

На правах рукописи

САФОНОВ АЛЕКСЕЙ ВЛАДИМИРОВИЧ

**ФИЗИКО-ХИМИЧЕСКИЕ УСЛОВИЯ БИОГЕННОГО
ГАЗООБРАЗОВАНИЯ ПРИ ЛОКАЛИЗАЦИИ ЖИДКИХ ОТХОДОВ
НИЗКОГО УРОВНЯ АКТИВНОСТИ В ГЛУБИННОМ ХРАНИЛИЩЕ**

Специальности: 02.00.14. – Радиохимия

03.00.07. – Микробиология

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени

кандидата химических наук

Москва - 2008

Работа выполнена в Институте физической химии и электрохимии им. А.Н. Фрумкина РАН

Научные руководители:

доктор химических наук

Косарева Инэсса Михайловна

доктор биологических наук

Назина Тамара Николаевна

Официальные оппоненты:

доктор технических наук, профессор

Гелис Владимир Меерович

доктор биологических наук

Пименов Николай Викторович

Ведущая организация:

Российский Химико-Технологический Университет имени Д.И. Менделеева,
г. Москва

Защита диссертации состоится «06» марта 2008 года в 15 часов на заседании Диссертационного совета Д 002.259.02 в Институте физической химии и электрохимии им. А.Н. Фрумкина РАН по адресу: 119991, Москва, Ленинский проспект, д. 31, корп. 4, конференц-зал, телефон для справок 8(495) 955-46-56.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке химической литературы РАН (Москва, Ленинский пр-т, 31, ИОНХ).

Автореферат диссертации разослан «06» февраля 2008 года

Ученый секретарь

диссертационного совета Д 002.259.02, к.х.н.

Платонова Н.П.

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность проблемы. Успешное развитие атомной энергетики определяется решением проблемы обращения с радиоактивными отходами (РАО). Одним из таких решений является реализация глубинного удаления жидких РАО в подземный пласт-коллектор. При попадании отходов в пласт-коллектор происходит изменение химического состава в системе *отходы - пластовая жидкость - породы* за счет радиохимических химических и микробиологических процессов. Характер происходящих изменений зависит от категории активности радиоактивных отходов (РАО), химического состава отходов и пластовой жидкости, минералогического состава пород пласта хранилища.

В настоящей работе рассматриваются отходы низкого уровня активности (НАО), которые нагнетаются во второй горизонт хранилища жидких радиоактивных отходов полигона «Северный» Железнодорожного горно-химического комбината (ГХК). НАО характеризуются удельной β активностью менее 10^6 Бк/дм³ (по ОСПОРБ – 99) и наличием таких токсичных макрокомпонентов как нитрат-, сульфат- и ацетат-ионы.

Одним из актуальных вопросов, возникающих при оценке безопасной эксплуатации полигонов, является процесс газообразования в пласте и газовыделения из нагнетательных скважин глубинного хранилища. Выделение газа из нагнетательных скважин фиксируется при локализации отходов с уровнем активности более $3,7 \cdot 10^{10}$ Бк/дм³ за счет радиационно-термического разложения макрокомпонентов РАО. Факт образования газов был зафиксирован также и при отборе пластовой жидкости из наблюдательных скважин, расположенных на различном расстоянии от нагнетательной скважины, предназначенной для удаления жидких НАО.

Ранее в пробах пластовой жидкости второго горизонта хранилища были обнаружены микроорганизмы, осуществляющие процессы денитрификации, сульфатредукции и метанобразования, вследствие протекания которых возможно образование газов. Оценка влияния микробиологических процессов на газообразование является актуальной задачей, решение которой позволит обосновать безопасные условия локализации НАО в подземном хранилище.

Целью работы является исследование взаимосвязи между химическим и радиохимическим составом НАО и микробиологическими параметрами в пробах пластовой жидкости из наблюдательных скважин хранилища РАО «Северный»; выявление влияния физико-химических условий пласта на жизнедеятельность микроорганизмов, а также изучение качественных и количественных характеристик газообразных метаболитов, образуемых микроорганизмами из макрокомпонентов НАО.

Для достижения цели было необходимо решить следующие задачи:

- изучить радиохимический химический и микробиологический составы проб пластовой жидкости из наблюдательных скважин II-го горизонта полигона «Северный»;
- исследовать микробиологическое газообразование применительно к условиям локализации НАО (влияние солесодержания, температуры, значения рН, ионизирующего излучения);
- сопоставить результаты, полученные в лабораторных условиях, с реальными данными по содержанию растворенного и выделившегося газа в пласте-коллекторе;
- провести ориентировочную оценку возможности образования отдельной газовой фазы при длительной локализации НАО.

Научная новизна работы. В диссертационной работе впервые определены тенденции изменения радиохимических, химических и микробиологических компонентов пластовой жидкости в хранилище РАО «Северный», отобранной на различном расстоянии от нагнетательных скважин. Обнаружено, что источником появления азота и углекислого газа при локализации НАО являются микробиологические процессы. Выявлено, что за счет деятельности денитрифицирующих микроорганизмов происходит снижение концентрации нитрата натрия, что приводит к уменьшению токсичности НАО. Определено влияние физико-химических условий (концентрация солей, рН, температура, ионизирующее излучение) на биогенное газообразование. Установлено, что содержание растворенного гидрокарбоната со временем локализации отходов возрастает, что может привести к снижению значений рН пластовой жидкости и кислотной обработке пород пласта-хранилища. Дана ориентировочная оценка возможности образования отдельной газовой фазы при локализации НАО.

Практическая значимость. Основные результаты, полученные автором, позволяют оценить безопасность эксплуатации полигона «Северный», в частности, вклад биогенного газообразования в образование отдельной газовой фазы. Кроме того, показано, что за счет снижения концентрации нитрата натрия уменьшается токсичность НАО.

Апробация работы. Основные результаты работы были представлены на Российских и международных конференциях: Третий Московский международный конгресс «Биотехнология: состояние и перспективы развития» (Москва, 2005); Международная конференция, посвященная 60-летию создания Института физической химии РАН: «Физико-химические основы новейшей технологии 21-го века» (Москва, 2005); Международный семинар «Опыт эксплуатации полигонов глубоинной изоляции (захоронения) промышленных стоков и жидких радиоактивных отходов» (Димитровград, 2005); The Joint International Symposia for Subsurface Microbiology (ISSM 2005) and Environmental Biogeochemistry (ISEB XVII) (Jackson Hole, Wyoming, USA, 2005); Пятая

Российская конференция по радиохимии, (Дубна, 2006); Международный Атомный Конгресс (Санкт–Петербург, 2007); XVIII Менделеевский съезд по общей и прикладной химии (Москва, 2007). Российская научно-практическая конференция «Подземное захоронение жидких радиоактивных отходов: прошлое, настоящее, будущее» (Северск, 2007).

Публикации. Материалы диссертации опубликованы в 10 печатных изданиях, в том числе в 2 статьях в российских реферируемых научных журналах и 8 тезисах докладов международных и российских конференций.

Объем и структура работы. Диссертационная работа изложена на 120 страницах машинописного текста и состоит из введения, 6 глав, общих выводов, списка использованных источников. Работа иллюстрирована 28 рисунками и 30 таблицами. Список цитированной литературы содержит 105 ссылок.

Место проведения работы. Работа проводилась в Институте физической химии и электрохимии им. А.Н. Фрумкина РАН, в Институте микробиологии им. С.Н. Виноградского РАН и ФГУП «Горно-химический комбинат» (ЦЗЛ, лаборатория биологического контроля и радиоэкологического мониторинга).

СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении обоснована актуальность работы, сформулированы основные цели и задачи, научная новизна и практическая значимость полученных результатов.

Первая глава содержит обзор литературы. Дана общая характеристика полигона «Северный», приведены данные о радиационно-термическом разложении макрокомпонентов отходов (нитрат, ацетат натрия) с уровнем активности более 1 Ки/дм³. Сравнительные данные о токсичности РАО при их длительной локализации, свидетельствуют о том, что если со временем радиотоксичность уменьшается за счет процессов радиоактивного распада, то доля химической токсичности (обусловленная в основном наличием нитрата натрия) снижается гораздо медленней, и, со временем, становится преобладающей.

Для НАО дозовая нагрузка незначительна, и токсичность целиком обусловлена наличием нитрата натрия, причины снижения концентрации которого остаются малоизученными. Высказывалось предположение, что трансформация нитрат-ионов, приводящая к газообразованию, может происходить за счет микробиологических процессов. Так, в 1963 г. выброс газированной жидкости из нагнетательной скважины опытно-промышленного полигона подземного захоронения РАО Сибирского химического комбината связали с деятельностью денитрифицирующих микроорганизмов. Дальнейшего продолжения эти исследования тогда не получили.

