

중성자방사화분석에 의한 지하수중 우라늄의 정량

Determination of Uranium in Groundwater by Instrumental Neutron Activation Analysis

정용삼(Yong Sam Chung) · 문종화(Jong Hwa Moon) · 정영주(Young Ju Chung)
박광원(Kwang Won Park)

요약 : 담수나 해수와 같은 자연수중의 우라늄(U)의 농도는 0.01~5 ppb 수준으로서 극미량 원소분석법을 필요로 한다. 본 연구는 고감도의 비파괴법인 중성자방사화분석법을 이용하여 지하수중의 우라늄을 신속, 정확하게 정량할 수 있는 방법에 대하여 시료를 증발농축 전처리하는 방법과 직접 분석하는 방법을 비교 검토하였다. 표준용액(0.5~100 ppb)을 이용하여 분석법을 검증하였다. 주어진 농도범위에서 검정곡선의 평균편차는 2% 이하를 나타냈으며, 각 측정값의 상대표준편차는 2~12% 이내이었다. 동일시료에 대한 시기별 농도의 편차는 10.3%이었다. 본 방법을 이용하여 충청지역의 17개 관정으로부터 지하수시료를 채취하여 우라늄 농도를 정량한 결과 1 ppb에서 80 ppb 수준인 것으로 확인되었다.

Abstract : In general the concentration of uranium in natural water such as fresh water and sea water is in the range of 0.01~5 ppb, therefore trace analytical technique is required. The aim of present work is to compare a direct and preconcentration methods by evaporation and to investigate rapid and accurate trace analysis of uranium in groundwater using Instrumental Neutron Activation Analysis (INAA) which are sensitive and nondestructive method. Identification of analytical procedure was carried out using uranium standard solution of the range of 0.5~100 ppb. In the given concentration, the deviation of calibration curve was less than 2%, and the standard deviation of measured values at each concentration was the range of 2~12%. The difference of U content with sampling time for the same sample site was about 10.3%. Using this established method, the concentrations of uranium in samples collected at the 17 spring of Choongchung areas were found to be in the range of 1~80 ppb.

서 론

담수 및 해수 등의 자연수중 미량원소의 분석은 지구표면에 대한 화학종의 지화학적 이동을 조사하기 위해서 뿐만아니라 인간활동에 의한 수생물계의 환경오염을 실증하기위해 아주 중요하다(Benes and Steinnes, 1975; Benes *et al.*, 1976). 원자흡수분광법(AAS), 유도플라즈마분광법(ICP), X-선형광분광법(XRF), 양극벗김 전압전류법 및 중성자방사화분석(NAA)과 같은 화학 및 물리적인 기기분석법이 자연수 시료중의 미량원소 농도를 정량하는데 이용된다(Michaelis, 1986). 이들중 NAA는 높은 감도와 정확도로 많은 미량원소를 동시에 정량할수있기 때문에 이러한 목적을 위해 적용할 수 있는 흥미로운 방법중의 하나이다(Clemente and Mastinu, 1974; Lieser *et al.*, 1977; Naeem, 1986). 여러 가지 미량원소중 우라늄광의 탐사나 환경방사능과 관련있는 우라늄의 분석에 많은 관심이 있었으며, 현재까지 강수, 호수, 지하수, 우수 및 해수를 포함하는 자연수 시료의 NAA에 대해 수많은 연구보고가 있으며, 보고된 자료에 의하면 담수와 해수중의 우라늄의 농도범위는 각각 0.01~

