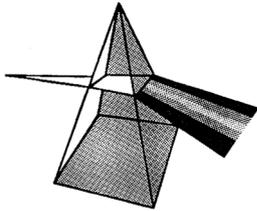


【技術報告】



再処理施設計量管理分析における プルトニウム測定用高精度クーロ メーターの開発

久野 剛彦 佐藤 宗一 池田 久
マイケル K ホランド*
ジョセフ V コーダロ*

東海事業所 再処理センター 施設管理部
*ウエスチングハウス サバンナリバー カンパニー

資料番号：9-7

Development of Advanced Controlled-Potential
Coulometry System for Accountability Analysis of
Plutonium in Reprocessing Facility

Takehiko KUNO Soichi SATO Hisashi IKEDA
Micheal K. Holland* Joseph V. Cordaro*

Technical Services Division, Tokai Reprocessing Center, Tokai Works
*Westinghouse Savannah River Company

プルトニウム定量用電位規制クーロメトリー（CPC）システムの高度化を検討した。東海再処理において、CPCは精製濃縮プルトニウム溶液の施設側計量管理分析法に採用されている。近年、CPCの国際標準法（ISO12183）の初版が刊行され、高精度分析方法としての規格化が進められている。東海再処理CPCシステムの更なる高性能化を図るため、プルトニウム測定専用のポテンシオスタット、クーロメーターを米国WSRCと共同研究により設計・製作した。さらに、測定方法の最適条件を検討し、長期的に測定精度0.1%以下を有し、ISO12183にも準拠した高精度CPCシステムを構築した。

A controlled-potential coulometry system (CPC) has been developed to analyze the accountability of plutonium products at the Tokai Reprocessing Plant (TRP). There has been demand to standardize CPC as highly accurate analysis method because, since 1995, the International Organization for Standards (ISO) has been advocating ISO12183. To increase TRP's CPC system efficiency, a high performance potentiostat and a high performance coulometer (the principal measuring instruments used in the CPC system) were designed and constructed in collaboration with Westinghouse Savannah River Company (WSRC). Also, the optimization of the procedure was examined. As a results of these efforts, the latest CPC system (complying with ISO12183) has demonstrated long-term measurement reliability of up to 0.1% for 20mg of plutonium.

キーワード

電位規制クーロメトリー、プルトニウム、再処理、計量管理分析、ポテンシオスタット、クーロメーター、高精度測定、国際標準法

Controlled-Potential Coulometry, Plutonium, Reprocessing, Accountability Analysis, Potentiostat, Coulometer, High Accurate Determination, International Organization for Standards



久野 剛彦



佐藤 宗一



池田 久



マイケル K ホランド



ジョセフ V コーダロ

1. はじめに

電位規制クーロメトリー (Controlled-Potential Coulometry : 以下, CPC) は, ファラデーの電気分解則に基づく絶対量測定法である。CPCシステムを構成する装置は比較的安価であり, 操作自体も簡便といった特徴を有している。CPCは, 同位体希釈質量分析法¹⁾や電位差滴定法²⁾とともに, 代表的な高精度プルトニウム濃度分析法の一つである。また, プルトニウム定量のためのCPCは, 核燃料再処理における保障措置分析技術の向上の観点から, 分析測定誤差国際目標値 (International Target Value : 以下, ITV) が推奨されており, 系統, 偶然誤差ともそれぞれ0.15%となっている³⁾。

東海再処理工場におけるCPCは, 1980年代初頭から研究開発が進められ, 1983年からプルトニウム製品溶液 (蒸発濃縮後) 及びプルトニウム製品貯槽内溶液に対する施設側の計量管理分析法として採用されている⁴⁾。

近年, CPCは, 国際標準法ISO12183の初版として制定され⁵⁾, 規格化が図られるようになった。ISO12183は, プルトニウムを高精度で分析するために, 最良と評される各種項目 (対象サンプル, 測定原理, サンプル前処理, 測定方法, 機器仕様及び妨害因子) について記載している。

