

EFEITO DOS PARÂMETROS QUE INTERFEREM NA EFICIÊNCIA DE EXTRAÇÃO DE URÂNIO POR TBP/DODECANO EM MISTURADORES-DECANTADORES.

Atsuko K. Nakazone, Etsuko I. de Carvalho, Bertha F. de Araújo, Harko T. Matsuda e José Adroaldo de Araújo.

Departamento de Engenharia Química - MQR

Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - CNEN/SP

Caixa Postal 11.049 - Pinheiros

São Paulo - SP - Brasil

ABSTRACT

In order to get the best actinides extraction conditions, the efficiency of Pollux mixer-settler has been verified. Some parameters as residence time in the mixer-chamber and organic and aqueous phase flow-ratio were studied. The uranium distribution profile in both phases of the sixteen stages was obtained. From these data the best efficiency (90%) for high residence time (148s) was achieved. The extraction efficiency decreases with decreasing residence time. For organic and aqueous phase flow-ratios 1, 5 and 20, the mixer-settler efficiency variation from 70% to 100% was observed.

INTRODUÇÃO

Para que o misturador-decantador tenha um máximo de eficiência na extração de actinídeos com TBP/do decano, em operações contínuas e em contra corrente <sup>(1,2)</sup>, é de fundamental importância que se determine, exatamente, o limite de operações para diferentes parâmetros <sup>(3)</sup>. A determinação da eficiência do misturador-decantador se faz variando os parâmetros tais como : vazões das fases orgânica e aquosa, tempo de residência das soluções nas câmaras do misturador-decantador, razão de fases entre as soluções orgânica e aquosa. Variando-se esses parâmetros, determinou-se a eficiência do extrator com 16 estágios, tipo POLLUX, modelo fabricado no IPEN/CNEN - S. Paulo.

## II. PARTE EXPERIMENTAL

Desenvolveu-se a parte experimental com os seguintes elementos :

### II.1. Misturador-decantador (Figura 1)

Características:

Material de Construção - plexiglass

Número de estágios - 16

Volume total do MD - 474,40 mL

Volume da câmara de decantação - 20,6 mL

Volume da câmara de mistura - 9,05 mL

Volume útil da câmara de mistura - 7,4mL

Conjunto de agitadores em aço inoxidável com motor 24V, rotação até 3000 rpm.

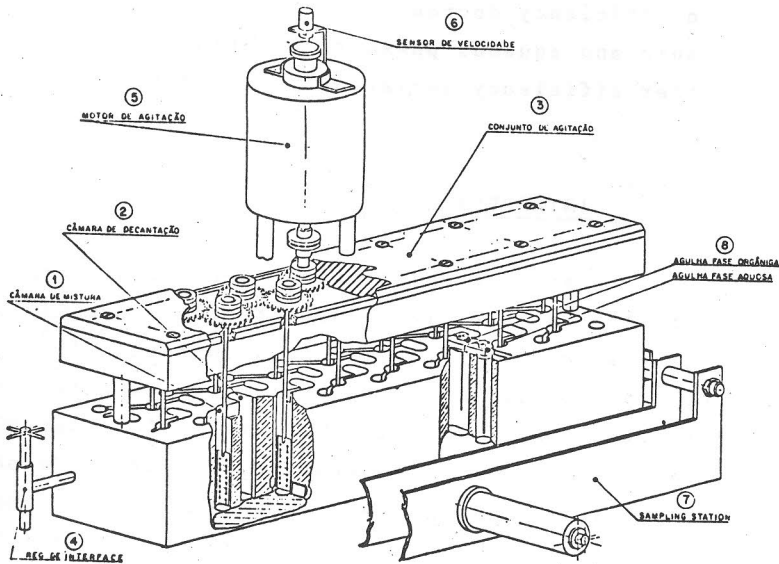


FIG.1 - MISTURADOR-DEcantADOR TIPO POLLUX

## II.2. Variáveis do método

### II.2.1. Razão das fases

Fase Orgânica = FO

Fase Aquosa = FA

Toda a sequência de estudos foi programada para :

$$\frac{FO}{FA} = \frac{1}{1}, \frac{FO}{FA} = \frac{5}{1}, \frac{FO}{FA} = \frac{20}{1}$$

