



بهینه‌سازی فرایند استخراج (معکوس) اورانیم از فاز آلی (آلامین-۳۳۶) باردار شده با محلول‌های فروشویی واقعی و ساختگی، به روش عریان‌سازی

سیده لیلا میرمحمدی، محمدحسن ملاح*، رضوان ترکمان، سیدجابر صفدری

پژوهشکده‌ی مواد و سوخت هسته‌ای، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، سازمان انرژی اتمی ایران، صندوق پستی: ۸۴۸۶-۱۱۳۶۵، تهران - ایران

چکیده: هدف این مقاله بهینه‌سازی فرایند استخراج معکوس اورانیم از آلامین-۳۳۶ باردار شده با محلول فروشویی اورانیم بندرعباس و محلول ساختگی با استفاده از روش عریان‌سازی است. برای انجام این مهم، دو پارامتر غلظت و نسبت فاز آلی به آبی (O:A) برای عریان‌سازهای قلبایی شامل سدیم هیدروکسید و سدیم کربنات مورد بررسی قرار گرفت. برای سدیم کلرید علاوه بر این پارامتر pH نیز بررسی شد. برای بررسی این پارامترها از طرح مرکب مرکزی (CCD) در روش سطح پاسخ (RSM) استفاده شد. براساس این طراحی آزمایش، مدل درجه‌ی دو برای برآورد بازده استخراج معکوس اورانیم از آلامین-۳۳۶ باردار انتخاب شد. براساس طراحی آزمایش با معیار مصرف کم‌تر عریان‌ساز و بازده عریان‌سازی بالاتر به ترتیب، سدیم کلرید ۰٫۶ مول بر لیتر با نسبت فاز (O:A) ۱٫۴۱ و pH ۳٫۱؛ سدیم هیدروکسید ۱٫۳۳ مول بر لیتر با نسبت فاز (O:A) ۱٫۲۶ و سدیم کربنات ۰٫۷۲ مول بر لیتر با نسبت فاز (O:A) ۱٫۱۶ دارای اهمیت‌اند. تحت این شرایط بهینه بازده عریان‌سازی با سدیم کلرید ۳۱٪، با سدیم هیدروکسید ۴۵٪ و با سدیم کربنات ۵۴٪ به دست آمد.

واژه‌های کلیدی: استخراج معکوس اورانیم، آلامین-۳۳۶ باردار، عریان‌سازی، روش سطح پاسخ (RSM)

Optimization of (Back) Extraction Stripping Process of Uranium from Loaded Alamine-336 by Real and Synthetic Leach Liquor, by Using Stripping Techniycal

S.L. Mirmohamadi, M.H. Mallah*, R. Torkaman, S.J. Safdari

Materials and Nuclear Fuel Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute, AEOL, P.O.Box: 11365-8486, Tehran - Iran

Abstract: The paper deals with the optimization of uranium back extraction from the Alamine-336 loaded by synthetic solution (synthetic LOS) and Bandarabbas leach liquor (real LOS) by means of stripping process method. In this regard, the impact of two essential parameters including the reagent concentration and phase ratio (O:A) for stripping of alkaline agent containing sodium hydroxide (NaOH) and sodium carbonate (Na_2CO_3) together with the pH for sodium chloride (NaCl) were investigated. To study these effects, a central composite design (CCD) under the response surface methodology (RSM) was employed. Based on the design of the experiments, the second-order regression model has been constructed to evaluate the optimization of the stripping efficiency of uranium from Alamine-336. The optimum conditions for these stripping agents have been determined as NaCl (0.6 mol L^{-1}) with the ratios of O:A (1.41) and pH (3.1) NaOH (1.33 mol L^{-1}) with the ratio of O:A (1.26) and Na_2O_3 (0.72 mol L^{-1}) with the ratio of O:A (1.16). Under these optimal conditions, the stripping efficiency values up to 31%, 45% and 54% were obtained for NaCl, NaOH, and Na_2CO_3 cases, respectively.

Keywords: Back Extraction of Uranium, Loaded Alamine-336, Stripping, Response Surface Methodology (RSM)

۱. مقدمه

امروزه صنعت و فن آوری هسته‌ای آن‌چنان وسعت و عمقی پیدا کرده است که نه تنها به عنوان یک صنعت پیچیده شناخته می‌شود، بلکه در طول دوران رشد و تکامل خود، سبب ارتقاء، تکامل و پیچیدگی سایر صناعت‌ها نیز شده است. در حال حاضر دانشمندان و صاحب‌نظران علوم هسته‌ای با ارایه‌ی نظرها و فرضیه‌های جدید در زمینه‌ی چرخه‌ی سوخت رآکتورهای هسته‌ای و بهره‌گیری از فن آوری پیشرفته، در صدد یافتن روش بهینه‌ای هستند که بتواند انرژی مورد نیاز بشر را با حداقل هزینه و بیش‌ترین تداوم، «تولید» و تأمین کند. خالص‌سازی اورانیم برای کاستن از میزان مصرف آن و بهره‌گیری کامل‌تر از آن به نحوی که منبع‌های اورانیم موجود بتواند در خدمت نسل‌های بعدی نیز قرار گیرد از جمله‌ی این تلاش‌ها است [۱].

به‌طور کلی برای خالص‌سازی اورانیم روش‌های مختلفی از قبیل استخراج با حلال، تبادل یون و رسوب‌گذاری شیمیایی وجود دارد که از این بین عموماً روش استخراج با حلال به دلیل سادگی، اقتصادی بودن و گزینش‌گری بالا در صنعت بیش‌تر به کار گرفته می‌شود [۲]. یکی از مرحله‌های اصلی در حلقه‌ی «کانه‌آرایی و تولید کیک زرد» و «فراوری اورانیم» مرحله‌ی خالص‌سازی به روش استخراج با حلال است. در این مرحله، از راه تماس فاز آلی مناسب و فاز آبی اورانیم به‌طور انتخابی وارد فاز آلی شده و ناخالصی‌های همراه آن در فاز آبی باقی می‌مانند. پس از این مرحله، اورانیم از طریق فرایند عریان‌سازی با یک محلول قلبیایی، خنثی یا اسیدی مناسب از فاز آلی (آلامین - ۳۳۶) باردار مجدداً استخراج و وارد فاز آبی می‌شود (استخراج معکوس) [۳]. بعد از این مرحله، عملیات رسوب‌گذاری و خشک کردن برای به‌دست آوردن یک محصول نسبتاً خالص اورانیم صورت می‌گیرد. انتخاب عریان‌ساز و بهینه‌سازی فرایند عریان‌سازی برای رسیدن به بازده عریان‌سازی بالاتر، مصرف کم‌تر عریان‌ساز و بازیابی بهتر فاز آلی به منظور اقتصادی نمودن فرایند از اهمیت ویژه‌ای برخوردار است. در این کار پژوهشی اثر پارامترهای مؤثر بر فرایند عریان‌سازی، شامل غلظت، نسبت فاز (O:A) با عریان‌سازهای سدیم هیدروکسید و سدیم کربنات و نیز اثر pH با عریان‌ساز سدیم کلرید مورد بررسی قرار گرفت. لیگاند آلی آلامین - ۳۳۶ یکی از مؤثرترین استخراج‌کننده‌های اورانیم از محیط‌های سولفوریک

اسیدی است. استخراج مجدد اورانیم از چنین استخراج‌کننده‌ای توسط عامل‌های عریان‌ساز مختلفی از قبیل هیدروکلریک اسید [۴، ۵]، سولفوریک اسید [۶، ۷]، آب اکسیژنه [۶]، آمونیاک [۶]، آمونیم کربنات [۵، ۶، ۸]، آمونیم کلرید [۶]، نیتریک اسید [۶] و بسیاری دیگر انجام می‌شود (جدول ۱). اطلاعات کمی برای بهینه‌سازی فرایند استخراج مجدد اورانیم از آلامین باردار با استفاده از روش عریان‌سازی با این عریان‌سازها در دسترس است. با توجه به هزینه‌های انجام آزمایش، انجام بهینه‌سازی با کم‌ترین تعداد آزمایش، مسأله‌ای بسیار اساسی است. به کارگیری آزمایش‌های برنامه‌ریزی شده، برای تکرارپذیری و درستی داده‌ها، تجزیه و تحلیل داده‌ها و اصلاح علمی داده‌های آزمایش‌ها، انگیزه‌ی استفاده از روش‌های ریاضی و آمار و نرم‌افزارهای محاسباتی را افزایش داده است. در پژوهش حاضر از روش سطح پاسخ^(۱) برای به‌دست آوردن شرایط بهینه با معیار عریان‌سازی بالاتر و مصرف کم‌تر عریان‌ساز استفاده شد. روش سطح پاسخ قادر است پارامترهای مورد نظر را هم‌زمان مورد بررسی قرار داده و اثر برهم‌کنش پارامترها را نیز نشان دهد [۹-۱۱].

