

유도결합플라스마 원자방출분광법을 이용한 모의 사용후핵연료 중 몰리브덴 분석

최광순* · 이창현 · 박순달 · 박양순 · 조기수

한국원자력연구소 원자력화학연구팀
(2000. 2. 21 접수)

Direct Determination of Molybdenum in Simulated Nuclear Spent Fuels by Inductively Coupled Plasma Atomic Emission Spectrometry

Kwang Soon Choi*, Chang Heon Lee, Soon Dal Park, Yang Soon Park and Kih Soo Joe

Nuclear Chemistry Research Team, Korea Atomic Energy Research Institute,

P.O. Box 105, Yusong, Taejeon, Korea

(Received February 21, 2000)

요 약: 사용후핵연료와 조성이 비슷한 모의 사용후핵연료를 고압 산분해법으로 용해시킨 후 우라늄 매트릭스로부터 몰리브덴을 분리하지 않고 유도결합플라스마 원자방출분광기(ICP-AES)로 바로 정량할 수 있는 분석조건을 검토하였다. 몰리브덴 분석에 미치는 우라늄의 분광학적 간섭 정도를 각각의 스펙트럼으로부터 비교, 평가한 결과 202.030과 203.844 nm의 파장이 분석선으로서 가장 적합하였으며, 보다 정확하고 정밀한 분석결과를 얻기 위하여 표준물 첨가법을 적용하였다. 우라늄 매트릭스로부터 몰리브덴을 양이온 교환수지(Bio-Rad AG 50W-X8)로 분리한 다음 ICP-AES로 분석한 결과와 직접 분석한 결과를 비교한 결과, 상대편차는 5% 범위 내에서 잘 일치하는 결과를 얻었다. 따라서 본 방법은 모의 사용후핵연료 용해용액 내에 함유되어 있는 몰리브덴을 바로 분석할 수 있을 뿐만 아니라 몰리브덴의 함량이 수 퍼센트인 우라늄-몰리브덴 합금 중 몰리브덴 정량에도 적용할 수 있었다.

Abstract: The SIMFUEL which composition is similar to PWR nuclear spent fuels was dissolved with an acid digestion bomb. Analytical conditions of ICP-AES for the direct determination of molybdenum in the uranium matrices without separation process were investigated. Based on the effect of uranium on molybdenum intensity, the most optimum wavelengths of molybdenum were found to be 202.030 and 203.844 nm. However, the method of standard additions is applied to overcome the effects of changing background caused by analyzing the sample solutions containing high concentration of uranium and the standard calibration solutions. The relative error of two methods, direct and indirect measurements with cation exchange resin separation procedures, was less than 5%. Therefore it was possible for this procedure to directly measure molybdenum in uranium matrices without separation. And this method was also applied to the determination of several percent of molybdenum in a U-Mo alloy.

Key words: SIMFUEL, U-Mo alloy, Direct determination, Molybdenum, ICP-AES

* Corresponding author
Phone : +82-(0)42-868-8149 Fax : +82-(0)42-868-8148
E-mail : nkschoi@nanum.kaeri.re.kr

