# 放射化学的中性子放射化分析による 岩石及び水に含まれるランタノイドと ウランの定量

- 第1部 岩石試料分析 -

## 米沢 仲四郎\*・黒澤 達也\*\*

## 要旨

岩石中 10 種類のランタノイドとUを定量する、放射化学的中性子放射化分析法 を報告する。岩石試料をランタノイドとUの比較標準試料と共に原子炉(JRR-4) で中性子照射した。照射した岩石試料をアルカリ融解した後、ランタノイドとUの 放射化生成物を陽イオン交換とTTA 液液抽出によって分離して、Ge 検出器でy線 スペクトルを測定した。ランタノイドの放射化生成物とUの放射化生成物<sup>239</sup>Npの 化学収率は、夫々、ICP-AES と長寿命の放射性同位体<sup>237</sup>Npトレーサーによって測 定して、補正した。分析対象放射性核種で、<sup>235</sup>Uの中性子核分裂反応によっても生 成される<sup>140</sup>La、<sup>141</sup>Ce、<sup>147</sup>Nd 及び<sup>153</sup>Sm について、試料に含まれる Uの寄与を実験 的に調べ、その補正をした。本法による岩石標準試料(GSJ JB-1 と JG-1)のランタ ノイドと Uの分析結果を信頼性が高い評価値と比較して、正確さを評価した。

## 1. まえがき

地層処分されたアクチノイドの地下水への移行挙動を化学的性質が類似なラン タノイド<sup>\*1</sup>(LN)によって調べる、ナチュラルアナログ研究<sup>1,2)</sup>を実施するため、

<sup>\*</sup> 日本原子力研究所(現在、日本国際問題研究所)

<sup>\*\*</sup> 原子力エンジニアリング株式会社

<sup>\*1</sup> 本稿において、「ランタノイド」は原子番号が 57 の La から 71 の Lu までの 15 元素を指し、 これを「LN」と省略する。過去に発表された多くの論文では、これらの元素を「REE」と 省略しているものが多い。REE は Rare Earth Elements(希土類元素)の省略で、それに は Y が含まれることもあるので、本稿では「LN」とし、その放射性核種を「LN-RN」と表す。

#### 武蔵大学人文学会雑誌 第56巻第2号

岩石と地下水中のLNとUの分析が必要とされた。この研究はUが比較的高濃 度の地層を利用して計画されたため、その分析には比較的高濃度Uの岩石を含 む岩石と地下水中のできるだけ多くの数のLNとUの定量が求められた。中性 子放射化分析 (NAA) は多数のLNに対して分析感度が高く、放射化した試料 から分析対象の放射性核種 (RN)を分離・測定する放射化学的中性子放射化分 析 (RNAA) は、更に多くの数のLNとUを正確に定量することができる。こ のため、RNAAによる岩石と水に含まれるLNとUの定量法を開発した。

上記の分析要件を満足する RNAA には、試料の中性子照射によって生成する 多量の RN から分析対象の LN-RN と<sup>239</sup>Np を分離して、それらの化学収率を測 定して補正する必要がある。更に、LN の中性子照射によって生成する<sup>140</sup>La、 <sup>141</sup>Ce、<sup>147</sup>Nd 及び<sup>153</sup>Sm 等の LN-RN は、<sup>235</sup>U の中性子核分裂反応によっても生成 されるため、それら RN の放射能に対する LN と U 量との関係を実験的に評価 して、高 U 濃度試料ではその寄与を補正する必要がある。また、研究用原子炉 では 1 mL を超える水の中性子照射が困難であるため、水試料を分析するには、 予め LN と U を捕集して、捕集物を中性子照射する必要がある。

原子 番号	元素	標的 核種	存在度 /%	熱中性子断 面積/barns	生成 核種	半減期	主要 y 線エネルギー /keV (放出率 /%)	分析の 可否
57	La	<sup>139</sup> La	99.91119	9.21	140La	40.284 h	1596.21 (95.40), 487.01 (45.5), 328.762 (20.3)	0
58	Ce	<sup>140</sup> Ce	88.449	0.51	<sup>141</sup> Ce	32.511 d	145.4433 (48.3)	0
59	Pr	$^{141}$ Pr	100	11.3	$^{141}$ Pr	19.12 h	1575.6 (3.7)	×
60	Nd	<sup>146</sup> Nd	17.189	1.49	<sup>147</sup> Nd	10.98 d	91.105 (28.1)	0
61	Pm	地球上(	には存在しな	よい				×
62	Sm	<sup>152</sup> Sm	26.74	206	<sup>153</sup> Sm	$46.284~\mathrm{h}$	103.18012 (29.14)	0
63	Eu	<sup>151</sup> Eu	47.81	9230	<sup>152</sup> Eu	13.517 у	121.7817 (28.53), 344.2785 (26.59), 1408.013 (20.87)	0
64	Gd	<sup>152</sup> Gd	0.2	735	<sup>153</sup> Gd	240.4 d	97.43100 (30.0), 103.18012 (22.1)	0
65	Тb	<sup>159</sup> Tb	100	23.8	$^{160}\mathrm{Tb}$	72.3 d	879.378(30.1),298.5783(26.1),86.7877(13.2)	0
66	Dy	<sup>158</sup> Dy	0.056	33	<sup>159</sup> Dy	144.4 d	58.0 (2.27)	×
67	Ho	<sup>165</sup> Ho	100	64.4	$^{166}\mathrm{Ho}$	$26.824~\mathrm{h}$	80.576 (6.56), 1379.437 (0.922)	×
68	Er	<sup>170</sup> Er	14.910	8.15	<sup>171</sup> Er	7.516 h	$308.291 \ \ (64), \ 295.901 \ \ (28.9), \ 111.621 \ \ (20.5)$	×
69	Τm	<sup>169</sup> Tm	100	107	<sup>170</sup> Tm	128.6 d	84.25474 (2.48)	0
70	Vb	<sup>168</sup> Yb	0.123	3033	<sup>169</sup> Yb	32.018 d	177.21307 (22.18), 109.77924 (17.39)	0
70	10	<sup>174</sup> Yb	32.025	63.2	<sup>175</sup> Yb	4.185 d	$396.329\ (13.2),\ 282.522\ (6.13),\ 113.805\ (3.87)$	0
71	Lu	<sup>176</sup> Lu	2.599	2057	<sup>177</sup> Lu	6.6443 d	208.3662 (10.41), 112.9498 (6.23)	0
92	U	<sup>238</sup> U	99.2742	2.682	<sup>239</sup> Np	2.356 d	106.123(25.34),277.599(14.51),228.183(10.73)	0

