

## 격막형 액막에 의한 우라늄이온의 이동현상

강영호 · 이강일 · 박현수 · 장인순 · 김춘영\*

한국원자력연구소

\*전북대학교 공과대학 화학공학과

(1989년 10월 14일 접수, 1990년 3월 23일 채택)

## Study of Uranium Ion Transport through Solid-supported Liquid Membrane

Y.H. Kang, K.I. Lee, H.S. Park, I.S. Chang and C.Y. Kim

Korea Atomic Energy Research Institute

\*Department of Chemical Engineering, College of Engineering, Chonbuk National University

(Received 14 October 1989; accepted 23 March 1990)

### 요 약

담체로 아민을 함유한 격막형 액막을 사용하여 침출모액의 산도, 담체의 농도, 우라늄이온의 농도의 우라늄 전달속도에 미치는 영향을 고찰하였다. 이온의 전달은 주로 액막내의 확산속도에 영향을 받는다고 가정하여 이론식을 전개하였다. 우라늄이온의 아민에 대한 추출계수를 이용하여 구한 이론식은 실험치와 잘 일치하였으며, 우라늄이온의 최대 전달속도는 pH 1.3, 담체농도 30%에서 나타났다.

**Abstract**—The effects of acidity, solute and carrier concentration on the mass transfer rate were investigated in a supported liquid membrane system where uranium and amine were used as the solute and carrier, respectively. The theoretical uranium permeation rate was developed assuming that the rate determining step was to depend dominantly upon the diffusivity of uranium complexes within the membrane. The maximum value of the uranium flux was obtained at pH 1.3 and 30 volume percent of amine.

### 1. 서 론

다성분 이온을 함유하고 있는 침출용액으로부터 우라늄이온을 선택적으로 분리하거나 상대적인 농도를 증가시키기 위하여 현재는 용매추출법이 이용되고 있다. 그러나 용매추출법은 제3상의 발생 및 추출제의 수용액에 대한 용해 등으로 인한 용매손실의 문제점을 해결하기 위한 새로운 방법들에 관한 연구가 시도되었다.

1970년대 전반에 Li 등[1, 2]과 Cussler 등[3-5]이 연구를 시작한 액막법에 의한 이온의 분리법에 대한 연구는 위와 같은 용매추출법의 단점을 개선할 수 있는

고도의 분리조작으로서 주목을 받게 되었다.

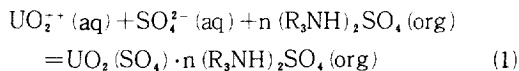
액막은 비이온성 계면활성제를 사용하는 유화형 액막(또는 에멀전 액막, liquid surfactant membrane)과 소수성 다공질막을 지지체로 사용하는 격막형 액막(solid supported liquid membrane)으로 대별된다. 에멀전 액막법에 의한 분리 방법은 물질전달 표면적이 넓기 때문에 분리 시간이 짧은 장점이 있지만, 막의 안정성이 나빠 시간이 지남에 따라 분리 효율이 저하되고, 사용된 에멀전의 파괴공정이 추가도 필요하다. 격막형 액막법이라 함은 성질이 다른 두 상을 물리적으로 차단하고 있는 제3상의 세공에 추출제를 침투(또는 함

침)시켜 특정물질을 선택적으로 분리하는 조작을 말한다. 이 경우 추출면(feed face)에서는 높은 추출계수에 의해 이온이 추출제와 커플링되어 세공을 따라 이동된 후, 역추출면(strip face)에서 역추출된다. 격막형 액막법은 기계적 이동과 교반 등이 거의 필요없는 에너지 절약형 분리조작이며, 기존 용매추출 공정에서 빈번하게 발생하는 제3상 및 동반흐름 등에 의한 용매의 손실이 줄어들게 되므로 효율이 높은 고가의 추출제를 사용할 수 있는 장점 때문에 탄화수소의 분리, 금속이온의 분리 및 정제, 폐수 중 중금속이온의 제거 등의 분야에서 실용화 될 가능성이 있다. 그래서 최근에는 Danesi 등[6-8] 및 Babcock 등[9-11]과 다른 연구자들이 격막형 액막법에 대한 기초 연구에서부터 실용화를 목표로한 응용연구까지 광범위한 연구가 수행되었다[12, 13].

