

МЕТОДОЛОГИЯ И МЕТОДИКА  
ИССЛЕДОВАНИЙ

УДК 556.388.001.57

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ОПРЕДЕЛЕНИЕ КОЭФФИЦИЕНТА  
ФИЛЬТРАЦИИ И КОЭФФИЦИЕНТА ДИФфуЗИИ  
В СЛАБОПРОНИЦАЕМЫХ ОТЛОЖЕНИЯХ

© 2017 г. В. А. Лехов, В. Н. Соколов

*Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова,  
геологический факультет, Ленинские горы, ГСП-1, Москва, 119991 Россия.  
E-mail: v.lekhov@gmail.com; sokolov@geol.msu.ru*

Поступила в редакцию 04.04.2016 г.

В статье рассмотрены вопросы лабораторного определения параметров слабопроницаемых пород для моделирования долговременной миграции радиоактивных отходов на полигоне захоронения Сибирского химического комбината. Экспериментальные исследования показали, что полученные значения коэффициента фильтрации  $(2.2-7.7) \cdot 10^{-5}$  м/сут ниже характерных значений по опытно-фильтрационным работам. Коэффициент диффузии определялся экспериментально в течение трех месяцев на образцах длиной 5–8 см и диаметром 3 см. В качестве мигранта использовали растворы  $\text{NaNO}_3$  и  $\text{NH}_4\text{NO}_3$  с добавками микрокомпонентов  $\text{Cs}^+$ ,  $\text{Ba}^{2+}$ ,  $\text{Ni}^{2+}$ ,  $\text{Co}^{2+}$ ,  $\text{La}^{3+}$ . Значения коэффициента диффузии солей макрокомпонентов, полученные по кондуктометрическим датчикам и для каждого образца по распределению по длине (последное определение химическими анализами), составили  $(3.06-4.64) \cdot 10^{-6}$  м<sup>2</sup>/сут, что согласуется с известными значениями для глинистых пород. Получены значения коэффициентов распределения  $K_d$  линейной изотермы сорбции для микрокомпонентов, которые лежат в диапазоне от 0.8 до 3.5 л/кг. В ходе обработки подбиралась активная пористость, которая составила от 45 до 60% от общей пористости исследуемых образцов.

**Ключевые слова:** *загрязнение подземных вод, коэффициент фильтрации, коэффициент диффузии, микростроение, слабопроницаемые отложения, микрозондовый анализ, кондуктометрия, многокомпонентная диффузия, активная пористость.*

ВВЕДЕНИЕ

Проблема миграции компонентов в подземных водах за счет диффузии в слабопроницаемых отложениях актуальна для решения задач охраны и реабилитации подземных вод. Один из методов изоляции отходов, в том числе жидких радиоактивных отходов (ЖРО), – их захоронение в геологические формации. Самое крупное подземное хранилище ЖРО в России – полигон Сибирского химического комбината (СХК), на котором за время эксплуатации (с 1960-х годов) закачано более 46 млн м<sup>3</sup> ЖРО общей активностью 1 млрд Ки на глубину 270–400 м [10]. Учитывая время работы полигона и то, что его эксплуатация продолжается, оценка безопасности подземного захоронения – актуальная проблема. Особенности гидрогеологического строения зоны закачки и перекрывающей толщи таковы [10], что наряду с конвективным переносом в хорошо проницаемых отложениях на

миграцию отходов влияет их диффузия в слабопроницаемые элементы разреза [15].

Изучение миграции компонентов в подземных водах за счет диффузии в слабопроницаемых отложениях – насущная проблема для обоснования долговременных прогнозов последствий захоронения.

Современный метод оценки безопасности последствий захоронения ЖРО – математическое моделирование, для выполнения которого необходимы региональные численные геофильтрационные и геомиграционные модели. С помощью таких моделей можно выполнять прогнозы миграции загрязнения на тысячи лет. Подобные модели разрабатываются для полигонов закачки СХК [1, 16], совершенствование этих моделей путем повышения обоснованности используемых в них миграционных параметров – важная задача.

Получение адекватных прогнозов в большой степени зависит от учета детальности гео-

фильтрационной неоднородности разреза полигона и физико-химических процессов, происходящих при миграции загрязнителей. Для учета последних необходимо иметь достоверные параметры миграционных свойств исследуемых видов отложений, которые обычно не диагностируют по причине высокой сложности и стоимости их определения, а используют характерные значения для аналогичных пород, приведенные в литературе.