表1 UとLN の中性子放射化データ<sup>4)</sup>

著者らは、分析目的のLN-RNと<sup>239</sup>Npをイオン交換と液液抽出法によって分離し、それらの化学収率をICP-AES(LN-RN)と長寿命放射性同位体の<sup>237</sup>Npトレーサー(<sup>239</sup>Np)によって測定して補正する、RNAA法を開発した。本論文の第1部では岩石試料の分析法を報告し、第2部<sup>3)</sup>では水試料分析のための水酸化アルミニウム共沈捕集法を報告する。

開発した RNAA 法は、岩石中の 10 種類の LN (La、Ce、Nd、Sm、Eu、Gd、 Tb、Tm、Yb、Lu) と U を定量することができる。しかし、地球上に存在しな い Pm に加え、Pr、Dy、Ho 及び Er は分析感度が不足して定量が困難であった。 本法に関連する LN と U の放射化データ<sup>4)</sup>を表1 に示す。

## 2. 実験

#### 2.1 装置及び標準溶液等

2.1.1 装置

*y* 線スペクトロメータ: 同軸型(ORTEC GMX-20190)とプレナー型(ORTEC 1G13-25306-S)の高純度 Ge 検出器を、ORTEC と CANBERRA 製の NIM モジュー ル電子回路(高圧電源、スペクトロスコピーアンプ、アナログデジタル変換器)、 及び CANBERRA 9503型多重波高分析装置に接続して使用した。同軸型 Ge 検 出器は、戦艦「むつ」の鉄材と鉛を使用した遮へい体に設置して使用した。プレ ナー型 Ge 検出器は遮へいをしないで使用した。

誘導結合プラズマ発光分光分析装置(ICP-AES):島津製作所製ポリクロメー タ型 ICPV-1000(モノクロメーター型 CTM-50付)を、LNの化学収率測定に使 用した。

イオン交換カラム: BIO-RAD 製 Analytical Gradeの陽イオン交換樹脂(AG 50W-X8、200~400メッシュ、H型)を、水と混ぜてガラス製カラム(内径:8 mm)に110 mmの長さに充填し、水 50 mL と 2 M 塩酸 50 mL を流した後、流速を 0.5~0.8 mL/min にして使用した。

**その他**:シンチレーションカウンター(アロカ製 JDC-701 型、44 mm φ×51 mm h 井戸型 NaI (Tl) 検出器)、振とう機(イワキ製作所製 KM 式)、遠心分離機(国

#### 武蔵大学人文学会雑誌 第56巻第2号

産遠心器製-108NA型)及び電子天秤(メトラー社製 AE249と PM460)を使用した。

#### 2.1.2 標準溶液及び試薬

LN標準溶液(1 mg LN/g): La、Ce、Nd、Sm、Eu、Gd、Tb、Ho、YbとLu はレアメタリック社の純度が99.99%の酸化物、及びTm は Johnson Mathey 社 の "Specpure" の酸化物を、電気炉で800℃2時間加熱した。加熱した各酸化物 の一定量を量りとり、濃塩酸又は過塩素酸と過酸化水素水で加熱分解して、① RNAA の比較標準試料用 LN 混合標準溶液(付表1)、②LN 担体溶液(付表2)、 及び③ ICP-AES 分析の標準試料用の LN 混合標準溶液(付表3)を調製した。

U標準溶液 (9.449 mg U/g): 金属 U標準試料 (JAERI-U4) を定められた方法<sup>5)</sup> でエッチングし、乾燥後 0.9987 gを量りとり、濃硝酸 15 mL で溶解した。 この溶液を 0.1 M 硝酸で 100 mL にして秤量後、0.1 M 塩酸又は硝酸で更に希釈 して使用した。

Cd 標準溶液 (1.001 mg/mL):金属 Cd (小宗化学薬品製) 10.0135 g を濃硝酸 で溶解後、水で 100 mL にした。この溶液を1 M 塩酸で更に 100 倍に希釈して、 ICA-AES による LN 測定の内標準に使用した。

<sup>237</sup>Np 標準溶液(3.70 kBq<sup>237</sup>Np/mL):日本アイソトープ協会から購入した3M 硝酸溶液(370 kBq<sup>237</sup>Np/mL)を蒸発乾固した後、1 M 塩酸溶液にして<sup>239</sup>Npの 化学収率測定に使用した。

**RN トレーサー溶液**: <sup>60</sup>Co、<sup>152</sup>Eu 及び<sup>133</sup>Ba は、日本アイソトープ協会からの購 入品を使用した。<sup>46</sup>Sc、<sup>140</sup>La、<sup>141</sup>Ce、<sup>147</sup>Nd、<sup>153</sup>Sm、<sup>153</sup>Gd、<sup>160</sup>Tb、<sup>170</sup>Tm、<sup>169,175</sup>Yb 及び<sup>177</sup>Lu は、各元素の酸化物を JRR-4 で中性子照射して作った。<sup>239</sup>Np は U 標準 溶液を JRR-4 で中性子照射した後、TTA 液液抽出分離法<sup>6,7)</sup> によって分離・精製 した。蒸発乾固後 0.1 M 塩酸で溶解して 100 mL にした。

TTA キシレン溶液 (0.5 M):同仁化学研究所製ドータイト Thenoyltrifluoroacetone (TTA) 27.77 gを 250 mL の JIS 特級キシレンに溶解した。

**塩化第一鉄**(FeCl<sub>2</sub>・nH<sub>2</sub>O): JIS 特級品で黄緑色の新しいものを使用した。 Ba 担体溶液(10 mg Ba/mL):水酸化バリウム(Ba(OH)<sub>2</sub>・8H<sub>2</sub>O) 2.302 g を 放射化学的中性子放射化分析による岩石及び水に含まれるランタノイドとウランの定量-第1部 岩石試料分析- 米沢仲四郎・黒澤達也 塩酸で溶解して蒸発乾固した後、0.1 M 塩酸で溶解して 100 mL にした。

中性子照射用石英アンプル:水道水と精製水で洗浄した石英管を王水中に1昼 夜以上浸けて、溶出成分を取り除いた後、石英製ガスバーナーでアンプルに加工 した。U比較標準試料の照射には、高純度の合成石英管(信越石英製 VIOSIL-F)<sup>8)</sup> を使用した。

#### 2.2 分析操作

#### 2.2.1 照射試料調製及び中性子照射

メノウ乳鉢で粉砕した岩石試料(100 mg)を量りとり、石英アンプルに封入 した。LN 混合標準溶液及びU標準溶液を別々の石英アンプルに各 0.1 gを量り 取り、液体窒素で凍結して減圧封入した。試料及びLN と U の比較標準試料を ポリエチレン製照射カプセルに詰め、JRR-4 T-パイプ(熱中性子束:6.0×10<sup>13</sup> n・ cm<sup>2</sup>・s<sup>-1</sup>)で 30 分間中性子照射した。Uと LN 比較標準試料の内訳を付表 4 に 示す。