طرح عاملی باکس- ویلسون معروف به طرح مرکب مرکزی^(۲) (CCD) راهی برای کم کردن تعداد کل آزمایش‌ها در رسیدن به شرایط بهینه است. در طرح‌های عاملی به هر ترکیب سطح‌های عامل‌ها یک ردیف^(۳) می‌گویند و مجموع تمام ردیف‌ها یک طرح^(۴) نامیده می‌شود. از آن‌جا که در طراحی آزمایش، اثر عامل‌ها و مدل بین پاسخ و عامل‌ها با حداقل تعداد آزمایش شناخته می‌شود، این روش در هزینه‌ها و زمان صرفه‌جویی می‌کند [۱۲].

در این روش کم‌ترین و بیش‌ترین مقدار هر عامل به ترتیب با $-\alpha$ و $+\alpha$ نشان داده شده و مقدارهای میانی با -1 ، صفر و $+1$ مشخص می‌شوند. طرح مرکب مرکزی یک طرح کاربردی درجه دو در روش سطح پاسخ است [۱۳، ۱۴].

۲. بخش تجربی

۱.۲ دستگاه‌وری

اندازه‌گیری غلظت اورانیم و دیگر عنصرهای موجود در محلول‌های آبی، با استفاده از طیف‌سنجی نشر اتمی پلاسما جفت شده‌ی القایی (ICP-AES) انجام شد.

جدول ۱. عریان‌سازهای عموماً استفاده شده در استخراج معکوس اورانیم از فاز آلی (آلامین-۳۳۶) باردار به روش عریان‌سازی [۵، ۷، ۲۰-۲۴]

عریان‌ساز	غلظت عریان‌ساز (mol L ⁻¹)	غلظت آلامین-۳۳۶ (mol L ⁻¹)	غلظت اورانیم در فاز آلی (mg L ⁻¹)	غلظت اورانیم در فاز آبی
HCl	۵	۰٫۱	۱۰۶٫۷	۳۴
H ₂ SO ₄	۱	۰٫۱	۱۰۶٫۷	۸۳٫۵
H ₂ SO ₄	۴	۰٫۱۵	۸۰۰۰	۷۵
H ₂ SO ₄	۵	۰٫۱	۱۰۶٫۷	۸۵٫۵
HNO ₃	۵	۰٫۱	۱۰۶٫۷	۳۲
NH ₃	۰٫۱۲	۰٫۱	۱۰۶٫۷	۶۰
H ₂ O ₂ ۳۰٪	-	۰٫۱	۱۰۶٫۷	۵
(NH ₄) ₂ CO ₃	۰٫۵	۰٫۱	۱۰۶٫۷	۴۴٫۸
(Na) ₂ CO ₃	۱٫۵	۰٫۰۷	۱۰۸۰	۹۵
NH ₄ Cl	۰٫۵	۰٫۱	۱۰۶٫۷	۱۰۰
NH ₄ NO ₃	۰٫۵	۰٫۱	۱۰۶٫۷	۷۶
(NH ₄) ₂ C ₂ H ₄ O ₆	۰٫۵	۰٫۱	۱۰۶٫۷	۵۶
NaCl (pH = ۱)	۰٫۵	۰٫۰۵	۱۵۰۰	۹۹
NaCl (pH = ۲-۳)	۱-۱٫۵	۰٫۱۵	۸۰۰۰	۹۸
(NH ₄) ₂ SO ₄	۱٫۵ M	۰٫۰۷	۲۸۰۰	۸۷
NH ₄ OH	۳ M			

۲.۲ مواد شیمیایی

عریان‌سازهای سدیم هیدروکسید، سدیم کربنات، سدیم کلرید با خلوص آزمایشگاهی از شرکت مرک و محلول فروشویی سولفات‌ها از معدن بندرعباس تهیه شد.

ایزو دکانول با خلوص آزمایشگاهی از شرکت مرک و حلال آلامین-۳۳۶ که مخلوطی از نرمال تری اکتیل آمین و حلال‌های نرمال تری دسیل آمین است از شرکت هنکل ایند^(۵) خریداری و بدون خالص‌سازی اضافی به کار گرفته شدند.

از کروزن برش نفتی آلیفاتیک (تهیه شده از پالایشگاه تهران) به‌عنوان رقیق‌کننده استفاده شد. فاز آلی مورد استفاده حاوی ۰٫۱ مول بر لیتر آلامین-۳۳۶ و ۵٪ حجمی ایزو دکانول رقیق شده در کروزن بود. این فاز آلی در شرایط بهینه‌ی استخراج اورانیم (دما ۲۵ °C و نسبت فاز آلی به آبی یک)، در تماس با محلول سولفات‌های ۰٫۲۲ M ساختگی و محلول فروشویی اورانیم بندرعباس حاوی حدود به ترتیب ۲۸۰ mg L⁻¹ و ۲۵۰ mg L⁻¹ اورانیم با ۲۷۰ mg L⁻¹ اورانیم در مورد اول و حدود ۲۳۵ mg L⁻¹ اورانیم و حدود ۷۰ mg L⁻¹ آهن در مورد اخیر باردار شد.

۳.۲ طراحی آزمایش

برای طراحی آزمایش و تجزیه و تحلیل داده‌های حاصل از نرم‌افزار دیزاین-اکسپرت^(۶) استفاده شد. در مورد عریان‌سازهای سدیم

هیدروکسید و سدیم کربنات برای بررسی دو پارامتر، تعداد ۱۳ آزمایش با ۵ نقطه‌ی مرکزی و در مورد سدیم کلرید برای بررسی سه پارامتر تعداد ۲۰ آزمایش با ۶ نقطه‌ی مرکزی طراحی و اجرا شد. عامل‌ها و سطح‌های استفاده شده در جدول ۲ درج شده‌اند.

در روش سطح پاسخ، برای هر متغیر وابسته مدلی تعریف می‌شود که اثرهای اصلی و متقابل عامل‌ها را بر روی هر متغیر جداگانه بیان می‌نماید. مدل چند متغیره به صورت زیر است [۱۲]:

$$Y_{(i,j,k)} = b_0 + \sum b_i X_i + \sum b_{ii} X_i^2 + \sum b_{ij} X_i X_j + \sum b_{iii} X_i^3 + \sum \sum b_{ijk} X_i X_j X_k + \varepsilon \quad (3)$$

که در آن Y_i ($i = 1$) پاسخ پیش‌بینی شده برای بازده استخراج معکوس اورانیم، X_i متغیر مستقل، b_0 ضریب ثابت، b_i ، b_{ij} ، b_{ii} ، b_{iii} ، b_{ijk} و ε به ترتیب، اثرهای خطی، اثرهای مربعی، اثرهای متقابل، اثرهای مکعبی، اثرهای سه جانبه و باقی‌مانده‌ی آزمایش‌ها هستند. در پژوهش حاضر متغیرهای مستقل غلظت، نسبت فاز، pH به ترتیب با A، B، C و بازده جداسازی با S نشان داده شده و با مدل درجه دو بهینه شده‌اند.

$$(S) = \alpha_0 + \alpha_1 A + \alpha_2 B + \alpha_{11} A^2 + \alpha_{22} B^2 + \alpha_{12} AB \quad (4)$$

جدول ۲. عامل‌ها و سطح‌های استفاده شده در طراحی آزمایش استخراج معکوس اورانیم به روش عریان‌سازی با عریان‌سازهای سدیم هیدروکسید، سدیم کربنات، سدیم کلرید

عریان‌ساز	پارامترها	سطح				
		+α	+۱	۰	-۱	-α
NaOH	B, A	۴	۳,۴۹	۲,۲۵	۱	۰,۵
		۵	۴,۳۹	۲,۷۵	۱,۱۶	۰,۵
Na _۲ CO _۳	B, A	۲	۱,۷۴	۱,۱۳	۰,۵	۰,۲۵
		۵	۴,۳۹	۲,۷۵	۱,۱۶	۰,۵
NaCl	C, B, A	۴	۳,۴۹	۲,۲۵	۱	۰,۵
		۳	۲,۶۳	۱,۷۵	۰,۹	۰,۵
		۵	۴,۱۹	۳,۰۰	۱,۸۱	۱

پیش‌بینی شده‌ی استخراج معکوس اورانیم از آلامین - ۳۳۶ باردار، به وسیله‌ی عریان‌سازهای سدیم هیدروکسید، سدیم کربنات و سدیم کلرید را نشان می‌دهد.

