

복합재료 섬유흡착제를 이용한 해수로부터 우라늄 분리에 관한 연구(2)(흡-탈착 특성)

황택성 · 박정기* · 홍성권** · 신현택*** · 노영창****

충남대학교 화학공학과

*한국과학기술원 화학공학과

**충남대학교 고분자공학과

***제일모직 직물사업본부

****한국원자력연구소 방사선가공기술

Studies on the Separation of Uranium from Seawater by Composite Fiber Adsorbents(2)(Characterization of Adsorption-Desorption)

Taek S. Hwang, Jung K. Park*, Sung K. Hong**

and Hyun T. Shin***, Young C. Nho****

Dept. of Chemical Eng., College of Engineering,

**Dept. of chemical Eng., KAIST, Daeduk Science Town, Taejeon, 305-701, Korea*

***Dept. of Polymer Eng., College of Engineering,*

Chungnam National University, Taejeon 305-764, Korea

****Dept. of Interior, Textile Division, Cheil Industries Inc., Seoul 135-010, Korea*

*****Radiation Processing Project, Korea Atomic Energy Research Institute,*

P.O. Box 105, Yuseong, Taejeon, 305-606, Korea

요 약 아미드옥심기와 복합재료 섬유흡착제를 제조하였고 해수로부터 우라늄이온의 분리 특성을 조사하였다. 흡착량은 흡착시간이 증가함에 따라 증가하였고 AN : TEGMA : DVB의 몰비가 1 : 0.1 : 0.003인 수지가 pH 8 부근에서 최대 흡착능을 나타내었다. 또한 흡착량은 CFA에 첨가한 흡착제의 양이 증가함에 따라 증가하였으며 1시간 까지 선형적으로 증가하였고, 25°C에서 최대흡착량을 나타내었다. 한편 Ca, Mg이온은 흡-탈착 cycle이 반복될수록 증가하였으며 그양은 각각 0.3, 0.9mmole/g-Ads로 우라늄 이온의 그것보다 매우 낮았다. 흡착된 우라늄 이온의 탈착은 흡착제의 종류에 관계없이 약 30분 이내에 거의 100% 탈착되었다.

Abstract The composite fiber adsorbents containing amidoxime group were prepared and separation properties of uranium ion from seawater were investigated. The amount of uranium adsorption was increased with an increase in adsorption time. When the mole ratio of monomer and comonomer, such as acrylonitrile (AN), tetraethyleneglycol dimethacrylate (TEGMA), and divinylbenzene (DVB), were 1:0.1:0.003, this resin showed the maximum adsorption ability for uranium at a level of pH 8. The amount of uranium adsorption was also increased linearly to one hour with an increase in the content of adsorbent which was added in the composite fiber adsorbents(CFA). The maximum adsorption for uranium of CFA showed at 25°C. Hence, the adsorption ability of CFA for calcium and magnesium ions were increased gradually by the recycling of adsorption and disorption, the adsorption content of their ion were 0.3, 0.9mmole/g-adsorbents, respectively. It also showed that the adsorption contents of Ca and Mg ions were much lower than them of uranium. The desorption of uranium on the CFA was carried out about 100% within 30min, and the desorption rate of various CFA were equalled.

1. 서 론

원자력 발전의 주원료인 우라늄은 해수중에 약 3.3g/l의 $[UO_2(CO_3)_3]^{-4}$ 착이온 형태로 용존되어 있으며 전체 해수중에 약 45억톤 정도 존재한다^{1~5)}. 이들 우라늄의 분리 방법으로는 공침법⁶⁾, 비중차를 이용한 부상법⁷⁾, 용매추출법⁸⁾, 미생물을 이용한 생물농축법⁹⁾ 및 이온교환흡착법^{10,11)}이 있다.