현재까지 수행된 황산-아민계의 격막형 액막법에 대한 연구결과, 막 이동기구를 규명할 만한 물질전달식이 아직까지 발표되지 않고 있다. 그래서 본 연구에서는 황산-우라늄이온의 종류에 따라 복합적으로 우라늄의 이동에 관여한다고 가정하여 이에 대한 물질전달식을 세우고자 하였다. 연구 대상물질로는 종래의 정련공정에서와 같이 황산계 우라늄용액을 시료로 하여 flux에 영향을 주는 인자들에 대한 실험을 수행하였다.

## 2. 이론적 고찰

황산에 의해 녹은 우라늄은 용액 중에  $\text{UO}_2^{2+}$ ,  $\text{UO}_2\text{SO}_4$ ,  $\text{UO}_2(\text{SO}_4)_2^{2-}$ ,  $\text{UO}_2(\text{SO}_4)_3^{4-}$  등과 같이 일반적으로  $[\text{UO}_2(\text{SO}_4)_n]^{-2(n-1)}$ 의 형태로 존재하며, 아민계 복합물에 의한 추출반응은 다음과 같이 나타낼 수 있다[14, 15].



여기서  $\text{R}_3\text{N}$ 은 아민이다.

이론은 다음의 가정에 의하여 전개하였다.

1. 액막내에는 항상 정상상태의 선형확산 종단면이 존재한다.
2. 금속이온은 막내에서는 담체와 결합된 상태로만 존재하며, 따라서 막내에는 uranyl sulfate amine complex, (bi)sulfate amine complex, free amine만 존재한다.
3. 아민 및 아민의 복합물은 막내에만 존재한다.
4. 막 양면의 농도 편극은 무시한다.

5. 액상-막 계면에서의 화학반응은 막내에서의 복합물의 확산속도에 비해 매우 빠르게 진행된다.

6. Bisulfate amine complex 형태로 이동되는 bisulfate 이온은 uranyl sulfate amine complex의 이동에 영향을 미치지 않는다.

막내에서의 flux는 Fick 법칙에 의해 다음과 같이 표시된다.

$$J_i = D \frac{dC}{dx} = \text{Const.} \quad (i = M, A, R) \quad (2)$$

$$J_M = \frac{D}{L} (C_{M,O} - C_{M,L}) \quad (3)$$

$$J_A = \frac{D}{L} (C_{A,O} - C_{A,L}) \quad (4)$$

$$J_R = \frac{D}{L} (C_{R,O} - C_{R,L}) \quad (5)$$

여기서 첨자 M은 금속이온, A는 산이온, R은 담체를 가리키며 O, L은 각각 산용액-막계면, 알칼리용액-막계면을 나타낸다. 황산용액 중 우라늄이온은  $\text{UO}_2^{2+}(\text{SO}_4)_2^{2-}$ ,  $\text{UO}_2(\text{SO}_4)_3^{4-}$  등으로 존재하기 때문에 이들의 아민과의 반응 형태도 다를 것이다. 이들 각각의 경우에 대하여 고찰하면 다음과 같다. 이 때 확산계수는 Stokes-Einstein 식으로부터 다음과 같이 계산하였다.

$$D = kT/6\pi\eta \quad (6)$$

우라늄 복합물의 분자반경은 다음식에서 분자용적을 구한 다음,

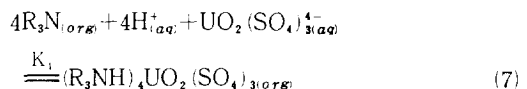
Molecular volume =

$$\frac{\text{Molecular weight}}{\text{Density of complex agent} \times \text{Avogadro's No.}}$$

복합물을 구로 가정하여 구하였는데, 우라늄 복합물의 경우 9.1Å이다[10].

### 2-1. 산용액 중 $\text{UO}_2(\text{SO}_4)_3^{4-}$ 와 아민의 반응

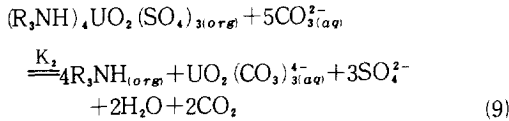
이 경우의 반응식은 다음과 같이 나타낼 수 있다.



