

JAERI - M
86-032

Pu(VI)-吸光光度法による硝酸溶液中
プルトニウムの定量

—(株)東芝・受託調査結果報告—

1986年3月

武藤 博・吉田 善行・青柳 寿夫
安達 武雄・小森 卓二

JAERI-M レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の間合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）
あて、お申しこしてください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城
県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division, Department
of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun,
Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1986

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 山田軽印刷所

Pu (VI)一吸光光度法による硝酸溶液中
プルトニウムの定量
(株) 東芝・受託調査結果報告

日本原子力研究所東海研究所化学部
武藤 博・吉田善行・青柳寿夫
安達武雄・小森卓二

(1986年1月31日受理)

Pu (VI) の光吸収測定にもとづくプルトニウムの吸光光度定量法を検討した。硝酸溶液中の Pu (IV) および Pu (III) は Ce (IV) によって迅速かつ定量的に Pu (VI) に酸化されることを確かめた。したがって、試料溶液に Ce (IV) を添加したのち、溶液中 Pu (VI) の 833 nm 付近の吸収ピーク波高を測定することによってプルトニウムを定量することができる。この吸収ピークのモル吸光係数は、約 450 であった。833 nm における吸光度と、溶液中プルトニウム濃度とは 5~600 $\mu\text{g}/\text{ml}$ のプルトニウム濃度領域で直線関係を示す。5~20 $\mu\text{g}/\text{ml}$ のプルトニウム定量時の相対標準偏差 (測定回数 5 回) は 5% 以下であった。

ウラン、ネプツニウム、アメリシウムは 833 nm における吸光度測定を妨げないと判断できる。

プルトニウムを含む流液中に Ce (IV) を注入したのち吸光度測定を行なった場合にも、同様な吸光度とプルトニウム濃度との間の直線関係が得られた。これは、本法が再処理工程における硝酸溶液中プルトニウムのインライン分析法として適用可能であることを示唆する。

Determination of plutonium in nitric acid solution
by spectrophotometry of Pu(VI)

Hiroshi MUTO, Zenko YOSHIDA, Hisao AOYAGI,
Takeo ADACHI and Takuji KOMORI

Department of Chemistry, Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received January 31, 1986)

Spectrophotometric determination of plutonium based on a specific absorption of Pu(VI) was investigated. It was confirmed that, when Ce(IV) was added to the nitric acid solution containing Pu(IV) and/or Pu(III), plutonium ion was oxidized rapidly and completely into Pu(VI). The concentration of plutonium in the sample solution, therefore, could be determined by adding Ce(IV) to the solution and then by measuring the height of a sharp absorption peak at around 833 nm due to Pu(VI). The molar extinction coefficient of this peak was ca. 450. The linear relation between absorbance and the concentration of plutonium was obtained over the concentration range of 5-600 $\mu\text{g/ml}$ of plutonium. Relative standard deviation for the determination of 5-20 $\mu\text{g/ml}$ of plutonium was less than 5%, when the determinations were repeated five times.

Uranium, neptunium, and americium are considered not to disturb the measurement of the absorbance at around 833 nm.

When the spectrophotometric measurement was performed with flowing the sample solution and by injecting Ce(IV) to the sample immediately before the absorption cell, the identical linearity between absorbance and the concentration of plutonium was obtained. This indicates that

This work was performed under contract between Toshiba Co. Ltd. and JAERI.

this method is feasible to in-line analysis of plutonium in the nitric acid solution involved in Purex process for reprocessing the spent fuel.

Keywords : Spectrophotometry, Plutonium(VI), Cerium(IV), Nitric Acid
Solution

目 次

1. 序	1
2. 実 験	1
2.1 試 薬	1
2.2 装置および操作	2
3. 結果と考察	2
3.1 硝酸溶液中 Pu (VI) の光吸収スペクトル	2
3.2 Ce (IV) による Pu (IV), Pu (III) の Pu (VI) への酸化	2
3.2.1 Ce (IV) 添加量の検討	2
3.2.2 硝酸濃度の影響	3
3.2.3 検量線と検出限界	3
3.3 流液系測定法の検討	4
3.4 ウラン, ネプツニウム, アメリシウムの妨害	4
3.5 評 価	4
4. むすび	5
参考文献	5

Contents

1. Preface	1
2. Experimental	1
2.1 Reagents.....	1
2.2 Apparatus and procedure	2
3. Results and discussion	2
3.1 Absorption spectrum of Pu(VI) in nitric acid solution	2
3.2 Oxidation of plutonium ion into Pu(VI) by Ce(IV).....	2
3.2.1 Amounts of Ce(IV) added	2
3.2.2 Effect of the concentration of nitric acid	3
3.2.3 Calibration curve and detection limit	3
3.3 Measurement with flowing the solution.....	4
3.4 Interference of uranium, neptunium and americium	4
3.5 Evaluation of the method developed	4
4. Postscript	5
References	5

1. 序

溶液中のPu(VI)は、833 nm付近に5 f 電子の内部遷移に帰因する光吸収を示す¹⁾。そのためPu(VI)を含む溶液の光吸収スペクトルには、この波長領域にシャープでかつ比較的モル吸光係数の大きいピークが観測される²⁻⁴⁾。したがって、試料溶液の光吸収スペクトルを直接測定することによって、このピークの波高から溶液中Pu(VI)を定量することができる。

Pu(III)、(IV)、あるいは(V)など他の酸化状態にあるイオン種も、それぞれ600、470、あるいは570 nm付近にイオンに特異な光吸収を示す^{2, 3)}。しかし、これらの吸収のモル吸光係数は20～50程度と小さく、また、吸収ピークが観測される波長において他の酸化状態のプルトニウムイオンあるいは他の共存イオンが吸収をもつ場合も多いので、それらの吸収ピークを溶液中プルトニウムの定量に利用するのは適当でない。

