

# 資料 1 - 4

# 環境試料中ネプツニウム 237 分析法 (案)

平成 年

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 試薬の調製	3
2.1 試薬の調製方法	3
第3章 大気浮遊じん	5
3.1 試薬・器具・装置	5
3.2 分析操作	6
第4章 土壌	9
4.1 試薬・器具・装置	9
4.2 分析操作	10
第5章 降下物	12
5.1 試薬・器具・装置	12
5.2 分析操作	13
第6章 飲料水	15
6.1 試薬・器具・装置	15
6.2 分析操作	16
第7章 牛乳	18
7.1 試薬・器具・装置	18
7.2 分析操作	19
第8章 葉菜	21
8.1 試薬・器具・装置	21
8.2 分析操作	22
第9章 ネプツニウム 237 の定量	24
9.1 プルトニウム 242 トレーサー法	25
9.2 内標準法（プルトニウム 242 を用いて回収率を補正する場合）	27
9.3 内標準法（プルトニウム 239 を用いて回収率を補正する場合）	28
解説	
解説 A ネプツニウム 239 トレーサー溶液の調製法	33

解説 B	ピロ亜硫酸カリウム（還元剤）の添加量の影響	36
解説 C	水酸化鉄( )共沈時の pH の影響	38
解説 D	固相抽出ディスクへの通液速度の影響	39
解説 E	溶離液組成の回収率への影響	41
解説 F	環境試料を用いた添加回収試験結果	43
解説 G	クロスチェック結果	45
解説 H	環境中のネプツニウム 237 濃度レベルについて	47
付 録		
付録 1	主なネプツニウム同位体の核データ	51
付録 2	ネプツニウム 237 分析法の流れ図	53
付録 3	プルトニウムの使用にあたって	55
付録 4	参考文献	56

## 第 1 章 序 論

再処理施設等の原子力施設から放出される放射性核種について、環境における放射能レベルの把握及びその影響を評価することが重要となる。

ネプツニウム 237 は、半減期が  $2.14 \times 10^6$  年の  $\alpha$  線放出核種であり、原子炉内では、ウラン 238 に対する (n,2n) 反応によるウラン 237 の  $\alpha$  壊変及びウラン 235 に対する (n,  $\gamma$ ) 反応によるウラン 236 に対する (n,  $\gamma$ ) 反応によるウラン 237 の  $\alpha$  壊変で生成する。また、原子炉内の核反応により生成されるアメリカシウム 241 の  $\alpha$  壊変で生成する。ネプツニウム 237 は長半減期核種であるため、万が一原子力施設から環境中に放出された場合には長く影響を及ぼすこととなる。また、ネプツニウムは環境中で +3 価 ~ +7 価までの酸化状態で存在するため、その挙動を複雑なものとしている。これらの理由から、ネプツニウム 237 は使用済み核燃料の再処理や高レベル放射性廃棄物の処理処分上、重要な分析対象核種となっている。

本マニュアルでは、ネプツニウムを固相抽出法により分離・精製し、安定元素のみならず長半減期核種に対しても優れた検出感度を持つ誘導結合プラズマ質量分析法 (Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry、以下「ICP-MS」という。) を用いて、ネプツニウム 237 を定量する方法について記載した。

対象試料は、大気浮遊じん、土壌、降下物、飲料水、牛乳及び葉菜とした。分析供試量及び分析目標レベルを表 1.1 に示す。

なお、分析試料の採取については、別に発行されている文部科学省放射能測定法シリーズ 16「環境試料採取法」(昭和 58 年) に記載されている。

表 1.1 本法における分析目標レベル

試料	分析供試量 <sup>1)</sup>	分析目標レベル <sup>2)</sup>	
		放射能濃度	重量濃度
大気浮遊じん	1m <sup>3</sup>	0.1 mBq/m <sup>3</sup>	4 pg/m <sup>3</sup>
土壌	10g 乾土	0.01 Bq/kg 乾土	0.4 ng/kg 乾土
降下物	0.05m <sup>2</sup> , 1 日	3 mBq/m <sup>2</sup> /日	0.1 ng/m <sup>2</sup> /日
飲料水	2L	0.05 mBq/L	2 pg/L
牛乳	0.1L	1 mBq/L	0.04 ng/L
葉菜	0.1kg 生	1 mBq/kg 生	0.04 ng/kg 生

<sup>1)</sup> 緊急時を想定した分析供試量の例を記載した。

<sup>2)</sup> 四重極型 ICP-MS と超音波ネブライザーを併用した場合

〔回収率 80%, 1 分間 3 回くり返し測定した時のバックラウンド計数値の変動 (標準偏差) の 3 倍の値〕

## 第 2 章 試薬の調製

本分析法に必要な試薬の調製方法と固相抽出ディスクのコンディショニング方法を示す。  
試薬についての本文中の重量及び容量の数字は、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。

試薬は日本工業規格(JIS)試薬を用い、規格に規定されていないものについては、できるだけ純度の高いものを用いる。

### 2.1 試薬の調製方法

#### 2.1.1 標準溶液

プルトニウム 242 標準溶液(0.03Bq/ml) : プルトニウム 242 標準溶液<sup>\*1</sup>を硝酸(1+1)で希釈し、プルトニウム 242 濃度が 0.03Bq/ml の溶液を調製する。

ネプツニウム 239 溶液 : アメリカシウム 243 溶液よりネプツニウム 239 を分離・精製して使用する。<sup>\*2</sup>

タリウム標準溶液(0.625 µg/ml) : 金属タリウム 62.5mg を硝酸(1+13)で溶解し、全量を 1L とする。この溶液 1ml を 100ml メスフラスコに取り、硝酸(1+13)を加えて全量を 100ml とする。

#### 2.1.2 担体溶液

鉄( )担体溶液(50mgFe<sup>3+</sup>/ml) : 塩化鉄( )六水和物 48g に塩酸(1+3)20ml と水を加えて溶解し 200ml とする。

#### 2.1.3 酸類

##### 硝酸

硝酸(3+2) : 硝酸 3 容と水 2 容の割合で混合する。

硝酸(3+1) : 硝酸 3 容と水 1 容の割合で混合する。

硝酸(2+11) : 硝酸 2 容と水 11 容の割合で混合する。

硝酸(1+13)<sup>\*3</sup> : 硝酸 1 容と水 13 容の割合で混合する。

##### 塩酸

塩酸(3+1) : 塩酸 3 容と水 1 容の割合で混合する。

塩酸(1+23) : 塩酸 1 容と水 23 容の割合で混合する。

---

<sup>\*1</sup> NIST(National Institute of Standards and Technology : Gaithersburg, MD, USA)より、標準物質として販売されている。使用にあたっては許可を得る必要がある。詳細は付録 3 を参照。

<sup>\*2</sup> 解説 A 参照

<sup>\*3</sup> 精密分析用試薬と超純水を用いて調製する。

#### 2.1.4 アルカリ類

アンモニア水

水酸化ナトリウム

水酸化ナトリウム溶液(40W/V%):水酸化ナトリウム 400g に水を加えて溶解し 1L とする。

#### 2.1.5 塩 類

ヨウ化アンモニウム溶液(5W/V%)<sup>\*4</sup>:ヨウ化アンモニウム 2.5g に水を加えて溶解し 50ml とする。

#### 2.1.6 その他の試薬

過酸化水素水

エタノール

ヨウ化アンモニウム溶液(5W/V%) - 塩酸混合溶液(容積比 3:7):ヨウ化アンモニウム溶液(5W/V%)3 容と塩酸 7 容<sup>\*5</sup>の割合で混合する。

フェノールフタレイン - エタノール溶液(0.5W/V%):フェノールフタレイン 0.5g をエタノールに溶解して 100ml とする。

#### 2.1.7 固相抽出ディスクのコンディショニング方法

- (1) 固相抽出ディスクを分離型ろ過器のベース上に置く。<sup>\*6</sup>
- (2) メタノール数滴でディスクを湿らせ、緩やかに吸引する。<sup>\*7</sup>
- (3) 分離型ろ過器をセットする。
- (4) メタノール 10ml 程度を加え、5ml 程度を緩やかに吸引する。
- (5) 吸引を止め、このまま 1 分程度放置してディスクを膨潤させる。
- (6) 残りのメタノールを吸引する。
- (7) 純水 50ml を加え、吸引する。<sup>\*8</sup>
- (8) 塩酸(1+11)20ml を加え、吸引する。<sup>\*9</sup>
- (9) 純水 50ml を加え、吸引する。<sup>\*10</sup>
- (10) 硝酸(2+11)20ml を加え、吸引する。<sup>\*11</sup>

---

<sup>\*4</sup> 超純水を用いて調製する。

<sup>\*5</sup> 精密分析用試薬と超純水を用いて調製する。

<sup>\*6</sup> コンディショニング中はディスクが乾燥しないように注意する。乾燥した場合は(4)よりコンディショニングをやり直す。

<sup>\*7</sup> ディスクがしわにならないように注意する。

<sup>\*8</sup> ディスクの乾燥を防ぐため、メタノールがディスク表面にわずかに残る状態で純水を加える。

<sup>\*9</sup> ディスクの乾燥を防ぐため、純水がディスク表面にわずかに残る状態で塩酸(1+11)を加える。

<sup>\*10</sup> ディスクの乾燥を防ぐため、塩酸(1+11)がディスク表面にわずかに残る状態で純水を加える。

<sup>\*11</sup> ディスクの乾燥を防ぐため、純水がディスク表面にわずかに残る状態で硝酸(2+11)を加える。



### 第 3 章 大気浮遊じん

固定ろ紙又は連続移動ろ紙で集じんした大気中の浮遊じんを対象とする。ろ紙は HE-40T、GB-100R 等の一般的なものと、ポリプロピレン等のサポート材を含むものがあり、いずれも本法により分析できる。

試料にプルトニウム 242 標準溶液又はネプツニウム 239 溶液を一定量加えた後、マイクロウェーブ分解装置を用いて硝酸で 50 分間ネプツニウム 237 を浸出する。浸出液中のネプツニウムを+3 価に還元し、水酸化鉄( )に共沈する。沈殿を硝酸に溶解し、ネプツニウムを+4 価に調整した後、固相抽出ディスクによりネプツニウムを分離・精製する。精製した試料を硝酸溶液とし、ICP-MS を用いたプルトニウム 242 トレーサー法でネプツニウム 237 を定量する。

回収率補正用トレーサーとしてネプツニウム 239 を用いた場合、ICP-MS 測定溶液を Ge 半導体検出器で測定し、ネプツニウム 239 を定量する。

試料の前処理、化学分離から ICP-MS 測定までに要する時間は、約 10 時間である。

#### 3.1 試薬・器具・装置

試薬(第 2 章参照)

標準溶液	プルトニウム 242 標準溶液(0.03Bq/ml) ネプツニウム 239 溶液(1,000Bq 程度) <sup>*1</sup>
担体溶液	鉄( )担体溶液(50mgFe <sup>3+</sup> /ml)
酸類	硝酸(3+2)、硝酸(3+1)、硝酸(1+13) 塩酸(3+1)、塩酸(1+23)
アルカリ類	水酸化ナトリウム溶液(40W/V%)
塩類	ピロ亜硫酸カリウム ヨウ化アンモニウム溶液(5W/V%) - 塩酸混合溶液(容積比 3:7)
固相抽出ディスク	3M Empore 陰イオン交換 SR ディスク(直径 47mm )相当品 固相抽出ディスクのコンディショニング方法については 2.1.7 を参照
器具	ホットプレート メンブランフィルター(孔径 0.45 μm、47mm ) 分離型ろ過器(内径 47mm )
装置	マイクロウェーブ分解装置 <sup>*2</sup> 超純水製造装置 <sup>*3</sup> アスピレーター

<sup>\*1</sup> アメリシウム 243 溶液より調製する。解説 A 参照

<sup>\*2</sup> マイルストーン社製 MLS-1200 MEGA 等

<sup>\*3</sup> ミリポア社製 Milli-Q シリーズ程度の性能を有するもの

## 3.2 分析操作

### 3.2.1 試料の前処理

セルロース・ガラス繊維系の HE-40T、GB-100R 等のろ紙並びにセルロース系のメンブランフィルターを用いて捕集した大気浮遊じんを対象とする。一般的なホットプレートを用いた前処理方法を 3.2.1.1 に、マイクロウェーブ分解装置を用いた前処理方法を 3.2.1.2 に各々記載した。各々の方法に適用可能なろ紙の種類及び量を表 3.1 に示す。

なお、マイクロウェーブ分解装置は、分解容器の容量が小さいため、メンブランフィルターを主に対象とする。

表 3.1 ろ紙の種類及び量と前処理方法

使用する装置	ホットプレート	マイクロウェーブ分解装置
適用可能なろ紙の例と量	HE-40T GB-100R (灰化処理を行うことにより多量の試料を前処理可能)	メンブランフィルター (数枚が前処理可能)

#### 3.2.1.1 ホットプレートを用いる方法

- (1) 試料<sup>\*4</sup>を 1~2L ビーカーに入れ、プルトニウム 242 標準溶液(0.03Bq/ml)1ml 又は一定量のネプツニウム 239 溶液(100Bq 程度)を正確に加える。
- (2) ろ紙の量に従って硝酸(3+2)300ml~500ml を加え、時計皿をしてホットプレート<sup>\*5</sup>上で 3 時間加熱浸出する。
- (3) 抽出液が熱いうちにガラス繊維ろ紙(GA-100)で吸引ろ過し、ろ液は 3L 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、洗液はろ液に合わせる。
- (4) 残留物をろ紙ごと元のビーカーに戻し、硝酸(3+2)を加え、時計皿をしてホットプレート<sup>\*5</sup>上で 3 時間加熱浸出する。
- (5) 熱いうちに、ガラス繊維ろ紙(GA-100)で吸引ろ過し、ろ液は先の 3L ビーカーに受ける。ろ紙上の残留物は少量の硝酸(3+2)で洗浄する。洗液はろ液にあわせ、これをネプツニウム分析用試料溶液とする。

#### 3.2.1.2 マイクロウェーブ分解装置を用いる方法

- (1) 試料をはさみで適当な大きさに裁断し、テフロン製の高压分解容器(容量 100ml)に入れ、硝酸(3+1)20ml を加え、さらにプルトニウム 242 標準溶液(0.03Bq/ml)1ml 又は一定量のネプツニウム 239 溶液(100Bq 程度)を正確に加える。
- (2) 専用の蓋をして高压分解ローターに組み込み、マイクロウェーブ分解装置にセット

<sup>\*4</sup> HE-40T 等の場合は、予め電気炉で 24 時間灰化する。

<sup>\*5</sup> ホットプレートは 200 程度に設定する。

する。

- (3) マイクロウェーブ分解装置の出力と時間を所定の条件<sup>\*6</sup>に設定し、マイクロウェーブ分解を行う。<sup>\*7</sup>
- (4) 分解終了後、高圧分解容器を水浴中で 30 分間冷却する。
- (5) 高圧分解容器の蓋を開け、ピンセットと硝酸(3+2)を用いてろ紙上の付着物を洗い落とす。ろ紙は捨てる。
- (6) 再び専用の蓋をして高圧分解ローターに組み込みマイクロウェーブ分解装置にセットする。
- (7) マイクロウェーブ分解装置の出力と時間を所定の条件<sup>\*8</sup>に設定し、マイクロウェーブ分解を行う。
- (8) 分解終了後、高圧分解容器を水浴中で 30 分間冷却する。
- (9) 高圧分解容器の蓋を開け、内容物をメンブランフィルターを用いて吸引ろ過する。不溶物は硝酸(3+2)で洗浄し、ろ液及び洗液は 200ml ビーカーに受ける。これをネプツニウム分析用試料溶液とする。

### 3.2.2 ネプツニウムの濃縮

- (1) 3.2.1.1(5)又は3.2.1.2(9)で得たネプツニウム分析用試料溶液をホットプレートで蒸発乾固する。
- (2) 塩酸(1+23)に溶解し、全量を 160ml 程度とする。
- (3) 鉄( )担体(30mgFe<sup>3+</sup>/ml)1ml 及びピロ亜硫酸カリウム 1.0g を加え<sup>\*9</sup>、20 分間かくはんする。<sup>\*10</sup>
- (4) 水酸化ナトリウム溶液(40W/V%)を加えて、pH7 以上<sup>\*11</sup>とする。
- (5) 沈殿した水酸化鉄( )を遠心分離により捕集する。
- (6) 硝酸(3+2)30ml を加え、水酸化鉄( )沈殿を溶解する。<sup>\*12</sup> この溶液をネプツニウム精製用試料溶液とする。