평형상수,  $K_1$ , 는 아래 식과 같다.

$$K_1 = \frac{[(\text{R}_3\text{NH})_4\text{UO}_2(\text{SO}_4)_3]_{\text{org}}}{[\text{H}^+]_{\text{aq}}^4 [\text{UO}_2(\text{SO}_4)_3^{4-}]_{\text{aq}} [\text{R}_3\text{N}]_{\text{org}}^4} \\ = \frac{C_{M,O}}{[\text{H}^+]_{\text{aq}}^4 [\text{UO}_2(\text{SO}_4)_3^{4-}]_{\text{aq}} C_{R,O}^4} \quad (8)$$

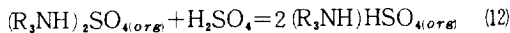
역추출면에서의 반응은



이고, 평형상수는 다음과 같다.

$$\begin{aligned} K_2 &= \frac{[R_3NH]_{(org)}^4 [UO_2(CO_3)_3^{4-}]_{(L)} [SO_4^{2-}]_{(L)}^3}{[(R_3NH)_4UO_2(SO_4)_3]_{(L)} [CO_3^{2-}]_{(L)}^5} \\ &= \frac{C_{R,L} [UO_2(CO_3)_3^{4-}]_{(L)} [SO_4^{2-}]_{(L)}^3}{C_{M,L} [CO_3^{2-}]_{(L)}^5} \end{aligned} \quad (10)$$

우라늄이온과 반응하지 않는 아민은 황산과 다음과 같이 반응한다.



위의 일련의 반응결과 막내에는 sulfate amine complex, uranyl amine complex, free amine 이 존재하게 되며, 각각의 전달에 서로 영향을 미치지 않는다고 가정하면 (6)식에 의한 액막내의 물질수지는,

$$4J_M + J_R = 0 \quad \text{at } x=O, L \quad (13)$$

이고 (3)-(5)식을 (12)식에 대입하면

$$4D(C_{M,O} - C_{M,L}) + D(C_{R,O} - C_{R,L}) = 0 \quad (14)$$

이 된다. 그런데 sulfate amine complex 는 우라늄의 전달에 영향을 미치지 않는다고 가정하였으므로 do-decane 과 같이 회석제로 취급하면 총 담체의 양은

$$\bar{C} = 4C_{M,O} + C_{R,O} \quad (15)$$

$$= 4C_{M,L} + C_{R,L} \quad (16)$$

이다. (7), (14)식으로부터

$$\begin{aligned} C_{M,O} &= K_1 C_{R,O} [H^+]_{(O)}^4 [UO_2(SO_4)_3^{4-}]_{(O)} \\ &= K_1 [H^+]_{(O)}^4 [UO_2(SO_4)_3^{4-}]_{(O)} (\bar{C} - 4C_{M,O}) \end{aligned} \quad (17)$$

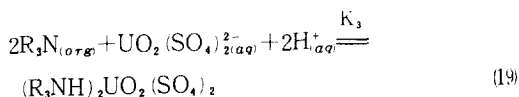
가 되고 같은 방법으로

$$C_{M,L} = \frac{[UO_2(CO_3)_3^{4-}]_{(L)} [SO_4^{2-}]_{(L)}^3 (\bar{C} - 4C_{M,L})^4}{K_2 [CO_3^{2-}]_{(L)}^5} \quad (18)$$

와 같이 구할 수 있다.

## 2-2. 산용액 중 $UO_2(SO_4)_2^{2-}$ 와 아민의 반응

이 때의 반응식은



이며 평형상수,  $K_3$ 는

$$\begin{aligned} K_3 &= \frac{[(R_3NH)_2UO_2(SO_4)_2]_{(O)}}{[R_3N]_{(O)} [UO_2(SO_4)_2^{2-}]_{(O)} [H^+]_{(O)}^2} \\ &= \frac{C_{M,O}}{[UO_2(SO_4)_2^{2-}]_{(O)} [H^+]_{(O)}^2 C_{R,O}} \end{aligned} \quad (20)$$

이다. 이 때의 물질수지로부터

$$2J_M + J_R = 0 \quad \text{at } x=O, L \quad (21)$$

이 되고 총 담체농도,  $C$ ,는

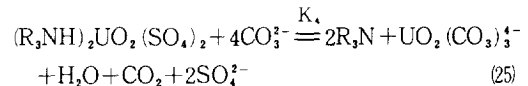
$$C = 2C_{M,O} + C_{R,O} \quad (22)$$

$$= 2C_{M,L} + C_{R,L} \quad (23)$$

가 된다. (19), (21)식으로부터

$$\begin{aligned} & (4K_3 \bar{C} [UO_2(SO_4)_2^{2-}]_{(O)} [H^+]_{(O)}^2 + 1) \\ & C_{M,O} = \frac{-\sqrt{8K_3 C [UO_2(SO_4)_2^{2-}]_{(O)} [H^+]_{(O)}^2 + 1}}{8K_3 [UO_2(SO_4)_2^{2-}]_{(O)} [H^+]_{(O)}^2} \end{aligned} \quad (24)$$

