

ИММОБИЛИЗАЦИЯ РАДИОАКТИВНЫХ СОЛЕЙ КУБОВЫХ ОСТАТКОВ В КЕРАМИЧЕСКИХ МАТРИЦАХ

Л.Н. Пузырная, Г.Н. Пшинко

Институт коллоидной химии и химии воды им. А.В. Думанского
НАН Украины, г. Киев

Поступила 22.07.2011 г.

Изучена возможность иммобилизации солей кубовых остатков АЭС в керамических матрицах на основе природных минералов. Показано, что матрицы состава клиноптилолит – монтмориллонит при содержании солей кубового остатка ≈ 10 мас. % имеют достаточно низкие значения водопоглощения и открытой пористости (соответственно 0,1 и 1,0%). Керамические образцы характеризовались высокой химической стойкостью, которую оценивали по скорости и степени выщелачивания ионов натрия и радионуклидов.

Ключевые слова: иммобилизация, керамические матрицы, кубовые остатки, радионуклиды.

Введение. При очистке больших объемов водных сред от радионуклидов природного и техногенного происхождения происходит их накопление в концентратах или осадках, что вызывает угрозу вторичного загрязнения окружающей среды и является одной из важных проблем экологической безопасности АЭС. Поэтому основное условие переработки таких шламов – обеспечение надежной иммобилизации радионуклидов и сокращение объемов образуемых при этом отходов.

Отдельный класс радиоактивных шламов водоочистки составляют концентрированные трапные воды (кубовые остатки) АЭС. Кубовые остатки являются продуктом упаривания различных жидких радиоактивных отходов (ЖРО), образующихся на АЭС. Они представляют собой высокосолевые растворы (рН от 8 до 13), загрязненные продуктами деления, радионуклидами коррозионного происхождения (основными радионуклидами в кубовых остатках являются $^{134,137}\text{Cs}$, ^{60}Co , ^{54}Mn) и различными веществами, используемыми для дезактивации оборудования (этилендиаминтетраацетат натрия и щавелевая кислота) и поддержания водно-химического режима. Выдача кубового остатка с выпарного аппарата осуществляется при достижении в нем сухого остатка 200 г/кг. Переработка ЖРО направлена на решение двух главных задач: очистка ос-

© Л.Н. ПУЗЫРНАЯ, Г.Н. ПШИНКО, 2012

новой массы отходов от радионуклидов и концентрирование последних в минимальном объеме. В настоящее время кубовый остаток с целью затвердевания подлежит переработке в установке глубокого упаривания УГУ-1-500 с последующим его хранением в виде твердого солевого продукта [1] в специальных емкостях, что не исключает разгерметизации – потенциальной опасности радиоактивного заражения окружающей среды.

Важным при переработке радиоактивных шламов является перевод их в монолитную форму, что гарантировало бы надежную изоляцию радионуклидов при длительном хранении до полного их распада. К традиционным методам переработки кубовых остатков АЭС относятся глубокое упаривание [2], цементирование [3] и битумирование [4]. В последнее время проводятся поиск и исследования керамических матричных материалов, которые имеют более низкую по сравнению с бетоном скорость выщелачивания радионуклидов и большую термическую и механическую стабильность по сравнению со стеклом. Это прежде всего минералоподобные керамики или синтетические горные породы, которые являются аналогами природных геологических структур (SYNROC, суперкальцинат, пифазная, монацитовая, натрий-цирконийфосфатная, сфеновая, диопсидовая керамика) [5].

Синтетические минералоподобные матрицы типа SYNROC характеризуются высокими физико-химическими свойствами, обусловленными прочным структурным вхождением радионуклидов в кристаллические минералоподобные фазы. На сегодняшний день они являются эталоном коррозионной стойкости, что служит ориентиром для специалистов в области иммобилизации радионуклидов. Так, керамические матрицы SYNROC, основными компонентами которых являются голандит, цирконолит и перовскит, полученные методом горячего прессования, имеют примерно на два порядка меньшую скорость выщелачивания щелочных элементов ($\sim 10^{-9}$ г/(см²·сут)), чем боросиликатное стекло в интервале 318 – 573 К [6,7]. Однако следует отметить, что получение керамики типа SYNROC в технологическом плане (высокотемпературный обжиг до 2000 °С и высокое давление до 100 МПа) предполагает использование сложного оборудования. Кроме того, для этого необходимы значительные экономические затраты на сырьевые материалы, поскольку при получении кристаллических фаз, которые могут связывать радионуклиды, используют сложные оксиды аналогов природных минералов.

