

## 추출크로마토그래피와 유도결합플라스마 원자방출분광법을 이용한 이산화우라늄분말 중 미량금속불순물 분석

崔珉洵\* · 李昌憲 · 裴炳烈 · 韓善鎭 · 徐武烈 · 嚴泰允 · 李桂浩†

한국원자력연구소

†충남대학교 화학과

(1993. 5. 13 접수)

## Determination of the Trace Elements in $UO_2$ Powder by ICP-AES Directly Coupled with Extraction Chromatography

Kwang-Soon Choi, Chang-Heon Lee, Hyung-Yeal Pyo, Sun-Ho Han,

Moo-Yul Suh, Tae-Yoon Eom, and Gae-Ho Lee†

Korea Atomic Energy Research Institute, Taejon 305-606, Korea

†Department of Chemistry, Chungnam National University, Taejon 305-764, Korea

(Received May 13, 1993)

**요 약.**  $UO_2$  분말에 미량 함유되어 있는 금속불순물들을 신속하게 정량하고 분석과정에서 발생하는 폐액의 양을 줄이기 위하여, 우라늄용액으로부터 미량금속불순물들을 분리함과 동시에 ICP-AES로 분석할 수 있는 장치를 구성하였다. 미량금속불순물들을 분리하기 위하여, 폴리에틸렌으로 제작한 분리컬럼(내경: 0.7 cm, 길이: 7 cm)에 TBP(tri-n-butyl phosphate)를 입힌 테프론 분말(약 330  $\mu$ m)을 충전하고, 분리컬럼의 출구를 ICP-AES의 시료주입구에 연결시켰다.  $UO_2$  분말에 미량 함유되어 있는 몰리브덴을 비롯한 11개 원소를 분리와 동시에 정량할 수 있었으며, 이들 원소들에 대한 회수율은 용매추출법에서와 거의 동일한 91~110%로서 핵연료 제조공정의 품질관리에 적용이 가능하였다.

**ABSTRACT.** An ICP-AES system directly connected with a separation column was used in order to determine the trace elements in  $UO_2$  powder promptly and reduce the volume of the waste solution. The outlet of a separation column, which was filled with Teflon powder (330  $\mu$ m) coated with tri-n-butyl phosphate (TBP) as extractant, was directly connected with sample injection tube of ICP-AES. Eleven elements including molybdenum in  $UO_2$  powder were separated and determined simultaneously. Recoveries of these elements were 91~110% and these results were agreed with those of solvent extraction methods. This method was applicable to quality control in manufacturing nuclear fuel.

### 서 론

핵연료의 원료로 사용되는  $UO_2$  분말 중 불순물로 함유되어 있는 금속원소들은 핵연료를 부식시키거나 열중성자 흡수단면적이 커서 핵연료의 효율성과 안정성을 증대시키기 위하여 금속불순물의 농도를 미량으로까지 규제하고 있으므로 이들을 정밀하고, 정확하게 분석하기 위한 많은 연구가 수행되어 왔으며<sup>1-5</sup>, 환경오염문제가 심각하게 대두되고 있는 현재 핵연료 및 핵재료물질의 분석시 분석폐액발생

을 최소화할 수 있는 분석법의 개발이 절실히 요구되고 있다.

미량원소분석시 매질간섭으로 인해 분리과정을 반드시 필요로 하는 경우에는 분석과정이 상당히 복잡해져서 폐액의 양이 급격히 증가하게 된다. 따라서 미량원소분석시 소량의 시료를 사용할 만큼 감도가 좋은 분석기와 매질로부터 미량원소를 분리하는 기술을 바로 연결하여 폐액의 양을 줄이는 방법이 검토되었다.

UO<sub>2</sub> 분말 중 미량금속불순물의 분석방법으로는 직류아크 원자방출분광법 원자흡수분광법, 유도결합플라즈마 원자방출분광법(ICP-AES) 등이 있으며 이 중 ICP-AES는 감도가 좋고, 직선성이 넓으며, 간섭현상이 비교적 작고, 동시에 여러 원소를 분석할 수 있는 장점을 갖고 있어서 최근에 많이 사용되고 있다. 그러나 ICP-AES의 많은 장점에도 불구하고 우라늄원소의 스펙트럼 간섭이 매우 커서 우라늄으로부터 미량의 금속불순물들을 분리한 후에야 ICP-AES로 측정이 가능하다.