溶液中のプルトニウムをすべてPu(VI)に酸化したのち、上述の833 nm付近の光吸収を測定し、プルトニウムを定量する方法が提案されている。この場合、Pu(VI)への酸化法として、過塩素酸ヒューミング法⁵⁾、あるいはAg(II)^{6, 7)}、Ce(IV)^{8, 9)}等の酸化剤を添加する方法が用いられている。

一方、核燃料サイクルバックエンドの各種溶液化学工程あるいは試験施設において、種々の濃度のウラン又は核分裂生成物を含む溶液中の微量プルトニウムをモニタリングする必要性がしばしば生じる。このような工程中でのモニタリング分析法には、それが簡便、迅速であること、あるいは自動化、遠隔化が可能であること等が要求される。さらに、採取した試料溶液を分析後に工程内に再び返環するような分析システムを想定すると、添加する試薬の工程内許容量も考慮の対象となる。

本報告は、多量の核分裂生成物および他のアクチノイドが共存する溶液中の微量プルトニウムのインライン分析法の開発を目的として、Pu(VI)一吸光光度法の適用性を検討した結果をまとめたものである。検討に当っては、最適な酸化剤、Puの定量限界、連続測定の可能性、および他のアクチノイドの影響等を明らかにすることに重点をおいた。

本研究は(株)東芝との受託調査契約のもとにすすめた。

2. 実 験

2.1 試 薬

プルトニウム溶液¹⁰⁾、金属プルトニウム(純度99.99%、NBS 949 d)を5 M塩酸に溶解し、溶液を加温蒸発したのち、残渣を1 M硝酸に溶かした。白金網を用いる定電位電解法でプルトニウムの酸化状態を4価あるいは3価に調整した。これを適宜希釈して用いた。

1. 序

溶液中のPu(VI)は、833 nm付近に5 f 電子の内部遷移に帰因する光吸収を示す¹⁾。そのためPu(VI)を含む溶液の光吸収スペクトルには、この波長領域にシャープでかつ比較的モル吸光係数の大きいピークが観測される²⁻⁴⁾。したがって、試料溶液の光吸収スペクトルを直接測定することによって、このピークの波高から溶液中Pu(VI)を定量することができる。

Pu(III), (IV), あるいは(V)など他の酸化状態にあるイオン種も、それぞれ600, 470, あるいは570 nm付近にイオンに特異な光吸収を示す^{2, 3)}。しかし、これらの吸収のモル吸光係数は20 ~ 50程度と小さく、また、吸収ピークが観測される波長において他の酸化状態のプルトニウムイオンあるいは他の共存イオンが吸収をもつ場合も多いので、それらの吸収ピークを溶液中プルトニウムの定量に利用するのは適当でない。

溶液中のプルトニウムをすべてPu(VI)に酸化したのち、上述の833 nm付近の光吸収を測定し、プルトニウムを定量する方法が提案されている。この場合、Pu(VI)への酸化法として、過塩素酸ヒューミング法⁵⁾、あるいはAg(II)^{6, 7)}、Ce(IV)^{8, 9)}等の酸化剤を添加する方法が用いられている。

一方、核燃料サイクルバックエンドの各種溶液化学工程あるいは試験施設において、種々の濃度のウラン又は核分裂生成物を含む溶液中の微量プルトニウムをモニタリングする必要性がしばしば生じる。このような工程中でのモニタリング分析法には、それが簡便、迅速であること、あるいは自動化、遠隔化が可能であること等が要求される。さらに、採取した試料溶液を分析後に工程内に再び返環するような分析システムを想定すると、添加する試薬の工程内許容量も考慮の対象となる。

本報告は、多量の核分裂生成物および他のアクチノイドが共存する溶液中の微量プルトニウムのインライン分析法の開発を目的として、Pu(VI)-吸光度法の適用性を検討した結果をまとめたものである。検討に当っては、最適な酸化剤、Puの定量限界、連続測定の可能性、および他のアクチノイドの影響等を明らかにすることに重点をおいた。

本研究は(株)東芝との受託調査契約のもとにすすめた。

2. 実 験

2.1 試 薬

プルトニウム溶液¹⁰⁾、金属プルトニウム(純度99.99%, NBS 949 d)を5 M塩酸に溶解し、溶液を加温蒸発したのち、残渣を1 M硝酸に溶かした。白金網を用いる定電位電解法でプルトニウムの酸化状態を4価あるいは3価に調整した。これを適宜希釈して用いた。

ウラン溶液；金属ウラン（純度 99.99%，JAERI-U4）を過酸化水素水共存下で 7 M 硝酸に溶解し，加温蒸発したのち，残渣を 1 M 硝酸に溶かして U(VI) 溶液を調整した。

Ce(IV) 溶液；試薬特級硝酸第二セリウムアンモニウム， $\text{Ce}(\text{NO}_3)_4 \cdot 2\text{NH}_4\text{NO}_3 \cdot x\text{H}_2\text{O}$ を 0.5 - 5 M 硝酸に溶かして調製した。なお，Ce(III) 溶液から調製する場合，あるいは Ce(IV) の一部が Ce(III) に変化してしまった場合には，白金網電極を用いて +1.5 V 対飽和カロメル電極で，溶液をかきまぜながら 30 分間以上電解した。

他試薬は試薬特級品を，また水は蒸留水をそのまま用いた。

2.2 装置および操作

吸光光度計；(株)日立製自記分光光度計 124 形と光路長 10 mm のガラスセルを用いた。

流液系光吸収測定装置(図 1)；日本精密(株)社製プランジャー型ポンプ，NPS-321U を用いてプルトニウムを含む試料溶液を一定流速でフローセルに流した(流速 0.5 ~ 5 ml/min)。吸収セルに前置した注入口より，マイクロシリンジを用いて少量の酸化剤溶液を添加した。溶液を流しながら 833 nm 付近のピーク波長における吸光度を連続測定した。

