

JAERI-M
91-117

プルトニウム(IV)－硝酸水溶液系の
密度式の改良

1991年7月

桜井 聡

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, 1991

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 日立高速印刷株式会社

Modified Density Equation for Aqueous Solution
with Plutonium(IV) and Nitric Acid

Satoshi SAKURAI

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

(Received July 2, 1991)

In order to calculate criticality parameters for solution systems, the number densities of nuclides are needed and usually calculated by use of density equations. For the system of aqueous solution with Pu(IV) and nitric acid, Maimoni's equation based on Hofstetters' density data was often used, but its reliability was not thoroughly examined.

The author, therefore, derived a modified density equation by regression analysis for Hofstetters' data, adding the authors' density data of aqueous solution with nitric acid. Comparison between both equations showed that the modified density equation gives more reliable densities in the wide range of temperature and concentration.

Keywords: Nuclear Criticality, Atomic Number Density, Density Equation
Criticality Parameters, Solution Density, Plutonium, Nitric
Acid, Aqueous Solution

プルトニウム(IV)-硝酸水溶液系の密度式の改良

日本原子力研究所東海研究所燃料安全工学部

桜井 聡

(1991年7月2日受理)

溶液系の臨界計算を行うために必要な構成核種の原子個数密度は、密度式から求めるのが一般的である。プルトニウム(IV)-硝酸水溶液系については、Hofstetterらの密度測定データからMaimoniが導出した式が知られているが、その信頼性は必ずしも十分に検討されていない。

このため、Hofstetterらの密度測定データに、筆者らの硝酸-水系の密度測定データを加えて重回帰分析を行うことにより、改良密度式を導出した。Maimoniの式等との比較の結果、本密度式によれば、広い濃度範囲で信頼性の高い密度が得られることを明らかにした。

目 次

1. 序論	1
2. プルトニウム(IV)－硝酸水溶液系の改良密度式の導出	1
3. 改良密度式の評価	2
4. 結論	4
参考文献	4
付録A 改良密度式による密度計算値と測定値の比較	9
付録B Maimoniの式による密度計算値と測定値の比較	10
付録C S S T式による密度計算値と測定値の比較	11

Contents

1. Introduction	1
2. Derivation of the modified density equation	1
3. Evaluation of the modified density equation	2
4. Conclusion	4
References	4
Appendix A Comparison between measured densities and calculated densities from the modified density equation	9
Appendix B Comparison between measured densities and calculated densities from Maimoni's equation	10
Appendix C Comparison between measured densities and calculated densities from the SST equation	11

1. 序論

溶液系の臨界計算を行う場合、系を構成する核種の個数密度が必要となる。臨界実験データを解析する場合には、試料溶液を分析することにより、これらの個数密度を得ることが可能であるが、臨界安全解析を目的とする場合には、想定する体系を構成する核種のうち、溶媒に起因する原子（水溶液系の場合には水に起因する水素と酸素）の個数密度は、溶液密度から求めなければならない¹⁾。溶液の密度は、溶質濃度および温度をパラメータとする密度式から求めるのが一般的である。高精度で適用範囲の広い密度式は、臨界安全設計上、重要であるばかりでなく、核燃料溶液を取扱うプロセスの設計あるいは管理の面からも必要性は高い。

これらの背景のもとに、筆者らは、核燃料再処理工程で取扱う溶液系の密度式を検討してきた。すでに、ウラン(VI)-硝酸水溶液系およびウラン(VI)-ガドリニウム(III)-硝酸水溶液系²⁾、ならびにプルトニウム(IV)-ウラン(VI)-硝酸水溶液系³⁾については、従来のものより正確で適用範囲が広い密度式を報告した。

プルトニウム(IV)-硝酸水溶液系の密度式については、米国臨界安全ハンドブック⁴⁾で採用されている式のほかに、Hofstetterらの密度測定データ⁵⁾からMaimoniが導出した密度式⁶⁾がある。1988年に公開された臨界安全ハンドブック⁷⁾では、最新の報告であり、密度の温度依存性を考慮した後者が採用されている。しかし、Hofstetterらのデータはその試料溶液のプルトニウムおよび硝酸濃度が限られた領域にあり、Maimoniの式がその領域外において妥当であるかは必ずしも検証されていない。筆者は、このデータに筆者らが測定した硝酸-水系の密度データを加えて重回帰分析を行い、より優れた改良密度式を導出した。得られた密度式とMaimoniの式等を比較することにより、その優劣を論じた。

2. プルトニウム(IV)-硝酸水溶液系の改良密度式の導出

密度式の導出には、図1に示すHofstetterらのデータ5組⁵⁾と筆者らが測定したデータ5組²⁾を利用した。溶質濃度は25°Cで測定したものであり、密度は前者では25, 35, 45および60°Cにおいて、後者は10, 20, 30, 40, 50および60°Cにおいて測定したものである。重回帰分析には、富士通の統計計算ソフトウェアパッケージ「ANALTS T」を使用した。重回帰分析の際の説明変数としては、従来の密度式を参考に、プルトニウムおよび硝酸濃度と温度、ならびにそれらの3次までの積とした。得られた密度式を以下に示す。標準誤差は 0.00053 g/cm^3 であった。

1. 序論

溶液系の臨界計算を行う場合、系を構成する核種の個数密度が必要となる。臨界実験データを解析する場合には、試料溶液を分析することにより、これらの個数密度を得ることが可能であるが、臨界安全解析を目的とする場合には、想定する体系を構成する核種のうち、溶媒に起因する原子（水溶液系の場合には水に起因する水素と酸素）の個数密度は、溶液密度から求めなければならない¹⁾。溶液の密度は、溶質濃度および温度をパラメータとする密度式から求めるのが一般的である。高精度で適用範囲の広い密度式は、臨界安全設計上、重要であるばかりでなく、核燃料溶液を取扱うプロセスの設計あるいは管理の面からも必要性は高い。

これらの背景のもとに、筆者らは、核燃料再処理工程で取扱う溶液系の密度式を検討してきた。すでに、ウラン(VI)-硝酸水溶液系およびウラン(VI)-ガドリニウム(III)-硝酸水溶液系²⁾、ならびにプルトニウム(IV)-ウラン(VI)-硝酸水溶液系³⁾については、従来のものより正確で適用範囲が広い密度式を報告した。