### II.2.2. Tempo de residência na câmara de mistura.

$$\sigma_r = \frac{V_m}{\sum \text{fluxos}}, \text{ onde}$$

$\sigma_r$  = Tempo de residência do misturador

$V_m$  = 7,4 mL (volume experimental da câmara de mistura)

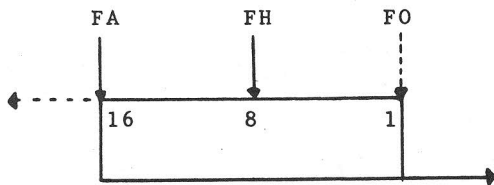
$\sum \text{fluxos}$  = fluxo FO + fluxo FA

## II.3. Experimentos realizados

Foram desenvolvidos os experimentos abaixo relacionados :

Exp. nº	Razão das fases FO/FA	$\sigma_r$ s.	Fluxo total mL/h	FO mL/h	FA e FH mL/h
01	1/1	148	180	90	90 (FA)
02	1/1	98	270	135	135 (FA)
03	1/1	41	648	324	324 (FA)
04	1/1	33	810	405	405 (FA)
05	1/1	16	1620	810	810 (FA)
06	1/1	148	180	90	90 (FA)
07	5/1	55	480	400	60 (FH) e 20 (FA)
08	5/1	27	960	800	120 (FH) e 40 (FA)
09	20/1	63	420	400	20 (FA)
10	20/1	31	840	800	40 (FA)

O esquema de alimentação (\*) de FO, FA e FH segue abaixo :



(\*) nos experimentos nº 7, 8, 9 e 10, a fase aquosa carregada foi alimentada pela câmara 8 (FH) e, pela câmara 16, alimentou-se  $\text{HNO}_3$  0,1M.

#### II.4. Condições de operação do misturador-decantador.

##### II.4.1. FO

Solvente TBP e diluente dodecano na seguinte proporção : TBP/dodecano 30%, v/v.

##### II.4.2. FA e FH

Solução de  $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$  em  $\text{HNO}_3$ , com concentração de 106 g de urânio por litro, acidez 0,4M para experiências 1,2,3,4 e 5; 240 g de urânio/L, acidez 0,1M (FH) e  $\text{HNO}_3$  0,1M (FA) nas experiências 6,7,8,9 e 10.

##### II.4.3. Temperatura

A temperatura de operação foi considerada a mesma da solução de urânio, sem termostatização.

##### II.4.4. Calibração dos fluxos

Os fluxos de FA, FH,  $\text{HNO}_3$  0,4M e  $\text{HNO}_3$  0,1M foram calibrados, para cada experiência, com bureta de medição.

#### II.4.5. Velocidade de agitação.

Variável, conforme o fluxo de alimentação empregado, de 1000 a 1900 rpm.

#### II.4.6. Tempo de equilíbrio.

Variável, 15 a 21 horas, conforme o experimento.

#### II.4.7. Tempo de pré-equilíbrio.

O pré-equilíbrio foi estabelecido para cada experimento, utilizando-se  $\text{HNO}_3$  0,4M e TBP/dodecano a 30%, com a finalidade de se obter uma interface estável, antes de iniciar a alimentação com a fase aquosa. Este tempo variou de 2 a 3 horas.

#### II.4.8. Amostragem durante a extração.

As amostras da fase orgânica de uma câmara de decantação e/ou amostras da fase orgânica de saída do misturador foram coletadas em diversos intervalos de tempo. Determinou-se a concentração de urânio por potenciometria, espectrofotometria e/ou fluorescência de raio-X<sup>(4,5)</sup>. A acidez das amostras também foi determinada. Estas análises serviram para acompanhar o comportamento da extração, sob diversas condições, até o equilíbrio.

#### II.4.9. Perfil de distribuição de urânio.

A resposta do ensaio foi obtida por meio do perfil de distribuição do urânio na fase aquosa e na fase orgânica, nos 16 estágios do MD. Alcançado o "steady-state", alíquotas de 5 mL foram retiradas de todas as câmaras de decantação dos 16 estágios. Inicialmente, retiraram-se amostras orgânicas na sequência da menor para a maior concentração, seguindo o mesmo procedimento para as amostras das fases aquosas. Determinaram-se a concentração de urânio e a acidez livre.