Перспективными в данном аспекте являются керамические материалы на основе природных минералов [8 – 10], характеризующиеся достаточно высокими физико-механическими свойствами, химической устойчивостью и экономичностью, что позволяет использовать их для переработки больших объемов радиоактивных шламов.

Цель данной работы – исследование возможности иммобилизации радиоактивных солей кубовых остатков АЭС в низкотемпературных (800°C) керамических матрицах на основе природных минералов.

Методика эксперимента. В работе использовали реальный кубовый остаток отходов Хмельницкой АЭС ($\Sigma\beta$ -активность, определенная с помощью β -радиометра КРК-1-01А, составляла $1,4 \cdot 10^4$ Бк/дм³, рН 10) и модельный раствор-имитат, который по макрокомпонентам соответствовал реальному (для исследования условий формования, обжига и физико-механических свойств керамических матриц). Для матриц, содержащих реальный кубовый остаток, определяли химическую устойчивость. Химический состав (по макрокомпонентам) имитата солей кубового остатка отходов АЭС следующий:

	г/дм ³
Na ₂ B ₄ O ₇	70,22
Na ₂ SO ₄	32,68
KCl.....	30,72
KNO ₃	22,57
K ₂ CO ₃	39,35
Na ₂ CO ₃	204,48
Общее солесодержание.....	400

Порошок-имитат солей кубового остатка готовили путем упаривания и высушивания модельного раствора в вакуумном сушильном шкафу. Полученный осадок измельчали в керамической ступке и просеивали через сито (0,08 мм) для получения однородной фракции.

При изготовлении керамических матриц использовали цеолитсодержащий туф Сокирницкого месторождения, главным породообразующим минералом которого является клиноптилолит; монтмориллонит природный Черкасского месторождения и его модифицированную Na₂CO₃ форму, полученную путем измельчения в шаровой мельнице с добавкой 0,5% Na₂CO₃ по отношению к минералу (ТУ У 14.2-20294989-001-2001). Следует отметить, что обработка минерала при помощи Na₂CO₃ повышает его гидрофильность за счет образования гидратных оболочек и диффузных слоев вокруг глинистых частиц и усиливает самодиспергирование, что особенно важно для удерживания значительных количеств воды при формовании матриц. Состав указанных минералов приведен в табл. 1.

Таблица 1. Химический состав алюмосиликатов

Компонент алюмосиликатов	Концентрация, мас. %	
	монтмориллонита	цеолитсодержащего туфа
SiO ₂	61,0	69,25
Al ₂ O ₃	15,2	12,13
CaO	2,0	1,99
MgO	1,7	0,68
Fe ₂ O ₃	6,4	1,36
FeO	0,4	0,10
Na ₂ O	0,1	2,48
K ₂ O	0,06	2,87
TiO ₂	–	0,21
Другие	4,55	2,60
П.п.п.*	8,04	9,16

*П.п.п. – потери при прокаливании.

Методика формования керамических матриц. Приготовление модельных шихт осуществляли впрыскиванием определенного количества воды (в зависимости от массы воздушно-сухой шихты) на смесь сухих компонентов с помощью ингаляционного прибора при постоянном перемешивании смеси с последующей выдержкой до формования в герметичной таре в течение 18 ч. Керамические образцы получали с использованием лабораторного гидравлического пресса в условиях медленного наращивания давления. Выдержка при конечном давлении в течение одной минуты при каждом цикле прессования позволяла более полно удалять воздух в межслоевом пространстве дисперсных частиц шихты и, таким образом, повышать плотность образцов. Матрицы формовали в виде таблеток диаметром 30 мм и высотой 8 – 9 мм полусухим двухсторонним прессованием при давлении 40 МПа. Сравнительно небольшие их размеры были выбраны для удобства проведения исследований и повышения точности определения физико-механических свойств образцов.