우라늄으로부터 금속불순물들을 분리하는 방법으로는 용매추출법, 이온교환법, 추출크로마토그래피 등이 있다. 용매추출법<sup>67</sup>은 조작성이 간편하고 특별한 장비를 필요로 하지 않으므로 많이 사용되고 있으나 분리효율을 크게 하기 위하여 여러번 추출해야 하므로 폐액이 많이 발생된다. 이온교환법<sup>68</sup>은 용매추출법과 다르게 토륨과 같은 특정원소의 분리에 제한적으로 사용되고 있다. 역상분배크로마토그래피라고 하는 추출크로마토그래피는 용매추출법과 비슷한 정도의 분리효율을 가지며 조작성이 간편하여 UO<sub>2</sub> 분말 중 금속원소들을 분리하는 방법으로 자주 이용된다. Al-Ammar 등<sup>9</sup>은 Amberlite XAD-4와 TBP를 각각 지지체와 정지상으로 사용하여 우라늄으로부터 금속불순물들을 분리한 후 ICP-AES로 측정하였으며, Pan 등<sup>10</sup>은 TEHP(tri-(2-ethyl-hexyl-phosphate))와 Kel-F(polytrifluorochloroethylene)를 정지상과 지지체로 사용하여 우라늄으로부터 금속불순물들을 분리한 다음 ICP-AES로 분석하였다. 그러나 이들은 분리컬럼과 ICP-AES를 곧바로 연결하여 실험하지 않았다.

따라서 본 실험은 공업적 규모의 우라늄 정제에 많이 사용되며, 생산에서 안정하고, 우라늄의 분포 계수가 다른 원소들보다 큰 TBP를 정지상으로 하고, 지지체로 테프론분말을 사용하여 분리컬럼을 제조한 다음, ICP-AES의 시료주입부분에 직접 연결시켜 분리과 동시에 금속불순물들을 측정하는 방법에 대하여 연구하였으며, 회수율과 정확도 및 정밀도를 용매추출법과 비교하였다.

## 실 험

시약 및 기기. 테프론분말은 입자의 크기가 약

330 μm인 일본 삼정사 제품을, U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 표준분말은 불순물의 농도가 알려진 CRM(Certified Reference Materials) No. 124-4를 사용하였다. 표준용액은 Spex사 제품을, 케로신은 순정사 제품을, 에틸에케르 및 질산은 Merck사 제품을 사용하였고, TBP는 Merck사 제품을 증류수로 3회 세척하여 사용하였으며, Milli-Q 시스템을 통과한 증류수(저항치=18 me-gaohm cm)를 사용하였다.

추출크로마토그래피는 분리컬럼, 연동펌프, 시료주입기로 구성되어 있으며, 분리컬럼(내경: 0.7 cm, 길이: 7 cm)은 폴리에틸렌 재질을 사용하였다. 연동펌프는 독일 Spectec사 제품을, 100 μl 용량의 시료고리(sample loop)가 연결된 시료주입기는 강한 산용액을 사용할 수 있는 비금속 재질의 Yamazen사 제품을 사용하였으며, 분리컬럼의 출구로부터 ICP-AES의 시료주입부분까지는 산용액에 의한 부식을 피하기 위하여 테프론관(내경: 0.032인치)으로 연결하였다.

ICP-AES는 40개의 원소를 동시에 분석할 수 있는 Jobin Yvon사의 모델 JY 50 P를, 아르곤가스는 순도가 99.999%인 액체 아르곤가스를 사용하였다. 작동조건은 Table 1과 같으며, 시스템의 전체적인 구성도와 본 실험에서 사용한 각 원소의 파장들을 Fig. 1과 Table 2에 각각 요약하였다.

**표준용액 및 시료처리.** 용매추출과 추출크로마토그래피를 위한 표준용액의 매질은 각각 6M과 4.5M 질산을 사용하였으며, 시료용액은 금속불순물의 농도가 알려져 있는 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 표준분말을 110°C에서 1시간 건조시킨 후, 0.60 g을 취하여 진한 질산 4 ml로 용해시킨 다음, 서서히 가열하여 과량의 질산을 제거하고 표준용액과 같은 매질의 용액이 되게 하였다.