1. 서 론

경수로 원자력발전에서 사용한 핵연료에는 다시 쓸 수 있는 유용한 성분이 많으므로 중수로 원자력발전의 연료로 쓰기 위한 경·중수로 연계 핵연료 (DUPIC, direct use of spent PWR fuel in CANDU) 연구를 1991년부터 캐나다와 미국을 중심으로 시작하였다. 1993년도에는 한국원자력연구소도 이 과제에 공동 참여하여 DUPIC 핵연료의 제조 및 성능 평가를 위한 연구를 수행해 오고 있다. 특히 DUPIC 핵연료 제조공정과 최종 품질 관리에 필요한 화학적 평가 분야에서는 사용후핵연료 내에 함유되어 있을 것으로 예측되는 핵분열생성물의 측정방법을 확립하여야 한다. Nd, Mo, Zr, Ce, Ru, Ba, Pd, La, Y, Sr 및 Rh과 같은 핵분열생성물의 양은 ORIGIN 2코드로 계산하면 대략 알 수 있다.¹ ORIGIN 2코드로 계산한 결과를 기준으로 하여 DUPIC 핵연료와 성분이 비슷한 모의 사용후핵연료 (SIMFUEL)를 만들고 이 연료는 핵분열생성물의 화학분석기술을 개발하기 위하여 쓰이고 있다. 핵분열생성물의 측정방법을 확립하기 위하여 본 연구에서는 천연 이산화우라늄 분말과 각 핵분열생성물 원소의 산화물을 혼합한 다음 여러 번의 산화, 환원 공정을 거쳐서 SIMFUEL을 만들었다. 이 시료중의 핵분열생성물 원소들을 유도결합플라즈마 원자방출분광법(ICP-AES)으로 정량할 때 우라늄에 의한 분광학적 간섭으로 인하여 우라늄과 위의 원소들을 분리한 다음 측정이 가능할 것으로 판단된다. 이들 원소 중 예비실험 결과에 의하면 몰리브덴은 우라늄에 의한 분광학적 간섭을 받지 않았으나 나머지 원소들은 간섭을 받아 바로 측정할 수 없었다.

미량 농도범위에서 금속원소의 정량이 가능한 ICP-AES의 많은 장점에도 불구하고 주성분에 의한 분광학적 간섭으로 인하여 시료의 매트릭로부터 분석하고자 하는 원소를 미리 분리할 필요가 있다.² 특히 우라늄과 같이 원자방출 스펙트럼이 매우 복잡한 매트릭 중에 미량으로 존재하는 원소를 정밀, 정확하게 분석하고자 할 경우에는 용매추출법,^{3,5} 이온교환법,⁶ 추출 크로마토그래피와 같은 분리방법으로 우라늄을 반드시 분리해야 한다. Fuxing 등은 UF₆에 1.5-30 ppm (μg/g U) 함유되어 있는 몰리브덴을 TBP (tributyl phosphate) 추출크로마토그래피로 분리한 다음 ICP-AES로 측정하였으며,⁸ Floyd 등도 우라늄 화합물에 미량으로 존

재하는 몰리브덴을 TEHP[tri(2-ethylhexyl)-phosphate]를 사용하여 우라늄과 불순물들을 분리하고 ICP-AES로 측정하였다.⁹ 한편 양이온교환수지법으로도 몰리브덴을 포함한 여러 가지 원소들을, Pd, Ru, Rh, Te, 우라늄으로부터 분리한 연구가 발표되었다.¹⁰ 그러나 현재 이산화우라늄 중 불순물 분리방법으로 광범위하게 사용되고 있는 TBP를 이용한 용매추출법은 질산 또는 염산 매트릭스에서 우라늄으로부터 금속원소들의 분리에 관한 자료들을 제공하고 있다. 그러나 본 연구에서와 같이 모의 사용후핵연료 내에 함유되어 있는 Ru, Rh, Pd, Zr 및 Mo과 같은 불용성 물질을 녹이기 위하여 질산과 염산의 혼합산을 사용할 경우 이 혼합산에서 몰리브덴의 분리에 관한 TBP의 분배계수를 알 수 없으므로 용매추출법을 적용할 수 없다. 또한 양이온교환수지법에 의한 분리과정은 특히 시료의 매트릭을 염산과 질산의 혼합산에서 염산으로 바꾸기 위해 가열판 위에서 2-3회 증발, 건조해야 하므로 많은 시간이 소요되는 단점이 있다.

한편 우라늄과 같이 원자방출 스펙트럼이 복잡할지라도 매트릭에 의한 분광학적 간섭이 없다면 분석원소의 함량이 고체를 기준으로 수 백 ppm (μg/g) 이상 존재할 경우, 분석능이 탁월한 ICP-AES로 바로 분석이 가능할 것이다. 앞서서도 언급하였듯이 예비 실험에 의하면 몰리브덴의 경우만 우라늄에 의한 분광학적 간섭을 받지 않았다. 따라서 본 연구에서는 모의 사용후핵연료 용액 중의 몰리브덴을 ICP-AES로 바로 측정이 가능한지를 조사하였다. 이 방법의 정확도를 확인하기 위하여 분리한 다음 측정된 결과를 기준으로 하여 두 방법의 상대오차를 견주어 보았다. 또한 이 방법을 한국원자력연구소에서 새로운 방법으로 제조하여 연구용 원자로의 연료로 사용하고자 하는 몰리브덴의 함량이 수 퍼센트인 우라늄-몰리브덴 합금 중의 몰리브덴 정량에도 적용하여 보았다.

