

ВЛИЯНИЕ МИКРОБИОЛОГИЧЕСКИХ ПРОЦЕССОВ НА БЕЗОПАСНОСТЬ ОБРАЩЕНИЯ С РАО



MICROBIOLOGICAL ASPECTS OF SAFETY IN RADIOACTIVE WASTE MANAGEMENT



Б.Г. ЕРШОВ, чл.-корр. РАН,
А.В. САФОНОВ, к.х.н. (ИФХЭ РАН),
Т.Н. НАЗИНА, д.б.н. (ИНМИ РАН),
О.А. ГОРБУНОВА, к.х.н. (ГУП МосНПО «Радон»)

B.G. YERSHOV, Corr. Member of RAS,
A.V. SAFONOV, Cand. of Chem. Sc. (IPCE RAS),
T.N. NAZINA, D-r of Biol. Sc. (INMI RAS),
O.A. GORBUNOVA, Cand. of Chem. Science
(SIA Radon Moscow)

При долговременном хранении и/или захоронении радиоактивных отходов важную, а в ряде случаев определяющую роль играют микробиологические процессы. Микробиологический мониторинг, нацеленный на контроль и прогноз развития этих процессов, имеет большое значение для обеспечения необходимого уровня радиационной безопасности объектов локализации РАО.

In long-term storage and/or disposal of radioactive waste, microbiological processes play an important, and in some cases a vital role. Accordingly, microbiological monitoring is an important factor, which follows and predicts these processes in order to provide for the required level of radiation safety at radwaste repositories.

В Российской Федерации длительная изоляция жидких РАО осуществляется преимущественно в глубоко залегающих водоносных горизонтах, а отвержденных форм отходов – в цементных и стеклянных матрицах в приповерхностных хранилищах [1]. При этом проводится мониторинг радиоэкологической безопасности хранилищ и прогнозирование нежелательных и потенциально опасных процессов, таких как разогрев хранилища, газообразование, миграция радионуклидов [2].

In the Russian Federation long-term isolation of liquid radwaste is carried out predominantly in deep-lying aquifers, whereas solidified waste is contained inside cement and glass matrices and placed into near-surface repositories [1]. Radioecological safety of the repositories is monitored, and predictions are made for the development of undesired and potentially dangerous processes, such as temperature rise, gas generation and migration of radionuclides [2].

На Горно-химическом и Сибирском химическом комбинатах, а также в МосНПО «Радон» на протяжении ряда лет проводятся комплексные исследования влияния микроорганизмов на безопасность долговременного хранения РАО [3-7].

Enterprises such as the Mining Chemical Combine, Siberian Chemical Combine and Radon Moscow have for a number of years been performing integrated research of the impacts that microorganisms are making upon the safety of long-term radwaste storage [3-7].

Основную долю РАО ($\geq 95\%$) составляют низкоактивные жидкие отходы. В их состав входят нитрат и сульфат натрия, ацетат, поверхностно-активные вещества, экстрагенты и разбавители. Радиохимический состав – ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{239}Pu ; $\Sigma\beta < 1 \cdot 10^{-5}$ Ки/дм³. В настоящее время установлено, что физико-химические преобразования макрокомпонентов ЖРО обусловлены радиационно-термическими и микробиологическими процессами [8]. Жизнедеятельность микроорганизмов также инициирует разрушение цементных матриц с РАО.

The vast majority of radwaste ($\geq 95\%$) is represented by low-level liquid wastes. Their compositions tend to include sodium nitrate and sulphate, acetate, surface-active substances, extractants and diluents. Their radiochemical compositions include ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{239}Pu ; $\Sigma\beta < 1 \cdot 10^{-5}$ Ci/dm³. It has currently been established that physical and chemical transformations of liquid radwaste macro-components are attributable to radiation-thermal and microbiological processes [8]. Growth of microorganisms can also trigger deterioration of cement matrices.

