

ПОЛУЭМПИРИЧЕСКИЙ РАСЧЕТ ВЫХОДА ПРОДУКТОВ ОКИСЛИТЕЛЬНО-ВОССТАНОВИТЕЛЬНОЙ РЕАКЦИИ АЗОТНОЙ КИСЛОТЫ С МЕТАЛЛАМИ И ИХ ОКСИДАМИ

© 2021 г. Л. В. Арсеенков*, А. М. Сафиулина**, А. В. Белов

*Высокотехнологический научно-исследовательский институт неорганических материалов
им. А. А. Бочвара, 123060, Москва, ул. Погова, д. 5
e-mail: *leon.arseenkov@yandex.ru, **alfiya.safulina@mail.ru*

Поступила в редакцию 08.09.2020, после доработки 17.11.2020, принята к публикации 24.11.2020

Разработана методика полуэмпирического расчета выхода продуктов окислительно-восстановительной реакции азотной кислоты с ураном и его оксидами различного состава, а также железом. Предложенная методика позволяет получить технологические данные при растворении ОЯТ, а также при дополнительной волоксации облученного топлива при недостатке анализов. Продемонстрирован метод использования уравнений материального баланса для контроля достоверности экспериментальных и технологических результатов, а также надежности аналитического контроля.

Ключевые слова: уран, оксид урана, азотная кислота, продукты восстановления, переработка ОЯТ, замкнутый ядерный топливный цикл.

DOI: 10.31857/S0033831121060010

ВВЕДЕНИЕ

При гидрометаллургической переработке облученного ядерного топлива (ОЯТ) традиционно используется азотная кислота. В процессе растворения образуются не только нитраты металлов, но и газообразные продукты разложения азотной кислоты, которые необходимо утилизировать. Для разработки технологического процесса необходимо измерять в прямом эксперименте состав продуктов разложения азотной кислоты в различных процессах для поиска систем утилизации газов [1–4]. В связи со сложностью слежения газовых выбросов в технологической цепочке, связанной с затрудненностью доступа в радиационную зону, необходимо использовать не только прямые методы контроля газов, но и расчетные. Поэтому нами предложен полуэмпирический метод расчета выхода продуктов окислительно-восстановительной реакции азотной кислоты с оксидами урана различного состава, а также с металлическим ураном.

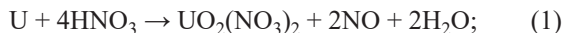
Взаимодействие азотной кислоты с металлами давно привлекало внимание исследователей тем, что в отличие от большинства других минеральных кислот процесс сопровождается выделением не только водорода, но и целого спектра преимущественно газообразных продуктов восстановления (ПВ) азотной кислоты. Еще из ранних исследований известно [6–9], что азотная кислота при взаимодействии с металлами восстанавливается с образованием широкого спектра веществ: NO_2 , NO , N_2O , N_2 , NH_3 , NH_2OH и N_2H_4 . Следовательно, образуются соединения азота в степенях окисления от -3 до $+4$ с водородом и кислородом [6–9]. Образование того или иного продукта восстановления HNO_3 принято связывать лишь с активностью металла и концентрацией кислоты. Кроме того, количественный состав продуктов восстановления HNO_3 в реакциях с металлами изучен лишь в единичных случаях.

Для примера в работе [10] в качестве ПВ при растворении в азотной кислоте металлического железа приводятся все выше упомянутые продукты, за

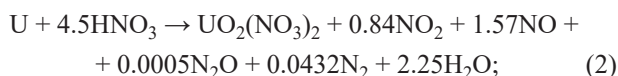
исключением азотистой кислоты, гидразина и гидроксилamina. При этом отмечается, что при их одновременном выделении относительное содержание в ряду NO_2 , NO , N_2O , N_2 , NH_3 смещается влево при увеличении концентрации азотной кислоты, что характерно и при переходе от железа к менее электрохимически активным металлам, например к меди [8].