와 같이 표시된다. 이 때의 역추출반응은



이며, 평형상수는

$$\begin{aligned} K_4 &= \frac{[R_3N]_{(L)}^2 [UO_2(CO_3)_3^{4-}]_{(L)} [SO_4^{2-}]_{(L)}^2}{[(R_3NH)_2UO_2(SO_4)_2]_{(L)} [CO_3^{2-}]_{(L)}^4} \\ &= \frac{C_{R,L}^2 [UO_2(CO_3)_3^{4-}]_{(L)} [SO_4^{2-}]_{(L)}^2}{C_{M,L} [CO_3^{2-}]_{(L)}^4} \end{aligned} \quad (26)$$

이 되므로

$$C_{M,L} = \frac{[UO_2(CO_3)_3^{4-}]_{(L)} [SO_4^{2-}]_{(L)} (\bar{C} - 2C_{M,L})^2}{K_4 [CO_3^{2-}]_{(L)}^4} \quad (27)$$

와 같이 구할 수 있다. 그러나 액막내의 우라늄의 양은 측정할 수 없으므로 평형상수는 다음과 같이 정의된 추출계수의 개념을 도입하여 계산하여야 한다.

$$\text{Extraction coefficient} = E_a^o$$

$$= \frac{\text{Concentration A in the organic phase}}{\text{Concentration A in the aqueous phase}}$$

그러면 평형상수와 추출계수의 관계는 다음과 같이 표시된다.

$$K = \frac{E_a^o}{[R_3N][H^+]^2}$$

## 3. 실험 및 방법

본 실험에서 사용된 지지체는 대칭형 다공성 고분자

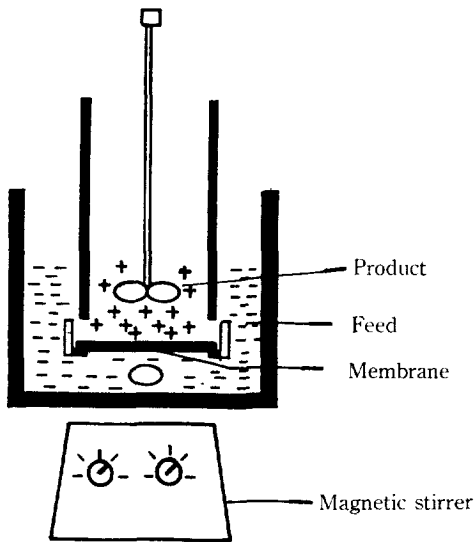


Fig. 1. Experimental apparatus.

막(Fluoropore 100, porosity 85%, pore size  $1\mu\text{m}$ , thickness  $100\mu\text{m}$ , Sumitomo Electric Co.)이며 지지체를 추출제가 희석되어 있는 dodecane에 접촉시키면 유기용매가 세공내에 충전되어 격막형 액막이 된다. 물질전달 표면적이  $16\text{cm}^2$ 인 이 액막을 Fig.1과 같은 내부 column 끝에 고정시켰다. Fig.1의 하부에는 1몰의 탄산나트륨용액  $100\text{mL}$ , column 내부에는 황산으로 산도를 조정된 우라늄용액  $100\text{mL}$ 를 넣어 액막을 두 수용액 사이에 위치하게 하였다. 황산우라늄용액은 불순물의 영향을 무시할 수 있는 고순도 우라늄을 녹여 사용하였다. 역추출용 액인 탄산나트륨용액은 magnetic stirrer로, 산용액은 impeller를 이용하여 약  $600\text{rpm}$ 으로 교반하였다. 채취된 시료는 arsenazo III로 발색시켜 분석하였다. Flux 측정 실험은 산도를  $0.0001\text{N}-1\text{N}$ , 담체농도  $1-100\%$ , 우라늄 농도  $50-6000\text{ppm}$  범위에서 수행하였다. 이외에 추출계수를 얻기 위한 실험은 분액 깔대기에서, 유기용매의 전도는 Ostwald-Fenske 점도계를 사용하여 측정하였다. 모든 실험은 실온에서 수행되었다.