Table 1. Operating conditions of ICP-AES

Incident power	: 1.0 kW
Reflected power	: <5 W
Integration time	: 1 sec
Flow rate of argon gas (using humidifier)	
Coolant gas	: 12 l/min
Carrier gas	: 0.3 l/min
Sheath gas	: 0.3 l/min
Nebulizer	: Meinhard type C
Sample uptake rate	: 1.0 ml/min
Observation height	: 15 mm above load coil

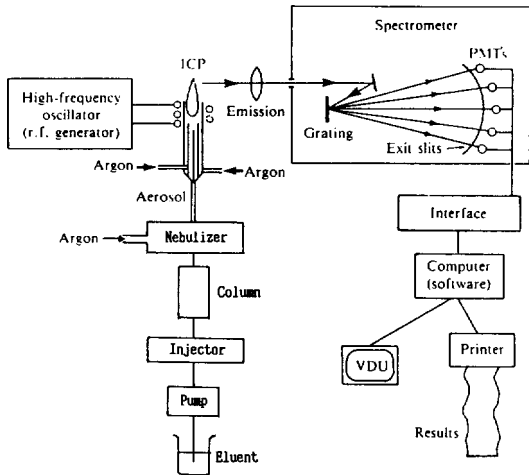


Fig. 1. Schematic diagram of ICP-AES directly connected with separation column.

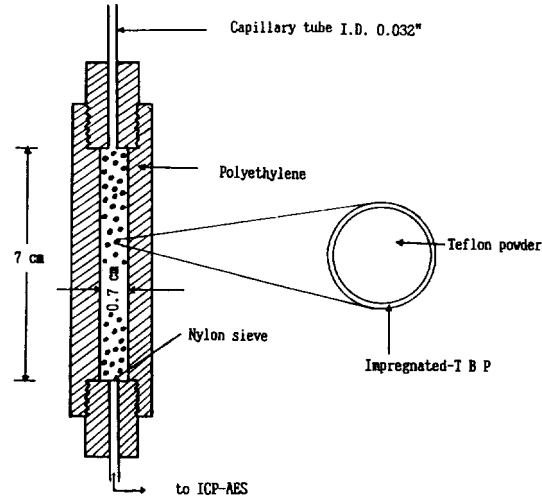


Fig. 2. Separation column.

Table 2. Analytical lines

Element	Wavelength (nm)	Element	Wavelength (nm)
Molybdenum	202.032	Manganese	257.610
Chromium	205.559	Iron	259.940
Zinc	213.856	Magnesium	279.553
Lead	220.353	Aluminium	308.215
Cadmium	226.502	Vanadium	310.230
Cobalt	228.616	Calcium	317.993
Nickel	231.604	Copper	324.754

**분리컬럼.** 4.5 M 질산용액으로 미리 포화시킨 TBP와 테프론분말을 비커에 넣고 가끔 흔들어 주어 1일 방치한 후 컬럼에 충전하고, 테프론지지체에 도포되지 않고 분리컬럼에 여분으로 남아 있는 TBP를 제거하기 위하여 TBP로 미리 포화시킨 4.5 M 질산을 20분간 1.0 ml/min의 유속으로 통과시켰다(Fig. 2).

분리컬럼에 사용된 TBP와 테프론분말의 무게는 에틸에테르를 약 1시간 동안 1.0 ml/min 유속으로 컬럼에 통과시켜, 용출되는 에틸에테르를 낮은 온도에서 증발시킨 다음 남아있는 TBP의 무게를 측정하였다. 테프론분말의 무게는 에틸에테르 10 ml로 1회 더 세척한 다음 건조시켜 측정하였다. 수회 사용한 후 테프론분말은 컬럼을 분해하여 에틸에테르 40 ml로 우라늄을 제거한 다음 건조시켜 재생하였다.

**용매추출법에 의한 분리효율 및 회수율 측정.** 6

M 질산용액으로 미리 포화시킨 TBP와 우라늄 시료용액을 각각 10 ml씩 분별깔대기에 넣고 흔들어 준 후 방치하여 수층과 유기층을 분리시켰다. 이러한 과정을 3회 반복한 다음 수층에 남아 있는 금속불순물의 농도로부터 회수율을 측정하였으며 우라늄의 분리효율을 측정하기 위하여 추출횟수마다 수층에 남아 있는 우라늄의 농도를 측정하였다.

**추출크로마토그래피에서 질산농도에 따른 우라늄의 분리효율.**  $UO_2$  분말 2.2 g을 진한 질산 2 ml로 용해시킨 다음 서서히 가열하여 과량의 질산을 제거하고 각각 2.5, 3.6, 4.5 및 5.5 M인 질산용액으로 다시 녹여 10 ml로 하게 하였다. 시료주입기에 위의 용액을 주입한 다음 미리 TBP로 포화시킨 각각의 질산용액을 용리액으로 하여 용출액을 1분 간격으로 시험관에 받아 우라늄 농도를 측정하였다.

