

РУТЕНИЙ В ТЕХНОЛОГИИ ОСТЕКЛЫВАНИЯ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ (ОБЗОР НАУЧНО-ТЕХНИЧЕСКОЙ ИНФОРМАЦИИ)

© 2021 г. О. А. Устинов, С. А. Якунин, Ю. А. Воскресенская*

*Высокотехнологический научно-исследовательский институт неорганических материалов
им. акад. А. А. Бочвара, 123098, Москва, ул. Рогова, д. 5а*

**e-mail: YAVoskresenskaya@bochvar.ru*

Получена 12.02.2020, после доработки 25.11.2020, принята к публикации 01.12.2020

Применительно к технологии остекловывания радиоактивных отходов установлено, что в растворах азотной кислоты рутений существует в виде нитратных комплексов, которые при нагревании разлагаются с выделением летучего RuO_4 при концентрации азотной кислоты выше 4 М. и при наличии разлагающихся при нагревании до NO_2 нитратов. Выделение RuO_4 при нагревании азотнокислых растворов подавляется введением восстановителей или удалением азотной кислоты из зоны реакции. Снижение летучести рутения возможно также созданием холодного защитного слоя на поверхности расплавленного стекла. RuO_4 неустойчив при температуре выше 100°C и разлагается до нелетучего RuO_2 , который каталитически ускоряет реакцию разложения. Наличие металлических поверхностей также ускоряет процесс разложения RuO_4 . Рассмотрены способы улавливания рутения из газовой фазы, показана нецелесообразность использования силикагеля для улавливания рутения.

Ключевые слова: ОЯТ, переработка, радиоактивные отходы, кальцинация, остекловывание, рутений.

DOI: 10.31857/S0033831121010023

ВВЕДЕНИЕ

При переработке отработавшего ядерного топлива (ОЯТ) образуются жидкие радиоактивные отходы, содержащие основную массу продуктов деления, в том числе и рутений, β -активность которого составляет около 60% активности всех продуктов деления [1]. Рутений в ОЯТ содержится в виде нескольких изотопов, из которых два радиоактивных: ^{103}Ru (период полураспада 39.5 сут), ^{106}Ru (период полураспада 1.01 года) [2].

При растворении ядерного топлива в азотной кислоте рутений может переходить в раствор в виде нитрозонитратных, нитрозонитро- и нитрозонитро-нитратных комплексов.

В литературе содержится много информации о свойствах рутения, но обобщающая характеристика его поведения в технологии остекловывания отсутствует. Для освещения этого вопроса в

настоящей статье собраны и рассмотрены сведения о формах существования рутения в азотнокислых растворах, об условиях его перехода в газовую фазу в виде RuO_4 , о его устойчивости и о способах улавливания из газового потока.

Соединения рутения в азотнокислых растворах. В литературе приводятся соединения рутения в азотнокислых растворах: нитрозотринитрат рутения в двух формах: $\text{RuNO}(\text{NO}_3)_3 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ и $\text{RuNO}(\text{NO}_3)_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$; нитрозодинитрат рутения $\text{RuNO}(\text{NO}_3)_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ и предполагаемый двудерный нитрозонитрат $(\text{RuNO})_2(\text{NO}_3)_4$. Следует отметить, что нитрозотринитрат рутения $\text{RuNO}(\text{NO}_3)_3 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ образуется в растворе азотной кислоты при восстановлении оксидом азота тетраоксида рутения или при действии на него концентрированной азотной кислоты [3].