### 3.2.3 固相抽出ディスクによる分離

- (1) 固相抽出ディスクを分離型ろ過器にセットし、2.1.7 の方法でコンディショニングする。
- (2) 3.2.2(6)で得たネプツニウム精製用試料溶液を固相抽出ディスクに通液してネプツ

---

<sup>\*6</sup> ろ紙のサポート材(ポリプロピレン等が用いられている)が溶けない温度で行う。温度が上がるとサポート材が溶けて固まり、じん埃等が取り込まれ溶出し難くなる。

マイルストーン社製 MLS-1200 MEGA を用いる時の一例 200W 10分 - 250W 20分

<sup>\*7</sup> サポート材を含まないろ紙の場合は、(3)～(6)の操作は省く。

<sup>\*8</sup> マイルストーン社製 MLS-1200 MEGA を用いる時の一例 350W 10分 - 400W 20分

<sup>\*9</sup> ピロ亜硫酸カリウムの添加量については解説 B を参照のこと。

<sup>\*10</sup> ネプツニウムは+4 価に、プルトニウムは+3 価となる。

<sup>\*11</sup> 水酸化鉄共沈時の pH については解説 C を参照のこと。

<sup>\*12</sup> プルトニウムは+4 価となる。

ニウムを捕集する。ディスクへの通液速度は 200ml/分程度とする。<sup>\*13</sup>

- (3) 少量の硝酸(3+2)で試料溶液の入ったビーカーを洗浄する。洗浄液は分離型ろ過器に移して通液する。ディスクへの通液速度は 200ml/分程度とする。<sup>\*13</sup>
- (4) 硝酸(3+2)5ml を通液し、固相抽出ディスクを洗浄する。この操作をくり返す。なお、ディスクへの通液速度は 200ml/分程度とする。<sup>\*13</sup>
- (5) 塩酸(3+1)3ml を通液し、固相抽出ディスクを洗浄する。この操作を合計 4 回行う。<sup>\*14</sup> なお、ディスクへの通液速度は 200ml/分程度とする。<sup>\*13</sup>
- (6) 塩酸-ヨウ化アンモニウム混合溶液<sup>\*15</sup>5ml を通液し、ネプツニウムを溶離する。溶出液は 50ml ビーカーで受ける。この操作を合計 3 回行う。<sup>\*16</sup> なお、ディスクへの通液速度は 10ml/分程度とする。<sup>\*13 \*17</sup>
- (7) 溶出液をホットプレート<sup>\*18</sup>上で蒸発乾固する
- (8) 乾固物に硝酸 5ml を加え、ホットプレート<sup>\*18</sup>上で蒸発乾固する。<sup>\*19</sup>
- (9) 乾固物に硝酸(1+13)5ml を加え、時計皿をして加熱溶解する。
- (10) 放冷後、試料溶液を硝酸(1+13)を用いて 25ml 全量フラスコに移し、さらに硝酸(1+13)を加えて定容とし、測定試料溶液とする。

#### 3.2.4 ネプツニウム 239 による回収率の計算

3.2.3(10)で得た測定試料溶液について、9.3 に従いゲルマニウム半導体検出器を用いてネプツニウム 239 の測定を行い、回収率を求める。<sup>\*20</sup>

#### 3.2.5 ネプツニウム 237 の定量

3.2.3(10)で得た測定試料溶液又は3.2.4でネプツニウム 239 を測定した後の測定試料溶液について、第9章に従い ICP-MS を用いてネプツニウム 237 の定量を行う。

---

<sup>\*13</sup> 目盛のついてる分離型ろ過器を使用すると、流速を確認できる。なお、通液速度については解説 D を参照のこと。

<sup>\*14</sup> 洗浄液の合計は 12ml となる。

<sup>\*15</sup> 溶離液については解説 E を参照のこと。

<sup>\*16</sup> 溶離液の合計は 15ml となる。

<sup>\*17</sup> 溶離液の流速を調節する代わりに、溶離液 5ml のうち 2ml 程度を吸引して固相抽出ディスクになじませて 1~2 分程度待ち、残り 3ml を緩やかに吸引するか、自然に流出させてもよい。

<sup>\*18</sup> ホットプレートは 200 程度に設定する。

<sup>\*19</sup> 溶離液中に含まれるヨウ化アンモニウムを分解する。

<sup>\*20</sup> ネプツニウム 239 を回収率補正用トレーサーとして用いた場合に実施する。

## 第 4 章 土 壤

試料をマイクロウェーブ高温灰化装置等を使用して 1.5 時間加熱する。試料にプルトニウム 242 標準溶液又はネプツニウム 239 溶液を一定量加えた後、マイクロウェーブ分解装置を用いて硝酸溶液でネプツニウムを 30 分間浸出する。これを 2 回くり返す。浸出液中のネプツニウムを+3 価に還元し、水酸化鉄( )に共沈する。沈殿を硝酸に溶解し、浸出液中のネプツニウムを+4 価に調整した後、固相抽出ディスクによりネプツニウムを分離・精製する。精製した試料を硝酸溶液とし、ICP-MS を用いるプルトニウム 242 トレーサー法でネプツニウム 237 を定量する。

回収率補正用トレーサーとしてネプツニウム 239 を用いた場合、ICP-MS 測定溶液を Ge 半導体検出器で測定し、ネプツニウム 239 を定量する。

試料の前処理、化学分離から ICP-MS 測定までに要する時間は、約 14 時間である。

### 4.1 試薬・器具・装置

試薬(第 2 章参照)

標準溶液	プルトニウム 242 標準溶液(0.03Bq/ml) ネプツニウム 239 溶液(1,000Bq 程度)* <sup>1</sup>
担体溶液	鉄( )担体溶液(50mgFe <sup>3+</sup> /ml)
酸類	硝酸(3+2)、硝酸(3+1)、硝酸(1+13) 塩酸(3+1)、塩酸(1+23)
アルカリ類	水酸化ナトリウム溶液(40W/V%)
塩類	ピロ亜硫酸カリウム ヨウ化アンモニウム溶液(5W/V%) - 塩酸混合溶液(容積比 3:7)
固相抽出ディスク	3M Empore 陰イオン交換 SR ディスク(直径 47mm )相当品 固相抽出ディスクのコンディショニング方法については 2.1.7 を参照
器具	ホットプレート メンブランフィルター(孔径 0.45 μm、47mm ) 分離型ろ過器(内径 47mm )
装置	マイクロウェーブ高温灰化装置* <sup>2</sup> 又は電気炉 マイクロウェーブ分解装置* <sup>3</sup> 超純水製造装置* <sup>4</sup> アスピレーター

\*<sup>1</sup> アメリシウム 243 溶液より調製する。解説 A 参照

\*<sup>2</sup> マイルストーン社製 MLS-1200 PYRO 等

\*<sup>3</sup> マイルストーン社製 MLS-1200 MEGA 等

\*<sup>4</sup> ミリポア社製 Milli-Q シリーズ程度の性能を有するもの

## 4.2 分析操作

### 4.2.1 試料の前処理

#### 4.2.1.1 ホットプレートを用いる方法

- (1) 試料 10g 乾土を磁製皿に入れ、マイクロウェーブ高温灰化装置を用いて、設定温度を 500 とし 100 分間加熱する。また、電気炉を用いる場合には設定温度を 500 とし、3 時間程度加熱する。
- (2) 試料を 500ml ビーカーに入れ、プルトニウム 242 標準溶液(0.03Bq/ml)1ml 又は一定量のネプツニウム 239 溶液(100Bq 程度)を正確に加える。
- (3) 硝酸(3+2) 50ml を加え、時計皿をしてホットプレート<sup>\*5</sup>上で 2 時間加熱浸出する。
- (4) 抽出液が熱いうちにガラス繊維ろ紙(GA-100)で吸引ろ過し、ろ液は 500ml ビーカーに受ける。ろ紙上の残留物は、少量の硝酸(3+2)で洗浄し、洗液はろ液に合わせる。
- (5) 残留物をろ紙ごと元のビーカーに戻し、硝酸(3+2)を加え、時計皿をしてホットプレート<sup>\*5</sup>上で 2 時間加熱浸出する。
- (6) 熱いうちに、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。ろ紙上の残留物は少量の硝酸(3+2)で洗浄する。洗液はろ液にあわせ、これをネプツニウム分析用試料溶液とする。

#### 4.2.1.2 マイクロウェーブ分解装置を用いる方法

- (1) 試料 10g 乾土を磁製皿に入れ、マイクロウェーブ高温灰化装置を用いて、設定温度 500 とし 100 分間加熱する。また、電気炉を用いる場合には設定温度を 500 とし、3 時間程度加熱する。
- (2) 冷却後、試料を磁製皿からテフロン製の大容量分解容器(容量 260ml)に移し、硝酸(3+1)60ml を加え、さらにプルトニウム 242 標準溶液(0.03Bq/ml)1ml 又は一定量のネプツニウム 239 溶液(100Bq 程度)を正確に加える。
- (3) 専用の蓋をして分解ローターに組み込みマイクロウェーブ分解装置にセットする。
- (4) マイクロウェーブ分解装置の出力と時間を所定の条件<sup>\*6</sup>に設定し、マイクロウェーブ分解を行う。
- (5) 分解終了後、大容量分解容器を水浴中で 30 分間冷却する。
- (6) 大容量分解容器の蓋を開け、デカンテーションにより上澄み液を別に用意した 300ml テフロンビーカーに移し、ホットプレート<sup>\*5</sup>上で蒸発濃縮する。
- (7) 大容量分解容器に硝酸(3+1)を 60ml 加え、(3)～(5)の操作をくり返す。
- (8) 大容量分解容器の蓋を開け、硝酸(3+2)を用いて内容物を(6)の 300ml テフロンビーカーに移す。
- (9) 分離型ろ過器とメンブランフィルターを用いて吸引ろ過し、不溶物は硝酸(3+2)で洗浄する。ろ液及び洗液は 200ml ビーカーに受けネプツニウム分析用試料溶液とする。

<sup>\*5</sup> ホットプレートは 200 程度に設定する。

<sup>\*6</sup> マイルストーン社製 MLS-1200 MEGA を用いる時の一例 350W 5 分 - 400W 25 分

#### 4.2.2 ネプツニウムの濃縮

4.2.1.1(6)又は4.2.1.2(9)で得たネプツニウム分析用試料溶液について、3.2.2と同様の操作を行い、ネプツニウム精製用試料溶液とする。

#### 4.2.3 固体抽出ディスクによる分離

4.2.2で得たネプツニウム精製用試料溶液について3.2.3と同様の操作を行い、測定溶液とする。

#### 4.2.4 ネプツニウム 239 による回収率の計算

4.2.3で得た測定溶液について、9.3に従いゲルマニウム半導体検出器を用いてネプツニウム 239 の測定を行い、回収率を求める。<sup>\*7</sup>

#### 4.2.5 ネプツニウム 237 の定量

4.2.3で得た測定溶液又は4.2.4でネプツニウム 239 を測定した後の測定試料溶液について、第9章に従いICP-MSを用いてネプツニウム 237 の定量を行う。

---

<sup>\*7</sup> ネプツニウム 239 を回収率補正用トレーサーとして用いた場合に実施する。

## 第 5 章 降下物

水盤に捕集された大気浮遊じんと降水を対象とする。

試料にプルトニウム 242 標準溶液又はネプツニウム 239 溶液を一定量加えた後、かくはんしてろ過する。残留物は、マイクロウェーブ分解装置と硝酸を用いて 30 分間加熱し、含まれているネプツニウムを浸出する。浸出液をろ液に合わせた後、溶液中のネプツニウムを+3 価に還元し、水酸化鉄( )に共沈する。沈殿を硝酸に溶解し、ネプツニウムを+4 価に調整した後、固相抽出ディスクによりネプツニウムを分離・精製する。精製した試料を硝酸溶液とし、ICP-MS を用いたプルトニウム 242 トレーサー法でネプツニウム 237 を定量する。

回収率補正用トレーサーとしてネプツニウム 239 を用いた場合、ICP-MS 測定溶液を Ge 半導体検出器で測定し、ネプツニウム 239 を定量する。

試料の前処理、化学分離から ICP-MS 測定までに要する時間は、約 13 時間である。

### 5.1 試薬・器具・装置

試薬(第 2 章参照)

標準溶液	プルトニウム 242 標準溶液(0.03Bq/ml) ネプツニウム 239 溶液(1,000Bq 程度) <sup>*1</sup>
担体溶液	鉄( )担体溶液(50mgFe <sup>3+</sup> /ml)
酸類	硝酸(3+2)、硝酸(3+1)、硝酸(1+13) 塩酸(3+1)、塩酸(1+23) 過酸化水素水(30%)
アルカリ類	水酸化ナトリウム溶液(40W/V%) アンモニア水
塩類	ヨウ化アンモニウム溶液(5W/V%) - 塩酸混合溶液(容積比 3:7)
指示薬	フェノールフタレイン - エタノール溶液(0.5W/V%)
固相抽出ディスク	3M Empore 陰イオン交換 SR ディスク(直径 47mm )相当品 固相抽出ディスクのコンディショニング方法については 2.1.7 を参照
器具	ホットプレート ガスコンロ 分離型ろ過器(内径 47mm ) メンブランフィルター(孔径 0.45 μm、47mm )
装置	マイクロウェーブ分解装置 <sup>*2</sup> 超純水製造装置 <sup>*3</sup> アスピレーター、遠心分離機

<sup>\*1</sup> アメリシウム 243 溶液より調製する。解説 A 参照

<sup>\*2</sup> マイルストーン社製 MLS-1200 MEGA 等

<sup>\*3</sup> ミリポア社製 Milli-Q シリーズ程度の性能を有するもの



## 5.2 分析操作

### 5.2.1 試料の前処理

#### 5.2.1.1 ホットプレートを用いる方法

- (1) 試料 1L を分取し<sup>\*4</sup> (全量が 1L に達しない場合は全量を用いる) プルトニウム 242 標準溶液(0.03Bq/ml)1ml 又は一定量のネプツニウム 239 溶液(100Bq 程度)を正確に加え、よくかくはんする。
- (2) メンブランフィルターを用いて吸引ろ過する。ろ液は適当な大きさのビーカーに移す。
- (3) 残留物をろ紙ごと 500ml ビーカーに移す。
- (4) 硝酸(3+2) 50ml を加え、時計皿をしてホットプレート<sup>\*5</sup>上で加熱浸出する。
- (5) 抽出液が熱いうちにガラス繊維ろ紙(GA-100)で吸引ろ過し、ろ液は 500ml ビーカーに受ける。ろ紙上の残留物は、少量の硝酸(3+2)で洗浄し、洗液はろ液に合わせる。
- (6) 残留物をろ紙ごと元のビーカーに戻し、硝酸(3+2)を加え、時計皿をしてホットプレート<sup>\*5</sup>上で加熱浸出する。
- (7) 熱いうちに、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。ろ紙上の残留物は少量の硝酸(3+2)で洗浄する。洗液はろ液にあわせ、これをネプツニウム分析用試料溶液とする。

#### 5.2.1.2 マイクロウェーブ分解装置を用いる方法

- (1) 試料 1L を分取し<sup>\*4</sup> (全量が 1L に達しない場合は全量を用いる) プルトニウム 242 標準溶液(0.03Bq/ml)1ml 又は一定量のネプツニウム 239 溶液(100Bq 程度)を正確に加え、よくかくはんする。
- (2) メンブランフィルターを用いて吸引ろ過する。ろ液は適当な大きさのビーカーに移す。
- (3) 残留物をろ紙ごとテフロン製の高压分解容器(容量 100ml)に入れる。
- (4) 硝酸(3+1)20ml を加え、専用の蓋をして高压分解ローターに組み込みマイクロウェーブ分解装置にセットする。
- (5) マイクロウェーブ分解装置の出力と時間を所定の条件<sup>\*6</sup>に設定し、マイクロウェーブ分解を行う。
- (6) 分解終了後、高压分解容器を水浴中で 30 分間冷却する。
- (7) 高压分解容器の蓋を開け、浸出液を別に用意した 200ml テフロンビーカーに移し、ホットプレート<sup>\*5</sup>上で蒸発乾固する。
- (8) 乾固後、硝酸 5ml を加え加熱溶解し、(2)で得たろ液に合わせる。
- (9) ろ液 1L 当たり、鉄( )担体溶液(50mgFe<sup>3+</sup>/ml)を 1ml の割合で加え、かくはんする。