Модельные матрицы выдерживали на воздухе в течение 6 ч, а затем сушили в сушильном шкафу в течение 16 ч. В процессе исследований совмещали сушку и обжиг образцов при различных температурах в электрической печи сопротивления с выдержкой при конечной температуре в течение одного часа. Принятый режим сушки и обжига моделировал температурные условия работы промышленных установок, работающих в непрерывном режиме. Температура обжига составляла 700 – 800°C (такая достаточно низкая температура при обжиге керамики за счет доба-

вок солей кубового остатка как интенсификаторов спекания способствовала минимальному испарению радионуклидов цезия, которое могло происходить только с верхнего слоя сформованных образцов). Охлаждение образцов происходило произвольно по мере охлаждения печи.

Для керамических матриц определяли следующие физико-механические характеристики [11,12]:

открытую пористость (Π_o , %)

$$\Pi_o = \frac{m_1 - m}{m_1 - m_2} \cdot 100,$$

где m – масса сухого образца, m_1 – масса насыщенного водой образца, m_2 – масса образца в воде, г;

водопоглощение (W , %)

$$W = \frac{m_1 - m}{m} \cdot 100,$$

плотность (ρ , %)

$$\rho = \frac{m^*}{V_1},$$

где m^* – масса обожженного образца, г, V_1 – объем обожженного образца, см³;

объемную усадку (Y_o , %):

$$Y_o = \frac{V^* - V_1}{V^*} \cdot 100,$$

где V^* – объем сформованного образца, см³;

Химическую устойчивость полученных керамических образцов, содержащих соли кубового остатка, оценивали по скорости и степени выщелачивания ионов натрия как компонента, позволяющего прогнозировать надежность фиксации ¹³⁷Cs, и радионуклидов по $\Sigma\beta$ -активности при выполнении стандартных условий, предусмотренных в [13].

Керамические матрицы с измеренной площадью внешней поверхности помещали в индивидуальные контейнеры для выщелачивания с контактными водными растворами при 25°C. Выщелачивание проводили в течение 1; 2; 3; 4 и 7 сут. Через определенный интервал времени раствор декантировали и помещали образец в контейнер со свежим контактным раствором.

Скорость выщелачивания (R_n^i , г/(см²·сут)) ионов натрия и радионуклидов рассчитывали по формулам

$$R_n^i = \frac{C_n^i}{C_0^i S t_n};$$

$$R_n^i = \frac{a_n^i}{A_0^i S t_n},$$

где C_n^i (a_n^i) – содержание ионов натрия, г (активность радионуклидов, Бк) в контактном растворе за данный промежуток времени t_n ; C_0^i (A_0^i) – удельная концентрация ионов натрия, г/г (активность радионуклидов, Бк/г) в керамической матрице; t_n – продолжительность n -го периода выщелачивания, сут; S – площадь открытой геометрической поверхности образца, см².

Фиксирующую способность (химическую устойчивость) керамических матриц, содержащих соли кубового остатка, также оценивали путем выщелачивания ионов натрия и радионуклидов из разрушенных и измельченных образцов (0,5 мм ≥ фракция ≥ 0,25 мм). В конические плоскодонные колбы со шлифом вносили навеску порошка матрицы (1,00 г) и добавляли 100 см³ выщелачивающего реагента. Суспензию непрерывно встряхивали определенное время (1 и 24 ч) на аппарате АБУ-6С. После установления адсорбционного равновесия раствор отделяли центрифугированием при 5000 об/мин в течение 30 мин.

Степень выщелачивания (СВ, %) ионов натрия и радионуклидов рассчитывали следующим образом:

$$СВ = \frac{C}{C_0} \cdot 100;$$

$$СВ = \frac{A}{A_0} \cdot 100,$$

где C_0 (A_0) – концентрация ионов натрия, г (активность радионуклидов, Бк) в матрице; C (A) – концентрация ионов натрия, г (активность радионуклидов, Бк) в контактном растворе.

Концентрацию ионов натрия определяли в отобранных через определенный интервал времени пробах с помощью атомно-абсорбционного метода на спектрофотометре С-115-М1 при $\lambda = 589$ нм. Для построения калибровочного графика в пламя горелки поочередно вводили четыре стандартных раствора натрия с концентрациями, входящими в

диапазон определения, включая концентрацию, близкую к той, которую определяли.