Нитрозотринитрат рутения термически неустойчив, при температуре выше 130°C разрушается с

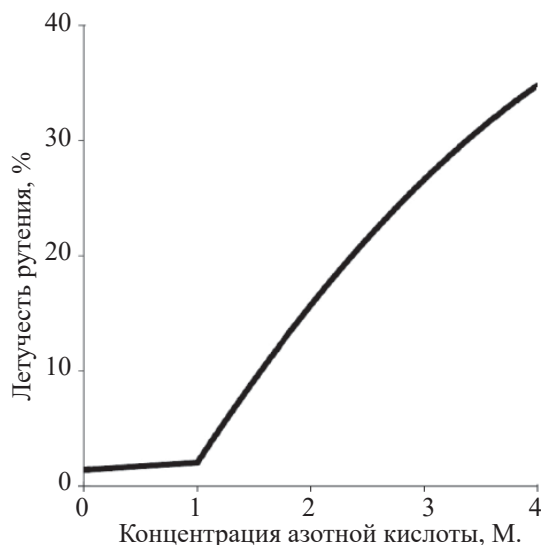
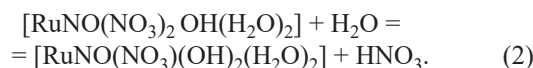
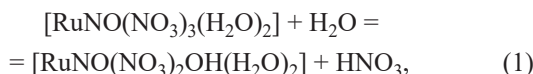


Рис. 1. Летучесть рутения в зависимости от концентрации азотной кислоты в ВАО (тигельное кальцинирование при 350°C) [8].

выделением азотнокислых паров и уносом рутения [4]. Нитрозотринитрат рутения гидролизуеться в водном растворе по реакциям (1), (2) [3]:

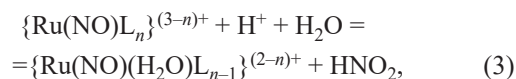


Нитрозодинитратные соединения $\text{RuNO}(\text{NO}_3)_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ и $\text{RuNO}(\text{NO}_3)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ образуются при восстановлении RuO_4 оксидом азота в сильно разбавленном азотнокислом растворе. Нитрозодинитратные соединения, по данным работы [3], термически устойчивы.

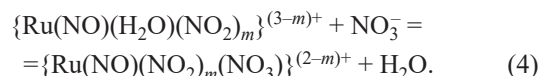
Авторы работы [4] обобщают: рутений в азотнокислых растворах присутствует в виде ранее идентифицированного и описанного ряда соединений $\text{RuNO}(\text{NO}_3)_x(\text{OH})_{3-x}(\text{H}_2\text{O})_2$, причем x изменяется, в частности, в зависимости от концентрации NO_3^- .

Более широкое обобщение приводится в работе [5], в которой отмечены формы нитрозонитрата рутения(III) типа $[\text{RuNO}(\text{NO}_3)_n(\text{H}_2\text{O})_{5-n}]^{3-n}$ или $[\text{RuNO}(\text{NO}_3)_{5-n-m}\text{OH}_m(\text{H}_2\text{O})_n]^{p-}$ (ранее описанные в работе [6]), либо форма полимерных аквагидроксокатионов рутения(IV) типа $[\text{Ru}(\text{OH})_x(\text{H}_2\text{O})_{6-x}](\text{NO}_3)_{4-x}$. Также в растворе могут присутствовать и ионы $\text{Ru}(\text{III})$ при наличии окисляющих агентов.

В работе [7] обнаружено, что в азотнокислых растворах с концентрацией HNO_3 0.1–3 М. помимо нитратных комплексов присутствуют нитрокомплексы нитрозила рутения $[\text{Ru}(\text{NO})(\text{H}_2\text{O})(\text{NO}_2)_3(\text{OH})]^-$ (ранее описанные в работе [6]), которые обладают значительной химической устойчивостью. При увеличении концентрации кислоты в растворе сначала увеличивается количество комплексных форм рутения. Последующий рост кислотности среды приводит к последовательному замещению нитро- и нитритолигандов на воду



где $\text{L} = \text{ONO}^-$, NO_2^- , сопровождающемуся появлением в системе комплексов рутения с координированным нитрат-ионом, доля которых становится существенной при концентрации HNO_3 более 1 М.:



Относительно слабые рутенийнитрозилнитратные комплексы в присутствии азотистой кислоты могут быть превращены в рутенийнитрозил-нитрокомплексы, которые разлагаются при 170°C с образованием летучего RuO_4 [8, 9].

В работе [8] приводится график зависимости летучести рутения от концентрации HNO_3 в растворах, подвергаемых кальцинации (рис. 1). Под летучестью здесь и далее понимается доля рутения, выделяющегося в газовую фазу.