В 1998 г. были проведены первые микробиологические исследования проб подземной жидкости полигона «Северный» ГХК, результатом которых было обнаружение микроорганизмов, способных осуществлять процессы денитрификации, сульфатредукции и метаногенеза. Дальнейшие работы заключались в изучении численности этих групп, мониторинга ее изменения, и скоростей микробных процессов. Проведенные исследования позволяют заключить, что во втором горизонте хранилища «Северный» обитает разнообразное микробное сообщество, способное продуцировать газ из макрокомпонентов отходов.

Во второй главе приведено краткое описание метода глубинного захоронения отходов и технологическая схема подготовки НАО к захоронению. В состав НАО входят: воды спецпрачечной, отходы центральной заводской лаборатории, конденсаты, промводы, регенераты ионообменных колонн и т.д. Перед удалением в глубинный горизонт-хранилище все типы НАО смешиваются в емкостях, из которых подаются в поверхностный бассейн-хранилище, где выдерживаются от нескольких недель до 1 года. Перед удалением НАО в глубинный горизонт-хранилище проводится анализ химического и радиохимического состава. В таблице 1 представлен основной химический и радиохимический состав НАО, направляемых на глубинное захоронение.

Таблица 1. Основной состав низкоактивных отходов, направляемых на глубинное захоронение

Компонент, показатель	Единица измерения	Показатель
Водородный показатель	pH	≥ 7
Солесодержание	г/дм ³	≤ 20
NO ₃ ⁻	г/дм ³	≤ 10
SO ₄ ²⁻	г/дм ³	≤ 1
CO ₃ ²⁻	г/дм ³	$\leq 2,5$
Взвешенные вещества	мг/дм ³	≤ 50
ПАВ	мг/дм ³	≤ 50
ГХБД	мг/дм ³	≤ 5
ТБФ	мг/дм ³	≤ 10
Σα	кБк/дм ³	≤ 10
Σβ	кБк/дм ³	$\leq 10^3$
⁹⁰ Sr	кБк/дм ³	$\leq 0,2 \cdot 10^3$
¹³⁷ Cs	кБк/дм ³	$\leq 0,8 \cdot 10^3$

Из таблицы видно, что в состав НАО входят нитраты, сульфаты и карбонаты натрия, при общем солесодержании не более 20 г/дм³. Кроме солей присутствуют остаточные количества трибутилфосфата, гексахлорбутадиена, а также

сульфанола и других ПАВ. Из радионуклидов присутствуют в основном ^{90}Sr и ^{137}Cs , концентрации которых соответствуют нормам ОСПОРБ-99; также могут присутствовать в незначительных концентрациях ^{60}Co , $^{95}\text{Zr}+^{95}\text{Nb}$, ^{106}Ru , ^{144}Ce и ^{241}Am .

На полигоне «Северный» низкоактивные отходы удаляют во 2-й горизонт, расположенный на глубине 180–200 м, для чего используют 7 нагнетательных скважин, расположенных линейно на расстоянии 200 м друг от друга. Контроль миграции отходов осуществляется путем химического и радиохимического анализа проб, отобранных из наблюдательных скважин. В настоящей работе впервые одновременно с вышеперечисленными анализами определяли микробиологические характеристики проб пластовой жидкости.

Автор работы принимал непосредственное участие в отборе проб, определении их химического, радиохимического и микробиологического составов в ЦЗЛ ГХК, ИФХЭ РАН и ИНМИ РАН.

В **третьей главе** приведены методики и результаты радиохимических, химических и микробиологических исследований проб пластовой жидкости.

Радиохимический анализ проб пластовой жидкости выполняли методом γ -спектрометрии на низкофоновом многодетекторном γ -спектрометре с блоком детектирования на основе ППД CANBERRA GL3830 и β -спектрометрии на спектрометре фирмы RFT-Robotron. Содержание катионов и анионов определяли трилометрическим титрованием, методами жидкостной-хроматографии и атомно-абсорбционной спектроскопии. Молекулярный азот, углекислый газ и метан определяли газо-хроматографическим методом. Давление газовой фазы в культурах оценивали, используя калиброванный манометр.

Численность микроорганизмов определяли культуральными методами по появлению характерных для каждой группы метаболитов, а также микроскопическим методом. Облучение питательных сред с микроорганизмами проводили γ -излучением ^{60}Co на установке К-20000. Скорости сульфатредукции и метаногенеза в пластовых водах определяли радиоизотопными методами с использованием меченых $\text{Na}_2^{35}\text{SO}_4$, $\text{NaH}^{14}\text{CO}_3$ и $^{14}\text{CH}_3\text{COONa}$.

Далее приводятся радиохимическая, физико-химическая и микробиологическая характеристики проб пластовой жидкости. В целом при выполнении настоящей работы было отобрано 110 проб пластовой жидкости из 20 наблюдательных скважин, расположенных на разном расстоянии от нагнетательного контура. Пробы отбирали ежегодно в летний период. Сопоставляя результаты исследований, можно отметить, что наибольшие изменения исследованных параметров отмечали вблизи нагнетательного контура. Этот вывод проиллюстрирован на примере 5 показательных скважин, расположенных на расстояниях 45 м (А-56), 240 м (П-20), 390 м (Ан-34), 490 м (А-38) и 930 м (А-36) от нагнетательного контура.

Радиохимическая характеристика проб пластовой жидкости

Спецификой жидких радиоактивных отходов (ЖРО) является наличие радионуклидов, присутствие которых в наблюдательных скважинах свидетельствует о границах миграции отходов. Сопоставление с нормами НРБ–99 позволяет определить уровень загрязнения пластовой жидкости. На начальной стадии работы после отбора проб проводили дозиметрию, после чего изучали радиохимический состав.

Сложность радиохимического анализа проб состоит в получении достоверных данных, поскольку речь идет о низкофоновых определениях. Это послужило причиной многократных исследований проб в лаборатории радиоэкологического мониторинга ГХК, в ИФХЭ РАН, лаборатории радиационного контроля МИФИ.

Наиболее корректные данные при определении радиохимического состава проб получены методом γ -спектрометрии, который был дополнен β -спектрометрией.

Результаты радиохимического анализа проб, отобранных из скважин А-36, Ан-34 и А-56, за 2004 и 2007 гг. представлены в таблице 2, где приведены также значения уровней вмешательства (УВ) по радионуклидам. В пробах из остальных скважин радиохимические характеристики незначительно отличались от приведенных в таблице данных.

Таблица 2. Концентрации радионуклидов в пробах пластовой жидкости из скважин А-36, Ан-34 и А-56

Нуклиды	Концентрация (Бк/дм ³) в пробах из скважин						УВ Бк/дм ³
	А-36		Ан-34		А-56		
	2004	2007	2004	2007	2004	2007	
$\Sigma\beta$	<1,5	<1,5	<1,5	<1,5	170	170	-
⁹⁰ Sr	<0,5	<0,5	<0,5	<0,5	43	51	5,0
¹³⁷ Cs	<0,12	<0,11	<0,15	<0,14	0,286	0,312	1,1+1
⁶⁰ Co	0	0	0	0	0,693	0,723	4,1+1
¹⁴⁴ Ce	<0,14	<0,14	<0,12	<0,12	<0,17	<0,17	2,7+1
²⁴¹ Am	<0,17	<0,17	<0,17	<0,17	<0,25	<0,25	6,9-1
⁴⁰ K	<3,7	<3,3	<1,4	<1,4	3,42	3,27	2,2+1
²²⁶ Ra	<1,3	<1,3	<0,32	<0,32	0,72	0,72	5,0-1
²³² Th	<0,92	<0,92	<0,41	<0,41	<0,88	<0,88	6,0-1
²³⁵ U	<0,28	<0,28	<0,16	<0,16	<0,087	<0,087	3,0

Из таблицы следует, что в пробах присутствовали как техногенные, так и естественные радионуклиды. Концентрации долгоживущих техногенных радионуклидов (^{90}Sr , ^{137}Cs и ^{241}Am) и среднеживущих (^{60}Co , ^{95}Zr , ^{95}Nb , ^{106}Ru и ^{144}Ce) в скважинах А-36 и Ан-34 были ниже чувствительности приборов и не превышали 1 Бк/дм^3 , что соответствовало нормам по УВ. Значения суммарной β -активности повышались по мере приближения к нагнетательному контуру. Так для проб из скважин А-36 и Ан-34 они были не более $1,5 \text{ Бк/дм}^3$, а в пробе из скважины А-56 - 170 Бк/дм^3 . В последней пробе присутствовали ^{60}Co , ^{90}Sr и ^{137}Cs , причем превышение УВ наблюдалось только по ^{90}Sr (в 10 раз). Концентрации остальных техногенных радионуклидов были ниже уровня вмешательства.