<sup>\*4</sup> 試料を分取する場合、放射能濃度計算に用いるため、試料の全量を記録しておく。

<sup>\*5</sup> ホットプレートは 200 程度に設定する。

<sup>\*6</sup> マイルストーン社製 MLS-1200 MEGA を用いる時の一例 350W 10分 - 400W 20分

- (10) フェノールフタレイン - エタノール溶液(0.5W/V%)2ml を加え、かくはん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。
- (11) ガスコンロで 30 分間加熱し、沈殿を熟成する。
- (12) 水浴中で冷却後、デカンテーションにより上澄み液を捨て、沈殿物を 50ml 遠沈管に移す。
- (13) 3,000rpm で約 10 分間遠心分離を行う。上澄み液は捨てる。
- (14) 沈殿に硝酸を加え、100ml ビーカーに移し、ホットプレート<sup>\*7</sup>上で加熱溶解後、蒸発乾固する。
- (15) 放冷後、硝酸(3+2)10ml と過酸化水素水 1ml を加え、ホットプレート<sup>\*7</sup>上で蒸発乾固する。
- (16) 分離型ろ過器とメンブランフィルターを用いて吸引ろ過し、不溶物は硝酸(3+2)で洗浄する。ろ液及び洗液は 200ml ビーカーに受け、ネプツニウム分析用試料溶液とする。

### 5.2.2 ネプツニウムの濃縮

5.2.1.1(7)又は5.2.1.2(16)で得たネプツニウム分析用試料溶液について、3.2.2 と同様の操作を行い、ネプツニウム精製用試料溶液とする。

### 5.2.3 固体抽出ディスクによる分離

5.2.2 で得たネプツニウム精製用試料溶液について3.2.3 と同様の操作を行い、測定溶液とする。

### 5.2.4 ネプツニウム 239 による回収率の計算

5.2.3 で得た測定溶液について、9.3 に従いゲルマニウム半導体検出器を用いてネプツニウム 239 の測定を行い、回収率を求める。<sup>\*8</sup>

### 5.2.5 ネプツニウム 237 の定量

5.2.3 で得た測定溶液又は5.2.4 でネプツニウム 239 を測定した後の測定試料溶液について、第9章に従い ICP-MS を用いてネプツニウム 237 の定量を行う。

---

<sup>\*7</sup> ホットプレートは 200 程度に設定する。

<sup>\*8</sup> ネプツニウム 239 を回収率補正用トレーサーとして用いた場合に実施する。

## 第 6 章 飲料水

飲料水は、陸水（井戸水、水道水等）を対象とする。

試料にプルトニウム 242 標準溶液又はネプツニウム 239 溶液を一定量加えた後、かくはんしてろ過する。残留物は、マイクロウェーブ分解装置と硝酸(3+1)を用いて 30 分間加熱し、含まれているネプツニウムを浸出する。浸出液をろ液に合わせた後、溶液中のネプツニウムを+3 価に還元し、水酸化鉄( )に共沈する。沈殿を硝酸に溶解し、ネプツニウムを+4 価に調整した後、固相抽出ディスクによりネプツニウムを分離・精製する。精製した試料を硝酸溶液とし、ICP-MS を用いたプルトニウム 242 トレーサー法でネプツニウム 237 を定量する。

回収率補正用トレーサーとしてネプツニウム 239 を用いた場合、ICP-MS 測定溶液を Ge 半導体検出器で測定し、ネプツニウム 239 を定量する。

試料の前処理、化学分離から ICP-MS 測定までに要する時間は、約 13 時間である。

### 6.1 試薬・器具・装置

#### 試薬（第 2 章参照）

標準溶液	プルトニウム 242 標準溶液(0.03Bq/ml) ネプツニウム 239 溶液(1,000Bq 程度) <sup>*1</sup>
担体溶液	鉄( )担体溶液(50mgFe <sup>3+</sup> /ml)
酸類	硝酸(3+2)、硝酸(3+1)、硝酸(1+13) 塩酸(3+1)、塩酸(1+23) 過酸化水素水(30%)
アルカリ類	水酸化ナトリウム溶液(40W/V%) アンモニア水
塩類	ヨウ化アンモニウム溶液(5W/V%) - 塩酸混合溶液(容積比 3:7)
指示薬	フェノールフタレイン - エタノール溶液(0.5W/V%)
固相抽出ディスク	3M Empore 陰イオン交換 SR ディスク（直径 47mm ）相当品 固相抽出ディスクのコンディショニング方法については 2.1.7 を参照
器具	ホットプレート ガスコンロ メンブランフィルター（孔径 0.45 μm、47mm ） 分離型ろ過器(内径 47mm )
装置	マイクロウェーブ分解装置 <sup>*2</sup> 超純水製造装置 <sup>*3</sup> 、遠心分離機 アスピレーター

<sup>\*1</sup> アメリシウム 243 溶液より調製する。解説 A 参照

<sup>\*2</sup> マイルストーン社製 MLS-1200 MEGA 等

<sup>\*3</sup> ミリポア社製 Milli-Q シリーズ程度の性能を有するもの

## 6.2 分析操作

### 6.2.1 試料の前処理

#### 6.2.1.1 ホットプレートを用いる方法

- (1) 試料 2L を分取し、プルトニウム 242 標準溶液(0.03Bq/ml)1ml 又は一定量のネプツニウム 239 溶液(100Bq 程度)を正確に加えよくかくはんする。
- (2) メンブランフィルターを用いて吸引ろ過する。
- (3) 残留物をろ紙ごと 500ml ビーカーに移す。
- (4) 硝酸(3+2) 50ml を加え、時計皿をしてホットプレート<sup>\*4</sup>上で加熱浸出する。
- (5) 抽出液が熱いうちにガラス繊維ろ紙(GA-100)で吸引ろ過し、ろ液は 500ml ビーカーに受ける。ろ紙上の残留物は、少量の硝酸(3+2)で洗浄し、洗液はろ液に合わせる。
- (6) 残留物をろ紙ごと元のビーカーに戻し、硝酸(3+2)を加え、時計皿をしてホットプレート<sup>\*4</sup>上で加熱浸出する。
- (7) 熱いうちに、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。ろ紙上の残留物は少量の硝酸(3+2)で洗浄する。洗液はろ液にあわせ、これをネプツニウム分析用試料溶液とする。

#### 6.2.1.2 マイクロウェーブ分解装置を用いる方法

- (1) 試料 2L を分取し、プルトニウム 242 標準溶液(0.03Bq/ml)1ml 又は一定量のネプツニウム 239 溶液(100Bq 程度)を正確に加えよくかくはんする。
- (2) メンブランフィルターを用いて吸引ろ過する。
- (3) 残留物をろ紙ごとテフロン製の高压分解容器(容量 100ml)に入れる。
- (4) 硝酸(3+1)20ml を加え、専用の蓋をして高压分解ローターに組み込みマイクロウェーブ分解装置にセットする。
- (5) マイクロウェーブ分解装置の出力と時間を所定の条件<sup>\*5</sup>に設定し、マイクロウェーブ分解を行う。
- (6) 分解終了後、高压分解容器を水浴中で 30 分間冷却する。
- (7) 高压分解容器の蓋を開け、浸出液を別に用意した 200ml テフロンビーカーに移し、ホットプレート<sup>\*4</sup>上で蒸発乾固する。
- (8) 乾固後、硝酸 5ml を加え加熱溶解し、(2)で得たろ液に合わせる。
- (9) ろ液 1L 当たり、鉄( )担体溶液(50mgFe<sup>3+</sup>/ml)を 1ml の割合で加え、かくはんした後 1 時間放置する。
- (10) フェノールフタレイン - エタノール溶液(0.5W/V%)2ml を加え、かくはん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。
- (11) ガスコンロで 30 分間加熱し、沈殿を熟成する。
- (12) 水浴中で冷却後、デカンテーションにより上澄み液を捨て、沈殿物を 50ml 遠沈管に

<sup>\*4</sup> ホットプレートは 200 程度に設定する。

<sup>\*5</sup> マイルストーン社製 MLS-1200 MEGA を用いる時の一例 350W 10 分 - 400W 20 分

移す。

(13) 3,000rpm で約 10 分間遠心分離を行う。上澄み液は捨てる。

(14) 沈殿に硝酸を加え、100ml ビーカーに移し、ホットプレート<sup>\*6</sup>上で加熱溶解後、蒸発乾固する。

(15) 放冷後、硝酸(3+2)10ml と過酸化水素水 1ml を加え、ホットプレート<sup>\*6</sup>上で蒸発乾固する。

(16) 分離型ろ過器とメンブランフィルターを用いて吸引ろ過し、不溶物は硝酸(3+2)で洗浄する。ろ液及び洗液は 200ml ビーカーに受け、ネプツニウム分析用試料溶液とする。

### 6.2.2 ネプツニウムの濃縮

6.2.1.1(7)又は6.2.1.2(16)で得たネプツニウム分析用試料溶液について、3.2.2 と同様の操作を行い、ネプツニウム精製用試料溶液とする。

### 6.2.3 固体抽出ディスクによる分離

6.2.2 で得たネプツニウム精製用試料溶液について3.2.3 と同様の操作を行い、測定溶液とする。

### 6.2.4 ネプツニウム 239 による回収率の計算

6.2.3 で得た測定溶液について、9.3 に従いゲルマニウム半導体検出器を用いてネプツニウム 239 の測定を行い、回収率を求める。<sup>\*7</sup>

### 6.2.5 ネプツニウム 237 の定量

6.2.3 で得た測定溶液又は6.2.4 でネプツニウム 239 を測定した後の測定試料溶液について、第 9 章に従い ICP-MS を用いてネプツニウム 237 の定量を行う。

---

<sup>\*6</sup> ホットプレートは 200 程度に設定する。

<sup>\*7</sup> ネプツニウム 239 を回収率補正用トレーサーとして用いた場合に実施する。

## 第 7 章 牛 乳

試料をガスコンロで炭化し、マイクロウェーブ高温灰化装置等で加熱灰化する。

灰化した試料にプルトニウム 242 標準溶液又はネプツニウム 239 溶液を一定量加えた後、マイクロウェーブ分解装置を用いて硝酸に溶解する。溶液中のネプツニウムを+3 価に還元し、水酸化鉄( )に共沈する。沈殿を硝酸に溶解し、溶液中のネプツニウムを+4 価に調整した後、固相抽出ディスクによりネプツニウムを分離・精製する。精製した試料を硝酸溶液とし、ICP-MS を用いたプルトニウム 242 トレーサー法でネプツニウム 237 を定量する。

回収率補正用トレーサーとしてネプツニウム 239 を用いた場合、ICP-MS 測定溶液を Ge 半導体検出器で測定し、ネプツニウム 239 を定量する。

試料の前処理、化学分離から ICP-MS 測定までに要する時間は約 12 時間である。

### 7.1 試薬・器具・装置

#### 試薬(第 2 章参照)

標準溶液	プルトニウム 242 標準溶液(0.03Bq/ml) ネプツニウム 239 溶液(1,000Bq 程度)* <sup>1</sup>
担体溶液	鉄( )担体溶液(50mgFe <sup>3+</sup> /ml)
酸類	硝酸(3+2)、硝酸(3+1)、硝酸(1+13) 塩酸(3+1)、塩酸(1+23)
アルカリ類	ヨウ化アンモニウム溶液(5W/V%) - 塩酸混合混液(容積比 3:7)
固相抽出ディスク	3M Empore 陰イオン交換 SR ディスク(直径 47mm )相当品 固相抽出ディスクのコンディショニング方法については 2.1.7 を参照
器具	磁製皿 ホットプレート ガスコンロ メンブランフィルター(孔径 0.45 μm、47mm ) 分離型ろ過器(内径 47mm )
装置	マイクロウェーブ高温灰化装置* <sup>2</sup> 又は電気炉 マイクロウェーブ分解装置* <sup>3</sup> 超純水製造装置* <sup>4</sup> アスピレーター

\*<sup>1</sup> アメリシウム 243 溶液より調製する。解説 A 参照

\*<sup>2</sup> マイルストーン社製 MLS-1200 PYRO 等

\*<sup>3</sup> マイルストーン社製 MLS-1200 MEGA 等

\*<sup>4</sup> ミリポア社製 Milli-Q シリーズ程度の性能を有するもの

## 7.2 分析操作

### 7.2.1 試料の前処理

#### 7.2.1.1 ホットプレートを用いる方法

- (1) 試料 0.1L を磁製皿に移す。
- (2) ガラス棒でかき混ぜながらガスコンロ上で加熱し、蒸発乾燥後、炭化する。<sup>\*5</sup>
- (3) 炭化後、マイクロウェーブ高温灰化装置に入れ、設定温度を 250 から 600 まで順次上げて 3 時間程度加熱し(例えば、250 :60 分, 500 :90 分, 600 :45 分)灰化する。また、電気炉を用いる場合には設定温度を 500 とし、5 時間程度加熱する。
- (4) 試料をビーカーに移し、プルトニウム 242 標準溶液(0.03Bq/ml)1ml 又は一定量のネプツニウム 239 溶液(100Bq 程度)を正確に加える。さらに、硝酸 20ml を加えて、時計皿をしてホットプレート<sup>\*5</sup>上で蒸発乾固する。
- (5) 乾固物に過酸化水素水 5ml を注意しながら加え、有機物を分解する。乾固直前に硝酸を加え、乾固させる。試料が白くなるまで、この操作を繰り返す。
- (6) 分離型ろ過器とガラス繊維ろ紙(GA-100)を用いて吸引ろ過し、不溶物は硝酸(3+2)で洗浄する。ろ液及び洗液は 200ml ビーカーに受けネプツニウム分析用試料溶液とする。

#### 7.2.1.2 マイクロウェーブ分解装置を用いる方法

- (1) 試料 0.1L を磁製皿に移す。
- (2) ガラス棒でかき混ぜながらガスコンロ上で加熱し、蒸発乾燥後、炭化する。<sup>\*6</sup>
- (3) 炭化後、マイクロウェーブ高温灰化装置に入れ、設定温度を 250 から 600 まで順次上げて 3 時間程度加熱し灰化する。また、電気炉を用いる場合には設定温度を 500 とし、5 時間程度加熱する。
- (4) 試料を磁製皿からテフロン製の高压分解容器(容量 100ml)に移し、硝酸 20ml を加え、さらにプルトニウム 242 標準溶液(0.03Bq/ml)1ml 又は一定量のネプツニウム 239 溶液(100Bq 程度)を正確に加える。
- (5) 専用の蓋をして高压分解ローターに組み込みマイクロウェーブ分解装置にセットする。
- (6) マイクロウェーブ分解装置の出力と時間を所定の条件<sup>\*7</sup>に設定し、マイクロウェーブ分解を行う。
- (7) 分解終了後、高压分解容器を水浴中で 30 分間冷却する。
- (8) 高压分解容器の蓋を開け、硝酸(3+2)を用いて内容物を別に用意した 200ml テフロンビーカーに移す。
- (9) 分離型ろ過器とメンブランフィルターを用いて吸引ろ過し、不溶物は硝酸(3+2)で洗浄する。ろ液及び洗液は 200ml ビーカーに受けネプツニウム分析用試料溶液とする。

---

<sup>\*5</sup> ホットプレートは 200 程度に設定する。

<sup>\*6</sup> 40 分程度を要する。

<sup>\*7</sup> マイルストーン社製 MLS-1200 MEGA を用いる時の一例 500W 10 分 - 400W 20 分

## 7.2.2 ネプツニウムの濃縮

7.2.1.1(6)又は7.2.1.2(9)で得たネプツニウム分析用試料溶液について、3.2.3 と同様の操作を行い、ネプツニウム精製用試料溶液とする。

## 7.2.3 固体抽出ディスクによる分離

7.2.2 で得たネプツニウム精製用試料溶液について3.2.3 と同様の操作を行い、測定溶液とする。

## 7.2.4 ネプツニウム 239 による回収率の計算

7.2.3 で得た測定溶液について、9.3 に従いゲルマニウム半導体検出器を用いてネプツニウム 239 の測定を行い、回収率を求める。<sup>\*8</sup>