جدول ۳. نتیجه‌های آزمایش‌های استخراج معکوس به روش عریان‌سازی با عریان‌ساز سدیم هیدروکسید

شماره‌ی آزمایش	غلظت (mol L ^{-۱})	نسبت فاز (O/A)	بازده عریان‌سازی (%)
۱	۳,۴۹	۰,۹	۴۳
۲	۴,۰	۱,۷۵	۲۹
۳	۱,۰	۲,۶۳	۳۲
۴	۰,۵	۱,۷۵	۳۲
۵	۲,۲۵	۰,۵	۵۴
۶	۳,۴۹	۲,۶۳	۳۰
۷	۲,۲۵	۱,۷۵	۴۲
۸	۱,۰	۰,۹	۴۹
۹	۲,۲۵	۳,۰	۳۴
۱۰	۲,۲۵	۱,۷۵	۴۲
۱۱	۲,۲۵	۱,۷۵	۴۲
۱۲	۲,۲۵	۱,۷۵	۴۲
۱۳	۲,۲۵	۱,۷۵	۴۲

این معادله حاصل تجزیه و تحلیل واریانس (ANOVA) برای نشان‌دادن برهم‌کنش و اثر پارامترها بر روی بازده عریان‌سازی است. تأیید برازش مدل چند متغیره با استفاده از ضریب تعیین^(۷) (R^۲) و معنی‌داری کل^(۸) آن با استفاده از آزمون F-نشان داده شده است. خطای باقی‌مانده^(۹)، خطای خالص^(۱۰) و عدم برازش^(۱۱) با استفاده از آزمایش‌های تکراری به‌دست آمد. معیار مطلوب انتخاب شده برای به‌دست آوردن شرایط بهینه، بازده عریان‌سازی بالاتر و مصرف کم‌تر عریان‌ساز است.

جدول‌های ۳، ۴ و ۵ نتیجه‌های آزمایش‌های عریان‌سازی را نشان می‌دهند. مدل چندمتغیره برای سدیم هیدروکسید S_۱، سدیم کربنات S_۲ و سدیم کلرید S_۳ به‌صورت زیر است:

$$(S_1)^{۰.۵} = ۰,۴۴ - ۰,۱۵A + ۰,۷۳B + ۰,۵۳A^۲ + ۰,۱۳B^۲ \quad (۵)$$

$$(S_2)^{۱.۸} = ۰,۴۱ + ۰,۴۳A - ۰,۱B - ۰,۵۵۸AB - ۰,۳۵A^۲ + ۰,۸۵B^۲ \quad (۶)$$

$$(S_3)^{۰.۴} = ۰,۳۸ + ۰,۹۳A - ۰,۸۹B + ۳,۱۵۴ \times 10^{-۳}C + ۰,۶۱AB - ۰,۷۲A^۲ - ۱,۹۸۱ \times 10^{-۳}B^۲ - ۰,۲۵C^۲ - ۰,۳۲AB^۲ \quad (۷)$$

ضریب‌های پارامترهای A، B، C و برهم‌کنش بین پارامترها AB، AC، BC، A^۲، B^۲ و C^۲ نشان‌دهنده‌ی میزان اهمیت هر یک از این متغیرها و برهم‌کنش آن‌ها است. شکل ۱ مقدرهای واقعی و

جدول ۴. نتیجه‌های آزمایش‌های استخراج معکوس به روش عریان‌سازی با

عریان‌سازی سدیم کربنات

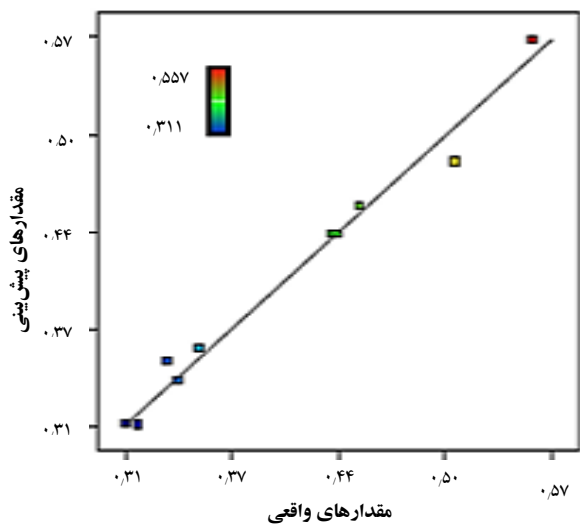
شماره‌ی آزمایش	غلظت (mol L ⁻¹)	نسبت فاز (O/A)	بازده عریان‌سازی (%)
۱	۱٫۱۳	۲٫۷۵	۴۰
۲	۱٫۱۳	۲٫۷۵	۴۲
۳	۰٫۲۵	۲٫۷۵	۳۱
۴	۱٫۱۳	۲٫۷۵	۴۹
۵	۱٫۷۴	۴٫۳۴	۳۹
۶	۱٫۱۳	۵٫۰	۴۶
۷	۲٫۰۰	۲٫۷۵	۴۲
۸	۰٫۵	۴٫۳۴	۴۱
۹	۱٫۱۳	۰٫۵	۷۴
۱۰	۱٫۷۴	۱٫۱۶	۷۰
۱۱	۰٫۵	۱٫۱۶	۵۰
۱۲	۱٫۱۳	۲٫۷۵	۴۵
۱۳	۱٫۱۳	۲٫۷۵	۴۶

جدول ۵. نتیجه‌های آزمایش‌های استخراج معکوس به روش عریان‌سازی با

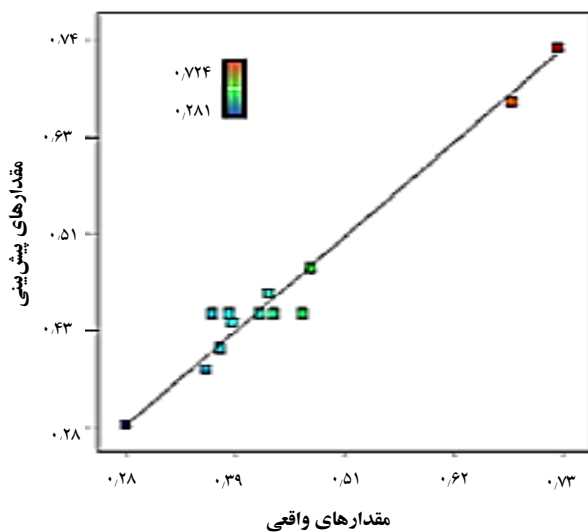
عریان‌سازی سدیم کلرید

شماره‌ی آزمایش	غلظت (mol L ⁻¹)	نسبت فاز (O/A)	pH	بازده عریان‌سازی (%)
۱	۱٫۱۳	۲٫۷۵	۵٫۰۰	۲۷
۲	۱٫۱۳	۲٫۷۵	۳٫۰۰	۳۲
۳	۱٫۱۳	۲٫۷۵	۳٫۰۰	۲۸
۴	۱٫۱۳	۵٫۰۰	۳٫۰۰	۱۹
۵	۱٫۱۳	۲٫۷۵	۳٫۰۰	۳۲
۶	۰٫۶	۱٫۴۱	۱٫۸۱	۲۹
۷	۱٫۱۳	۰٫۵	۳٫۰۰	۴۷
۸	۲٫۰	۲٫۷۵	۳٫۰۰	۲۹
۹	۱٫۶۵	۴٫۰۹	۱٫۸۱	۲۲
۱۰	۰٫۶	۱٫۴۱	۴٫۱۹	۲۸
۱۱	۱٫۶۵	۴٫۰۹	۴٫۱۹	۲۳
۱۲	۱٫۱۳	۲٫۷۵	۳٫۰۰	۳۵
۱۳	۱٫۱۳	۲٫۷۵	۳٫۰۰	۲۸
۱۴	۰٫۶	۴٫۰۹	۴٫۱۹	۲
۱۵	۱٫۶۵	۱٫۴۱	۱٫۸۱	۲۶
۱۶	۱٫۱۳	۲٫۷۵	۱٫۰۰	۲۶
۱۷	۱٫۱۳	۲٫۷۵	۳٫۰۰	۲۹
۱۸	۰٫۶	۴٫۰۹	۱٫۸۱	۳
۱۹	۱٫۶۵	۱٫۴۱	۴٫۱۹	۳۱
۲۰	۰٫۲۵	۲٫۷۵	۳٫۰۰	۲