Измерение $\Sigma\beta$ -активности проб проводили на β -радиометре КРК-1-01А как по активности контактного раствора (при измерении скорости выщелачивания), так и по активности керамической матрицы (в случае определения степени выщелачивания). Для этого аликвоту раствора упаривали на алюминиевой подложке с одинаковой геометрией ($S = 9,06 \text{ см}^2$); при определении степени выщелачивания отбирали навеску измельченной керамики до и после выщелачивания (высушенную). Калибровку β -радиометра проводили с использованием навесок ($0,1 \div 1,0$) г растертой в ступке соли КСI, учитывая, что активность 1 г этой соли составляет 14,77 Бк (в природной смеси изотопов калия содержание радиоактивного $^{40}\text{K} - 0,0119\%$). Продолжительность измерения каждой пробы – 1000 с, количество параллельных измерений – 5 [14, 15].

Рентгенографические исследования керамической матрицы, обожженной при 800°C , проводили при помощи дифрактометра ДРОН-2 с двумя щелями Соллера с использованием фильтрованного CoK_α -излучения.

Результаты и их обсуждение. *Влияние содержания солей кубовых остатков на физико-механические свойства керамических матриц.* Получение прочных керамических образцов на основе природного и модифицированного Na_2CO_3 монтмориллонита оказалось затруднительным из-за особенностей их структуры и высокой чувствительности к сушке и обжигу, и, как следствие, такие матрицы имели значительные трещины и дефекты. Поэтому формование матриц осуществляли на основе клиноптилолита и его смеси с природным и модифицированным Na_2CO_3 монтмориллонитом. Использование клиноптилолита позволило получить качественные образцы при концентрации солей кубового остатка не более 10 мас. % (рис. 1). Повышенное содержание в керамике солей кубового остатка приводило к ухудшению физико-механических свойств матриц, в частности возрастала открытая пористость и водопоглощение, наблюдалось снижение объемной усадки, а при (15 ÷ 30) мас. % – значительное вспучивание и расплавление образцов. Это обусловлено тем, что соли калия и натрия, входящие в состав имитата кубового остатка, являются интенсификаторами спекания и способствуют уменьшению поверхностного натяжения между частицами силикатной шихты и ускорению твердофазных реакций путем образования эвтектик.

Керамические матрицы на основе смеси клиноптилолита с природной и модифицированной Na_2CO_3 формами монтмориллонита с добавками солей кубового остатка имеют близкие показатели открытой пористости и водопоглощения (табл. 2), что позволяет расширить возможности использования природных материалов без модифицирования.

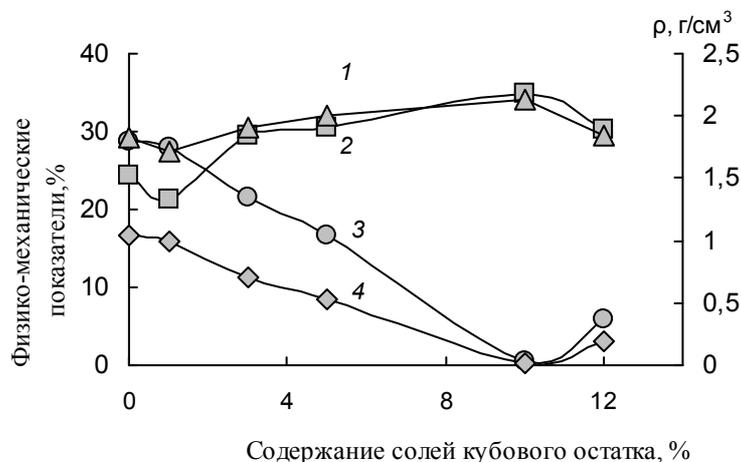


Рис. 1. Влияние содержания солей кубового остатка в клиноптилолитовых матрицах, обожженных при 800°C, на их физико-механические свойства: 1 – плотность (ρ), 2 – объемная усадка (Y_o), 3 – открытая пористость (Π_o), 4 – водопоглощение (W).