#### 4. 결과 및 고찰

##### 4-1. Flux에 미치는 산도의 영향

측정된 uranyl sulfate amine complex의 점도는 Fig.2와 같고 용액의 산도, 담체농도, 우라늄 농도에 대한 추출계수 측정결과는 각각 Fig.3-5와 같다.

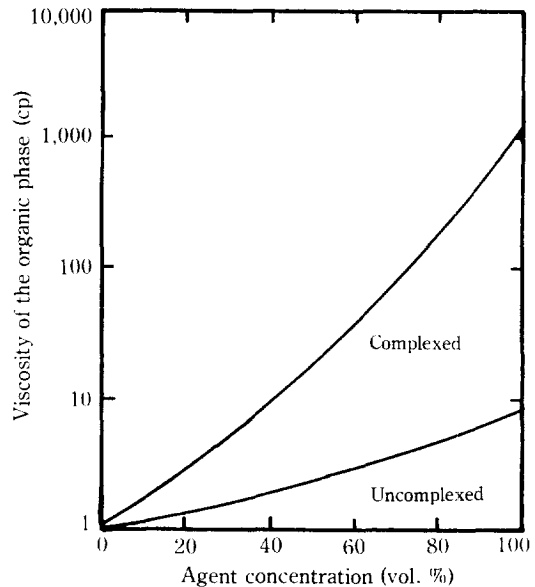


Fig. 2. Effect of agent concentration on the viscosity of the organic phase.

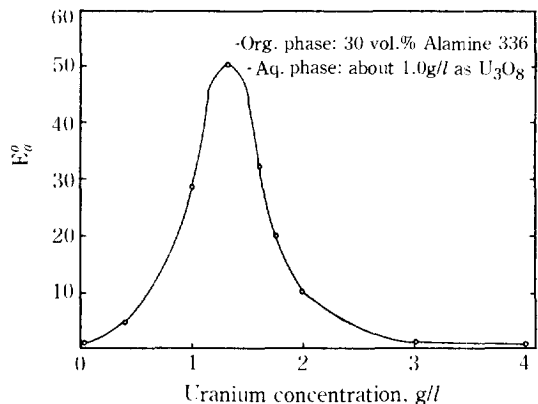


Fig. 3. Effect of pH on the distribution coefficient.

이론적인 flux의 양은 산용액 중에서  $\text{UO}_2(\text{SO}_4)_2^{2-}$ ,  $\text{UO}_2(\text{SO}_4)_3^{-}$  상태로 존재하는 이온만이 액막의 아민과 커플링한다는 가정에서 이루어졌다. 또한 금속이온의 전달은 액막내의 확산속도에만 지배를 받으며 용액-액막 경계면에서 이온의 확산속도 및 반응속도는 무시하였다.

우라늄이온의 이동은 (3)식을 다음과 같이 변형하여 계산하였다. 즉,

$$J_{\text{RHM}} = D_{\text{RHM}} \cdot \epsilon / L \left( [\text{RHM}]_{\text{H}_2\text{O}} - [\text{RHM}]_{\text{L}} \right) \quad (28)$$

다공질막의 유효확산계수는 bulk solution에서의 용질

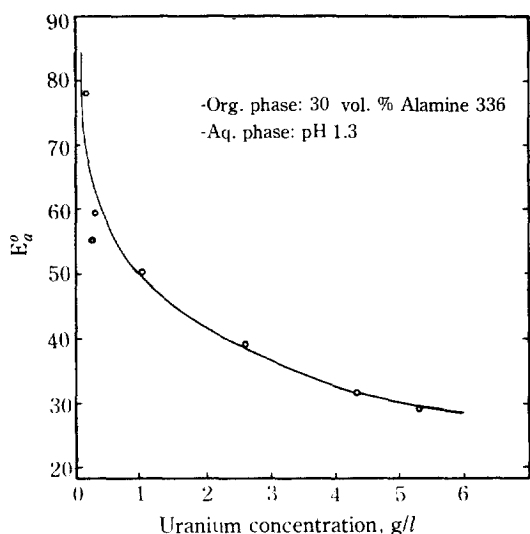


Fig. 4. Effect of uranium concentration on the distribution coefficient.