プルトニウム(IV)-硝酸水溶液系の密度式については、米国臨界安全ハンドブック⁴⁾で採用されている式のほかに、Hofstetterらの密度測定データ⁵⁾からMaimoniが導出した密度式⁶⁾がある。1988年に公開された臨界安全ハンドブック⁷⁾では、最新の報告であり、密度の温度依存性を考慮した後者が採用されている。しかし、Hofstetterらのデータはその試料溶液のプルトニウムおよび硝酸濃度が限られた領域にあり、Maimoniの式がその領域外において妥当であるかは必ずしも検証されていない。筆者は、このデータに筆者らが測定した硝酸-水系の密度データを加えて重回帰分析を行い、より優れた改良密度式を導出した。得られた密度式とMaimoniの式等を比較することにより、その優劣を論じた。

2. プルトニウム(IV)-硝酸水溶液系の改良密度式の導出

密度式の導出には、図1に示すHofstetterらのデータ5組⁵⁾と筆者らが測定したデータ5組²⁾を利用した。溶質濃度は25°Cで測定したものであり、密度は前者では25, 35, 45および60°Cにおいて、後者は10, 20, 30, 40, 50および60°Cにおいて測定したものである。重回帰分析には、富士通の統計計算ソフトウェアパッケージ「ANALYST」を使用した。重回帰分析の際の説明変数としては、従来の密度式を参考に、プルトニウムおよび硝酸濃度と温度、ならびにそれらの3次までの積とした。得られた密度式を以下に示す。標準誤差は 0.00053 g/cm^3 であった。

$$\begin{aligned}
\rho = & 1.0012 \\
& + 1.6709 \times 10^{-3} \times C_{Pu} \\
& + 3.5573 \times 10^{-2} \times C_{HN} \\
& - 7.88 \times 10^{-5} \times T \\
& - 4.394 \times 10^{-8} \times C_{Pu}^2 \\
& - 3.62 \times 10^{-6} \times T^2 \\
& - 4.005 \times 10^{-5} \times C_{Pu} \times C_{HN} \\
& - 1.38 \times 10^{-6} \times C_{Pu} \times T \\
& - 1.104 \times 10^{-4} \times C_{HN} \times T \\
& - 3.5 \times 10^{-5} \times C_{HN}^3 \\
& + 4.1 \times 10^{-7} \times C_{HN} \times T^2 \quad \dots\dots\dots(1)
\end{aligned}$$

ここで、 C_{Pu} : 25°CにおけるPu(IV)濃度 (g/ℓ)

C_{HN} : 25°Cにおける硝酸濃度 (mol/ℓ)

T : 温度 (°C)

(1)式による密度の計算値と測定値の差を図2に示した。両者は非常に良く一致している。改良密度式の適用可能範囲は図1に示した範囲、すなわちPu(IV) : 0~480 g/ℓ、硝酸 : 0~7 mol/ℓであり、温度 : 10~60°Cである。

3. 改良密度式の評価

Maimoni の式は以下の通りである。

$$\begin{aligned}
\rho = & 0.99708 \\
& + 1.65625 \times 10^{-3} \times C_{Pu} \\
& + 3.2959 \times 10^{-2} \times C_{HN} \\
& - 5.9915 \times 10^{-4} \times (T-25) \\
& - 3.418 \times 10^{-8} \times C_{Pu}^2 \\
& - 4.8706 \times 10^{-5} \times C_{Pu} \times C_{HN} \\
& - 1.4217 \times 10^{-6} \times C_{Pu} \times (T-25) \quad \dots\dots\dots(2)
\end{aligned}$$

ここで、 C_{Pu} 、 C_{HN} およびTは(1)式と同様である。図3には、Maimoni の式による密度の計算値と測定値の差を示した。Hofstetterらのデータとは比較的良く一致しているとはいえ、改良密度式の方がより良い一致を示していることが図2との比較でわかる。一方、Pu(IV)を含まない筆者らの密度測定値との比較では、Maimoni の式により、改良密度式の方が優れていることは明らかである。

$$\begin{aligned}
\rho = & 1.0012 \\
& + 1.6709 \times 10^{-3} \times C_{Pu} \\
& + 3.5573 \times 10^{-2} \times C_{HN} \\
& - 7.88 \times 10^{-5} \times T \\
& - 4.394 \times 10^{-8} \times C_{Pu}^2 \\
& - 3.62 \times 10^{-6} \times T^2 \\
& - 4.005 \times 10^{-5} \times C_{Pu} \times C_{HN} \\
& - 1.38 \times 10^{-6} \times C_{Pu} \times T \\
& - 1.104 \times 10^{-4} \times C_{HN} \times T \\
& - 3.5 \times 10^{-5} \times C_{HN}^3 \\
& + 4.1 \times 10^{-7} \times C_{HN} \times T^2 \quad \dots\dots\dots(1)
\end{aligned}$$

ここで、 C_{Pu} ：25°CにおけるPu(IV)濃度 (g/ℓ)

C_{HN} ：25°Cにおける硝酸濃度 (mol/ℓ)

T： 温度 (°C)

(1)式による密度の計算値と測定値の差を図2に示した。両者は非常に良く一致している。改良密度式の適用可能範囲は図1に示した範囲、すなわちPu(IV)：0~480 g/ℓ、硝酸：0~7 mol/ℓであり、温度：10~60°Cである。

3. 改良密度式の評価

Maimoni の式は以下の通りである。

$$\begin{aligned}
\rho = & 0.99708 \\
& + 1.65625 \times 10^{-3} \times C_{Pu} \\
& + 3.2959 \times 10^{-2} \times C_{HN} \\
& - 5.9915 \times 10^{-4} \times (T-25) \\
& - 3.418 \times 10^{-8} \times C_{Pu}^2 \\
& - 4.8706 \times 10^{-5} \times C_{Pu} \times C_{HN} \\
& - 1.4217 \times 10^{-6} \times C_{Pu} \times (T-25) \quad \dots\dots\dots(2)
\end{aligned}$$