Летучесть рутения зависит также от поступления диоксида азота при разложении присутствующих в маточнике нитратов [10]. Это наглядно видно на рис. 2. Начало интенсивного разложения нитрата обеспечивает повышение летучести рутения.

Итак, литературные данные по соединениям рутения в азотнокислых растворах, полученные в 1950–1960-х гг. в чисто химических исследованиях [3, 6, 9, 11], используются в более поздних исследованиях процессов переработки радиоактивных отходов, в т.ч. остекловывания [2, 8, 10].

Летучесть рутения. В литературе приводятся различные данные по летучести рутения. При кальцинации раствора, имитирующего концентрат низкообогащенных отходов (low enriched waste concentrate, LEWC) и содержащего, наряду с 84 г/дм³ нитратов различных металлов,

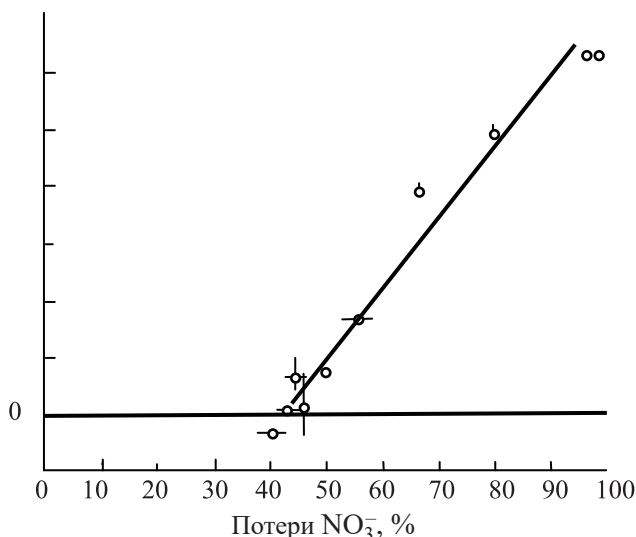


Рис. 2. Летучесть рутения в зависимости от концентрации нитрат-иона при термическом разложении имитатора отходов переработки топлива Magnox [9].

1 г/дм³ $\text{RuNO}(\text{NO}_3)_x$, при 1100°C в отходящие газы выделялось до 7 % Ru [12].

При остекловывании растворов, имитирующих отходы пурекс-процесса, летучесть рутения колебалась от 6.1 до 15%, что зависело, по мнению авторов, от возрастания содержания сульфатов и увеличения диаметра кальцинатора [13].

При повышенной температуре наблюдалось уменьшение летучести рутения. Так, в работе [14] сообщалось о летучести рутения в процессе кальцинации модельных растворов ~17% при 300°C, ~3.5% при 400°C, < 1% при 500–800°C.

В работе [8] сообщалось о выделении 15% рутения в виде RuO_4 при кальцинации и остекловывании высокоактивных отходов (BAO) на пилотной установке. Выделение рутения возрастало до 30% при 180°C в результате внесения в упариваемый раствор нитрата натрия. Авторы объясняют это образованием достаточно высокого количества нитрат-ионов в жидкой фазе, которые окисляют рутениевые компоненты до RuO_4 [15].

При кальцинации при 350°C нитратных BAO, содержащих 4 М. HNO_3 , в газовую фазу выделялось около 30% рутения [16].

В работе [4] утверждается, что испаряемое количество рутения в зависимости от рабочих условий может достигать 50% от введенного. В работе [17]

сообщалось, что при кальцинации в кипящем слое имитаторов отходов переработки топлива легководного реактора (light water reactor, LWR) при 375°C в газовую фазу выделялось до 100% рутения.

Информация по различиям в летучести рутения представлена в обобщающем материале МАГАТЭ [2], где также показано влияние разложения нитратов.