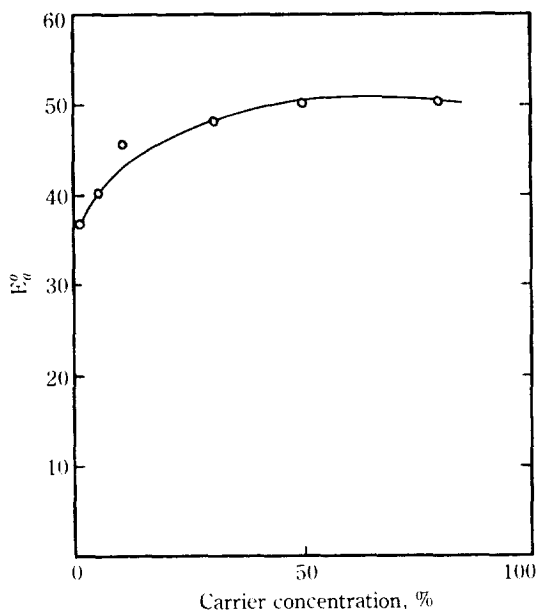


Fig. 5. Effect of carrier concentration on the distribution coefficient.

의 확산계수와 다음과 같은 관계를 가진다.

$$De = Do / \tau \quad (29)$$

여기서  $De$ 는 유효확산계수,  $Do$ 는 bulk solution에서의 확산계수,  $\tau$ 는 굴곡인자를 나타내는데 굴곡인자는 세공크기의 분포, 세공형상, pore connectivity, 세공수축도 등의 영향을 받는다. 본 실험에서 사용한

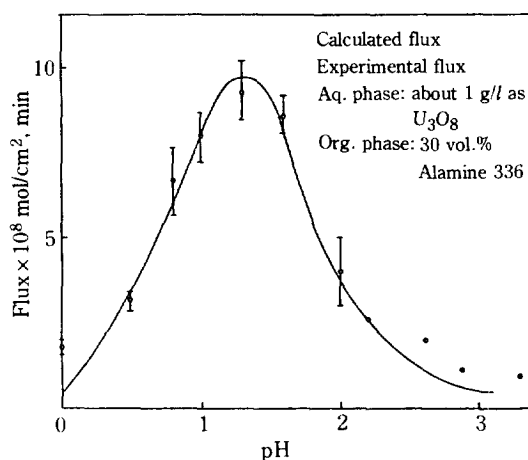
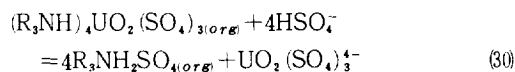


Fig. 6. Effect of pH of the feed solution on the uranium flux.

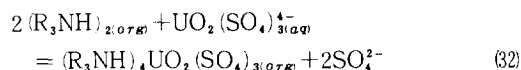
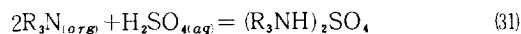
막의 굴곡인자 및 경계면의 두께는 김 등[16]이 각각 3.01, 0.0015 cm 임을 실험으로 밝혀냈는데, 본 계산에서는 이 값을 그대로 이용하였다.

반응이 일어나면 역추출면에서의 우라늄은 추출면에 비하여 매우 적을 것이므로 (28)식 중의  $[RHM]_L$ 을 0으로 계산한 결과 산도변화에 따른 flux의 변화는 Fig. 6과 같았다. 그림에서 보면, pH 1.3에서 flux는 최대값을 나타내며 pH 1.2 이상, 또는 그 이하의 범위에서 급격한 감소를 보이였다. pH 1 이하에서 flux가 낮은 것은 강산에서 uranyl sulfate anion이 다음 반응식과 같이 일단 추출된 우라늄이 bisulfate 이온에 의해 역추출되기 때문이며,

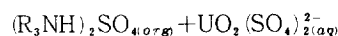


또한 uranyl sulfate amine complex가 bisulfate amine complex와의 경쟁이동에서 뒤지기 때문이다. 한편, pH 2 이상에서는 uranyl sulfate amine complex를 형성할 수 있는 수소이온이 적고 산용액 중 우라늄이온의 hydrolysis 현상 분배계수가 낮으며 따라서 flux도 낮다.

이밖에 다음과 같은 황화아민과 우라늄이온과의 반응도 생각할 수 있으나



또는



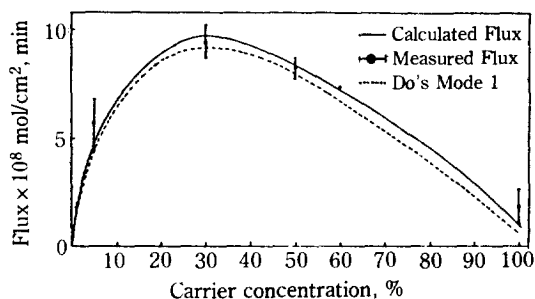
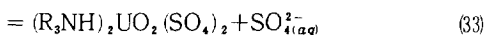


Fig. 7. Effect of carrier concentration on the uranium flux.