ここで、 C_{Pu} 、 C_{HN} およびTは(1)式と同様である。図3には、Maimoni の式による密度の計算値と測定値の差を示した。Hofstetterらのデータとは比較的良く一致しているとはいえ、改良密度式の方がより良い一致を示していることが図2との比較でわかる。一方、Pu(IV)を含まない筆者らの密度測定値との比較では、Maimoni の式により、改良密度式の方が優れていることは明らかである。

一方、この系の密度は、プルトニウム(IV)-ウラン(VI)-硝酸水溶液系の密度式 (S S T式)³⁾において、U(VI)濃度を0として計算することも考えられる。S S T式を以下に示す。

$$\begin{aligned}
 \rho = & 0.99833 \\
 & + 1.6903 \times 10^{-3} \times C_{Pu} \\
 & + 1.4276 \times 10^{-3} \times C_U \\
 & + 3.9956 \times 10^{-2} \times C_{HN} \\
 & - 8.696 \times 10^{-6} \times C_{Pu}^2 \\
 & - 1.087 \times 10^{-7} \times C_U^2 \\
 & - 8.513 \times 10^{-4} \times C_{HN}^2 \\
 & - 5.442 \times 10^{-6} \times T^2 \\
 & - 4.4889 \times 10^{-5} \times C_{Pu} \times C_{HN} \\
 & - 1.310 \times 10^{-6} \times C_{Pu} \times T \\
 & - 1.564 \times 10^{-5} \times C_U \times C_{HN} \\
 & - 9.487 \times 10^{-7} \times C_U \times T \\
 & - 8.684 \times 10^{-5} \times C_{HN} \times T \quad \dots\dots\dots(3)
 \end{aligned}$$

ここで、 C_{Pu} 、 C_{HN} および T は(1)式と同様であり、 C_U は25°CにおけるU(VI)濃度(g/ℓ)である。図4に、S S T式による密度の計算値と測定値の差を示した。Hofstetterらのデータ、および筆者らのデータよりも計算値が大きくなる傾向があり、図2との比較から、改良密度式の方がより測定値に近い値を与えることは明らかである。

これらの傾向を定量的に表したのが表1である。各欄の上段は密度の計算値と測定値の差の標準偏差であり、下段は計算値が測定値より大きくなる割合である。全データに対するMaimoniの式による計算値と測定値の差の標準偏差は、改良密度式による差の標準偏差の10倍以上である。一方、S S T式では、Hofstetterらのデータとの差が大きくまた、全体を通じて計算値が測定値より系統的に大きくなるという傾向が認められる。

3つの密度式による密度の計算値の比較を、Pu(IV):10~500 g/ℓ、硝酸:0~8 mol/ℓ、温度:25°Cの場合について、図5(a)~(c)に示した。硝酸濃度については1次の項しか考慮されてないMaimoniの式(破線)は、硝酸濃度の上昇にともなって密度が直線的に増加する点が改良密度式(実線)と異なる。硝酸濃度:3 mol/ℓ前後においては、両者は比較的良く一致しているが、Pu(IV)濃度が低いときには、Maimoniの式が改良密度式より大きな密度を与え、硝酸濃度が高くなるほどその差も大きくなる傾向がある。また、Pu(IV)濃度が高いときには、硝酸濃度:3 mol/ℓを境界にしてそれ以下ではMaimoniの式が大きな密度を与え、硝酸濃度:3 mol/ℓを超えると改良密度式が大きな密度を与える。今回計算した範囲では、Pu(IV):500 g/ℓ、硝酸:0~8 mol/ℓのときに、両者の差は最大となった(0.015 g/cm³)。一方、S S T式(一点破線)は、Pu(IV)濃度が100 g/ℓ以下では全体的に改良密度式より大きくなる傾向がある。また、Pu(IV)濃度が300 g/ℓ以上において硝酸濃度が高くなると、S S T式は改良密度式より著しく小さな密度を与える。

4. 結論

HofstetterらのPu(IV)-硝酸系の密度測定データに、筆者らの硝酸-水系の密度測定データを加えて重回帰分析を行うことにより、改良密度式を導出した。改良密度式は、従来報告されているMaimoniの式と較べて、より広い濃度および温度範囲(Pu(IV):0~480 g/l、硝酸:0~7 mol/l、温度:10~60°C)で信頼性の高い(標準誤差:0.00053 g/cm³)密度を与える。

なお、Hofstetterらは、プルトニウムと共存する硝酸の濃度をシュウ酸塩沈澱を利用する方法で分析したが、この方法では大きめの値となる可能性があることをDamienらが指摘している⁸⁾。また、データ数も必ずしも十分とは言えないので、今後、密度測定データが蓄積されれば、密度式も見直したいと考えている。

再処理工程においては、4価以外の原子価のプルトニウムを含む水溶液も取扱う。例えば、Purex法における分配工程ではPu(III)とPu(IV)が共存し、蒸発濃縮工程ではPu(VI)が生成する可能性がある。しかし、プルトニウムの原子価の変動が溶液密度に与える影響については報告されていない。これらの系の溶液密度式については、今後の課題として検討していく計画である。

参考文献

- 1) 館盛勝一、阿見則男、三好慶典：JAERI-M 83-047 (1983)
- 2) Sakurai S., Miyauchi M. and Tachimori S.: J.Nucl.Sci.Technol., 24, 415(1987)
- 3) 桜井聡、館盛勝一：JAERI-M 88-127 (1988)
- 4) Carter R.D., Kiel.G.R. and Ridgway K.R.: ARH-600 (1969)
- 5) Hofstetter K.J., Bowers D.L. and Kemmerlin R.P.: UCRL-13905 (1978)
- 6) Maimoni A.: UCRL-52727 (1979)
- 7) 科学技術庁原子力安全局核燃料規制課編：臨界安全ハンドブック，
にっかん書房 (1988)
- 8) Damien N. and Cauchetier P.: Anal.Chim.Acta, 41, 483(1968)