2. 실험

2.1. 기기 및 장치

실험에 사용한 ICP-AES는 프랑스 Jobin Yvon사의 단색화 장치(model: JY 38 PLUS)이며 기기의 제원과 작동 조건은 Table 1에 나타내었다. 모의 사용후핵연료를 용해하기 위하여 독일 Parr사의 acid digestion bomb(model: 4746)과 덩개가 있는 25 mL 용량의 테

Table 1. Operating conditions for the JY 38 PLUS spectrometer

System	Sequential type
Focal length	1 m
Mounting	Czerny-Turner
Grating	3600 grooves/mm
Slits	Entrance slit 35 μ m Exit slit 40 μ m
Linear dispersion	0.26 nm/mm
Torch	Fassel type
Nebulizer	Meinhard
Spray chamber	Scott type
Outer gas flow	12 L/min
Sheath gas flow	0.4 L/min
Injector gas flow	0.4 L/min
Sample uptake rate	1 mL/min
Incident power	1000 W
Integration time	5 \times 0.5
Observation height	15 mm above load coil

프론 컵(model: A255AC)을 사용하였다. Heating block과 타이머가 부착된 온도조절장치는 각각 독일 Berghof사의 모델 DAH 2와 BTU 842를 사용하였다. 우라늄과 몰리브덴을 분리하기 위하여 직경 0.7 cm의 폴리에틸렌 재질의 일회용 피펫(SAMCO transfer pipet)을 양이온교환수지관으로 사용하였다.

2.2. 시 약

진한 질산(70%)은 Aldrich사 제품을, 진한 염산 32%와 37%는 각각 Merck사와 Aldrich 제품을 정제하지 않고 그대로 사용하였다. 모의 사용후핵연료와 우라늄-몰리브덴 금속합금은 한국원자력연구소에서 제조한 것을 사용하였다. 모의 사용후핵연료와 조성이 비슷한 모의 용액을 제조하기 위하여 Mo, Nd, U 및 Zr은 AccuTrace사와 Spex사의 표준용액(10,000 mg/L)을 Ba, Ce, La, Rh, Pd, Ru, Sr, Te 및 Y은 Spex사와 AccuTrace사의 표준용액(1,000 mg/L)를 사용하였으며, 양이온교환수지는 Bio-Rad사의 AG 50W-X8, 200-400 mesh를 사용하였다.

2.3. 모의 사용후핵연료 및 U-Mo 합금 용해

모의 사용후핵연료 250 mg을 정확히 달아 고압 산분해용 테프론 용기에 넣고 진한 염산과 질산의 혼합산(12.5 : 1, v/v)을 약 4 mL 취하여 테프론 용기에 가

하였다. 테프론 용기를 acid digestion bomb에 넣고 테프론 용기를 완전히 밀폐시킨 다음 acid digestion bomb을 heating block에 넣고 외부온도를 220°C로 맞추어 가열하였다. 이때 용해온도는 자동온도조절장치로 조절하였다. 20시간 후 가열을 멈추고 실온으로 냉각시킨 다음 용해용액을 정량적으로 25 mL 용량의 부피 플라스크에 옮겼다. 그리고 5 M 염산 5 mL로 테프론 용기를 씻어 위의 부피 플라스크에 넣고 5 M 염산 용액으로 25 mL 되게 하였다.

우라늄-몰리브덴 합금 0.1-0.3 g을 비커에 넣고 왕수 8 mL를 가하여 가열판 위에서 완전히 용해한 후 냉각한 다음 50 mL 용량의 부피 플라스크에 옮겼다. 그리고 증류수로 비커를 씻어 부피 플라스크에 넣고 증류수로 눈금까지 채웠다.