Наличие естественных радионуклидов фиксировали во всех исследуемых пробах, в том числе и в скважинах, расположенных на расстоянии до 900 м, от нагнетательного контура, причем в некоторых пробах содержание ^{40}K превышало УВ для питьевой воды (табл. 2).

Основываясь на данных по содержанию радионуклидов в исходных отходах, а также в пластовой жидкости, можно сделать вывод о том, что миграция радионуклидов не происходит на значительные расстояния от нагнетательного контура. Используя полученные данные, был сделан ориентировочный расчет дозовой нагрузки, которая, не превышала $0,06 \text{ рад/час}$.

Химическая и микробиологическая характеристика проб пластовой жидкости

Принцип удаленности от нагнетательного контура был использован также в химических и микробиологических исследованиях.

Характеристика состава пластовой жидкости из скважин, расположенных на расстояниях 930–390 м от нагнетательного контура.

Характеристика химического состава. Целью работ по проведению химического анализа проб пластовой жидкости являлось составление материального баланса по основным макрокомпонентам и оценка изменений, происходящих под влиянием отходов. Изменения химического состава пластовой жидкости определяли путем сопоставления данных, полученных в период освоения полигона в 1964–1969 гг., любезно предоставленных сотрудниками ГХК, с результатами исследований, проведенных нами в последнее время. В таблице 3 приводится характеристика проб пластовой жидкости, отобранной из скважин А-36, А-38 и Ан-34 в 1964-1967, 2005 и 2007 годах.

Как видно из таблицы, основными катионами были Na^+ , K^+ , Ca^{2+} и Mg^{2+} , а анионами – HCO_3^- и SO_4^{2-} . Расхождение соотношения суммы катионов к сумме анионов во всех пробах не превышало 11%. Как в 1967, так и в 2005 году, нитрат–

и сульфат-ионы в пробах из наблюдательных скважин присутствовали в незначительных количествах.

Таблица 3. Характеристика химического состава проб нативной и «современной» пластовой жидкости из скважин А-36, А-38 и Ан-34

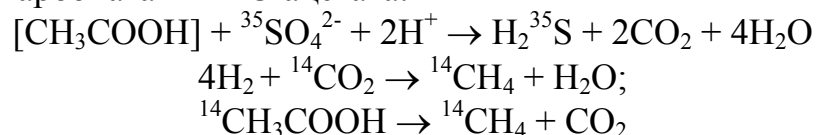
Параметры, компоненты, (мг-экв/дм ³)	Скважины, год отбора проб								
	А-36			А-38			Ан-34		
	1969*	2005	2007	1967*	2005	2007	1967*	2005	2007
рН	7,7	7,6	7,7	8,0	8,0	7,8	7,6	7,6	7,7
Σ Na ⁺ +K ⁺	1,6	1,6	1,5	2,2	2,8	2,5	2,3	2,1	2,4
Σ Ca ²⁺ +Mg ²⁺	4,8	4,8	4,6	3,4	3,0	3,3	3,2	3,1	3,6
Σ катионов	6,4	6,4	6,1	5,6	5,8	5,8	5,5	6,2	6,0
HCO ₃ ⁻	6,4	6,5	6,7	5,6	5,7	5,5	5,6	7,0	6,4
SO ₄ ²⁻	0,1	0,12	0,09	0,09	0,2	0,13	0,04	0,02	0,06
NO ₃ ⁻	≤0,002	≤0,002	≤0,002	≤0,002	0,016	≤0,002	≤0,002	≤0,002	≤0,002
Σ анионов	6,5	6,5	6,7	5,7	5,9	5,6	5,64	7,0	6,4
Σ кат./Σ ан.	0,98	0,98	0,98	0,96	0,98	0,98	0,98	0,89	0,94

* - данные, полученные при освоении полигона

Таким образом, в период 1969–2007 гг. значительных изменений в химическом составе подземных вод в скважинах, расположенных на расстоянии 390-930 м от нагнетательного контура, не произошло.

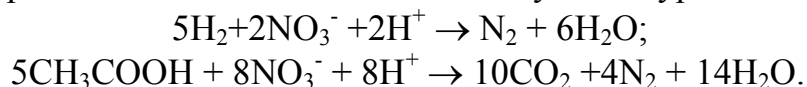
Микробиологическая характеристика. Поступающие с отходами органические субстраты, ацетат, нитрат и сульфат могут изменить существующее в пласте соотношение доноров и акцепторов электронов для микроорганизмов. Теоретически появляются предпосылки для протекания в загрязненных горизонтах ряда микробных процессов: аэробная биодеградация органического вещества за счет кислорода воздуха, растворенного в нагнетаемых отходах; в отсутствие кислорода возможны анаэробные процессы разрушения органического вещества – денитрификация, сульфатредукция, образование метана и другие.

Скорости сульфатредукции и метаногенеза можно определить непосредственно в пластовых водах посредством внесения радиоактивно меченых ³⁵сульфата, ¹⁴С-бикарбоната и 2-¹⁴С-ацетата:



Подобные методы определения скорости денитрификации не существуют, поэтому в работе использовали косвенный метод оценки этого процесса путем газо-хроматографического определения молекулярного азота, образующегося в изолированных пробах пластовой воды в динамике.

Большинство денитрифицирующих бактерий растет в анаэробных условиях, используя органические вещества или молекулярный водород для восстановления нитратов до газообразных соединений согласно следующим уравнениям:



В ходе денитрификации нитрат восстанавливается до молекулярного азота в цепи последовательных реакций: $\text{NO}_3^- \rightarrow \text{NO}_2^- \rightarrow \text{NO} \rightarrow \text{N}_2\text{O} \rightarrow \text{N}_2$.

В аэробных условиях денитрифицирующие бактерии растут как обычные аэробные органотрофы и учитываются на богатых питательных средах совместно с другими аэробными бактериями.

Результаты определения численности микроорганизмов в пластовых жидкостях в 2004-2007 гг. представлены в таблице 4.

Таблица 4. Численность (\lg числа клеток в 1 см^3) микроорганизмов основных физиологических групп в пробах пластовой жидкости из скважин А-36, А-38 и АН-34

№ сква- жины	Год анализа	Численность микроорганизмов различных физиологических групп (\lg числа кл/см ³)		
		Аэробные органотрофы	Денитрифицирующие	Сульфатредуцирующие
А-36	2004	5	2	1
А-36	2006	5	2	1
А-38	2004	6	1	1
А-38	2006	6	2	2
АН-34	2005	6	1	1
АН-34	2006	5	2	1

Приведенные материалы свидетельствуют о присутствии в пластовой жидкости аэробных органотрофных бактерий и анаэробных денитрифицирующих и сульфатредуцирующих бактерий. Во всех скважинах численность аэробных бактерий достигала 10^{5-6} кл/см³, денитрифицирующих и сульфатредуцирующих – не превышала 10^2 кл/см³. Численность метанобразующих микроорганизмов была еще ниже. В период 2004–2006 гг. изменения в численности бактерий всех исследованных групп были незначительны.

Скорости сульфатредукции и метаногенеза – основных терминальных процессов трансформации органического вещества, были низки и не превышали $0,76 \text{ мкг S}^{2-}/\text{дм}^3 \cdot \text{сут.}$ и $0,11 \text{ мкг CH}_4/\text{дм}^3 \cdot \text{сут.}$ соответственно.

Таблица 5. Скорости процессов сульфатредукции и метаногенеза в пробах пластовых вод II-го горизонта глубинного хранилища РАО «Северный»

№ скважины	Год анализа	Ацетат, мг/дм ³	Скорость сульфат-редукции, мкг S ²⁻ /дм ³ ·сут.	Скорость метаногенеза, мкг CH ₄ /дм ³ ·сут.	
				Из NaH ¹⁴ CO ₃	Из ¹⁴ CH ₃ -COONa
А-36	2004	3,9	0,06	0	0,01
	2006	3,9	0,06	0	0
А-38	2004	0	0,03	0	0
	2006	6,8	0,03	0	0,03
Ан-34	2004	0	0,76	0,11	0
	2006	11,1	0,01	0	0

Таким образом, результаты изучения химического состава пластовой жидкости коррелировали с результатами микробиологических и радиоизотопных исследований и свидетельствовали о минимальном воздействии НАО на пласт-коллектор в зоне скважин, расположенных на расстоянии 390-930 м от нагнетательного контура

Характеристика состава пластовой жидкости из скважин, расположенных на расстояниях 200–300 м от нагнетательного контура.