이중 우라늄 이온을 가장 잘 선택적으로 분리할 수 있는 방법이 아마이드옥심기가 도입된 흡착제를 이용한 흡착법이다. 이들 흡착제는 해수중의 우라늄에 대한 높은 선택성과 흡착속도를 갖고 물리적 강도, 화학적 안정성 및 내구성이 우수해야 하며, 가격이 저렴한 용리제로서 쉽게 용리되고, 다른 금속이온과 분리, 용리가 가능해야 하며, 값이 저렴하고 대량생산과 안정된 공급이 가능해야 한다. 또한 흡착 장치를 결정하는 주요 인자로서 흡착제의 형상이 변형가능하고 흡착제 체적당의 흡착성능, 즉 흡착속도 및 흡착용량이 우수해야 한다. Shenk^{12,13)} 등은 이러한 특성을 지닌 흡착제로 acrylonitrile-co-divinylbenzene 공중합체를 합성하여 해수중의 우라늄에 대한 흡착능 실험을 한 결과 hydroxamic acid, carboxylic acid 및 amidoxime과 같은 관능기만이 우라늄 이온에 대한 흡착능이 있다고 보고하였다.

그러나 이들 비드형 흡착제는 단위체적당 흡착능이 떨어지고, 칼럼을 이용한 공정의 복잡성과 형상의 변형이 어려워 경제성을 고려할때 그 한계성이 있다.

본 연구자들은 이미 보고한 바와같이 이러한 단점을 보완한 섬유계 흡착제를 제조하고 이들의 물성을 규명한바 있다¹⁴⁾.

따라서 본보에서는 전보¹⁴⁾에서 제조한 기능성 섬유 복합재료 흡착제의 해수중 우라늄 및 중금속에 대한 흡착 및 탈착 특성을 pH, 온도, 시간 및 흡착제의 농도변화에 따라 측정하였다.

2. 실험 방법

실험재료

모노머인 acrylonitrile(이하 AN이라 칭함), divinylbenzene(이하 DVB라 칭함)은 Merck사

Table 1. Composition of Artificial Seawater

Salt Name	Molecular Weight	Solubility(g/dm ³)
NaCl	58.44	23.926
Na ₂ SO ₄	142.02	4.008
KCl	74.55	0.738
NaHCO ₃	84.01	0.196
MgCl ₂ · 6H ₂ O	203.33	10.831
CaCl ₂ · 2H ₂ O	147.02	1.519

Table 2. Testing Conditions of Composite Fiber Adsorbents by Instron

Parameter	Parameter Value
Full Scale	25 g
Load Cell	500 g
Chart Speed	20mm/min.
Cross Head Speed	20mm/min.

제품으로 순도는 각각 99.9%, 50%의 특급시약을 사용하였으며, tetraethyleneglycoldimethacrylate(이하 TEGMA라 칭함)는 순도 99.9%의 Merck사제였다.

한편 matrix인 polypropylene(PP)은 (주)럭키 (MW=100,000, 밀도(D)=0.959, 인장강도 300kg/m²) 제품을 사용하였다. 또한 hydroxylamine · hydrochloride(NH₂OH · HCl)(이하 HA라 칭함)는 일본 Wako사의 제품으로 순도 99%였으며, uranyl nitrate는 영국 BDG화학(주)의 6수화물 일급시약을 정제없이 탈이온수에 용해하여 사용하였으며 기타 시약은 상용의 정제 방법에 따라 정제하거나 고순도의 시약을 정제없이 사용하였다.

흡착시험

Table 1과 같이 제조한 인공해수로부터 우라늄 및 중금속의 흡착은 1N NaOH 용액내에서 12시간 동안 처리한 흡착제(CFA)를 0.1N HCl로 중화하고 물로 씻은 후 3×4cm(No.14) 스텐레스망에 시료를 넣은 용기에 인공해수 5L를 넣고 교반하면서 pH, 온도, 시간을 변화 시키면서 회분식 공정 흡착시험하였다.

탈착시험

흡착시험과 동일한 조건에서 우라늄을 흡착시킨 시료를 1N H₂SO₄ 수용액 1L에 넣고 교반하면서 시간과 온도를 변수로하여 흡착제의 탈착시험을 하였다.