Микроорганизмы могут влиять на функционирование хранилищ РАО в результате их воздействия на геохимические параметры подземного местообитания [3-5]. Это воздействие многообразно и включает:

Microorganisms can influence functioning of radwaste repositories upon impacting geochemical parameters of their underground habitats [3-5]. This impact is diverse and includes the following:

- влияние микроорганизмов на состав и миграцию радионуклидов (биосорбция, биоаккумуляция и диссимиляционное восстановление металлов и металлоидов, например, U (VI), Se (VI), Cr (VI), Hg (II), Tc (VII), V (V), Au (III), Ag (I) и т.д.);

- impact of microorganisms upon the composition and migration of radionuclides (bio-sorption, bio-accumulation and dissimilatory reduction of metals and metalloids, for example U (VI), Se (VI), Cr (VI), Hg (II), Tc (VII), V (V), Au (III), Ag (I), etc.);

- ускорение миграции радионуклидов при их перемещении вместе с микроорганизмами или замедление миграции при концентрировании в биопленках;

- increased migration of radionuclides captured by microorganisms or, conversely, inhibited migration when radionuclides build up in biofilms;

- biogenous generation of gases (N_2 , H_2S , CH_4 , CO_2), caused by biological activities of denitrifying, sulphate-reducing and methane-producing microorganisms;

- биогенное газообразование (N_2 , H_2S , CH_4 , CO_2), вызванное жизнедеятельностью денитрифицирующих, сульфатредуцирующих и метанообразующих микроорганизмов;
- формирование новых минеральных фаз с включением радионуклидов;
- образование комплексообразующих и агрессивных к минеральным породам соединений;
- изменение величин pH и Eh и другие процессы.

МИКРОБИОЛОГИЧЕСКИЕ ПРОЦЕССЫ В ГЛУБИННЫХ ХРАНИЛИЩАХ ЖИДКИХ НАО

Поскольку ионизирующее излучение радиоактивных изотопов подавляет жизнедеятельность биоты, заметное влияние микроорганизмов на ЖРО ограничивается в основном отходами с низким уровнем активности.

В пластовой жидкости хранилищ ЖРО на полигонах ГХК и СХК обнаружено разнообразное сообщество микроорганизмов, способных осуществлять аэробное окисление органических веществ, а также процессы брожения, денитрификации, сульфатредукции и метаногенеза (рис. 1). Наиболее многочисленной (при содержании нитрат-ионов в пласте $\sim 0,5$ г/дм³) была группа денитрифицирующих микроорганизмов, которые окисляют органические вещества в присутствии воздуха и способны переключаться на анаэробный метаболизм в его отсутствие.

В биохимических процессах, происходящих в жидких РАО, органические соединения выступают в качестве доноров электронов, а кислород и нитрат-ионы – акцепторов электронов. В процессе метаболизма образуются азот, углекислый газ и органические кислоты. Например, в присутствии уксусной кислоты и нитратов (основных макрокомпонентов ЖРО) стехиометрия процесса денитрификации может быть описана следующим уравнением:



Следствием микробиологических окислительно-восстановительных реакций является то, что при нагнетании нитратсодержащих жидких РАО в подземные горизонты активизируется жизнедеятельность денитрифицирующих микроорганизмов в пластовых жидкостях. При этом обнаруживается прямая корреляция между концентрацией в ЖРО нитратов и численностью денитрифицирующих микроорганизмов: при уменьшении концентрации нитратов вдоль контура распространения отходов численность микроорганизмов снижается (рис. 2).

Лабораторные эксперименты показали, что микроорганизмы в пластовой воде, обогащенной нитрат- и ацетат-ионами (2 г/дм³ и 4 г/дм³ соответственно), восстанавливают внесенные нитраты в экологически безопасный молекулярный азот за 25 суток (рис. 3).

Перенос данных, полученных в лабораторных условиях, на процессы, протекающие в специфических условиях подземного хранилища, затруднен. Тем не менее, можно ожидать, что микробиологические преобразования химического состава ЖРО протекают также достаточно быстро. Это, в свою очередь, будет определять химическое состояние и поведение радиоактивных изотопов, в частности, их миграцию. Результаты экспериментов свидетельствуют, что бактерии, обитающие в пластовой жидкости хранилища, способны уменьшать токсичность радиоактивных отходов, обусловленную наличием нитрат-ионов (рис. 3). Из пластовой воды выделен ряд штаммов таких денитрифицирующих бактерий.

Присутствие нитрат-ионов в РАО значительно ухудшает сорбционные свойства пород, вмещающих радионуклиды, а также может ингибировать микробное восстановление ²³³U (VI).