## 7.2.5 ネプツニウム 237 の定量

7.2.3 で得た測定溶液又は7.2.4 でネプツニウム 239 を測定した後の測定試料溶液について、第9章に従い ICP-MS を用いてネプツニウム 237 の定量を行う。

---

<sup>\*8</sup> ネプツニウム 239 を回収率補正用トレーサーとして用いた場合に実施する。



## 第 8 章 葉 菜

試料を、電子レンジで乾燥後、マイクロウェーブ高温灰化装置等を使用して 3 時間加熱し灰化する。灰化した試料にプルトニウム 242 標準溶液又はネプツニウム 239 溶液を一定量加えた後、マイクロウェーブ分解装置を用いて硝酸(3+1)で 30 分間ネプツニウムを浸出する。浸出液中のネプツニウムを+3 価に還元し、水酸化鉄( )に共沈する。沈殿を硝酸に溶解し、ネプツニウムを+4 価に調整した後、固相抽出ディスクによりネプツニウムを分離・精製する。精製した試料中のネプツニウムは硝酸溶液とし、ICP-MS を用いたプルトニウム 242 トレーサー法でネプツニウム 237 を定量する。

回収率補正用トレーサーとしてネプツニウム 239 を用いた場合、ICP-MS 測定溶液を Ge 半導体検出器で測定し、ネプツニウム 239 を定量する。

試料の前処理、化学分離から ICP-MS 測定までに要する時間は、約 16 時間である。

### 8.1 試薬・器具・装置

試薬(第 2 章参照)

標準溶液	プルトニウム 242 標準溶液(0.03Bq/ml) ネプツニウム 239 溶液(1,000Bq 程度)* <sup>1</sup>
担体溶液	鉄( )担体溶液(50mgFe <sup>3+</sup> /ml)
酸類	硝酸(3+2)、硝酸(3+1)、硝酸(1+13) 塩酸(3+1)、塩酸(1+23)
アルカリ類	水酸化ナトリウム溶液(40W/V%)
塩類	亜硝酸ナトリウム溶液(20W/V%) ヨウ化アンモニウム溶液(5W/V%) - 塩酸混合溶液(容積比 3:7)
固相抽出ディスク	3M Empore 陰イオン交換 SR ディスク(直径 47mm )相当品 固相抽出ディスクのコンディショニング方法については 2.1.7 を参照
器具	磁製皿、ホットプレート メンブランフィルター(孔径 0.45 μm、47mm ) 分離型ろ過器(内径 47mm )
装置	マイクロウェーブ高温灰化装置* <sup>2</sup> 又は電気炉 マイクロウェーブ分解装置* <sup>3</sup> 、超純水製造装置* <sup>4</sup> 、 電子レンジ* <sup>5</sup> 又は乾燥器、アスピレーター

\*<sup>1</sup> アメリシウム 243 溶液より調製する。解説 A 参照

\*<sup>2</sup> マイルストーン社製 MLS-1200 PYRO 等

\*<sup>3</sup> マイルストーン社製 MLS-1200 MEGA 等

\*<sup>4</sup> ミリポア社製 Milli-Q シリーズ程度の性能を有するもの

\*<sup>5</sup> 家庭用のものでもよい。(高周波出力 500W 程度)

## 8.2 分析操作

### 8.2.1 試料の前処理

#### 8.2.1.1 ホットプレートを用いる方法

- (1) 生試料 0.1kg を磁製皿に秤り取る。
- (2) 電子レンジに入れ、25 分間乾燥する。<sup>\*7</sup>
- (3) 乾燥後、マイクロウェーブ高温灰化装置に入れ、設定温度を 250 から 600 まで順次上げて 3 時間程度加熱し（例えば 250 :60 分, 500 :90 分, 600 :45 分）灰化する。また、電気炉を用いる場合には設定温度を 500 とし、4 時間程度加熱する。
- (4) 試料をビーカーに移し、プルトニウム 242 標準溶液(0.03Bq/ml)1ml 又は一定量のネプツニウム 239 溶液(100Bq 程度)を正確に加える。さらに、硝酸 20ml を加えて、時計皿をしてホットプレート<sup>\*6</sup>上で蒸発乾固する。
- (5) 乾固物に過酸化水素水 5ml を注意しながら加え、有機物を分解する。乾固直前に硝酸を加え、乾固させる。試料が白くなるまで、この操作をくり返す。
- (6) 分離型ろ過器とガラス繊維ろ紙(GA-100)を用いて吸引ろ過し、不溶物は硝酸(3+2)で洗浄する。ろ液及び洗液は 200ml ビーカーに受けネプツニウム分析用試料溶液とする。

#### 8.2.1.2 マイクロウェーブ分解装置を用いる方法

- (1) 生試料 0.1kg を磁製皿に秤り取る。
- (2) 電子レンジに入れ、25 分間乾燥する。<sup>\*7</sup>
- (3) 乾燥後、マイクロウェーブ高温灰化装置に入れ、設定温度を 250 から 600 まで順次上げて 3 時間程度加熱し（例えば 250 :60 分, 500 :90 分, 600 :45 分）灰化する。また、電気炉を用いる場合には設定温度を 500 とし、4 時間程度加熱する。
- (4) 試料を磁製皿からテフロン製の高压分解容器(容量 100ml)に移し、硝酸(3+1)20ml を加え、さらにプルトニウム 242 標準溶液(0.03Bq/ml)1ml 又は一定量のネプツニウム 239 溶液(100Bq 程度)を正確に加える。
- (5) 専用の蓋をして高压分解ローターに組み込みマイクロウェーブ分解装置にセットする。
- (6) マイクロウェーブ分解装置の出力と時間を所定の条件<sup>\*8</sup>に設定し、マイクロウェーブ分解を行う。
- (7) 分解終了後、高压分解容器を水浴中で 30 分間冷却する。
- (8) 高压分解容器の蓋を開け、硝酸(3+2)を用いて内容物を別に用意した 200ml テフロンビーカーに移す。
- (9) 分離型ろ過器とメンブランフィルターを用いて吸引ろ過し、不溶物は硝酸(3+2)で洗

---

<sup>\*6</sup> ホットプレートは 200 程度に設定する。

<sup>\*7</sup> 電子レンジの代わりに乾燥器を用いてもよい。

乾燥器を用いる場合の乾燥温度と時間は 105 , 3~4 時間程度である。

<sup>\*8</sup> マイルストーン社製 MLS-1200 MEGA を用いる時の一例 350W 10 分 - 400W 20 分

浄する。ろ液及び洗液は 200ml ビーカーに受けネプツニウム分析用試料溶液とする。

#### 8.2.2 ネプツニウムの濃縮

8.2.1.1(6)又は 8.2.1.2(9)で得たネプツニウム分析用試料溶液について、3.2.2 と同様の操作を行い、ネプツニウム精製用試料溶液とする。

#### 8.2.3 固体抽出ディスクによる分離

8.2.2 で得たネプツニウム精製用試料溶液について 3.2.3 と同様の操作を行い、測定溶液とする。

#### 8.2.4 ネプツニウム 239 による回収率の計算

8.2.3 で得た測定溶液について、9.3 に従いゲルマニウム半導体検出器を用いてネプツニウム 239 の測定を行い、回収率を求める。<sup>\*9</sup>

#### 8.2.5 ネプツニウム 237 の定量

8.2.3 で得た測定溶液又は 8.2.4 でネプツニウム 239 を測定した後の測定試料溶液について、第 9 章に従い ICP-MS を用いてネプツニウム 237 の定量を行う。

---

<sup>\*9</sup> ネプツニウム 239 を回収率補正用トレーサーとして用いた場合に実施する。

## 第 9 章 ネプツニウム 237 の定量

一定量のプルトニウム 242 標準溶液又はネプツニウム 239 溶液を添加した試料について、ネプツニウムを化学分離後、硝酸溶液とした測定試料を ICP-MS で測定する。ネプツニウム 237 の定量方法は、使用する回収率補正用トレーサーにより、以下の 3 つの方法に分けられる。

プルトニウム 242 トレーサー法：ネプツニウム 237 を 9.1 に従って ICP-MS により定量する。質量数 / 電荷<sup>\*1</sup> (以下、「m/z」という。) が 237 の強度と 242 との強度の比<sup>\*2</sup>からネプツニウム 237 の量を定量するプルトニウム 242 トレーサー法で行う。なお、この方法では回収率を求める必要はない。

内標準法 (プルトニウム 242 を用いて回収率を補正する場合)：9.2 に従ってプルトニウム 242 の検量線を作成し、内標準法によりプルトニウム 242 を測定して回収率を求める。同様に、ネプツニウム 237 についても内標準法により定量する。

内標準法 (ネプツニウム 239 を用いて回収率を補正する場合)：9.3 に従い試料中のネプツニウム 239 からの線 (106keV 又は 278keV) を測定することによりネプツニウムの回収率を求めた後、ネプツニウム 237 を内標準法により定量する。

表 9.1 に回収率補正用トレーサーとネプツニウム 237 の放射能濃度及び回収率の求め方をまとめた。

表 9.1 回収率補正用トレーサーとネプツニウム 237 及び回収率の求め方

回収率補正用 トレーサー	<sup>242</sup> Pu		<sup>239</sup> Np
<sup>237</sup> Np の定量	ICP-MS <sup>242</sup> Pu トレーサー法	ICP-MS 内標準法 ( <sup>237</sup> Np 検量線を作成)	ICP-MS 内標準法 ( <sup>237</sup> Np 検量線を作成)
回収率	回収率を求める必要はない。	ICP-MS 内標準法 ( <sup>242</sup> Pu 検量線を作成)	線スペクトロメトリー 比較測定
対応する章番号	9.1(9.2)	9.2	9.3

<sup>\*1</sup> 通常の装置と条件では、+1 価 (Np<sup>+</sup>) を測定の対象とする。

<sup>\*2</sup> m/z が近いため、マスバイアスの違いは無視できる。

## 9.1 プルトニウム 242 トレーサー法

### 9.1.1 測定装置

ICP-MS (四重極型または二重収束型)<sup>\*3</sup>

超音波ネブライザー<sup>\*4</sup>

### 9.1.2 測定機器に関する注意

測定中の装置の停止を防ぎ、一度の測定で確実にデータを取得できる<sup>\*5</sup>よう、測定前に以下の事項を確認する。

- (1) 測定前には、サンプリングコーン及びスキマーコーンを洗浄しておく。<sup>\*6</sup>
- (2) 定期的に冷却水のチェック、補充を行う。<sup>\*7</sup>
- (3) 装置に付随するチューブ類は定期的に交換し、測定前に劣化した部分のないことを確認する。<sup>\*8</sup>
- (4) アルゴンガスの残量を把握する。<sup>\*9</sup>

### 9.1.3 測定操作

#### (1) 装置の起動

アルゴンガスのポンペを開き、冷却水循環装置、排気装置の電源を入れる。

プラズマを点灯し、安定していることを確認する。

超音波ネブライザーの電源を入れる。

ICP-MS が安定するまで約 30 分待つ。

#### (2) 測定条件の最適化

硝酸(1+13)を導入し、トーチまでの試料経路の洗浄を行う。<sup>\*10</sup>

チューニング溶液<sup>\*11</sup>を用いて感度調整、マス軸調整を行う。<sup>\*12</sup>

---

<sup>\*3</sup> 四重極型では横河アナリティカルシステムズ社製 Agilent7500、二重収束型ではサーモエレクトロン製 Finnigan ELEMENT2 等が市販されている。二重収束(高分解能)型を用いると、四重極型の約 5 倍の検出感度が得られる。

<sup>\*4</sup> CETAC 社製 U-5000AT<sup>+</sup>等が市販されている。

検出感度の点から、超音波ネブライザーを用いることを原則とする。標準装備されている同軸型ネブライザーの 50 倍程度の検出感度が得られる。

<sup>\*5</sup> 超音波ネブライザーを用いる場合には、導入量が約 2ml/分と大きいことから、再測定が事実上不可能となる。(3 回のくり返し測定を行うと約 15ml を消費する。)

<sup>\*6</sup> コーンが汚れていると感度が低下するとともに、安定したデータが得られなくなる。

<sup>\*7</sup> 冷却水循環装置の冷却水が蒸発等により不足していた場合、装置の十分な冷却が行えず、測定中に運転が停止する恐れがある。

<sup>\*8</sup> くり返しの使用に付随するチューブ類の劣化は、リークや脈流の原因となる。

<sup>\*9</sup> 7m<sup>3</sup>のポンペ一本で約 4.5 時間の運転が可能である。

(使用条件により多少異なる。)

<sup>\*10</sup> 試料溶液導入量は 2ml/分程度とする。

<sup>\*11</sup> 通常はイットリウムやタリウムの標準溶液(10ng/ml 程度)を用いる。

<sup>\*12</sup> この調整により感度(検出下限値など)が決まる。

### (3) 試料の測定

硝酸(1+13)を導入し、トーチまでの試料経路の洗浄を行う。

測定する m/z(237、242)<sup>\*13</sup>と分解能、測定時間、くり返し測定回数などの条件設定を行う。<sup>\*14</sup>

ネプツニウム 237 及びプルトニウム 242 を含む溶液<sup>\*15</sup>を導入し、再度、感度とマス軸調整を行う。

実際の測定と同じ時間モニター測定を行い、検出下限値が 10ppq(ネプツニウム 237 :  $2.6 \times 10^{-7}$  Bq/ml) 程度であることを確認する。

硝酸(1+13)を導入し、トーチまでの試料経路の洗浄を行う。

試料溶液を導入し、m/z 237 及び 242 の強度を求める。

#### 9.1.4 放射能濃度の計算

m/z 237 及び 242 の測定データからネプツニウム 237 放射能濃度を次式に従って計算する。

$$A = \frac{N_s \cdot D \cdot R}{N_{add} \cdot W} \cdot \frac{237}{242}$$

A : ネプツニウム 237 の放射能濃度(Bq/kg、Bq/L 等)

N<sub>s</sub> : ネプツニウム 237 の正味の計数率(cps)

N<sub>add</sub> : 試料中のプルトニウム 242 の正味の計数率(cps)

D : 添加したプルトニウム 242 の量(pg)

R : ネプツニウム 237 の重量(pg)から放射能(Bq)への換算係数( $2.6 \times 10^{-5}$ Bq/pg)

W : 供試量(kg、L 等)

ただし、降下物の分析において試料を分取した場合は、

W=1/(分取前の全量)とする。

なお、回収率を求めたい場合は、9.2.1 に準じてプルトニウム 242 を内標準法により定量し、プルトニウム 242 添加値と比較することにより回収率を求める。

<sup>\*13</sup> 内標準法でプルトニウム 242 の回収率を求める場合、又はネプツニウム 239 を用いた場合は、ネプツニウム 237 の定量方法が内標準法となる。従って、内標準に対応する m/z についても設定する。

<sup>\*14</sup> 測定条件設定の一例を表 9.2 に示す。

表 9.2 日本電子製 ICP-MS (二重収束型) JMS-PLASMAX2 の測定条件の一例

測定核種	m/z	印加電圧(V)	測定時間(秒)	くり返し測定回数(回)
<sup>237</sup> Np	237	2000	60	3
<sup>242</sup> Pu	242	2000	60	3

分解能 : 500

<sup>\*15</sup> ネプツニウム測定後の残溶液を利用できる。

## 9.2 内標準法（プルトニウム 242 を用いて回収率を補正する場合）

### 9.2.1 回収率の求め方

#### (1) プルトニウム標準溶液の調製方法

プルトニウム 242 0、10、50、100mBq を 50ml メスフラスコに分取する。

内標準としてタリウム標準溶液(0.625  $\mu$ g/ml)1ml を加える。

硝酸(1+13)を加えて定容し、ICP-MS 測定標準溶液とする。

#### (2) 測定操作

m/z 242 (プルトニウム 242) 及び内標準である 205 (タリウム) の強度を求める。

標準溶液のプルトニウム 242 について、プルトニウム濃度と内標準との強度比をプロットし、検量線を作成する。

測定溶液のプルトニウム 242 と内標準との強度比から、プルトニウム濃度を求める。

プルトニウム濃度に溶液量に乗じてプルトニウム 242 量を求め、添加値との比から回収率を求める。

### 9.2.2 ネプツニウム 237 の定量

プルトニウム 242 を用いて内標準法で回収率を補正する場合、ネプツニウム 237 は内標準法を用いて定量する。この場合、以下に従って、ネプツニウム 237 検量線を作成し、ネプツニウム 237 を求める。