12(평균 1.5) $\mu\text{g/L}$, 1.2~4.2(평균 2.7) $\mu\text{g/L}$ 로 알려져 있다(Alfassi, 1990). Table 1에는 NAA에 이용되는 우라늄 동위원소의 핵적 성질, 분석감도 및 자연수중의 측정된 원소농도를 보고된 문헌자료를 바탕으로 요약하였다. NAA로 우라늄을 분석하는 방법은 ^{238}U 의(n, γ)핵반응으로부터 연속적으로 생성되는 ^{239}U (Gladney, *et al.*, 1976; Jubeli and Parry, 1986; Van Der Sloot *et al.*, 1975)과 ^{239}Np (Fakhi *et al.*, 1988), ^{235}U 의 핵분열 반응물의 형성에 기반을 둔 감마선 또는 지발중성자계측법(Brits and Smit, 1977; Rosenberg *et al.*, 1977)이 이용되어왔다. 그러나 높은 분석감도를 갖는 NAA라 할지라도 몇가지 이유 때문에 물시료에 직접 적용하는 것이 효과적이지 못한 경우도 있다. 첫째, 일부 미량원소들은 자연발생 수준의 극히 낮은 농도로 존재할 수 있다. 이들 원소를 직접적으로 정량하는 것은 어렵다. 왜냐하면 대용량 물시료의 조사는 대부분의 연구로 조사시설에서 제한되어 있기 때문이다. 둘째, 자연수중에 풍부하게 존재하는 Na, Cl, Br등은 중성자 조사후 감마스펙트럼상에서 다른 핵종의 특성 피크를 가리는 높은 준위의 방사능을 생성한다. 이것은 많은 미량원소의 정량에서 특히, 단수명 및 중수명 핵종을 생성하는 원소에서 중요한 방해가 된다. 이러한 문제를 해결하기 위해서, 일반적으로 중성자 조사전에 미량 목적원소의 선별 농축 또는 주요 간섭원소의 제거기술을 적용한

*한국원자력연구소(Korea Atomic Energy Research Institute, P.O. Box 105, Yusung, Taejon 305-600, Korea)

Table 1. Nuclear properties of nuclide and the concentration level and sensitivity of uranium in natural fresh water

Element	Nuclide	Half-Life	Gamma-Ray (keV)	Sensitivity, ng* (Detection Limit, $\mu\text{g/l}$)	Concentration reported ($\mu\text{g/l}$)	
					Fresh water (Average)	Sea water (Average)
U	^{239}U	23.5 m	74.7	10 (1-3)	0.019-12 (1.5)	1.2-4.2 (2.7)
	^{239}Np	2.35 d	277.6	0.3 (0.1-1.5)		

* Sensitivity is given in ng of element resulting 1000 counts of gamma peak area under the following analytical conditions: HP Ge-detector: EG&G ORTEC, GEM 25% Efficiency, 1.85 keV FWHM, thermal neutron flux: $1.7 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \text{ s.}$: ^{239}U : $T_i=10 \text{ m}$, $T_d=10 \text{ m}$, $T_c=300 \text{ s}$; ^{239}Np : $T_i=1\text{h}$, $T_d=7\text{d}$, $T_c=10000 \text{ s}$

() Detection Limit by Currie's definition: $2.33 \sigma_B$.

다(Nyarko and Chatt, 1982; Holzbecher and Ryan, 1980). 증발, 흡착, 공침, 이온교환 및 용매추출법과 같은 사전농축법 등이 이러한 목적을 위해 특별한 관심을 갖는 것들이다. 그러나 시료의 전처리과정을 거치는 경우에 시료의 손실이나 내, 외부 오염을 고려하지 않을 수 없다. 본 연구에서는 자연수중의 우라늄 농도를 간단하고 정확하게 측정하는 방법으로서 ^{239}U 를 이용하는 직접법과 ^{239}Np 를 이용하는 사전 농축법을 비교검토하였으며, 전처리과정이 없는 직접법을 몇 가지 실제 시료의 분석에 적용하여 우라늄농도를 측정하고자 하였다.

실험방법

시료의 준비

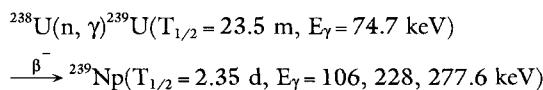
검정곡선 작성에 사용한 표준용액은 미국표준연구소의 분광분석용 표준물질(NIST SRM 3164, 10 mg/ml-10% HNO_3)을 카이크로 피펫으로 취하여 10 ml 용량플라스크에 옮긴 후 탈이온수($18\text{M}\Omega$)로 단계적으로 희석하여 사용하였다. 표준용액 제조에 사용된 HNO_3 (Merck Co.)와 중류수는 분석용시약을 사용하였다. 지하수시료는 대전지역 및 충청지역의 식수로 이용되는 관정으로부터 수집하였고, 오염을 최소화하기 위하여 시료수집용기(Polyethylene bottle) 및 모든 초자류(Pyrex glass)는 묽은 질산(1:5)에서 처리한 후 이차증류수로 세정하여 사용하였다. 분석에 사용한 시료는 ^{239}U 를 이용한 경우는 1-2 ml 시료용액을 깨끗한 고순도 폴리에틸렌 용기에 넣어 가열밀봉하여 조사시료로 준비하였고, ^{239}Np 를 이용한 경우에는 1 l의 시료용액을 카이커에 넣어 깨끗한 후드안의 열판상($60\text{-}70^\circ\text{C}$)에서 서서히 증발건고하여 얻은 500 mg 정도의 잔류물을 화학천칭(Mettler, 0.01 mg)으로 정확히 칭량한 후 조사용기에 넣어 밀봉하여 준비하였다.