一方, CPCによるプルトニウムの定量分析法は, アメリカ, イギリス及びフランスでも使用されているが, 各国とも経験的に選定された試料の前処理, 電量測定方式及び装置を採用している。そのためCPC全般に関する統一化を図るべく, 各国のCPC専門家により協議が進められており, 測定データに基づく検証が求められている。

本研究は, これらの背景を基にISO12183にも適合し得るCPCシステムの構築を目的としている。CPCシステムの測定精度をより高めるには, 電位制御と電量計測を行うポテンシオスタット及びクーロメーターの性能を向上させることが必要不可欠である。しかし現行の市販の装置は, ITVを担保するための技術的な仕様を満たしていないことから, プルトニウム測定専用のポテンシオスタット, クーロメーターを米国ウエスチングハウス・サバンナリバー・カンパニー (WSRC) と共同で設計, 製作した。1999年1月には, 東海再処理施設の分析所へ導入し, 装置の性能が高いことを検証した。その後, 測定方法についてISO12183をベースとする測定精度向上のための最適化を検討した。本報では, 測定精度の更なる向上が図られたCPCシステムの概要と評価結果について述べる。

2. CPCによるプルトニウム定量の測定原理

CPCシステムによるプルトニウム測定は, 以下の反応で行われる。



まず, プルトニウムが100%Pu³⁺となるための還元電位を設定し, 還元を行う。次にこのPu³⁺をPu⁴⁺にするための酸化電位を設定する。この電位で酸化を行い, 得られた電気量(クーロン数)からブランク値を差し引き, ファラデーの法則に従いプルトニウム量に換算する。

CPCにおける電気量の測定は, 電流の時間積分であるため以下の(2)式で示される。

$$\int_0^t I dt = Q = nF \frac{W}{M} \quad \dots\dots(2)$$

ここで,

I : 電解電流 [A]

t : 時間 [sec]

Q : 全電気量 [C]

F : ファラデー定数 [96485C/mol]

W : プルトニウム量 [g]

M : プルトニウムのグラム当量 [g/mol]

n : 電解に関与した電子数 [個]

(2)式を変形すると,

$$W = \frac{Q \cdot M}{nF} \quad \dots\dots(3)$$

となり, 電気量の測定からプルトニウム量を直接的に求めることができる。

一般的なCPCでは, 還元及び酸化電位を固定して電気量の測定を実施しているが, 本CPCシステムでは, 還元及び酸化とも電流値がブランク値近傍の電流 (10 ~ 100 μ A) まで減少すると, 測定の際に設定した電位より, 還元ではプラス側, 酸化ではマイナス側へそれぞれ印加電位を自動的に移動させる。その際, 電流がゼロになる電位 (V^0) を求めて, その電位到達までの電気量を測定することができる。また, 還元及び酸化終了時の電位と標準酸化還元電位 E^0 のネルンストの式との関係から還元及び酸化終了時の電位におけるプルトニウムの電解率 f を算出し, 測定電気量を f で除すことで100%電解時の電気量値に補正している。

さらに, サンプル測定時とブランク測定時では測定時間が前者の方が長く, 残余電流の影響による誤差が大きくなることから, ブランク溶液の測定電気量についても補正を行っている。

以上を含めた本CPCシステムによるプルトニウム濃度の算出は, (4) ~ (7)式で示される。

$$Pu[g/\ell] = \frac{(C_S - C'_B) \cdot K \cdot M \cdot D \cdot 10^3}{F \cdot s \cdot f} \dots\dots(4)$$

ここで、

- C_S : サンプル溶液の積算カウント数 [count]
 C'_B : ブランク溶液の補正積算カウント数 [count]
 K : カウント数から電気量への理論変換定数 [C/count]
 D : サンプル溶液の密度 [g/m³]
 s : サンプル溶液の採取重量 [g]
 f : プルトニウムの電解率