#### II.4.10. Ajuste da eficiência.

Os dados experimentais para a obtenção da eficiência do MD foram ajustados segundo o programa URAPEX, implantado no Computador IBM 370/55.

#### II.5. Respostas dos experimentos.

A resposta é dada por :

##### II.5.1. Constatação do equilíbrio hidrodinâmico.

É a formação da interface perfeita.

##### II.5.2. Perfil de distribuição de urânio.

A concentração de urânio e a acidez livre das amostras das câmaras de decantação dos 16 estágios, após alcançar o "steady state", permitem avaliar a eficiência do misturador.

##### II.5.3. Ajuste dos perfis experimentais com os perfis teóricos.

Esse ajuste dos dados, para obtenção da eficiência do MD, foi feito por meio do programa URAPEX. Os dados teóricos foram obtidos da seguinte maneira :

###### II.5.3.1.

Considerando um misturador de 16 estágios, alimentado em 2 posições : estágio 1 para FO e estágio 16 para FA, nos casos de experiências com razão de fase FO/FA = 1.

###### II.5.3.2.

Considerando 2 misturadores : um primeiro misturador de 8 estágios com a FH sendo alimentada no estágio 8 e a FO no estágio 16; um segundo misturador de 8 estágios, com FO carregada entrando no estágio 8 com fluxo igual a da FO inicial, e, a FA sem urânio entrando no estágio 16.

Neste caso, o primeiro misturador executa a extração e o segundo executa a lavagem. Este procedimento foi adotado para as experiências com razão de fase  $FO/FA = \frac{5}{1}$  e  $FO/FA = \frac{20}{1}$ .

### III. RESULTADOS

Os perfis de concentração de urânio e de acidez livre, ambos da fase orgânica e da fase aquosa das câmaras de decantação dos 16 estágios do MD, estão representados em figuras (Figuras 2,3,4,5,6,7,8,9). A representação gráfica também reproduz perfis teóricos de concentração de urânio e acidez ajustados no computador, pelo programa URAPEX, com a eficiência do MD para cada caso experimental, considerando-se sempre as eventuais alterações na concentração de  $HNO_3$ , concentração de urânio, concentração de TBP/dodecano e mudanças de temperatura.

Na Figura 2, que representa o experimento nº1 com o tempo de residência  $\sigma_r = 148$  segundos e fluxo = 180 mL/h, a eficiência teórica coincide com a experimental (eficiência de 90%).

Na Figura 3, experiência com  $\sigma_r = 98$  segundos e fluxo = 270 mL/h, a eficiência se reduziu para 70%.

A Figura 4 representa o experimento com  $\sigma_r = 41$  segundos e fluxo = 648 mL/h. A eficiência nessa caso reduziu-se para 30%. Essa mesma eficiência é observada na Figura 5 onde o  $\sigma_r$  foi de 33 segundos.

Com o tempo de residência ( $\sigma_r$ ) de 16 segundos, fluxo  $FO = FA = 810$  mL/h, não se conseguiu estabilizar a interface em todas as velocidades de agitação estudadas. No intervalo de rotação do agitador de 1000 rpm a 1900 rpm, trabalhando com o nivelador de interface em todas as posições, constatou-se que : às baixas velocidades de agitação, a interface não se estabiliza; às altas velocidades de agitação, não se consegue separação de FO e FA, obtendo-se emulsão em todas as câmaras; o MD em estudo não oferece condições de operação com vazões de FO e FA  $> 1620$  mL/h.

No experimento nº6, razão de fases 1,  $\sigma_r = 148$  segundos, os perfis representados na Tabela I indicam o estado de "pinching", pela saturação do TBP/dodecano, fase orgânica, com o urânio em 14 estágios do MD.

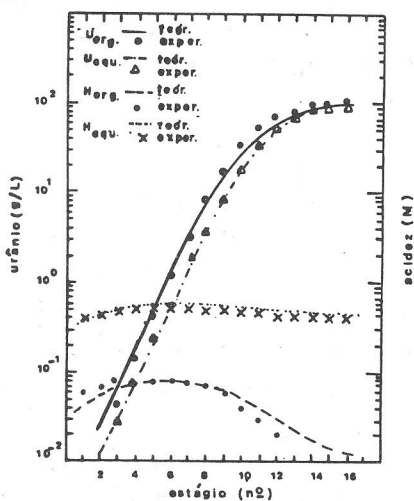


FIG. 2 - INFLUÊNCIA DA VARIAÇÃO DO TEMPO DE RESIDÊNCIA ( $\sigma_r = 148$  s.)