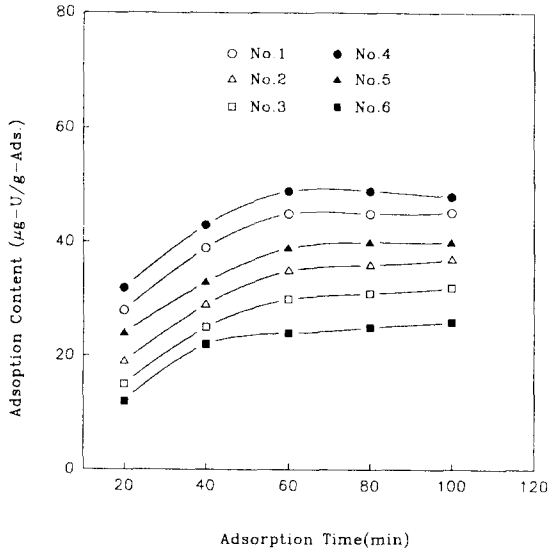


Fig. 1. Effect of Adsorption Time on Adsorption of Uranium : Seawater(250µg of Uranium was added)

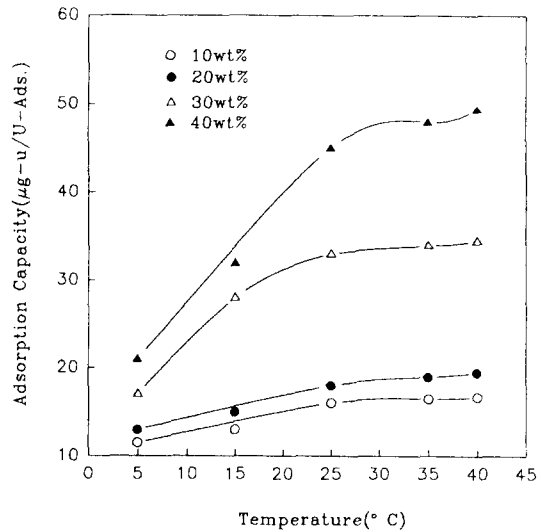


Fig. 2. Effect of temperature on the Uranium Adsorption Capacity for 20 days by CFA.

내구성시험

흡착제(CFA)의 우라늄 흡-탈착 실험시 내구성을 알아보기 위하여 일정량의 흡착소재를 인공해수 중에서 흡착-탈착시험을 10회 이상 반복 실험한 후 흡착재의 강도를 Table 2와 같은 조건에서 행하였다.

ICP-AES

Jobin-Yvon ICP-AES로 wave length 385.95nm, slit width 35, pump flow rate 1ml/min로 하여 우라늄 및 중금속의 흡-탈착량을 분석하였다.

3.결과 및 고찰

수지의 우라늄 흡착

전보¹⁴⁾에서 합성한 AN-DVB-TEGMA 공중합체의 우라늄 및 중금속에 대한 흡착특성을 시험한 결과가 Fig. 1에 나타나 있다.

Fig. 1은 수지 5g을 직경 1cm 칼럼에 넣고 해수의 유속을 20ml/min.으로하고 온도를 25°C로 유지하면서 흡착 실험을 행한 결과로 흡착량은 시간이 증가함에 따라 증가하였으며, AN : TEGMA : DVB의 조성비가 1 : 0.1 : 0.003(No.4)인 수지가 최대흡착량을 나타내었다.

한편 TEGMA를 가교제로하여 합성한 수지의 우라늄 흡착량은 TEGMA의 함량이 증가함에 따라 우라늄 흡착량이 감소하였는데 이

는 가교도가 증가하면 수지내의 공극부피(pore volume)를 변화시켜 해수와 접촉시 우라늄의 확산에 영향을 주기때문으로 생각되었다. 따라서 이러한 문제점 해결을 위하여 DVB와 TEGMA같은 복합 가교제를 사용해야 하며 복합가교제를 사용하여 합성한 수지는 적당한 기계적 강도를 유지하면서 비표면적을 증대시켜 우라늄 확산을 용이하게 하여 흡착량을 증가시킬 수 있다.