С развитием ядерной энергетики и связанной с ней технологии регенерации ОЯТ широкое развитие получило использование процессов химического растворения металлов, их сплавов и оксидов в водных растворах азотной кислоты. Для проектирования и реального осуществления таких процессов и связанных с ними операций газоочистки, а также подготовки жидких отходов к захоронению стало необходимым иметь точные данные о стехиометрии процессов растворения ОЯТ и их основных и побочных продуктах [11–19].

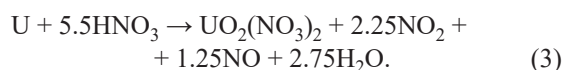
В работе [11, 12] показано, что в зависимости от концентрации азотной кислоты растворение урана может проходить по следующим суммарным реакциям:



при 11 моль/л [11]:



при 13 моль/л [12]:



По другим экспериментальным данным, в число продуктов реакции в небольших количествах входят, кроме того, водород и нитрат аммония.

Как видно из уравнений (1)–(3), для урана справедливы приведенные в работе [10] закономерности, касающиеся изменения относительного выхода ПВ азотной кислоты. В то же время в приведенной литературе нигде не упоминаются гидразин, гидроксилamin и азотистая кислота в качестве ПВ. Следует отметить, что азотистая кислота присутствует и играет важную роль при растворении оксидов урана, являясь катализатором [20]. В конечном азотнокислом растворе после завершения реакции при температуре кипения азотистая кислота присутствует в количестве порядка 0.01 моль/л. Высо-

кая температура в конце процесса нужна для удаления растворенных газов из жидкой фазы и вытеснения газообразных продуктов из аппарата растворения с дефлегматором парами воды. Эксперименты с небольшим количеством реагентов проводятся в атмосфере инертного газа для исключения взаимодействия оксида азота с кислородом и завышения содержания азота в продуктах реакции.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Как в исследовательской, так и в производственной практике не всегда возможно получить всю информацию о количестве и относительном содержании ПВ, расходе кислоты и объеме выделяющихся газообразных ПВ. В этой связи полезно иметь подходящее математическое выражение или систему выражений, связывающих данные параметры и позволяющих провести их независимый расчет, уточнить известные или проверить сомнительные данные. Такие выражения можно получить на основе материального баланса в рассматриваемой системе химических превращений.

Процесс растворения металла в азотной кислоте достаточно сложен и состоит из большого числа параллельных и последовательных реакций. Эти реакции связаны с окислением металла, как правило, до его высшей степени окисления и восстановления атомов азота кислоты до различных степеней окисления. При этом происходят реакции ПВ с исходными реагентами и друг с другом. Математическое описание процесса упрощается за счет того, что для технологии важно знать в первую очередь только расход вводимых в систему аппаратов растворения (САР = рабочий аппарат + дефлегматор) реагентов (металл + кислота) и состав выходящих из него вновь образовавшихся продуктов (растворенная соль металла, вода, продукты восстановления). Другими словами, САР представляется как «черный ящик», в который ввели 1 моль металла M , m молей азотной кислоты, а на выходе получили нитрат металла $M(\text{NO}_3)_z$, где z – степень окисления иона металла M^{z+} или его оксоиона MO_x^{z+} , и сумму ПВ $[\Sigma(\text{ПВ})]$.

Описать обобщенный материальный баланс можно двумя способами: или как сумму n параллельных реакций, в каждой из которых образуется

Таблица 1. Значения числа электронов, полученных при восстановлении азота и водорода в САР

ПВ	NO ₂	NO	N ₂ O	N ₂	NH ₄ NO ₃	H ₂
Δe _y	1	3	8	10	8 ^a	2 ^a

^a В случае NH₄NO₃ необходимо учесть дополнительный расход кислоты на образование его аниона, а в случае H₂ – вдвое сократить, так как на образование нитрата и окисление расходуется два компонента одной и той же молекулы HNO₃.