4. 結論

HofstetterらのPu(IV)-硝酸系の密度測定データに、筆者らの硝酸-水系の密度測定データを加えて重回帰分析を行うことにより、改良密度式を導出した。改良密度式は、従来報告されているMaimoniの式と較べて、より広い濃度および温度範囲(Pu(IV):0~480 g/ℓ、硝酸:0~7 mol/ℓ、温度:10~60℃)で信頼性の高い(標準誤差:0.00053 g/cm³)密度を与える。

なお、Hofstetterらは、プルトニウムと共存する硝酸の濃度をシュウ酸塩沈澱を利用する方法で分析したが、この方法では大きめの値となる可能性があることをDamienらが指摘している⁸⁾。また、データ数も必ずしも十分とは言えないので、今後、密度測定データが蓄積されれば、密度式も見直したいと考えている。

再処理工程においては、4価以外の原子価のプルトニウムを含む水溶液も取扱う。例えば、Purex法における分配工程ではPu(III)とPu(IV)が共存し、蒸発濃縮工程ではPu(VI)が生成する可能性がある。しかし、プルトニウムの原子価の変動が溶液密度に与える影響については報告されていない。これらの系の溶液密度式については、今後の課題として検討していく計画である。

参考文献

- 1) 館盛勝一、阿見則男、三好慶典：JAERI-M 83-047 (1983)
- 2) Sakurai S., Miyauchi M. and Tachimori S.: J.Nucl.Sci.Technol., 24, 415(1987)
- 3) 桜井聡、館盛勝一：JAERI-M 88-127 (1988)
- 4) Carter R.D., Kiel.G.R. and Ridgway K.R.: ARH-600 (1969)
- 5) Hofstetter K.J., Bowers D.L. and Kemmerlin R.P.: UCRL-13905 (1978)
- 6) Maimoni A.: UCRL-52727 (1979)
- 7) 科学技術庁原子力安全局核燃料規制課編：臨界安全ハンドブック，
にっかん書房 (1988)
- 8) Damien N. and Cauchetier P.: Anal.Chim.Acta, 41, 483(1968)

表1 Pu(IV)-硝酸水溶液系の密度式の評価

測定データ \ 密度式	改良密度式	Maimoniの式	S S T式
筆者ら (n=30) (硝酸-水系)	0.00015 ^{a)} (60%) ^{b)}	0.00856 (73%)	0.00308 (60%)
Hofstetterら (n=20) (Pu(IV)-硝酸-水系)	0.00074 (35%)	0.00108 (40%)	0.00350 (75%)
全体 (n=50) (Pu(IV)-硝酸-水系)	0.00048 (50%)	0.00662 (60%)	0.00321 (66%)

a): $\sqrt{\sum (\rho_{calc} - \rho_{meas})^2 / (n-1)}$, b): $\rho_{calc} > \rho_{meas}$ となる測定データの割合