Sugasaki¹⁵⁾ 등은 가교도가 우라늄 흡착에 미치는 영향을 관찰하기 위하여 DVB를 가교제로하여 AN 모노머와 가교시켜 공중합체를 합성한 후 가교도에 따른 우라늄의 흡착량 변화를 조사한 결과 가교도가 증가할수록 공극부피(pore volume)가 작아져 해수와 수지내 관능기와의 접촉이 어려워 표면흡착만 이루어지므로 흡착성능이 낮아진다고 하였는데 이들의 연구결과처럼 본 연구결과에서도 가교도가 증가하면 흡착량이 낮아지는 것으로 보아 가교도가 우라늄 흡착에 주요한 영향을 미친다는 것을 알 수 있었다.

CFA의 우라늄 흡착

조성비가 1 : 0.1 : 0.003(No.4)인 공중합체를 첨가한 PP수지를 전보¹⁴⁾와 같이 용융방사하여 섬유 복합재료 흡착제(CFA)를 제조하였으며 이들의 해수로부터 우라늄 이온의 흡착

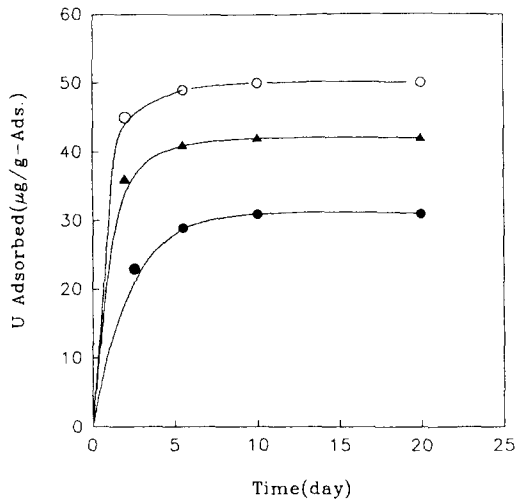


Fig. 3. Effect of Temperature of Seawater on Adsorption of Uranium in the Batch Process (●): 15°C, (▲): 25°C, (○): 35°C

특성을 흡착온도 및 흡착시간등을 변수로하여 조사하였다.

Fig. 2는 pH 8인 반응계에서 온도의 변화에 따른 CFA의 흡착성능을 시험한 결과이다.

Fig.2에서 보는바와 같이 5-40°C 온도 범위에서 회분식 공정에 의해 20일 동안 흡착실험을 한 결과 흡착량은 온도가 증가함에 따라 증가하였으며 그 증가폭은 흡착제의 함량이 10wt%, 20wt%인 경우 거의 차이가 없었으며 30wt%에서는 25°C 까지 증가하고 그 이상의 온도에서는 약간의 차이는 있으나 거의 일정하였다. 또한 흡착제의 함량이 40wt%인 CFA의 경우 35°C가 최대 흡착량을 나타내었다. 이렇게 CFA의 우라늄에 대한 흡착량의 변화가 온도가 상승함에 따라 증가하는 것은 흡착제 내의 amidoxime기가 우라늄 이온을 흡착할 때 관능기가 활성화 되어 우라늄 이온과의 반응성이 증가하기 때문으로 사료되었으며 본 연구에서의 반응온도는 35-40°C 범위가 최적임을 확인하였다.

한편 Fig. 3은 흡착제의 함량이 40wt%인 CFA를 이용하여 온도를 변화시키면서 20일 동안 흡착실험을 한 후 흡착시간과 흡착량과의 관계를 plot한 것이다.

Fig. 3에서 보는바와 같이 온도가 증가함에 따라 흡착량은 증가하였으며 CFA의 흡착용량은 약 5일 까지는 거의 선형적으로 증가하

였고 그 증가폭은 온도가 상승함에 따라 큰 경향을 나타내었다. 이렇게 온도가 상승함에 따라 흡착량이 증가하는 것은 흡착제 중의 amidoxime기와 우라늄 이온간의 착물형성기 분자와 이온의 반응성이 증가되기 때문으로 사료되었다. 또한 5일 후의 흡착량은 약간의 차이는 있으나 모든 온도범위 내에서 일정한 경향을 나타내었는데 이는 흡착제가 일정시간 동안 반응하여 착물을 형성하고 평형에 도달하기 때문으로 사료되었다. 따라서 본 연구에서 제조한 CFA 흡착제를 이용한 우라늄의 효과적인 분리를 위해서는 Schwochau¹⁾의 실험결과에서 처럼 해수중 우라늄 회수를 위해서는 초기의 흡착률이 매우 높기 때문에 흡착-탈착 주기를 짧은시간 간격으로 해야 효과적이라는 것을 알 수 있었다.

