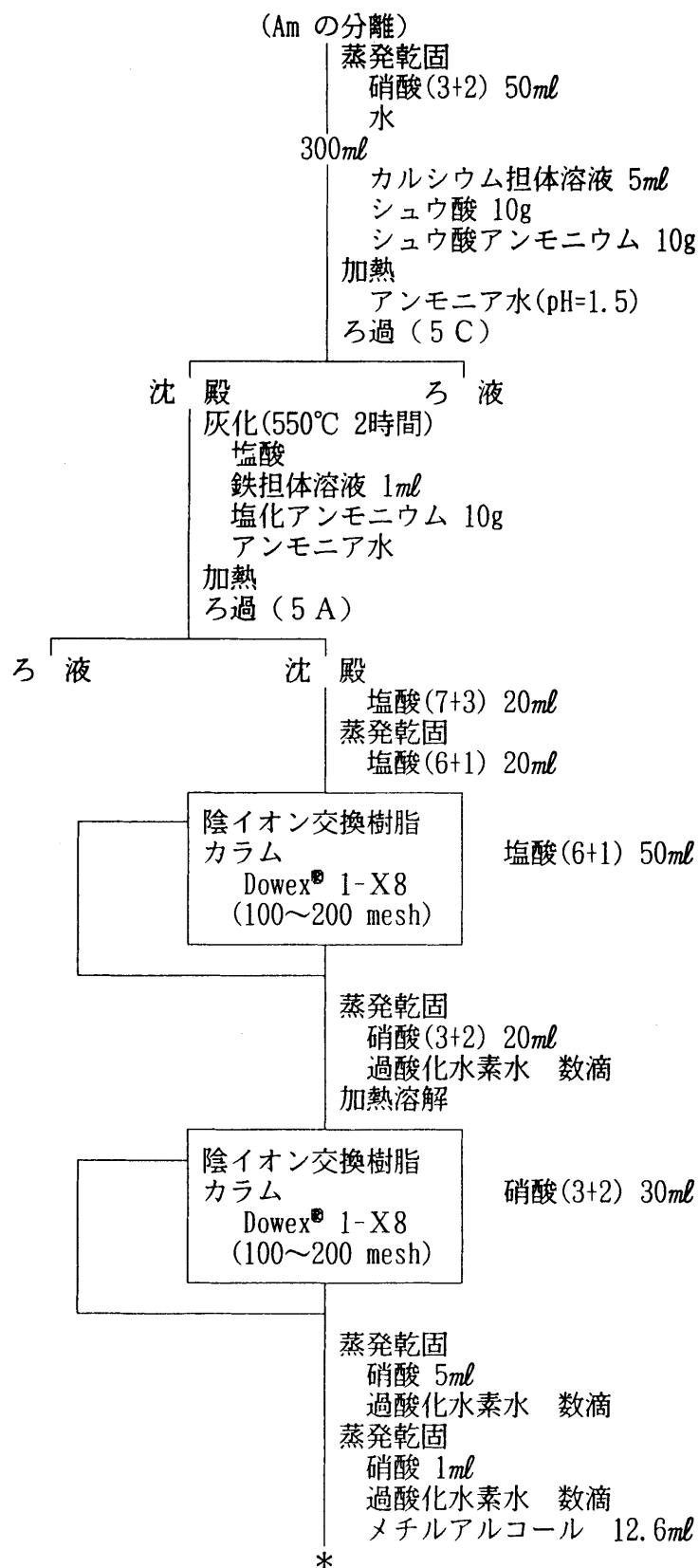


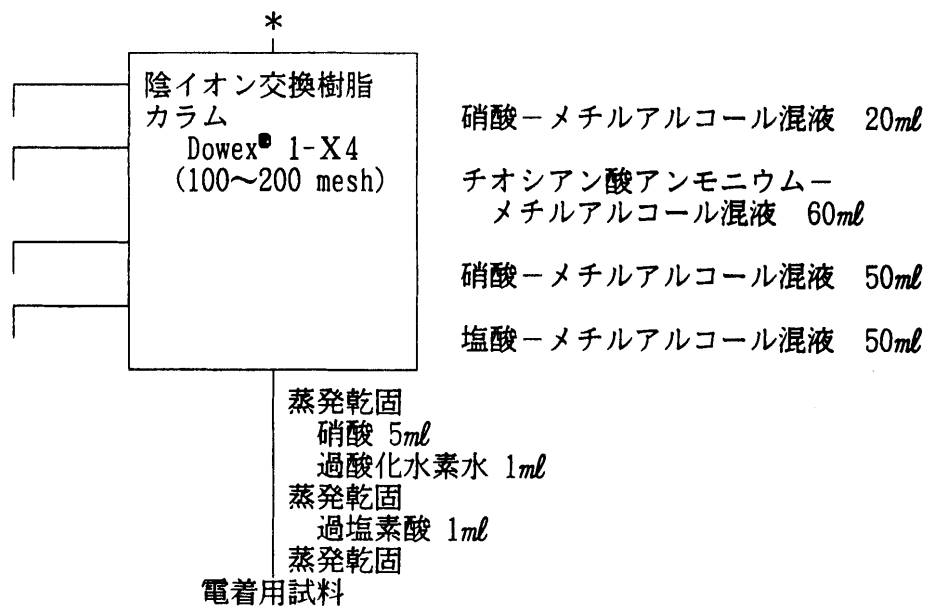
B 溶媒抽出法



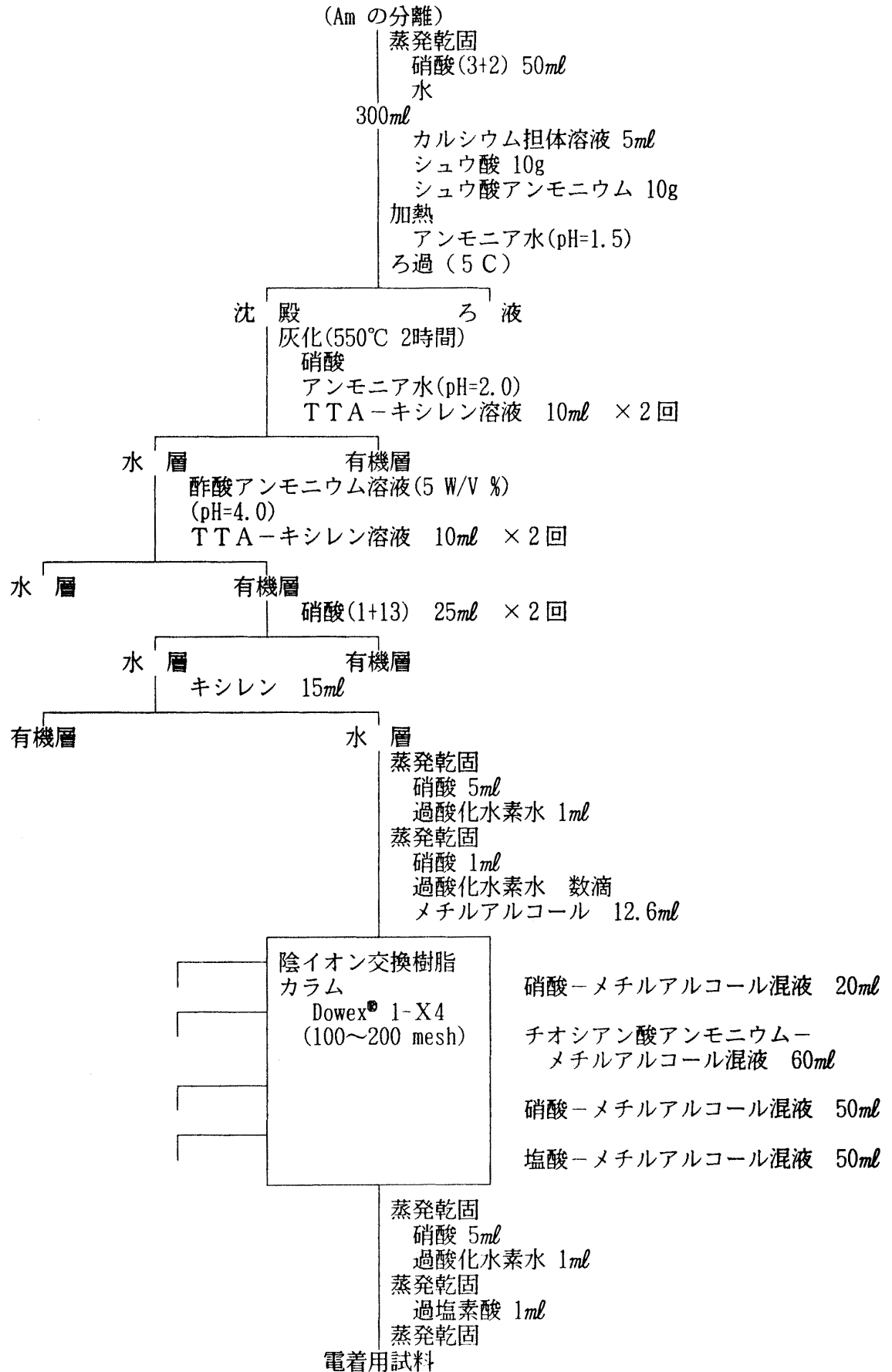
3. アメリシウムの分離

A イオン交換法

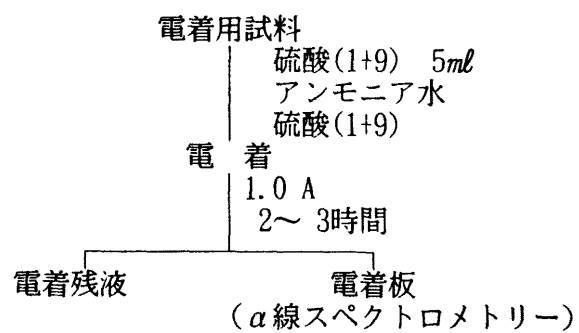




B 溶媒抽出ーイオン交換法



4. 電着操作



〔付録 4〕 参考文献

- (1) C.W. Sill and D.G. Olson : Anal. Chem., 42, 1596 (1970)
“Sources and Prevention of Recoil Contamination of Soil-State Alpha Detectors”
- (2) Y. Inoue, M. Sakanoue : J. Radiation Research, 11, 98 (1970)
“The Determination of Plutonium in Soil Samples”
- (3) H. Okabayashi, M. Suzuki : NIRS-Pu 8, 87 (1971)
“A Study on Bioassay of Plutonium”