3. 結果と考察

3.1 硝酸溶液中 Pu(VI) の光吸収スペクトル

プルトニウム溶液 (217 μg Pu(IV)/ml) 15 ml をビーカーにとり，乾固近くまで加温したのち，これに 70% 過塩素酸を 2 ml 加えて強熱した。この過塩素酸ヒューミング操作により溶液中のプルトニウムはすべて Pu(VI) になる⁵⁾。溶液がほぼ乾固するまで加熱し続けた。冷却後，残渣を種々の濃度の硝酸 5 ml に溶かし，得た溶液の光吸収スペクトルを測定した。図 2 に，1 M 硝酸溶液中 Pu(VI) (650 $\mu\text{g}/\text{ml}$) の波長領域 400 - 900 nm における吸収スペクトル，図 3 に，同濃度の Pu(VI) を含む 0.1 - 14 M 硝酸溶液の 800 - 860 nm におけるそれを示した。1 M 硝酸溶液中 Pu(VI) の 833 nm 付近の吸収ピーク波高から求めたこのピークのモル吸光係数は 430 ± 7 (5 回繰り返し測定) であり，これは文献値とほぼ一致している。また図 3 に示すように 833 nm 付近の吸収スペクトルは硝酸濃度に大きく依存するが，硝酸濃度 0.1 ~ 2 M の範囲ではピーク波長の変動は ± 1 nm 以下，吸光度の変動率は $\pm 5\%$ 以下である。

Pu(IV) 溶液のかわりに Pu(III) 溶液を用いて得た結果は，図 2 および 3 と全く同様であった。

3.2 Ce(IV) による Pu(IV)，Pu(III) の Pu(VI) への酸化

3.2.1 Ce(IV) 添加量の検討

プルトニウムを含む 1 M 硝酸溶液 (217 μg Pu(IV)/ml) 10 ml をビーカーにとり，これに 0.01

ウラン溶液；金属ウラン（純度 99.99%，JAERI-U4）を過酸化水素水共存下で 7 M 硝酸に溶解し，加温蒸発したのち，残渣を 1 M 硝酸に溶かして U(VI) 溶液を調整した。

Ce(IV) 溶液；試薬特級硝酸第二セリウムアンモニウム， $\text{Ce}(\text{NO}_3)_4 \cdot 2\text{NH}_4\text{NO}_3 \cdot x\text{H}_2\text{O}$ を 0.5 - 5 M 硝酸に溶かして調製した。なお，Ce(III) 溶液から調製する場合，あるいは Ce(IV) の一部が Ce(III) に変化してしまった場合には，白金網電極を用いて +1.5 V 対飽和カロメル電極で，溶液をかきまぜながら 30 分間以上電解した。

他試薬は試薬特級品を，また水は蒸留水をそのまま用いた。

2.2 装置および操作

吸光光度計；(株)日立製自記分光光度計 124 形と光路長 10mm のガラスセルを用いた。

流液系光吸収測定装置(図 1)；日本精密(株)社製プランジャー型ポンプ，NPS-321U を用いてプルトニウムを含む試料溶液を一定流速でフローセルに流した(流速 0.5 ~ 5 ml/min)。吸収セルに前置した注入口より，マイクロシリンジを用いて少量の酸化剤溶液を添加した。溶液を流しながら 833 nm 付近のピーク波長における吸光度を連続測定した。

3. 結果と考察

3.1 硝酸溶液中 Pu(VI) の光吸収スペクトル

プルトニウム溶液 (217 μg Pu(IV)/ml) 15 ml をビーカーにとり，乾固近くまで加温したのち，これに 70% 過塩素酸を 2 ml 加えて強熱した。この過塩素酸ヒューミング操作により溶液中のプルトニウムはすべて Pu(VI) になる⁵⁾。溶液がほぼ乾固するまで加熱し続けた。冷却後，残渣を種々の濃度の硝酸 5 ml に溶かし，得た溶液の光吸収スペクトルを測定した。図 2 に，1 M 硝酸溶液中 Pu(VI) (650 μg /ml) の波長領域 400 - 900 nm における吸収スペクトル，図 3 に，同濃度の Pu(VI) を含む 0.1 - 14 M 硝酸溶液の 800 - 860 nm におけるそれを示した。1 M 硝酸溶液中 Pu(VI) の 833 nm 付近の吸収ピーク波高から求めたこのピークのモル吸光係数は 430 ± 7 (5 回繰り返し測定) であり，これは文献値とほぼ一致している。また図 3 に示すように 833 nm 付近の吸収スペクトルは硝酸濃度に大きく依存するが，硝酸濃度 0.1 ~ 2 M の範囲ではピーク波長の変動は ± 1 nm 以下，吸光度の変動率は $\pm 5\%$ 以下である。

Pu(IV) 溶液のかわりに Pu(III) 溶液を用いて得た結果は，図 2 および 3 と全く同様であった。

3.2 Ce(IV) による Pu(IV)，Pu(III) の Pu(VI) への酸化

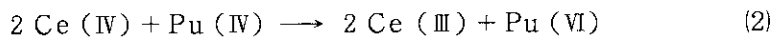
3.2.1 Ce(IV) 添加量の検討

プルトニウムを含む 1 M 硝酸溶液 (217 μg Pu(IV)/ml) 10 ml をビーカーにとり，これに 0.01

M Ce (IV) 溶液 0.5~10ml を加えてよくかきまぜたのち、溶液の吸収スペクトルを測定し、833 nm 付近の吸収ピークの波高 (A) を求めた。Ce (IV) 溶液の添加量 x (ml) と次式 (1) を用いて 217 μg Pu/ml 当りの吸光度 (A_0) を計算し、これを Ce (IV) 溶液添加量に対してプロットした (図 4)。

$$A_0 = \frac{10+x}{10} A \quad (1)$$

Ce (IV) 溶液を 2.5 ml 以上加えた場合に、一定の A_0 を得た。この A_0 の最大値から計算したモル吸光係数が、過塩素酸ヒューミング法で調整した Pu (VI) について得た結果 (図 2 又は 3) とよく一致することから、 A_0 を得る条件下で溶液中のプルトニウムはすべて Pu (VI) に酸化されていると結論できる。また、図 4 に示した曲線の屈曲点 ($x = 2.3$ ml に相当する)、即ち A_0 を得るための Ce (IV) の最少必要モル数が、溶液中 Pu (IV) のモル数のほぼ 2 倍に相当することから、次式 (2) に示す反応がほぼ定量的に進行するものと思われる。