только один (*i*-й) ПВ, или как результат одной суммарной реакции с параллельным выходом *n* продуктов. В обоих случаях расход азотной кислоты (*m* молей на моль металла) определяется как сумма ее долей, необходимых для образования нитрата M(NO₃)_z (*m_z* = *z*) и для окисления металла (*m_g*).

По первой схеме *m_в* можно представить как

$$m_{\text{в}} = \sum_{i=1}^n m_i r_i, \quad (4)$$

где *m_i* – расход кислоты на образование *i*-го ПВ, а *r_i* – доля металла, прореагировавшего по *i*-й реакции.

В свою очередь

$$m_i = \frac{z}{\Delta e_i y_i}, \quad (5)$$

где Δe_{*i*} – число электронов, полученных восстанавливаемым атомом (азотом или водородом) *i*-го ПВ, а *y_i* – число таких атомов.

Просуммировав перечисленные составляющие расхода азотной кислоты в САР, получим

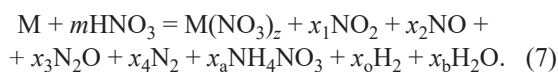
$$m = m_{\text{в}} + m_i = z + \sum_{i=1}^n \frac{z r_i}{\Delta e_i y_i} = z \left[1 + \frac{r_i}{\Delta e_i y_i} \right]. \quad (6)$$

Параметры Δe_{*i*} *y_i* для известных и технологически значимых ПВ приведены в табл. 1.

Величину *r_i* можно определить только как молярную долю *i*-го ПВ в сумме молей всех ПВ на 1 моль металла.

Уравнение (7) позволяет рассчитать расход кислоты по результатам анализа ПВ (газообразных и в растворе) или проверить достоверность анализа при известном расходе кислоты.

По второй схеме стехиометрия процесса представляется суммарным уравнением реакции



Значение *x_i* представим следующим образом:

$$x_i = r_i m_i = \frac{r_i z}{\Delta e_i y_i}. \quad (8)$$

Преобразуя уравнение (8), получим

$$r_i = \frac{x_i \Delta e_i y_i}{z}. \quad (9)$$

На основе уравнения (7) можно составить уравнения материального баланса:

по азоту:

$$m = z + x_1 + x_2 + 2x_3 + 2x_4 + 2x_5, \quad (10)$$

по кислороду:

$$3m = 3z + 2x_1 + x_2 + 2x_3 + 3x_4 + x_5, \quad (11)$$

по водороду:

$$m = 4x_6 + 2x_7 + 2x_8, \quad (12)$$

а также по измеряемому объему газообразных ПВ (*V* молей на моль металла):

$$V = x_1 + x_2 + x_3 + x_4 + x_5. \quad (13)$$

Уравнение сохранения заряда не использовалось, так как оно автоматически входит в состав уравнений (10) и (12).

На базе системы уравнений (10)–(13) можно получить более простые системы для отдельных конкретных случаев. Например, для случая (14) с выделением при растворении только двух ПВ – NO₂ и NO – справедливо выражение



Вместо уравнений (10)–(13) получим три уравнения материального баланса с четырьмя неизвестными (*V*, *m*, *x₁*, *x₂*):

по азоту:

$$m = z + x_1 + x_2, \quad (10a)$$

по кислороду:

$$2.5m = 3z + 2x_1 + x_2, \quad (11a)$$

по сумме газов:

$$V = x_1 + x_2. \quad (13a)$$

Зная количество одного из газообразных ПВ, можно оценить все остальные:

$$m = z + V = 1.333z + 0.667x_1 = 2(x - x_2), \quad (15)$$

$$V = m - z = 0.333z + 0.667x_1 = z - 2x_2, \quad (16)$$

$$x_1 = 1.5V - 0.5z = 1.5m - 2z = z - 3x_2, \quad (17)$$

$$x_2 = 0.5z - 0.5V = z - 0.5m = 0.333z - 0.333x_1. \quad (18)$$

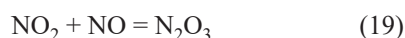
Для более сложного процесса, проходящего с выделением четырех газообразных продуктов NO_2 , NO , N_2O , N_2 , получим систему из трех уравнений с шестью неизвестными (при заданном z):