이온교환형 흡착제는 해수로 부터 우라늄분리시 흡착 탈착을 여러번 반복하면 산이나 알칼리에 의해 amidoxime기가 점점 가수분해되어 친수성인 카르복실기로 변하여 우라늄 흡착능은 감소되고 오히려 해수중에 고농도로 존재하는 Ca, Mg 이온에 대한 흡착능이 증가할 것으로 예상된다. 따라서 본연구에서도 이들의 특성을 알아보기 위하여 일정조건하에서 흡착 탈착을 반복한 후 CFA의 Ca, Mg이온에 대한 흡착량을 조사하였는데 그 결과가 Fig. 4, 5에 나타나 있다.

Fig. 4는 흡착제의 첨가량을 달리하여 제조한 CFA의 Ca이온에 대한 흡착량을 알아보기 위하여 25°C에서 pH를 해수와 동일한 8.2로 하고 흡착 탈착을 10회 반복실험한 후 ICP-AES 분석한 결과이다. Fig. 4에서 보는바와 같이 Ca 이온의 흡착량은 CFA에 첨가한 흡착제의 양이 증가함에 따라 증가하였고 흡착 탈착이 4회반복시까지는 성형적으로 증가하였고 그 이후에서는 거의 일정한 흡착량을 나타내었는데 이는 흡착 탈착 횟수가 반복될수록 앞에서 설명한 바와 같이 amidoxime기가 가수분해 되어 COOH기와 같은 친수성기가 생성되기 때문으로 사료되었다.

Fig. 5는 CFA의 Mg 이온에 대한 흡착량의 관계를 plot한 것이다. Fig. 5에서 보는바와 같이 CFA의 Mg이온의 흡착량은 Ca 이온의 흡착과 마찬가지로 흡착 탈착 횟수가 증가할수록 증가하였고 특히 흡착제가 40wt% 첨가

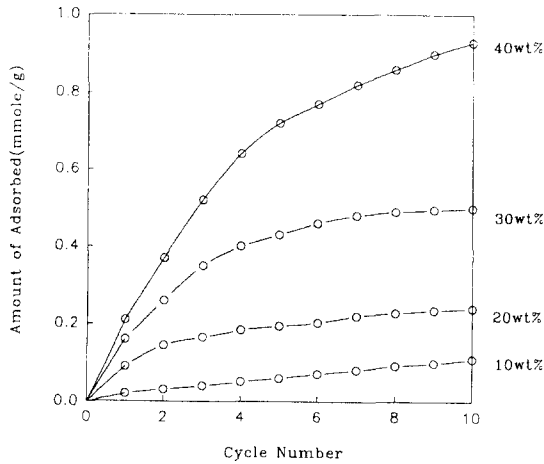


Fig. 4. Plot of Amount of Adsorbed for Ca ions as a Function of Adsorption Cycle Number with Various Mole Ratios of CFA.

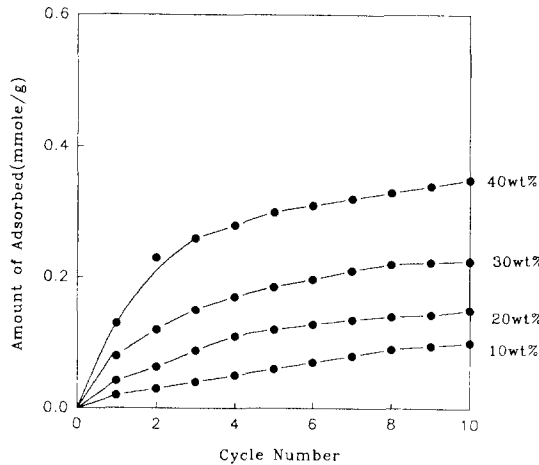


Fig. 5. Plot of Amount of Adsorbed for Mg ions as a Function of Adsorption Cycle Number with Various Mole Ratios of CFA.