몰리브덴을 분리하기 위하여 모의 사용후핵연료와 우라늄-몰리브덴 합금 용해용액을 각각 3 mL 및 1 mL 취하여 비커에 넣고 가열판과 적외선 램프를 이용해서 증발, 건조하였다. 2 mL 정도의 5-6 M 염산을 가하고 다시 증발, 건조하는 조작을 3 회 반복하여 완전히 염화물로 바꾼 다음 1 mL의 0.5 M 염산으로 용해시켜 분리를 위한 최종 시료로 하였다.

2.4. 양이온교환수지를 이용한 Mo 분리

2.4.1. 양이온교환수지관 준비

비커에 Bio-Rad AG 50W-X8, 200-400 mesh 수지를 적당량 넣고 증류수로 1-2회 세척한 다음 묽은 염산(1 : 1, v/v)을 가하고 약 30분 동안 방치한 후 증류수로 3-4회 씻었다. 직경 0.7 cm의 폴리에틸렌 재질의 일회용 피펫으로 만든 분리관의 아래쪽 끝을 유리솜으로 막고 증류수를 10 cm 정도 채운 다음에 세척한 수지를 주입하여 7 cm 높이까지 채웠다(유속은 대략 10 mL/60 min). 5 mL의 5-6 M 염산으로 수지를 씻고 증류수로 염산을 완전히 씻은 다음 증류수를 채워 수지가 마르지 않게 보관하였다.

2.4.2. 몰리브덴 분리

시료를 전처리하는 동안 5 mL 이상의 0.5 M 염산용 양이온교환수지관에 흘려 넣은 후 10 mL 용량의 플라스크를 수지관 아래에 놓고 시료용액을 이온교환수지관의 상단에 넣었다. 소량의 0.5 M 염산으로 비커를 수 회 씻어서 수지관에 넣고, 이어서 용출액이 10 mL 될 때까지 0.5 M 염산을 흘려 넣었다. 수지교환능은

1.7 meq/mL이었으며 30 mg 정도의 우라늄은 수지판의 1/3 정도에 흡착되었다.

2.5. 몰리브덴 파장선택

몰리브덴과 우라늄의 농도가 각각 1과 1,000 mg/L인 용액과 몰리브덴과 우라늄의 농도가 1과 1,000 mg/L으로 혼합된 3개의 용액을 사용하여 4개의 몰리브덴 파장에서 우라늄에 의한 분광간섭 정도를 조사하였다. 선택한 파장의 좌우 0.0945 nm 범위를 조사하였으며, integration time은 스텝 당 0.1초, 스텝 크기는 0.003 nm이었다. 이러한 파장조사 결과는 알맞은 파장선택과 바탕값 위치를 정하는데 이용하였다. 기기의 검출한계(IDL)는 우라늄의 농도가 1,000 mg/L인 용액과 0.1 M HNO₃ 용액을 각각 주입하여 10회 측정을 3회 반복하여 얻은 표준편차의 3배 값으로 계산하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 몰리브덴 파장 선택과 검출한계

Fig. 1에서 알 수 있듯이 202.030 nm의 몰리브덴 파장 근처인 202.003 nm의 위치에 우라늄 피크가 나타났으나 본 연구에서 사용한 분광기의 분해능이 커서 충분히 구별할 수 있었다. 203.844 nm 파장에서는 Fig. 2에 나타내었듯이 1,000 mg/L의 우라늄에 의한 분광학적 간섭은 관찰되지 않았다. 그러나 Table 2와 3에서 알 수 있듯이 두 파장 모두 우라늄의 농도가 증가함에 따라 몰리브덴의 방출세기와 바탕 값이 증가하였으므로 바탕 값을 보정해 주어야 한다. 우라늄 매질로부터 몰리브덴을 분리하지 않고 바로 측정하기 위하여 우라늄의 농도에 따른 간섭 정도를 조사하였다. Table 2와 3에 나타낸 것 같이 몰리브덴의 두 파장에서 우라늄 농도를 0.0-1,000 mg/L 범위에서 변화시킨 결과 1 mg/L의 몰리브덴 정량에 영향을 주지 않았다. 204.598와 281.615 nm의 몰리브덴 파장은 우라늄 1,000 mg/L에서 바탕 값이 일정하지 않으므로 사용할 수 없었다. 한편, 202.030과 203.844 nm에서 검출한계(IDL=0.1 M HNO₃ 바탕용액을 사용하여 10회 측정하기를 3회 반복하여 얻은 표준편차의 3배로 계산)는 각각 0.59와 0.63 µg/L이었으며, 우라늄 농도가 1,000 mg/L인 용액을 바탕용액으로 하여 측정한 검출한계는 각각 0.82과 0.79 µg/L로 크게 변하지 않았다.