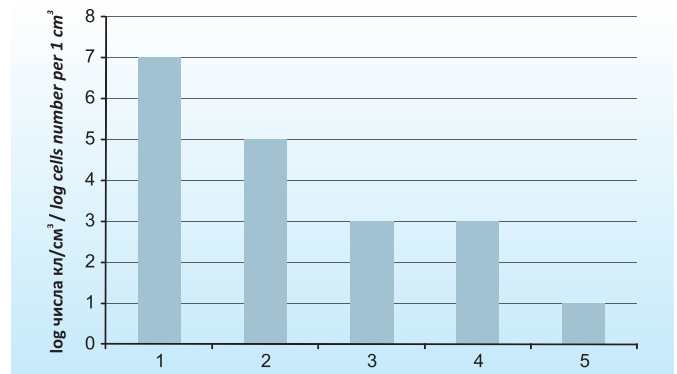


Рис. 1. Численность микроорганизмов (клеток в 1 см³) основных физиологических групп в пробе жидкости из скважины, находящейся в зоне распространения НАО (ГХК, полигон «Северный»): 1 – денитрифицирующие; 2 – сульфатредуцирующие; 3 – бродительные; 4 – метанообразующие и 5 – металлвосстанавливающие

Fig. 1. The number of microorganisms (as log cells number per 1 cm³) representing the main physiological groups found in the liquid sample collected from a well within the LLW presence zone (MCC site, Severny waste repository): 1 – denitrifying; 2 – sulphate-reducing; 3 – fermenting; 4 – methane-producing; 5 – metal-reducing

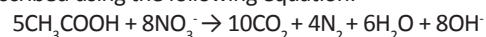
- formation of new mineral phases with radionuclide inclusions;
- formation of compounds that are chelating and aggressive to mineral rock;
- changes in pH and Eh values and other processes.

МИКРОБИОЛОГИЧЕСКИЕ ПРОЦЕССЫ В ПОДЗЕМНЫХ ЖИДКОСТЯХ РАО

As ionising radiation emitted by radioactive isotopes suppresses life activity of the biota, noticeable impact of microorganisms upon liquid radwaste is primarily limited to the wastes that have relatively low levels of radioactivity.

The stratal waters in the liquid radwaste disposal sites at the MCC and SCC sites have been found to contain a variety of microorganisms capable of producing aerobic oxidation of organic matter, as well as fermentation, denitrification, sulphate-reduction and methane-generation (see fig. 1). The most numerous (with nitrate ion content in the layer of $\sim 0,5$ g/dm³) was the denitrifying group of microorganisms, which cause oxidation of organic substances in the presence of air and can switch to anaerobic metabolism when it is absent.

In biochemical processes that occur in liquid radwaste, organic compounds act as donors of electrons, with oxygen and nitrate ions acting as acceptors of electrons. The metabolism process generates nitrogen, carbon dioxide and organic acids. For example, in the presence of acetic acid and nitrates (key macro-components of liquid radwaste), the stoichiometry of the denitrification process may be described using the following equation:



A consequence of microbiological oxidation and reduction processes is that when nitrate-containing liquid radwaste is injected into underground layers, life activities of denitrifying microorganisms in bed waters tend to intensify. There appears to be a direct correlation between the concentration of nitrates in the liquid radwaste and the number of denitrifying microorganisms: when nitrate concentration along the boundary of the waste dissemination zone goes down, so does the number of microorganisms (see fig. 2).

Laboratory experiments have demonstrated that microorganisms in stratal water enriched in nitrate- and acetate-ions (2 g/dm³ and 4 g/dm³, respectively), reduce incoming nitrates to environmentally safe molecular nitrogen within 25 days (see fig. 3).

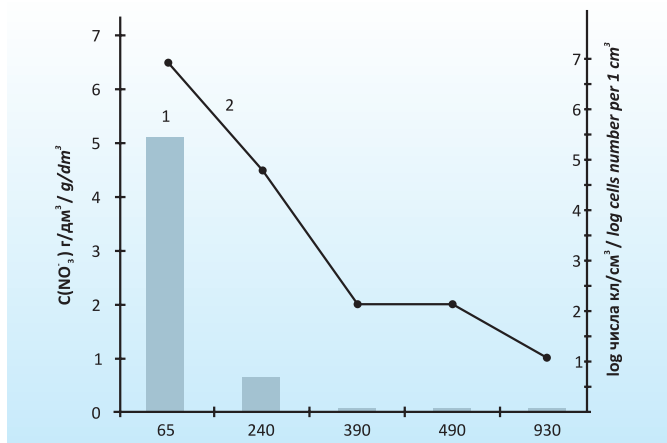


Рис. 2. Концентрация нитрат-ионов (1) и численность денитрифицирующих микроорганизмов (2) в пробах, отобранных в 2004 году из скважин глубокого хранилища ЖРО (ГХК, полигон «Северный»), расположенных на разном расстоянии от нагнетательных скважин