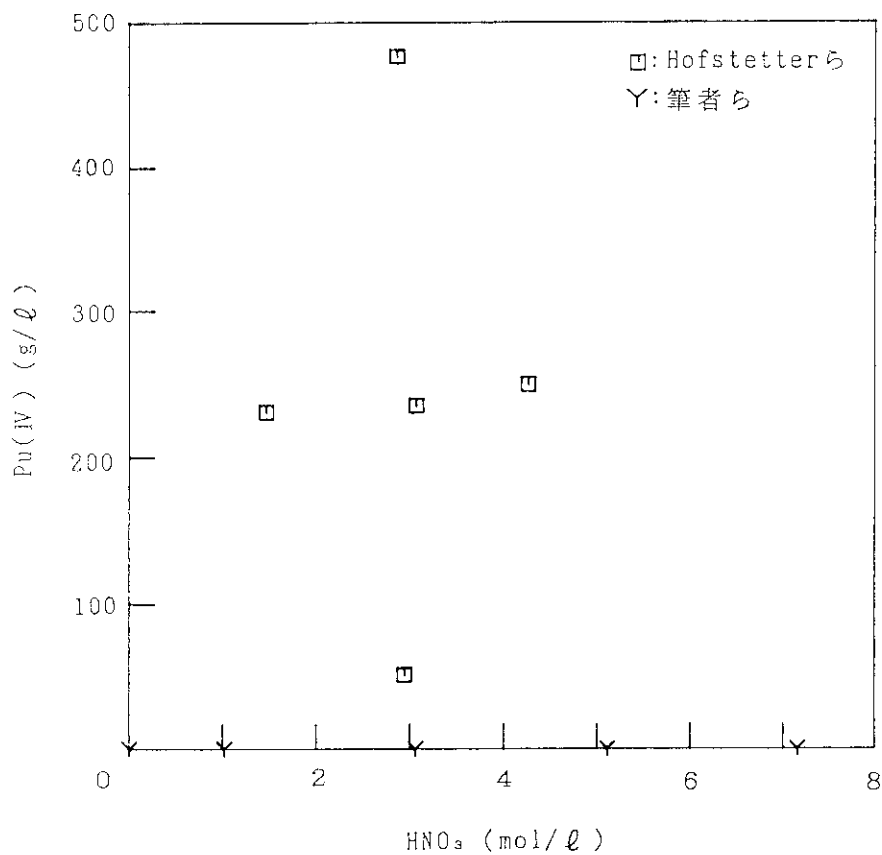


図1 プルトニウム(IV)-硝酸水溶液系の密度測定点

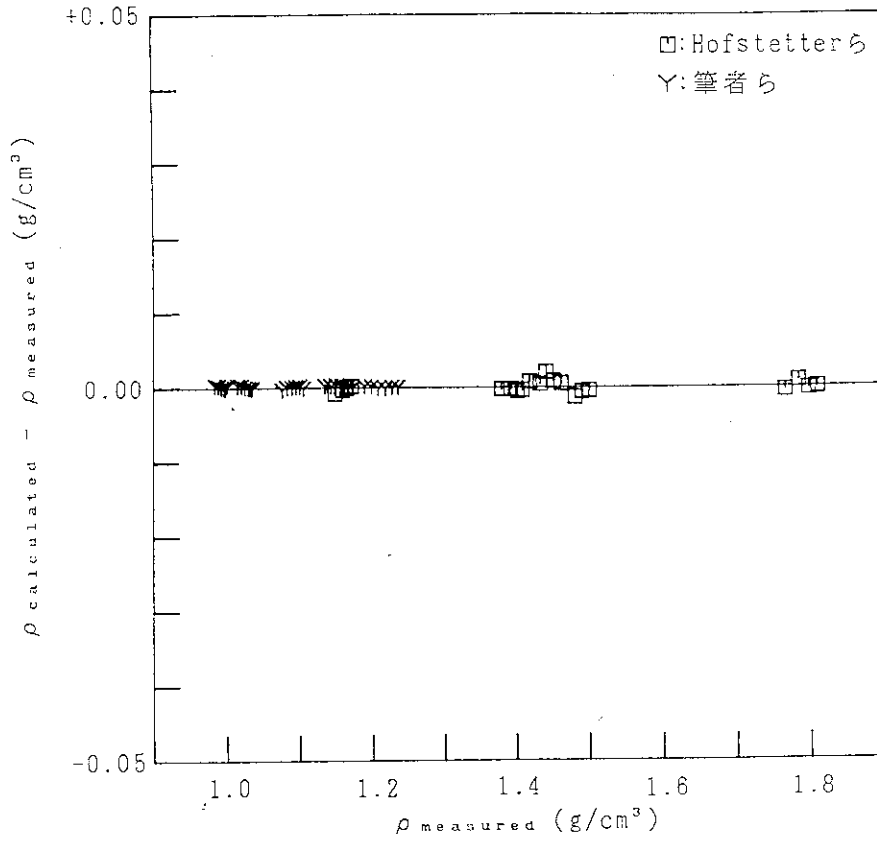


図2 密度測定値と改良密度式による計算値の比較

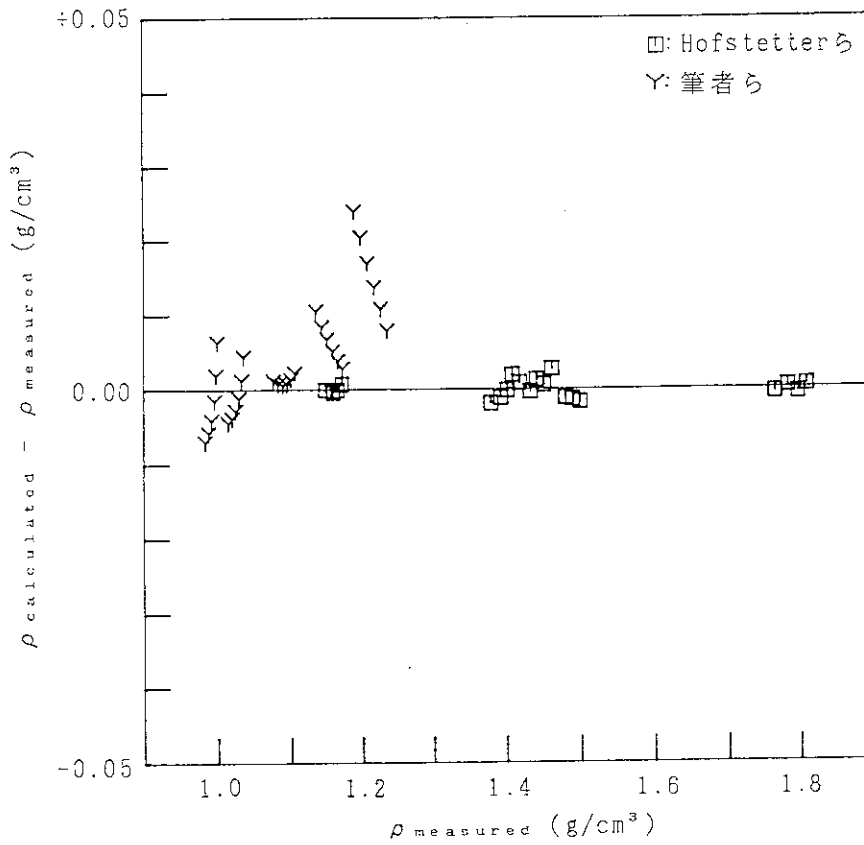


図3 密度測定値とMaimoniの式による計算値の比較

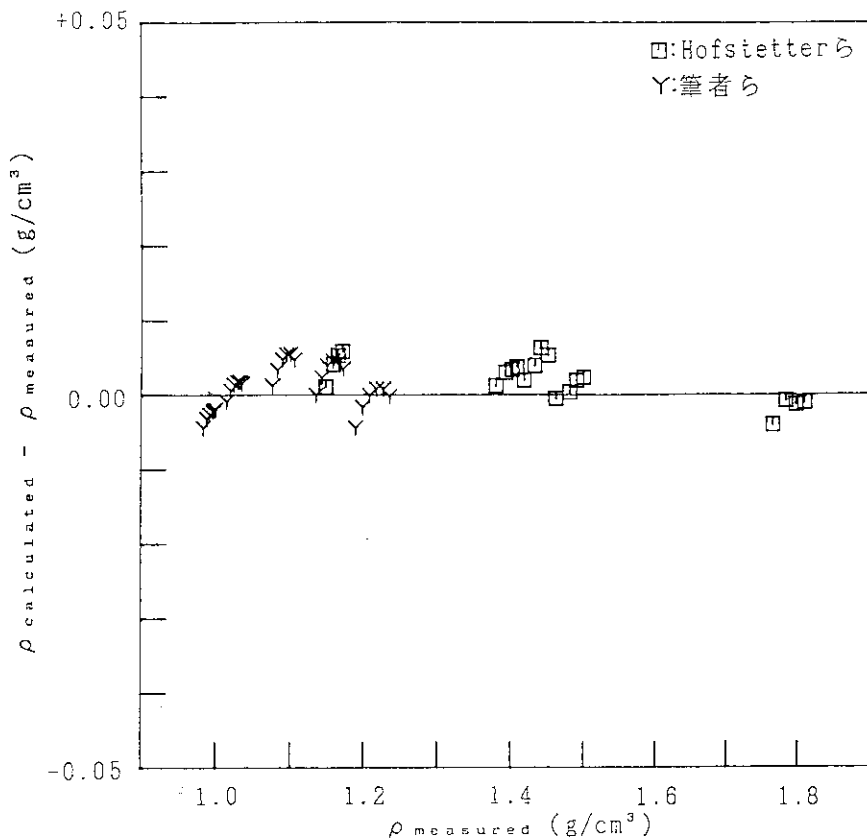


図4 密度測定値とS S T式による計算値の比較

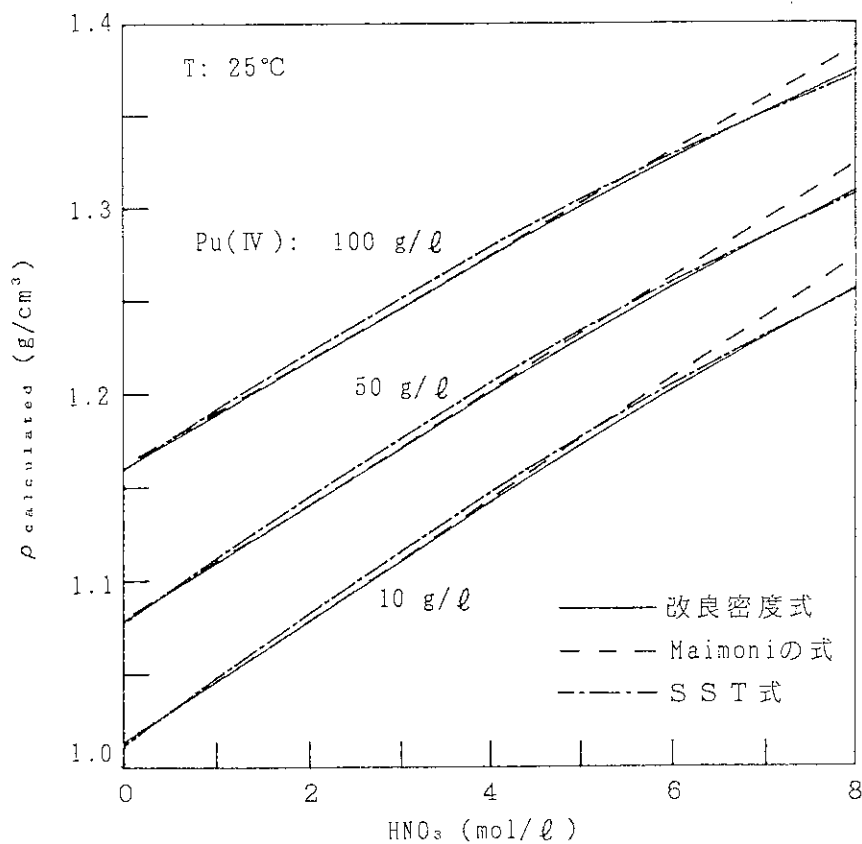


図5(a) 改良密度式, Maimoniの式およびS S T式による計算値の比較

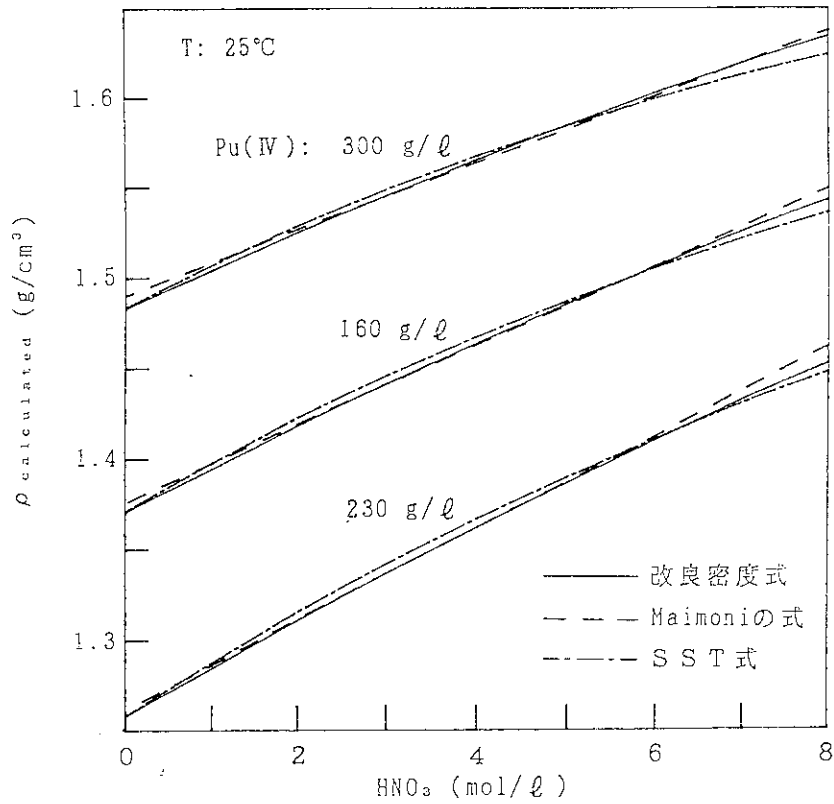


図 5(b) 改良密度式, Maimoniの式および S S T 式による計算値の比較

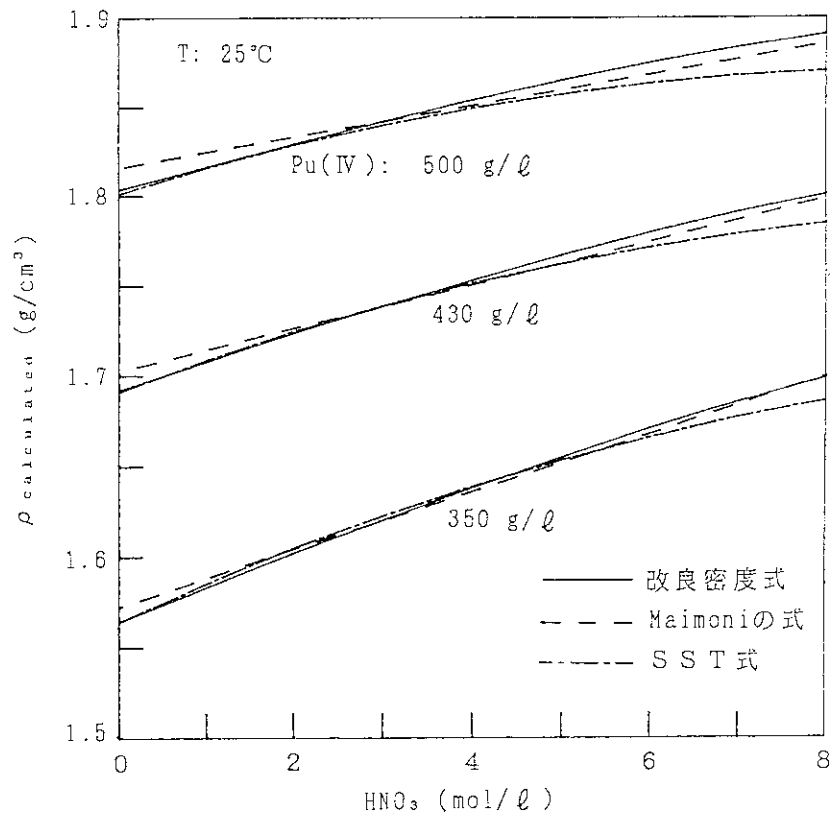


図 5(c) 改良密度式, Maimoniの式および S S T 式による計算値の比較

付録 A 改良密度式による密度計算値と測定値の比較

Pu(IV) (g/l)	HNO ₃ (mol/l)	T (°C)	ρ_{meas} (g/cm ³)	ρ_{calc} (g/cm ³)	$\rho_{\text{calc}} - \rho_{\text{meas}}$
51.06	2.95	25.00	1.1708	1.1710	0.0002
51.06	2.95	35.00	1.1649	1.1648	-0.0001
51.06	2.95	45.00	1.1585	1.1582	-0.0003
51.06	2.95	60.00	1.1481	1.1472	-0.0009
230.80	1.47	25.00	1.4076	1.4072	-0.0004