На рисунке 1 представлены данные по изменению суммы (Σ) катионов, Σ анионов и NO₃⁻-иона в пробе из скважины П-20.

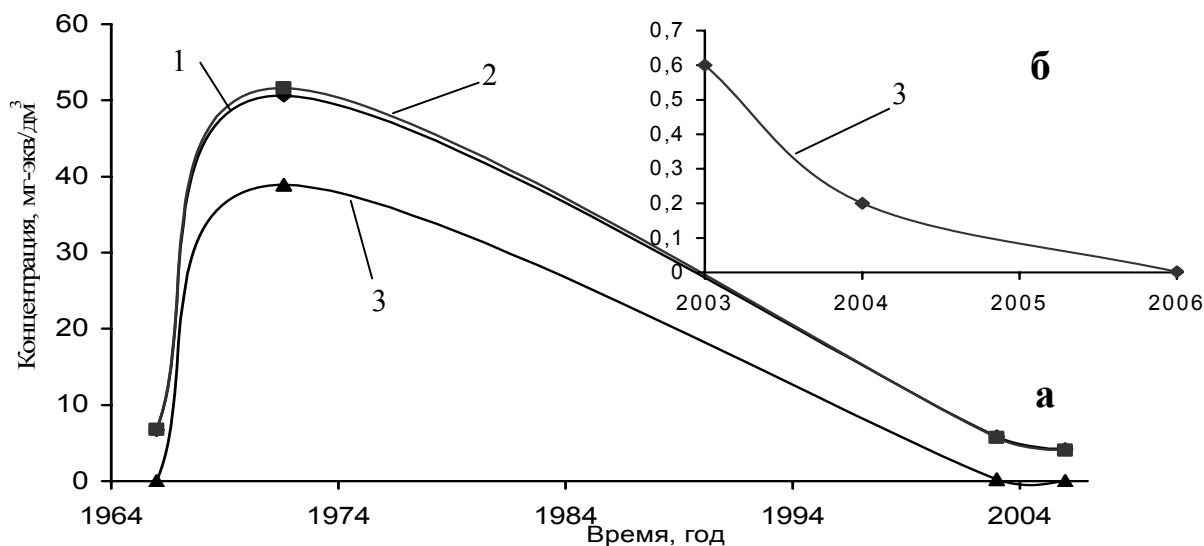


Рис. 1. а. Концентрации Σ катионов (1), Σ анионов (2) и NO₃⁻-иона (3) в пластовой жидкости из скважины П-20 в период 1964–2006 гг.

б. Концентрация NO₃⁻-иона в пластовой жидкости из скважины П-20 в 2003–2006 гг.

Из рисунка видно, что в 1972 г. через скважину П-20 наблюдалась фильтрация отходов. Это выразилось в возрастании концентрации нитратов с $\leq 0,002$ (в 1966 г.) до 38,9 мг-экв/дм³. Впоследствии химический состав пластовой

жидкости возвращался к исходному уровню. В 2003 г. концентрация ионов NO_3^- снизилась до значений $0,6 \text{ мг-экв/дм}^3$, и в 2006 г. соответствовала содержанию в исходной пластовой жидкости – $0,002 \text{ мг-экв/дм}^3$ (рис. 1б).

Таким образом, в зоне скважин, расположенных на расстоянии 200–300 м от нагнетательного контура, возможно временное изменение химического состава пластовой жидкости, что фиксируется по содержанию нитрат-ионов. Одним из процессов, ответственных за снижение концентрации нитратов, является микробиологическая денитрификация. В связи с этим, нами были проведены более детальные микробиологические исследования проб пластовой жидкости из скважины П-20.

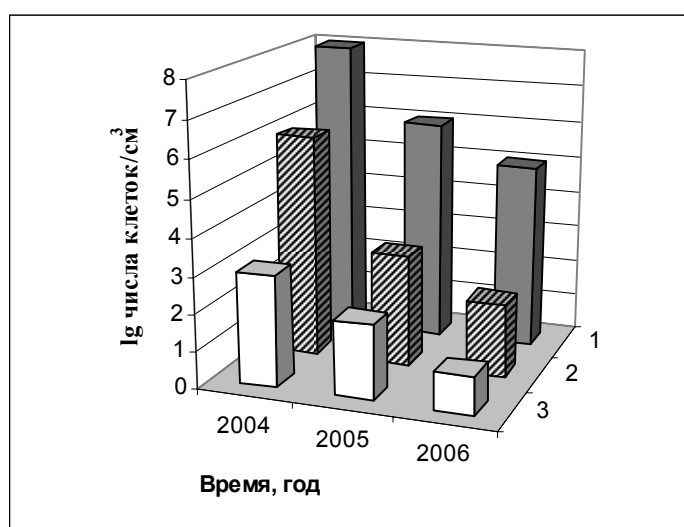


Рис. 2. Численность микроорганизмов в пробах из скважины П-20 в период 2004–2006 гг.

- 1 – сульфатредуцирующие,
- 2 – денитрифицирующие,
- 3 – аэробные органотрофные микроорганизмы

В 2004 г. численность аэробных органотрофов, денитрифицирующих и сульфатредуцирующих бактерий в пробах из скважины П-20 достигала значений 10^8 , 10^5 и 10^3 кл/см³ соответственно (рис. 2), и в 2006 г. она снизилась до значений, близких фоновым.

При изучении биогенного преобразования низкоактивных отходов большое внимание уделяли денитрификации, как наиболее вероятному и важному процессу, приводящему к разложению нитрат-ионов – одного из наиболее токсичных макрокомпонентов отходов.

Динамика численности денитрифицирующих бактерий выявляла прямую корреляцию с динамикой концентрации нитрат-иона в пробах пластовой жидкости в тот же период. Уменьшение концентрации нитрат-иона (рис. 1б) сопровождалось снижением численности денитрифицирующих бактерий. Совокупность этих фактов обусловила необходимость детального изучения процесса денитрификации.

Из пластовой жидкости были выделены накопительные культуры денитрифицирующих микроорганизмов. Поставлена серия экспериментов по изучению кинетики денитрификации. С этой целью в пробирки с питательной средой, содержащей нитрат натрия (2 г/дм^3) и ацетат натрия (4 г/дм^3) (газовая фаза – аргон), вносили денитрифицирующие бактерии, затем инкубировали при комнатной температуре. В пробирках измеряли давление и содержание азота в газовой фазе в динамике (через 3, 7, 10 и 15 сут.); на основе полученных данных рассчитывали количество образовавшегося газа и содержание в нем азота. Контролировали также концентрацию NO_3^- -ионов в жидкой фазе и рассчитывали количество газа, которое теоретически могло образоваться из нитратов, что позволило составить баланс процесса денитрификации. Результаты экспериментов представлены в таблице 6.

Таблица 6. Денитрификация в накопительной культуре микроорганизмов

Время, сутки	$[\text{NO}_3^-]$, моль $10^{-3}/\text{дм}^3$		N_2 10^{-3} , моль/ дм^3	Давление, атм.	Σ газа 10^{-3} , моль/ дм^3
	Остаток в растворе	Количество разложившегося			
3	8,7	15,5	7,8	1,425	8,6
7	8,2	16,0	8,0	1,45	9,3
10	7,5	16,7	8,1	1,45	9,3
12	7,4	16,8	8,4	1,46	9,7
15	5,9	18,3	9,2	1,475	10,0

Из таблицы видно, что через 7 суток культивирования исходное содержание NO_3^- -ионов уменьшилось с $24,2 \cdot 10^{-3}$ моль/ дм^3 до $8,2 \cdot 10^{-3}$ моль/ дм^3 , количество разложившихся NO_3^- -ионов составило $16,0 \cdot 10^{-3}$ моль/ дм^3 . Считая, что это количество NO_3^- -ионов полностью трансформировалось в молекулярный азот, расчетное количество N_2 должно составлять $8,0 \cdot 10^{-3}$ моль/ дм^3 . По измерению давления было определено, что объем выделившегося газа, через 7 суток составил $7,8 \cdot 10^{-3}$ моль/ дм^3 , а через 15 суток инкубации практически все потребленные нитраты восстановились до N_2 .

Таким образом, за счет процесса денитрификации возможно снижение токсичности НАО, обусловленной наличием ионов NO_3^- , и образование молекулярного азота.