ブランク溶液の補正積算カウント数 C'_B については、(5)式で示される。

$$C'_B = \frac{C_B(Sox - Sred)}{Box - Bred} + \frac{5 \cdot 10^{-6}(t_S - t_B)}{K} \dots\dots(5)$$

ここで、

- C_B : ブランク溶液の積算カウント数 [count]
 Sox : サンプル溶液酸化時の最終印加電位 [V]
 $Sred$: サンプル溶液還元時の最終印加電位 [V]
 t_S : サンプル溶液の酸化時間 [sec]
 t_B : ブランク溶液の酸化時間 [sec]
 Box : ブランク溶液酸化時の最終印加電位 [V]
 $Bred$: ブランク溶液還元時の最終印加電位 [V]
 $5 \cdot 10^{-6}$: 変換係数 [C \cdot sec⁻¹]

また、測定時における電解率 f は、(6)式で示される。

$$f = \frac{\exp[Sox - E^0/N]}{1 + \exp[Sox - E^0/N]} - \frac{\exp[Sred - E^0/N]}{1 + \exp[Sred - E^0/N]} \dots\dots(6)$$

ここで、

E^0 : Pu³⁺/Pu⁴⁺の標準酸化還元電位 [V]

(6)式における N は、以下の(7)式で与えられる。

$$N = \frac{RT}{nF} \dots\dots(7)$$

ここで、

- R : 気体定数 [8.314J/K \cdot mol]
 T : サンプル溶液の温度 [K]

カウント数から電気量への理論変換定数 K は個々のシステム固有の値であり、概要や算出方法等については3.2項で述べる。また、標準酸化還元電位 E^0 については、測定試料と同一液性の標準溶液の測定により求めている。

本システムによる測定方法は、測定精度を向上させるための工夫であり、プルトニウムの99%が電解完了した100 μ A以下の低電流領域での測定時間が短縮化され、電位を固定して行う従来のCPC

と比べて、残余電流に起因する誤差を排除できる特性を有している。

なお、ISO12183に記載される測定原理は、本システムと同じであり、電位を移動させて電解率を補正するやり方である。

3. 電位規制クーロメリーシステム

3.1 システム概要

本システムは、プルトニウムの電解反応を行うグローブボックス内の電極部、グローブボックス外部のポテンシostat及びクーロメーター（インテグレーターとデジタルボルトメーター）で構成される計測部、さらには電解液添加、攪拌、窒素ガス通気、洗浄ライン等のユーティリティ部に分類される。図1に東海再処理施設のCPCシステムの構成概要図を示す。

3.2 ポテンシostat及びクーロメーター

図2に装置計測部の配線概要図を示す。本システムは、酸化、還元用として独立に同一仕様のポテンシostatモジュール2台を備えている。酸化用ポテンシostatモジュールは、並列に配置された2つの電圧・周波数変換装置(Volt Frequency Converter : VFC)と水晶発振器で構成されるデジタル積分モジュールに接続され、ここで電気量に積算される。電解セル内におけるすべての電気分解電流は、図2に示される電解セルと直列に配置されたポテンシostatモジュール内の標準抵抗(50 Ω)を通過し、この標準抵抗両端での電圧降下が電気分解電流に比例する。そのため、負荷抵抗における電圧降下を時間積分すると(2)、(3)式で示されるファラデーの電気分解則に準じた物質量を測定することが可能となる。

VFC#1には、酸化用ポテンシostatからの電気分解に起因する信号とバイアス電圧(0.16Vに設定された固定信号)が供給され、VFC#2にはバイアス電圧のみが供給される。VFC#1からVFC#2の全積分カウントを差し引くことで、ノイズ成分が相殺され、電解起因信号のみが積算される。