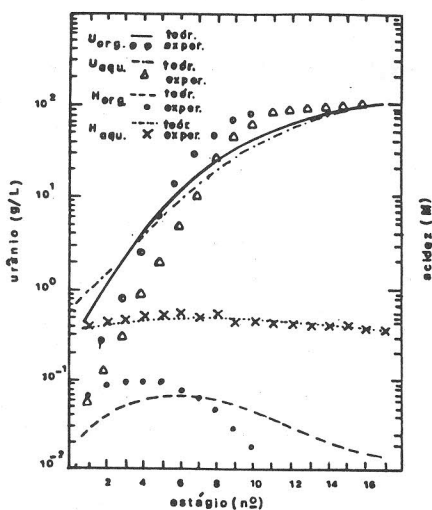


FIG. 3 - INFLUÊNCIA DA VARIAÇÃO DO TEMPO DE RESIDÊNCIA ( $\sigma_r = 98$  s.)

TABELA I - Perfil de Distribuição de Urânio e Acidez.

Câmara nº	AQUOSO		ORGÂNICO	
	[U] g/L	[H <sup>+</sup> ] MOLAR	[U] g/L	[H <sup>+</sup> ] MOLAR
1	118,50	0,09	57.27	<0.01
2	185,12	0,09	105.17	<0.01
3	228,40	0,09	115.67	<0.01
4	236,60	0,09	117.93	<0.01
6	239,16	0,09	116.67	<0.01
8	241,90	0,09	115.94	<0.01
10	242,97	0,09	117.11	<0.01
12	238,42	0,09	116.01	<0.01
14	239,17	0,09	117.61	<0.01
16	241,16	0,09	115.55	<0.01

Experimento nº 6, razão de fases 1,  $\sigma_r = 148$ s, FA = 240 g/L, acidez 0,1M.

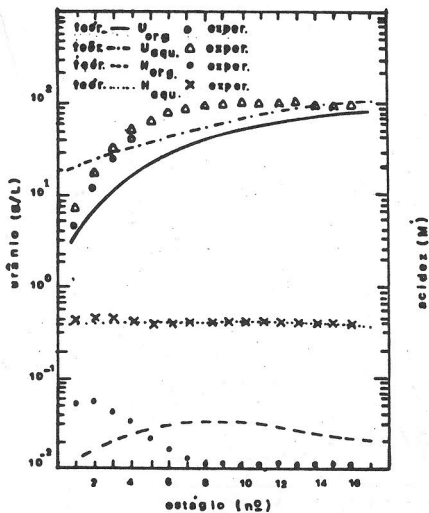


FIG. 4 - INFLUÊNCIA DA VARIAÇÃO DO TEMPO DE RESIDÊNCIA (  $\tau_r = 41$  s.)

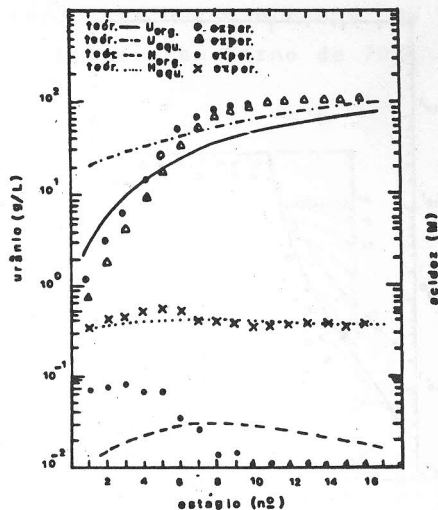


FIG. 5 - INFLUÊNCIA DA VARIAÇÃO DO TEMPO DE RESIDÊNCIA (  $\tau_r = 33$  s.)