Fig. 2. Nitrate-ions concentration (1) and number of denitrifying microorganisms (2) in samples collected in 2004 from wells in the deep liquid radwaste repository (MCC site, Severny waste repository), located at various distances from the injection wells

Поэтому можно ожидать, что снижение содержания нитратов в пласте будет способствовать улучшению экологической безопасности подземных хранилищ жидких РАО.

Большинство аэробных бактерий, выделенных на полигонах СХК и ГХК, способны сорбировать (аккумулировать) актиниды и другие трансурановые элементы, входящие в состав отходов (Pu (IV), Np (V), U (VI), Am (III) и Sr (II)), и не сорбируют ¹³⁷Cs. В лабораторных экспериментах в минеральной среде с нейтральными значениями pH максимальное извлечение биомассой ²³⁸Pu составляло 77%, ²³⁷Np – 92%, ²³³U – 76%, ²⁴¹Am – 72%, ⁹⁰Sr – 33% [4]. Однако вклад биосорбции актинидов в пластовой жидкости представляется незначительным в сравнении с преобладающей их сорбцией на огромной массе вмещающих пород. В пластовой жидкости хранилищ СХК обнаружены бактерии рода Shewanella, восстанавливающие ²³³U (VI) и ²³⁷Np (V) в присутствии разных органических субстратов, что свидетельствует о возможности биогенного осаждения и концентрирования радионуклидов в глубоком хранилище ЖРО [5].

В результате денитрификации в пластовой жидкости происходит накопление газов, что может привести к аварийным ситуациям – изменению проницаемости пласта, выбросу газированной жидкости на поверхность и т.д. Из расчетов, учитывающих стехиометрию окислительно-восстановительной реакции нитрат- и ацетат-ионов, следует, что при полном разложении нитрата внутри контура распространения отходов на глубине 200-300 м при повышенном давлении возможно перенасыщение пластовой воды образующимися биогенными газами – азотом и углекислым газом. Прежде всего, следует ожидать перенасыщения азотом, несмотря на то, что его объем в 2,5 раза меньше, чем углекислого газа. Это вызвано высокой растворимостью и химической фиксацией углекислого газа в воде и на породе. Однако в целом из-за диффузии и растянутого во времени образования газ, по-видимому, будет постепенно перераспределяться по объему хранилища. Вследствие этого будет снижаться общее давление газа, что уменьшает вероятность перенасыщения им пластовой жидкости. Беспокойство скорее должны вызывать локальные выделения газа в свободных объемах (полостях), снижение проницаемости пласта и возникно-

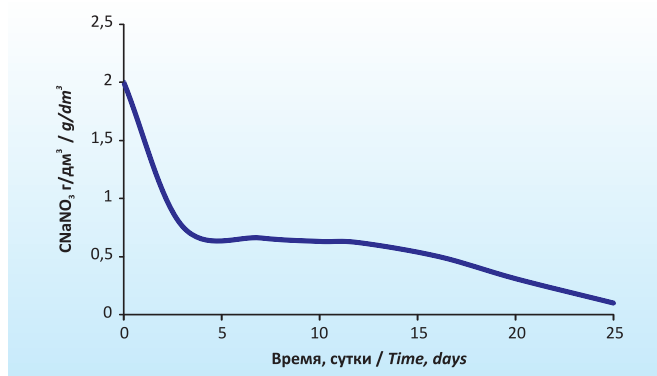


Рис. 3. Изменение концентрации нитрат-ионов при температуре 20°C в среде с сообществом микроорганизмов из пластовой жидкости глубокого хранилища РАО, ГХК

Fig. 3. Variation in nitrate-ions concentration at 20°C temperature in a medium containing a community of microorganisms from formation fluid of a deep radwaste repository, MCC site

It is difficult to extrapolate data obtained in laboratory conditions to processes that occur in the highly specific conditions of an underground waste disposal site. Nevertheless, it is to be expected that microbiological transformations of the chemical compositions of liquid radwaste also tend to occur sufficiently fast. This, in its turn, will determine the chemical state and behaviour of radioactive isotopes, in particular, their migration. Experimental results provide evidence that bacteria inhabiting stratal waters of disposal sites can reduce toxicity of radioactive waste attributable to the presence of nitrate-ions (fig. 3). Several strains of such denitrifying bacteria have been isolated from stratal water samples.