## 2.2.2 照射した試料の放射化学処理

冷却:中性子照射した試料は高放射線線量になるため、3日間冷却してから放 射化学処理を開始した。

岩石試料の融解:予め、Zr 製るつぼにLN 担体溶液1 mL、Ba 担体溶液0.5 mL (Ba:5 mg)、<sup>237</sup>Npトレーサー溶液0.1 mL (<sup>237</sup>Np:700 Bq)をとり、ホットプレート上で蒸発乾固した。るつぼに中性子を照射した岩石試料を入れ、過酸化ナトリウム (Na<sub>2</sub>O<sub>2</sub>)2gと水酸化ナトリウム (NaOH)1gを加えて、マッフルに取り付けた。ガスバーナーでるつぼの底が淡い赤色(約650~750℃)になるまで加熱し、更に3~5分間加熱を継続して試料を融解した。融解物を冷却後、水で溶解した。この時、るつぼから熔けたZrが水酸化物として沈殿するので、これを遠心分離した。沈殿を水で洗浄した後、濃塩酸1 mL を加えて加熱溶解した。溶解液を水で希釈した後、炭酸ガスを含まないアンモニア水で再び水酸化ジルコニウムの沈殿をつくり、遠心分離と濃塩酸による溶解を繰り返した後、蒸発

乾固した。

イオン交換による LN-RN の分離:岩石試料の蒸発残留物を2 M 塩酸5 mL で 溶解し、塩化第一鉄 0.1 gを加えて溶解した後、15 分間放置して<sup>237, 239</sup>Np を還元 した。試料溶液をイオン交換カラムに流した後、更に 45 mL の2 M 塩酸を流し て<sup>24</sup>Na、<sup>59</sup>Fe や <sup>60</sup>Co を溶離した。続いて、カラムに1 M 硫酸 50 mL を流して <sup>237, 239</sup>Np と <sup>46</sup>Sc を溶離した。最後に、カラムに5 M 塩酸 50 mL を流して LN-RN を溶離した。この溶離液を加熱して<sup>131, 140</sup>BaSO<sub>4</sub> の沈殿を熟成後、No.5C のろ紙 でろ過をした。ろ液をテフロンビーカーで約 0.1 mL まで蒸発濃縮した。

TTA 液液抽出による<sup>237,239</sup>Npの分離:イオン交換分離の1 M 硫酸溶離液に、 アンモニア水を加えて水酸化ジルコニウムの沈殿をつくった。沈殿を遠心分離し て水で洗浄した後、濃塩酸1~3 mLを加えて加熱溶解した。水溶液を一旦蒸発 乾固した後、1 M 塩酸10 mLで溶解し、溶液を分液漏斗に移した。更に1 M 塩 酸10 mL でビーカーを洗浄して、分液漏斗に移した。塩化第一鉄 0.1 gを加えて 15 分間放置して<sup>237,239</sup>Npを還元した。分液漏斗に 0.5 M TTA キシレン溶液 20 mLを加えて 15 分間振り混ぜて、<sup>237,239</sup>Np を有機相に抽出した。静置後、水相は 捨て、分液漏斗に1 M 塩酸 10 mL を加え、3 分間振り混ぜて有機相を洗浄した。 水相は捨て、分液漏斗に 10 M 硝酸 10 mL を加えて 2 分間振り混ぜて、<sup>237,239</sup>Np を逆抽出した。この水溶液をテフロンビーカーで加熱して、約 0.1 mL まで濃縮 した。

LN比較標準試料の処理:中性子照射したLN比較標準試料溶液が入った石英 アンプルを、液体窒素で凍結して開封した。標準溶液を手製のガラスピペットを 使用してテフロンビーカーに取り出し、アンプル内を1M塩酸で洗浄した。洗 浄液もビーカーに移した後、LN担体溶液を1mL加えて約0.1mLまで蒸発濃縮 した。

U 比較標準試料の処理:中性子照射した U 比較標準試料溶液を、LN 比較標準 試料と同様にして 50 mL のガラスビーカーに取り出し、LN 担体溶液 1 mL 及び <sup>237</sup>Np トレーサー溶液 0.1 mL (<sup>237</sup>Np:700 Bq)を加えた。溶液をホットプレート 上で蒸発乾固した後、1 M 塩酸で溶解し、Ba 担体溶液 0.5 mL (Ba:5 mg)を

148

加え、再度蒸発乾固した。蒸発残留物を2 M 塩酸5 mL で溶解し、塩化第一鉄 0.1 g を加えて 15 分間放置した後、岩石試料と同様にイオン交換と TTA 液液抽出 分離操作を行い、LN-RN と<sup>237, 239</sup>Np の濃縮液を得た。なお、TTA 液液抽出によっ て <sup>237, 239</sup>Np を分離する際には、イオン交換の1 M 硫酸溶離液にオキシ塩化ジル コニウム 0.05 g (Zr: 14 mg) を添加した。

#### 2.2.3 y線スペクトル測定

岩石試料及びUとLNの比較標準試料について、イオン交換とTTA液液抽出 分離操作をして得られたLN-RNと<sup>237,239</sup>Npの濃縮液をガラス製試料皿(内径: 22 mm、外径:24 mm、深さ:3 mm)に移し、赤外線ランプ下で蒸発乾固した。 試料皿をポリエチレン袋に封入し、第2.1.1項に示す2種類のGe検出器のy線ス ペクトロメータを使用して、表2に示す区分に従ってy線スペクトルを測定した。

測定区分	測定試料	照射後の 経過時間/d	測定時間/ ksec	測定 RN	半減期	定量用 y 線/keV (小数点以上)
		3~7		<sup>140</sup> La	40.284 h	328, 487, 1596
			5~50	<sup>147</sup> Nd	10.98 d	91
短寿命核種	LN-RN			<sup>153</sup> Sm	46.284 h	103
				<sup>175</sup> Yb	4.185 d	282
				<sup>177</sup> Lu	6.6443 d	208
				<sup>141</sup> Ce	32.511 d	145
		20 - 40	20~100	<sup>152</sup> Eu	13.517 у	121, 344, 1408
長表会核種	INPN			<sup>153</sup> Gd	240.4 d	97, 103
民对叩汉重		50 40	20 100	$^{160}$ Tb	72.3 d	86, 298, 879
				<sup>170</sup> Tm	128.6 d	84
				<sup>169</sup> Yb	32.018 d	109, 177
U 定量	Np	7~10	5~50	<sup>239</sup> Np	2.356 d	106, 228, 277
Np 化学収率	Np	> 40	20~50	<sup>237</sup> Np	$2.144 \times 10^6$ y	86