Os perfís da Figura 6 representam as experiências nº 7 e 9, razão de fases 5 e 20 com tempos de residência 55 e 63 segundos, respectivamente. Nestas Figuras encontram-se curvas dos perfís teóricos de 100% de eficiência. A eficiência nestes experimentos foi superior a 100%. Na Figura 6, o perfil da acidez livre não está representado por ter valores  $<10^{-3}M$ .

As experiências 8 e 10, razão de fases 5 (1º misturador) e razão de fases 20 (2º misturador), com tempos de residência 31 segundos e 27 segundos, respectivamente, estão representados na Figura 7. Os perfís experimentais das fases orgânica e aquosa do 1º misturador (extração) e 2º misturador (lavagem) mostraram eficiência próxima a 90%.

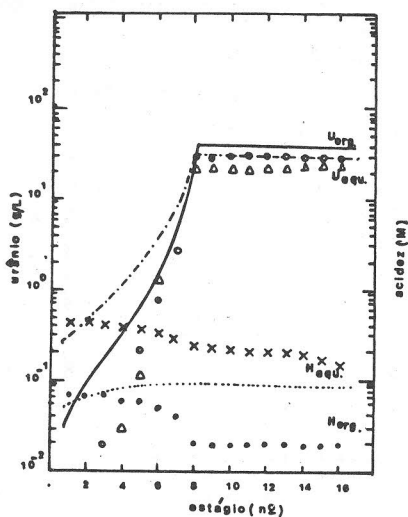


FIG. 6 - INFLUÊNCIA DA VARIAÇÃO DO TEMPO DE RESIDÊNCIA ( $\bar{t}_r = 55$  a. e 63 a.)

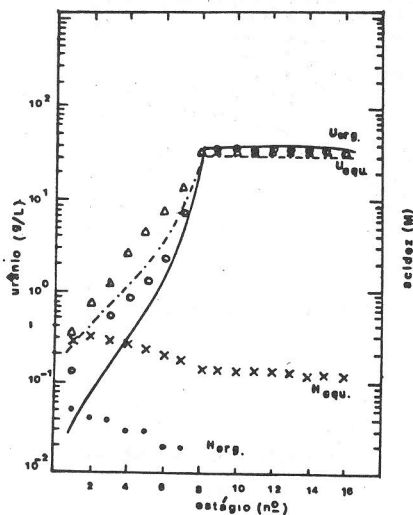


FIG. 7 - INFLUÊNCIA DA VARIAÇÃO DO TEMPO DE RESIDÊNCIA ( $\bar{t}_r = 27$  a. e 31 a.)

#### IV. CONCLUSÃO

As Figuras 8 e 9 representam perfis teóricos, obtidos pelo programa URAPEX, da concentração do urânio nas fases aquosa e orgânica, respectivamente, com a variação de eficiências entre 5% a 100%. Comparando-se os resultados experimentais com os teóricos das Figuras 8 e 9, tem-se que:

##### IV.1

O MD em estudo apresenta eficiência de 90% para tempos de residência elevados (148s), onde o fluxo é baixo (180 mL/h). Entretanto, essas condições não são as mais desejadas porque o tempo gasto numa extração seria demasiado longo.

##### IV.2

O MD em estudo apresenta uma eficiência

de 70%, com o tempo de residência 98s e o fluxo de 270 mL/h. Realmente, na prática, o MD deve ser operado com o tempo de residência de 1 a 2 minutos, com eficiência em torno de 70%.