The presence of nitrate-ions in radwaste causes a significant reduction in the sorption properties of host rock that contains radionuclides, and can also inhibit microbial reduction of ²³³U (VI). Hence, it is to be expected that reduction in the nitrate content in the layer will actually work to improve the level of environmental safety at underground liquid radwaste disposal sites.

The majority of aerobic bacteria that have been identified at the disposal sites of SCC Seversk and MCC Zheleznogorsk, are capable of sorbing (accumulating) actinides and other transuranic elements included in the waste (Pu (IV), Np (V), U (VI), Am (III) and Sr (II)), and fail to sorb ¹³⁷Cs. Laboratory experiments in a mineral environment with neutral pH values have demonstrated the highest rate of biotic extraction of ²³⁸Pu of 77%, ²³⁷Np of 92%, ²³³U of 76%, ²⁴¹Am of 72%, and ⁹⁰Sr of 33% [4]. However, this contribution of actinide biosorption in stratal water appears insignificant when compared to the vastly prevalent sorption of radionuclides by the enormous mass of host rock. Stratal waters at the disposal sites of SCC have been found to contain the Shewanella species of bacteria, which act to reduce ²³³U (VI) and ²³⁷Np (V) in the presence of various organic substrates, providing evidence that it is possible for biogenous deposition and concentration of radionuclides to occur in deep liquid radwaste disposal sites [5].

As a result of denitrification, stratal waters tend to accumulate gases, potentially leading to accidental situations – change in layer permeability, release of gasified liquid out onto the surface, etc. Calculations have been made to account for oxidation stoichiometry and reduction reactions in nitrate- and acetate-ions, which demonstrate that with complete decomposition of nitrate inside the waste-containing zone at the depths of 200-300 metres with elevated pressure, it is possible for stratal water to become oversaturated with biogenous gases such as nitrogen and carbon dioxide. Oversaturation with nitrogen is primarily to be expected, despite its volume being 2.5

вление коагуляционных явлений. Эти и другие обстоятельства необходимо учитывать для обеспечения безопасной эксплуатации подземных хранилищ ЖРО.

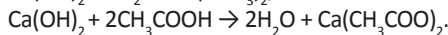
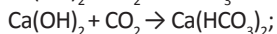
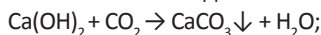
Таким образом, биогенное преобразование жидких НАО в подземных хранилищах происходит за счет жизнедеятельности микроорганизмов различных физиологических групп и заключается в снижении концентрации нитрата натрия, органических веществ, образовании углекислого газа, и, при определенных условиях, сорбции трансурановых элементов.

МИКРОБИОЛОГИЧЕСКАЯ ДЕСТРУКЦИЯ ЦЕМЕНТИРОВАННЫХ РАО

На ГУП МосНПО «Радон» исследованы микробиоценозы нитратсодержащих цементных компаундов с РАО, изъятых из приповерхностных объектов после 40 лет хранения. В образцах измельченного цементного компаунда, так же, как и в глубинных хранилищах СХК и ГХК, обнаружены денитрифицирующие, бродильные и сульфатредуцирующие бактерии численностью 10^2 - 10^4 КОЕ (колониеобразующих единиц) на 1 см^3 компаунда. Выделены в чистую культуру бактерии родов *Bacillus*, *Pseudomonas*, *Rhodococcus*, *Alcaligenes*, *Micrococcus*, *Mycobacterium*, *Arthrobacter*, *Flavobacterium*.