3.2.2 硝酸濃度の影響

Pu (IV) を含む 0.5~5 M 硝酸溶液に、0.1 M Ce (IV) を含む同一濃度の硝酸溶液 5ml と、最終液量が 10ml になるように適当量の同一濃度の硝酸とそれぞれ加え、かきまぜたのち、溶液の吸収スペクトルを測定した。このとき、プルトニウムの最終濃度が 108, 130, および 434 μg / ml となるようにした。溶液の硝酸濃度と、833 nm 付近の吸収ピークの吸光度との関係を図 5 に示した。同じプルトニウム濃度においても、硝酸濃度の増加とともに吸光度の減少が顕著になる。3.1 と同様な操作で過塩素酸ヒューミング法により調整した Pu (VI) の硝酸溶液について得た結果とこれらの結果はよく一致するので、0.5~5 M 硝酸溶液中で Pu (IV) は Ce (IV) によってすべて Pu (VI) に酸化されると結論できる。なお、硝酸濃度の上昇とともに吸光度が減少するのは、図 3 に示したようなモル吸光係数自身の減少に帰因する。

3.2.3 検量線と検出限界

種々の量の Pu (IV) 溶液をとり、これに 0.1 M Ce (IV) 溶液 5 ml を加え、硝酸で最終液量を 10 ml としたのち、溶液の吸収スペクトルを測定した。最終硝酸濃度は 1 M および 3 M となるように調整した。溶液中プルトニウム濃度と、833 nm 付近の吸収ピーク波高との関係を図 6, 7 に示した。プルトニウム濃度と吸光度の関係は直線となる。3 M 硝酸中のプルトニウムについて得た直線の傾きは、1 M 硝酸の場合より 13~15% 小さい。

Pu (IV) のかわりに Pu (III) 溶液を用いても、図 6, 7 と同様な結果を得た。

検出可能な吸光度を 0.01 とすると、プルトニウムの検出下限濃度は約 5 μg / ml である。また、5~20 μg / ml における 5 回繰り返し測定 of 相対標準偏差は 5% 以下であった。

3.3 流液系測定法の検討

流液系光吸収測定装置を用い、155 $\mu\text{g}/\text{ml}$ の Pu (IV) を含む 1 M 硝酸溶液を流速 1.5 ml/min. で流しながら、これに 0.1 M Ce (IV) 溶液を 0.1 ml 注入し、833 nm における吸光度を記録した。吸光度の時間変化を図 8 曲線(1)に示した。Ce (IV) 溶液を注入後、30 秒以内に吸光度が上昇しはじめ、1 分以内に極大となったのち、徐々に減少する。極大点の吸光度から求めたモル吸光係数は、図 2 から計算した値のほぼ 95% である。

試料溶液中のプルトニウム濃度を変化させて同様な操作で得た結果を曲線(2), (3)に示した。それぞれの曲線中、極大吸光度はプルトニウム濃度に比例する。これらの結果は、Ce (IV) 注入法により流液中のプルトニウム濃度を決定しうることを示す。

3.4 ウラン、ネプツニウム、アメリシウムの妨害

2.4 mg/ml U (VI) を含む 1 M 硝酸溶液について得た吸収スペクトルを図 9 に示す。吸収スペクトルは硝酸濃度にほとんど依存しなかった。U (VI) は 833 nm 付近に吸収をもたず、Pu (VI) の吸光度測定を妨げない。

P. G. Hagan らによって測定された Np (V), (VI) の吸収スペクトル^{11, 12)}中、833 nm 付近に Pu (VI) の吸収ピークと重なる吸収は観測されない。また、W. T. Carnall らによって報告されている Am (V), (VI) の吸収スペクトル^{13, 14)}中、833 nm 付近の吸収は極めて小さい。Am (III) は Pu (VI) の吸収ピークに近接して 810 nm 付近にモル吸光係数が 50 ~ 60 の吸収を示す。しかしこのモル吸光係数、およびアメリシウムの共存量を考慮すると、プルトニウムの測定にアメリシウムは妨げとならないと判断できる。

3.5 評 価

検討した Ce (IV) を酸化剤として用いる Pu (VI) - 吸光度法は以下の利点をもつ。

(i) Pu (IV) および Pu (III) の Pu (VI) への酸化法が簡便かつ迅速であり、流液系における測定法としても可能性が高い。

(ii) 対象としている工程内の試料溶液は通常、核分裂生成物としてのセリウムを相当量含むので、少量のセリウムの添加は十分に許容される。

(iii) 共存するウラン、ネプツニウム、アメリシウムはプルトニウムの定量を妨害しない。

他の酸化法として、過塩素酸ヒューミング法、および Ag (II)、過硫酸、オゾン等を添加する方法も可能であるが、方法の簡便性、迅速性、流液系への適用性、あるいは添加許容量等の観点から Ce (IV) 添加法に劣る。

また他試薬の添加を必要としない電解酸化法として、グラッシーカーボン繊維をカラム電極の作用電極材とするフロークロメトリー¹⁵⁾を検討したが、硝酸溶液中の Pu (IV) および Pu (III) を Pu (VI) に酸化することはできなかった。

4. む す び

Ce(IV)を添加し、試料溶液中 Pu(IV)および Pu(III)を定量的に Pu(VI)に酸化したのち、Pu(VI)に特異的な 833 nm 付近の吸収ピーク波高を測定することによって、U, Np, Am 等の妨害なしに、5 $\mu\text{g}/\text{ml}$ 以上のプルトニウムを定量しうることを明らかにした。流液系での測定結果は、工程内インライン分析法として本法を適用しうることを示唆する。