230.80	1.47	35.00	1.4004	1.3998	-0.0006
230.80	1.47	45.00	1.3921	1.3918	-0.0003
230.80	1.47	60.00	1.3789	1.3787	-0.0002
235.07	3.07	25.00	1.4500	1.4508	0.0008
235.07	3.07	35.00	1.4400	1.4420	0.0020
235.07	3.07	45.00	1.4323	1.4327	0.0004
235.07	3.07	60.00	1.4171	1.4178	0.0007
249.45	4.27	25.00	1.4987	1.4983	-0.0004
249.45	4.27	35.00	1.4888	1.4882	-0.0006
249.45	4.27	45.00	1.4791	1.4778	-0.0014
249.45	4.27	60.00	1.4609	1.4614	0.0005
477.09	2.87	25.00	1.8070	1.8069	-0.0001
477.09	2.87	35.00	1.7952	1.7949	-0.0003
477.09	2.87	45.00	1.7816	1.7824	0.0008
477.09	2.87	60.00	1.7632	1.7628	-0.0004
0.00	0.00	10.00	0.9998	1.0001	0.0002
0.00	0.00	20.00	0.9983	0.9982	-0.0001
0.00	0.00	30.00	0.9957	0.9956	-0.0001
0.00	0.00	40.00	0.9923	0.9923	-0.0000
0.00	0.00	50.00	0.9880	0.9882	0.0002
0.00	0.00	60.00	0.9832	0.9834	0.0002
0.00	1.02	10.00	1.0355	1.0354	-0.0001