Таблица 2. Влияние содержания солей имитата кубового остатка на физико-механические характеристики матриц клиноптилолит – природный монтмориллонит и клиноптилолит – монтмориллонит, модифицированный Na_2CO_3 , обожженных при 800 °С

Клиноптилолит	Монтмориллонит		Соли (имитат)	ρ , г/см ³	Y_o	Π_o	W
	природный	модифицированный			%		
масс.%							
90	10	0	0	1,67	18,2	29,8	18,1
87	10	0	3	1,86	25,4	20,4	11,0
85	10	0	5	2,0	30,1	14,0	6,9
80	10	0	10	2,09	34,2	0,1	0
78	10	0	12	1,77	19,1	1,7	1,0
90	0	10	0	1,76	21,5	26,8	15,9
87	0	10	3	2,06	26,8	17,0	8,6
85	0	10	5	1,97	28,9	14,0	6,7
80	0	10	10	2,07	32,6	1,0	0,6
78	0	10	12	1,69	14,3	3,2	1,5

У образцов с добавкой солей кубового остатка в количестве 10 мас. % практически не наблюдаются водопоглощение и открытая пористость (соответственно 0,1 и 1,0%), а при увеличении содержания солей кубового остатка до 12 мас. % указанные физико-механические показатели ухудшаются.

Исследование влияния различного (5 ÷ 14%) влагосодержания шихты на физико-механические свойства обожженных при 800°C матриц состава клиноптилолит (80 мас. %) – монтмориллонит (10 мас. %) – соли кубового остатка (10 мас. %) показало, что оптимальное их влагосодержание составляет 7÷9% (рис. 2).

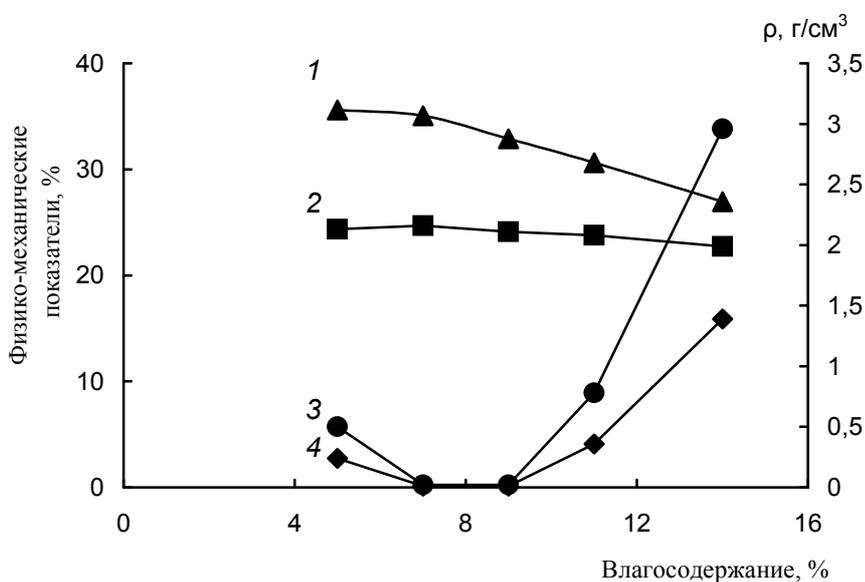


Рис. 2. Влияние влагосодержания шихты на физико-механические свойства обожженных при 800°C матриц состава клиноптилолит – монтмориллонит – соли кубового остатка: 1 – объемная усадка, 2 – плотность, 3 – открытая пористость, 4 – водопоглощение.

Химическая устойчивость полученных керамических матриц с иммобилизованными солями кубового остатка. Результаты исследований выщелачивания показаны на примере Na^+ (рис. 3, а и 4, а) и радионуклидов по $\Sigma\beta$ -активности (рис. 3, б и 4, б) водными растворами различных химических реагентов из монолитных обожженных при 800°C керамических матриц состава клиноптилолит (80 мас. %) – монтмориллонит (10 мас. %) – соли кубового остатка (10 мас. %).

Как видно из представленных данных, полученные низкотемпературные керамические матрицы характеризуются высокой фиксирующей способностью по отношению к радиоактивным солям кубовых остатков.