表2 γ線スペクトル測定の概要

## 2.2.4 ICP-AES による LN の化学収率測定

y線スペクトル測定が完了した岩石試料とU比較標準試料の試料皿を50 mL のガラスビーカーに移し、1 M 塩酸約 5 mL を加えて蒸発残留物を加熱溶解した。 溶液を10 mL のメスフラスコに移し、1 M 塩酸で標線まで希釈した。この水溶 液を1 M 塩酸で更に10 倍希釈して、ICP-AES により、表3に示す10 種類の担体元素(La、Ce、Nd、Sm、Eu、Tb、Ho、Tm、Yb、Lu)について、夫々の 測定波長の発光強度を測定した。更に ICP-AES 分析用 LN 混合標準溶液(付表3) を測定して得られた検量線を基に、LN 担体溶液(付表2)の希釈液の測定値と 比較して、担体元素の化学収率を求めた。

元妻	測定波長/	担体量/	濃度/	相互干渉/	測定精度/
儿亲	nm	$\mu$ g	$\mu \mathrm{g} \cdot \mathrm{mL}^{\cdot 1}$	%	%
La	398.85	735.3	7.353	< 0.51	0.79
Ce	413.75	1584	15.84	< 0.72	1.1
Nd	430.36	1008	10.08	< 0.39	0.55
Sm	359.26	509.7	5.087	<7.9	0.36
Eu	381.97	287.2	2.872	<1.3	0.36
Tb	367.64	1160	11.60	< 0.97	0.32
Но	345.60	284.4	2.844	<1.9	0.56
Tm	313.1	101.5	1.015	<6.0	0.66
Yb	328.94	46.85	0.4685	<1.3	0.51
Lu	291.14	78.07	0.7807	<2.1	0.33
Cd*	226.50		10.99	< 0.14	0.55
					(n = 10)

表3 ICP-AES による LN 担体水溶液の測定

\* 内標準

## 3. 結果及び考察

## 3.1 放射化学分離

## 3.1.1 イオン交換分離

岩石及び水試料の共沈捕集物<sup>3)</sup>の中性子照射によって生成する多量の<sup>24</sup>Na、 <sup>46</sup>Sc、<sup>59</sup>Fe、<sup>60</sup>Co等のRNから、<sup>140</sup>La等のLN-RNと<sup>237,239</sup>Npの分離には、塩酸及 び硫酸を溶離液とする陽イオン交換分離法<sup>9)</sup>を採用した。分離に使用したイオン交 換カラム(8 mm $\phi$ ×100 mm 長さ)による、<sup>60</sup>Co、<sup>46</sup>Sc及びLN-RN(<sup>140</sup>La、<sup>177</sup>Lu) の溶離曲線を図1に示す。初め2 M 塩酸 50 mL によって<sup>60</sup>Coが、つづいて1 M 硫酸 50 mL によって<sup>46</sup>Sc が、最後に5 M 塩酸 50 mL によってLN-RN の<sup>140</sup>Laと <sup>177</sup>Lu が溶離された。図には示していないが、2 M 塩酸によって岩石試料に含まれ

る多量の <sup>59</sup>Fe 等の遷移金属と <sup>24</sup>Na も溶離された。使用した充填長さのイオン交換 カラムでは、<sup>46</sup>Sc を溶離する 1 M 硫酸の 25 mL 付近から高原子番号の <sup>169, 175</sup>Yb と <sup>177</sup>Lu の漏出が始まった。このため、イオン交換カラムの充填長さを 200 mm まで 長くして、<sup>46</sup>Sc と LN-RN (<sup>169, 175</sup>Yb、<sup>177</sup>Lu)の溶離挙動を測定した。カラムの充填 長さを長くすることにより、<sup>46</sup>Sc と <sup>169, 175</sup>Yb 及び <sup>177</sup>Lu の分離能が改善されたが、 溶離液量が多くなり、分離時間も長くなった。このことから、イオン交換カラム (内 径:8 mm)の充填長さは、100 mm にした。使用したイオン交換樹脂の体積は溶 離液の液性によって変化するため、イオン交換樹脂の充填長さは 2 M 塩酸溶液に おける値を使用した。はじめ、水中に浸したイオン交換樹脂を 110 mm の長さに充 填すると、2 M 塩酸溶液では 100 mm の長さになった。8 mm $\phi$ × 100 mm 長さの イオン交換カラムによるトレーサー実験の結果、5 M 塩酸溶離液への LN-RN (<sup>140</sup>La、 <sup>169, 175</sup>Yb、<sup>177</sup>Lu)の化学収率は 98%以上で、<sup>46</sup>Sc の除染係数は 1500 以上であった。



図1 陽イオン交換樹脂カラムによるLN (La、Lu)、Sc及びCoの溶離曲線 カラム: Bio-Rad AG50W-X8 200 ~ 400 メッシュ、8 mm φ × 100 mm 長さ 流速: 0.5 ~ 1 mL/min

<sup>237, 239</sup>Npの溶離:照射した岩石試料溶液をそのままイオン交換カラムに通した場合、図2に示すように、<sup>239</sup>Npの17%は最初の2M塩酸中に溶離され、残りの 83%が<sup>46</sup>Scと同じ1M硫酸中に溶離された。しかし、試料溶液に塩化第一鉄0.1g を添加すると、<sup>239</sup>Npの2M塩酸への溶離量は3.4%に減少し、1M硫酸への溶 離量は96%に増加した。<sup>239</sup>Npは2M塩酸溶液中ではN価とV価の化学種で存在 したが、塩化第一鉄によってNp(V)がNp(N)に還元されて、2M硫酸中の 溶離量が増加したと考えられる。<sup>239</sup>Npは、1M硫酸溶離液への化学収率が96% 以上で、5M塩酸溶液への混入率が0.8%以下であった。





**Zr**の影響:岩石試料の Na<sub>2</sub>O<sub>2</sub>-NaOH による融解では、試料容器の Zr 製るつ ぼの一部が熔けて試料に混入した。この融解法による Zr の混入量は1 試料当た り 10 mg 以下であったが、融解時の加熱温度の上昇と加熱時間の増加により、 溶解量が数十 mg になることもあった。使用したイオン交換分離における Zr の 影響は、高原子番号の LN ほど大きくなった。このため、高原子番号の<sup>177</sup>Lu を トレーサーとして使用して、溶存 Zr 量の<sup>177</sup>Lu の化学収率への影響を調べた。 Zr 量が通常の溶解量である 10 mg 程度では影響がないが、100 mg まで増加す ると<sup>177</sup>Lu の化学収率は 10%に低下した。Na<sub>2</sub>O<sub>2</sub>-NaOH による岩石試料の融解 では、Zr の混入量を 10 mg 以下にするため、分析操作に記述した加熱の温度と 時間を厳守する必要がある。