#### (1) ネプツニウム 237 標準溶液の調製法

ネプツニウム 237 0、10、50、100mBq を 50ml メスフラスコに分取する。

内標準としてタリウム標準溶液(0.625  $\mu$ g/ml)1ml を加える。

硝酸(1+13)を加えて定容し、ICP-MS 測定標準溶液とする。

#### (2) ネプツニウム 237 の定量

9.2.1(2)と同様に、ネプツニウム 237 と内標準の強度比を求める。

標準溶液のネプツニウム 237 について、ネプツニウム 237 と内標準との強度比をプロットし、検量線を作成する。

試料溶液のネプツニウム 237 と内標準との強度比からネプツニウム 237 濃度を求める。

溶液量に乗じてネプツニウム 237 量を求める。

このネプツニウム 237 量(pg)を回収率及び分析供試量で除し、ネプツニウム 237 の重量から放射能への換算係数を乗じて、試料中のネプツニウム 237 放射能濃度(Bq/kg 等)を算出する。

$$A = \frac{C \times V \times R}{Y \times W}$$

- A : ネプツニウム 237 の放射能濃度(Bq/kg、Bq/L 等)  
C : で求めたネプツニウム 237 の濃度(pg/ml)  
V : 定容した溶液の量(ml)  
Y : 9.2.1 で求めた回収率  
R : ネプツニウム 237 の重量(pg)から放射能(Bq)への換算係数( $2.6 \times 10^{-5}$ Bq/pg)  
W : 供試量(kg、L 等)

ただし、降下物の分析において試料を分取した場合は、  
 $W=1/(\text{分取前の全量})$ とする。

### 9.3 内標準法 (ネプツニウム 239 を用いて回収率を補正する場合)

#### 9.3.1 回収率の求め方

試料中のネプツニウム 239 からの 線(106keV 又は 278keV)を測定することによりネプツニウムの回収率を求める。

#### (1) 試薬・器具・装置

試薬 ネプツニウム 239 溶液

器具 天秤 (秤量範囲 0 ~ 100g、読みとり限度 0.1mg 以下)

測定容器 (U-8 容器等)

装置 n 型ゲルマニウム半導体検出器あるいは低エネルギー光子スペクトロメータ(以下 LEPS<sup>\*16</sup>と記す)

#### (2) 比較用線源の調製

ネプツニウム 239 の 線(106keV 又は 278keV)の測定からネプツニウムの回収率を求めるために、回収率の基準となるネプツニウム 239 比較用線源を調製する。

測定容器の空重量を測定する。

試料に添加したネプツニウム 239 溶液から、一定量のネプツニウム 239 溶液を分取する。

測定容器の重量を測定する。

水を加えて全量を 20ml とする。

---

<sup>\*16</sup> Low Energy Photon Spectrometer の略語。



ネプツニウム 239 比較用線源及び測定試料を、およそ 0.1keV/ch に設定した n 型ゲルマニウム半導体検出器あるいは Ge-LEPS によりネプツニウム 239 の線 (エネルギー 106keV 又は 278keV) を測定する。

ネプツニウム 239 比較用線源を測定して得られたスペクトルを用いて、対象とする線 (106keV 又は 278keV) のピーク領域とベースライン領域を設定し、ピーク面積を求める。試料のピーク領域とベースライン領域は、ネプツニウム 239 比較用線源と同一のチャンネルとする。ただし、ベースライン領域に他のピークが見られる時は、そこを避けて、ベースライン領域を設定する。<sup>\*17</sup>

$$Y = \frac{N \cdot \exp\left(-0.693 \cdot \frac{T}{2.357 \times 24}\right)}{N_{\text{STD}}}$$

Y : 回収率

N : 分析試料の測定におけるネプツニウム 239 ピーク領域の正味計数率

$N_{\text{STD}}$  : ネプツニウム 239 比較用線源の測定におけるネプツニウム 239 ピーク領域の正味計数率

T : ネプツニウム 239 比較用線源の測定時刻から分析試料の測定時刻までの経過時間(時間)

### 9.3.2 ネプツニウム 237 の定量

ネプツニウム 239 を用いた場合、ネプツニウム 237 は内標準法を用いて定量する。これらの場合は、以下に従って、ネプツニウム 237 検量線を作成し、ネプツニウム 237 を求める。

- (1) 9.2.2 と同様に、ネプツニウム 237 と内標準の強度比を求める。
- (2) 標準溶液のネプツニウム 237 について、横軸にネプツニウム 237 濃度(pg/ml)、縦軸に強度比をプロットして検量線を作成する。
- (3) 試料溶液のネプツニウム 237 についての強度比からネプツニウム 237 濃度を読み取り、溶液量を乗じてネプツニウム 237 量(pg)を求める。
- (4) 9.2 で求めた回収率及び分析供試量で除し、ネプツニウム 237 の重量から放射能への換算係数を乗じて、試料中のネプツニウム 237 濃度(pg/kg)を算出する。

$$A = \frac{C \times V \times R}{Y \times W}$$

<sup>\*17</sup> 詳細については、文部科学省放射能測定法シリーズ 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)を参照のこと。

- A : ネプツニウム 237 の放射能濃度(Bq/kg、Bq/L 等)
- C : (3)で求めたネプツニウム 237 の濃度(pg/ml)
- V : 定容した溶液の量(ml)
- Y : 9.3.1 で求めた回収率
- R : ネプツニウム 237 の重量(pg)から放射能(Bq)への換算係数( $2.6 \times 10^{-5}$ Bq/pg)
- W : 供試量(kg、L 等)
- ただし、降下物の分析において試料を分取した場合は、  
W=1/(分取前の全量)とする。

解

說



## 解説 A ネプツニウム 239 トレーサー溶液の調製法

回収率補正用トレーサーとして用いるネプツニウム 239 は、アメリシウム 243 からミルキングして調製する。なお、ネプツニウム 239 の半減期は 2.357 日と短いため、使用の都度調製する。

また、ミルキングしたネプツニウム 239 の正確な放射能濃度を求めることは困難である。従って、ネプツニウム 239 を使用して回収率を求める場合、9.3.1 に従い試料に添加したネプツニウム 239 溶液から比較用線源を調製し、比較用線源と試料中のネプツニウム 239 の計数率から回収率を求める。

A.1 に示したアメリシウム 243 電着線源からの 反跳を利用したネプツニウム 239 溶液の調製法は、アメリシウム 243 電着線源等の準備が必要であるが、短時間でネプツニウム 239 溶液を調製することができる。A.2 に示したアメリシウム 243 溶液からのネプツニウム 239 溶液の調製は、特別の準備は必要が無いが、A.1 に示した方法と比較してネプツニウム 239 溶液の調製に時間がかかる。

### 1. アメリシウム 243 電着線源からの 反跳を利用したネプツニウム 239 溶液の調製法

- (1) アメリシウム 243 の電着線源(1,000Bq 程度)を用意する。<sup>\*1</sup>
- (2) 電着線源の電着面とコレクターが触れないように、厚さ 0.5mm 程度のスペーサー<sup>\*2</sup>をはさみ、コレクター、スペーサー及び電着線源を密着させる。
- (3) 真空容器内に入れ、2 週間以上放置する。
- (4) ネプツニウム 239 の除去率を高めるため<sup>\*3</sup>、取り出したコレクターを 700 ℃ で 30 分間加熱する。
- (5) コレクターを室温まで冷却し、テフロンビーカー中で、フッ化水素酸(1+1)で 30 分間浸漬する。
- (6) コレクターを取り出し、得られたフッ化水素酸(1+1)をネプツニウム 239 溶液とする。

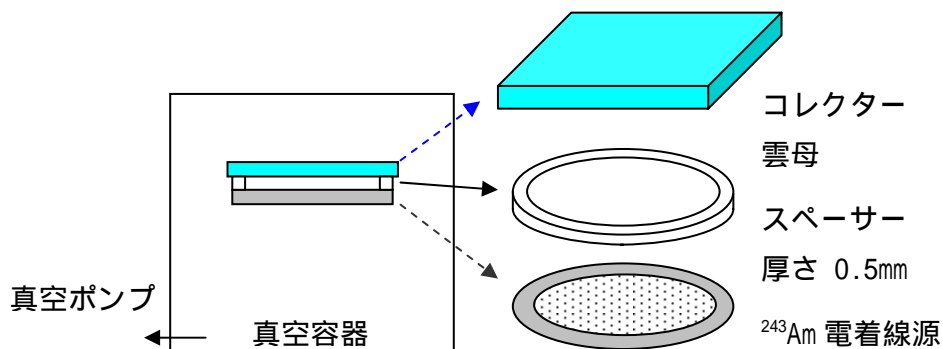


図 A.1 反跳を利用したネプツニウム 239 調製法

<sup>\*1</sup> アメリシウム 243 の電着線源の調製方法は、文部科学省放射能測定法シリーズ 21「アメリシウム分析法」(平成 2 年) 参照のこと。

<sup>\*2</sup> 電着面の有効面積が大きくなるように、スペーサーに穴をあけておく。

<sup>\*3</sup> T. Hashimoto et al., Nucl. Instr. Meth., 178, 437-442(1980)

## 2. アメリシウム 243 溶液からのネプツニウム 239 溶液の調製

- (1) アメリシウム 243 溶液(1,000Bq 程度)をビーカー中で乾固する。
- (2) 10M 塩酸 20ml を加え、溶解する。
- (3) ヨウ化アンモニウム 0.5g を加え、緩やかに加熱する。
- (4) 30 分間放冷する
- (5) 陰イオン交換樹脂カラム<sup>\*4</sup>に流す。流出液は母液として保存する。
- (6) 10M 塩酸 40ml を陰イオン交換樹脂カラムに流す。流出液は(5)の母液と合わせて保存する。
- (7) 4M 塩酸-0.1M フッ化水素酸混合溶液 200ml を流す。流出液は 250ml のテフロンビーカーに受ける。
- (8) 流出液をホットプレート上で乾固する。
- (9) 乾固物に 10M 塩酸 50ml を加え、ホットプレート上で緩やかに加温する。
- (10) 放冷し、ネプツニウム 239 溶液とする。

---

<sup>\*4</sup> 陰イオン交換樹脂(Dowex1×8)を 2ml 詰めたものを使用する。

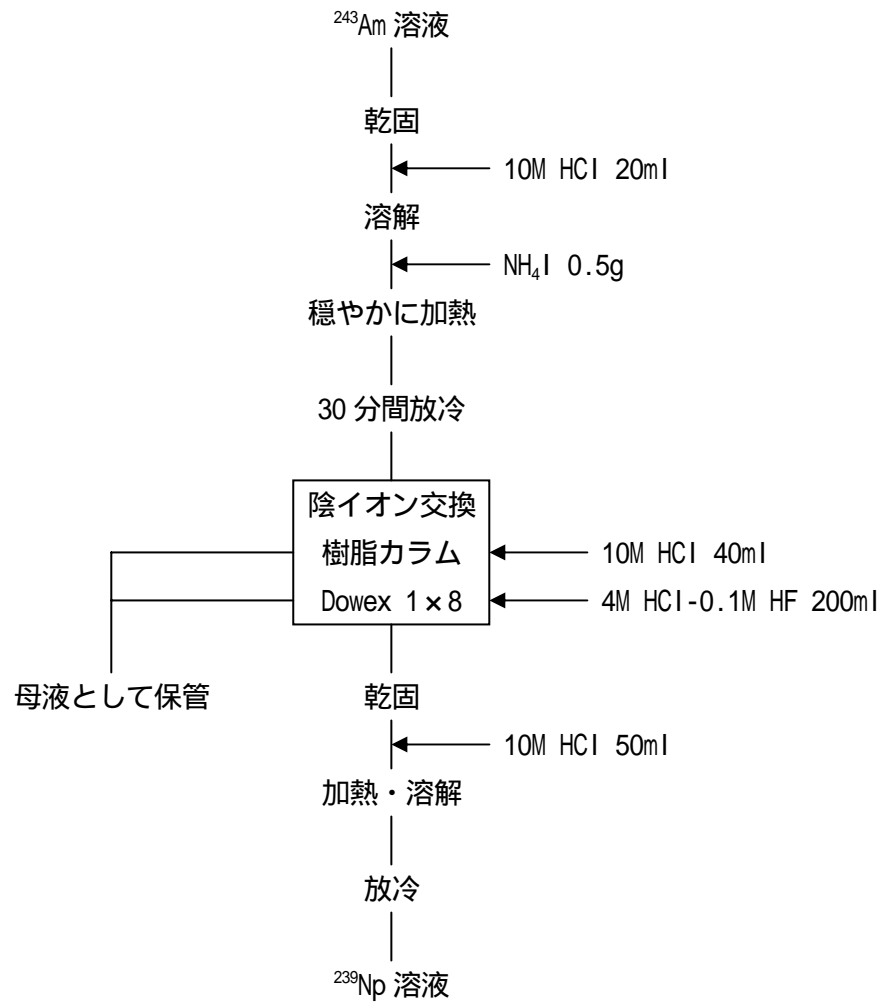


図 A.2 アメリシウム 243 溶液からのネプツニウム 239 溶液調製法の流れ図

## 解説 B ピロ亜硫酸カリウム（還元剤）の添加量の影響

### 1. 目的

本法では、ピロ亜硫酸カリウムによりネプツニウムを+4 価、プルトニウムを+3 価に還元して水酸化鉄( )と共沈し、沈殿を 8M 硝酸に溶解することによって、ネプツニウムとプルトニウムを+4 価に調整している。このようにして+4 価に調整したネプツニウムとプルトニウムは陰イオン交換樹脂カラムや固相抽出ディスク上で同様の挙動をとることを利用して、試料溶液からネプツニウムとプルトニウムを分離・精製している。

ここでは、ネプツニウム及びプルトニウムを還元のために添加しているピロ亜硫酸カリウムの添加量について検討した。

### 2. 検討方法

ネプツニウム 237(0.025Bq)、プルトニウム 242(0.05Bq)及び鉄担体(30mg)を加えた 0.5M 塩酸試料溶液を調製し、ピロ亜硫酸カリウムを 0.1~5g 添加して 20 分間かくはんした。水酸化ナトリウムを加えて水酸化鉄( )を沈殿させ、ネプツニウム及びプルトニウムを共沈した。共沈物を 8M 硝酸溶液に溶解し、固相抽出ディスクによる分離・精製を行った。固相抽出ディスクより溶離したネプツニウム 237 及びプルトニウム 242 を ICP-MS (二重収束型)により定量した。なお、測定には日本電子製 JMS-PLASMAX2 及び CETAC 社製 U-5000AT<sup>+</sup> 超音波ネブライザーを使用した。測定時の条件を表 B.1 に示す。

表 B.1 ICP-MS (二重収束型) 測定条件

高周波出力	1.2kW
プラズマガス流量	14L/分
補助ガス流量	0.3L/分
ネブライザーガス流量	1.0L/分
質量分析部	
加速電圧	6.0kV
分解比 (M/ M)	500
データ取得	
測定質量 (m/z)	237( <sup>237</sup> Np), 242( <sup>242</sup> Pu)
計測時間(積分時間)	6,000ms/チャンネル
掃引回数	10
くり返し回数	3
超音波ネブライザー	
溶液吸引量	1.2ml/分
ヒーター温度	140
コンデンサー温度	2



### 3. 結果と考察

結果を表 B.2 に示す。

表 B.2 ピロ亜硫酸カリウム添加量とネプツニウム及びプルトニウムの回収率

ピロ亜硫酸カリウム添加量(g)	$^{237}\text{Np}$ 回収率(%)	$^{242}\text{Pu}$ 回収率(%)
0.1	86	81
0.5	96	95
1.0	101	101
2.0	98	99
5.0	98	98

これより、試料溶液に 1.0g 以上のピロ亜硫酸カリウムを添加すれば、ネプツニウムとプルトニウムは還元 - 固相抽出ディスクによる分離・精製を行って、定量的に回収できることがわかった。この結果より、本法ではネプツニウムの還元使用するピロ亜硫酸カリウムの添加量を 1.0g とした。

## 解説 C 水酸化鉄( )共沈時の pH の影響

### 1. 目的

固相抽出ディスクによる分析では、ピロ亜硫酸カリウムで価数を調整したネプツニウム及びプルトニウムを水酸化鉄( )に共沈させている。共沈物を 8M 硝酸で溶解することによってネプツニウム及びプルトニウムを+4 価に調整し、固相抽出ディスクによる分離・精製する溶液としている。