**추출크로마토그래피에서 컬럼의 길이변화에 따른 우라늄의 분리효율.** 컬럼의 지름은 0.7 cm로 일정하게 하고 컬럼의 길이를 3, 5, 7 및 9 cm로 변화시키면서, 우라늄 농도가 약 180 mg/ml 용액을 시료주입기에 주입하였다. TBP와 미리 포화시킨 4.5 M 질산용액을 용리액으로 하여 용출액을 1분 간격으로 시험관에 받아 우라늄 농도를 측정하였다.

### 결과 및 고찰

**용매추출법.** 용매추출에서 사염화탄소를 회석제

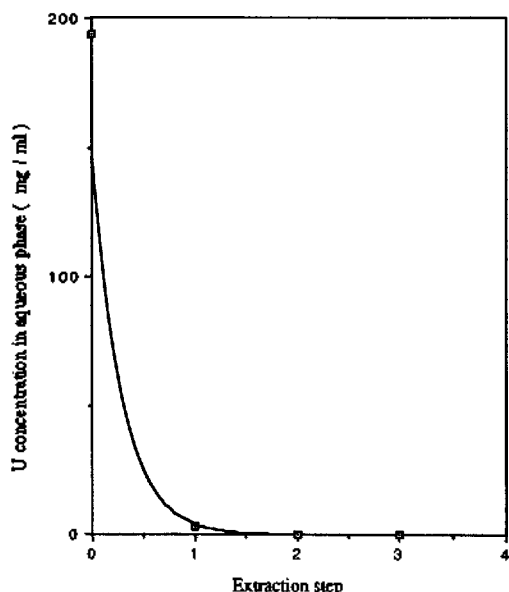


Fig. 3. Concentration of uranium in aqueous phase after extraction step.

로 사용하면 분리효율이 좋으나 사염화탄소는 폐기물 처리가 곤란하므로 순수한 TBP를 사용하였으며, 처음 단계에서는 상분리가 이루어지지 않아 캐로신 10 ml를 가했다. Fig. 3은 추출횟수에 따른 수층의 우라늄 농도를 나타낸 것으로, 6M 질산매질의 우라늄 표준용액으로 검정곡선을 작성한 다음 ICP-AES로 측정된 결과, 1회 추출 후 수층에 남아 있는 우라늄 농도는 약 3,000 ppm이었으며, 2회 추출 후에는 100 ppm이었고, 3회 추출한 다음에는 4 ppm이었다.

용매추출법에 의한 금속불순물들의 회수율을 측정하기 위하여 6M 질산매질의 혼합표준용액으로 검정곡선을 작성하여 수층에 남아 있는 금속불순물들의 농도를 측정하였다. 회수율은 Table 3에서와 같이 불리브덴과 망간 및 칼슘을 제외한 다른 금속불순물들의 회수율이 93~100% 정도로 양호한 회수율을 보였으며 이때 폐액의 양은 TBP 30 ml와 캐로신 10 ml이었다.

**추출크로마토그래피.** 스파이크나 직류아크를 들뜸광원으로 하여 여러 금속원소의 파장을 수록해 놓은 MIT(Massachusetts Unstitute of Technology) 파장표에 의하면, 우라늄의 스펙트럼수는 다른 금속원소에 비해 상당히 많으며, 들뜸광원의 온도가

Table 3. Recovery of impurities in  $U_3O_8$  standard powder (CRM No. 124-4) by liquid-liquid extraction method

Element	Present ( $\mu\text{g/ml}$ )	Found ( $\mu\text{g/ml}$ ) <sup>a</sup>	Recovery (%)	RSD <sup>b</sup>
Mo	0.50	0.44 ± 0.005	88	1.6
Cr	0.61	0.59 ± 0.007	97	1.6
Zn	1.12	1.13 ± 0.03	101	3.4
Pb	0.29	0.29 ± 0.01	100	5.7
Cd	0.03	0.03 ± 0.001	100	4.3
Co	0.13	0.13 ± 0.003	100	3.3
Ni	1.12	1.04 ± 0.01	93	1.6
Mn	0.29	0.25 ± 0.005	86	2.0
Fe	1.52	1.42 ± 0.15	93	16
Mg	0.56	0.53 ± 0.02	95	4.4
Al	1.27	1.25 ± 0.04	98	4.4
V	0.25	0.25 ± 0.004	100	2.1
Ca	1.06	1.36 ± 0.03	128	2.8
Cu	0.27	0.26 ± 0.01	96	6.0

<sup>a</sup> $n=9$ , 95% confidence interval, <sup>b</sup>RSD=Relative standard deviation.