- (4) N.A. Talvitie : Anal. Chem., 43, 1827 (1971)
“Radiochemical Determination of Plutonium in Environmental and Biological Samples by Ion Exchange”
- (5) N.Y. Chu : Anal. Chem., 43, 449 (1971)
“Plutonium Determination in Soil by Leaching and Ion-Exchange Separation”
- (6) T. Nomura, K. Sumazaki, S. Motoyama, N. Szuki : PNCT 831-73-02, 118 (1973)
“Rapid Determination of Plutonium in Bioassay Samples”
- (7) V.F. Hodge, F.L. Hoffman, R.L. Foreman, T.R. Folsom : Anal. Chem., 46, 1334 (1974)
“Simple Recovery of Plutonium, Americium, Uranium and Polonium from Large Volumes of Ocean Water”
- (8) REGULATORY GUIDE 4.5, U.S. AEC, 4.5-1 (1974)
“Measurements of Radionuclides in the environment Sampling and Analysis of Plutonium in Soil”
- (9) C.W. Sill : Health phys., 29, 619 (1975)
“Some Problems in Measuring Plutonium in the Environment”
- (10) V.F. Hodge, M.E. Gurney : Anal. Chem., 47, 1866 (1975)
“Semi-Quantitative Determination of Uranium, Plutonium and Americium in Sea Water”
- (11) T.G. Scott, S.A. Reynol : Radioanal. Lett., 23(4), 275 (1975)
“Determination of Plutonium in Environmental Samples Part II. Procedures”
- (12) T.E. Hakonson : Health Phys, 29, 583 (1975)