시료의 조사

분석시료의 방사화를 위하여 한국원자력연구소의 연구용원자로인 HANARO의 PTS($\phi_{th}=1.7 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$)를 이용하였다. 비교법에 의한 분석을 위하여 표준용액과 시료를 동시에, 동일한 기하학적 조건에서 조사하여 조사시간동안의 중성자속의 차이등에 영향을 받지 않게 하여 분석오차를 최소화시켰으며, 중성자속의 변동 확인이나 정확한 중성자속을 측정하기 위하여 activation wire monitor(Au, Cu, Mn, Fe: Reactor Exp. 회사의 순도 99.99%)를 함께 조사하였다.

감마선의 측정

방사능 계측에 사용한 고순도의 게르마늄 반도체 검출기는 EG&G ORTEC사 제품(GEM 25185p)으로서 25% relative efficiency, ^{60}Co 의 1332 keV에서 1.85 keV FWHM 및 Peak to Compton ratio가 62:1이다. 검출부는 10 cm 두께의 납으로 차폐시켜 자연방사능 및 외부 방사선의 영향을 최소화하였고 Pb KX-선과 Cd KX-선의 영향을 최소화하기 위해 카드뮴과 동판으로 내장하였으며, 감마선 스펙트럼의 수집 및 피아크 해석을 위해 16K-Multichannel Analyzer(MCB 919, EG&G ORTEC)와 personal computer에 연결하였다. 또한 에너지 및 검출효율을 교정해주기 위해 NIST로부터 보증받은 NEN사의 디스크형 표준복합선원($80\text{~}1840 \text{ keV}$)을 사용하였다. 계측시간동안의 통계적 오차를 줄이기 위해 불감시간은 항상 5%이하로 유지하였으며 감쇠 및 pile-up의 보정은 MCB(Multi-Channel Buffer)와 주증폭기에서 자동적으로 수행되도록 구성하였다. 방사능 계측을 위한 분석조건인 시료의 조사시간(T_i), 냉각시간(T_d) 및 계측시간(T_c)은 다음과 같다; ^{239}U 이용: $T_i=20\text{분}$, $T_d=10\text{~}20\text{분}$, $T_c=600\text{~}1,000\text{초}$, ^{239}Np 이용: $T_i=2\text{ 시간}$, $T_d=7\text{~}10\text{일}$, $T_c=4,000\text{~}6,000\text{초}$. 중성자방사화분석에 사용한 우라늄의 핵반응과 핵적성질은 다음과 같다.



결과 및 토의

표준용액을 이용한 분석법의 검증

분광분석용 우라늄 표준용액으로 만든 0.5~100 ppb 농도범위의 7가지 희석용액을 이용하여 직접법(^{239}U)에 의한 검정곡선을 작성하였으며 Figure 1에 나타냈다. 주어진 농도범위에서 검정곡선의 평균편차는 2% 이하를 나타냈으며, 중성자방사화분석에 의한 각 측정값의 상대표준편차는 2-12%이내이었다. 높은 농도범위(> 10 ppb)보다 낮은 농도에서 큰 계통오차를 나타냈다. 이것은 용액을 제작할 때 발생되는 오염이나 손실 및 원소의 농도가 낮을 때 낮은 방사화율에 의한 적은 계측수에 따른 통계오차의 증가에 기인한 것으로 판단된다. Table 1에 보인 바와 같이 주어진 농도범위에서 Currie의 정의(Currie, 1968)에 의해서 계산한 직접법과 사전 농축법(^{239}Np)의 검출판정한계는 각각 1~3 ppb, 0.1~1.5 ppb 범위내에 있었다.