本法を実試料のインライン分析法として確立していくためには、今後、次のような検討が必要と考える。

- (i) 分析システムの確立と装置化
- (ii) 装置に対する放射線の影響、とくに光吸収セルの材質選定
- (iii) 被酸化性共存物の影響とその妨害除去、例えば、放射線分解生成物（過酸化水素）、亜硝酸、あるいは溶媒抽出系で混入する有機溶媒、試薬等の影響。
- (iv) Pu(IV), (III)以外の化学形のプルトニウムの挙動、例えばコロイド状プルトニウムの酸化挙動等。

なお、本受託調査は、昭和60年6月13日から、昭和61年3月31日までおこなったものである。

参 考 文 献

- 1) J. J. Katz and G. T. Seaborg, "The Chemistry of the Actinide Elements", Methuen & Co. Ltd., London, (1957) P 293 and P 439.
- 2) D. Cohen, J. Inorg. Nucl. Chem, 18 (1961) 211.
- 3) C. Keller, "The Chemistry of the Transuranium Elements", Verlag Chemie GmbH, Germany, (1971), P 426.
- 4) O. J. Wick, Ed., "Plutonium Handbook, A Guide to the Technology," Vol. 1, Gordon and Breach, Science Publishers, New York, (1967), P 405
- 5) 文献 3) P 434.
- 6) K. Buijs, B. Chavane de Dalmassy and M. J. Maurice, Anal. Chim. Acta, 43 (1968) 409.
- 7) H. Hucleus and P. Cauchetier, CEA-N-1551 (1972)。
- 8) D. J. Savage and N. D. Cook, ND-R 309 (D) (1979)。
- 9) P. Cauchetier, Anal. Chim. Acta, 124 (1981) 449.
- 10) 青柳寿夫・吉田善行・安達武雄・木原壮林, 日本化学会誌, 1984, 8, 1249.

- 11) P. G. Hagan and J. M. Cleveland, J. Inorg. Nucl. Chem., 28 (1966) 2905。
- 12) 文献 3), P 295。
- 13) W. T. Carnall, R. A. Penneman, and T. K. Kennan, "The Radiochemistry of Americium and Curium," National Academy of Sciences Nuclear Science Series NAS-NS-3006 (1960) P 38。
- 14) 文献 3), P 516
- 15) S. Kihara, J. Electroanal. Chem., 45 (1973) 45。