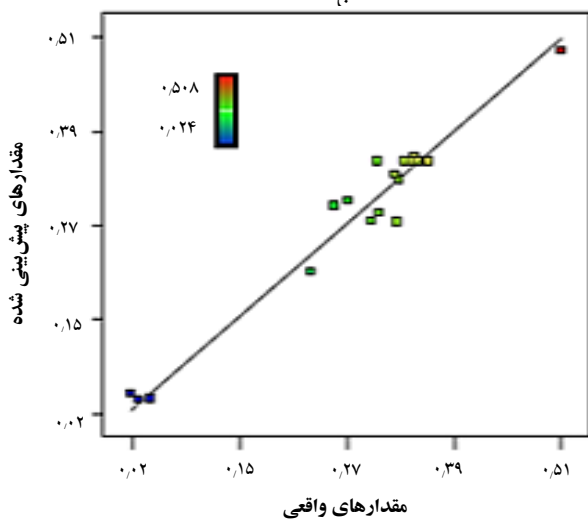
(الف)



(ب)



(ج)



شکل ۱. مقدارهای واقعی و پیش‌بینی شده‌ی استخراج معکوس به روش عریان‌سازی با عریان‌سازی‌های (الف) سدیم هیدروکسید $[S_1]^{0.95}$ ، (ب) سدیم کربنات $[S_2]^{1.08}$ و (ج) سدیم کلرید $[S_3]^{0.95}$.

که در آن C_F و C_0 غلظت به ترتیب، اولیه و نهایی فاز آلی باردار برحسب میلی گرم بر لیتر است. بعد از استخراج معکوس اورانیم از فاز آلی باردار، مقدار اورانیم در فاز آبی با بهره‌گیری از طیف‌سنجی نشر اتمی - پلاسما جفت شده‌ی القایی (ICP-AES) اندازه‌گیری شد.

۳. یافته‌ها

۱.۳ اثر پارامترهای مؤثر بر استخراج معکوس اورانیم

۱.۱.۳ اثر متغیرهای مستقل

همان‌طور که از معادله ۳ مشخص است غلظت و نسبت فاز در فرایند استخراج معکوس اورانیم به روش عریان‌سازی با سدیم هیدروکسید دارای برهم‌کنش نیستند. با افزایش غلظت سدیم هیدروکسید ابتدا بازده استخراج معکوس اورانیم افزایش و سپس کاهش می‌یابد. علت این افزایش و کاهش بازده استخراج با افزایش غلظت عریان‌سازی این است که با افزایش غلظت عریان‌سازی می‌تواند مقدار بیش‌تری اورانیم استخراج کند اما از یک غلظتی به بعد، اثر نمک‌زنی^(۱۲) و افزایش یون‌ها در فاز آبی منجر به پس‌زدن اورانیم می‌شود و بازده استخراج کاهش می‌یابد [۱۵]. با توجه به شکل ۲- الف و معادله‌ی ۳ مشاهده می‌شود که نسبت فاز در بازده استخراج اثر منفی دارد و با افزایش نسبت فاز آلی به آبی بازده کاهش می‌یابد که می‌توان گفت علت آن اشباع شدن عریان‌سازی از اورانیم است.

تحلیل واریانس امکان ارزیابی میزان برازش مدل با نتیجه‌های آماری به‌دست آمده را فراهم می‌آورد. تحلیل واریانس انجام شده برای یافتن تأثیر پارامترها بر روی بازده استخراج معکوس اورانیم و نتیجه‌های طراحی آزمایش در جدول ۶ نشان داده شده است. مقدار معنی‌دار کم‌تر از ۰/۰۰۱ برای استخراج معکوس اورانیم مناسب است. عدم برازش بزرگ‌تر از ۰/۰۵ نشان می‌دهد که مدل درجه‌ی دوم مناسب است. پیش‌بینی شده R^2 و تعدیل شده R^2 برای استخراج معکوس اورانیم به روش عریان‌سازی با عریان‌سازی با سدیم هیدروکسید به ترتیب ۰/۹۸ و ۰/۹۷ است. عریان‌سازی با سدیم کربنات و سدیم کلرید به ترتیب دارای پیش‌بینی شده R^2 برابر با ۰/۹۴ و ۰/۹۶ و تعدیل شده R^2 برابر با ۰/۹۴ هستند؛ این R^2 ها هر اندازه به یک نزدیک‌تر باشند برازش مدل با داده‌های آزمایشگاهی به همان اندازه خوب است.

۴.۲ استخراج معکوس اورانیم از آلامین باردار

فاز آلی باردار، با محلول‌های سدیم کلرید 0.5 mol L^{-1} تا 4 mol L^{-1} با pH ۵-۱ و نسبت فاز ۰/۵ تا ۳، سدیم هیدروکسید با محدوده‌ی غلظت 0.5 mol L^{-1} تا 4 mol L^{-1} و نسبت فاز ۰/۵ تا ۵ و سدیم کربنات با محدوده‌ی غلظت 0.5 mol L^{-1} تا 2 mol L^{-1} و نسبت فاز ۰/۵ تا ۵ در دمای 25°C به مدت ۲ h در تماس قرار داده شد.

بازده جداسازی اورانیم چنین محاسبه شد.

$$S = \frac{C_0 - C_F}{C_0} \times 100\% \quad (3)$$

جدول ۶. تحلیل واریانس با مدل درجه‌ی دوم برای استخراج معکوس اورانیم به روش عریان‌سازی با عریان‌سازی با سدیم هیدروکسید، سدیم کربنات و سدیم کلرید

عریان‌سازی	منبع	مجموع مربع‌ها	df	میانگین مربع‌ها	ارزش F	معنی‌داری (P)	Prob > F
NaOH	مدل	۰/۰۶۷	۴	۰/۰۱۷	۱۲۴/۳۹	< ۰/۰۰۰۱	با ارزش
	باقی‌مانده	1.079×10^{-3}	۸	1.394×10^{-4}			
	عدم برازش خطای خالص	1.074×10^{-3}	۴	2.685×10^{-4}	۱۹۸/۴۷	< ۰/۰۰۰۱	با ارزش
NaCl	مدل	۰/۲۷	۶	۰/۰۴۴	۵۵/۳۱	< ۰/۰۰۰۱	با ارزش
	باقی‌مانده	۰/۰۱	۱۳	8.018×10^{-4}			
	عدم برازش خطای خالص	9.945×10^{-3}	۸	1.243×10^{-3}	۱۳/۰۰	۰/۰۰۵۹	با ارزش
Na ₂ CO ₃	مدل	۰/۱۷۸	۵	۰/۰۳۵۵	۴۱/۲۸	< ۰/۰۰۰۱	با ارزش
	باقی‌مانده	۰/۰۰۶	۷	0.861×10^{-3}			
	عدم برازش خطای خالص	۰/۰۰۰۷۴	۳	0.241×10^{-3}	۰/۱۸۲	۰/۹	بی ارزش
		۰/۰۰۵۳	۴	1.326×10^{-3}			

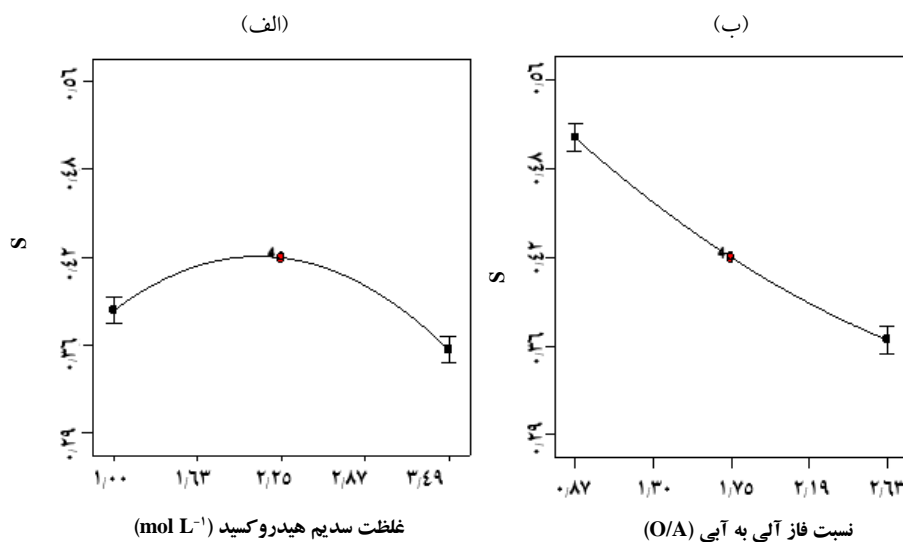
از ضریب بسیار کوچک pH در معادله‌ی ۷ قابل استناد است، این پارامتر تأثیر چندانی بر روی بازده استخراج از فاز آلی باردار ندارد.