ここではピロ亜硫酸カリウムにより還元したネプツニウム及びプルトニウムを水酸化鉄( )に共沈する際の pH と固相抽出ディスクによる分離・精製後のネプツニウム及びプルトニウムの回収率について検討を行った。

### 2. 方法

ネプツニウム 237(0.025Bq)、プルトニウム 242(0.05Bq)及び鉄担体(30mg)を加えた 0.5M 塩酸試料溶液を調製し、ピロ亜硫酸カリウムを 1g 添加して 20 分間かくはんした。水酸化ナトリウムを加えて pH5~9 として水酸化鉄( )を沈殿させ、ネプツニウム及びプルトニウムを共沈した。共沈物を 8M 硝酸溶液に溶解し、固相抽出ディスクによる分離・精製を行った。固相抽出ディスクより溶離したネプツニウム 237 及びプルトニウム 242 を HR-ICP-MS により定量した。

### 3. 結果と考察

結果を表 C.1 に示す。

表 C.1 水酸化鉄共沈時の pH とネプツニウム及びプルトニウムの回収率

共沈時の pH	<sup>237</sup> Np 回収率 (%)	<sup>242</sup> Pu 回収率 (%)
5	88	84
7	97	100
9	98	99

これより、ネプツニウム及びプルトニウムは pH5 で水酸化鉄に共沈した場合は 12~16%の若干の損失があるが、pH7 以上では 97%以上の定量な回収率が得られた。この結果より、ネプツニウム及びプルトニウムを水酸化鉄に共沈する際の pH を 7 以上とすることとした。

## 解説 D 固相抽出ディスクへの通液速度の影響

### 1. 目的

固相抽出ディスクによる分離は、試料溶液、洗浄液、溶離液を通過することによって行われる。今回使用した固相抽出ディスクの供給元の 3M によると、固相抽出ディスクへの通液速度について、試料溶液、すなわち目的成分の捕集(抽出)時は 50ml/分程度、目的成分の溶離時の溶離液は通液速度を遅くすることを推奨している。そこで、固相抽出ディスクへの捕集する際の試料溶液の通液速度と溶離液の通液速度を変化させ、ネプツニウムとプルトニウムの回収率を調べた。

### 2. 方法

ネプツニウム 237(0.025Bq)、プルトニウム 242(0.05Bq)及び鉄担体(30mg)を加えた 0.5M 塩酸試料溶液を調製し、ピロ亜硫酸カリウムを 1g 添加して 20 分間かくはんした。水酸化ナトリウムを加えて pH7 以上として水酸化鉄( )を沈殿させ、ネプツニウム及びプルトニウムを共沈した。共沈物を 8M 硝酸溶液に溶解し、固相抽出ディスクによる分離・精製を行った。

試料溶液の通液速度は推奨されている 50ml/分と、通液速度を速めた 200ml/分とした。通液速度を遅くすることを推奨されている溶離液については、試料溶液の標準通液速度である 50ml/分と通液速度を遅くした 10ml/分とした。得られた溶離液中のネプツニウム 237 及びプルトニウム 242 を ICP-MS により定量した。

### 3. 結果と考察

結果を表 D.1 に示す。溶離液を 10ml/分の低速で通液した場合、ネプツニウム及びプルトニウムの回収率は 95%以上であった。しかし、溶離液を試料溶液の標準通液速度である 50ml/分で通液した場合、ネプツニウム及びプルトニウムの回収率は低くなった。これから、固相抽出ディスクによる捕集は通液速度を早めても定量的に行われるが、ディスクからの溶離については溶離液の通液速度を遅くしなければならないことがわかった。また、10ml/分で通液して溶離した場合、ネプツニウム及びプルトニウムはいずれも定量的に回収され、プルトニウムをネプツニウム 237 分析の回収率補正用トレーサーとして使用できることが確認できた。

この結果より、本法では固相抽出ディスクへの試料溶液の通液速度は 200ml/分程度の高速で通液し、溶離液は 10ml/分の低速で通液することとした。

表 D.1 試料溶液及び溶離液の通液速度とネプツニウム及びプルトニウムの回収率

試料溶液通液速度 (ml/分)	溶離液通液速度 (ml/分)	<sup>237</sup> Np 回収率(%)	<sup>242</sup> Pu 回収率(%)
200	10	97	95
50	10	100	96
200	50	79	87
50	50	82	75

## 解説 E 溶離液組成の回収率への影響

### 解説 E-1 溶離液組成の回収率への影響

#### 1. 目的

固相抽出ディスクによる分離・精製は、陰イオン交換が分離・精製の基礎となっている。そのため、ディスクに吸着させる際の酸濃度及び洗浄液の酸濃度は、陰イオン交換樹脂カラムを用いた場合とほぼ同様である。しかし、溶離液については、ディスクについては硝酸 - アスコルビン酸混合溶液、カラムでは塩酸 - 塩酸ヒドロキシルアミン - 塩化ナトリウム混合溶液を用いている。また、カラムによる分離・精製法を採用している文部科学省放射能測定法シリーズ 22「プルトニウム・アメリシウム逐次分析法」では塩酸 - ヨウ化アンモニウム混合溶液を採用している。これらを考慮して、3 種の溶離液を用いた場合の、ネプツニウム及びプルトニウムの回収率について検討を行った。

#### 2. 方法

ネプツニウム 237(0.025Bq)、プルトニウム 242(0.05Bq)及び鉄担体(30mg)を加えた 0.5M 塩酸試料溶液を調製し、ピロ亜硫酸カリウムを 1g 添加して 20 分間かくはんした。水酸化ナトリウムを加えて pH7 以上として水酸化鉄( )を沈殿させ、ネプツニウム及びプルトニウムを共沈した。共沈物を 8M 硝酸溶液に溶解し、固相抽出ディスクによる分離・精製を行った。固相抽出ディスクからのネプツニウム及びプルトニウムの溶離液として、硝酸 - アスコルビン酸混合溶液、塩酸 - 塩酸ヒドロキシルアミン - 塩化ナトリウム混合溶液及び塩酸 - ヨウ化アンモニウム混合溶液を検討した。

#### 3. 結果

結果を表 E.1 に示す。これより、いずれの溶離液を用いても、ネプツニウム及びプルトニウムは定量的に溶離できることがわかった。しかし、溶離後の ICP-MS による測定を考慮すると、塩酸 - 塩酸ヒドロキシルアミン - 塩化ナトリウム混合溶液は、塩化ナトリウムにより塩濃度が高くなるため、溶離液としてはあまり適切ではない。残る二つの溶離液に含まれるアスコルビン酸とヨウ化アンモニウムの分解の容易さを考慮して、本法では溶離液として塩酸 - ヨウ化アンモニウム混合溶液と採用することにした。

表 E.1 ディスク法における溶離液とネプツニウム及びプルトニウムの回収率

溶離液	<sup>237</sup> Np 回収率 (%)	<sup>242</sup> Pu 回収率 (%)
硝酸 - アスコルビン酸混合溶液 <sup>*1</sup>	98	99
塩酸 - 塩酸ヒドロキシルアミン - 塩化ナトリウム混合溶液 <sup>*2</sup>	103	96
塩酸 - ヨウ化アンモニウム混合溶液 <sup>*3</sup>	95	100

<sup>\*1</sup> Miura et al. (2001)

<sup>\*2</sup> Chen et al. (2002)

<sup>\*3</sup> 文部科学省放射能測定法シリーズ 12「プルトニウム分析法」(1990 年改訂)

## 解説 E-2 固相抽出ディスクからのネプツニウム及びプルトニウムの溶離曲線

### 1. 目的

固相抽出ディスクに捕集されたネプツニウム及びプルトニウムの溶離挙動について検討した。

### 2. 方法

ネプツニウム 237(0.025Bq)、プルトニウム 242(0.05Bq)及び鉄担体(30mg)を加えた 0.5M 塩酸試料溶液を調製し、ピロ亜硫酸カリウムを 1g 添加して 20 分間かくはんした。水酸化ナトリウムを加えて pH7 以上として水酸化鉄( )を沈殿させ、ネプツニウム及びプルトニウムを共沈した。共沈物を 8M 硝酸溶液に溶解し、固相抽出ディスクによる分離・精製を行った。固相抽出ディスク溶離液として塩酸 - ヨウ化アンモニウム混合溶液 5ml を 5 回、合計 25ml 使用し、各フラクション中のネプツニウム及びプルトニウムを ICP-MS で定量した。

### 3. 結果

溶離挙動の結果を図 E.1 に示す。ネプツニウム 237 及びプルトニウム 242 は塩酸 - ヨウ化アンモニウム混合溶液 5ml を 3 回、15ml の溶離液で 95%以上の定量的な回収ができることがわかった。これより、溶離液は塩酸 - ヨウ化アンモニウム混合溶液 5ml × 3 回(15ml)とすることとした。

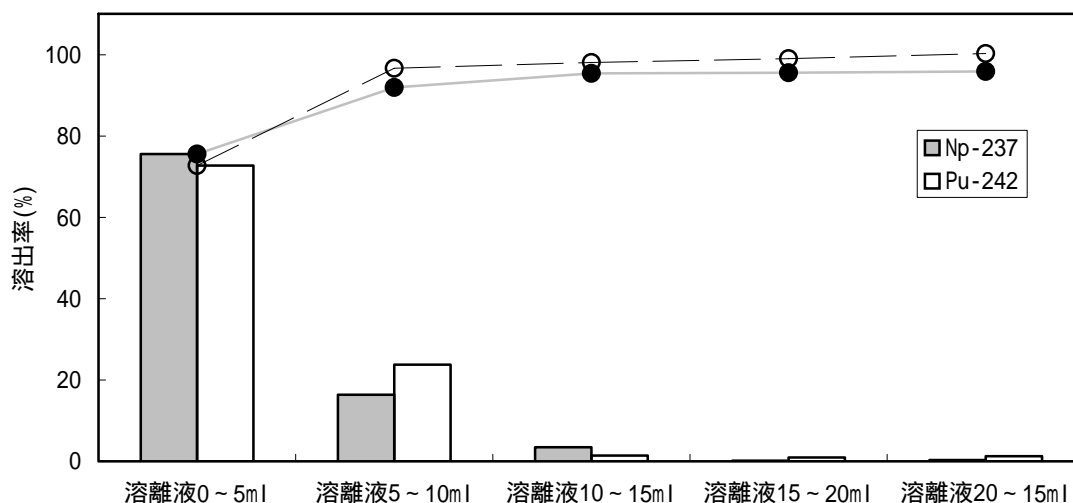


図 E.1 固相抽出ディスクからのネプツニウム 237 とプルトニウム 242 の溶離挙動

## 解説 F 環境試料を用いた添加回収試験結果

### 1. 目的

作成したネプツニウム 237 分析法の実際の環境試料への適用性を確認するため、大気浮遊じん、土壌、降下物、飲料水、葉菜及び牛乳の試料について、ネプツニウム 237 の添加回収試験を行った。

ネプツニウム 237(0.025Bq)、プルトニウム 242(0.05Bq)及び鉄担体(30mg)を加えた 0.5M 塩酸試料溶液を調製し、ピロ亜硫酸カリウムを 1g 添加して 20 分間かくはんした。水酸化ナトリウムを加えて pH7 以上として水酸化鉄( )を沈殿させ、ネプツニウム及びプルトニウムを共沈した。共沈物を 8M 硝酸溶液に溶解し、固相抽出ディスクによる分離・精製を行った。溶離液として塩酸 - ヨウ化アンモニウム混合溶液 5ml を 5 回、合計 25ml 使用し、各フラクション中のネプツニウム 237 及びプルトニウム 242 を ICP-MS で定量した。

### 2. 方法

大気浮遊じん、土壌、降下物、飲料水、葉菜及び牛乳の各試料をマイクロウェーブ分解装置等を利用して前処理を行い、硝酸抽出等によって試料溶液を調製した。この溶液を、条件を決定したネプツニウム 237 分析法に従って分析を行った。

各試料にネプツニウム 237(0.025Bq)を添加してマイクロウェーブ分解装置等を利用して前処理を行い、硝酸によりネプツニウムを抽出した。試料溶液を 0.5M 塩酸溶液とし、そこに回収率補正用のプルトニウム 242(0.05Bq)及び鉄担体(30mg)を加えた。ピロ亜硫酸カリウムを 1g 添加して 20 分間かくはんした。水酸化ナトリウムを加えて pH7 以上として水酸化鉄( )を沈殿させ、ネプツニウム及びプルトニウムを共沈した。共沈物を 8M 硝酸溶液に溶解し、固相抽出ディスクによる分離・精製を行った。塩酸 - ヨウ化アンモニウム混合溶液 15ml でネプツニウム 237 及びプルトニウム 242 を溶離して ICP-MS により定量した。

### 3. 結果

ネプツニウム 237 添加回収試験の結果を表 F.1 に示す。いずれの試料についてもネプツニウム 237 及びプルトニウム 242 の回収率は 80%以上であった。また、ネプツニウム 237 及びプルトニウムの回収率に差はなく、両核種は同様の挙動をしていた。さらに、標準物質 NIST SRM 4357 (Ocean Sediment powder) について分析を行った結果を表 F.2 に示す。SRM 4357 については約 80%の回収率が得られたが、含まれるネプツニウム 237 濃度が低く、定量値を得ることはできなかった。

表 F.1 ネプツニウム 237 添加回収試験の結果

試料	<sup>237</sup> Np 回収率(%)	<sup>242</sup> Pu 回収率(%)
土壌	81	82
飲料水	92	92
葉菜(ほうれん草)	87	85
葉菜(キャベツ)	93	90
牛乳	84	89

表 F.2 NIST SRM 4357 分析結果

試料	<sup>237</sup> Np (mBq/g)	<sup>242</sup> Pu 回収率(%)
NIST SRM 4357 - 1	0.012 ± 0.020	81
NIST SRM 4357 - 2	0.005 ± 0.013	86
NIST SRM 4357 - 3	0.003 ± 0.011	78
参考値	0.007(0.004 ~ 0.009)	-



## 解説 G クロスチェック結果

### 1. クロスチェック配付試料とその調製方法

試料 : 土壌抽出液  
前処理 : 福井県奥越高原で採取した表層土壌をネプツニウム 237 分析法に従って酸抽出し、ネプツニウム 237 をスパイクしたもの。  
配付試料 : 酸抽出液 (乾土 10g 相当) をテフロンバイアル 5 つに分取したもの。  
ネプツニウム 237 添加値 : 10.7mBq/試料 (乾土 10g 相当酸抽出液)

試料 : 葉菜灰化物  
前処理 : 葉菜をネプツニウム 237 分析法に従って灰化し、ネプツニウム 237 をスパイクしたもの。  
配付試料 : 葉菜試料灰化物 (生 500g 相当) をガラスバイアルに分取したもの。  
ネプツニウム 237 添加値 : 10.7mBq/試料 (生 100g 相当灰)

### 2. 参加機関

核燃料サイクル開発機構、財団法人 日本分析センター

### 3. 装置及び測定条件

参加機関が用いた ICP-MS 及び測定条件を表 G.1 に示す。

表 G.1 ICP-MS 及び測定条件

分析機関	A	B
装置	JEOL 製 JMS-PLASMAX2	横河アナリティカルシステムズ製 PMS-2000
超音波ネブライザー	CETEC 製 U-T5000AT+	-
分解能 (amu <sup>-1</sup> )	500	-
積算時間 (秒)	60	60
測定回数 (回)	3	3

#### 4. クロスチェック結果

結果を表 G.2 に示す。

表 G.2 クロスチェック結果

試料	供試量	分析機関	トレーサー	回収率 (%)	<sup>237</sup> Np	単位		
土壌	10g 乾土	A	<sup>242</sup> Pu	73	9.7 ± 0.13	*1		
				80	11 ± 0.2	*1		
				74	10 ± 0.2	*1		
				81	10 ± 0.5	*2		
				76	10 ± 0.5	*2		
		B	<sup>242</sup> Pu	89	10 ± 0.5	*2		
				73	11 ± 0.5	*1		
				70	11 ± 0.5	*1		
				67	11 ± 0.5	*1		
				80	11 ± 0.2	*1		
葉菜	100g 生	A	<sup>242</sup> Pu	82	9.4 ± 0.14	*1		
				88	11 ± 0.2	*1		
				86	11 ± 0.5	*1		
				B	<sup>242</sup> Pu	72	11 ± 0.4	*1
						65	11 ± 0.5	*1
NIST	50g	A	<sup>242</sup> Pu	73	0.0081 ± 0.0024	*1		
SRM	50g			71	0.0061 ± 0.0026	*1		
4357 <sup>*3</sup>	50g			82	0.0084 ± 0.0028	*1		