Различие в летучести рутения авторы работы [8] объясняют следующим образом. Термическая денитрация соли приводит к удалению NO_x с образованием щелочного осадочного кальцината (оксида металла). Щелочная оксидная матрица фиксирует рутений в форме рутената и подавляет образование летучего RuO_4 , который обычно образуется при концентрировании раствора HNO_3 . Если термическая денитрация медленная, добавление кислотной загрузки приводит к созданию высокой местной кислотности с выделением летучего RuO_4 , т.е. повышение концентрации NO_3^- способствует летучести рутения.

Некоторые данные по испарению и удержанию рутения перечислены в табл. 1.

Свойства RuO_4 . Температура плавления RuO_4 25.4°C, при нагревании от комнатной температуры до 100–110°C RuO_4 разлагается со взрывом, пары устойчивы только при температуре выше 1000°C. При высокой температуре пары тетраоксида рутения очень устойчивы и их разложение имеет обратимый характер. Это связано с тем, что реакция образования тетраоксида рутения из металла и кислорода менее экзотермична, чем реакция образования диоксида рутения. Поэтому при температурах выше 1000°C, когда в уравнении для свободной энергии ($\Delta G = \Delta H - T\Delta S$) энтропийный член становится больше энтальпийного, термодинамическое равновесие между диоксидом и тетраоксидом рутения смещается в сторону образования тетраоксида, и диоксид диссоциирует на тетраоксид и металл. Ниже 600°C преобладающей реакцией является разложение тетраоксида на диоксид и кислород [3].

Найдено [18], что кинетика восстановления RuO_4 зависит от присутствия водяного пара. Влажность, по-видимому, играет роль катализатора, так же как и присутствие осадка диоксида рутения.

Авторы работы [10] провели исследование стабильности RuO_4 и установили следующее: RuO_4

Таблица 1. Испарение и удержание рутения в различных процессах отверждения жидких ВАО (средние величины) [2]

Тип кальцинации	Завод/проект ^а	Страна	Потери Ru в газовую фазу, ^б %
Кальцинация в кипящем слое	WCF ^в	США	50 ^г
Распылительная кальцинация	WSEP	США	60 ^д
	HLWIP	США	10 ⁻³ –10 ⁻¹
Кальцинирование во вращающейся печи	AVM	Франция	30
	WSEP	США	20
	Fingal	Великобритания	30
Тигельная кальцинация	Harvest	Великобритания	40 ^е
	Piver	Франция	15
	—	Индия	20
Керамический плавитель с жидкой загрузкой	—	СССР	80
	—	США	10 ⁻¹
	—	ФРГ	20

^а WCF – Waste Calcination Facility; WSEP – Waste Solidification Engineering Prototypes; HLWIP – High-Level Waste Immobilization Program.

^б Включая рутений в газообразной форме и частицы; без восстановителей.

^в Без остекловывания.

^г С непрямым нагревом; в кипящем слое потери рутения в 10 раз меньше.

^д С непрямым нагревом; в кипящем слое потери рутения около 10%.

^е Загрузка пульпой; загрузка частицами около 10%.

разлагается при температуре выше 120°C в течение десятков секунд; моментальное разложение происходит в присутствии восстанавливающих веществ, таких как NO и HNO₂.

На металлических поверхностях при температуре выше 100°C RuO₄ разлагается или до RuO₂, или до металлического рутения, который взаимодействует с металлической поверхностью. RuO₂ или металлический рутений взаимодействует с новой порцией RuO₄, обеспечивая таким образом протекание автокаталитической реакции [4, 8].

RuO₄, обладая значительной растворимостью в кислотных растворах (0.07–0.10 ммоль/дм³) восстанавливается в них пероксидом водорода, образующимся при облучении воды или азотистой кислоты [9, 19].

В случае присутствия в газовом потоке NO₂ вместе с RuO₄ при мольном соотношении NO₂/RuO₄ = 189 доля тетраоксида рутения в газовой фазе снижается в 168 раз, а в присутствии NO в соотношении NO/RuO₄ = 22 – в 1180 раз [20].