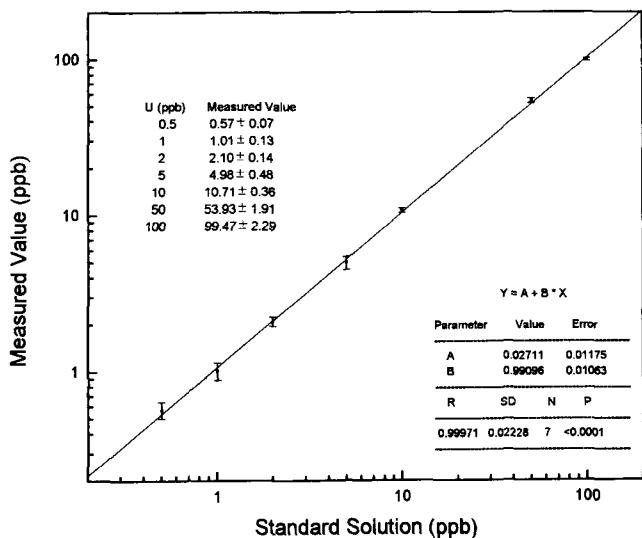


Figure 1. Calibration curve of U standard solution.

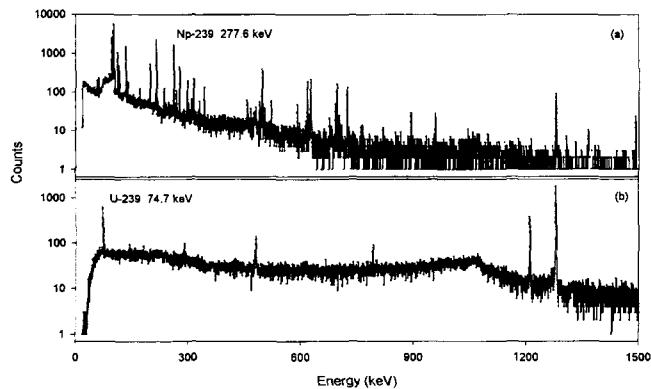


Figure 2. Gamma-ray spectra of ^{239}U and ^{239}Np in water samples. sample irradiation: pneumatic transfer system of HANARO Reactor (neutron flux: $1.7 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2\text{s}$) counting system in HPGe-detector (GEM 25185, EG &G ORTEC, 25% efficiency, peak to compton ratio; 62:1) (a) $T_i:2\text{h}$, $T_d:7\text{d}$, $T_c: 4000\text{s}$; (b) $T_i:20\text{ m}$, $T_d:20\text{ m}$, $T_c: 1000\text{s}$

직접법을 이용할 경우 약 10% 이하의 오차내에서 극미량 우라늄의 정량이 가능한 것을 알 수 있었다. Figure 2에는 동일한 지하수시료에 대한 직접법과 농축법간의 감마선 스펙트럼의 비교를 위해서 함께 나타냈다. 지하수시료에서 미지의 화학종으로부터 매질간섭효과의 가능성을 조사하기 위하여 비례계통 오차의 발생을 평가하거나 특정시료의 교정곡선을 결정할 때 필요한 표준체 부가법을 이용하여 회수율실험을 하였다. 우라늄 농도가 다른 다섯 가지 표준용액을 선정된 지하수시료에 첨가하여 직접법으로 정량하였다. Table 2에 분석결과를 나타냈으며 정량 회수율은 평균 96.5% 이상이었다. 또한 Figure 3에 보인바와 같이 감마선 스펙트럼상에서 간섭효과는 나타나지 않았다.

직접법과 농축법에 의한 분석결과 비교

Table 2. Result of standard addition method of uranium to groundwater sample

U added, ng/ml	U found, ng/ml	Spike Recovery	
		ng/ml	%
0.0	19.9 ± 2.7	0.0	100
7.5	27.4	7.5	100
15.0	34.1	14.2	95
22.5	41.8	21.9	97
30.0	48.2	28.3	94
37.5	56.8	36.9	98