VFC#1については、高精度電圧源により電圧・周波数変換(1V = 10,000 count \cdot sec⁻¹)の校正が行われる。校正後にVFC#1へ任意の電圧を印加した際にカウンターから出力された周波数の一覧を表1に示す。表1の結果より、カウンターの出力応答は直線性を示し、9 \times 10⁻⁴%以下の誤差である。なお、本方式による電流の時間積分回路についてはWSRCが特許を所有している⁶⁾。

カウント数から電気量への理論変換定数 K

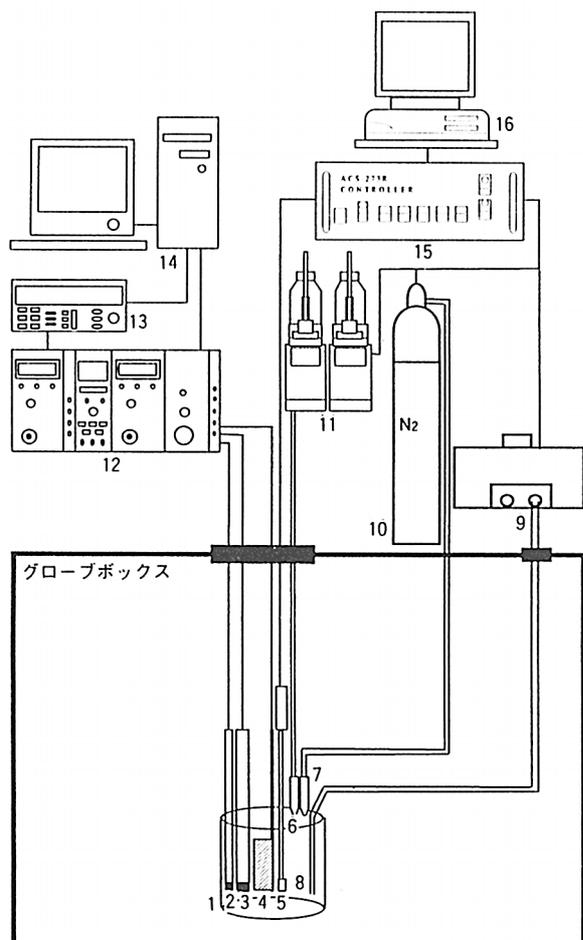


図1 東海再処理CPCシステムの構成概要

- | | |
|-----------------------|-------------------------|
| 1: 電解セル(ガラス又はポリプロピレン) | 10: 窒素ガスボンベ |
| 2: 参照電極(銀/塩化銀) | 11: 電解液添加用自動ピュレット |
| 3: 対極(白銀銀/0.5M硫酸) | 12: ポテンシostat及びインテグレーター |
| 4: 作用電極(金メッシュ) | 13: デジタルポルトメーター |
| 5: スターラー及び攪拌モーター | 14: 計測器制御用PC |
| 6: 電解液添加ライン | 15: 9,10,11の制御ユニット |
| 7: 窒素ガスパーズライン | 16: 制御ユニット操作用PC |
| 8: 電極洗浄ライン | |
| 9: 洗浄水タンク | |

表1 デジタル積分器の検証結果

印加電圧(V)*1	外部出力(Hz)*2	誤差(%) *10 ⁻⁴
1.00000	11599.99	8.6
2.00000	21600.07	3.2
3.00000	31600.1	3.2
4.00000	41600.2	4.8
5.00000	51600.3	5.8
6.00000	61600.4	5.8
7.00000	71600.4	5.6
8.00000	81600.3	3.7
9.00000	91600.2	2.2

*1: 10000Hz・V⁻¹

*2: 10000Hz・V⁻¹+ バイアス(1600Hz)

[Count・C⁻¹]は、ポテンシostatモジュールの標準抵抗(50 Ω)とデジタル積分器の応答値より(8)式で求められる。

$$K = \frac{1}{[R_x \cdot r]} \quad \dots\dots(8)$$

ここで、

R_x : 酸化用ポテンシostatの標準抵抗 [50 Ω]

r : VFC#1の応答 [10,000 count・sec⁻¹・V⁻¹]