계산결과 큰 영향이 없었다.

#### 4-2. Flux에 미치는 담체농도의 영향

우라늄이온이 담체와 결합하여 액막을 통과할 때 일반적으로 담체의 농도가 증가할수록 추출계수가 증가할 것이며, 따라서 flux도 증가할 것으로 예상할 수 있다. 그러나 아민에 의한 우라늄의 커플링 이동에는 약간 복잡한 현상이 일어난다.

Fig. 7에는 이론에 의한 계산값과 실험값이 비교되어 있다. 그림에서 보면 담체농도가 30%일 때 최대 flux를 나타내었다. 이것은 두 가지 대립되는 현상, 즉 uranyl sulfate amine complex의 농도구배와 막내의 유기상의 점도 때문에 일어난다. 막내에서 담체(complexing agent)의 농도가 증가하면 담체와 커플링된 우라늄의 양도 증가할 것이며, 따라서 막내의 농도 구배도 증가할 것이다. 그러나 담체농도 증가와 더불어 용매의 점도 역시 점점 증가하게 되어 농도가 30% 이상이 되면 점도 증가에 의한 flux의 감소량이 농도구배 증가에 따른 flux의 증가량보다 커지게 되므로 flux가 점점 감소하게 된다. 그림 중 점선은 Elhassadi 등[19, 20]이 제시한 모델식의 결과를 나타낸 것이다. Babcock 등[10]의 결과에 의하면 이론값과 실험값의 경향은 유사했지만 이론값이 실험값의 거의 5배가 된다는 사실에 대하여 이 현상은 담체농도의 영향, 세공크기의 영향 또는 계면의 영향이라고만 지적하였지만 납득할 만한 설명을 하지 못하였다. 이에 대하여 Elhassadi 등[20]은 담체농도가 100%(pure carrier)일 때의 flux와 임의의 담체농도에서의 flux비를 계산하여 해결하려 하였다.

Elhassadi 등의 모델식에 의한 값과 본 논문의 이론치 및 실험치를 비교할 때 모두 실험오차 범위 안에서

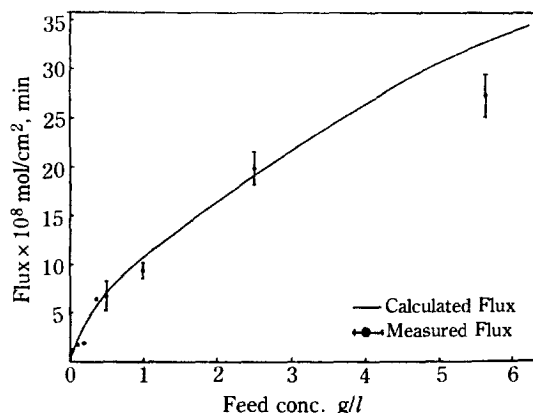


Fig. 8. Effect of feed concentration on the uranium flux.

일치하고 있다.

#### 4-3. Flux에 미치는 우라늄 농도의 영향

산용액 중 우라늄 농도의 영향은 Fig. 8에서 보는 바와 같이 우라늄 농도가 비교적 묽은 1g/l 이하에서는 우라늄 농도 증가에 따른 flux는 급격히 증가하였다. 이것은 묽은 농도에서는 유기상에 의한 우라늄 추출이 농도 증가에 따라 급격히 증가하기 때문이다. 농도가 더욱 증가하면 증가율은 점점 둔화되는데, 또 계산값과 실험값을 비교하여 보면 2.5g/l까지는 일치하였지만 그 이상에서는 차이가 점점 증가하였다. 이것은 아민이 우라늄과 반응하여 복합물을 형성할 때, 복합물의 분자 부피가 증가하여 free amine 보다 확산계수가 감소할 것이며, Deen[21]이 발표한 바와 같이 용질의 농도가 증가할수록 막내의 확산계수가 점차 감소하기 때문이다.