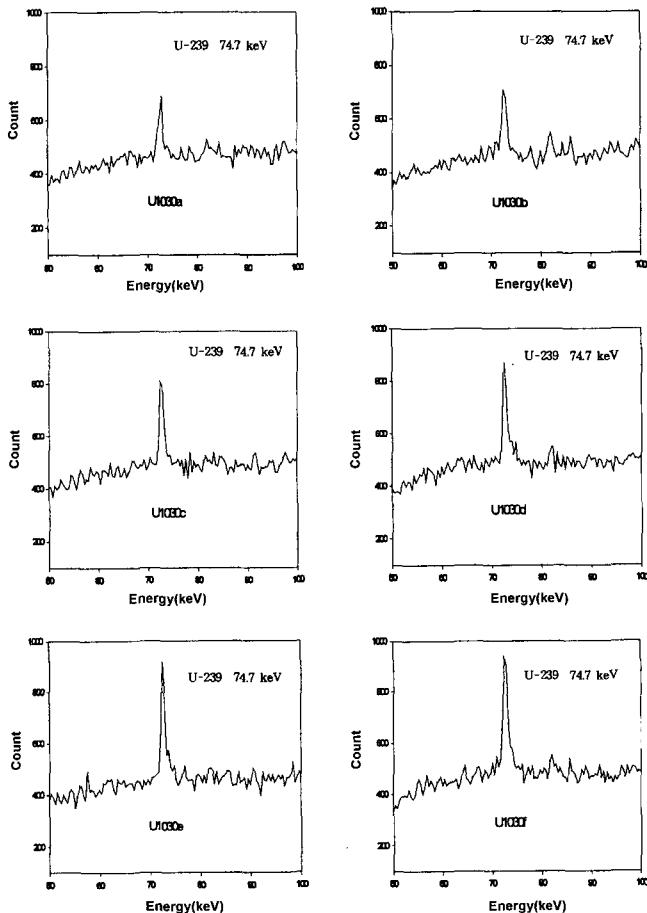


Figure 3. Gamma-ray spectra obtained from standard addition of uranium to water sample: a) unspiked, b) 7.5 ppb, c) 15 ppb, d) 22.5 ppb, e) 30 ppb, f) 37.5 ppb

Table 1에 보인바와 같이 비파괴 중성자방사화법을 이용한 우라늄의 분석에서 핵적성질, 특히 반감기의 장단에 따라 조사 시간이 다른 직접법이 사전 농축법보다 분석감도는 낮으나 수용가능한 정확도를 가질 경우에 신속한 일상 분석법으로서 대량의 시료분석에 유리할 수도 있다. 그러나 74.7 keV의 감마선을 측정하여 정량하는 경우에 검출기 차폐물질인 납과의 상호작용에 의한 약 75 keV 부근의 Pb KX-선 및 Al, Ca, Cl, Na, Mg, Mn, K 등과 같은 단수명핵종의 간섭영향을 충분히 검토해야 한다. 본 실험에서 사용한 감마선측정시스템(GEM 25185p, EG &G ORTEC)에서 75 keV 부근의 Pb KX-선의 영향을 알아보

Table 3. Comparison of analytical results between various methods

Analytical Method	U concentration, ng/ml		
	UW-1	UW-2	UW-3
INAA(²³⁹ U)	15.8±0.8	24.7±1.2	1.84±0.22
INAA(²³⁹ Np)	12.7±0.4	19.5±0.8	1.11±0.50
ICP-MS	12.1±0.35	-	0.62±0.013
Fluorospectrometry	10.0±0.51	-	1.88±0.41
α-spectroscopy	13.8±0.28	-	2.76

기 위한 혼합표준선원을 이용한 감마선의 측정에서 Pb KX-선 피아크 계측수는 0.01 cps 이하로 무시할 수 있는 수준이었다. 농축법을 이용하는 경우에는 핵적, 분광학적 간섭이 없는 277.6 keV 감마선을 이용하여 분석하였으며 조사된 시료를 충분히 냉각시킨 후 계측하기 때문에 측정오차에 영향을 주는 감마분광학적 간섭영향은 적으나 시료의 농축과 계측에 소요되는 분석시간이 길다는 단점이 있었다. 사전농축시에 우라늄의 회수율은 약 88% 이었다. 효과적인 우라늄의 정량법을 비교하기 위하여 농도가 다른 세 종류의 지하수시료를 선정하여 직접법과 농축법 간 분석결과를 비교하였으며, 다른 화학분석법에 의한 측정결과와 함께 Table 3에 나타냈다. 두 방법으로 얻은 결과로부터 UW-1과 UW-2 측정값의 상대표준편차는 5% 이내이었으나 농도가 10배 이상 낮은 UW-3는 크게 나타났다. 직접법과 농축법에 의해 구한 평균값간의 편차는 20% 이었으며, 농도가 낮은 UW-3의 경우에는 더 큰 편차를 나타내었으며, 직접법에 의해 구한 값이 크게 나타났다. 이것은 표준선원을 이용한 백그라운드의 영향과는 달리 실시료의 측정에서 저에너지 감마선 영역의 백그라운드가 1 MeV 이상의 고에너지 감마선의 강한 방사능에 의해 일부 증가된 영향으로 추정된다. 타 방법에 의한 분석결과를 포함한 우라늄의 평균값은 UW-1의 경우는 12.88±1.91 ppb, UW-3의 경우에는 1.64±0.73 ppb였으며, 낮은 농도에서 방법간의 큰 편차를 나타내었다. 이상의 결과로부터 농축법에 의한 결과가 보다 정확한 것으로도 볼 수 있으나 수일 이상의 측정기간을 고려할 때, 1시간 이내의 짧은 분석시간으로 유사한 불확도를 갖는 직접법이 유용함을 알 수 있었으며, 일상 분석법으로 이용 가능한 것으로 평가할 수 있다.