(8)式に値を代入して整理すると

$$\begin{aligned} 2 \times 10^{-6} [V \cdot \Omega^{-1} \cdot \text{count}^{-1} \cdot \text{sec}] \\ &= [V \cdot \Omega^{-1} \cdot \text{sec} \cdot \text{count}^{-1}] \\ &= [A \cdot \text{sec} \cdot \text{count}^{-1}] = [C \cdot \text{count}^{-1}] \end{aligned} \quad \dots\dots(9)$$

ここで、酸化用ポテンシostat内の標準抵抗値は、厳密には50 Ωではないために、精密校正機器を用いて±0.0001 Ωまでの精度で値付けを行っている。システムの抵抗値は、それぞれ49.94037 Ωであった。Kを求めるために、(8)式にR_xを実際の抵抗値として再計算した結果、2.00228 × 10⁻⁶ [C・count⁻¹]となった。

このKが本CPCシステム唯一の定数となり、この定数を確定することによりプルトニウム濃度分析が可能となる。

図2により構成される回路は、電解セルの代わりに自動校正回路内の精密な100 Ωの標準抵抗を使用し、設定時間内のカウント(Hz)を計測することで電氣的に装置校正をすることが可能な構造となっている。

100 Ωの標準抵抗についても50 Ω標準抵抗と同様の値付けを行い、100.0129 Ωとなった。(8)式に実測抵抗値を代入することで内部校正回路におけるKが求められる。この内部回路による校正作業は、装置の待機中及び測定前後に実施され、測定者は測定されたKの変動により装置の健全性を確認することができる。500秒/回で10回実施されたKの平均値は2.0022 × 10⁻⁶ [C・count⁻¹]となり、この値は、ポテンシostat内の50 Ω標準抵抗で計算されたKの2.00228 × 10⁻⁶ [C・count⁻¹]とほぼ一致した。この内部校正回路によるKは、設置場所の温度変化やドリフトによりわずかな変化を生ずる。システム及び設置場所の温度が安定している場合、10回測定の相対標準偏差は、0.0005%以下となり、この値は一般のクーロメーターの精度と比較して1桁以上高いものとなっている。このKは、