На основании анализа опубликованных экспериментальных определений, полученных разными авторами, следует отметить, что максимальный установленный коэффициент диффузии  $0.25 \cdot 10^{-5} \text{ м}^2/\text{сут}$  [2] отличается на четыре порядка от минимального  $8.64 \cdot 10^{-9} \text{ м}^2/\text{сут}$  [17], что свидетельствует о невозможности использования этого параметра для прогнозного моделирования, основываясь только на литературных данных. Причиной столь широкого диапазона изменений коэффициента диффузии служит его зависимость от микростроения отложений (активная пористость, извилистость). Переход от коэффициента диффузии в сплошной среде  $D_0$  к коэффициенту диффузии в пористой среде  $D$  выражается [14]

$$D = D_0 n_a (L / L_k)^2 \delta = D_0 n_a \chi \delta = \varphi D_0, \quad (1)$$

где  $n_a$  – активная пористость,  $L$  – длина образца в направлении массопереноса,  $L_k$  – минимальная длина порового канала,  $\delta$  – коэффициент подвижности диффузии,  $\chi$  – коэффициент извилистости ( $\chi < 1$ ),  $\varphi$  – коэффициент эффективности диффузии в пористой среде. Коэффициент подвижности диффузии вводится для пород, в которых присутствуют частицы диаметром менее 1 мкм. По литературным данным, коэффициент эффективности диффузии меняется от 0.02 для слабопроницаемых отложений [13] до 0.2 в гранулярных породах [9] в зависимости от микростроения.

Таким образом, для создания адекватной геомиграционной модели долговременной миграции РАО и получения результата, корректно учитывающего влияние диффузии в слабопроницаемых породах, необходимо проводить экспериментальные определения параметров, определяющих диффузионный перенос.

## МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

Перечень образцов изученных слабопроницаемых отложений приведен в табл. 1. Образцы представляют собой цельные цилиндры диаметром 3 см и высотой от 5 до 8 см, вырезанные

из керна скважин, пробуренных на глубину зоны закачки, на полигоне глубинного захоронения жидких радиоактивных отходов Сибирского химического комбината (ПГЗ ЖРО СХК). Для опытов выбирали образцы, характеризующие слабопроницаемую часть разреза скважин. Отобранные водонасыщенные керны герметично не упаковывали, поэтому влажность образцов на момент подготовки отличалась от полной влагоемкости.

На исследуемых образцах выполнялись определения гранулометрического состава (по методу Сабанина [3]), минерального состава, плотности скелета  $\rho_d$  и плотности твердой фазы  $\rho_s$ , рассчитывались значения пористости, а также проведен количественный анализ их микроструктуры. Для литологического наименования породы по гранулометрическому составу использовалась классификация В. Т. Фролова (см. табл. 1).

Минеральный состав определялся рентгенодифракционным количественным анализом. Содержание первичных минералов (кварц, полевые шпаты) изменялось от 40 до 60%. Содержание каолинита 10–35% и низкое содержание смектита указывают на континентальное происхождение исследуемых образцов [11]. Суммарное количество глинистых минералов в образцах варьировало от 35 до 55%.

Микроструктурные исследования проводились с помощью растрового электронного микроскопа РЭМ LEO 1450VP и на рентгеновском компьютерном микротомографе TDM 1000H-II. Количественный анализ микроструктуры выполнялся по РЭМ-изображениям с помощью ПО “STIMAN-3D” [12]. Результаты количественного анализа микроструктуры показали, что в исследуемых породах преобладают изометричные мелкие (1–10 мкм) и крупные (10–100 мкм) межмикроагрегатные поры [6], а общая пористость варьирует от 0.29 до 0.40, что подтверждается значениями пористости, рассчитанными по плотности образцов (см. табл. 1). В образцах была обнаружена плесень, вероятнее всего, образовавшаяся при неправильных условиях хранения и транспортировки образцов. Коэффициент извилистости, рассчитанный по РЭМ-изображениям, по слоистости составил 0.25–0.36, поперек нее – 0.25. Согласно полученным данным, анизотропия пористости в образцах практически отсутствует.