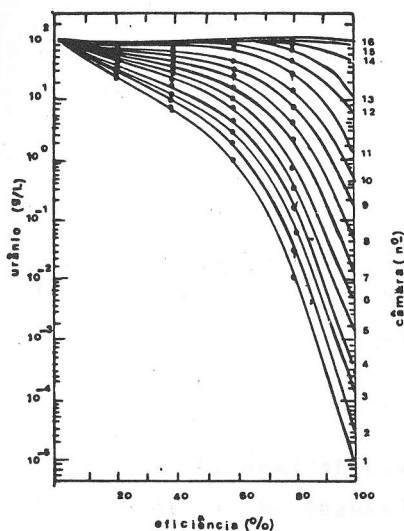


FIG. 8 - PERFIS TEÓRICOS DA CONCENTRAÇÃO DE URÂNIO, EM FASE AQUOSA, COM A VARIAÇÃO DA EFICIÊNCIA

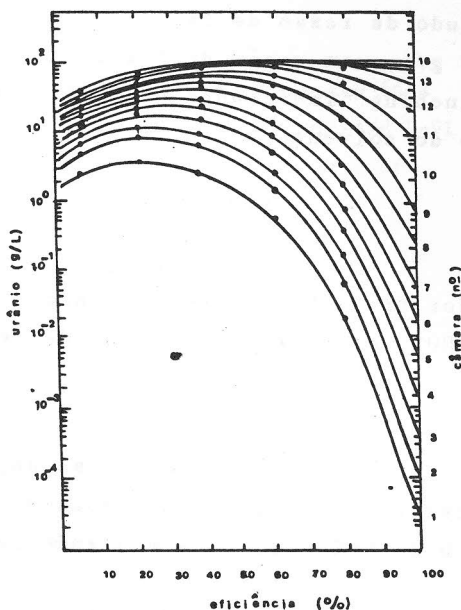


FIG. 9 - PERFIS TEÓRICOS DA CONCENTRAÇÃO DE URÂNIO, EM FASE ORGÂNICA, COM A VARIAÇÃO DA EFICIÊNCIA

#### IV.3

O MD em estudo apresenta a eficiência de 30% nos seguintes tempos de residência : 41s e 33s, cujos fluxos são 648 e 810 mL/h. Nessa situação, embora o tempo de operação seja reduzido, a eficiência é muito baixa.

#### IV.4

O MD em estudo não é operável com tempos de residência muito baixos. (16s, fluxo 1620 mL/h).

#### IV.5

Os perfis da concentração de urânio, teórico e experimental, não são coincidentes às baixas eficiências. Nestas condições, experimentalmente observa-se uma saturação

de urânio nos diversos estágios finais da fase orgânica, o que não condiz com os resultados teóricos (Figura 9).

#### IV.6.

Nas condições experimentais propostas para o estudo de razão de fases, a concentração alta de urânio 240 g/L, com razão de fases unitária, produz efeito "pinching" independentemente do fluxo da FO e FA, havendo saturação do solvente com o urânio.

#### IV.7

Nas condições de razão de fase 5, o 1º misturador trabalhando como extrator, a eficiência do MD é de 90% a 100%, dependendo do tempo de residência.

#### IV.8

Nas condições de razão de fase 20, o 2º misturador trabalhando em processo de lavagem, a eficiência variou de 90% a 100%, dependendo sempre do tempo de residência.

### REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- 1 - MCKIBBEN, J.M. . Chemistry of the Purex Process. Radiochimica Acta. 36, 3-15 (1984).
- 2 - SCHMIDER, H. et al. Activities in the development of the Purex process. Atomkernenergie Kerntechnik. 46,67-75 (1985).
- 3 - LONG, J.I.. Engineering for Nuclear Fuel Reprocessing (1967).
- 4 - COHEN, V.H., et alli. Determinação potenciométrica de urânio em soluções simuladas do processo Purex por acidimetria. XXIV Congresso Brasileiro de Química, 10 a 15 de outubro de 1983.
- 5 - ARAUJO, I.C. et alli. Separação de microquantidades de urânio de efluentes radioativos e sua determinação espectrofotométrica em DBM. XXVI Congresso Brasileiro de Química, 07 a 11 de outubro de 1985.

## CINÉTICA DE TROCA ISOTÓPICA DE URÂNIO

Kiyoe Umeda

Departamento de Química/IEN/CNEN, C.P. 2186, Rio de Janeiro.

### ABSTRACT

The rate of exchange of uranium isotopes was investigated in a mixed chloride acid solution system of natural U-IV and depleted U-VI at various catalyst (Fe-II) concentrations and at temperatures of 70°C, 80°C and 90°C.

The experimental results have shown that Fe-II accelerates the isotopic exchange reaction of uranium up to ca. 1.000 times.

### INTRODUÇÃO

O estudo de troca isotópica de urânio no sistema homogêneo e em meio clorídrico, teve início na década de 50, nos Estados Unidos. As velocidades de troca obtidas pelos autores<sup>(1,2)</sup> eram baixas ( $k_{\text{médio}} = 10^{-2} \text{M}^{-1} \text{min}^{-1}$ ), apesar da temperatura e acidez terem sido relativamente altas.