된 CFA의 경우 그 증가폭은 크게 나타났는데 이는 첨가된 흡착제내의 아미드옥심기가 다른 흡착제의 경우보다 농도가 높아 가수분해가 많이 일어나 카르복실기의 생성량이 많아졌기 때문으로 사료되었다. 또한 Mg의 흡착이 Ca이온의 흡착량에 비해 흡·탈착 횟수가 반복될수록 높게 나타났는데 이는 Mg이온이 Ca이온에 비해 동일조건하에서 COOH기와 반응성이 높기 때문이며 이들 각각의 최대 흡착량은 10회 반복시 각각 0.3, 0.9mmole/g-ads-orbents로 나타났다. 그러나 이들 흡착

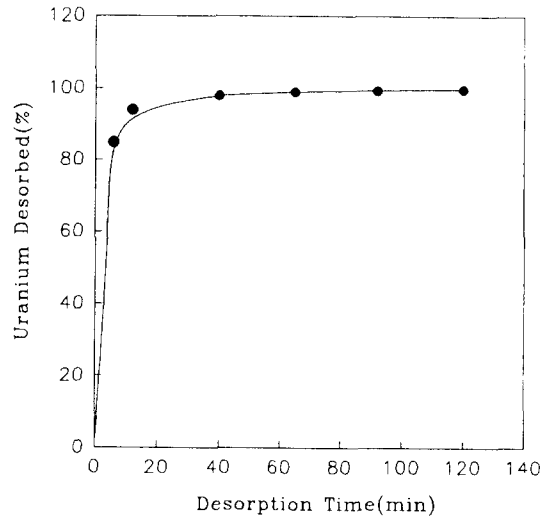


Fig. 6. Plot of Uranium Desorbed as a Function of Desorption Time.

량은 우라늄 이온의 그것보다 매우 낮아 CFA의 우라늄 이온에 대한 선택적 흡착에는 영향이 없는 것으로 사료되었다.

우라늄의 탈착

CFA에 흡착된 우라늄 이온을 흡착제의 손상없이 흡착제로부터 탈착시키기 위하여 흡착과 동일한 조건에서 CFA에 우라늄 이온을 흡착시킨후 1N H₂SO₄ 용액내에서 회분식 방법에 의해 시간에 따라 상등액의 채취하여 ICP-AES 분석방법에 의해 우라늄의 탈착량을 조사한 결과가 Fig. 6에 나타나 있다.

Fig. 6에서 보는바와 같이 CFA로부터 우라늄의 탈착은 CFA에 첨가된 흡착제의 양에 관계없이 약 30분 이내에 모두 탈착되었으며 탈착량은 약 100%로 모두 탈착되었는데 이렇게 흡착제의 양에 관계없이 탈착량이 거의 일정한 것은 섬유 흡착제 내의 우라늄의 선택 관능기가 아미드옥심기로 동일하고 형성된 착물의 형태가 모두 동일하기 때문이며 황산용액에서 형성된 우라늄 착이온의 분해속도가 동일하기 때문으로 사료되었다.

내구성 시험

해수는 조석간만의 차가 크고 각종 변화가 심하여 해수로부터 우라늄을 흡착분리하기 위한 흡착제는 이러한 조건의 변화에도 내구성 즉, 물성의 변화가 없어야 하고 특히 흡착 탈착을 반복할 때 우라늄 이온에 대한 선택적

Table 3. Mechanical Properties of the 40wt% Adsorbent containing CFA before and after Elution for Uranium