**Таблица 1.** Сводная таблица по образцам и значениям пористости

Скважина	Глубина отбора, м	Название породы (по В. Т. Фролову)	Пористость, <i>n</i>	
			по РЭМ + $\mu$ КТ	по $\rho_s, \rho_d$
Е-145	236.7	Алеврито-глинистая порода	0.37	—
	240.0	Алеврито-глинистая порода	0.43	—
	337.9	Алеврито-глинистая порода	0.29	0.36
	211.5	Глина сильно алевритистая	0.40	0.40
Е -150	378.5	Алеврито-глинистая порода	0.35	0.39

В процессе эксперимента внешняя цилиндрическая поверхность образцов покрывалась эпоксидным клеем ЭДП в целях предотвращения пристеночной фильтрации и диффузии. Экспериментальная однокамерная установка спроектирована и собрана из ПФХ фитингов и сантехнических деталей (рис. 1). Образцы насыщали дистиллированной водой через нижний торец образца. Для этого использовали полипропиленовую трубку длиной 200 см, подсоединенную к пьезометру. Для ускорения процесса насыщения и предотвращения образования заземленного воздуха на верхнем торце образца создавался вакуум 0.15 мбар. Насыщение проводилось до появления воды на верхнем торце образца. Среднее время насыщения составило 10 суток.

Контроль насыщения образца, а также регистрацию мигранта в процессе последующего диффузионного эксперимента производили с помощью

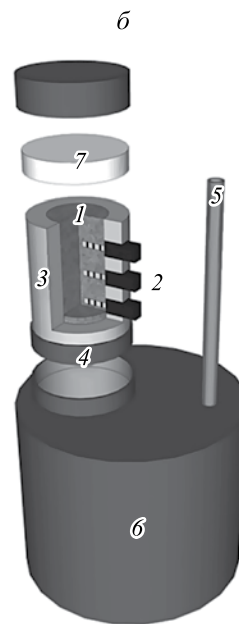
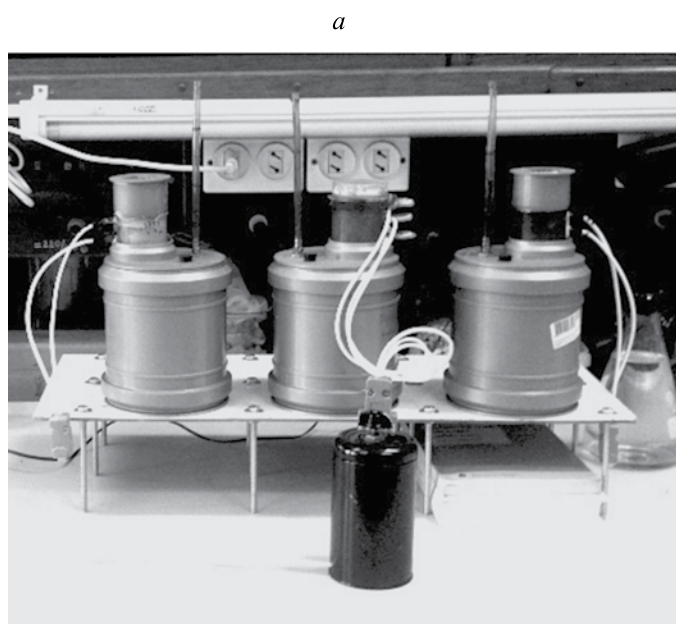
4 электродных датчиков, подключенных к кондуктометру ЭКСПЕРТ-002 и установленных по длине образца в искусственные полости, имитирующие большие поры. Датчики собраны из аудиштекеров “jack 2.5 мм” и устанавливались с шагом в 1.5 см.

### ИЗУЧЕНИЕ ДИФФУЗИОННЫХ И ФИЛЬТРАЦИОННЫХ СВОЙСТВ

#### Определение коэффициента фильтрации

По окончании насыщения определялся коэффициент фильтрации *k* в нестационарном режиме (аналог прибора “трубка Каменского”) по зависимости:

$$k = \ln \frac{h_0}{h_0 - s} / \frac{\bar{F}}{l} t,$$



**Рис. 1.** Установка для определения миграционных параметров: *a* – общий вид, *б* – принципиальная схема установки (1 – образец, 2 – датчики, 3 – эпоксидная смола, 4 – ПВХ кольцо, 5 – пьезометр, 6 – емкость для раствора, 7 – парафиновая пробка).

$$\bar{F} = \frac{F_0}{F_T}, \quad (2)$$

где  $h_0$  – начальная высота уровня в трубке,  $s$  – понижение уровня,  $l$  – длина образца,  $F_0$ ,  $F_T$  – площадь поперечного сечения образца и трубки соответственно.