۲.۱.۳ اثر برهم‌کنش بین عامل‌ها

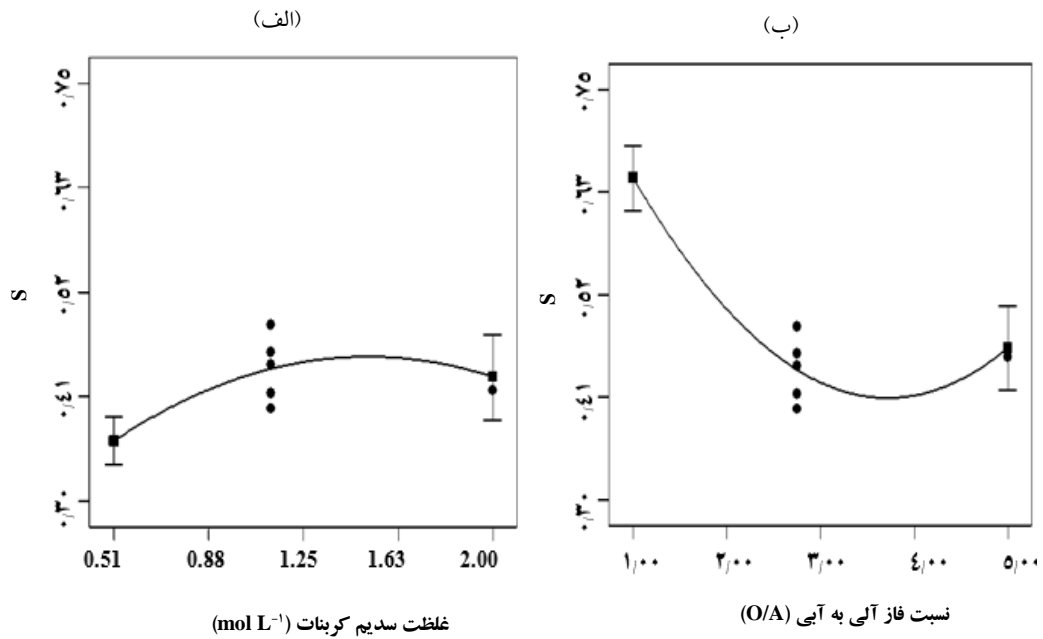
همان‌طور که پیش‌تر نیز توضیح داده شد، وجود برهم‌کنش به این معنا است که عامل‌ها می‌توانند به‌طور هم‌زمان با هم روی پاسخ اثر بگذارند. خط‌های تراز^(۱۳) (شکل‌های ۵، ۶-ب و ۷-ب) مربوط به بازده‌های مختلف استخراج معکوس با در نظر گرفتن اثر برهم‌کنش بین پارامترها در کل تغییرات، محدوده‌ی هر پارامتر را نشان می‌دهد. خط‌های غیرموازی نشان‌دهنده‌ی برهم‌کنش قوی، و خط‌های تقریباً موازی نشان‌دهنده‌ی برهم‌کنش ضعیف بین عامل‌ها هستند [۱۶]. در مدل به‌دست آمده برای سدیم هیدروکسید تمام خط‌ها تقریباً موازی‌اند، بنابراین غلظت سدیم هیدروکسید و نسبت فاز برهم‌کنشی ندارند، که این نتیجه از معادله‌ی ۳ نیز قابل استنتاج است. شکل ۵ نیز خط‌های تراز اثر برهم‌کنش غلظت سدیم هیدروکسید و نسبت فاز آلی به آبی بر استخراج مجدد اورانیم از فاز آلی باردار به روش عریان‌سازی با سدیم هیدروکسید را نشان می‌دهد.

معادله‌ی ۶ نشان می‌دهد که غلظت عریان‌ساز و نسبت فاز در مورد اورانیم سدیم کربنات دارای برهم‌کنش معکوس هستند. شکل ۳ نشان می‌دهد که غلظت سدیم کربنات اثر مثبت و نسبت فاز آلی به آبی اثر منفی روی بازده استخراج دارد، اما اثر نسبت فاز قابل توجه‌تر است.

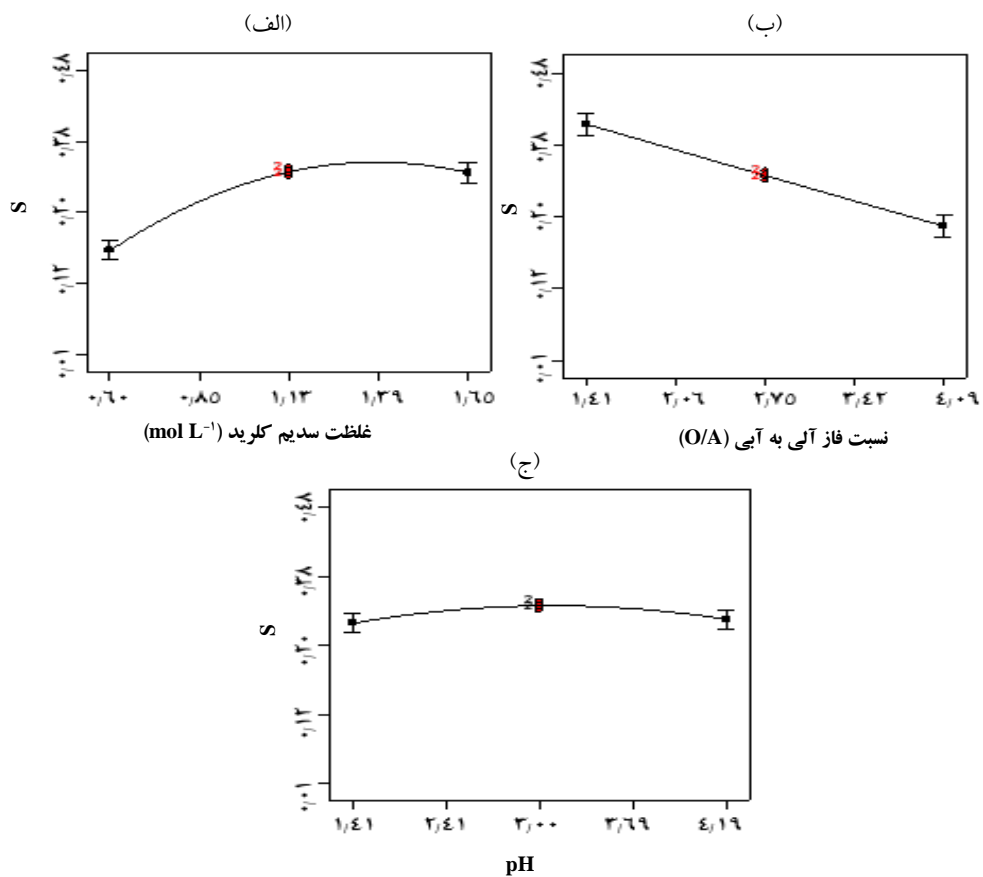
همان‌طور که از معادله‌ی ۷ مشخص است غلظت عریان‌ساز و نسبت فاز در فرایند استخراج معکوس از فاز آلی باردار در مورد سدیم کلرید با pH دارای برهم‌کنش نیست و تنها غلظت عریان‌ساز و نسبت فاز دارای برهم‌کنش مثبت هستند. همان‌طور که از شکل ۴-الف مشاهده می‌شود، با افزایش غلظت سدیم کلرید ابتدا بازده استخراج از فاز آلی باردار افزایش و سپس کاهش می‌یابد. علت این افزایش و کاهش بازده استخراج اثر نمک‌زنی و افزایش یون‌ها در فاز آبی است که منجر به پس‌زدن اورانیم می‌شود و بازده استخراج آن از فاز آلی کاهش می‌یابد. با توجه به شکل ۴-ب و معادله‌ی ۷ مشاهده می‌شود که نسبت فاز نیز در بازده استخراج با سدیم کلرید اثر منفی دارد که می‌توان گفت به علت اشباع شدن محلول سدیم کلرید از اورانیم است. اما همان‌طور که