0.00	1.02	20.00	1.0327	1.0325	-0.0002
0.00	1.02	30.00	1.0291	1.0290	-0.0001
0.00	1.02	40.00	1.0248	1.0248	0.0000
0.00	1.02	50.00	1.0198	1.0200	0.0002
0.00	1.02	60.00	1.0144	1.0146	0.0002
0.00	3.07	10.00	1.1052	1.1051	-0.0001
0.00	3.07	20.00	1.1001	1.1002	0.0001
0.00	3.07	30.00	1.0948	1.0948	0.0000
0.00	3.07	40.00	1.0890	1.0890	0.0000
0.00	3.07	50.00	1.0828	1.0827	-0.0001
0.00	3.07	60.00	1.0763	1.0759	-0.0004
0.00	5.12	10.00	1.1722	1.1722	-0.0001
0.00	5.12	20.00	1.1652	1.1653	0.0000
0.00	5.12	30.00	1.1579	1.1580	0.0001
0.00	5.12	40.00	1.1503	1.1505	0.0002
0.00	5.12	50.00	1.1426	1.1427	0.0001
0.00	5.12	60.00	1.1345	1.1346	0.0001
0.00	7.17	10.00	1.2346	1.2346	0.0000
0.00	7.17	20.00	1.2257	1.2257	0.0000
0.00	7.17	30.00	1.2168	1.2167	-0.0001
0.00	7.17	40.00	1.2076	1.2075	-0.0001
0.00	7.17	50.00	1.1981	1.1982	0.0001
0.00	7.17	60.00	1.1886	1.1887	0.0001