\*1 ICP-MS による定量、分析結果の誤差は3回のくり返し測定における標準偏差である。

\*2 線スペクトロメトリーによる定量、分析結果の誤差は計数誤差である。

\*3 NIST SRM 4357 Ocean Sediment Environmental Radioactivity Standard

<sup>237</sup>Np 0.007mBq/g (0.004 ~ 0.009 mBq/g)

## 解説 H 環境中のネプツニウム 237 濃度レベルについて

現在一般環境中で検出されるネプツニウム 237 は、もともと天然に微量存在していることが確認されているものもあるが、そのほとんど全てが人工的なものである。すなわち大気圏核実験からのフォールアウトによる地球規模的汚染によるものであり、核実験あるいは原子炉内で  $^{238}\text{U}(n,2n)$  反応及び  $^{235}\text{U}(n, \quad)$  反応で生成するウラン 237 の  $\alpha$  壊変、又はアメリシウム 241 の  $\alpha$  壊変で生ずる。核実験によるネプツニウム 237 の環境への放出は約 52TBq と見積られ、プルトニウム 239,240 との放射能比で  $3 \times 10^{-3} \sim 4 \times 10^{-3}$  である。

ネプツニウム 237 等の 1988 年現在の全存在量は表 H-1 のように推定されており、存在量ではプルトニウム 239、ネプツニウム 237、そしてプルトニウム 240 が多い。しかし、放射能強度で見るとそれぞれの核種の半減期とも関係してその順は、 $^{241}\text{Pu} > ^{239}\text{Pu} > ^{240}\text{Pu} > ^{241}\text{Am} > ^{238}\text{Pu} > ^{99}\text{Tc} > ^{237}\text{Np} > ^{129}\text{I}$  となり、最も多いプルトニウム 241 放射能強度にくらべネプツニウム 237 は約  $10^3$  分の一である。

これら核種の一般環境レベルについて水田土壌を例にとって図 H.1 に示す。また、ネプツニウム 237 のみならず他の核種も含め、種々の汚染源からの超ウラン元素諸核種の放射能比を比較したものを図 H.2 に示す。

表 H.1 1988 年現在の環境中長寿命核種の推定全存在量

核種	存在量		放射能比
	(kg)	(TBq)	
$^{99}\text{Tc}$	270	170	$1 \times 10^{-2}$
$^{129}\text{I}$	57	0.4	$3 \times 10^{-5}$
$^{237}\text{Np}$	2000	52	$4 \times 10^{-3}$
$^{238}\text{Pu}^{*1}$	1.4	890	$7 \times 10^{-2}$ $(3 \times 10^{-2})^{*2}$
$^{239}\text{Pu}$	3400	7700	} 1
$^{240}\text{Pu}$	680	5700	
$^{241}\text{Pu}$	14	52000	4
$^{241}\text{Am}$	32	4100	$3 \times 10^{-1}$

\*1 核実験によるもの (8kCi) 及び SNAP-9A 衛星事故 (16kCi) より算出

\*2 北半球での評価

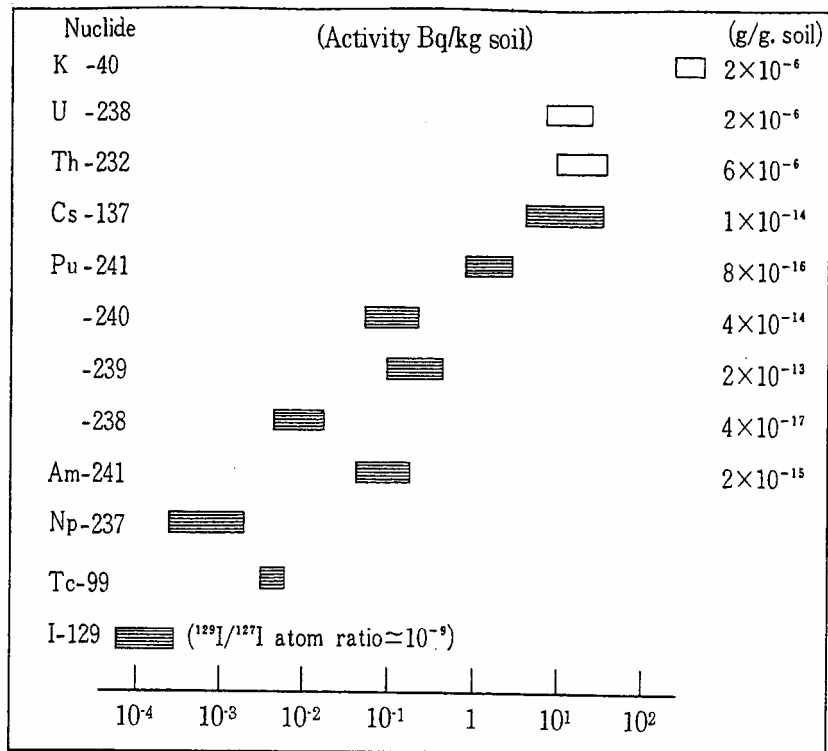


図 H.1 日本における水田土壌中のフォールアウト核種の放射能レベル

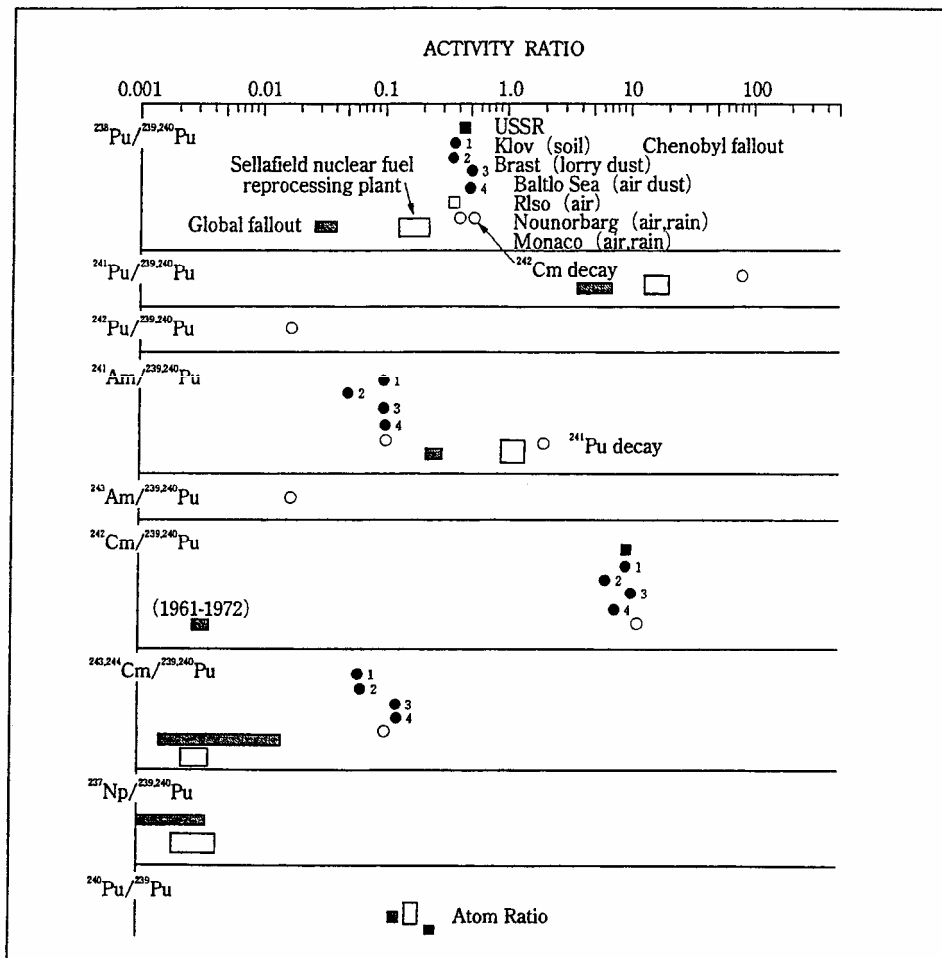


図 H.2 種々の汚染源からの超ウラン元素緒核種の放射能比の比較

付 録



付録1 主なネプツニウム同位体の核データ

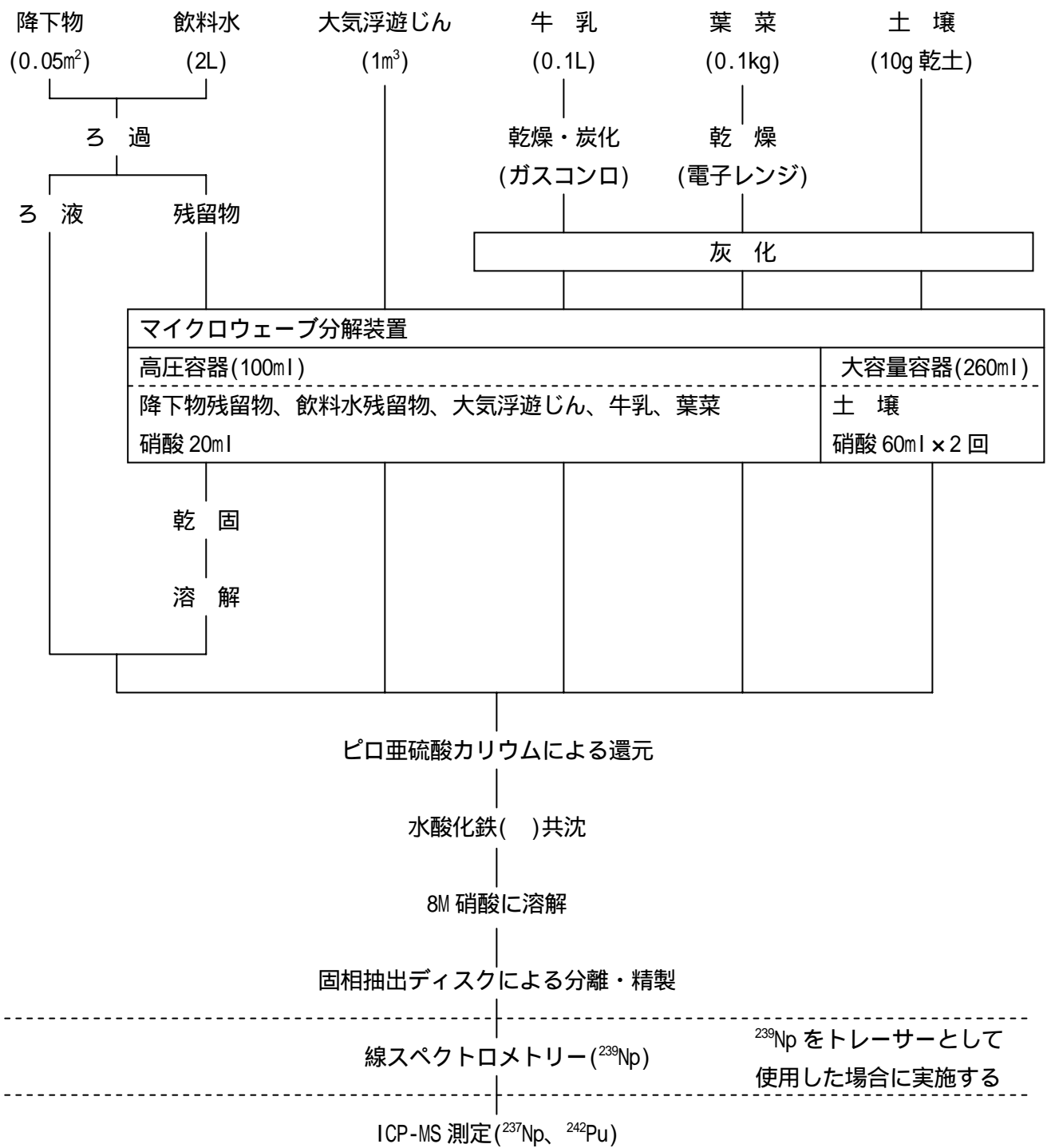
核種	半減期	壊変形式	主な放射線の種類 エネルギー・放出率 MeV(%)	主な生成反応
$^{231}\text{Np}$	48.8m	EC < 99% > 1%	6.29	$^{233}\text{U}(\text{d}, 4\text{n})$
$^{232}\text{Np}$	14.7m	EC ~ 100% + < 0.3%		$^{233}\text{U}(\text{d}, 3\text{n})$
$^{233}\text{Np}$	36.2m	EC ~ 100% ~ 0.001%	5.53	$^{233}\text{U}(\text{d}, 2\text{n})$ $^{234}\text{U}(\text{d}, 3\text{n})$
$^{234}\text{Np}$	4.4d	EC ~ 100% + 0.046%	+ 0.790(0.046)	$^{233}\text{U}(\text{d}, \text{n})$ $^{235}\text{U}(\text{d}, 3\text{n})$ $^{235}\text{U}(\text{p}, 2\text{n})$ $^{235}\text{U}(\text{ , p}2\text{n})$ $^{234}\text{U}(\text{d}, 2\text{n})$
$^{235}\text{Np}$	396d	EC ~ 100% 0.0014%	5.022(0.0007)	$^{236}\text{U}(\text{d}, 3\text{n})$ $^{235}\text{U}(\text{d}, 2\text{n})$ $^{235}\text{Pu}$
$^{236}\text{Np}$	22.5h	EC 52% - 48%	- 0.492(8.3) 0.537(39.7)	$^{235}\text{U}(\text{d}, \text{n})$ $^{236}\text{U}(\text{d}, 2\text{n})$ $^{238}\text{U}(\text{d}, 4\text{n})$ $^{237}\text{Np}(\text{ , n } )$ $^{237}\text{Np}(\text{n}, 2\text{n})$
$^{237}\text{Np}$	2.14 $\times 10^6\text{y}$	100%	4.639(5.1) 4.766(13) 4.771(19.5) 4.788(47) 4.873(0.8)	$^{238}\text{U}(\text{n}, 2\text{n})$ $^{237}\text{U}(\text{ - })$
$^{238}\text{Np}$	2.117d	- 100%	- 0.250(31) 0.280(20) 1.236(38)	$^{237}\text{Np}(\text{n}, \text{ )}$ $^{238}\text{U}(\text{d}, 2\text{n})$ $^{236}\text{U}(\text{d}, \text{ )}$
$^{239}\text{Np}$	2.355d	- 100%	- 0.332(33) 0.393(7) 0.438(53) 0.715(4.0)	$^{238}\text{U}(\text{n}, \text{ )}$ $^{239}\text{U}(\text{ - })$ $^{239}\text{Pu}(\text{n}, \text{p})$
$^{240}\text{Np}$	65m	- 100%	- ~ 0.86	$^{238}\text{U}(\text{ , pn})$ $^{238}\text{U}(\text{d}, \text{ )}$

$^{240}\text{Np}$	7.4m	- ~ 100%	- 1.58(32) 2.14(42) 2.18(10)	$^{240}\text{U}$ $^{238}\text{U}(\text{d}, \quad)$
$^{241}\text{Np}$	16.0m	- 100%	- 1.36	$^{238}\text{U}(\quad, \text{p})$

出典：放射線データブック 地人書館(1982)