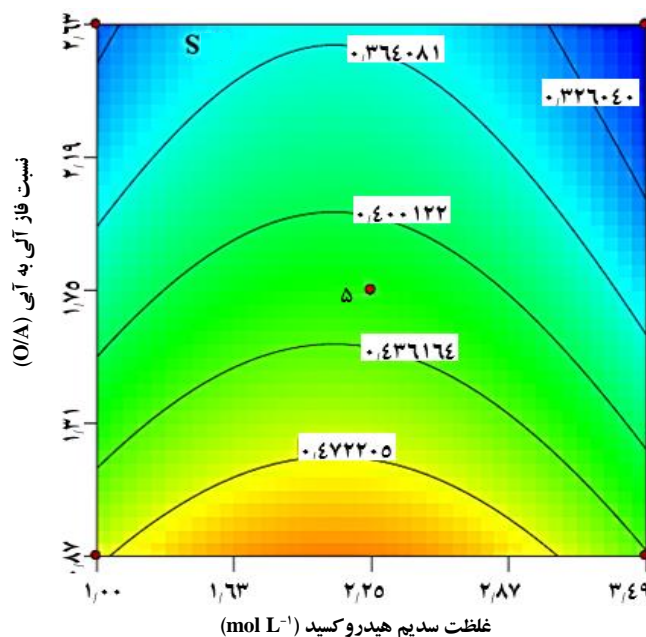
شکل ۲. تأثیر الف) غلظت سدیم هیدروکسید، ب) نسبت فاز آلی به آبی به صورت مستقل بر روی بازده استخراج معکوس اورانیم از آلومین-۳۳۶ باردار به روش عریان‌سازی با استفاده از عریان‌ساز سدیم هیدروکسید. [الف) نسبت فاز آلی به آبی: ۱.۷۵، ب) غلظت سدیم هیدروکسید: ۱.۱۳ mol L⁻¹]



شکل ۳. تأثیر الف) غلظت سدیم کربنات، ب) نسبت فاز آلی به آبی به صورت مستقل بر بازده استخراج معکوس اورانیم از آلامین - ۳۳۶ باردار، به روش جریان‌سازی با استفاده از جریان‌ساز سدیم کربنات. [الف) نسبت فاز آلی به آبی: ۲٫۷۵، ب) غلظت سدیم کربنات: 1.13 mol L^{-1}]



شکل ۴. تأثیر الف) غلظت سدیم کلرید، ب) نسبت فاز آلی به آبی، ج) pH به صورت مستقل بر بازده استخراج معکوس اورانیم از فاز آلی باردار به روش جریان‌سازی با استفاده از جریان‌ساز سدیم کلرید. [الف) نسبت فاز آلی به آبی: ۲٫۷۵، pH ۳٫۰؛ ب) غلظت سدیم کلرید: 9.13 mol L^{-1} ، pH ۳٫۰؛ ج) غلظت سدیم کلرید: 9.13 mol L^{-1} ، نسبت فاز آلی به آبی: ۲٫۷۵]



شکل ۵. خط‌های تراز اثر برهم کنش غلظت‌های عریان‌ساز سدیم هیدروکسید و نسبت فاز آلی به آبی بر بازده استخراج معکوس اورانیم از فاز آلی باردار به روش عریان‌سازی.

به‌بیانی دیگر اثر pH بر بازده استخراج معکوس اورانیم از فاز آلی باردار با سدیم کلرید ناچیز است.

۲.۳ بهینه‌سازی فرایند استخراج معکوس اورانیم از فاز آلی (آلامین - ۳۳۶) باردار

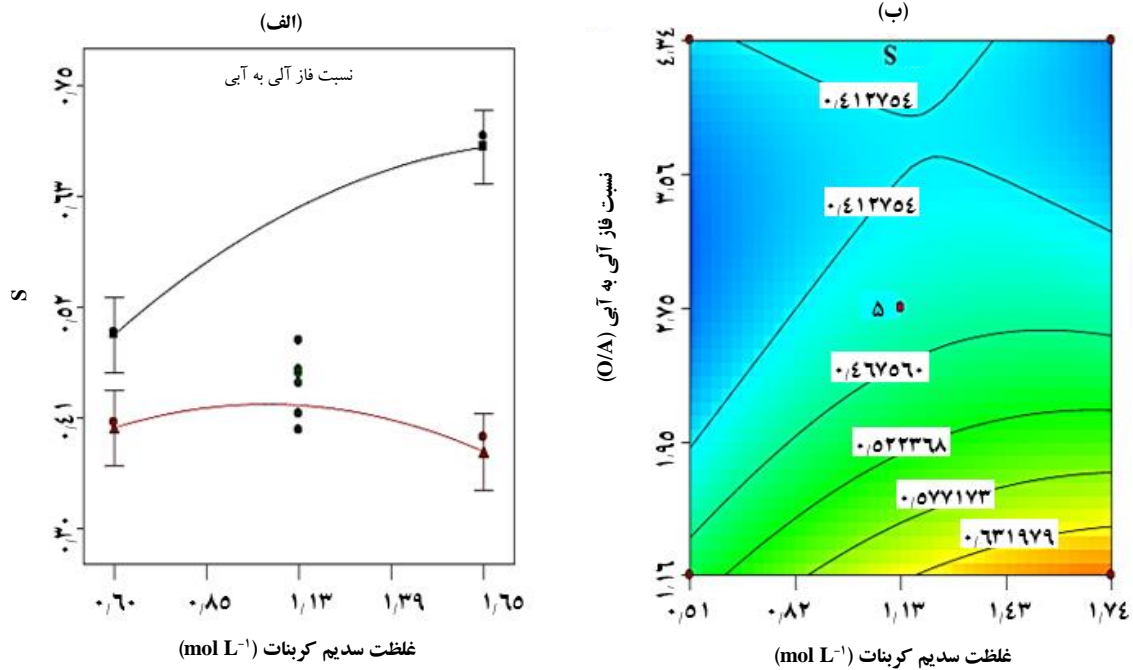
آخرین مرحله در یک طراحی آزمایش پیش‌بینی و بهینه‌سازی شرایط انجام آزمایش است. در پژوهش حاضر پارامترها با معیار بازده استخراج بالاتر به روش عریان‌سازی و مصرف کم‌تر عامل عریان‌ساز بهینه شدند. هدف اصلی این پژوهش یافتن شرایط بهینه برای فرایند استخراج معکوس اورانیم از فاز آلی (آلامین - ۳۳۶) باردار، با صرف زمان و هزینه‌ی کم‌تر بود. برای رسیدن به این هدف ابتدا پارامترها به طور هم‌زمان و سپس به‌صورت انفرادی بهینه شدند. در بهینه‌سازی هم‌زمان، بازده استخراج معکوس اورانیم با سدیم هیدروکسید به غلظت 1.33 mol L^{-1} و نسبت فاز 1.26 حدود 45% ، با سدیم کربنات به غلظت 0.72 mol L^{-1} و نسبت فاز 1.16 حدود 54% و در نهایت با سدیم کلرید 0.6 mol L^{-1} و نسبت فاز 1.41 در pH با مقدار 3.1 حدود 31% پیش‌بینی شد. برای بهبود و ساده‌سازی عملکرد عریان‌ساز در روند پیوسته‌ی عریان‌سازی (استخراج اورانیم از فاز آلی باردار در یک ستون استخراج معکوس) نسبت فاز آلی به آبی ۱ بهترین نتیجه را داد.