<sup>131, 140</sup>Baの混入:中性子照射した岩石試料のイオン交換分離に於いて、LNフラクションに<sup>130</sup>Ba(n, y)<sup>131</sup>Baと<sup>235</sup>U(n, f)<sup>140</sup>Ba反応によって生成した、
 <sup>131</sup>Ba(半減期:11.50日)と<sup>140</sup>Ba(半減期:12.751日)が混入した。このため、イオン交換分離前にBa担体5mgを添加して、<sup>46</sup>Scと<sup>239</sup>Npの溶離に用いる1M
 硫酸溶液中でBaSO<sub>4</sub>の沈殿をつくり、5M塩酸溶離液をろ過することにした。更に、イオン交換分離前に炭酸ガスを含まないアンモニア水によるpH 8 での2回目の水酸化ジルコニウム共沈操作の追加によって、<sup>131, 140</sup>Baの混入は1%以下に減った。
 Ba担体5mgの添加は、LN-RNと<sup>237, 239</sup>Npの分離への影響は認められなかった。

## 3.1.2 TTA 液液抽出による<sup>237, 239</sup>Np の分離

陽イオン交換分離法では、<sup>46</sup>Scと<sup>237,239</sup>Npの両方が1 M 硫酸中に溶離される ため、両者間の分離が必要になった。この分離には、TTA 液液抽出法<sup>6,7)</sup>を使 用した。1 M 硫酸溶液では両者の分離が困難であるため、一旦水酸化ジルコニウ ムで両者を共沈させた後、1 M 塩酸溶液にして<sup>237,239</sup>Npを 0.5 M TTA キシレン 溶液に抽出した。この時、<sup>46</sup>Sc は抽出されず水溶液中に残る。TTA キシレン溶 液に抽出された<sup>237,239</sup>Np は、10 M 硝酸で逆抽出した。共沈剤の Zr は、岩石試料 を融解する際に Zr るつぼから熔出されたものを用い、Zr を含まない U 比較標 準試料にはオキシ塩化ジルコニウム 50 mg (Zr:14 mg) を添加した。

#### 3.2 γ線スペクトル

分析対象の LN-RN と<sup>237, 239</sup>Np は、30 ~ 1600 keV の y 線を放出する。しかし、 その内の<sup>147</sup>Nd、<sup>153</sup>Gd、<sup>170</sup>Tm 及び<sup>237</sup>Np の主要 y 線は、80 ~ 103 keV と低エネ ルギーである。このため、 y 線測定には 3 ~ 10000 keV y 線の検出に有効な n 型 結晶の同軸型 Ge 検出器と、300 keV 以下の低エネルギー y 線検出に有効なプレ ナー型 Ge 検出器の両方を使用した。

はじめ、 y線測定試料の調製にシュウ酸塩沈殿法<sup>100</sup> を検討したが、この方法 では低及び高原子番号 LN-RN の化学収率が低く、<sup>237, 239</sup>Np の化学収率も7~ 88%と変動した。このため、本法では試料調製がより簡単な、分離した LN-RN と<sup>237, 239</sup>Np の水溶液をガラス製試料皿に蒸発乾固することにした。ガラス製試料 皿上の蒸発残留物の不均質性に起因する y線測定結果の不確かさを、模擬線源の 測定によって評価した。模擬線源は、<sup>152</sup>Eu と<sup>153</sup>Gd 水溶液及び LN 担体水溶液を 混合した水溶液を、試料皿に蒸発乾固して作製した。模擬線源を Ge 検出器との 距離が 10~47 mm の位置に取り付け、各測定位置に於いて試料皿を 90° ずつ一 回転させて、各測定位置と各回転角度において 97~1408 keV y 線のピーク計数 率を測定した。さらに、同一放射能の模擬線源を 3 個作製して、線源間の計数率 の違いも調べた。プレナー型及び同軸型 Ge 検出器とも、ピーク計数値の統計学 的相対変動が 1%以下になるように測定時間を調整して模擬線源の y 線を測定し た結果、試料と検出器間距離が 10~47 mm において、線源の設置角度間及び 同じジオメトリーにおける線源間のピーク計数率は 1%以内で一致した。

岩石試料分析で得られた y 線スペクトルには、分析目的の LN-RN 及び<sup>237, 239</sup>Np 以外の RN の混入は認められなかった。

#### 3.3 化学収率

#### 3.3.1 LN の化学収率

ICP-AES による LN の分析感度と分光学的相互干渉及び試料中の LN 濃度に基 づき、化学収率を測定するために添加する担体には、La、Ce、Nd、Sm、Eu、Tb、 Ho、Tm、Yb 及び Lu の 10 元素を選んだ。担体元素の濃度組成は、各担体元素の 標準溶液を ICP-AES によって測定して得られた元素間の分光学的干渉の大きさ、 及び岩石試料に含まれる担体元素濃度を考慮して決めた。LN 担体元素の濃度組成 と ICP-AES による LN 担体溶液の測定結果を前記の表3に示す。表には、ICP-AES による担体元素の測定波長、1 試料に添加される各担体元素量、ICP-AES 測

定試料の濃度、元素間の相互干渉、及び担体希釈溶液の10回繰り返し測定によっ て得られた繰り返し精度を示す。測定波長は、担体元素間の相互干渉の大きさを基 に、Toyodaら<sup>11)</sup>の方法とほぼ同じ波長を用いた。添加するLN担体量は、岩石(GSJ JB-1)中に含まれる量よりも20倍(La)~1800(Eu)倍多い。元素間の相互干渉は、 Smが<7.9%及びTmが<6.0%とやや大きい。これは、Smに対するNdの干渉及 びTmに対するTbとHoの干渉が大きいことに起因するが、夫々近接した原子番 号の担体元素の相互干渉が小さいため、この条件で分析を実施した。LN担体溶液 及び内標準のCdについて、10試料測定の相対標準偏差は1%以下であった。