Приведенные данные свидетельствуют о том, что в районе скважины П-20 имело место кратковременное воздействие НАО на пластовую жидкость, которое через определенный промежуток времени нивелировалось за счет процесса

денитрификации, осуществляемого микроорганизмами и сопровождаемого биогенным газообразованием. Это позволяет предположить, что кратковременное поступление питательных веществ сопровождается увеличением численности микроорганизмов, за которым следует спад вследствие истощения субстратов роста.

Характеристика состава пластовой жидкости из скважин, расположенных на расстояниях 45–60 м от нагнетательного контура.

На рисунке 3 приведен химический состав пластовой жидкости из скважины А-56. В период с 1967 г. по 2004 г. концентрация ионов Na^+K^+ в пробах возрастала с 1,8 до 7 мг-экв/дм³, а ионов NO_3^- – с 0,002 до 5,1 мг-экв/дм³. В 2004–2007 гг. содержание ионов Na^+K^+ и NO_3^- достигало 20 и 14 мг-экв/дм³ соответственно, что сопоставимо с их концентрациями в разбавленных отходах.

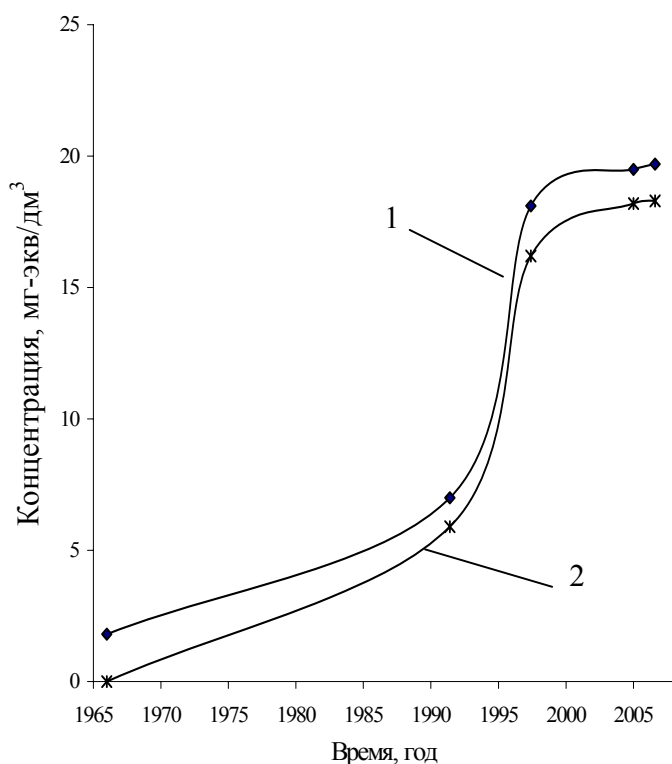


Рис. 3. Изменение химического состава пластовой жидкости из скважины А-56 в период 1967–2007 гг.
1 – NO_3^- ; 2 – $\Sigma\text{Na}^+\text{K}^+$

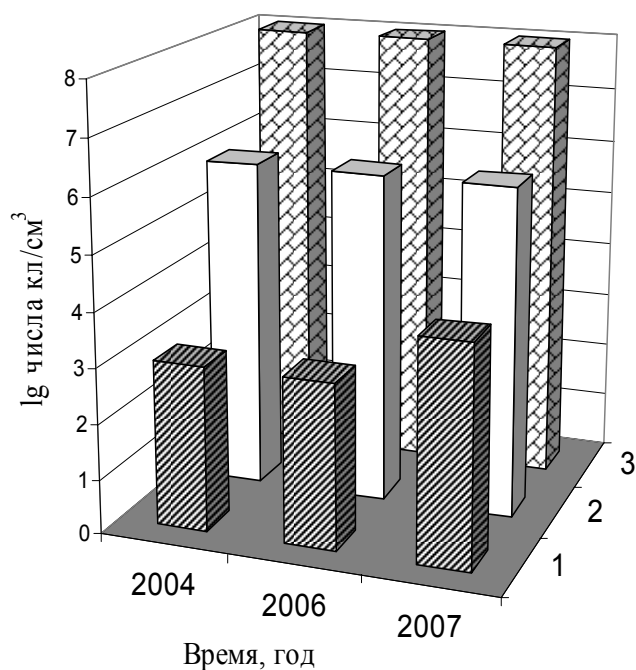


Рис. 4. Численность микроорганизмов в пробах из скважины А-56 в 2004–2007 гг.
1 – сульфатредуцирующие, 2 – денитрифицирующие, 3 – аэробные органотрофные микроорганизмы.

В пластовой жидкости из скважины А-56 численность аэробных органотрофных бактерий достигала 10^8 кл/см³, денитрифицирующих – 10^6 кл/см³,

сульфатредуцирующих – 10^3 кл/см³ (рис. 4). В период 2004–2007 г. численность микроорганизмов всех исследуемых групп оставалась стабильно высокой (рис. 4).

Таким образом, в период с 2004 по 2007 г. в районе скважины А-56 наблюдалась фильтрация отходов, что обусловило высокую численность микроорганизмов всех исследованных групп.

Вышеприведенные данные демонстрируют влияние химического состава пластовой жидкости на численность микроорганизмов.

В лабораторных условиях было исследовано влияние различных физико-химических факторов, имитирующих пласт-коллектор, на численность микроорганизмов и процессы биогенного газообразования.

В главе 4 приведены результаты лабораторного моделирования влияния пластовых условий на рост накопительных культур денитрифицирующих микроорганизмов, выделенных из подземных горизонтов.

Молекулярно-биологическими методами в накопительной культуре, образующей N₂ в среде с ацетатом и нитратом, обнаружены бактерии, филогенетически близкие представителям родов *Agrobacterium*, *Luteococcus* и видам *Pseudomonas putida* и *Pseudomonas stutzeri*; последняя бактерия известна способностью восстанавливать нитраты до N₂. Из накопительных культур были выделены чистые культуры *P. stutzeri* (штаммы А-26 и А-38) и *Acinetobacter calcoaceticus* (штамм А-39) и исследованы их физиолого-биохимические признаки. Штамм А-39 восстанавливал нитрат-ион лишь до стадии нитрит-ионов, тогда как два других штамма продуцировали молекулярный азот. Штаммы А-26 и А-38 при аэробном росте использовали более широкий спектр субстратов, чем штамм А-39. Все штаммы росли в интервале температур от 6 до 43⁰С, с оптимумом около 28⁰С, что выше температуры подземных горизонтов (12–14⁰С).

Исследование накопительных культур денитрифицирующих бактерий в экологическом плане представляет большую ценность, чем изучение отдельных чистых культур. Нами исследован рост накопительных культур при разной температуре, содержании нитрата натрия в среде и величине ионизирующего излучения (рис. 5-8).

Показано, что оптимум роста накопительных культур наблюдался при содержании 2 г NaNO₃/дм³, рН 7–8, в интервале температуры от 20 до 40⁰С, при величине дозовой нагрузки до 100 кГр.

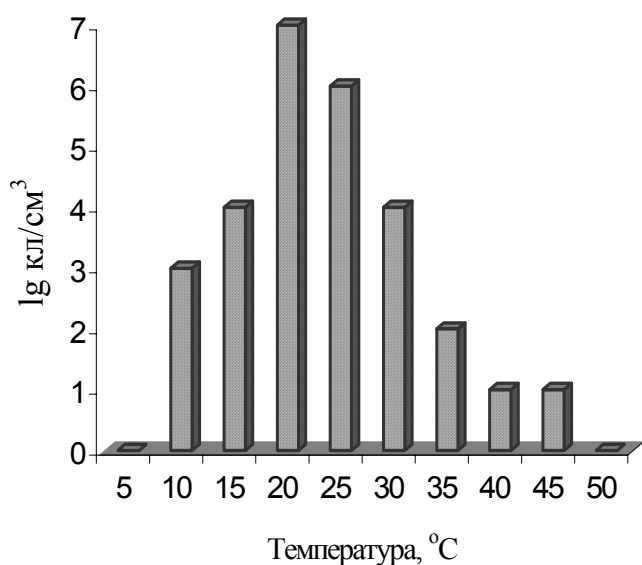


Рис. 5. Влияние температуры на численность денитрифицирующих микроорганизмов (среда Адкинса с 2 г/дм³ NaNO₃, 4 г/дм³ ацетата Na).