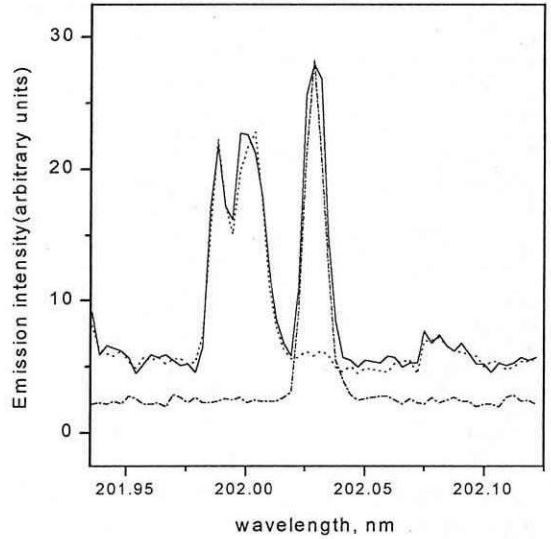


Fig. 1. Scan in the vicinity of Mo 202.030 nm.

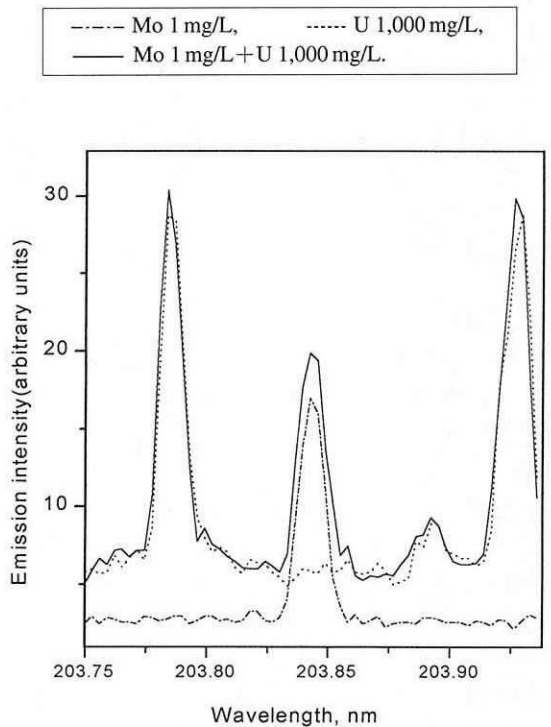


Fig. 2. Scan in the vicinity of Mo 203.844 nm.

Table 2. Effect of uranium on Mo intensity at 202.030 nm

Concentration of U (mg/L)	Mo Intensity*	Background	Net intensity
0	154.8	14.3	140.5
300	161.7	19.0	142.7
500	161.7	22.4	139.3
700	167.1	25.9	141.2
1000	170.3	30.6	139.7

* Concentration of Mo in each sample : 1 mg/L

Table 3. Effect of uranium on Mo intensity at 203.844 nm

Concentration of U (mg/L)	Mo Intensity*	Background	Net intensity
0	172.1	28.2	143.9
300	177.5	38.3	139.2
500	186.60	44.7	141.9
700	194.0	52.4	141.6
1000	205.6	62.4	143.2