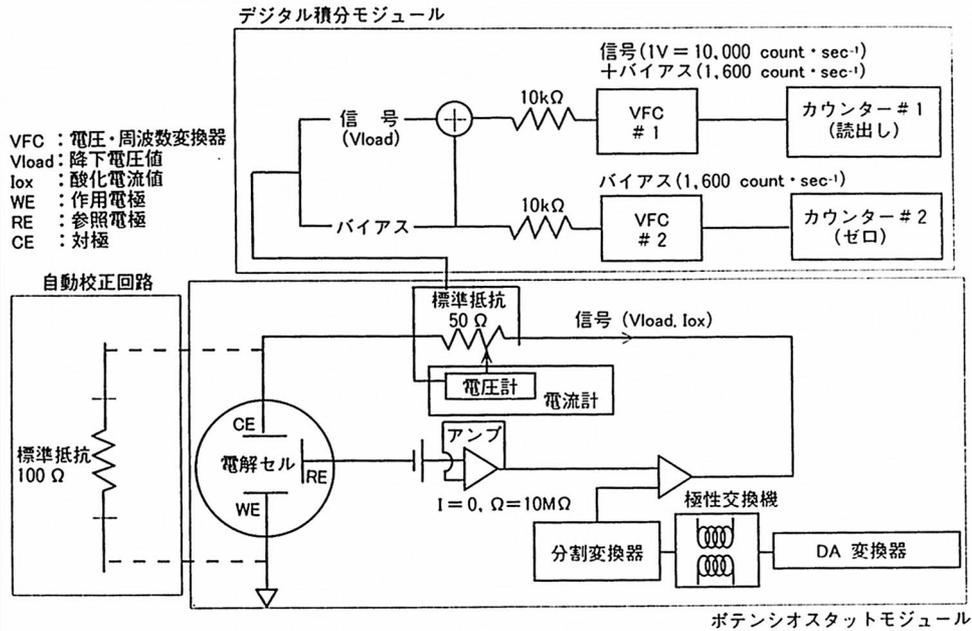


図2 CPCシステム計測部の配線概要

プルトニウムのCPCに使用される電流範囲 ($10 \mu\text{A} \sim 200\text{mA}$) に対して良好な一致が認められている。また、長期安定性についても、15カ月にわたる変換定数 K の変動率は0.014%であり、VFC等の電気機器類のドリフト、設置場所の温度及び湿度変化を考慮しても十分な安定性を有しており、0.1%以下の測定精度を目的とするための機器として、十分な安定性を有していると評価できる。

このように、本研究により設計・製作されたボテンシオスタット及びクーロメーターは、測定方式として、カウントから電気量への理論変換定数 K の導出と校正回路による K の検証を行うことにより分析値の信頼性を高めることも可能となった。

3.3 電極の構成

プルトニウムの電解を行う電極部の概要を図3に示す。作用電極には、80メッシュ（線径0.078mm）の金網を6重に重ねた円筒計の金、又は白金に金めっきを施したものを使用している。作用電極の触媒能は、プルトニウムの電解速度、すなわち測定精度に直接反映される⁷⁾。そのため、保管時における高濃度硝酸溶液の浸漬等、電極のコンディショニングが重要となる。参照電極には銀/塩化銀（1M KCl）、対極には白金線/硫酸電極をそれぞれ使用した。これら電極とサンプル液の接合部には高密度のバイコールガラスを取り付けている。参照極、対極についても電極性能を維持するため、使用後は内部電解液と同じ組成の溶液に浸漬した。

溶液の攪拌は、直流モーターとガラス棒攪拌子にて1,500rpmで行った。また、電解セル上部の空気層への脱気は、酸素含有量5 ppm以下の高純度窒素ガスを通気することにより実施した。

電解液は、あらかじめ十分に脱気された0.5M硫酸24m とサンプル中の亜硝酸を分解するための0.5Mスルファミン酸1m を用いた。一般にプルトニウム定量のためのCPCの電解液には、硫酸が硝酸が使用されるが、東海再処理では、プルトニウム溶液中に共存するネプツニウムの影響を受けない硫酸を使用している。