더 높은 플라즈마의 경우에는 더욱 많은 스펙트럼을 갖게 된다. 따라서 우라늄에 함유되어 있는 미량원소의 분석에는 우라늄에 의한 스펙트럼 방해가 크다. 금속불순물 분석시 우라늄의 방해 정도를 조사한 실험결과에 의하면, 다른 원소들은 미량농도의 우라늄에 의한 스펙트럼 방해가 없었으나, 아연과 철 및 마그네슘은 Fig. 4, 5 및 6에서와 같이 우라늄이 10 ppm만 존재하여도 우라늄에 의한 스펙트럼 방해가 크므로 우라늄을 거의 제거하여야 함을 알 수 있다.

분리컬럼을 최적화하기 위하여 고려해야 할 변수는 충전된 TBP양, 지지체의 입자크기, 용리액의 유속, 용리액의 질산농도 등이 있다. 우라늄으로부터 금속불순물들을 잘 분리하기 위해서는, 분리컬럼의 용량이 커야 하며 이것은 지지체위에 추출제가 많이 입혀져 있어야 가능하다. 본 실험에서 사용한 컬럼에 충전된 지지체와 지지체위에 입혀진 TBP의 무게는 각각 1.83 g과 1.82 g이었다. 용리액의 유속은 컬럼에서 우라늄으로부터 금속불순물들을 분리하는데 영향을 주고, 또 ICP-AES의 신호 대 잡음비(S/N ratio)에도 영향을 준다. 사용한 분무기의 최적유속은 1.0 ml/min이며, 연동펌프의 유속이 분무기 유속보다

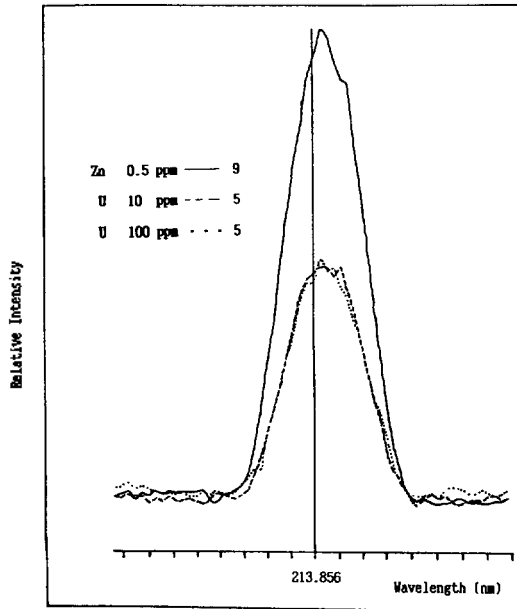


Fig. 4. Spectral interference of uranium on zinc.

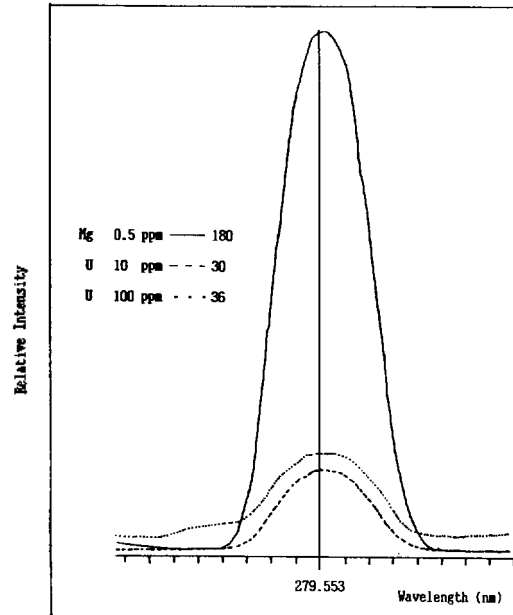


Fig. 6. Spectral interference of uranium on magnesium.