- “Environmental Pathways of Plutonium into Terrestrial Plants and Animals”
- (13) I.K.Kressin, W.D.Moss, E.E.Cambell, H.F.Schulte : Health phys., 28, 41 (1975)
 “Plutonium-242 vs. Plutonium-236 as an Analytical Tracer”
- (14) 中井敏夫、齊藤信房、石森富太郎編：プルトニウム（柴田雄次、木村健二郎監修）
 丸善（1976）
 「無機化学全書 XVⅡ－2」
- (15) I.K.Kressin : Anal.Chem., 49, 842 (1977)
 “Electrodeposition of Plutonium and Americium for High Resolution α Spectrometry”
- (16) 山県 登, 阪上正信 : 原子力工業, 23(7), 73 (1977)
 「放射化学分析：アルファ放射体（とくにプルトニウム）」
- (17) G.S.Barney : J.Inorg.Nucl.Chem., 39, 1665 (1977)
 “The Kinetics of Plutonium Oxide Dissolution in Nitric/Hydrofluoric Acid Mixtures”
- (18) M.H.Hiatt, P.B.Hahn : Anal.Chem., 51, 295 (1979)
 “Simultaneous Determination of Americium and Curium in Soil”
- (19) J.M.Cleveland : American Nuclear Society (1979)
 “The Chemistry of Plutonium”
- (20) V.W.Thomas, Jr. : An Interlaboratory Study, BNWL-SA-6467 (1977)
 “Plutonium Analysis in Spiked Bovine Tissues”
- (21) R.P.Bernabee, D.R.Percival, F.D.Hindman : Anal.Chem., 52, 2351 (1980)
 “Liquid-Liquid Extraction Separation and Determination of Plutonium and Americium”
- (22) J.H.Harley : Environmental Measurement Laboratory Procedures Manual, HASL-300 (1980)
- (23) E.Mathew, V.M.Matkar, K.C.Pillai : J.Radioanal.Chem., 62, 267 (1981)
 “Determination of Plutonium, Americium and Curium in Environmental Materials”
- (24) H.A.Boyd, B.C.Eutsler and J.F.McInroy : Proc.Snowbird Actinide Workshop, Oct.15, 1979 (ed.M.E.Wrenn), R D Press, Salt Lake City, 43 (1981)

- “Determination of Americium and Plutonium in Autopsy Tissue : Methods and Problems, in ‘Actinides in, Man and Animals’ ”
- (25) A. Yamato : J. Radioanal. Chem., 75, 265 (1982)
 “An Anion Exchange Method for the Determination of ^{241}Am and Plutonium in Environmental and Biological Samples”
- (26) 岡林弘之 : 日本原子力学会誌, 25, 776 (1983)
 「環境中の超ウラン元素」
- (27) M. Yamamoto : J. Radioanal. Nucl. Chem., 90/2, 401 (1985)
 “Rapid Dissolution of Plutonium in Soil by Fusion with Ammonium Hydrogen Sulfate followed by Plutonium Determination by Ion Exchange and Alpha Spectrometry”
- (28) E. Holm, S. Ballestra, R. Fukai : Talanta., 26, 791 (1979)
 “A Method for Ion-Exchange Separation of Low Levels of Americium in Environmental Materials”
- (29) M. H. Hiatt, P. B. Hahn : Anal. Chem., 51, 295 (1979)
 “Simultaneous Determination of Americium and Curium in Soil”
- (30) R. P. Bernabee, D. R. Percival, F. D. Hindman : Anal. Chem., 52, 2351 (1980)
 “Liquid-Liquid Extraction Separation and Determination of Plutonium and Americium”
- (31) E. Mathew, V. M. Matkar, K. C. Pillai : J. Radioanal. Chem., 62, 267 (1980)
 “Determination of Plutonium, Americium and Curium in Environmental Materials”
- (32) A. Yamato : J. Radioanal. Chem., 75, 265 (1982)
 “An Anion Exchange Method for the Determination of ^{241}Am and Plutonium in Environmental and Biological Samples”
- (33) R. P. Bernabee : Health Phys., 44, 688 (1983)
 “A Rapid Method for the Determination of Americium-Curium, Plutonium and Thorium in Biological and Environmental Samples”
- (34) Z. Holgye : J. Radioanal. Nucl. Chem., 88/2, 337 (1985)
 “Separation of ^{241}Am from Urine and Feces by Coprecipitation with