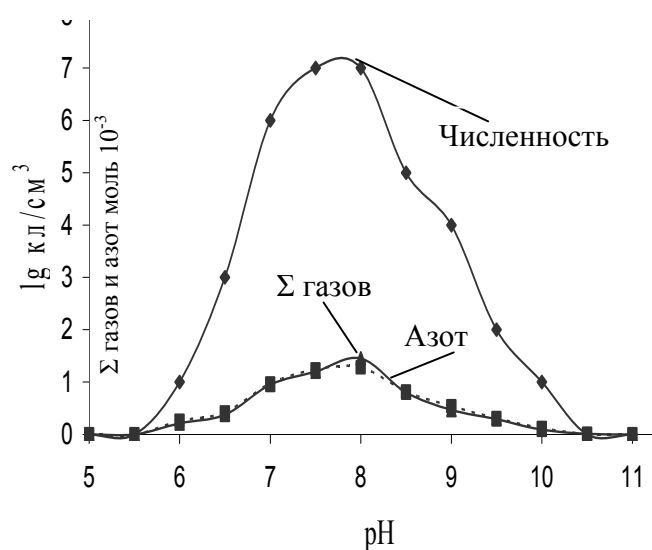


Рис. 6. Влияние pH на численность денитрифицирующих микроорганизмов и образование газа (среда Адкинса с 2 г/дм³ NaNO₃, 4 г/дм³ ацетата Na).

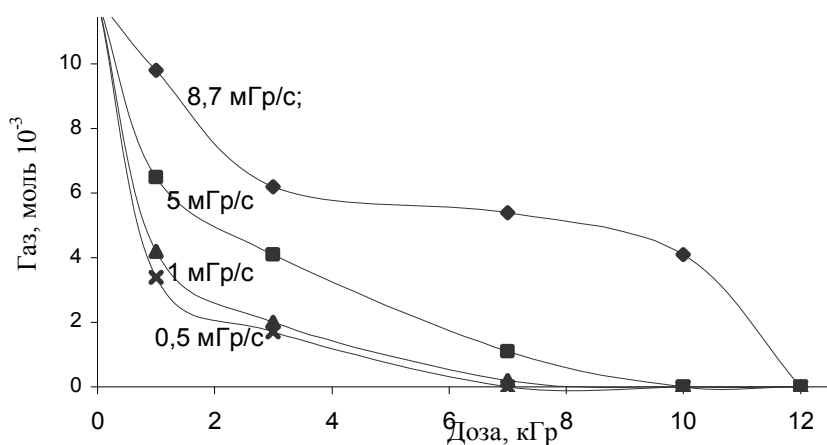


Рис. 7. Влияние ионизирующего излучения на образование газа накопительными культурами денитрифицирующих микроорганизмов и (среда с 2 г/дм³ NaNO₃, 4 г/дм³ ацетата Na).

Существующие в пласте дозовые нагрузки не оказывали значительного влияния на численность микроорганизмов и их способность образовывать газ (рис. 7).

Исследовано также влияние ионизирующего излучения на рост других компонентов микробного сообщества – аэробных органотрофных и анаэробных бродильных бактерий, выделенных из II-горизонта. Поглощенная доза до 1 кГр

незначительно сказывалась на численности клеток аэробных бактерий; при величине поглощенной дозы 1000 крад жизнеспособные клетки не обнаруживались. Жизнеспособность бродильных бактерий (в среде с глюкозой и пептоном) наблюдали при максимальной исследованной дозе гамма-излучения 1200 крад. Величина ионизирующего облучения, при которой их численность снижалась в 2 раза по сравнению с таковой в исходной культуре, составляла 700 крад.

Наиболее полную характеристику газообразующего потенциала микроорганизмов, обитающих в подземных горизонтах, дает изучение всего микробного сообщества в целом. Было исследовано воздействие внесения нитрата и ацетата натрия – основных компонентов НАО, на образование газов микроорганизмами пластовой жидкости из скважины А-38. Из рисунка 8 видно, что обогащение пластовой воды ацетатом и нитратом сопровождалось образованием газов, и в том числе молекулярного азота.

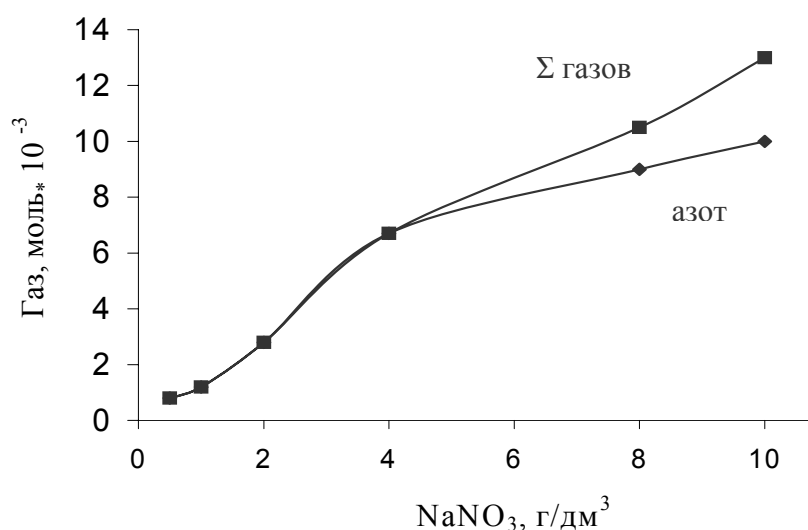


Рис. 8. Влияние внесения нитрата натрия и ацетата натрия (1:2, вес/вес) в пластовую жидкость из скважины А-38 на образование газов сообществом микроорганизмов

Хроматографический анализ газовой фазы показал, что при концентрации NaNO_3 до 4 г/дм³ в составе газов преобладал молекулярный азот, а при более высоких концентрациях нитрата Na (и ацетата Na) появлялся CO_2 .

Процесс денитрификации наблюдался в среде с ацетатом натрия (20 г/дм³) при содержании нитрата натрия до 10 г/дм³ среды, то есть практически в неразбавленных отходах.

На основании этих исследований можно заключить, что при достаточном количестве нитрат и ацетат-ионов при существующих температуре, значениях рН и дозовых нагрузках в пласте возможно протекание процессов биогенного газообразования. Причем первое место среди образующихся газов занимает азот, далее следует углекислый газ.

В **пятой главе** приводится сопоставление полученных данных по биогенному газообразованию с реальными данными по содержанию газов в пробах пластовой жидкости. Как было показано в предыдущей главе, азот может образовываться вследствие протекания процессов денитрификации. Углекислый газ и оксид углерода (II) могут быть как неорганического, так и биогенного происхождения, причем окись углерода может возникнуть в процессе окисления органического вещества при недостатке кислорода.

При химическом анализе проб зафиксировано, что основным в составе анионов является гидрокарбонат-ион, который находится в равновесии со свободным углекислым газом и карбонат – ионами. Существующее между различными формами угольной кислоты равновесие суммарно выражается уравнением: $2HCO_3^- \leftrightarrow CO_3^{2-} + CO_2 + H_2O$. На основе значения константы ионизации для угольной кислоты,

$$K_a = \frac{[H^+][HCO_3^-]}{[CO_2]} = 4,4 \cdot 10^{-7}$$

а также измеренных концентраций протонов и гидрокарбонат-ионов произведены расчеты концентрации углекислого газа в пробах. Сложность расчета состоит в том, значение рН реальных проб устанавливается до равновесного в течение некоторого времени.

В таблице 7 представлены результаты определения растворенных газов в пробах пластовой жидкости, отобранных из нескольких скважин в 1968 - 2006 гг., а также расчетные данные по равновесному содержанию CO_2 .

Обнаружено, что состав растворенных газов представлен: O_2 , N_2 , CO_2 , CO , и CO_{2agr} , причем по количеству газы располагаются в ряду: $CO_2 > N_2 > O_2 > CO$. Следует отметить, что практически во всех пробах имеется тенденция увеличения концентрации CO_2 . Так, если в 1961 г. содержание CO_2 составляло $2 \cdot 10^{-4} - 10^{-5}$ моль/дм³, то 2004-2005 гг. эта величина по расчетным данным составляла $1,36 \cdot 10^{-4} - 1,1 \cdot 10^{-3}$ моль/дм³, а фактически эта величина составляет $2 \cdot 10^{-3} - 4 \cdot 10^{-3}$. Для скважины А-38 приведены данные расчетные (2004 г., 2005 г.) и реальные за 2005-2006 гг. из которых следует, что количество CO_2 в пластовых условиях может быть значительно выше (расчетное содержание CO_2 $7,6 \cdot 10^{-4}$ моль/дм³, реальное - $1,68 \cdot 10^{-3}$ моль/дм³). Следует отметить, что в остальных пробах содержание CO_2 варьирует в интервале $1,36 \cdot 10^{-4} - 7,0 \cdot 10^{-3}$ моль/дм³. Изучение данных по содержанию растворенного углекислого газа в течение времени показало, что с момента освоения полигона эти значения выросли в среднем в 10 – 20 раз. Относительно остальных газов критерий сравнения отсутствует.