В работе [12] помимо RuO₄ упоминается летучее соединение нитрозилрутения RuNO, которое образуется или путем частичного разложения нитрозилнитрата при прокаливании его растворов в азотной

кислоте, или при взаимодействии RuO₄ с NO_x. По утверждению авторов указанной работы, RuNO более стабилен, чем RuO₄, легче адсорбируется на силикагеле (десятикратное увеличение емкости) при температуре до 120°C, каталитически восстанавливается на Fe/Cr при 300°C, имеет более низкое давление пара, чем RuO₄. При 20°C парциальное давление RuNO ниже 196 Па, тогда как соответствующее парциальное давление RuO₄ составляет 980 Па.

Однако авторы работы [10] при изучении растворения имитатора топлива Magnox отметили отсутствие убедительных доказательств существования летучего соединения нитрозила рутения или других газообразных соединений Ru, кроме RuO₄.

Снижение летучести рутения. Как сказано выше, снижению летучести рутения способствует связывание его в нелетучие рутенаты отгонкой азотнокислых паров [8].

Другим способом фиксации соединений рутения в азотнокислых растворах и уменьшения его летучести является использование восстановителей, таких как фосфит, гипофосфит, нитрит, формальдегид, муравьиная кислота и сахар. Восстановители (например, NO, H₂O₂) могут образовываться в растворе в результате радиолиза [2].

Наиболее применяемым способом минимизации летучести RuO_4 является разложение HNO_3 добавлением муравьиной кислоты [8]. Как сообщалось в этой работе, из кислотных ториевых нитратных отходов при температуре 250–300°C испарялось 26.2 и 27.5% рутения соответственно. Когда эти же отходы предварительно обрабатывали муравьиной кислотой в количестве 2.0 моль на моль нитрата, доля испарения снижалась до 0.07 и 0.15% соответственно. Испарение могло быть снижено до 0.007% добавлением 15%-ного избытка муравьиной кислоты. Декарбоксилирование рутениевоформиатного комплекса ведет к образованию нелетучего RuO_2 . Для восстановления RuO_4 также могут быть добавлены малые количества щавелевой кислоты [8]. По утверждению авторов работы [21], RuO_4 в водных растворах восстанавливается большинством органических веществ до гидратированного диоксида.

Еще одним способом снижения летучести рутения является создание холодного слоя над расплавленным стеклом, что существенно (в 6–10 раз) снижает летучесть рутения [22, 23].

Улавливание летучего рутения. В нашей предыдущей работе способы улавливания тетраоксида рутения подробно перечислены и систематизированы [24]. Они включают жидкостные, сорбционные на твердых сорбентах (силикагель, оксид железа, оксид хрома), хемосорбционные на угле, пропитанном триэтилендиамином, а также каталитические восстановительные.

Отдельного рассмотрения требует вопрос применения силикагеля для улавливания RuO_4 .

В проекте Pamela [12] применительно к технологии остекливания рассмотрена физическая адсорбция на силикагеле при температуре ниже 80°C, выше этой температуры адсорбционная способность резко снижается. Вторым барьером для Ru в проекте после пылевого скруббера в линии отходящего газа изначально был слой силикагеля, работающий при 120°C. Такой фильтр, который давал великолепные результаты, когда помещался на выходе из кальцинатора, оказался бесполезным после пылевого скруббера. Это может быть объяснено тем, что фильтры из силикагеля были разработаны для улавливания газообразных соединений рутения, тогда как после насадочного пылевого скруббера присутствуют только твердые аэрозоли RuO_2 .

В окончательном проекте установки Pamela было решено отказаться от силикагелевого фильтра.

Югославские авторы [25] обсуждали адсорбцию газообразного RuO_4 на голубом силикагеле, который содержал железо, кобальт, никель и хром. Испытания проводили при 25°C, относительной влажности 60% и времени контакта 0.3 с. В этих испытаниях было показано, что голубой силикагель удерживал 97.3–99.9% испаренного рутения. При этом на гранулах силикагеля образовывался черный осадок. По-видимому, примеси восстанавливали RuO_4 до RuO_2 .