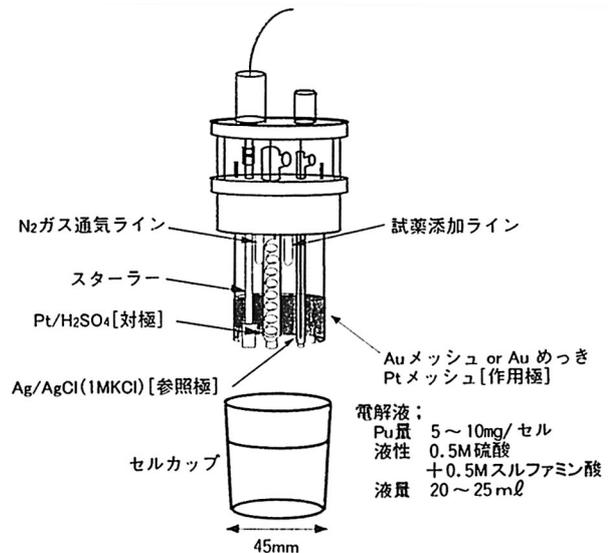


図3 電極部の概要

3.4 ユーティリティ部

ユーティリティ部には、電極洗浄部、電解液の保管・添加部、電極ユニットを上下左右に移動するための装置及びそれらの制御部を設けた。

4. 結果及び考察

4.1 プルトニウム標準試料の測定

標準プルトニウム試料には、プルトニウムの認証付き標準物質であるCRM-126を重量法により3M硝酸を加えて調製し、プルトニウム量を5~20mg/セルとなるようにした。プルトニウム標準液(1m)を分取し、 $\text{Pu}^{3+}/\text{Pu}^{4+}$ の標準酸化還元電位 E^0 を測定した。この時の E^0 は、25mの電解液で、0.5126V vs. Ag/AgCl(1M KCl)であった。プルトニウム標準試料の測定結果を表2に示す。

このときの測定には、金めっき作用電極とポリプロピレン製電解セルを用い、電位シフトの開始電流を100 μ Aに設定した。11の繰返し測定における回収率(調製値/測定値)の平均値は、100.009%で高い精度さを有していた。また、繰返し精度も相対標準偏差として0.092%となり、高精度であることが確認された。

表3には、ISO12183で推奨されている金作用電極とガラスセルを使用して得られた標準試料の測定結果を示す。平均回収率、繰返し精度は、5回の繰返し測定において、それぞれ100.049%、0.0236%となり、金めっき作用電極とポリプロピレン製電解セルを使用した場合よりもさらに高精度な結果を得ることができた。また電解の速度が

表2 プルトニウム標準試料の測定結果

No.	表示値 (mg)	測定値 (mg)	回収率 ^{*1} (%)	電解率 ^{*2} (%)
1	5.5633	5.5635	100.004	
2	19.6360	19.6590	100.117	99.85
3	15.2090	15.2169	100.052	99.42
4	5.5648	5.5692	100.079	99.53
5	5.5467	5.5479	100.022	99.41
6	5.5608	5.5529	99.858	98.96
7	5.5613	5.5607	99.989	99.51
8	5.5658	5.5629	99.948	99.51
9	5.5628	5.5543	99.847	99.36
10	5.5770	5.5813	100.077	99.72
11	5.5740	5.5798	100.104	99.63

平均値(%) 100.009

標準偏差 0.09242

R.S.D.(%) 0.09242

*1:(測定値/表示値)*100

*2:(4)式より算出される理論値

表3 プルトニウム標準試料の測定結果

No.	表示値 (mg)	測定値 (mg)	回収率 (%)	電解率 (%)
12	5.3879	5.3891	100.022	99.93
13	5.3685	5.3703	100.033	99.92
14	5.3547	5.3583	100.068	99.92
15	5.3663	5.3686	100.042	99.92
16	5.3676	5.3718	100.078	99.91

平均値(%) 100.049

標準偏差 0.02364

R.S.D.(%) 0.02363

早く、ブランク電流が10 μ Aと低くなったため、電位シフト幅が小さくなり、本文(4)式で求められる理論電解率もほぼ100%近いものとなった。電解速度を早めることは、残余電流に起因する誤差や電解率の補正誤差を減少させるため、精度の向上に有効であることが分かった。

4.2 実試料の測定

実試料として東海再処理施設のプルトニウム貯槽液を用い、測定を行った。測定サンプルは重量法により希積分取した。

貯槽液中に含有する鉄は、プルトニウム測定時に妨害となるため、吸光度法により濃度を測定し、CPC測定値から差し引くことで補正した。また、精度・信頼性の高い同位体希釈質量分析法(IDMS)との比較分析を実施した。

結果及びIDMSと差の割合を表4に示す。表4の結果より、良好な再現性が得られ、IDMS分析値とよく一致した値が得られた。

ISO12183には、サンプルの前処理としてサンプル中に含まれる有機物を分解除去するため、硫酸を添加し、加熱乾固を行う前処理が提言されている。

本研究においても加熱乾固したサンプルは、未実施のものと比較して電解が速く、残余電流も低くなることが確認されたが、前処理操作が複雑になることによる不確かさ要因増加の影響を受けるため測定精度向上には反映されなかった。