В лабораторных условиях было проведено культивирование проб цементных компаундов в минеральной среде (субстратами выступали органические материалы из состава компаунда – ветошь, бумага и т.д.). Установлено, что за 32-116 суток в анаэробных условиях в результате жизнедеятельности микроорганизмов выделяются N_2 и CO_2 в концентрации $(8,6-10,6) \cdot 10^{-2}$ мл/сут и низкомолекулярные органические кислоты (ацетат-, пропионат-, бутират-анионы) в концентрации $(0,9-4,1) \cdot 10^{-3}$ ммоль/сут в расчете на 1 см^3 цементного компаунда.

Выделяемые микроорганизмами вещества негативно действуют на портландцементную матрицу, карбонизируя и нейтрализуя основные гидратные минералы с образованием растворимых и вымываемых водой солей:



Такие процессы являются иницирующим фактором разрушения микроструктуры цементных компаундов с РАО, многократно усиливающимся сезонными перепадами температур и действием воды. Как свидетельствуют микрофотографии нитратсодержащих цементных компаундов без биоцидных добавок после 8,5 лет хранения, микротрещины и поры в цементной матрице заполнены кристаллогидратными изолированными фазами нитрата и гидрокарбоната кальция (рис. 5 (1)), которые способны легко вымываться из компаунда, нарушая прочность и надежность локализации радионуклидов. В микроструктуре цементной матрицы в значимом количестве (до 10-12%) обнаружены продукты биогенного кислотного разложения гидросиликатов кальция, что становится причиной саморазрушения структуры (рис. 5 (2)). Микроструктура цементных компаундов с биоцидными добавками, напротив, характеризуется плотным монолитным каркасом (рис. 5 (3)).

Установлено, что с помощью добавок биоцидов в цементную матрицу можно эффективно предотвращать протекание микробиологических процессов, повышая надежность инженерных барьеров, препятствующих выходу радионуклидов в приконтурную зону хранилищ.

Описанные выше исследования поддержаны РФФИ (грант № 11-04-92116) и президентским грантом МК-2330.2012.3.

times less than that of carbon dioxide. This is due to the high solubility and chemical fixation of carbon dioxide in water and on the rock. In general, however, as a consequence of diffusion and extended generation time, the gas will likely gradually re-distribute itself around the location. As a result, the total gas pressure will diminish, reducing the probability of stratal water oversaturation. Of more concern should perhaps be local gas releases into available volumes (cavities), reduction of layer permeability and occurrence of colmatation phenomena. These and some other circumstances should be taken into account for assurance of operational safety of underground liquid radwaste disposal sites.

Therefore, biogenous conversion of liquid LLW in underground disposal sites occurs as a result of life activities of microorganisms belonging to various physiological groups and works to reduce the concentration of sodium nitrate, organic matter, generation of carbon dioxide, and, under certain conditions, sorption of transuranic elements.

МИКРОБИОЛОГИЧЕСКАЯ ДЕСТРУКЦИЯ ЦЕМЕНТИРОВАННЫХ РАО

Radon Moscow has conducted microbiocenosis research of nitrate-containing cement radwaste compounds recovered from near-surface repositories after 40 years of storage. The cement compound samples were milled, and found to contain, just like deep repositories at the SCC and MCC sites, denitrifying, fermentive and sulphate-reducing bacteria numbering 10^2 - 10^4 CFUs (colony-forming units) per 1 cm^3 of compound. Pure strains of the *Bacillus*, *Pseudomonas*, *Rhodococcus*, *Alcaligenes*, *Micrococcus*, *Mycobacterium*, *Arthrobacter*, *Flavobacterium* species of bacteria have been identified.

In laboratory conditions, samples of cement compounds were cultivated in a mineral environment (used as substrate were organic materials included in the compound – wiping rags, paper, etc.). It was established that within 32-116 days in anaerobic conditions as a consequence of growth of microorganisms, releases occur of N_2 and CO_2 in $(8.6-10.6) \cdot 10^{-2}$ ml/day concentrations and low-molecular organic acids (acetate-, propionate-, butyrate- anions) in $(0.9-4.1) \cdot 10^{-3}$ mmole/day concentrations per 1 cm^3 of cement compound.