На силикагеле получен высокий КО (>100) при температуре ниже 90°C (но выше точки росы газового потока), и силикагель мог быть частично регенерирован промывкой водой и полностью регенерирован промывкой 0.1 М. азотной кислотой. Более поздний опыт показал, что примеси (в частности, железо) в первоначально использованном силикагеле имели значительное влияние на возможность удаления Ru, т.е. силикагель адсорбирует RuO_4 , а примесь железа его восстанавливает до RuO_2 [26].

В работах [27, 28] серьезная надежда возлагалась на колонны, заполненные силикагелем в качестве сорбента для улавливания RuO_4 . Для регенерации силикагеля рутений вымывали из колонны водой (примерно 90% адсорбированных соединений рутения могут быть смыты горячей водой), т.е. улавливание силикагелем является ненадежной фиксацией рутения.

Если использовать силикагель, то его надо или нагреть выше 110°C, или пропитать восстановителями. Но силикагель неустойчив при температурных и влажностных перепадах, гигроскопичен и подвержен радиационному разрушению; следовательно, применять его для улавливания RuO_4 в любом виде нецелесообразно.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Летучесть рутения в зависимости от условий процесса изменяется в широких пределах. Показано, что рутений в растворах азотной кислоты существует в виде многочисленных комплексов, которые при нагревании разлагаются с выделением летучего RuO_4 при условии концентрации азотной кислоты выше 4 М. и при наличии разлагающихся до NO_2

нитратов. RuO_4 неустойчив при температурах выше 100°C и разлагается до нелетучего RuO_2 , наличие которого катализирует разложение RuO_4 . Наличие металлических поверхностей также ускоряет процесс разложения RuO_4 . Выделение RuO_4 при нагревании азотнокислых растворов подавляется введением восстановителей или удалением азотной кислоты из зоны реакции. Снижение летучести рутения возможно также созданием защитного холодного слоя на поверхности расплавленного стекла. Рассмотрены способы улавливания рутения из газовой фазы, показана нецелесообразность использования силикагеля.

КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Matus L., Prokopiev O., Alföldy B., Pinter A., Hozer Z.* Oxidation and Release of Ruthenium in High Temperature Air. Budapest: KFKI Atomic Energy Research Institute, 2002. 44 p.
2. Control of Semivolatile Radionuclides in Gaseous Effluents at Nuclear Facilities: Tech. Rep. Ser. N 220. Vienna: IAEA, 1982. 68 p.
3. *Звягинцев О.Е., Колбин Н.И., Рябов А.Н., Автократова Т.Д., Горюнов А.А.* Химия рутения. М.: Наука, 1965. 300 с.
4. *Jouan A., Bonniaud R., Laude F., Sombret C.* // Proc. Seminar on Radioactive Effluents from Nuclear Fuel Reprocessing Plants (Karlsruhe, Nov. 23–25, 1977). Luxembourg: Commission of European Communities, 1978. P. 621–652.
5. *Гинзбург С.И., Езерская Н.А., Прокофьева И.В.* Аналитическая химия платиновых металлов. М.: Наука, 1972. 616 с.
6. *Walles R.M.* // J. Inorg. Nucl. Chem. 1961. Vol. 20. P. 283–289.
7. *Кабин Е.В.* Образование и превращения нитрато-комплексов нитрозорутения в нитритно-нитратных азотнокислых растворах: Автореф. дис. ... к. х. н. Новосибирск: ИНХ СО РАН, 2012. 24 с.
8. *Rimshaw S.J., Case F.N., Tompkins J.A.* Volatility of Ruthenium-106, Technetium-99 and Iodine-129, and the Evolution of Nitrogen Oxide Compounds during the Calcination of High-Level, Radioactive Nitric Acid Waste: Oak Ridge Natl. Lab. Rep. ORNL–5562. 1980. 49 p.
9. *Fletcher J.M.* // J. Inorg. Nucl. Chem. 1958. Vol. 8. P. 277–287.
10. *Cains P.W., Yewer K.C., Waring S.* Radiochim. Acta. 1992. Vol. 56. P. 99–104.
11. *Fletcher J.M., Jenkins I.L., Lever F.M., Martin F.S., Powell A.R., Todd R.* // J. Inorg. Nucl. Chem. 1955. Vol. 1. P. 378–401.
12. *Klein M., Weyers C., Goossens W.R.A.* // Proc. 18th DOE Nuclear Airborne Waste Management and Air Cleaning Conf. Held in Baltimore, Maryland, 12–16 August, 1984. CONF-840806. 1985. Vol. 1. P. 702–731.
13. *McElroy J.L., Hartley J.N., Mendel J.E., Richardson G.L.* Pot Solidification Performance during Final Radioactive Tests in Waste Solidification Engineering Prototypes. Waste Solidification Program. Vol. 9. BNWL–1628. Richland, Washington: Battelle Pacific Northwest Lab., 1972. 216 p.
14. *Igarashi H., Kato K., Takahashi T.* // J. Nucl. Sci. Technol. 1992. Vol. 29. P. 576–581.
15. *Kayo S., Yasuyuki U., Youichi E.* // Procedia Chem. 2016. Vol. 21. P. 82–86.
16. *Ross W.A., Mendel J.E., Bradley D.J., Roberts F.P., Bunnell L.R., Turcotte R.P., Gray W.J., Wald J.W., Katayama Y.B., Weber W.E., Mellinger G.B., Westsik J.H.* Annual Report on the Characteristics of High-Level Waste Glasses. BNWL–2252. Richland, Washington: Battelle Pacific Northwest Lab., 1977. P. 81.
17. *Korn D., McWhorter R., Field E.L., Raudenbush M., Goldstein L., Stoller S.M.* Technical Support of Standards for High-level Radioactive Waste Management. Vol. B: Engineering Controls. EPA 520/4–79-007B. Cambridge, Massachusetts: Arthur D. Little, 1977. 273 p.
18. *Mun C., Cantrel L., Madic C.* // Radiochim. Acta. 2007. Vol. 95. P. 643–656.
19. *Anderson J.S., McConnell J.D.M.* // J. Inorg. Nucl. Chem. 1955. Vol. 1, N 6. P. 371–377.
20. *Mun C., Cantrel L., Madic C.* // Nucl. Technol. 2006. Vol. 156, N 3. P. 332–346.
21. *Matsuoka S., Kodama T., Izumi I.* // J. Nucl. Sci. Technol. 2004. Vol. 41, N 4. P. 466–472.
22. *Goles R.W., Perez J.M., MacIsaac B.D., Siemer D.D., McCray J.A.* Test Summary Report INEEL Sodium-Bearing Waste Vitrification Demonstration RSM-01-1. PNNL-13522. Richland, Washington: Pacific Northwest National Lab., 2001. 225 p.
23. *Goles R.W., DelDebbio J.A., Kirkham R.J., MacIsaac J.A.,*

- McCray J.A., Siemer D.D., Soelberg N.R.* Test Summary Report INEEL Sodium-Bearing Waste Vittrification Demonstration RSM-01-2. PNNL-13869. Richland, Washington: Pacific Northwest National Lab., 2002. 18 p.
24. *Воскресенская Ю.А., Устинов О.А., Якунин С.А.* // Атом. энергия. 2013. Т. 115, вып. 1. С. 155–158.
25. *Vujisić Lj., Nikolić R.* // Proc. 17th DOE/NRC Nuclear Air Cleaning and Treatment Conf. Cambridge, MA: Harvard Air Cleaning Lab., 1983. P. 123–130.
26. CD-ROM: Capture, Retention and Conditioning of Gaseous Radioactive Waste. Annex to Treatment of Radioactive Gaseous Waste. Vienna: IAEA, 2014. 494 p.
27. *Christian J.D., Pence D.T.* Critical Assessment of Methods for Treating Airborne Effluents from High-level Waste Solidification Processes: Report PNL-2486. Richland, Washington: Battelle Pacific Northwest Labs, 1977. 162 p.
28. *Schindler R.E.* // Proc. 15th DOE Nuclear Air Cleaning Conf. Held in Boston, MA, 7–10 August 1978. 1979. Vol. 1. P. 82–94.