Cycle No	Yield Point(Kg/cmf)		Breaking Point(Kg/cmf)		Elongation(%)	
	Before	After	Before	After	Before	After
1	0.13	0.13	0.22	0.23	233	230
2	0.13	0.13	0.23	0.22	230	225
3	0.13	0.13	0.22	0.22	225	228
4	0.13	0.12	0.22	0.23	238	230
5	0.12	0.12	0.23	0.21	230	227
6	0.12	0.12	0.21	0.19	227	228
7	0.12	0.11	0.19	0.21	228	224
8	0.11	0.10	0.21	0.20	224	225
9	0.10	0.10	0.20	0.18	225	227
10	0.10	0.10	0.18	0.19	227	225

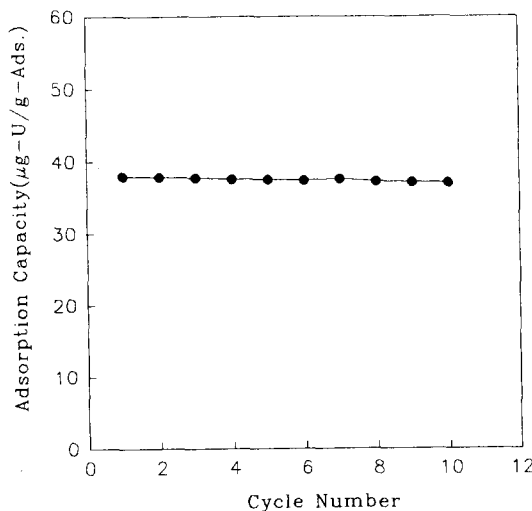


Fig. 7. Plot of Adsorption Capacity for Uranium as a Function of cycle Number in pH 8 Solution at 35°C. (40wt% Resin Contained CFA)

흡착능의 저하가 없어야 한다. 따라서 본 연구에서도 사용한 CFA의 우라늄 이온에 대한 흡착 탈착을 반복할 때 물성의 변화와 우라늄 이온에 대한 흡착량의 변화를 측정된 결과가 Table 3 및 Fig. 7에 나타나 있다.

Table 3은 흡착제가 40wt% 첨가된 CFA의 우라늄 이온의 흡착 탈착을 반복하면서 흡착제의 흡착 탈착 전후의 강도 변화를 전보⁽¹⁴⁾의 방법과 동일한 조건으로 측정된 결과이다.

CFA의 항복점, 파단강도 및 연신률은 해수로부터 우라늄이온의 흡탈착 실험이 반복되어도 흡착 탈착전후에서의 값의 변화가 약간 낮

아질 뿐 거의 변화가 없는 것을 알 수 있었다. 이렇게 흡착 탈착이 반복됨에도 불구하고 강도의 변화가 적은 것은 CFA 제조시 사용한 polypropylene(PP)이 해수에 안정할 뿐만 아니라 탈착액인 황산에 대해서도 안정하기 때문에 값의 변화가 없는 것으로 사료되었다.

한편 Fig. 7은 해수로부터 우라늄을 분리하기 위한 반복적인 흡착탈착 실험시 CFA의 우라늄 이온에 대한 흡착성능의 변화를 알아보기 위하여 동일조건하에서 흡착 탈착을 10회 반복한 후 각 횟수마다 우라늄 흡착량을 ICP-AES 분석한 결과이다.

Fig. 7에서 보는바와 같이 CFA의 우라늄 이온의 흡착성능은 흡착 탈착 회수가 반복됨에 따라 8회 까지는 거의 일정하였고 그이후에서 약간 감소할뿐 거의 일정한 흡착성능을 나타내었다. 이렇게 8회 이후에 우라늄의 흡착성능이 낮아지는 것은 앞에서 설명한 바와 같이 흡착 탈착이 반복될 때 흡착제 내의 아미드옥심기가 가수분해 되어 친수성기인 COOH 등으로 전환되어 Ca, Mg와 같은 다른 이온을 흡착하기 때문으로 사료되었는데 이들의 양은 우라늄 이온의 흡착량에 비해 매우 적어 CFA의 성능에는 거의 영향이 없는 것으로 사료되었다.