충청지역에서 채집한 지하수시료의 분석

지하수시료내 우라늄의 농도는 시료의 채취시기에 따라 변할 수 있으며 분석결과에 영향을 미칠 수 있다. 따라서 임의로 선정한 장소에서 2개월간의 수집시기별 지하수시료의 우라늄의 농도변화를 측정하였다. Table 4에 직접법에 의한 측정결과를 나타냈으며 각 측정값의 상대표준편차는 2~12%이었고, 채집시기별 측정값의 평균 표준편차는 10.3%이었다.

본 분석법을 실제 시료에 적용하기 위해 식수로 사용하고 있는 대전 및 충정지역 일원의 17개 관정에서 채취한 지하수 시료 중의 우라늄 농도를 ²³⁹U 법으로 측정하였다. Table 5에 보인 바와 같이 측정된 우라늄의 농도분포는 지역에 따라 많은 차이가 있었고 1 ppb에서 80 ppb 수준인 것으로 확인되었으며 최근에 보고된 Lee등의 결과와 유사하였다(Lee, 1998). 각 측정값의 상대표준편차는 4~30% 범위에 있었다. 농도분포에 대한 통계

Table 4. Content of uranium in groundwater collected with sampling date using direct method (²³⁹U)

Code No.	U concentration, ng/ml	Sampling Date
UW01	16.4±1.9	06/11/98
UW02	14.2±0.9	06/18/98
UW03	14.6±0.5	06/25/98
UW04	14.6±1.0	07/02/98
UW05	17.1±0.5	07/09/98
UW06	15.0±1.5	07/16/98
UW07	17.5±0.5	07/23/98
UW08	15.0±0.4	07/30/98
UW09	18.1±1.8	08/06/98
UW10	19.1±0.9	08/13/98
Mean±SD	16.2±1.7 (10.3%)	

Table 5. Content of uranium in groundwater collected from sampling sites of Choongchung area using direct method (²³⁹U)

Code No.	U concentration, ng/ml	Statistics
TJ01	2.49±0.73	
TJ02	5.88±0.73	
TJ03	14.8±2.4	Range: 2.49~77.2
TJ04	16.2±1.2	Arithmetic Mean: 33.1±27.2
TJ05	27.7±2.8	Geometric Mean: 21.2/0.5
TJ06	30.4±6.0	Median: 27.7
TJ07	58.7±5.6	
TJ08	64.7±2.5	
TJ09	77.2±4.4	
CB01	3.66±0.38	
CB02	4.31±0.37	
CB03	5.42±0.99	Range: 3.66~42.8
CB04	7.83±1.77	Arithmetic Mean: 16.3±14.4
CB05	13.0±1.5	Geometric Mean: 11.3/0.4
CB06	23.3±2.7	Median: 10.4
CB07	30.4±2.3	
CB08	42.8±2.4	

처리에서 대전지역의 농도범위는 2.5~77.2 ppb 이었고 기하평균과 표준편차는 21.2±0.5 ppb 이었으며, 충북지역의 농도범위는 3.7~42.8 ppb 이었고 기하평균과 표준편차는 11.3±0.4 ppb 이었다. 지역에 따라 우라늄의 농도가 자연수중의 평균분포값보다 비교적 높게 나타난 것은 충청지역에 널리 분포되어 있는 우라늄광의 영향때문인 것으로 추정할 수 있다.