岩石試料分析における、LN の化学収率の測定結果の例を図3に示す。図中の、 花崗閃緑岩(GSJ JG-1)試料の分析操作は正常に行われたが、れき岩試料は融解 時の加熱温度が高すぎて Zr の混入量が多くなったため、高原子番号 LN の化学 収率が低下した。化学収率補正では、ICP-AES によって測定した元素はその測 定値を用い、ICP-AES による測定に含まれない LN の化学収率はプロット間の 内挿値を使用した。また、化学収率測定値が他の LN に比べて大きくかけ離れた 場合にも、化学収率プロットの内挿値を用いた。本分析法による LN の化学収率 は、分析操作が適切に実施された場合には 80 ~ 90%であった。



#### 3.3.2<sup>239</sup>Npの化学収率

<sup>237, 239</sup>Np フラクションの y 線スペクトルには、<sup>239</sup>Np の y 線に加え、<sup>237</sup>Np の
 86.5 keV y 線及びその壊変生成物である <sup>233</sup>Pa (半減期: 26.975 日) の 311.901 keV y 線のピークも確認されたが、それら以外の RN の混入は認められなかった。
 <sup>239</sup>Np の化学収率は、中性子照射後 40 日以上経過してから測定した y 線スペクト ルの <sup>237</sup>Np の 86.5 keV y 線ピーク計数率を、添加量と比較して求めた。本法による <sup>237, 239</sup>Np の化学収率は、80%以上であった。

### 3.4<sup>235</sup>Uの核分裂によって生成された LN-RN の寄与

定量に使用した 10 種類の LN-RN のうち、<sup>140</sup>La、<sup>141</sup>Ce、<sup>147</sup>Nd 及び<sup>153</sup>Sm は、 熱中性子による<sup>235</sup>Uの累積核分裂収率<sup>4)</sup>が6.31%(<sup>140</sup>La)、5.85%(<sup>141</sup>Ce)、2.23% (<sup>147</sup>Nd) 及び 0.148% (<sup>153</sup>Sm) と大きい。このため、高 U 濃度試料の LN 分析で は<sup>235</sup>Uの核分裂の寄与を考慮しなければならない。この寄与は、Uの同位体組 成と純度の認証値が付与された金属 U 標準試料 IAERI-U45) を溶解した、U 標準 溶液を中性子照射して検討した。Uの標準溶液とLa、Ce、Nd 及び Sm の標準 溶液を別々の石英アンプルに封入して、IRR-2 気送管(Pn)で 20 分間同時に中 性子を照射した後、同一ジオメトリーで各アンプルの y 線を測定した。UとLN (La、Ce、Nd、Sm)の質量比に対する、測定されたLN-RN(<sup>140</sup>La、<sup>141</sup>Ce、 <sup>147</sup>Nd、<sup>153</sup>Sm)の中性子核分裂によって生成された放射能の割合(%)を図4に 示す。235Uの累積核分裂収率と中性子放射化の感度の関係から、235Uの核分裂反 応の影響は<sup>141</sup>Ceと<sup>147</sup>Ndが最も大きいことが分る。前記の実験と同様にして調 製した U、La、Ce、Nd 及び Sm の標準溶液を、種々の照射孔で中性子を同時照 射して、各 LN-RN の y 線計数値から核分裂性 LN-RN の補正係数 (g Ln/g U) を求めた(表4)。この補正係数は、UとLNの中性子照射により、1gのUか ら生成される LN-RN と同じ放射能を得るために必要な LN のg 数に等しい。実 験した中性子照射条件下に於ける補正係数はほぼ一定値を示しており、これらの 照射条件下では毎回 LN-RN の補正値を測定することなしに、この平均値によっ て補正できる。産業総合研究所(旧地質調査所)の岩石標準試料(GSI IB-1と JG-1)と高U濃度のれき岩試料の分析における、Uの核分裂生成物の寄与の割 合を表5に示す。これまで報告されたNAAによるIB-1とIG-1の分析結果は、 Uの核分裂生成物の影響が無視されているようであるが、CeとNdでは0.6~

3.5%の寄与が有ることが分かった。更に、U が 268 ppm のれき岩試料では、 <sup>235</sup>U の核分裂の補正割合は 0.22% (<sup>153</sup>Sm) ~ 72% (<sup>147</sup>Nd) と大きい。



図 4 <sup>235</sup>U の中性子核分裂生成物の LN-RN (<sup>140</sup>La、<sup>141</sup>Ce、<sup>147</sup>Nd、<sup>153</sup>Sm) への寄与

衣4 LN の正里における U の甲性丁核ガ袋及心によう(主成される LN-KN の憎
---

百乙后		補正係数/	g LN∙g U¹	
际了户	<sup>140</sup> La	<sup>141</sup> Ce	<sup>147</sup> Nd	<sup>153</sup> Sm
JRR-2	$0.0110 \pm 0.00080$	$0.286\pm0.017$	$0.243\pm0.23$	$(4.59\pm 0.65)\times 10^{-5}$
気送管、20 min	(n = 7)	(n = 8)	(n=6)	(n = 4)
JRR-4	$0.00967 \pm 0.00073$	$0.281 \pm 0.0086$	$0.223\pm0.011$	$(7.93 \pm 4.2) \times 10^{-5}$
S- パイプ、6 hr	(n = 4)	(n = 5)	(n = 4)	(n = 4)
JRR-4	0.00880	0.314	0.260	$1.42 \times 10^{-4}$
T-パイプ、30 min	(n = 1)	(n=1)	(n = 1)	(n=1)
亚西	$0.0103 \pm 0.0011$	$0.286\pm0.016$	$0.237\pm0.021$	$(7.14 \pm 4.1) \times 10^{-5}$
7-2-3	(n = 12)	(n = 14)	(n = 11)	(n = 9)

表5 岩石試料分析における<sup>235</sup>Uの中性子核分裂反応によって生成された LN-RN の補正割合

宇东市					
武个十	$U (^{239}Np)$	La ( <sup>140</sup> La)	$Ce \ (^{141}Ce)$	Nd ( <sup>147</sup> $Nd$ )	$Sm \ (^{153}Sm)$
GSJ JB-1	1.65	46.2 (0.02)	70.2 (0.6)	28.6 (1.2)	5.57 (0.003)
GSJ JG-1	4.26	22.8 (0.09)	42.1 (2.0)	17.2 (3.5)	4.46 (0.007)
れき岩	268	32.6 (8.8)	70.2 (55)	29.2 (72)	6.39 (0.22)