Таблица 7. Состав растворенных газов в пробах пластовой жидкости.

№№ скважин	Год отбора	Содержание, моль/дм ³				
		O ₂	N ₂	CO	CO ₂	CO _{2арг}
А-56	1968**	-	-	-	2,0·10 ⁻⁴	-
	2005	4,9·10 ⁻⁵	-	-	7,0·10 ⁻³	-
	2006				8,4·10 ⁻³	
П-20	1963**	7,0·10 ⁻⁵	-	-	3,8·10 ⁻⁴	-
	2005	3,8·10 ⁻⁵	-	-	2,7·10 ⁻³	-
	2006	2,2·10 ⁻⁵	5·10 ⁻⁴	2,1·10 ⁻⁵	3,1·10 ⁻⁴	
Ан-34	2005*		-	-	1,3·10 ⁻⁴	-
	2005	3,8·10 ⁻⁵	4,6·10 ⁻⁴	1,3·10 ⁻⁶	4,0·10 ⁻³	0,7·10 ⁻⁴
	2006	4,0·10 ⁻⁵	4,0·10 ⁻⁴	-	2,6·10 ⁻³	-
А-38	2004*		-	-	7,6·10 ⁻⁴	-
	2005*		-	-	1,1·10 ⁻³	-
	2005	9,6·10 ⁻⁵	3,2·10 ⁻⁴	1,4·10 ⁻⁵	1,68·10 ⁻³	4,3·10 ⁻⁴
	2006	1,0·10 ⁻⁴	4,1·10 ⁻⁴	1,8·10 ⁻⁵	3,3·10 ⁻³	
А-36	1968**		-	-	5,0·10 ⁻⁵	-
	2004*		-	-	1,36·10 ⁻⁴	-
	2005	4,0·10 ⁻⁵	-	-	2,0·10 ⁻³	-

Примечания: *) расчетные данные

**) за 1963-1968 гг. данные на момент освоения полигона предоставлены ГХК

Поскольку основное внимание в данной работе уделяется процессам газообразования, то необходимо оценить содержание растворенных газов на пределе насыщения применительно к пластовым условиям. Концентрация CO₂ была ниже уровня насыщения не только в приведенных условиях (1 атм, 20 °С), но и в пластовых (20 атм, 15 °С), где растворимость CO₂ составляет 5,4·10⁻² - 16·10⁻² моль/дм³. Все остальные газы находились в пределах растворимости.

Появляющийся углекислый газ, растворяясь в пластовой жидкости, будет уменьшать ее значения рН, что может повлечь подавление жизнедеятельности микроорганизмов (рис. 7) и вызвать растворение CaCO₃ доломитовых или известковых пород.

В таблице 8 приведены данные по выделяющимся из пластовой жидкости газам. Указан общий объем образующейся газовой фазы, ее состав в объемных процентах, а также количество каждого газа в молях с 1 литра пластовой жидкости.

Из таблицы 8 видно, что среди выделяющихся газов первое место занимает азот (91 – 96 % в зависимости от скважины).

Эти данные можно объяснить различием растворимости газов при нормальных и пластовых условиях. Растворимость углекислого газа резко понижается при выносе пробы на поверхность, однако значения растворимости

при нормальных условиях достаточно высоки и большая часть газа остается растворенной. Что касается азота, то при резком изменении давления растворимость уменьшается практически в 10 раз и достигает в нормальных условиях невысоких значений, что приводит к практически полному переходу в газовую фазу.

Наибольшее количество выделяющегося газа наблюдалось в пробах из скважин А-56 и П-20 (200 и 50 см³ соответственно). Объемы выделяющихся газов в остальных скважинах не превышали 10 см³ с 1 дм³ пробы.

Растворимость азота при нормальных условиях составляет $0,68 \cdot 10^{-3}$ моль/дм³, а в пластовых условиях $6,69 \cdot 10^{-3}$ моль/дм³. Таким образом, в большинстве скважин, номера которых указаны в таблице 8, азот и углекислый газ в основном будут находиться в растворенном виде, исключение составляет лишь скважина А-56, в районе которой наблюдается содержание азота, выше предела растворимости для пластовых условий.

Таблица 8. Состав выделяющейся газовой фазы в пробах отобранных в 2006 г.

Состав газов	ΣV выделившегося газа, см ³	% об	Количество газа 10^{-3} моль/дм ³
А-56			
O ₂	200	3,4	0,3
N ₂		93,0	8,3
CO ₂		2,7	0,24
СО		0,4	0,035
П-20			
O ₂	50	3,8	0,08
N ₂		94	2,09
CO ₂		1,5	0,03
СО		0,6	0,013
Ан-34			
O ₂	10	6,27	0,02
N ₂		91,0	0,4
CO ₂		2,50	0,01
СО		0,25	0,001

Была проведена верификация данных по биогенному газообразованию, полученных в лабораторных условиях с данными по содержанию газов в реальных пробах. Результаты приведены на рис. 8, который представляет собой схему второго горизонта хранилища РАО «Северный» с обозначенными нагнетательными наблюдательными и разгрузочными скважинами, нагнетательным контуром, а также контуром распространения нитрат-иона, соответствующим его концентрации 0,1 г/дм³. Значения численности

денитрифицирующих микроорганизмов в пробах пластовой жидкости находятся в числителе, а данные по количеству газа, который может образоваться при данной численности в благоприятных условиях (при наличии нитрат- и ацетат-ионов, температуре 17-20 °С и значениях рН 7-8) в знаменателе дроби возле каждой наблюдательной скважины. Все данные приведены за 2005 г.

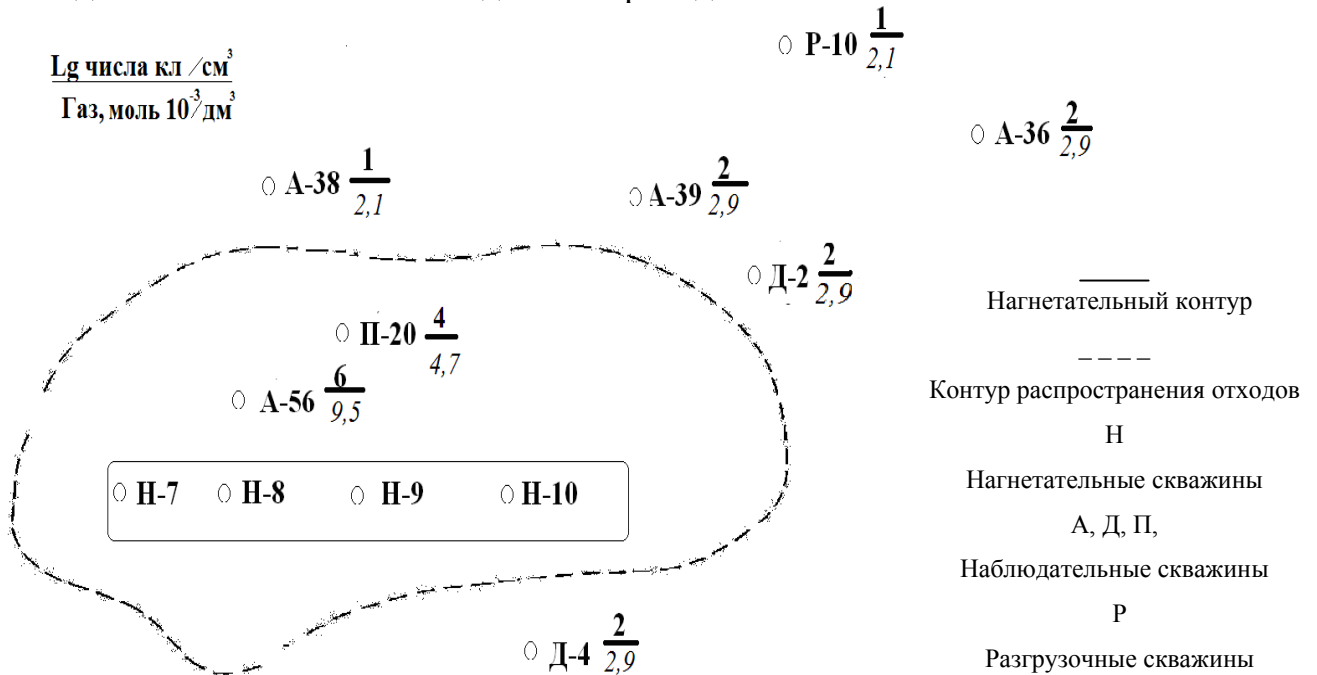


Рис. 9. Численность денитрифицирующих микроорганизмов и максимальные значения возможного газообразования в 1 см³ пробы пластовой жидкости в 2005 г.