Стационарная скорость выщелачивания из керамических матриц Na^+ (отношение объема контактного раствора к площади открытой геометрической поверхности – 5 см) составляет $\leq 5 \cdot 10^{-5}$ и радионуклидов – $\leq 1 \cdot 10^{-5}$ г/(см²·сут). Значение степени выщелачивания из порошков измельченных матриц для указанных концентраций исследуемых химических реагентов не превышало 1,75%, наибольшее выщелачивание Na^+ и радионуклидов наблюдалось растворами соляной (рН 2) и уксусной (рН \approx 3) кислот.

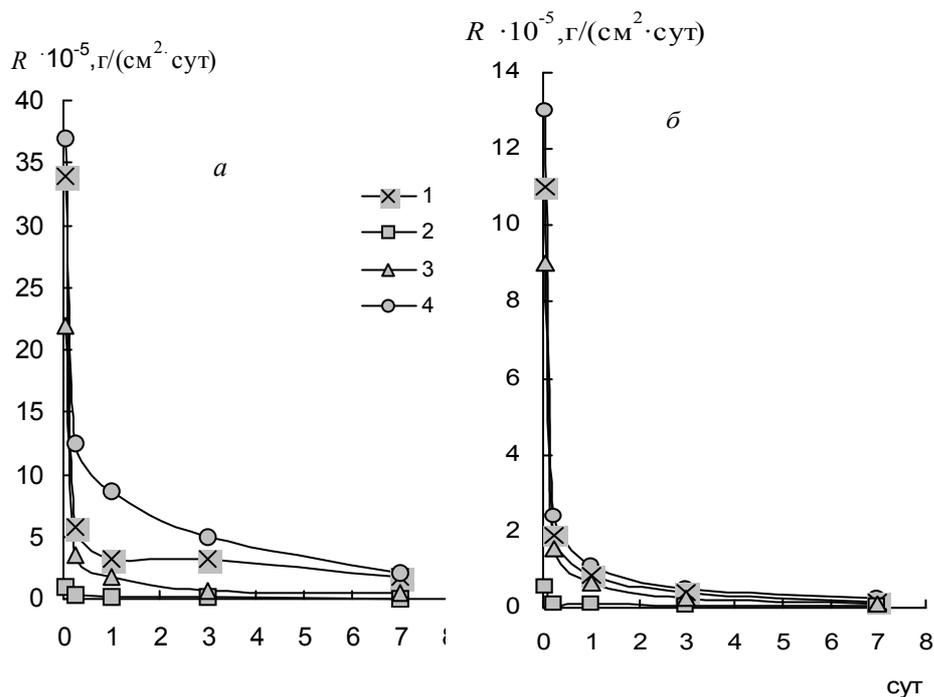


Рис. 3. Скорость выщелачивания Na^+ (а) и радионуклидов (б) различными контактными растворами (1 – 0,05 М ЭДТА, 2 – H_2O , 3 – 0,01 М NH_4OH , 4 – 0,01 М HCl) с керамических матриц.

Рентгенографическое исследование керамических матриц с иммобилизованными солями кубового остатка. На рис. 5 представлены участки порошковых рентгенограмм продуктов спекания при температуре обжига 800°C. Как видно, при обжиге наблюдаются заметные изменения фазового состава матриц: не фиксируются рефлексы, присущие клиноптилолиту и монтмориллониту. Кристаллические решетки алюмосиликатов разрушаются с образованием рентгеноаморфных продуктов, и на рентгенограммах регистрируются только дифракционные полосы кварца (4,27; 3,349 Å) и плагиоклаза (4,04; 3,752; 3,661; 3,208; 3,189 Å).