مطابق شکل ۶ برای استخراج معکوس اورانیم از فاز آلی باردار، با محلول سدیم کربنات اگر نسبت فاز از 1.16 به 4.34 افزایش یابد در حالی که غلظت آن از 0.51 mol L^{-1} تا 1.74 mol L^{-1} افزایش می‌یابد، بازده عریان‌سازی با کاهش 9% (از 49% تا 40%) تا 31% درصدی (از 68% تا 37%) مواجه خواهد شد و با توجه به موردهای مطرح شده مبنی بر اثر مستقیم مقدار غلظت سدیم کربنات و اثر معکوس نسبت فاز آلی به آبی بر بازده استخراج معکوس اورانیم از فاز آلی باردار به روش عریان‌سازی این کاهش بازده قابل توجه است.

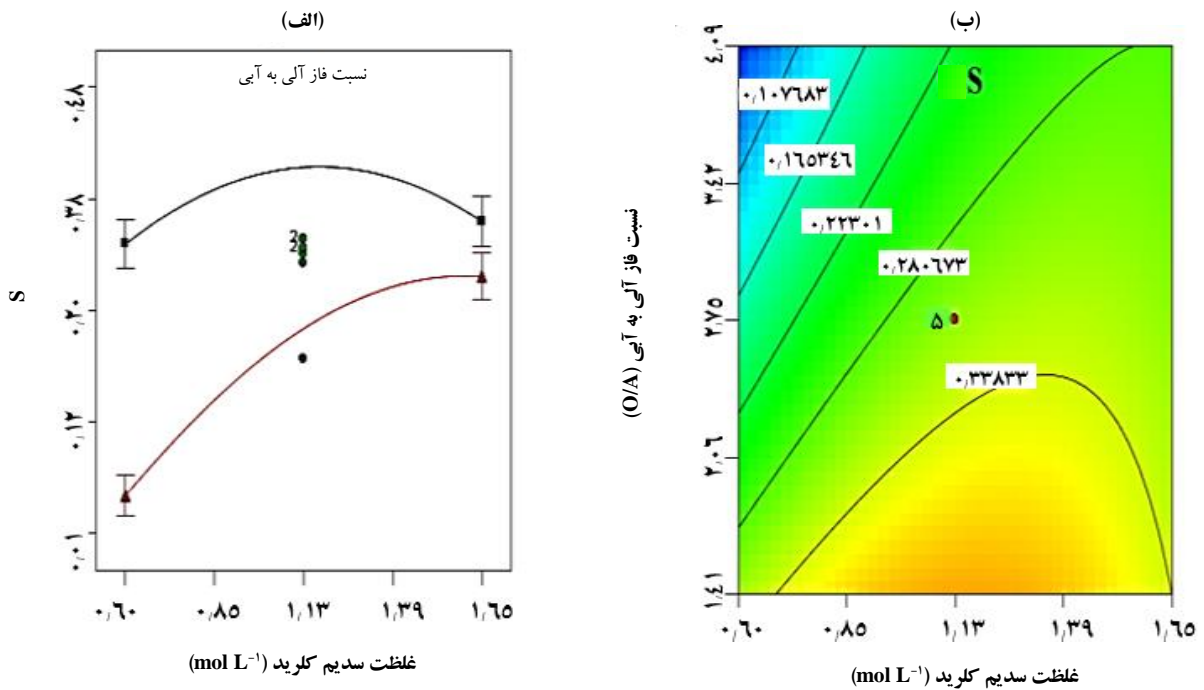
مطابق شکل ۷ برای استخراج معکوس اورانیم از فاز آلی باردار با محلول سدیم کلرید، اگر نسبت فاز از 1.41 به 4.09 افزایش یابد در حالی که غلظت آن از 0.6 mol L^{-1} تا 1.65 mol L^{-1} افزایش می‌یابد، بازده استخراج با کاهش 30% درصدی (از 31% تا 0.5%) تا 6% درصدی (از 34% تا 28%) مواجه خواهد شد و با توجه به موردهای مطرح شده مبنی بر اثر مستقیم مقدار غلظت سدیم کلرید و اثر معکوس نسبت فاز آلی به آبی بر بازده استخراج از فاز آلی باردار، این کاهش بازده قابل توجه است. این بدین معنا است که برای بالا بردن بازده استخراج از فاز آلی باردار، بهتر است نسبت فاز را کاهش و غلظت سدیم کلرید را افزایش داد. با توجه به معادله‌ی ۵، pH با هیچ‌کدام از عامل‌های دیگر برهم‌کنش ندارد،

که نشان‌دهنده‌ی برازش مناسب مدل با داده‌های تجربی است. در جدول ۷ داده‌های تجربی با داده‌های پیش‌بینی شده‌ی مدل مقایسه شده است.

بنابراین معیار بهینه‌سازی شرایط علاوه بر بازده استخراج بالاتر و مصرف کم‌تر عریان‌ساز، نسبت فاز آلی به آبی رانیز شامل می‌شود. تحت این شرایط بهینه‌ی جدید با انجام آزمایش‌های استخراج اورانیم از فاز آلی باردار واقعی نتیجه‌های قابل قبولی به‌دست آمد



شکل ۶. الف) نمودار اثر مستقل غلظت سدیم کربنات، ب) خط‌های تراز اثر برهم‌کنش غلظت عامل عریان‌ساز سدیم کربنات و نسبت فاز آلی به آبی بر بازده استخراج معکوس اورانیم از فاز آلی باردار، به روش عریان‌سازی.



شکل ۷. الف) نمودار اثر مستقل غلظت سدیم کلرید، ب) خط‌های تراز اثر برهم‌کنش غلظت سدیم کلرید و نسبت فاز آلی به آبی بر بازده استخراج معکوس اورانیم از فاز آلی باردار، به روش عریان‌سازی.

جدول ۷. مقایسه‌ی نتیجه‌های پیش‌بینی شده‌ی مدل با داده‌های آزمایشگاهی

عریان‌ساز	نسبت فاز (O/A)	pH	غلظت (mol L ⁻¹)	درصد پیش‌بینی شده‌ی مدل برای استخراج U(VI) از فاز آلی باردار	درصد U(VI) استخراج شده از فاز آلی باردار شده با محلول ساختگی	درصد U(VI) استخراج شده از فاز آلی باردار شده با محلول واقعی	درصد آهن استخراج شده از فاز آلی باردار شده با محلول واقعی
NaOH	۱	-	۱٫۲۵	۴۷٫۰۰	۴۶٫۵۶	۴۱٫۶۰	۱٫۲۳
Na ₂ CO ₃	۱	-	۰٫۸۸	۶۰٫۷۲	۶۰٫۰۸	۵۸٫۶۲	۳٫۳۶
NaCl	۱	۲٫۴	۰٫۶۳	۳۵٫۶۴	۳۴٫۷۹	۳۶٫۰۵	۱٫۰۳

می‌شود که باز هم مرحله‌ای اضافی برای بازیابی فاز آلی ضروری است.

۴. بحث و نتیجه‌گیری

روش سطح پاسخ برای بهینه‌سازی پارامترهای استخراج معکوس اورانیم از آلومین-۳۳۶ باردار، با سدیم هیدروکسید، سدیم کربنات و سدیم کلرید به کار گرفته شد. بر این اساس غلظت سدیم هیدروکسید و سدیم کربنات در بازه‌ی ۰٫۵ mol L⁻¹ تا ۰٫۲۵ mol L⁻¹، غلظت سدیم کلرید در بازه‌ی ۰٫۲۵ mol L⁻¹ تا ۰٫۱ mol L⁻¹، و نسبت فاز آلی به آبی در گستره‌ی ۱ تا ۵ تغییر داده شد. هم‌چنین محدوده‌ی تغییرات pH، ۱ تا ۵ در نظر گرفته شد. داده‌های طراحی و مقدار معنی‌داری کم‌تر از ۰٫۰۰۰۱ برای سدیم کربنات نشان داد که این عریان‌ساز با این که میزان آهن بیش‌تری را از فاز آلی باردار خارج می‌سازد برای استخراج معکوس اورانیم از فاز آلی باردار مناسب است. با وجود این، یک مرحله شستشو برای حذف آهن از فاز آلی مورد نیاز است که با سولفوریک اسید رقیق این امکان فراهم می‌آید. با در نظر گرفتن رقت سولفوریک اسید این مرحله مقرون به صرفه است و مشکلی در فرایندهای صنعتی ایجاد نخواهد کرد. بنابراین از بین عریان‌سازهای مورد مطالعه‌ی این مقاله، بهترین عریان‌ساز برای خارج ساختن اورانیم از فاز آلی باردار، سدیم کربنات است. شرایط بهینه برای سدیم کربنات با تکیه بر معیار مصرف حداقل مقدار و بالاترین بازده، غلظت ۰٫۷۲ mol L⁻¹ و نسبت فاز (O:A) ۱٫۱۶ است. در این شرایط بهینه بازده استخراج اورانیم از فاز آلی باردار حدود ۵۴٪ به‌دست آمد.