$$m = z + x_1 + x_2 + 2x_3 + 2x_4, \quad (10b)$$

$$2.5m = 3z + 2x_1 + x_2 + 2x_3, \quad (11b)$$

$$V = x_1 + x_2 + x_3 + x_4. \quad (13b)$$

Для полного решения системы нужно знать или выход трех газов, или выход одного из них, а также m и V . Без использования газоанализатора можно определить m по анализу исходного и конечного растворов, V интегрированием зависимости скорости выделения газов от времени и x_1 по поглощению NO_2 в щелочной ловушке. При этом следует иметь в виду, что сдвинутое при комнатной и более высокой температуре влево равновесие



при взаимодействии газовой смеси со щелочным раствором резко смещается вправо, приводя к поглощению NO раствором. Чтобы уточнить количества обнаруженных в ловушке газов необходимо проанализировать раствор как на изменение концентрации щелочи, так и на содержание в нем нитрит-иона.

Выходы остальных трех газов рассчитываются по уравнениям

$$x_2 = z - m + 2V - x_1, \quad (20)$$

$$x_3 = 3.5m - 4z - 2V - x_1, \quad (21)$$

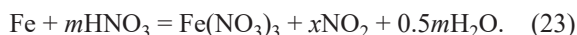
$$x_4 = 3z - 2.5m + V + x_1. \quad (22)$$

Возможности описанных подходов можно продемонстрировать на примере доступных экспериментальных данных. В работе [10] в графической форме представлены зависимости состава газов, выделяющихся при растворении железа в водных растворах с концентрациями азотной кислоты от 1.6 до 15.2 моль/л.

Нами были описаны четыре случая, в которых в состав ПВ входило от одного до пяти газообразных продуктов.

На основании только этих данных можно рассчитать количество каждого из газов, их сумму, а также стехиометрический расход кислоты в реакции окислительно-восстановительного растворения.

Простейший случай с одним ПВ описывается уравнением



Приведем материальные балансы по азоту:

$$m = 3 + x; \quad (10c)$$

по кислороду:

$$3m = 9 + 2x + 0.5m. \quad (11c)$$

Решение простой системы показывает, что в данном случае $m = 6$ и $x = 3$ молей на моль железа.

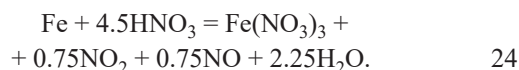
В варианте с равными выходами двух газов материальные балансы по азоту и кислороду описываются как (11d) и (12d) соответственно:

$$m = 3 + 2x. \quad (10d)$$

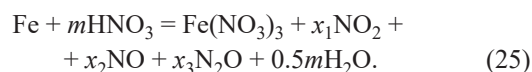
$$2.5m = 9 + 3x. \quad (11d)$$

Решение системы дает значения $m = 4.5$, $x = 0.75$ и $V = 1.5$.

Таким образом, в 11.2 моль/л азотной кислоте растворение железа идет по уравнению (24)



Растворение железа в растворе 8.8 моль/л HNO_3 в общем виде описывается как



По данным о составе газов (табл. 2) известны соотношения между количествами оксидов азота, и поэтому все их коэффициенты можно выразить через один из них. Обозначим $x_1 = x$, тогда $x_2 = 6.5x$ и

Таблица 2. Состав газообразных продуктов восстановления в САР в зависимости от концентрации азотной кислоты

Концентрация HNO ₃ , моль/л	Состав газообразных ПВ, об%				
	NO ₂	NO	N ₂ O	N ₂	NH ₃
1.6	5	20	5	10	50
8.8	10	65	25	–	–
11.2	50	50	–	–	–
15.2	100	–	–	–	–