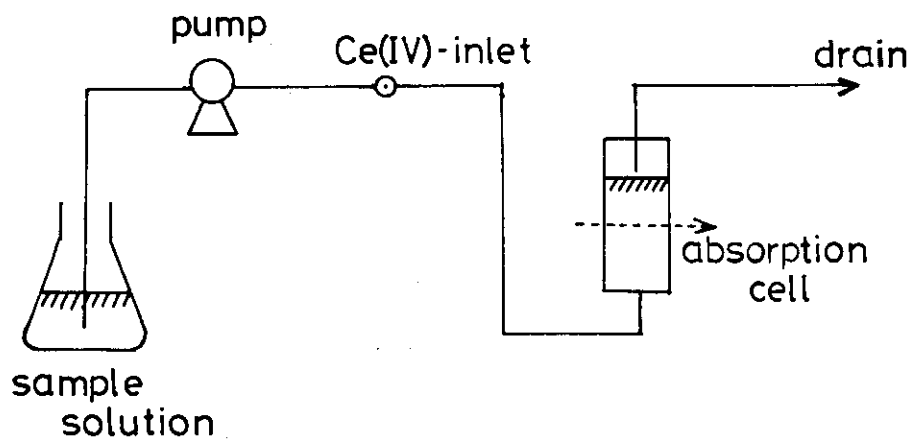


Fig. 1 Apparatus for measuring the absorbance with flowing the sample solution

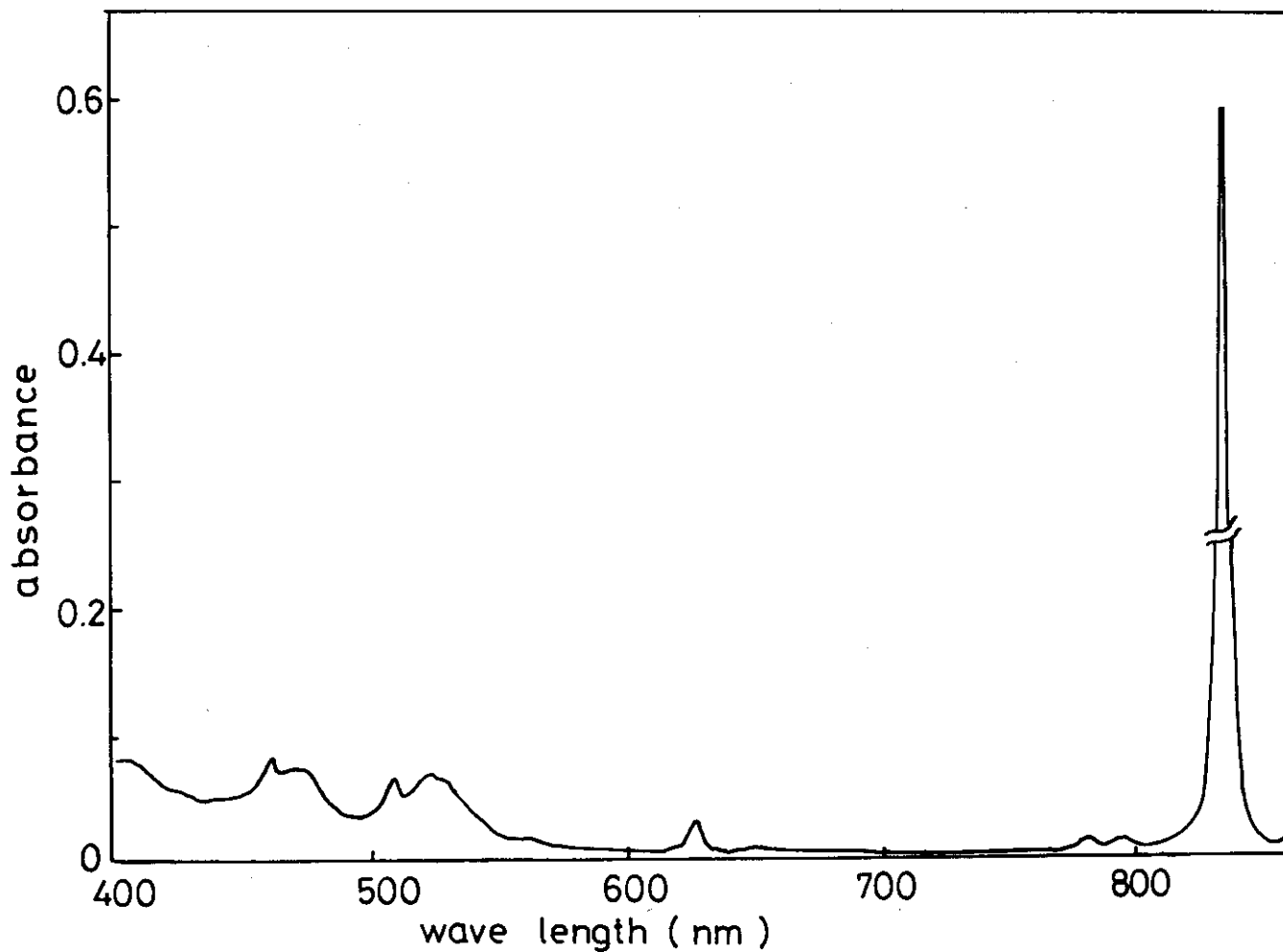


Fig. 2 Absorption spectrum of Pu(VI) in 1 M HNO₃
 Concentration of Pu(VI); 650 $\mu\text{g/ml}$

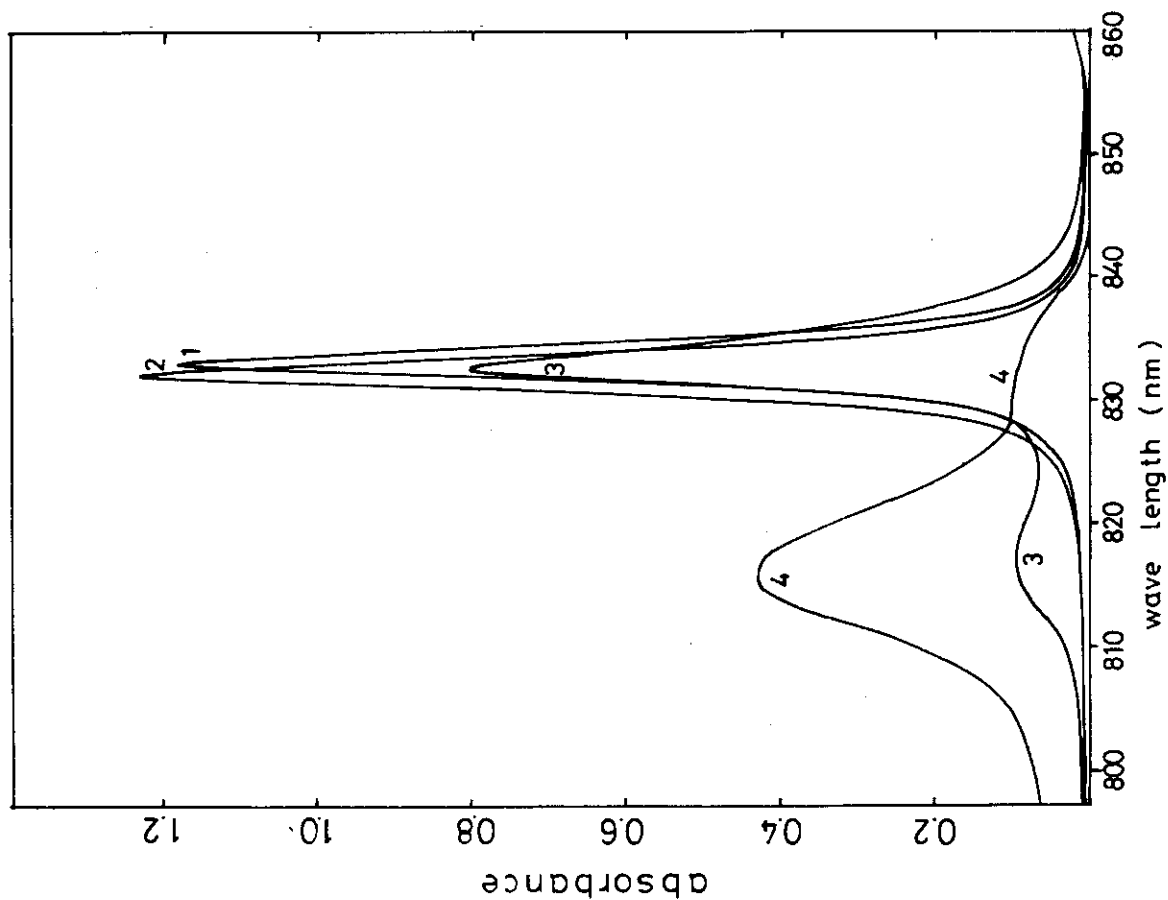


Fig. 3 Absorption spectra of Pu(VI) in HNO_3
 Concentration of Pu(VI); 650 $\mu\text{g}/\text{ml}$,
 Concentration of HNO_3 ; (1), (2) 0.1-2 M,
 (3) 7 M, (4) 14 M