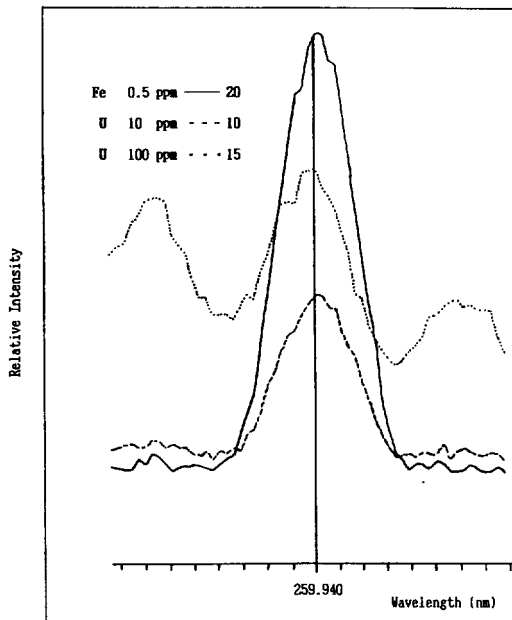


Fig. 5. Spectral interference of uranium on iron.

크면 ICP-AES의 분무기에 손상을 주므로 분무기 유속보다 작은 범위에서 실험하였다. 용리액의 유속이 감소하면 금속불순물의 용출시간이 늦어지며, 전체 피크 모양은 크게 다르지 않으나 꼬리끝기

(tailing)현상이 나타나므로 ICP-AES와 같은 유속으로 용출시켰다.

Uranyl nitrate는 2분자의 TBP와 결합하여  $[UO_2(NO_3)_2(TBP)_2]$ 와 같은 착물을 형성하며<sup>11</sup>, TBP-질산계의 용매추출에서 우라늄의 분포계수는 질산의 농도가 6 M일 때 최대를 보여주고 있다<sup>12</sup>. 그러나 본 실험의 추출크로마토그래피에서는 Fig. 7에서와 같이 질산농도가 2.5 M과 3.6 M에서는 우라늄이 빨리 용출되므로 부적합하였으며, 4.5 M과 5.5 M에서는 용출되는 우라늄 농도가 비슷하므로 4.5 M 질산용액을 용리액으로 사용하였다. Hamlin 등<sup>13</sup>이 TBP를 압힌 Kel-F를 컬럼의 지지체로 사용하여 컬럼의 수명을 측정된 실험결과에 의하면, 증류수 1리터와 5.5 M 질산 1리터에 TBP가 380 mg과 160 mg이 녹아 나오므로, TBP가 용리액에 의해 지지체로부터 벗겨지는 것을 막아주기 위하여 미리 질산용액과 TBP를 포화시켜 사용하였다. Fig. 8은 컬럼의 길이 변화에 따라 용출되는 우라늄의 농도를 나타낸 것으로 3 cm와 5 cm 길이의 컬럼을 사용할 때는 우라늄과 금속불순물이 동시에 용출되므로 적당하지 않았고, 7 cm 길이의 컬럼을 사용할 때는 약 10분 동안 우라늄이 용출되지 않았다. 우라늄과 금속원

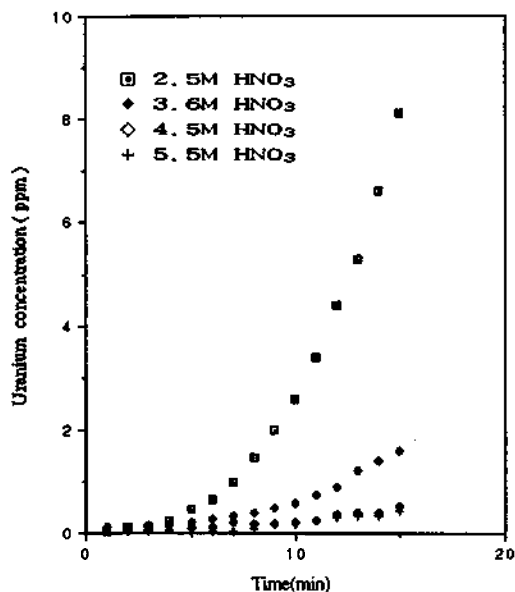


Fig. 7. Elution of uranium with concentration of  $\text{HNO}_3$ . Sample loop:  $100 \mu\text{l}$ , Flow rate of eluent:  $1 \text{ ml/min}$ .