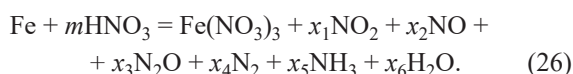
$x_3 = 2.5x$. Тогда балансы по азоту и кислороду будут выглядеть как (10e) и (11e) соответственно:

$$m = 3 + x + 6.5x + 5x = 3 + 12.5x, \quad (10e)$$

$$2.5m = 9 + 2x + 6.5x + 2.5x = 9 + 11x. \quad (11e)$$

Совместное решение этих двух уравнений позволило получить значения $m = 3.925$ и $x_1 = x = 0.074$, а затем и $x_2 = 6.5x = 0.481$ и $x_3 = 2.5x = 0.185$. И, наконец, $V = x_1 + x_2 + x_3 = 0.74$ моля на моль железа.

Наиболее сложная задача связана с растворением железа в наиболее слабом растворе 1.6 моль/л HNO₃, когда кроме оксидов азота в число продуктов реакции входят ещё молекулярный азот и аммиак:



Следуя тому же принципу и данным о составе газов (табл. 2), получим выражения $x_1 = x$, $x_2 = 4x$, $x_3 = x$, $x_4 = 2x$, $x_5 = 10x$.

С появлением второго (кроме воды) продукта, содержащего водород, возникла необходимость в материальном балансе по водороду (12f):

$$m = 3x_5 + 2x_6 = 30 + 2x_6. \quad (12f)$$

Из уравнения (12f) следует, что $x_6 = 0.5m - 15x$.

Далее используем описанные выше балансы по азоту (10f) и кислороду (11f):

$$m = 3 + x + 4x + 2x + 4x + 10x = 3 + 21x, \quad (10f)$$

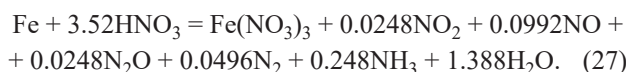
$$3m = 9 + 2x + 4x + x + 0.5m - 15x \Rightarrow \Rightarrow 2.5m = 9 - 8x \Rightarrow m = 3.6 + 3.2x. \quad (11f)$$

При решении уравнений (10f) и (11f) получаем $m = 3.52$ и $x = x_1 = 0.0248$, и далее $x_2 = 0.0992$, $x_3 = 0.0248$, $x_4 = 0.0496$, $x_5 = 0.248$, $x_6 = 1.388$ и $V = 0.4464$ на 1 моль железа.

Контроль баланса по водороду $\sum \text{H} = m = 3.52$,

$$m = 3x_5 + 2x_6 = 0.744 + 2.776 = 3.52, \quad (12f)$$

свидетельствует о правильности расчета. В итоге растворение железа в 1.6 моль/л азотной кислоте описывается реакцией



Для радиохимической технологии отдельный интерес представляют реакции с соединениями урана. В их случае в базовые уравнения материального баланса следует внести поправки, связанные с образованием уранил-иона, когда для иона UO_2^{2+} $z = 2$, а вместо уравнений (10)–(13) получим:

по азоту:

$$m = 2 + x_1 + x_2 + 2x_3 + 2x_4, \quad (10g)$$

по кислороду:

$$2.5m = 8 + 2x_1 + x_2 + x_3; \quad (11g)$$

а также по общему объему газообразных ПВ (V молей на моль металла):

$$V = x_1 + x_2 + x_3 + x_4. \quad (13g)$$

Решим эту систему уравнений для экспериментальных данных, соответствующих уравнению (3), в предположении, что нам известно только значение $m = 5.5$, а x_3 и $x_4 = 0$. Тогда

$$3.5 = x_1 + x_2, \quad (10g^*)$$

$$5.75 = 2x_1 + x_2. \quad (11g^*)$$

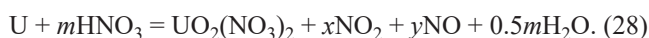
В результате получаем $x_1 = 2.25$ и $x_2 = 1.25$, а $V = 3.5$ в полном согласии с экспериментальными данными [18, 19].