The substances released by microorganisms produce a negative impact upon the Portland cement matrix, carbonising and neutralising the main hydrated minerals with formation of soluble and washable salts:

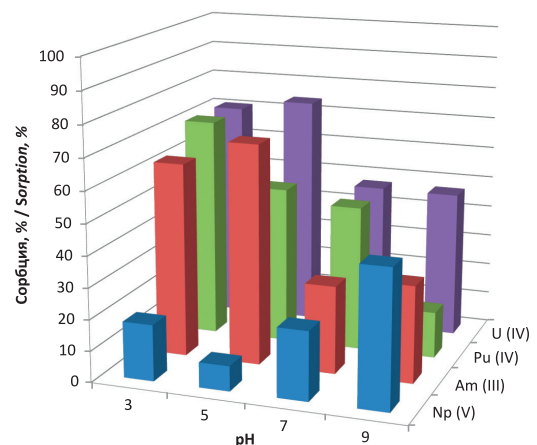


Рис. 4. Сорбция радионуклидов биомассой бактерии *P. fluorescens* C64-1 при различных значениях pH раствора (данные Е.А. Лукьяновой) / Fig. 4. Sorption of radionuclides by the *P. fluorescens* C64-1 bacteria biomass at various levels of pH in the solution (E.A. Lukyanova)

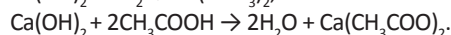
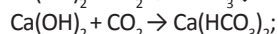
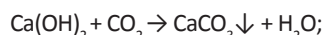
* * *

Зарубежные исследователи также отмечают важную роль различных групп микроорганизмов в хранении радиоактивных отходов. Так, в ходе микробиологических исследований ближней зоны хранилища высокоактивных РАО в Хэнфорде (США), загрязненного щелочью, нитратами, алюминатами, хроматами, ^{137}Cs и ^{99}Tc , были обнаружены различные аэробные гетеротрофные бактерии, в том числе высоко радиорезистентные. Микробиологические исследования, проводившиеся на площадке в Саванна Ривер, позволили выявить разнообразную микрофлору, в том числе сульфатредуцирующие бактерии, способные инициировать процессы биокоррозии емкостей с отходами. Исследования в Ок Ридже показали, что металловосстанавливающие бактерии класса δ -Proteobacteria участвуют в разрушении металлических конструкций и способны изменять степени окисления трансуранных элементов.

Активность микроорганизмов зависит от местных условий и может служить индикатором изменения среды их обитания. К настоящему времени в рамках различных национальных геомикробиологических программ исследованы микроорганизмы геологических формаций, рассматриваемых в качестве вмещающих пород для проектируемых хранилищ РАО. С этой целью изучены гранитные формации и вмещающие породы в Канаде, Японии, Швеции, Финляндии, Швейцарии и Великобритании, осадочные породы в Бельгии, Германии, Италии и Японии, гипсовые и соляные отложения в Швейцарии и Германии и вулканические туфы в США [9-11].

Литература / References:

1. НП-019-2000. Сбор, переработка, хранение и кондиционирование жидких радиоактивных отходов. Требования безопасности. – М.: Госатомнадзор России, 2000. – 15 с.
2. Рыбальченко А.И. Глубинное захоронение жидких радиоактивных отходов / А.И. Рыбальченко, М.К. Пименов, П.П. Костин и др. – М.: ИздАТ, 1994. – 256 с.
3. Назина Т.Н. Микробиологические процессы в глубинном хранилище жидких радиоактивных отходов «Северный» / Т.Н. Назина, А.В. Сафонов, И.М. Косарева и др. // Микробиология. – 2010. – Т. 79, №4. – С. 551-561.
4. Лукьянова Е.А. Сорбция радионуклидов микроорганизмами из глубинного хранилища жидких низкоактивных отходов / Е.А. Лукьянова, Е.В. Захарова, Т.Н. Назина и др. // Радиохимия – 2008 – Т. 50, вып. 1. – С. 75-80.
5. Nazina T.N., Luk'yanova E.A., Zakharova E.V. et al. Microorganisms in a disposal site for liquid radioactive wastes and their influence on radionuclides // Geomicrobiol J. 2010. V. 27. Iss. 5. P. 473-486.
6. Горбунова О.А. Защита зацементированных РАО от микробиологической коррозии / О.А. Горбунова // Безопасность окружающей среды. – 2010. – №3. – С. 126-130.
7. Горбунова О.А. Влияние микробиологической деструкции цементной матрицы на безопасность длительного хранения кондиционированных радиоактивных отходов / О.А. Горбунова // Физика и химия обработки материалов. – 2011. – №4. – С. 98-106.
8. Ершов Б.Г. Подземное захоронение жидких радиоактивных отходов на современном этапе / Б.Г. Ершов, И.М. Косарева // Российский химический журнал. – 2009. – Т.54, №3. – С. 101-110.
9. Pedersen K. Investigation of subterranean bacteria in deep crystalline bedrock and their importance for the disposal of nuclear waste / Pedersen K. // Can. J. Microbiol., 1996, v. 42. – P. 382-391.
10. Farkas G. Characterization of subterranean bacteria in the Hungarian Upper Permian Siltstone Formation / G. Farkas, L.Gazso // Can. J. Microbiol., 2000, v. 46. – P. 559-564.
11. Stroes-Gascoyne S., Microbial studies in the Canadian nuclear fuel waste management program / S. Stroes-Gascoyne, J.M. West // FEMS Microbiol. Revs, 1997, v. 20, №3/4. – P. 573-590.