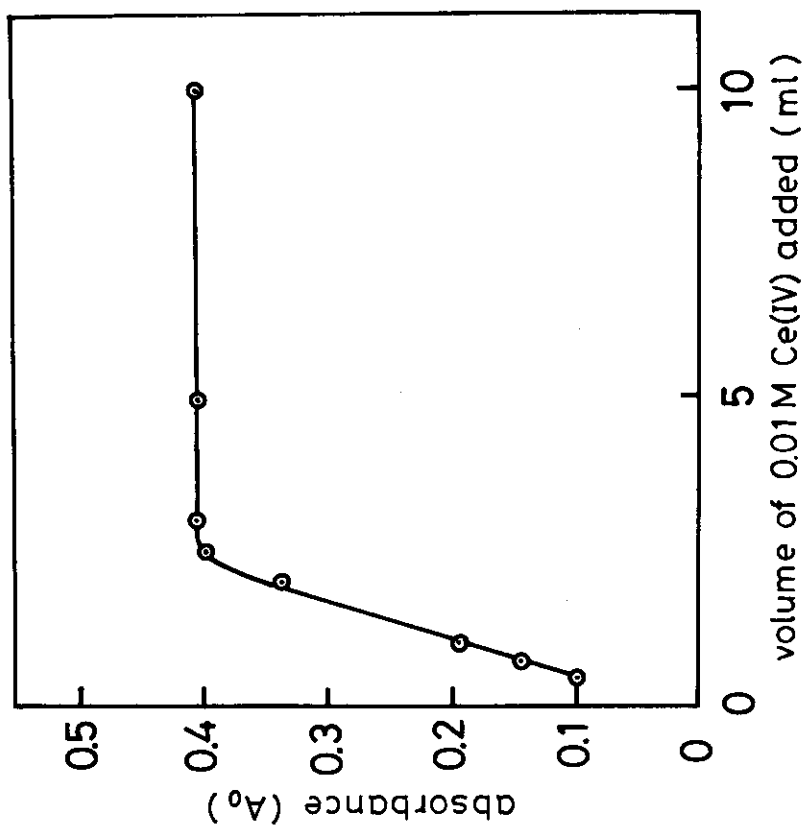


Fig. 4 Effect of the amount of Ce(IV) added
 Amount of plutonium; 2.17 mg

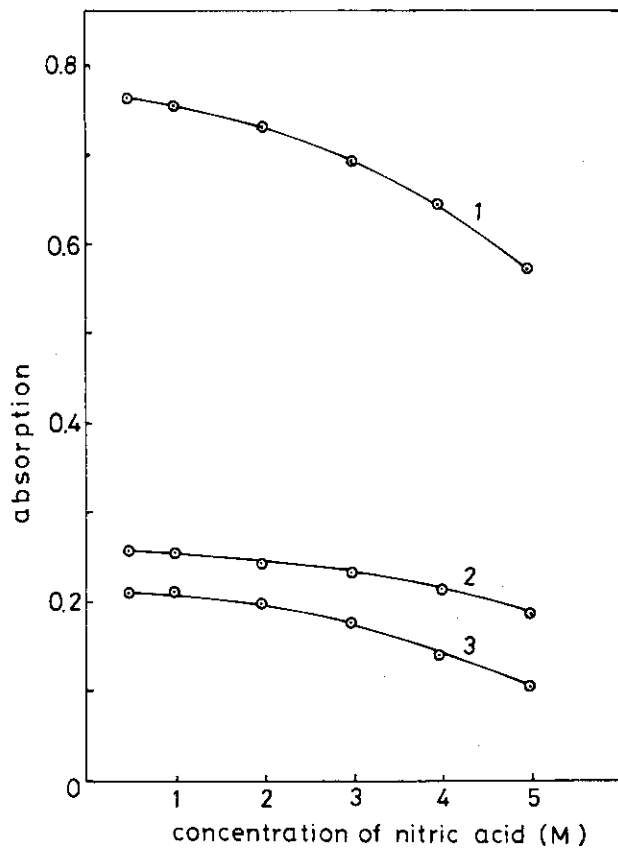
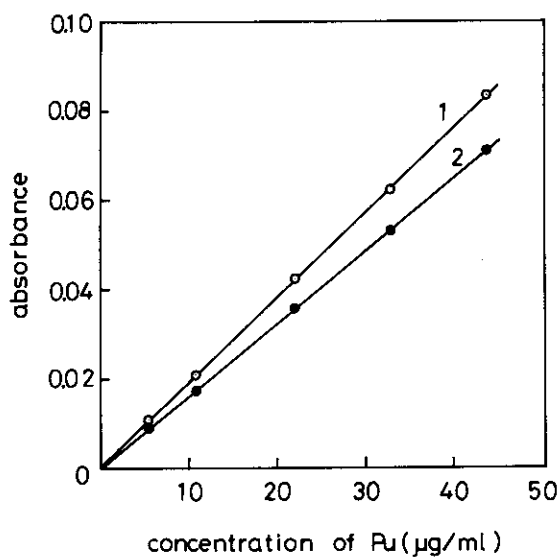
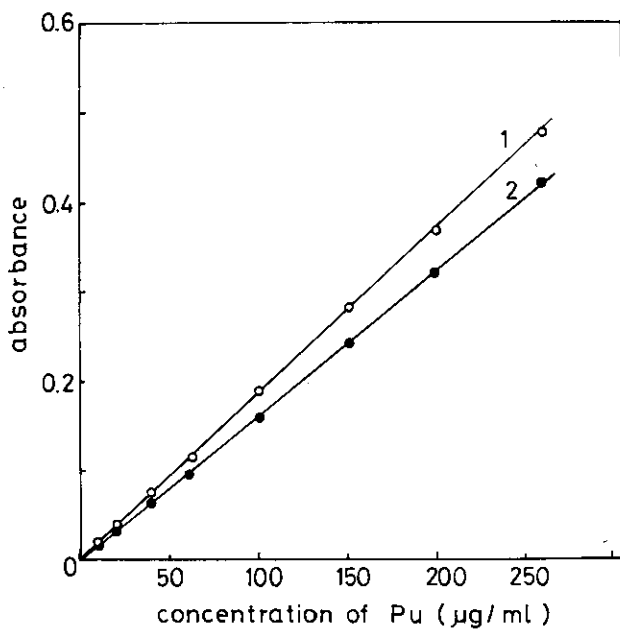