По многочисленным экспериментальным данным известно, что при растворении металлического урана, а также его оксидов в растворах азотной кислоты основными продуктами восстановления азота(V) являются газообразные диоксид и монооксид азота NO₂ и NO [17–19]. Из-за существенного различия в их степенях окисления значительно раз-

личаются и расходы азотной кислоты при преимущественном образовании каждого из них.

С использованием уравнений материального баланса в окислительно-восстановительных реакциях растворения уранового ядерного топлива можно оценить как минимальные, так и предельные значения расхода азотной кислоты, а также по изменению концентрации кислоты определить объем и состав газообразных продуктов.

Для металлического урана справедливо общее уравнение реакции



Материальные балансы по азоту и кислороду смутряются как

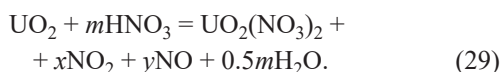
$$m = 2 + x + y, \quad (10h)$$

$$2.5m = 8 + 2x + y. \quad (11h)$$

Выражая x через y (или наоборот) в одном уравнении и подставляя его в другое, получим их зависимости от m : $x = 1.5m - 6$ и $y = 4 - 0.5m$.

Минимальный расход кислоты наблюдается при выделении только NO и $x = 0$ и составляет $m = 4$ моля на моль урана, а максимальный – $m = 8$ при $y = 0$, когда выделяется только диоксид азота, что возможно только при избытке высококонцентрированной кислоты.

Растворение диоксида урана проходит по аналогичному уравнению:



Материальный баланс по азоту здесь аналогичен уравнению (10h), а уравнение материального баланса для кислорода несколько отличается (11i):

$$m = 2 + x + y, \quad (10i)$$

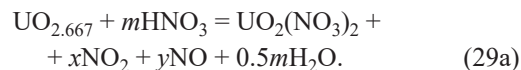
$$2.5m = 6 + 2x + y. \quad (11i)$$

Тем же методом получим $x = 1.5m - 4$ и $y = 2 - 0.5m$; при $y = 0$ $x = 2$, $m = 4$, а при $x = 0$ $y = 0.667$ и $m = 2.667$.

Таким образом, растворение диоксида урана проходит с расходом кислоты в пределах от 2.667 до 4 молей на моль диоксида.

Если в технологии переработки ОЯТ используется операция его волоксидации, т.е. окисления UO_2 до U_3O_8 , то именно этот оксид поступит на растворение. Для удобства расчета расхода азотной кисло-

ты, а также сравнимости полученных результатов с вышеописанными случаями представим этот оксид в форме соединения с одним атомом урана. Тогда уравнение реакции предстанет как



Уравнение материального баланса по азоту и кислороду:

$$m = 2 + x + y, \quad (10j)$$

$$3m + 2.667 = 8 + 2x + y + 0.5m \Rightarrow 2.5m = 5.333 + 2x + y. \quad (11j)$$

Решая задачу, получим $x = 1.5m - 3.333$ и $y = 1.333 - 0.5m$. Соответственно при $x = 0$ $m = 2.222$, а $y = 0.222$, тогда как при $y = 0$ $m = 0.667$, а $x = 0.667$.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Предложенная методика позволяет получить некоторые технологические данные о процессах растворения металлов и их оксидов в азотной кислоте при недостатке анализов. Показаны границы значений расходов азотной кислоты, которые не могут нарушаться при растворении приведенных соединений урана. На показанных примерах продемонстрирован метод использования уравнений материального баланса для контроля достоверности экспериментальных и технологических результатов, а также надежности аналитического контроля.

КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Алексеев П.Н., Гагаринский А.Ю., Кухаркин Н.Е., Семченков Ю.М., Сидоренко В.А., Субботин С.А., Цибульский В.Ф., Шимкевич А.Л., Штрэмбах Я.И. // Атом. энергия. 2017. Т. 122, № 3. С. 123–126. <https://doi.org/10.1007/s10512-017-0249-5>
2. Лебедев В.М. Ядерный топливный цикл: Технологии, безопасность, экономика. М.: Энергоатомиздат. 2005. 316 с.