These processes act as the initiating factor to deterioration of the microscopic structure of cement compounds that contain the radwaste, greatly intensified by seasonal temperature fluctuations and impact of water. As evidenced by microphotographs of nitrate-containing cement compounds without biocidal additions after 8.5 years in storage, micro cracks and pores in the cement matrix are filled with crystalhydrate isolated phases of nitrate and calcium

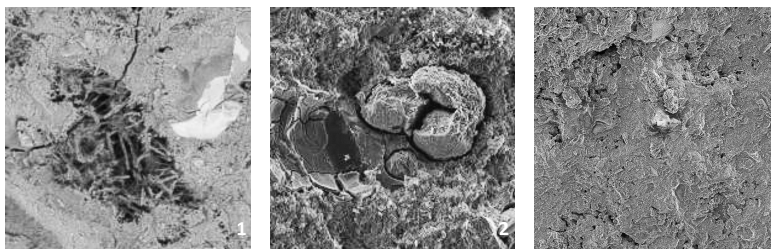


Рис. 5. Микроструктура цементного компаунда с РАО после 8,5 лет хранения в условиях приповерхностного хранилища: 1, 2 – без биоцидных добавок; 3 – с биоцидной добавкой / Fig. 5. Microscopic structure of a cemented radwaste compound after 8.5 years of storage in a near-surface repository conditions: 1, 2 – without biocidal additions; 3 – including a biocidal addition

hydrogen carbonate (see fig. 5 (1)), which can easily be washed out of the compound, weakening it and reducing the reliability of radionuclides containment. The microscopic structure of the cement matrix was found to contain significant quantities (up to 10-12%) of products generated by biogenous acid-aided decomposition of calcium hydrosilicates, which cases

the structure to self-destroy (see fig. 5 (2)). Conversely, the microscopic structure of cement compounds that included biocidal additions, appeared to retain a dense and monolithic structure (fig. 5 (3)).

It was established that biocidal additives to cement matrices can be used to effectively prevent occurrence of microbiological processes, increasing reliability of engineered barriers that block release of radionuclides into the areas adjacent to the repositories.

This research was supported by grants from the President of Russian Federation and from the Russian Foundation for Fundamental Science.

* * *

International researchers also note the important role of various groups of microorganisms in storage of radioactive waste. For instance, microbiological research of the border zone of the high-level radwaste repository at Hanford (United States), contaminated with alkali, nitrates, aluminates, chromates, ^{137}Cs and ^{99}Tc , identified a number of aerobic heterotrophic bacteria, some of them being very radiation-resistant. Microbiological research conducted at the Savannah River site identified a diverse microflora, including sulphate-reducing bacteria capable of triggering bio-corrosion processes in the waste-containing vessels. Research at Oak Ridge demonstrated that metal-reducing bacteria belonging to the class δ -Proteobacteria participate in the deterioration of metallic structures and can cause changes in the extent of transuranic elements oxidation.

Exact activity of microorganisms depend on the conditions of the specific habitat and can serve as an indicator of changes in the environment. So far, various national geomicrobiological programmes have been conducted to study the microorganisms that inhabit geological formations considered as suitable host rocks for future radwaste repositories. For that purpose, research of granite formations and potential host rocks has been performed in Canada, Japan, Sweden, Finland, Switzerland and Great Britain, of sedimentary rocks in Belgium, Germany, Italy and Japan, of gypsum and salt deposits in Switzerland and Germany and of volcanic tuff in the United States [9-11].