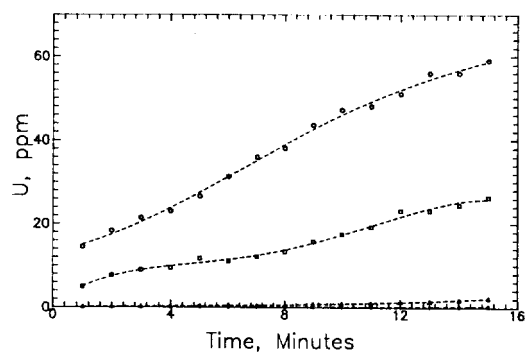


Fig. 8. Elution of uranium with column length.  $\circ$ :  $3 \text{ cm}$ ,  $\square$ :  $5 \text{ cm}$ ,  $\triangle$ :  $7 \text{ cm}$ ,  $\blacklozenge$ :  $9 \text{ cm}$ , Sample loop:  $100 \mu\text{l}$ , Concentration of U:  $180 \text{ mg/ml}$ , Flow rate of eluent:  $1 \text{ ml/min}$ , Concentration of eluent:  $4.5 \text{ M HNO}_3$ .

소들의 용출시간 차이는 TBP에 대한 우라늄의 분포계수가 다른 금속원소들의 분포계수에 비해 크기 때문이다. 이 컬럼을 사용하여 동일한 분리를 3회 까지 실행할 수 있었으며, 컬럼의 길이를 더 증가시키면 3회 이상 분리를 실행할 수 있었으나, 금속원소들의 피크 때가 넓어지거나 분리시간이 많이 소요되므로 더 긴 컬럼은 사용하지 않았다.

몰리브덴의 용출시간에 따른 방출선의 세기변화를

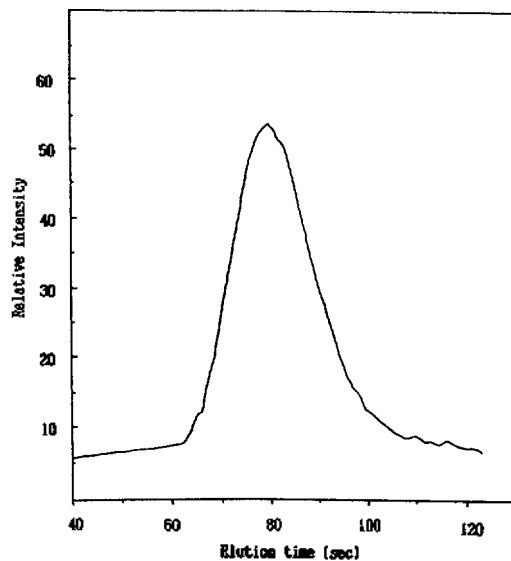


Fig. 9. Emission intensity of molybdenum as a function of elution time. Sample loop:  $100 \mu\text{l}$ , Flow rate of eluent:  $1 \text{ ml/min}$ , Concentration of eluent:  $4.5 \text{ M HNO}_3$ .

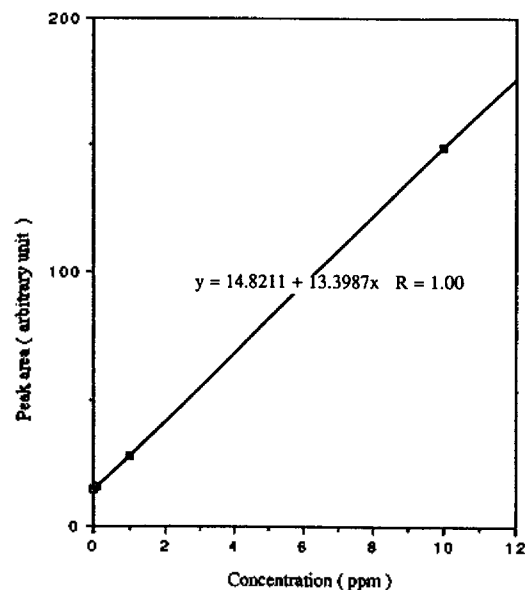


Fig. 10. Calibration curve of molybdenum using ICP-AES directly connected with separation column. Sample loop:  $100 \mu\text{l}$ , Flow rate of eluent:  $1 \text{ ml/min}$ , Concentration of eluent:  $4.5 \text{ M HNO}_3$ .