Fig. 5 Effect of the concentration of HNO_3
 Concentration of plutonium; (1) 434 µg/ml,
 (2) 130 µg/ml, (3) 108 µg/ml



Figs. 6 and 7 Calibration curves for plutonium
 Concentration of HNO_3 ; (1) 1 M, (2) 3 M

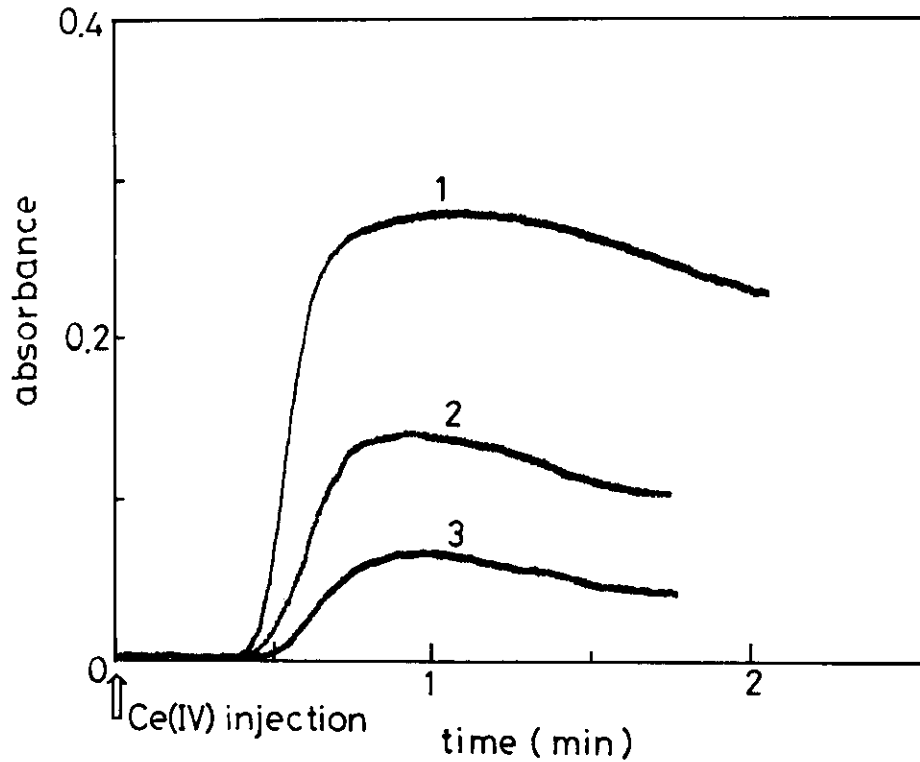


Fig. 8 Absorbance at 833 nm measured with flowing the solution

Concentration of plutonium; (1) 155 µg/ml,
 (2) 78 µg/ml, (3) 39 µg/ml
 Volume of 0.1 M Ce(IV) solution added; 0.1 ml
 Flow rate of the solution; 1.5 ml/min

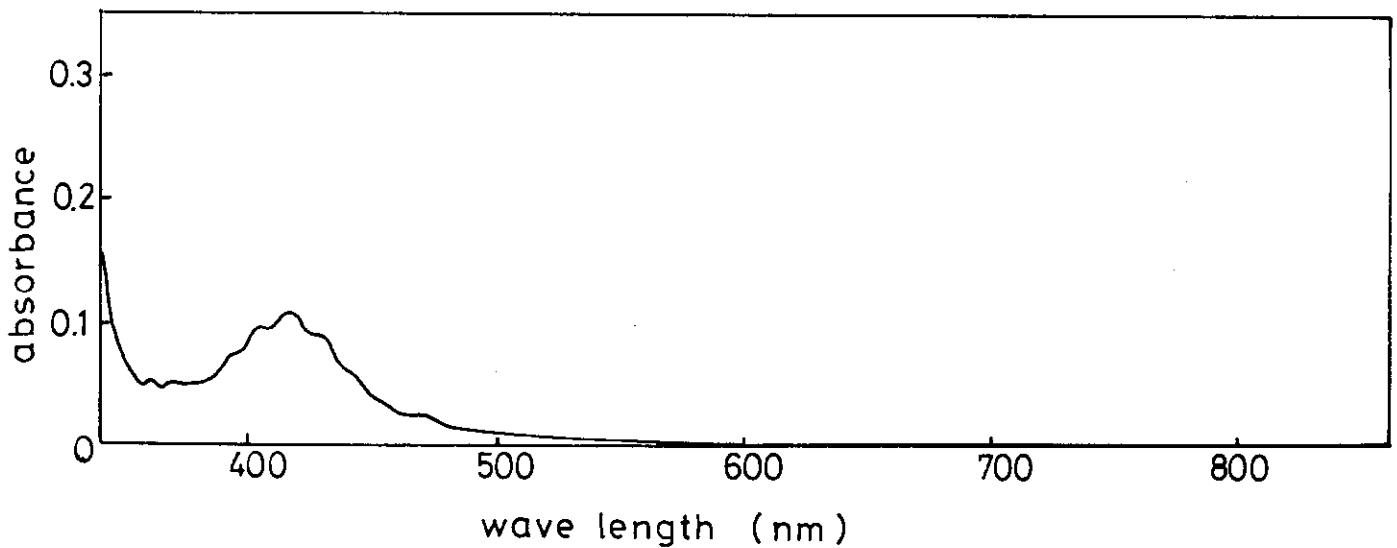


Fig. 9 Absorption spectrum of U(VI) in 1 M HNO₃

Concentration of U(VI); 2.4 mg/ml