* Concentration of Mo in each sample : 1 mg/L

3.2. 모의 사용후핵연료와 우라늄-몰리브덴 합금 중 몰리브덴 정량

몰리브덴 농도가 수십 mg/L 이상인 우라늄 용액에서 몰리브덴을 바로 ICP-AES로 측정할 수 있는지 조사하기 위하여 모의 사용후핵연료와 조성이 비슷한 모의 용액을 Table 4과 같이 만들었다. 앞에서도 설명하였듯이 우라늄의 농도가 몰리브덴의 방출세기와 바탕 값에 영향을 주기 때문에 시료와 표준용액의 우라늄 농도를 동일하게 조절하는 것이 쉽지 않았다. 따라서 우라늄 화합물 중에서 몰리브덴을 바로 ICP-AES로 정량할 경우에는 표준물첨가법으로 측정하였다. 바탕값의 위치는 202.030과 203.844 nm 파장에서 각각 +0.0283과 +0.0252 nm로 정하였으며, 최소자승법으로 절편 값을 얻기 위하여 4점으로 검정곡선을 작성하였다.

몰리브덴을 바로 측정할 결과와 양이온교환수지로 분리한 후 측정한 결과는 Table 5에 나타난 바와 같이 각각 102.3%와 101.5%로 큰 차이가 없으므로 몰리브덴의 바로 측정이 가능함을 알 수 있었다. 고압 산분해방법으로 녹인 모의 사용후핵연료를 두 가지 방법으로 측정 결과를 Table 6에 나타내었다. 분리하지 않은 측정 값을 기준으로 두 방법간의 상대편차는 각각 2.5%와 2.8%이었다. 위의 Table 6에서 알 수 있

Table 4. Compositions of simulated spent fuel solution

Element	Concentration (mg/L)	Quantity added	
Ba	6.4	1,000 mg/L	0.32 mL
Ce	9.6	1,000 mg/L	0.48 mL
La	4.5	1,000 mg/L	0.226 mL
Mo	13.2	10,000 mg/L	0.066 mL
Nd	22.4	10,000 mg/L	0.112 mL
Pd	5.2	1,000 mg/L	0.26 mL
Rh	1.5	1,000 mg/L	0.074 mL
Ru	8.4	1,000 mg/L	0.42 mL
Sr	2.6	1,000 mg/L	0.132 mL
Te	2	1,000 mg/L	0.1 mL
Y	2.9	1,000 mg/L	0.144 mL
U	3832	10,000 mg/L	19.16 mL
Zr	14.4	10,000 mg/L	0.072 mL

Table 5. Comparison of Mo recovery in simulated solution with and without separation

Molybdenum (μg)			
No separation		Separation	
Added	Found	Added	Found
13.2	13.4	13.2	13.1
	13.6		13.6
	13.5		13.6
	13.5 ± 0.1		13.4 ± 0.3

듯이 바로 측정한 값과 분리한 다음 측정한 값의 상대편차는 각각 0.54-1.2% 및 1.2-3.5%이었다. 위의 결과로부터 우라늄 매트릭스에서 몰리브덴의 함량이 고체기준으로 수백 ppm 존재할 경우는 몰리브덴을 바로 측정할 수 있다고 판단된다. 또 이 방법을 몰리브덴 함량이 수 퍼센트인 우라늄-몰리브덴 합금 중의 몰리브덴 정량에도 적용해 보았다. 이 결과를 Table 7에 나타내었듯이 두 방법간에 측정된 몰리브덴의 양은 분리하지 않은 측정 값을 기준으로 할 때 1.5% 범위 내에서 잘 일치하였다.

모의 사용후핵연료의 경우에는 몰리브덴 뿐만 아니라 Pd, Rh, Ru 및 Te도 측정해야 하므로 고압 산분해법으로 용해시킨 후 양이온교환수지로 분리하는 방법이 효과적이다. 우라늄-몰리브덴 합금의 경우에는 고압 산분해에 의해서만 용해되는 백금족 원소를 측정할 필요가 없으나 몰리브덴의 함량이 높아 질산만으

Table 6. Comparison of analytical results for Mo in simulated spent fuel with and without separation