本研究においては、前処理が施されなくてもITVを満たす精度が得られている。これは、東海再処理施設にてCPCの対象となるサンプルはプルトニウム製品溶液であり、この溶液は再処理の精製工程を経て、濃縮工程において濃縮されるためであると考えられる。これらを測定する場合、工程及び自身の液性において、不純物除去や有機物の分解が行われるためではないかと推察される。

表4 プルトニウム貯槽液の測定結果

No.	CPC測定値 (g/ℓ)	IDMSとの差 の割合*1(%)
1	188.92	-0.132
2	188.82	-0.183
3	188.88	-0.156
4	188.89	-0.146
5	189.14	-0.014

平均値 188.93
標準偏差 0.12288
R.S.D(%) 0.06504

*1: (CPC測定値-IDMS測定値) × 100 / IDMS分析値
IDMS測定値: 189.17 g Pu/ℓ

そのため、0.5M硫酸電解液系に対して本CPCシステムによるプルトニウム濃度分析を行う場合、鉄の補正のみで高精度な測定が可能であることが分かった。

5. おわりに

プルトニウム定量用CPCシステムの高度化を目的として、信頼性の高い部品で構成された機器を使用し、内部回路の電氣的校正が施された専用ポテンシオスタット及びクーロメーターを設計・製作し、装置の信頼性を確認した。また、標準試料及び実試料の測定を通じて、国際標準法に準じた電極や器具類を使用することで、長期的に測定精度0.1%以下を担保可能であり、従来のシステムよりも高精度の分析値を得ることができた。

現在、CPCの国際標準法ISO12183については改訂作業が進められているが、著者らは記載内容の見直しや妥当性評価を目的とした各国専門家による会議に参加して技術協力を行っている。

本システムは、世界的にも数少ない国際標準法に適合したものであり、今後も測定データ結果に基づく妥当性評価等、継続した国際的技術支援が必要と思われる。

なお、日本原燃(株)六ヶ所再処理工場(RRP)の分析施設にもJNCシステムをベースとしたCPCの導入が予定されている。

謝 辞

本件を実施するに当たり、久野祐輔氏(現、IAEAサイバースドルフ保障措置分析所所長)、檜山敏明氏から数多くの御助言を頂いた。また、阿部勝男氏、渡辺将久氏及び奈須野哲氏(現、日本原燃)においては、装置の導入や標準試料の調製に多大なる御支援を受けた。これらサイクル機構関係各位の御協力に対し感謝の意を表します。

参考文献

- 1) P.De Bievre : " Isotope dilution mass spectrometry. Some present limitation and possibilities to overcome these. ", US DOE Rep., CONF-810738, p.188 ~ 207 (1981).
- 2) " Determination of plutonium in nitric acid solutions Method by oxidation by cerium (IV), reduction by iron (II) ammonium sulfate and amperometric back-titration with potassium dichromate ", International standard ISO8298 (1987).
- 3) S.Deron, E.Kuhn, et al. : " 1993 International Target Values for Uncertainty Components in Fissile Isotope and Element Accountancy for the Effective Safeguarding of Nuclear Materials ", JNMM, January, p.19 ~ 35 (1994).
- 4) Y.Kuno, K.Abe, et al. : " Use of automated controlled-potential coulometry system for plutonium product accountancy analysis at Tokai reprocessing plant ", INMM 29th annual meeting (1988).
- 5) " Controlled-potential coulometric assay of plutonium ", International standard ISO12183 (1995).
- 6) M.K.Holland, J.V.Cordaro : " An automated instrument for controlled-potential coulometry : System documentation ", UC-706, DP-1751 (1988).
- 7) L.Meites, S.A.Moros : " Background Corrections in Controlled-potential Coulometric Analysis ", Ana. Chem. Vol.31, No.1, p.23 ~ 28 (1959).