На рисунке видно, что максимальная численность денитрифицирующих микроорганизмов наблюдалась в пробах из скважины А-56 и П-20, в которых в благоприятных условиях могло образоваться до 9,5 и 4,7 моля 10⁻³ азота соответственно. Из таблицы 8 видно, что из проб пластовой жидкости этих скважин выделилось 8,03 и 2,09 моля 10⁻³ азота. Зная, что эти скважины находятся в зоне распространения нитрат и ацетат-ионов можно предположить, что большая часть выделившегося из них газа биогенного происхождения. В остальных скважинах максимально возможное количество азота, которое могло появиться за счет деятельности денитрифицирующих микроорганизмов не могло превышать 2,1 10⁻³ – 2,9 10⁻³ моля с 1 дм³ пробы, что значительно ниже предела растворимости азота в пластовых условиях. Реальные значения выделившегося азота из проб пластовой жидкости этих скважин были в пределах 4 10⁻⁵ - 2 10⁻⁴ моля с 1 дм³ пробы, то есть были гораздо выше. Учитывая данные по химическому составу в пробах из этих скважин, можно сказать, что идеальных условий для развития

денитрифицирующих микроорганизмов в них не соблюдается, ввиду отсутствия нитрат и ацетат-ионов. Однако, в случае поступления отходов, содержащих данные питательные компоненты, численность микроорганизмов может возрасти и тогда возможное содержание азота в пластовой жидкости может превышать предел растворимости для пластовых условий (как в случае скважины А-56).

Таким образом, зная химический состав пластовой жидкости, значения численности денитрифицирующих микроорганизмов, закономерности изменения этой численности под влиянием пластовых условий, а так же зависимость количества и состава образующихся газов от численности бактерий, можно приблизительно прогнозировать возможность протекания процессов биогенного газообразования в разных участках пласта.

На основе приведенных данных, можно сделать вывод, о том, что возможно появление локальных участков пласта-коллектора с содержанием газов выше предела растворимости. Поскольку такие участки локальные, а площадь НАО значительна, то за счет процессов диффузии будет происходить распределение газов по пласту. Поэтому вариант длительной локализации НАО является безопасным.

ВЫВОДЫ

1. Исследован радиохимический, химический и микробиологический состав проб пластовой жидкости, отобранных из II-го горизонта полигона «Северный», предназначенного для локализации отходов низкого уровня активности.

2. Установлено, что радиохимический состав представлен техногенными (^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{60}Co) и естественными (^{40}K , ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{235}U) радионуклидами. Показано, что концентрации техногенных радионуклидов не превышают УВ, за исключением содержания ^{90}Sr в пробах, отобранных вблизи нагнетательного контура (45-60 м). Во всех исследованных пробах содержание естественных радионуклидов было ниже УВ, за исключением ^{40}K , концентрация которого в ряде проб была выше уровня вмешательства.

Результаты радиохимических исследований свидетельствуют о том, что техногенные радионуклиды, содержащиеся в НАО, мигрируют на расстояние не более 200 м от зоны нагнетания.

3. В подземных горизонтах полигона «Северный» обнаружено разнообразное микробное сообщество. Физико-химические и радиационно-химические условия хранилища НАО не препятствуют росту микроорганизмов. Численность микроорганизмов и скорости биогенных процессов сульфатредукции и метанобразования были низки вне контура распространения отходов и возросли в зоне дисперсии жидких НАО.

4. Микроорганизмы, выделенные из подземных горизонтов, образовывали газы (азот, двуокись углерода, сероводород) из компонентов отходов (нитрат-, ацетат- и сульфат-ионов).

5. Обнаружена прямая корреляция между численностью денитрифицирующих бактерий и содержанием нитрат-иона в пластовых жидкостях. Денитрифицирующие бактерии, выделенные из глубинных горизонтов, способны переводить основную массу нитрат-ионов в молекулярный азот в интервале рН, минерализации, температуры и уровня радиоактивности, характерных для хранилища низкоактивных отходов.

Разрушение органических компонентов отходов микроорганизмами сопровождается образованием углекислого газа.

6. Появление локальных участков пласта-коллектора с повышенным содержанием растворенных газов не представляет опасности при эксплуатации полигонов глубинного захоронения низкоактивных отходов вследствие распределения образующихся газов по пласту в процессе диффузии.

Список работ, опубликованных по теме диссертации

Экспериментальные статьи

1. Косарева И.М., Сафонов А.В., Савушкина М.К., Ершов Б.Г., Кабакчи С.А., Ревенко Ю.А., Хафизов Р.Р., Бондин В.В., Назина Т.Н. Физико-химический и микробиологический контроль полигонов глубинного удаления жидких радиоактивных отходов. Атомная энергия. 2007. Т. 103. вып. 2, с.106-112.
2. Косарева И.М., Сафонов А.В., Ершов Б.Г., Назина Т.Н. Вопросы оценки биогенного преобразования состава РАО, инкорпорированных в глубинный пласт-коллектор. Вопросы радиационной безопасности. 2007. № 3. С. 50-57.
3. Косарева И.М., Сафонов А.В., Савушкина М.К., Ершов Б.Г., Кабакчи С.А. Оценка техногенного воздействия отходов низкого уровня активности на вмещающую среду глубинного пласта-хранилища». II международный ядерный форум 10 юбилейная конференция «Безопасность ядерных технологий: обращение с РАО и ОЯТ». // Статья в трудах конференции.

Тезисы

4. Сафонов А.В., Косарева И.М., Савушкина М.К., Ревенко Ю.А., Хафизов Р.Р., Осипов Г.А., Назина Т.Н. Микробиологическая характеристика глубинного хранилища жидких РАО «Северный» и возможность биогенного образования газов подземной микрофлорой. Материалы Третьего Московского Международного конгресса "Биотехнология: состояние и перспективы развития 14-18 марта 2005 г. ". Москва. Ч. 2. С. 246.

5. Nazina T.N., Kosareva I.M., Safonov A.V., Savushkina M.K., Polyakov I.E., Revenko Y.A., Khafizov R.R., Osipov G.A. The diversity and geochemical activity of microorganisms in the formation fluids of the Severnyi deep repository of liquid radioactive wastes. The Joint International Symposia for Subsurface Microbiology (ISSM 2005) and Environmental Biogeochemistry (ISEB XVII). August 14-19, 2005. Jackson Hole, Wyoming. Abstracts. P. 56.
6. Косарева И.М., Савушкина М.К., Сафонов А.В., Назина Т.Н. Микробиологический мониторинг глубинного хранилища жидких РАО «Северный». Опыт эксплуатации полигонов глубинной изоляции (захоронения) промышленных стоков и жидких радиоактивных отходов. Тез. докл. международного семинара. 23-25 августа 2005. Димитровград: ФГУП «ГНЦ РФ НИИАР». 2005. С. 52.
7. Сафонов А.В., Косарева И.М., Савушкина М.К., Назина Т.Н., Ревенко Ю.А., Хафизов Р.Р., Поляков И.Е. Изучение микробиологических характеристик подземных вод глубинного хранилища жидких РАО. Международная конференция, посвященная 60-летию создания Института физической химии РАН: «Физико-химические основы новейшей технологии 21-го века». 2005. Москва.
8. Сафонов А.В., Савушкина М.К., Косарева И.М., Назина Т.Н. Физико-химические условия биогенного газообразования в глубинном хранилище жидких радиоактивных отходов «Северный». Пятая Российская конференция по радиохимии. «Радиохимия-2006». 23-27 октября 2006. Дубна. // Тезисы докладов. С. 228.
9. Сафонов А.В., Савушкина М.К., Косарева И.М., Б.Г. Ершов, Назина Т.Н. Микробиологическое газообразование в глубинном хранилище жидких РАО. // Сборник докладов XVIII Менделеевского съезда по общей и прикладной химии, Москва, 23-28 сентября 2007. С. 2534.
10. Косарева И.М., Сафонов А.В., Б.Г. Ершов, Назина Т.Н. Биогенное газообразование при локализации отходов низкого уровня активности в глубинном хранилище. Всероссийская межведомственная научно-техническая конференция «Подземное захоронение жидких радиоактивных отходов: прошлое настоящее будущее». 10-13 октября 2007. Северск. // Тезисы докладов.