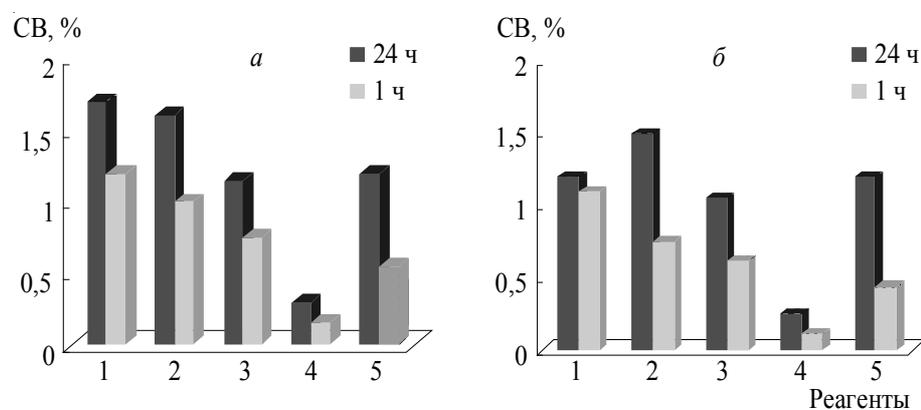


Рис. 4. Степень выщелачивания Na^+ (а) и радионуклидов (б) из порошков измельченных матриц различными реагентами (1 – 0,01 M HCl, 2 – 0,1 M HAc, 3 – 0,05 M ЭДТА, 4 – H_2O , 5 – 0,1 M NH_4OH) в течение 1 и 24 ч.

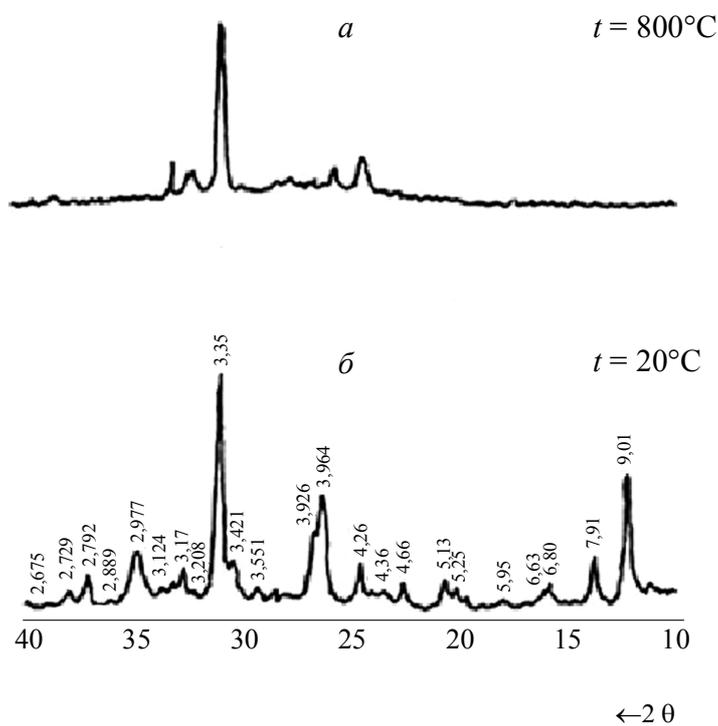


Рис. 5. Дифрактограмма керамической матрицы на основе монтмориллонита и клиноптилолита, обожженных при 800°C (а) (б – исходный образец).

Спекание сформованной матрицы приводит к заметному уменьшению доли кристаллических фаз, что проявляется в повышении уровня фона на дифрактограмме в интервале углов (20 – 40)°. Радионуклиды в керамической матрице распределяются, по-видимому, между исходными кристаллическими фазами, в том числе термически сжатым клиноптилолитом, и устойчивой стекловидной фазой, образующейся уже при 800°C за счет наличия ионов щелочных элементов, содержащихся в кубовых остатках, и играющих роль интенсификаторов твердофазных реакций. Жидкофазное спекание матриц вследствие возникновения стекловидных эвтектоидных расплавов и максимальная усадка характеризуются значительными величинами плотности, пониженными пористостью и водопоглощением. Образующийся микрорасплав покрывает частицы минералов, заполняя пустоты и задерживая проникновение воды во внутренние слои керамики. При температуре обжига 800°C сформованных образцов реализуется рациональное сочетание исходной кристаллической и образующейся стекловидной фаз, необратимо фиксирующих радионуклиды. Специальными анализами газов и аэрозолей, выделяющихся при обжиге полуфабрикатов, содержащих радионуклиды, установлено, что фиксируемое следовое выделение ¹³⁷Cs начинается при > 900°C [16] и исключает при низкотемпературной керамизации вторичное загрязнение окружающей среды.