## 5. 결 론

담체로 아민을 함유한 격막형 액막을 사용하여 침출 모액의 산도를 0.0001 N-1 N, 담체농도를 1-100%, 우라늄의 농도를 50-6000 ppm 범위에서 실험한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

격막형 액막의 산용액쪽의 황산 우라늄 이온의 농도는 다음과 같이 표시할 수 있었다.

$$C_{M0} = K_1 [H^+]_o^4 [UO_2(SO_4)_2]_o (\bar{C} - 4C_{M0}) + \{4K_1 C [UO_2(SO_4)_2]_o [H^+]_o^2 + 1\} - \sqrt{8K_1 C [UO_2(SO_4)_2]_o [H^+]_o^2 + 1} \} / 8K_1 [UO_2(SO_4)_2]_o [H^+]_o^2$$

우라늄이온과 아민의 분배계수는 산도에 아주 민감하게 변화하였다. 분배계수는 pH 1.3에서 가장 높았으며, 격막형 액막에 의한 이온의 전달속도도 가장 빨랐다. 즉 이러한 조건에서 농도구배가 가장 크게 형성되고 있다고 생각할 수 있었다. 또한 아민의 농도 증가에 따라 분배계수도 증가하였지만 액막에 의한 이온의 이동량은 아민의 농도가 30%일 때에 가장 많았다. 이는 담체농도의 증가에 따라 추출면에서의 복합물의 농도는 증가하지만, 막내의 확산계수는 점점 감소하기 때문이다. 한편 우라늄이온의 농도가 증가할수록 분배계수는 감소하였지만 액막에 의한 전달량은 증가하였다. 이러한 현상의 이유는 이온의 농도가 증가하면 추출면에서 복합물의 농도가 증가하여 농도구배가 커지기 때문이다. 이온의 농도가 2.5 g/l 이하에서는 계산값과 실험값이 거의 일치하였으나 그 이상의 농도에서 실험값보다 계산값이 높은 것은 이온의 농도가 증가할수록 복합물의 분자부피가 커져 막내에서 확산계수가 감소하기 때문이다.

## NOMENCLATURE

C	: concentration
D	: diffusion coefficient in membrane
De	: effective diffusion coefficient in membrane
Do	: diffusion coefficient in bulk solution
Ea	: distribution coefficient
J	: flux
K	: equilibrium constant
k	: Boltzmann constant
L	: thickness
M	: metal ion
RHM	: metal carrier complex
T	: absolute temperature
[ ]	: concentration
ε	: porosity of liquid membrane support
η	: viscosity

## Subscripts

A	: acid
---	--------

C	: complexed amine
L, I	: product side
M	: metal
m	: mean
O	: feed side
R	: carrier
U	: uncomplexed amine

## REFERENCES

- Li, N.N.: US-Pat-3.410, 794 (1968).
- Li, N.N.: *AIChE J.*, **17**, 459 (1971).
- Cussler, E.L.: *AIChE J.*, **17**(6), 1300 (1971).
- Reusch, C.F. and Cussler, E.L.: *AIChE J.*, **19**(4), 736 (1973).
- Lee, K.H., et al.: *AIChE J.*, **24**(5), 860 (1978).
- Danesi, P.R., et al.: *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **39**, 519 (1977).
- Danesi, P.R., et al.: *J. Mem. Sci.*, **14**, 1 (1983).
- Danesi, P.R., et al.: *Solv. Extr. and Ion Exch.*, **1**(3), 565 (1983).
- Babcock, W.C., et al.: *J. Mem. Sci.*, **7**, 71 (1980).
- Babcock, W.C., et al.: *J. Mem. Sci.*, **7**, 89 (1980).
- Babcock, W.C.: PB 84-1273034 (1984).
- Smith, K.A., et al.: *AIChE J.*, **19**(1), 102 (1973).
- Goddard, J.D., et al.: *AIChE J.*, **20**(4), 625 (1974).
- Colman, C.F., et al.: *Ind. Eng. Chem.*, **50**(12), 1756 (1958).
- Sao, T.: *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **25**, 441 (1963).
- Kim, K.U., et al.: *HWAHAK KONGHAK*, **24**(2), 129 (1986).
- Schulz, W.W., et al.: *Sep. Sci. and Tech.*, **22**(2 and 3), 191 (1987).
- Prasad, R., et al.: *Sep. Sci. and Tech.*, **22**(2, 3), 619 (1987).
- Elhassadi, A.A. and Do, D.D.: *Sep. Sci. and Tech.*, **21**(3), 267 (1986).
- Elhassadi, A.A. and Do, D.D.: *Sep. Sci. and Tech.*, **21**(3), 285 (1986).
- Deen, W.M.: *AIChE J.*, **33**(9), 1409 (1987).