حضور آهن در فرایند استخراج مشکل‌های زیادی به ویژه در سیستم‌های پیوسته و صنعتی ایجاد می‌کند. بنابراین کاهش آهن فاز آلی در قبل از استخراج اورانیم از فاز آلی باردار ضروری است. برای این منظور، قبل از ورود فاز آلی باردار به مرحله‌ی استخراج می‌توان فاز آلی باردار را با سولفوریک اسید بسیار رقیق (حدود ۰٫۰۵ مولار) شستشو داد. داده‌های جدول ۵ نشان می‌دهد که استخراج اورانیم از فاز آلی باردار، با سدیم کربنات دارای بازده بالاتری است، اما گزینش‌گری آن برای اورانیم پایین است و منجر به رسوب سدیم اورانات می‌شود که رسوب مطلوبی نیست. این رسوب با حرارت دادن سدیم کربنات- اورانیل در یک شکل شفاف تشکیل می‌شود که رسوب تبلور یافته‌ی آن با اضافه کردن مقدار ناچیزی از اکسید سبز^(۱۴) به وجود می‌آید. این اکسید منجر به تغییر رنگ رسوب از زرد مایل - به - قرمز به زرد مایل - به - سبز می‌شود [۱۷، ۱۸]. هم‌چنین سدیم کربنات عنصرهای دیگری مانند مولیبدن، آهن و وانادیم را نیز استخراج می‌کند. بازده استخراج آهن از فاز آلی باردار توسط سدیم کربنات بسیار پایین است اما در مقیاس صنعتی یا در سیستم‌های پیوسته این مقدار قابل توجه است. بنابراین برای یک استخراج مجدد مناسب باید یک مرحله‌ی اضافی جداشویس آهن از فاز آلی وجود داشته باشد یا استخراج‌کننده‌ای انتخاب شود که آهن را از محلول آلی استخراج نکند [۵، ۱۹]. عیب دیگری که برای این نوع استخراج‌کننده‌ی بازی وجود دارد این است که اگر فاز آلی حاوی آهن باشد و آهن وارد چرخه‌ی استخراج شود، منجر به تشکیل یک نوع رسوب دلمه‌ی بسته می‌شود که باعث ایجاد مشکل در عملیات می‌شود. همان‌طور که مشاهده می‌شود بازده استخراج معکوس آهن با سدیم کلرید به نسبت بقیه کم‌تر است، اما در سیستم پیوسته یون کلر در فاز آلی تجمع می‌یابد که منجر به کاهش کارایی آن

پی‌نوشت‌ها

1. Response Surface Methodology (RSM)
2. CCD: Central Composite Design
3. Run
4. Design
5. Henkel Ind
6. Design-Expert 7
7. Coefficient of Determination
8. Integral Significance
9. Residual Error
10. Pure Error
11. Lack-of-Fit
12. Salting Out
13. Contours
14. Green Oxide

مراجع

- [1] D. Connelly, Uranium Processing, International mining, (2008) 58-61.
- [2] V. Opratko, S. Lynn, Purification of Yellow Cake, U.S. Patent No 3, 174 (1965) 821.
- [3]
- [4] D.J. Crouse, Amine Extraction Processes for Uranium Recovery from Sulfate Liquors, ORNL-1959 (1955) 1-78.
- [5] J. Rydberg, Solvent Extraction Principles and Practice, Revised and Expanded, CRC Press, (2004).
- [6] C.J. Kim, J.R. Kumar, J.S. Kim, J.Y. Lee, H.S. Yoon, Solvent extraction studies on uranium using amine based extractants and recovery from low grade ore leach liquors. J. Brazilian Chem. Soc., 23, 7 (2012) 1254-1264.
- [7] C. Morais, L. Gomiero, W. Scassiotti Filho, H. Rangel, Uranium Stripping from Tertiary Amine by Sulfuric Acid Solution and Its Precipitation as Uranium Peroxide, Miner. Eng, 18 (2005) 1331-33.
- [8] F.J. Hurst, D.J. Crouse, Recovery of Uranium from Amine Extractants with Ammonium Carbonate, No. ORNL-3064). Oak Ridge National Lab, Tenn (1961).
- [9] M. Ahmadi, F. Vahabzadeh, B. Bonakdarpour, E. Mofarrah, M. Mehranian, Application of the Central Composite Design and Response Surface Methodology to the Advanced Treatment of Olive Oil Processing Wastewater Using Fenton's Peroxidation, J. Hazard. Mater., 123, 1 (2005) 187-95.
- [10] A. Sharma, V. Tyagi, C. Chen, D. Buddhi, Review on Thermal Energy Storage with Phase Change Materials and Applications, Renewable and Sustainable energy reviews, 13 (2009) 318-45.
- [11] M. Purcell, N.R. Wray, J.L. Stone, P.M. Visscher, M.C. O'Donovan, P.F. Sullivan, P. Sklar, D.M. Ruderfer, A. McQuillin, D.W. Morris, Common Polygenic Variation Contributes to Risk of Schizophrenia and Bipolar Disorder, Nature, 460 (2009) 748-52.
- [12] A. Dean, D. Voss, Response Surface Methodology, Design and analysis of experiments, (1999) 483-529.
- [13] A. Sharma, D. Bardhan, R. Patel, Optimization of Physical Parameters for Lipase Production from *Arthrobacter* Sp. BGCC 490 (2009).
- [14] M. Hadavifar, A.A. Zinatizadeh, H. Younesi, M. Galehdar, Fenton and Photo-Fenton Treatment of Distillery Effluent and Optimization of Treatment Conditions with Response Surface Methodology, Asia-Pacific. J. Chem. Eng., 5 (2010) 454-64.
- [15] S. Endo, A. Pfennigsdorff, K.U. Goss, Salting out effect in aqueous NaCl solutions: trends with size and polarity of solute molecules. Environ. Sci. Tec., 46, 3 (2012) 1496-1503.
- [16] S. Demim, N. Drouiche, A. Aouabed, T. Benayad, O.D. Badache, S. Semsari, Cadmium and Nickel: Assessment of the physiological effects and heavy metal removal using a response surface approach by L. Gibba, Ecology. Eng., 61 (2013) 426-35.
- [17] D.M. Hausen, Characterizing and Classifying Uranium Yellow Cakes: A Background JOM, 50, 12 (1998) 426-435.

- [18] A.D. Meredith, T.W. Knight, R. Noe, Modified sodium diuranate process for the recovery of uranium from uranium hexafluoride transport cylinder wash solution, *Sep. Sci. Tech*, 50, 6 (2015) 920-925.
- [19] E. Sialino, C. Mignot, P. Michael, J. Vial, Extraction and selective stripping of uranium and molybdenum in sulfate solution using amine, *Compagine Generale Des Matieres Nucleaires* (1977).
- [20] D.J. Crouse, K.B. Brown, *Amine Extract Processes for Uranium Recovery from Sulfate Liquors*, Oak Ridge National Lab, Vol. I (1955).
- [21] V.M. Pandey, A.B. Chakraborty, N. Maity, Preparation of nuclear grade uranium oxide from Jaduguda leach liquor, (1991).
- [22] Zh. Zhu, Ch.Y. Cheng, A review of uranium solvent extraction: its present status and future trends, *ALTA 2011 Uranium Conference*, (2011) 26-27.
- [23] G. Ramadevi, T. Sreenivas, A.S. Navale, N. Padmanabhan, Solvent extraction of uranium from lean grade acidic sulfate leach liquor with alamine 336 reagent, *J. Radioanal. Nuc. Chem.*, 294 (2012) 13-18.
- [24] D.J. Crouse, Controlled pH stripping of uranium from amines, Oak Ridge National Lab., (1960).