BiPO₄”

- (35) K. Sekine, T. Imai, A. Kasai : Talanta., 34, 567(1987)
“Liquid-liquid Extraction Separation and Sequential Determination of
Plutonium and Americium in Environmental Samples by Alpha-Spectrometry”
- (36) J. H. Harley : Environmental Measurement Laboratory Procedures Manual,
HASL-300(1980)
- (37) 動力炉・核燃料開発事業団東海事業所：標準分析作業法
「海底土、海岸砂および土壌中の²⁴¹Am分析法」
- (38) Y. TAKIZAWA, SH-I, HISAMATSU, T. ABE: J. Radioanal. chem, 115/2 241-248(1987)
“The Methods for ²³⁹⁺²⁴⁰Pu Analysis and Their Application to human
Tissues and Food samples”

**本書の作成経過、委員会名簿
及び会議開催経過**

1. 本書の作成経過

本書は放射能測定調査委託費（放射能調査対策研究委託に係るもの）で、財団法人日本分析センターに委託した成果を、放射線審議会測定部会に諮問して作成したものである。

2. 放射能調査対策研究委託時の「フルトニウム及びアメリシウム分析法検討委員会」の委員会名簿

池田 長生	社団法人 日本アイソトープ協会 常務理事
笠井 篤	数理計画株式会社研究開発室 室長
片桐 裕実	動力炉・核燃料開発事業団東海事業所安全管理部環境安全課
河村 日佐男	放射線医学総合研究所環境放射生態学研究部第三研究室 室長
白石 文夫	立教大学原子力研究所 助教授
平井 保夫	茨城県公害技術センター放射能部 部長

事務局 財団法人日本分析センター

福嶋 浩人、野中 信博、新藤 勝盛、森本 隆夫

3. 放射線審議会測定部会

イ) 放射線審議会測定部会の委員会名簿

委員

(部会長)	浜田 達二	社団法人 日本アイソトープ協会 常務理事
	○池田 長生	社団法人 日本アイソトープ協会 常務理事
	柏木 寛	電子技術総合研究所 所長
	○滝沢 行雄	秋田大学医学部 教授
	○谷村 顕雄	国立衛生試験所 所長

専門委員

	阿部 史朗	放射線医学総合研究所 特別研究官
	岡野 真治	理化学研究所宇宙研究室 嘱託
	押野 昌夫	日本原子力研究所東海研究所保健物理部 部長
	小山 雄生	農業環境技術研究所環境管理部計測情報課分析研究室 室長
	○阪上 正信	金沢大学名誉教授
	戸田 誠	海上保安庁水路部海洋調査課海洋汚染調査室 室長
	○広瀬 勝己	気象庁気象研究所地球化学研究部第二室 室長
	深津 弘子	財団法人日本分析センター 分析部調査役
	○大和 愛司	動力炉・核燃料開発事業団環境技術開発推進本部 次長
	吉田 勝彦	水産庁中央水産研究所海洋生産部海洋放射能研究室 室長

○印はワーキンググループⅡの方

事務局 原子力安全局原子力安全課防災環境対策室

(敬称略・五十音順)

ロ)放射線審議会測定部会の開催日

測定部会及び測定部会の委員、専門委員の一部の方から構成したワーキンググループⅡで審議を行った。

測定部会開催日

第15回 平成2年 3月26日

第16回 平成2年11月19日

ワーキンググループⅡ

第1回 平成2年 4月24日

第2回 平成2年 6月 4日

第3回 平成2年 7月13日

第4回 平成2年 9月12日

文部科学省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 8 年 3 月 (1 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 8 年 3 月 (1 訂)
15. 緊急時における放射性ヨウ素測定法	昭和 52 年 10 月
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

プルトニウム・アメリシウム逐次分析法

平成 3 年 1 月 25 日 第 1 刷 発行

平成 5 年 7 月 20 日 第 2 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