Fig. 9에 대표적으로 나타내었다. 본 실험에 사용한 ICP-AES 프로그램에는 이러한 실험을 위한 프로그

Table 4. Recovery of impurities in  $U_3O_8$  standard powder (CRM No. 124-4) by extraction chromatography

Element	Present ( $\mu\text{g}/\text{ml}$ )	Found ( $\mu\text{g}/\text{ml}$ ) <sup>a</sup>	Recovery (%)	RSD <sup>b</sup>
Mo	0.50	$0.52 \pm 0.01$	104	2.1
Cr	0.61	$0.67 \pm 0.01$	110	1.6
Zn	1.12	$1.02 \pm 0.01$	91	1.3
Co	0.13	$0.16 \pm 0.01$	123	8.1
Ni	1.12	$1.14 \pm 0.04$	102	3.9
Mn	0.29	$0.28 \pm 0.01$	96	5.0
Fe	1.52	$1.34 \pm 0.05$	88	4.2
Mg	0.56	$0.56 \pm 0.01$	100	2.0
Al	1.27	$1.50 \pm 0.07$	118	4.9
V	0.25	$0.27 \pm 0.006$	108	2.6
Cu	0.27	$0.28 \pm 0.01$	104	5.0

<sup>a</sup> $n=7$ , 95% confidence interval, <sup>b</sup>RSD=Relative standard deviation.

램이 내장되어 있지 않으므로, stepping 모터를 고정시킨 후 본 프로그램에 있는 'profile'을 이용하였다. 분리컬럼에서 플라즈마까지 도달되는 시간을 측정하기 위하여 시료를 주입한 다음 30, 45, 55 및 60초 후에 'profile'을 얻은 결과, 60초 후에 금속이온들이 플라즈마에 도달함을 알았으며, 11개 원소들의 'profile'을 그리는데 약 60초가 소요되었다. 따라서 본 실험에서는 분리컬럼과 ICP-AES를 직접 연결하고, 100  $\mu\text{l}$ 의 표준용액을 시료주입기에 주입하여 원소들의 'profile'을 작성하였으며 이 'profile'에서 얻은 스펙트럼의 피크 면적으로 검정곡선을 작성하였다. 모든 원소들의 상관관계계수(correlation coefficient)값은 0.999로 직선성이 양호하였으며 Fig. 10에 몰리브덴의 검정곡선을 일례로 도시하였다. 추출크로마토그래피에 의한 회수율은 Table 4에서와 같이 코발트와 알루미늄을 제외하고 91~110%로 용매추출법과 잘 일치하였으며, 이때 폐액의 양은 TBP와 에틸에테르를 합해서 5 ml 이내였다.

## 결 론

테프론분말을 지지체로 하고 TBP를 정지상의 추

출제로 하여 분리컬럼을 제조한 다음, ICP-AES의 시료주입 부분과 곧바로 연결하여,  $UO_2$  분말 중 미량으로 존재하는 몰리브덴을 비롯한 11개의 금속 불순물들을 우라늄의 방해없이 측정할 수 있었으며, 이 방법은 정밀하고 정확하므로 실제 시료분석에 적용할 수 있었다. 폐액의 양은 용매추출의 분리방법에서는 40 ml가 발생되었으며 본 연구에서 사용한 추출크로마토그래피에서는 5 ml 이내였다.

## 인 용 문 헌

1. B. F. T. Birks, G. J. Weldrick, and A. M. Thomas, *Analyst*, **89**, 36 (1964).
2. A. G. I. Dalvi, C. S. Deodhar, and B. D. Joshi, *Talanta*, **24**, 143 (1977).
3. P. Cavalli, G. Rossi, and N. Omenetto, *Analyst*, **108**, 297 (1983).
4. G. F. Kirkbright and R. D. Snook, *Appl. Spectrosc.*, **37**, 11 (1983).
5. F. Flavelle and A. D. Westland, *Talanta*, **331**, 445 (1986).
6. T. K. Seshagiri, Y. Babu, M. L. J. Kumar, A. G. I. Dalvi, M. D. Sastry, and B. D. Joshi, *Talanta*, **31**, 773 (1984).
7. M. A. Floyd, R. W. Morrow, and R. B. Farrar, *Spectrochim. Acta*, **38B**, 303 (1983).
8. 1986 Annual Book of ASTM Standards, Vol. 12.01, p. 452, R. A. Storer, Ed., Easton, MD, U.S.A., 1986.
9. A. S. Al-Ammar, H. A. Hamid, B. H. Rashid, and H. M. Basheer, *J. Chromatogr.*, **537**, 287 (1991).
10. P. Fuxing, Y. Suling, H. Qinghua, W. Xiaoping, M. Heying, H. Yanminj, X. Yuxin, X. Yi, and W. Tingfang, *Spectrochim. Acta*, **41B**, 1211 (1986).
11. R. L. Moore, *AECD-3196*, 5 (1951).
12. T. Sato, *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **6**, 334 (1958).
13. A. G. Hamlin, B. J. Roberts, W. Loughlin, and S. G. Walker, *Anal. Chem.*, **33**, 1547 (1961).