Molybdenum ($\mu\text{g/g}$)		Relative error, %	Molybdenum ($\mu\text{g/g}$)		Relative error, %
Sample 1			Sample 2		
No separation	Separation		No separation	Separation	
3914	3876		3376	3262	
3822	3621		3340	3226	
3847	3849		3354	3308	
3862 \pm 47	3769 \pm 132	2.5	3357 \pm 18	3265 \pm 41	2.8

Table 7. Comparison of analytical results for U-Mo alloy with and without separation

Molybdenum, %		Relative error, %
No separation	Separation	
7.57	7.46	1.5
7.57	7.54	0.4
7.93	8.04	1.4

로 완전히 녹일 수 없으므로 염산과 질산의 혼합산으로 용해시켜야 한다. 그러나 염산, 질산 및 황산과 같이 각각의 단일 산에서 금속원소들에 대한 TBP의 분배계수는 알 수 있으나 염산과 질산의 혼합산에서는 알려진 바 없으므로 시료의 매질을 다시 질산과 같은 단일 산으로 바꾸어 주어야 하므로 시료 전처리 시간이 많이 소요되었다. 또한 질산으로 매질을 다시 바꿀 때 용액의 부피가 일정수준 이하로 되면 침전이 생성되었다. 따라서 우라늄-몰리브덴 합금의 경우는 몰리브덴을 바로 측정하는 방법이 효과적이라고 할 수 있다.

4. 결 론

사용후핵연료와 비슷한 조성의 모의 사용후핵연료를 고압 산분해법으로 용해시킨 다음 우라늄 매질로부터 몰리브덴을 분리하지 않고 바로 ICP-AES로 정량할 수 있었다. 몰리브덴을 바로 측정할 때 우라늄이 몰리브덴 파장에 미치는 분광학적 간섭 정도를 알아보기 위하여 4개의 몰리브덴 스펙트럼을 조사한 결과 202.030과 203.844 nm의 파장이 분석선으로서 가장 적합하였다. 따라서 모의 사용후핵연료 중의 몰리브덴을 양이온교환수지법에 의한 분리 과정을 거치지 않고 바로 측정할 수 있었을 뿐만 아니라 몰리브덴의 함량이 수 퍼센트인 우라늄-몰리브덴 합금 중의 몰리브덴 정량분석에도 적용할 수 있었다. 특히 바로 측정

방법은 우라늄-몰리브덴 합금 중의 몰리브덴을 측정하는데 효과적이었다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발사업의 일환으로 수행되었으며, 모의 사용후핵연료 용해와 우라늄 매트릭스 중 양이온교환수지를 이용한 백금족 원소의 분리에 도움을 주신 한국원자력연구소, 원자력화학연구팀의 손세철 박사님과 서무열 박사님께 깊은 감사를 드립니다.

참고문헌

- 노성기 외, KAERI/PIED/note-001/87. "KNU 가압경수로 사용후핵연료내 방사성물질 함유량", 한국원자력연구소, 1987.
- 이경애, 성학재, 황윤옥, 분석과학, 4(1), 75 (1991).
- A. G. I. Dalvi, C. S. Deodhar and B. D. Joshi, *Talanta*, 24, 143 (1976).
- E. A. Huff and E. P. Horwitz, *Spectrochimica Acta*, 40B, 279 (1985).
- T. K. Seshagiri, Y. Babu, M. L. Jayanth Kumar, A. G. I. Dalvi, M. D. Sastry and B. D. Joshi, *Talanta*, 31 (10A), 773 (1984).
- 1986 Annual Book of ASTM Standards, Vol. 12.01, p. 452, R. A. Storer, Ed., Easton, MD, U.S.A., 1986.
- A. S. Al-Amr, H. A. Hamid, B. H. Rashid and H. M. Basheer, *J. Chromator.*, 537, 287 (1991).
- P. Fuxing, T. Dezhi, R. Ming and M. Heying, *Talanta*, 40, 1107 (1993).
- M. A. Floyd, R. W. Morrow and R. B. Farrar, *Spectrochimica Acta*, 38B, 303 (1983).
- A. Guillon, M. Colonosmos and R. Sauvagnac, *Radiochim. Acta*, 1, 89 (1963).