3. Варжека Й., Вацлавин Э., Йонаш М. // Исследования в области переработки облученного топлива: Сб. докл. IV симп. СЭВ. Карловы Вары (Чехословакия), 28 марта–1 апреля 1977 г. Т. 1. С. 62.
4. Бондин В.В., Бычков С.И., Ревенко Ю.А., Ефремов И.Г., Мурзин А.А., Шадрин А.Ю., Бабаин В.А., Романовский В.Н., Кудрявцев Е.Г. // Радиохимия. 2008. Т. 50, № 3. С. 218–220.
<https://doi.org/10.1134/S1066362208030065>
5. Кащеев В.А., Шадрин А.Ю., Рыкованов Г.Н., Дырда Н.Д., Макеева И.Р., Хмельницкий Д.В., Алексеев П.Н. // Атом. энергия. 2019. Т. 127, № 2. С. 82–87.
<https://doi.org/10.1007/s10512-019-00591-5>
6. Joss E.J. // J. Phys. Chem. 1925. Vol. 30, N 9. P. 1222–1275.
<https://doi.org/10.1021/j150267a013>
7. Бейли К. Торможение химических реакций. М.; Л.: Госхимиздат, 1940. 462 с.
8. Коршунов А.В., Ковалева С.В., Гладышев В.П. // Изв. Томского политехн. ун-та. 2004. Т. 307, № 3. С. 86–89.
9. Hedges E.S. // J. Chem. Soc. 1930. P. 561–569.
<https://doi.org/10.1039/jr9300000561>
10. Некрасов Б.В. Основы общей химии. М.: Химия. 1973. 3-е изд. Т. 1. 656 с.
11. Бенедикт М., Пигфорд Т. Химическая технология ядерных материалов / Пер. с англ. М.: Атомиздат, 1960. 528 с.
12. Химическая технология облученного ядерного горючего / Под ред. В.Б. Шевченко. М.: Атомиздат, 1971. 448 с.
13. Переработка ядерного горючего / Под ред. С. Столлера и Р. Ричардса / Сокр. пер. с англ. / Под ред. А.П. Зефинова. М.: Атомиздат, 1964. 647 с.
14. Адамов Е.О., Джалавян А.В., Лопаткин А.В., Молоканов Н.А., Муравьев Е.В., Орлов В.В., Калякин С.Г., Рачков В.И., Троянов В.М., Аврорин Е.Н., Иванов В.Б., Алексахин Р.М. // Атом. энергия. 2012. Т. 112, вып. 6. С. 319–330.
<https://doi.org/10.1007/s10512-012-9574-x>
15. Abel E. // Z. Anorg. Allg. Chem. 1952. Vol. 271, N 1–2. P. 76–80.
<https://doi.org/10.1002/zaac.19522710111>
16. Агеенков А.Т., Ненароков Э.А. Подготовка облученного ядерного топлива к химической переработке. М.: Энергоатомиздат, 1982. 128 с.
17. Lacher J.R., Salzman J.D., Park J.D. // Ind. Eng. Chem. 1961. Vol. 53, N 4. P. 282–284.
<https://doi.org/10.1021/ie50616a023>
18. Shabbir M., Robins R.G. // J. Appl. Chem. 1968. Vol. 18, N 5. P. 129–134.
<https://doi.org/10.1002/jctb.5010180501>
19. Shabbir M., Robins R.G. // J. Appl. Chem. 1969. Vol. 19, N 2. P. 52–56.
<https://doi.org/10.1002/jctb.5010190205>
20. Augustine E., Desigan N., Pandey N.K., Joshi J.B. // J. Radioanal. Nucl. Chem. 2020. Vol. 324. P. 211–218.
<https://doi.org/10.1007/s10967-020-07072-1>