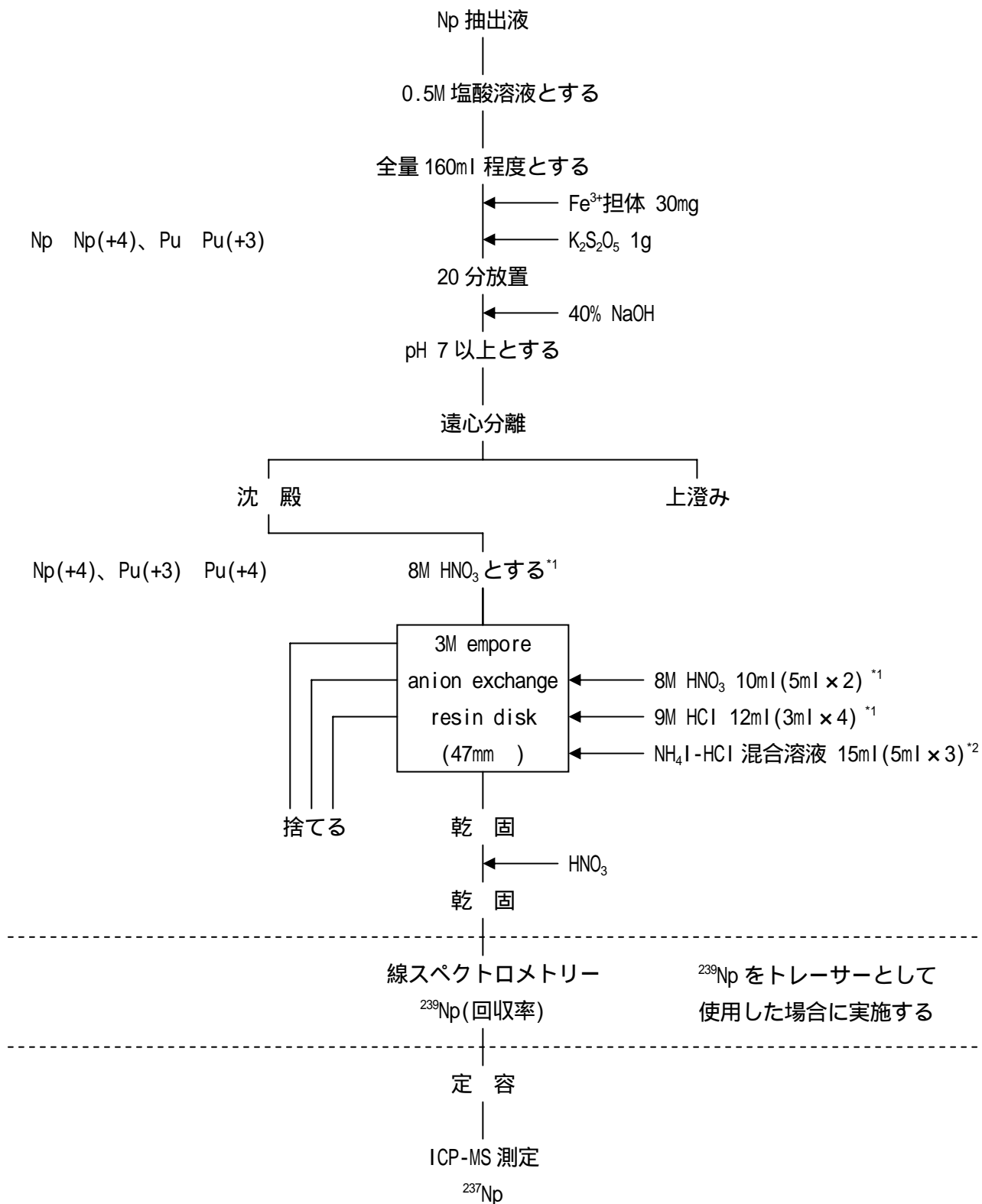


付録2 ネプツニウム 237 分析法の流れ図



付図 2.1 ネプツニウム 237 分析法の流れ図

ネプツニウム 237 の分離・精製



付図 2.1 ネプツニウム 237 分析法の流れ図

\*<sup>1</sup> 通液速度は 200ml/分程度

\*<sup>2</sup> 通液速度は 10ml/分程度

### 付録3 プルトニウムの使用にあたって

本分析法において、トレーサーとして使用するプルトニウム（プルトニウム 242）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、核燃料物質として定義され、「核燃料物質、核原料物質及び原子炉規制に関する法律」により規制される。

使用にあたって、核燃料物質使用許可が必要である。また、すでに核燃料物質使用許可を得ている場合でも、ICP-MS 測定等によって使用場所が拡大する際には、核燃料物質の使用に係る変更の許可が必要である。

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及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。

#### 付録4 参考文献

- (1) M. YAMAMOTO, S. IGARASHI, K. CHATANI, K. KOMURA AND K. UENO  
DETERMINATION OF  $^{237}\text{Np}$  AND  $^{241}\text{Pu}$  IN ENVIRONMENTAL SAMPLES IN SOIL AND SEDIMENT  
Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Articles, 138, 2, (1990) 365-376
- (2) M. Yamamoto, H. Kofuji, A. Tsumura, S. Yamasaki, K. Yuita, M. Komamura, K. Komura and K. Ueno  
Temporal Feature of Global Fallout  $^{237}\text{Np}$  Deposition in Paddy Field through the Measurement of Low-level  $^{237}\text{Np}$  By High Resolution ICP-MS  
Radiochim. Acta, 64, (1994) 217-224
- (3) Tom Beasley, Lee W. Cooper, Jackie M. Grebmeier, Knut Aagaard, James M. Kelley & Linus R. Kilius  
 $^{237}\text{Np}/^{129}\text{I}$  Atom Ratios in the Arctic Ocean: Has  $^{237}\text{Np}$  from Western European and Russian Fuel Reprocessing Facilities Entered the Arctic Ocean?  
Journal of Environmental Radioactivity, 39, 3, (1998) 255-277
- (4) T. M. Beasley, J. M. Kelley, T. C. Maiti, L. A. Bond  
 $^{237}\text{Np}/^{239}\text{Pu}$  Atom Ratios in Integrated Global Fallout: a Reassessment of the Production of  $^{237}\text{Np}$   
Journal of Environmental Radioactivity, 38, 2, (1998) 133-146
- (5) Chen Q. J., H. Dahlgard, S. P. Nielsen, A. Aarkrog  
Determination of  $^{237}\text{Np}$  in sediments and seawater  
IAEA-SM-354, U.S. DOE Reports, (1999) 346-347
- (6) D. J. Assinder  
A review of the occurrence and behaviour of neptunium in the Irish Sea  
Journal of Environmental Radioactivity, 44, (1999) 335-347
- (7) Heinrich Ziegler and Klaus Mayer  
Development of an Optimized Method for Faster and more Reliable Automated U / Pu / Np Separations  
Radiochim. Acta, 86, (1999) 123-128
- (8) H. Michel, G. Barci-Funel, J. Dalmaso, G. Ardisson  
One step ion exchange process for the radiochemical separation of americium, plutonium and neptunium in sediments  
Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 240, 2 (1999) 467-470
- (9) H. Ramebäck, M. Skålberg  
A separation procedure for the analysis of  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{154}\text{Eu}$ , and the actinides  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  and  $^{244}\text{Cm}$   
Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 240, 2 (1999) 661-663

- (10) J. M. Kelly, L. A. Bond, T. M. Beasley  
Global distribution of Pu isotopes and  $^{237}\text{Np}$   
The Science of the Total Environment, 237/238,(1999) 483-500
- (11) J. Kuwabara, M. Yamamoto, S. Oikawa, K. Komura, D. J. Assinder  
Measurements of  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{237}\text{Np}$ , Pu isotopes and  $^{241}\text{Am}$  in sediment cores from  
intertidal coastal and estuarine regions in the Irish Sea  
Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 240, 2 (1999) 593-601
- (12) Jason B. Truscott, Phil Jones, Ben E Fairman, E. Hywel Evans  
Determination of actinide elements at femtogram per gram levels in environmental  
samples by on-line solid phase extraction and sector-field-inductively coupled  
plasma-mass spectrometry  
Analytica Chimica Acta, 433, (2001) 245-253
- (13) Q. J. Chen, H. Dahlgaard, S. P. Nielsen, A. Aarkrog, I. Christensen, A. Jensen  
Determination of  $^{237}\text{Np}$  in marine sediment and seawater  
Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 249, 3,(2001) 527-533
- (14) A. H. Thakkar  
A rapid sequential separation of actinides using Eichrom s extraction  
chromatographic material  
Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 252, 2,(2002) 215-218
- (15) A. Morgenstern, C. Apostolidis, R. Carlos-Marquez, K. Mayer and R. Molinet  
Single-column extraction chromatographic separation of U, Pu, Np and Am  
Radiochim. Acta, 90,(2002) 81-85
- (16) B. Gleisberg, M. Kohler  
Rapid determination of low  $^{237}\text{Np}$  activities in uranyl nitrate solutions using  
extraction chromatography and gamma-ray spectrometry  
Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 254, 1, (2002) 59-63
- (17) N. Baglan, C. Bouvier-Capely and C. Cossonnet  
Determination of  $^{237}\text{Np}$  at trace level: evaluation of various analytical procedures  
Radiochim. Acta, 90, 267-272 (2002)
- (18) Q. J. Chen, H. Dahlgaard, S. P. Nielsen, A. Aarkrog  
 $^{242}\text{Pu}$  as tracer for simultaneous determination of  $^{237}\text{Np}$  and  $^{239,240}\text{Pu}$  in environmental  
samples  
Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 253, 3, (2002) 451-458
- (19) U. Wenzel, B. Bisplinghoff  
Milking process for the preparation of  $^{239}\text{Np}$   
Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 254, 3 (2002) 527-532

- (20) T. Miura, S.Oikawa, T. Kishimoto, S. Banba, T. Morimoto  
Rapid separation of plutonium in environmental samples using an anion  
exchange resin disk  
Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 250, 3 (2001) 449-452

「環境試料中ネプツニウム  $^{237}$  分析法（案）」誤記一覧

## 修正箇所

11ページ

14ページ

17ページ

20ページ

23ページ



#### 4.2.2 ネプツニウムの濃縮

4.2.1.1(6)又は4.2.1.2(9)で得たネプツニウム分析用試料溶液について、3.2.2と同様の操作を行い、ネプツニウム精製用試料溶液とする。

#### 4.2.3 固体固相抽出ディスクによる分離

4.2.2で得たネプツニウム精製用試料溶液について3.2.3と同様の操作を行い、測定溶液とする。

#### 4.2.4 ネプツニウム 239 による回収率の計算

4.2.3で得た測定溶液について、9.3に従いゲルマニウム半導体検出器を用いてネプツニウム 239 の測定を行い、回収率を求める。<sup>\*7</sup>

#### 4.2.5 ネプツニウム 237 の定量

4.2.3で得た測定溶液又は4.2.4でネプツニウム 239 を測定した後の測定試料溶液について、第9章に従いICP-MSを用いてネプツニウム 237 の定量を行う。

---

<sup>\*7</sup> ネプツニウム 239 を回収率補正用トレーサーとして用いた場合に実施する。

- (10) フェノールフタレイン - エタノール溶液(0.5W/V%)2ml を加え、かくはん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。
- (11) ガスコンロで 30 分間加熱し、沈殿を熟成する。
- (12) 水浴中で冷却後、デカンテーションにより上澄み液を捨て、沈殿物を 50ml 遠沈管に移す。
- (13) 3,000rpm で約 10 分間遠心分離を行う。上澄み液は捨てる。
- (14) 沈殿に硝酸を加え、100ml ビーカーに移し、ホットプレート<sup>\*7</sup>上で加熱溶解後、蒸発乾固する。
- (15) 放冷後、硝酸(3+2)10ml と過酸化水素水 1ml を加え、ホットプレート<sup>\*7</sup>上で蒸発乾固する。
- (16) 分離型ろ過器とメンブランフィルターを用いて吸引ろ過し、不溶物は硝酸(3+2)で洗浄する。ろ液及び洗液は 200ml ビーカーに受け、ネプツニウム分析用試料溶液とする。

### 5.2.2 ネプツニウムの濃縮

5.2.1.1(7)又は5.2.1.2(16)で得たネプツニウム分析用試料溶液について、3.2.2 と同様の操作を行い、ネプツニウム精製用試料溶液とする。

### 5.2.3 固体固相抽出ディスクによる分離

5.2.2 で得たネプツニウム精製用試料溶液について3.2.3 と同様の操作を行い、測定溶液とする。

### 5.2.4 ネプツニウム 239 による回収率の計算

5.2.3 で得た測定溶液について、9.3 に従いゲルマニウム半導体検出器を用いてネプツニウム 239 の測定を行い、回収率を求める。<sup>\*8</sup>

### 5.2.5 ネプツニウム 237 の定量

5.2.3 で得た測定溶液又は5.2.4 でネプツニウム 239 を測定した後の測定試料溶液について、第9章に従い ICP-MS を用いてネプツニウム 237 の定量を行う。

---

<sup>\*7</sup> ホットプレートは 200 程度に設定する。

<sup>\*8</sup> ネプツニウム 239 を回収率補正用トレーサーとして用いた場合に実施する。

移す。

(13) 3,000rpm で約 10 分間遠心分離を行う。上澄み液は捨てる。

(14) 沈殿に硝酸を加え、100ml ビーカーに移し、ホットプレート<sup>\*6</sup>上で加熱溶解後、蒸発乾固する。

(15) 放冷後、硝酸(3+2)10ml と過酸化水素水 1ml を加え、ホットプレート<sup>\*6</sup>上で蒸発乾固する。

(16) 分離型ろ過器とメンブランフィルターを用いて吸引ろ過し、不溶物は硝酸(3+2)で洗浄する。ろ液及び洗液は 200ml ビーカーに受け、ネプツニウム分析用試料溶液とする。

### 6.2.2 ネプツニウムの濃縮

6.2.1.1(7)又は6.2.1.2(16)で得たネプツニウム分析用試料溶液について、3.2.2 と同様の操作を行い、ネプツニウム精製用試料溶液とする。

### 6.2.3 固体固相抽出ディスクによる分離

6.2.2 で得たネプツニウム精製用試料溶液について3.2.3 と同様の操作を行い、測定溶液とする。

### 6.2.4 ネプツニウム 239 による回収率の計算

6.2.3 で得た測定溶液について、9.3 に従いゲルマニウム半導体検出器を用いてネプツニウム 239 の測定を行い、回収率を求める。<sup>\*7</sup>

### 6.2.5 ネプツニウム 237 の定量

6.2.3 で得た測定溶液又は6.2.4 でネプツニウム 239 を測定した後の測定試料溶液について、第9章に従い ICP-MS を用いてネプツニウム 237 の定量を行う。

---

<sup>\*6</sup> ホットプレートは 200 程度に設定する。

<sup>\*7</sup> ネプツニウム 239 を回収率補正用トレーサーとして用いた場合に実施する。

## 7.2.2 ネプツニウムの濃縮

7.2.1.1(6)又は7.2.1.2(9)で得たネプツニウム分析用試料溶液について、3.2.3と同様の操作を行い、ネプツニウム精製用試料溶液とする。

## 7.2.3 固体固相抽出ディスクによる分離

7.2.2で得たネプツニウム精製用試料溶液について3.2.3と同様の操作を行い、測定溶液とする。

## 7.2.4 ネプツニウム 239 による回収率の計算

7.2.3で得た測定溶液について、9.3に従いゲルマニウム半導体検出器を用いてネプツニウム 239 の測定を行い、回収率を求める。<sup>\*8</sup>

## 7.2.5 ネプツニウム 237 の定量

7.2.3で得た測定溶液又は7.2.4でネプツニウム 239 を測定した後の測定試料溶液について、第9章に従い ICP-MS を用いてネプツニウム 237 の定量を行う。

---

<sup>\*8</sup> ネプツニウム 239 を回収率補正用トレーサーとして用いた場合に実施する。

浄する。ろ液及び洗液は 200ml ビーカーに受けネプツニウム分析用試料溶液とする。

#### 8.2.2 ネプツニウムの濃縮

8.2.1.1(6)又は 8.2.1.2(9)で得たネプツニウム分析用試料溶液について、3.2.2 と同様の操作を行い、ネプツニウム精製用試料溶液とする。

#### 8.2.3 固体固相抽出ディスクによる分離

8.2.2 で得たネプツニウム精製用試料溶液について 3.2.3 と同様の操作を行い、測定溶液とする。

#### 8.2.4 ネプツニウム 239 による回収率の計算

8.2.3 で得た測定溶液について、9.3 に従いゲルマニウム半導体検出器を用いてネプツニウム 239 の測定を行い、回収率を求める。<sup>\*9</sup>

#### 8.2.5 ネプツニウム 237 の定量

8.2.3 で得た測定溶液又は 8.2.4 でネプツニウム 239 を測定した後の測定試料溶液について、第 9 章に従い ICP-MS を用いてネプツニウム 237 の定量を行う。

---

<sup>\*9</sup> ネプツニウム 239 を回収率補正用トレーサーとして用いた場合に実施する。