Somente na década de 70, no Japão<sup>(4,5,6)</sup>, com estudos intensivos dos catalisadores inorgânicos e orgânicos, os autores<sup>(4,5)</sup> conseguiram atingir uma velocidade de troca de cerca de 800 vezes maior, comparativamente aos resultados obtidos sem catalisadores, tornando-se, portanto, o processo químico de separação isotópica viável para possível aplicação industrial.

O efeito de velocidade de uma reação de troca isotópica pode ser medido pela constante de velocidade aparente ( $k$ ), que pode ser calculada pela equação de McKay<sup>(7,8)</sup>. Assim:

$$k = \frac{-\ln(1-F)}{(U-IV) + (U-VI)} \cdot \frac{1}{t} \quad (1.M^{-1}.min^{-1})$$

onde,

$F$  é a razão de troca isotópica, que pode ser definida pela relação:

$$F = (X_t - X_o)(X_\infty - X_o)^{-1}$$

sendo,

$X_t$  = fração molar isotópica de urânio no tempo  $t$ ;

$X_0$  = fração molar isotópica inicial do urânio ( $t = 0$ );

$X_{\infty}$  = fração molar isotópica de urânio no equilíbrio;

$t$  = tempo de contatação em minutos;

(U-IV) e (U-VI) = concentrações dos íons uranoso e uranila, respectivamente.

Na prática, mede-se o aumento da velocidade, calculando-se a relação  $k/k_0$ , sendo  $k$  a constante de velocidade aparente com catalisador e  $k_0$  sem catalisador.

Para desenvolver o presente trabalho, escolheu-se o catalisador cloreto ferroso, dada a sua eficiência comprovada nas literaturas (4,5,6) e pela facilidade de sua aquisição. Posteriormente, pretende-se associar alguns compostos orgânicos a este catalisador escolhido, para verificar o efeito sinérgico na velocidade de troca isotópica.

#### PARTE EXPERIMENTAL

Para avaliar a velocidade de troca, programou-se uma série de contatações com soluções de urânio-IV de composição isotópica natural ( $R = 0,0072$ ) e urânio-VI empobrecido ( $R = 0,00205$  e  $0,00338$ ) em meio clorídrico, em temperatura elevada, com e sem catalisador.

Os íons uranosos foram separados dos uranilas por troca iônica. A fração contendo íons uranosos de cada experimento foi analisada para determinação da composição isotópica expressa em fração molar isotópica ( $X$ ). A partir desses dados calculou-se  $k$  e  $k_0$ .

#### PROCEDIMENTO

Em cada experimento tomou-se cerca de 100 ml de solução de urânio contendo quantidade equimolecular de U-IV e U-VI e acidez 4 M em HCl. Fez-se a contatação em atmosfera de nitrogênio, nas seguintes condições:

- concentração de U = 0,1 M em U-IV e U-VI;
- tempo de contatação = 1 min.;
- velocidade de agitação = 85 rpm;

. temperatura = 90°C, 80°C e 70°C;

. concentração do catalisador = 0,1 a 1,5 M em Fe-II.

Os resultados experimentais encontram-se nas Tabelas 1, 2 e 3.

## RESULTADOS E DISCUSSÃO

Tabela 1. Série de experiências à temperatura de 90°C

Amostras	Fração Molar (X) ( $\times 10^2$ )	Razão Iso-tópica (R) ( $\times 10^2$ )	Concentração de Fe-II (M)
U Natural	0,719	0,725	-
U Empobr.	0,205	0,206	-
1	0,703	0,708	-
2	0,460	0,462	1,0
3	0,435	0,438	0,5
4	0,462	0,464	0,2
Equilíbrio	$X_\infty = 0,462$	$R_\infty = 0,465$	

Tabela 2. Resultados das experiências à temperatura de 80°C

Amostras	Fração Molar (X) ( $\times 10^2$ )	Razão Iso-tópica (R) ( $\times 10^2$ )	Concentração de Fe-II (M)
U Natural	0,723	0,728	-
U Empobr.	0,338	0,339	-
5	0,712	0,717	-
6	0,639	0,643	0,1
7	0,533	0,536	0,2
8	0,521	0,524	0,5
9	0,530	0,533	1,0
10	0,562	0,565	1,5
Equilíbrio	$X_\infty = 0,531$	$R_\infty = 0,534$	

Pelos resultados das Tabelas 1 e 2, pode-se observar, que à temperatura de 80°C e 90°C, tempo de contatação, 1 minuto, e concentração de catalisador acima de 0,2 molar em Fe-II, os sistemas praticamente entraram em equilíbrio; em consequência não foi possível calcular os valores de constante de velocidade aparente (k).