4. 결 론

CFA의 해수로부터 우라늄 회수 특성을 흡착시간 및 온도를 변수로하여 실험한 후 ICP-AES 분석한 결과 다음과 같은 결론을 얻을

수 있었다. 가교제의 물비를 달리하여 합성한 흡착제의 우라늄 이온에 대한 흡착량은 시간이 증가함에 따라 증가하였으며, AN : TEGM-A : DVB의 조성비가 1 : 0.1 : 0.003인 수지가 최대 흡착량을 나타내었으며 가교도의 변화가 우라늄 흡착에 중요한 영향을 미쳤다. 흡착량은 온도가 증가함에 따라 증가하였으며 흡착제의 함량이 40wt%인 CFA의 경우 35°C가 최대 흡착량을 나타내었다.

한편 해수중 우라늄 회수를 위해서는 초기의 흡착률이 매우 높기 때문에 흡착-탈착 주기를 짧은시간 간격으로 해야 효과적이었으며 Mg, Ca이온의 흡착량은 Mg이온이 Ca이온에 비해 동일조건하에서 높게 나타났으며 최대 흡착량은 10회 반복시 각각 0.3, 0.9mmole/g-adsorbent였고 이들 흡착량은 우라늄 이온의 그것보다 매우 낮아 CFA의 우라늄 이온에 대한 선택적 흡착에는 영향이 없는 것으로 사료되었다.

한편 흡착 탈착 반복실험에서 흡착제의 강도 변화는 polypropylene(PP)이 해수에 안정하고 탈착액인 황산에 대해서도 안정하여 큰 변화가 없었다.

또한 CFA의 우라늄 이온의 흡착성능은 흡착 탈착 회수가 반복됨에 따라 8회 까지는 거의 일정하였고 그이후에서 약간 감소할뿐 거의 일정한 흡착성능을 나타내었다.

감사의 글

본 연구는 1992년도 한국과학재단 기초일반연구 지원에 의해 이루어진 것으로 이에 감사드립니다.

참 고 문 헌

- G. I. Lee, Soc. of Atom Energy Industry, **44**, (1986,9)
- F. Nakajima, K. Fujita, Kagaku Kogaku, **45**(4), 247, (1981)
- N. Ogata, Nippon Kaisui Gakkaishi, **34** (187), 3, (1980)
- N. Ogata, Nippon Kaisui Gakkaishi, **35** (195), 134, (1981)
- S. Sakka, Humen, **19**(8), 430, (1981)
- M. Kanno and K. Saito, 148 MIT-EL 80-031 (1980)
- V. S. Soldatov, A. A. Shunkevich and G. I. Sereev, Reactive Polym., **7**, 159 (1988)
- N. V. Shevlyakova, M. G. Yakova, N. N. Luzina, V. I. Semonow, R. R. Shifrina, Polym. Sci. USSR, **29**, 2, 348 (1987)
- V. S. Soldatov, G. I. Sereev, Inst. of Phys, Org. Chem. USSR, **61**, 1, 46 (1988)
- T. Maekawa, H. Nishide and E. Tsuchida, J. of Appl. Polym. Sci., **29**, 3795 (1984)
- H. Yamasita, Y. Ozawa, F. Nakazima and T. Murata, Bull. Chem. Soc. JPrn, **53**, 1331 (1980)
- H. J. Schenk, E. G. Witte, L. Astheimer and K. Schwochau, Sep. Sci. and Technol., **18**(4), 307 (1983)
- E. Koglin, H. J. Schenk, and K. Schwochau, Spectrochim Acta, **35**, 641, (1979)
- Taek S. Hwang, Eui H. Hwang, and Jung K. Park, J of Mater. Res.(Korea), **5**, 8, 966,(1995)
- K. Sugasaki and S. Katoh et al, Sep. Sci. and Technol., **19**, 16(9), 971(1981)
- K. Saito, S. Yamada, S. Furusaki, T. Sugo and J. Okamoto, J. Mem. Sci., **34**, 307 (1987)
- K. Saito and T. Miyauchi, J. Nucl. Sci. Technol., **19**(2), 145, (1982)
- K. Schwochau, L. Astheimer, H. J. Schenk, E. G. Witte, Anorg. Chem., Org. Chem., **2713**(2), 214, 1982