付録B Maimoni の式による密度計算値と測定値の比較

Pu(IV) (g/ℓ)	HNO ₃ (mol/ℓ)	T (°C)	ρ_{meas} (g/cm ³)	ρ_{calc} (g/cm ³)	ρ_{calc} - ρ_{meas}
51.06	2.95	25.00	1.1708	1.1715	0.0007
51.06	2.95	35.00	1.1649	1.1647	-0.0002
51.06	2.95	45.00	1.1585	1.1580	-0.0005
51.06	2.95	60.00	1.1481	1.1479	-0.0002
230.80	1.47	25.00	1.4076	1.4095	0.0018
230.80	1.47	35.00	1.4004	1.4002	-0.0002
230.80	1.47	45.00	1.3921	1.3909	-0.0012
230.80	1.47	60.00	1.3789	1.3770	-0.0019
235.07	3.07	25.00	1.4500	1.4506	0.0006
235.07	3.07	35.00	1.4400	1.4412	0.0012
235.07	3.07	45.00	1.4323	1.4319	-0.0004
235.07	3.07	60.00	1.4171	1.4179	0.0008
249.45	4.27	25.00	1.4987	1.4970	-0.0017
249.45	4.27	35.00	1.4888	1.4874	-0.0014
249.45	4.27	45.00	1.4791	1.4779	-0.0012
249.45	4.27	60.00	1.4609	1.4636	0.0027
477.09	2.87	25.00	1.8070	1.8074	0.0004
477.09	2.87	35.00	1.7952	1.7946	-0.0006
477.09	2.87	45.00	1.7816	1.7818	0.0002
477.09	2.87	60.00	1.7632	1.7627	-0.0005
0.00	0.00	10.00	0.9998	1.0061	0.0063
0.00	0.00	20.00	0.9983	1.0001	0.0018
0.00	0.00	30.00	0.9957	0.9941	-0.0016
0.00	0.00	40.00	0.9923	0.9881	-0.0042
0.00	0.00	50.00	0.9880	0.9821	-0.0059
0.00	0.00	60.00	0.9832	0.9761	-0.0071
0.00	1.02	10.00	1.0355	1.0399	0.0043
0.00	1.02	20.00	1.0327	1.0339	0.0012
0.00	1.02	30.00	1.0291	1.0279	-0.0012
0.00	1.02	40.00	1.0248	1.0219	-0.0029
0.00	1.02	50.00	1.0198	1.0159	-0.0039
0.00	1.02	60.00	1.0144	1.0099	-0.0045
0.00	3.07	10.00	1.1052	1.1074	0.0022
0.00	3.07	20.00	1.1001	1.1014	0.0013
0.00	3.07	30.00	1.0948	1.0954	0.0006
0.00	3.07	40.00	1.0890	1.0894	0.0004
0.00	3.07	50.00	1.0828	1.0834	0.0006
0.00	3.07	60.00	1.0763	1.0774	0.0011
0.00	5.12	10.00	1.1722	1.1749	0.0027
0.00	5.12	20.00	1.1652	1.1689	0.0037
0.00	5.12	30.00	1.1579	1.1629	0.0050
0.00	5.12	40.00	1.1503	1.1570	0.0066
0.00	5.12	50.00	1.1426	1.1510	0.0084
0.00	5.12	60.00	1.1345	1.1450	0.0105
0.00	7.17	10.00	1.2346	1.2424	0.0078
0.00	7.17	20.00	1.2257	1.2364	0.0107
0.00	7.17	30.00	1.2168	1.2304	0.0136
0.00	7.17	40.00	1.2076	1.2245	0.0168
0.00	7.17	50.00	1.1981	1.2185	0.0204
0.00	7.17	60.00	1.1886	1.2125	0.0239

付録 C. SST式による密度計算値と測定値の比較

Pu(IV) (g/l)	HNO ₃ (mol/l)	T (°C)	ρ_{meas} (g/cm ³)	ρ_{calc} (g/cm ³)	ρ_{calc} - ρ_{meas}
51.06	2.95	25.00	1.1708	1.1766	0.0058
51.06	2.95	35.00	1.1649	1.1701	0.0052
51.06	2.95	45.00	1.1585	1.1626	0.0041
51.06	2.95	60.00	1.1481	1.1491	0.0010
230.80	1.47	25.00	1.4076	1.4113	0.0037
230.80	1.47	35.00	1.4004	1.4038	0.0034
230.80	1.47	45.00	1.3921	1.3951	0.0030
230.80	1.47	60.00	1.3789	1.3801	0.0012
235.07	3.07	25.00	1.4500	1.4554	0.0053
235.07	3.07	35.00	1.4400	1.4463	0.0063
235.07	3.07	45.00	1.4323	1.4362	0.0039
235.07	3.07	60.00	1.4171	1.4191	0.0019
249.45	4.27	25.00	1.4987	1.5010	0.0023
249.45	4.27	35.00	1.4888	1.4908	0.0020
249.45	4.27	45.00	1.4791	1.4794	0.0003
249.45	4.27	60.00	1.4609	1.4604	-0.0005
477.09	2.87	25.00	1.8070	1.8059	-0.0011
477.09	2.87	35.00	1.7952	1.7939	-0.0013
477.09	2.87	45.00	1.7816	1.7808	-0.0008
477.09	2.87	60.00	1.7632	1.7591	-0.0041
0.00	0.00	10.00	0.9998	0.9978	-0.0020
0.00	0.00	20.00	0.9983	0.9962	-0.0021
0.00	0.00	30.00	0.9957	0.9934	-0.0023
0.00	0.00	40.00	0.9923	0.9896	-0.0027
0.00	0.00	50.00	0.9880	0.9847	-0.0033
0.00	0.00	60.00	0.9832	0.9787	-0.0045
0.00	1.02	10.00	1.0355	1.0370	0.0015
0.00	1.02	20.00	1.0327	1.0344	0.0017
0.00	1.02	30.00	1.0291	1.0308	0.0017
0.00	1.02	40.00	1.0248	1.0261	0.0013
0.00	1.02	50.00	1.0198	1.0203	0.0005
0.00	1.02	60.00	1.0144	1.0135	-0.0009
0.00	3.07	10.00	1.1052	1.1099	0.0047
0.00	3.07	20.00	1.1001	1.1056	0.0055
0.00	3.07	30.00	1.0948	1.1002	0.0054
0.00	3.07	40.00	1.0890	1.0937	0.0047
0.00	3.07	50.00	1.0828	1.0861	0.0033
0.00	3.07	60.00	1.0763	1.0775	0.0012
0.00	5.12	10.00	1.1722	1.1757	0.0035
0.00	5.12	20.00	1.1652	1.1696	0.0044
0.00	5.12	30.00	1.1579	1.1624	0.0045
0.00	5.12	40.00	1.1503	1.1542	0.0039
0.00	5.12	50.00	1.1426	1.1448	0.0022
0.00	5.12	60.00	1.1345	1.1344	-0.0001
0.00	7.17	10.00	1.2346	1.2343	-0.0003
0.00	7.17	20.00	1.2257	1.2265	0.0008
0.00	7.17	30.00	1.2168	1.2175	0.0007
0.00	7.17	40.00	1.2076	1.2075	-0.0001
0.00	7.17	50.00	1.1981	1.1963	-0.0018
0.00	7.17	60.00	1.1886	1.1841	-0.0045