As mesmas séries de experiências foram repetidas nas mesmas condições, baixando-se a temperatura para 70°C. Os resultados experimentais e os valores de  $k_0$  e  $k$  calculados com a aplicação da equação de McKay (8), encontram-se na Tabela 3.

Tabela 3. Resultados das experiências à temperatura de 70°C

Amostras	Fração Molar (X) ( $\times 10^2$ )	Razão Isotópica ( $R$ ) ( $\times 10^2$ )	Concentração de Fe-II (M)	F ( $\times 10^3$ )	k ( $L \cdot M^{-1} \cdot \text{min}^{-1}$ )
U Natural	0,719	0,724	-	-	-
U Empobr.	0,338	0,339	-	-	-
11	0,718	0,723	-	1	$2 \cdot 10^{-2}$
12	0,621	0,625	0,1	530	$760 \cdot 10^{-2}$
13	0,650	0,654	0,2	380	$480 \cdot 10^{-2}$
14	0,567	0,570	0,5	812	$1670 \cdot 10^{-2}$
15	0,551	0,554	1,0	895	$2260 \cdot 10^{-2}$
16	0,549	0,552	1,5	890	$2210 \cdot 10^{-2}$

Equilíbrio  $X_\infty = 0,529$   $R_\infty = 0,532$

A experiência 11 da Tabela 3 corresponde à contatação sem catalisador; portanto a partir da fração molar isotópica e pela aplicação da equação McKay (8), calculou-se o  $k_0$  ( $k_0 = 2 \cdot 10^{-2} (L) (M)^{-1} (\text{min})^{-1}$ ).

As experiências de 12 a 16 correspondem às contatações com concentração variável de catalisador de 0,1 a 1,5 molar em Fe-II.

Pelos resultados das constantes de velocidade aparente  $k = 22(1) (M)^{-1} (\text{min})^{-1}$  obtidos nas experiências 15 e 16, com catalisador a concentração de 1,0 e 1,5 M, respectivamente, podemos verificar que o catalisador pode aumentar cerca de 1000 vezes a velocidade da reação de troca isotópica demonstrando assim, que os resultados estão de acordo com as literaturas (4,5).

Esses resultados, também, serviram para definir a concentração do catalisador a ser usado nas colunas de cromatografia de troca isotópica.

#### AGRADECIMENTO

Nossos sinceros agradecimentos ao Dr. Afonso R. Marques pelas

valiosas sugestões.

#### REFERÊNCIAS

1. RONA, E., "Exchange Reactions of Uranium Ions in Solution", J. Am. Chem. Soc., 72, 4339-43, 1950.
2. WOODARD, R.W., "Isotope Exchange Process" US Patent 2, 727, 587, Apr. 2, 1957.
3. KAKIHANA, H. et al., "Acceleration of the Uranium IV-VI Electron Exchange Reaction by Hydrochloric Acid", Proc. Symp. Exchange Reaction, p. 121-32, 1965, IAEA.
4. SEKO, M. et al., "Separation of Uranium Isotopes by Accelerated Isotope Exchange Reactions", Canadian Patent nº 1062882, 1977.
5. MIYAKE, T. et al., "Improvement in Chromatographic Separation of Uranium Isotopes", Australian Patent 506772, 1977.
6. TOMIYASU, H. et al., "The Catalytic Action of Fe-III in the U-IV - U-VI Electron Exchange Reaction", Bulletin of the Chemical Soc. of Japan, 48 (1) 15-7, 1975.
7. MYERS, T., PRESTWOD, R.J., "Isotopic Exchange Reactions in Radioactivity Applied to Chemistry", Edited A.C. Wahl and N.A. Bonneau, John Wiley & Sons Inc., N.Y., 1951.
8. MCKAY, H.A., Nature, 142, 997, 1938.