反跳核分裂片:<sup>235</sup>Uの中性子核分裂反応によって生成された高エネルギー核分 裂片は、Uと接触する石英アンプル材料中に約 20µmの深さまで打ち込まれる ことが知られている<sup>8)</sup>。中性子照射をした U 比較標準試料から標準溶液を取り 出した空の容器を1 M 塩酸で洗浄した後、アンプル内側表面から約 30µm 以上 の厚さを 46%フッ化水素酸で溶解して、溶解液に含まれる LN-RN の放射能を測 定した。U 標準溶液の中性子照射によって生成された全<sup>140</sup>La、<sup>141</sup>Ce 及び<sup>147</sup>Nd 放射能の内、石英管中に打ち込まれた割合(打ち込み率、%)の測定結果を表 6 に示す。U の比較標準試料の中性子照射に使用した石英アンプル 6~8本につい て分析した結果、<sup>235</sup>U の中性子核分裂で生成した<sup>140</sup>La、<sup>141</sup>Ce 及び<sup>147</sup>Nd の 5.1~ 7.6%が石英管中に打ち込まれることが分かった。なお、上記 3 種類以外の核分 裂生成物 LN-RN の検出はなかった。本分析において、U 濃度計算及び<sup>235</sup>U の核 分裂によって生成した LN-RN の補正係数の計算には、石英管中に打ち込まれた LN-RN 量を補正した。

核分裂生成物	打ち込み率/%
<sup>140</sup> La	$7.59 \pm 0.50 \ (n=8)$
<sup>141</sup> Ce	$6.58 \pm 0.95 \ (n=6)$
<sup>147</sup> Nd	$5.13 \pm 1.2 \ (n=7)$

表 6 石英管中に打ち込まれた<sup>140</sup>La、<sup>141</sup>Ce 及び<sup>147</sup>Nd の割合

#### 3.5 岩石標準試料の分析結果

本法による産業総合研究所(旧地質質調査所、GSJ)が作製した岩石標準試料 (GSJ JB-1 及び JG-1)中のLNとUの分析結果を表7と表8に示す。表には、比 較のためEbihara らがまとめた NAA の平均値<sup>12)</sup>と旧地質調査所1994年の推奨 値<sup>13)</sup>、及びそれらの値に対する本法の定量値の比を示す。更に、LNとUについ て、NAA 平均値及び GSJ の1994年推奨値に対する本法による定量値の比のプ ロットを図5に示す。図には、GSJ の1994推奨値に対する NAA 平均値の比も 示す。図より、以下の考察が可能である。

	濃度/µg·g <sup>·1</sup>								比	較	
元素	元素 本法			NAA 平均值 <sup>a</sup>			GSJ 1994 年推奨值 <sup>b</sup>			本法/	本法/
	平均	標準偏差	n	平均	標準偏差	n	平均	標準偏差	n	NAA 平均	GSJ1994
La	46.2	5.1	6	38.4	2.2	10	38.6	4.3	52	1.203	1.197
Ce	70.2	5.4	6	68.3	4.1	12	67.8	6.8	60	1.028	1.035
Nd	28.6	1.0	3	26.6	2.5	3	26.8	2.3	42	1.075	1.067
Sm	5.57	0.27	6	5.10	0.42	10	5.13	0.5	51	1.092	1.086
Eu	1.58	0.10	6	1.54	0.06	8	1.49	0.15	55	1.026	1.060
Gd	4.93	0.23	3	4.79	0.69	4	4.90	0.47	28	1.029	1.006
Tb	0.757	0.036	6	0.85	0.26	9	0.82	0.19	32	0.891	0.923
Tm	0.392	0.029	3	0.344	0.008	2	0.35	0.056	16	1.140	1.120
Yb	2.17	0.073	5	2.19	0.17	9	2.13	0.26	49	0.991	1.019
Lu	0.296	0.017	5	0.320	0.030	8	0.31	0.0029	45	0.925	0.955
U	1.65	0.20	3		—		1.67	0.28	39		0.988
									平均	1.04	1.04

表7 岩石標準試料 GSJ JB-1 の分析結果

a:NAA の平均値<sup>12)</sup>、b:GSJ の 1994 年推奨値<sup>13)</sup>

	濃度/μg·g <sup>-1</sup>						比	較			
元素		本法		NA	AA 平均值	a	GSJ 1	994 年推奨	ŧ値 <sup>b</sup>	本法/	本法/
	平均	標準偏差	n	平均	標準偏差	n	平均	標準偏差	n	NAA 平均	GSJ 1994
La	22.8	1.7	6	28.4	4.3	7	22.4	2.7	38	0.803	1.018
Ce	42.1	4.1	6	44.4	3.1	8	45.8	4.7	43	0.948	0.919
Nd	17.2	0.59	3	20.5	1.8	2	19.3	2.5	31	0.839	0.891
Sm	4.46	0.41	6	4.95	0.45	7	4.62	0.56	41	0.901	0.965
Eu	0.717	0.051	6	0.745	0.0085	8	0.73	0.10	38	0.962	0.982
Gd	4.00	0.60	3	3.73	0.33	2	4.28	0.69	21	1.072	0.935
Tb	0.748	0.072	6	0.823	0.099	4	0.78	0.31	21	0.909	0.959
Tm	0.550	0.14	3	0.538	0.057	3	0.41	0.14	13	1.022	1.341
Yb	2.97	0.47	6	3.05	0.64	8	2.47	0.73	35	0.974	1.202
Lu	0.436	0.064	6	0.518	0.089	7	0.39	0.12	30	0.842	1.118
U	4.26	0.21	2		—		3.47	0.71	41		1.228
									平均	0.927	1.051

表8 岩石標準試料 GSJ JG-1 の分析結果

a:NAA の平均値<sup>12)</sup>、b:GSJ の 1994 年推奨値<sup>13)</sup>



図 5 本法による岩石標準試料(GSJ JB-1、JG-2)の分析結果と NAA 平均値<sup>12)</sup> 及び GSJ の 1994 年推奨値<sup>13)</sup>の比較

JB-1 では:

- 本法のLaとTmの結果はNAAの平均値及びGSJ1994年の推奨値と比べて、20%(La)及び10%(Tm)高いが、その他のLNとUの結果は両者と10%以内で一致している。
- NAAの平均値とGSJ1994年の推奨値は、ほぼ5%以内で一致している。
  JG-1では:
- 本法による低原子番号LN(La、Ce、Nd、Sm、Eu、Gd)の定量値は、 GSJ1994年の推奨値と0~-10%で一致したが、Tm、Yb、Lu及びUは 10~34%高い。
- ② 本法による LN の定量値は、NAA の平均値と 20%以内で一致した。
- NAA 平均値と GSJ1994 年推奨値と比較すると、Ce、Nd、Sm、Eu、Gd 及び Tb はほぼ 10%で一致したが、La、Tm、Yb 及び Lu は 23 ~ 33%の 差異がある。