Выводы. Значительное преимущество при захоронении радиоактивных отходов в керамических матрицах с низкой температурой обжига (за счет включения солей кубовых остатков – интенсификаторов спекания) заключается в том, что используются природные алюмосиликаты, которые являются эффективными сорбентами радионуклидов. Такие матрицы имеют достаточно высокие физико-механические свойства и химическую устойчивость, практически отсутствует вторичное загрязнение окружающей среды при низкотемпературном обжиге, что указывает на перспективность и целесообразность их применения как с экономической, так и экологической точек зрения.

Резюме. Вивчено можливість іммобілізації радіоактивних солей кубових залишків АЕС в керамічних матрицях на основі природних мінералів. Показано, що матриці складу клиноптилоліт–монморилоніт при вмісті солей кубового залишку ≈10 мас.% мають достатньо низькі значення водопоглинання та відкритої пористості (відповідно 0,1 та 1,0%). Керамічні зразки характеризувались високою хімічною стійкістю (оцінювалася за швидкістю та ступенем вилуговування іонів натрію та радіонуклідів).

IMMOBILIZATION OF RADIOACTIVE SALTS LIQUID WASTE RESIDUE IN CERAMIC MATRIXES

Summary

The possibility of immobilization of salt residues of NPP in ceramic matrix based on natural minerals studied. It is shown that the matrix of the clinoptilolite–monmorillonit in salt content still residue ≈ 10 wt. % have little or low values of water absorption and open porosity (0,1 and 1,0% respectively). Chemical durability of ceramic samples was estimated by the rate and degree of leaching of sodium and radionuclides.

Список литературы

- [1] Крот О.П., Козуб В.В. / Зб. Доп. XX Всеукр. наук. конф. "Охорона навколишнього середовища та раціональне використання природних ресурсів". – Донецьк: ДонНТУ, ДонНУ, 2010. – Вып. 2. – С.74 – 75.
- [2] Никифоров А.С., Куличенко В.В., Жихарев М.И. Обезвреживание жидких радиоактивных отходов. – М.: Энергоатомиздат, 1985. – 183 с.
- [3] Захарова К.П., Химченко О.М., Суханов Л.П. и др. // Атом. энергия. – 2007. – 103, №5. – С. 309 – 314.
- [4] Давыдов В.И., Костин В.В., Савин Л.Н. и др. // Там же. – 1995. – 79, №6. – С. 429 – 433.
- [5] Балувев А.В., Галкин Б.Я., Митяхина В.С. и др. // Радиохимия. – 2000. – 42, № 4. – С. 295 – 307.
- [6] Стефановский С.В., Юдинцев С.В., Никонов Б.С. и др. // Геоэкология. – 1996. – № 4. – С. 58 – 74.
- [7] Богданов Р.В., Кузнецов Р.А. // Радиохимия. – 2006. – 48, № 2. – С. 185 – 192.
- [8] Пузырная Л.Н., Криворучко А.П., Терликовский Е.В. // Химия и технология воды. – 2008. – 30, № 6. – С. 654 – 674.
- [9] Пузырная Л.Н., Криворучко А.П., Тимошенко Т.Г. и др. // Там же. – 2009. – 31, № 1. – С. 89 – 99.
- [10] Лащенкова Т.Н., Лифанов Ф.А., Соловьев В.А. // Радиохимия. – 1999. – 41, №2. – С.167 – 171.
- [11] ГОСТ 473.4-81. Изделия химически стойкие и термостойкие керамические. Метод определения кажущейся плотности и кажущейся пористости. – Введ. 01.07.1982.
- [12] ГОСТ 473.3-81. Изделия химически стойкие и термостойкие керамические. Метод определения водопоглощения. – Введ. 01.07.1982.
- [13] ГОСТ Р 52126-2003. Отходы радиоактивные. Определение химической устойчивости отвержденных высокоактивных отходов методом длительного выщелачивания. – Введ. 30.10.2003.
- [14] Унифицированные методы исследования качества вод: Методы радиохимического анализа вод. – М.: СЭВ, 1983. – Ч. 2. – С. 8 – 12.

- [15] *Марей А.Н., Белицкий А.С., Бархударов Р.М. и др.* Методические рекомендации по санитарному контролю за содержанием радиоактивных веществ в объектах внешней среды. – М.: Вторая типография МЗ СССР, 1980. – 336 с.
- [16] *Мартынов Б.В.* Обращение с радиоактивными отходами. – Киев: Техника, 1993. – 107с.