결 론

담수나 해수와 같은 자연수중의 우라늄(U)의 농도는 수 ppb 수준이 하로서 극미량 원소분석법을 필요로 한다. 본 연구는 고감도의 비파괴법인 중성자방사화분석법을 이용하여 지하수중의 우라늄을 신속, 정확하게 정량할 수 있는 방법에 대하여 시료를 증발농축 전처리하는 방법과 직접 분석하는 방법을 비교 검토하였다. 즉 직접법(²³⁹U)과 농축법(²³⁹Np)을 비교검토하였으며, 직접법을 몇 가지 실제시료의 분석에 적용하여 우라늄농도를 측정하였다. 표준용액(0.5~100 ppb)을 이용하여 분석법을 검증한 결과, 주어진 농도범위에서 검정곡선의 평균편차는 2% 이하를 나타냈으며, 각 측정값의 상대표준편차는 2~12%이

내이었다. 동일시료에 대한 시기별 농도의 편차는 10.3%이었다. 직접법을 이용할 경우에 ppb 농도수준에서 20% 이하의 분석오차로 신속하게 정량가능함을 알 수 있었으며, 따라서 대전 및 충청지역 일원의 식수용 17개 지하수시료를 채취하여 우라늄 농도를 정량한 결과 1~80 ppb 수준인 것으로 확인되었다. 본 방법은 대량의 지하수시료를 신속하게 분석해낼 수 있는 일상 분석기술로서 이용할수 있음을 알 수 있었다.

사 사

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었음.

참고문헌

- Benes, P. and Steinnes, E. (1975) Migration forms of trace elements in natural fresh waters and the effect of the water storage, *Water Res.*, 9, 741.
- Benes, P., Gjessing, E. T., and Steinnes, E. (1976) Interrelations between humus and trace elements in fresh water, *Water Res.*, 10, 711.
- Brits, R. J. N. and Smit, M. C. B. (1977) Determination of uranium in natural water by preconcentration on anion exchange resin and delayed neutron counting, *Anal. Chem.*, 49, 67.
- Clemente, G. F. and Mastinu, G. G. (1974) Instrumental method for the determination method of trace elements in water samples by neutron activation analysis, *J. Radioanal. Chem.*, 20, 707.
- Currie, L. A. (1968) Limits for qualitative detection and quantitative determination, *Anal. Chem.*, 40(3) p. 586-593.
- Fakhi, S., Paulus, J. M. and Bouhlassa, S. (1988) Neutron activation analysis of uranium via ^{239}Np , *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, Articles, 121, 1, 99.
- Gladney, E. S., Owens, J. W. and Starner, J. W. (1976) Determination of uranium in natural waters by neutron activation analysis, *Anal. Chem.*, 48, 973.
- Holzbecher, J. and Ryan, D. E. (1980) Determination of uranium by thermal and epithermal neutron activation analysis in natural water and in human urine, *Anal. Chim. Acta*, 119, 405.
- Jubeli, Y. M. and Parry, S. J. (1986) A new application of neutron activation analysis with ^{239}U to determination uranium in groundwater, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, Articles, 102, 337.
- Lee, M. H., Shin, H. A., Choi, G. S., Choi, Y. H., Lee, C. W. (1998) Determination of urannium isotopes in the ground water, Proceedings of the Korean Nuclear Society Autumn Meeting, Seoul, Korea, October 338p.
- Lieser, K. H., Calmano, W., Heuss, E. and Neitzert, V. (1977) Neutron activation as a routine method for the determination of trace elements in water, *J. Radioanal. Chem.*, 37, 717.
- Michaelis, W. (1986) Multielement analysis of environmental samples by total-reflection X-ray fluorescence spectrometry, neutron activation analysis and inductively coupled plasma optical emission spectroscopy, *Z. Anal. Chem.*, 324, 662.
- Naeem, A. (1986) Multielemental determination in water by neutron activation analysis, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, Articles, 100, 269; *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, Letter, 118 (1987) 79.
- Nyarku, S. K. and Chatt, A. (1982) Removal of sodium and chlorine from sea water prior to neutron activation analysis for trace elements, *J. Radioanal. Chem.*, 71, 129.
- Rosenberg, R. J., Pitkanen, V. and Sorsa, A. (1977) An automatic uranium analyser based on delayed neutron counting, *J. Radioanal. Chem.*, 37, 169.
- Van Der Sloot, H. A., Massee, R. and Das, H. A. (1975) Determination of uranium in sea and surface waters by neutron activation analysis after adsorption on charcoal, *J. Radioanal. Chem.*, 25 99.
- Zeev B. Alfassi (1990) Neutron Activation Analysis, vol. 2, p. 379, CRC Press, Inc. USA.