## 4. まとめ

岩石中 10 種類の LN と U を定量する RNAA 法を確立した。本法は、RNAA 法の最大の不確かさ要因である放射化学分離による分析対象 RN の化学収率を ICP-AES (LN-RN) と<sup>237</sup>Npトレーサー (<sup>239</sup>Np) によって測定して、補正した。 さらに、LN と U の中性子照射により、LN の (n, y) 反応と<sup>235</sup>U の中性子核分 裂反応の両方から生成する<sup>140</sup>La、<sup>141</sup>Ce、<sup>147</sup>Nd 及び<sup>153</sup>Sm について、試料中に含 まれる<sup>235</sup>U の核分裂分裂反応による寄与を明らかにするとともに、その補正も した。このような補正により、本法による岩石標準試料 (GSJ JB-1 と JG-1) の 分析結果は、NAA の平均値及び GSJ の 1994 年推奨値と、JB-1 では 20%以内で、 及び JG-1 では 30%以内で一致した。

(本研究は、1990~1992年頃日本原子力研究所東海研究所で実施された。)

付録

本分析法で使用する LN の各種混合標準溶液の内容を以下の付表に示す。

付表1 LN比較標準試料の調製に使用した混合標準溶液とそれらの採取量

付表2 LN 担体溶液の調製法と濃度組成

付表3 ICP-AESによるLNの検量線を作成するためのLN混合標準溶液

付表4 RNAA 用比較標準試料

	短	[時間照射】	丮	長時間照射用			
元素	濃度/	淡海夕	溶液量/	濃度/	滚海夕	溶液量/	
	$\mu  \mathrm{g} \cdot \mathrm{g}^{-1}$		g	$\mu  \mathrm{g} \cdot \mathrm{g}^{-1}$		g	
La	327.4			33.15			
Gd	773.3	LN-1B	20.2912	78.31	LN-1B2	25.0151	
Tm	31.11			3.150			
Ce	433.9			45.17		25.0203	
Nd	422.4	IN 9D	20.2561	44.26	I N 9D9		
Sm	5.583	LIN-2D	20.3301	0.5850	LIN-2D2		
Yb	54.88			5.751			
Eu	4.247			0.4494			
Tb	12.74	LN-3B	20.0364	1.347	LN-3B2	25.0015	
Lu	7.081			0.7488			

付表1 LN 比較標準試料の調製に使用した混合標準溶液とそれらの採取量

付表 2 LN 担体溶液の調製法と濃度組成

一手手	称昌平	採取具/m	濃度/µg·mL¹		
儿杀	竹里心	1不収里/g	混合值	定量值	
La	$La_2O_3$	0.2236	762.7	735.3	
Ce	$Ce_2(SO_4)_3 \cdot 8H_2O$	1.0703	1684	1584	
Nd	$Nd_2O_3$	0.3204	1123	1008	
Sm	$Sm_2O_3$	0.1452	501	508.7	
Eu	$Eu_2O_3$	0.0866	299.2	287.2	
Tb	$\mathrm{Tb}_4\mathrm{O}_7$	0.3361	1143	1160	
Ho	$Ho_2O_3$	0.0809	282.5	284.4	
Tm	$Tm_2O_3$	0.0285	99.82	101.5	
Yb	Yb 標準溶液	6.1754	46.12	46.85	
Lu	$Lu_2O_3$	0.0220	77.39	78.02	
	合計		6018	5794	

水溶液量: 250 mL、水溶液の液性: 0.1 M HCl

元素		水溶液名及び	濃度/μg·mL <sup>-1</sup>	
	LCP10	LCP11	LCP12	LCP13
La	49.51	1.590	3.976	7.951
Ce	200.4	4.008	10.02	20.04
Lu	13.36	0.2673	6.0082	1.336
-	LCP20	LCP21	LCP22	LCP23
Nd	120.2	2.404	6.010	12.02
Tb	120.0	2.399	5.998	12.00
Но	30.10	0.6019	1.505	3.010
Yb	5.067	0.1013	0.2534	0.5067
	LCP30	LCP31	LCP32	LCP33
Sm	61.52	1.230	3.076	6.152
Eu	39.76	0.7952	1.988	3.976
Tm	11.37	0.2274	0.5685	1.137
Cd	157.8	3.156	7.889	15.78
水溶液量	50 mL	100 mL	100 mL	100 mL
液性	1 M HCl	1 M HCl	1 M HCl	1 M HCl

付表3 ICP-AES による LN の検量線を作成するための LN 混合標準溶液

付表 4 RNAA 用比較標準試料

照射区分	中性子照射	熱中性子束/ n・cm <sup>-2</sup> ・sec <sup>-1</sup>	元素	質量/μg	標準溶液	採取量/g
岩石試料用 短時間照射	JRR-4 T- パイプ 30 min	$6.0 \times 10^{13}$	La	32.7	LN-1B	0.1
			Gd	77.3		
			Tm	3.11		
			Ce	43.4	LN-2B	0.1
			Nd	42.2		
			Sm	0.558		
			Yb	5.49		
			Eu	0.425	LN-3B	0.1
			Tb	1.27		
			Lu	0.708		
			U	8.12	U4-5	0.1

## 文献

- W. R. Allexander, R. D. Scott, A. B. MacKenzie, I. G. Mckinley: Radiochim. Acta, 44/45, 283 (1988).
- M. T. Menager, J. C. Parneix, J. C. Petit, J. C. Dran: Radiochim. Acta, 44/45, 291 (1988).
- 3) 米沢仲四郎、黒澤達也:武蔵大学人文学会雑誌、56、No.2 165 (2024).
- 4) IAEA: Isotope Browser, Joint Evaluated Fission and Fusion File JEFF 3.1.1
- 5) 日本原子力研究所核燃料 · 炉材料等分析委員会: JAERI-M 5343 (1973).
- 6) 吉田博之、米沢仲四郎:分析化学、19、238 (1970).
- 7)米沢仲四郎、星三千男、アブドラモハメッド、比左勇、山本克宗:原子力誌、29、58 (1987).
- 8) 米沢仲四郎、星三千男:分析化学 39、25 (1990).
- 9) F. W. E. Strelow, C. J. C. Bothma: Anal. Chem., 36, No.7, 1217, (1964).
- 10) M. Ebihara: J. Radioanal. Nucl. Chem., 111, 385 (1987).
- 11) K. Toyoda, H. Haraguchi: Bull. Chem. Soc. Jpn., 60, 933 (1987).
- 12) M. Ebihara, Y. Minai, M. K. Kubo, T. Tominaga, N. Aota, T. Nikko, K. Sakamoto, A. Ando: Anal. Sci., 1, 209 (1985).
- N. Imai, S. Terashima, S. Itoh, A. Ando : Geostandards Newsletter, 19, 135 (1995).