В течение 5 сут с полипропиленовой трубки снимались показания уровня воды с частотой 2 раза в сутки. Для расчета коэффициента фильтрации строились графики в координатах  $\ln h_0/(h_0 - s)$  от  $\bar{F}t/l$  согласно (2), и рассчитывался угловой коэффициент аппроксимирующей прямой. По окончании фильтрационного эксперимента верхний торец образца изолировался парафином для предотвращения испарения в процессе последующего диффузионного эксперимента.

### Определение коэффициента диффузии

*Экспериментальное определение в однокамерной диффузионной ячейке.* Вслед за фильтрационным проводился диффузионный эксперимент с постоянными во времени граничными условиями: постоянная концентрация на нижнем торце образца и непроницаемая граница на верхнем. Для подготовки опытной установки к диффузионному эксперименту от пьезометра отсоединялась полипропиленовая трубка, а емкость заполнялась специально подготовленным раствором. Этот раствор, имитировавший закачиваемые на полигоне СХК промышленные стоки, содержал  $\text{NaNO}_3$  20 г/л,  $\text{NH}_4\text{NO}_3$  5 г/л и соли в малых концентрациях  $\text{CsNO}_3$ ,  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ ,  $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{Co}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  и  $\text{La}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  в концентрациях 100 мг/л каждого катиона. Перед началом опыта из установки удалялся воздух, а уровень в пьезометре устанавливался на высоту образца для уравнивания давления в системе, тем самым для предотвращения осушения образца в процессе эксперимента. В ходе эксперимента диффузионный раствор в камере не менялся, а только перемешивался раз в трое суток. Так как емкость камеры примерно в 100 раз больше емкости образца, уходом массы из раствора (1–1.5%) в процессе эксперимента пренебрегали.

В течение эксперимента по каждому кондуктометрическому датчику фиксировалось изменение электропроводности раствора во времени с частотой 1 раз в сутки. По окончании опыта образцы разрезались перпендикулярно оси цилиндра на диски толщиной 1 см. Определение концентраций макрокомпонента  $\text{Na}^+$  по длине выполнялось методом пламенной фотометрии по водным

вытяжкам из дисков. Для получения зависимости концентрации от длины для сорбируемых элементов выполнялись определения содержания  $\text{Cs}^+$ ,  $\text{Ba}^{2+}$ ,  $\text{Ni}^{2+}$ ,  $\text{Co}^{2+}$  в дисках на волновом рентгенофлуоресцентном анализаторе (РФА). Концентрация  $\text{La}^{3+}$  в данной работе не определялась. Для изучаемых катионов выполнялись определения фоновых концентраций аналогичными методами в остатках кернов.

*Расчетная диффузионная модель для обработки результатов.* Согласно конструкции используемой экспериментальной установки, диффузионный процесс, происходящий в образцах для каждого компонента, можно описать моделью диффузии с равновесной сорбцией [9] в образце ограниченной длины с непроницаемой верхней границей (ограниченная модель) и нижней границей с заданной концентрацией:

$$D_i \frac{\partial^2 C_i}{\partial x^2} = n_{ei} \frac{\partial C_i}{\partial t}, \quad n_{ei} = n_a + K_d^i, \quad (3)$$

где  $C_i$  – концентрация,  $D_i$  – коэффициент молекулярной диффузии;  $K_d^i = dN_i/dC_i$  – коэффициент распределения  $i$ -го катиона ( $i$  изменяется от 1 до 5), где  $N_i$  – концентрация  $i$ -го катиона, сорбированного на породе;  $n_{ei}$  – эффективная пористость для  $i$ -го катиона,  $n_a$  – активная пористость образца.

Начальное условие для модели  $C_i(x, 0) = C_{0i} = 0$ , т.е. в начальный момент времени концентрация насыщающего образец мигранта равна 0. В качестве граничного условия на нижней границе принимаем концентрацию мигранта постоянной  $C_i(0, t) = C_{0i} = \text{const}$ . Так как модель имеет непроницаемую верхнюю границу, второе граничное условие выражается как

$$\frac{\partial C_i(L, t)}{\partial x} = 0.$$

Необходимо отметить макрокомпонент ( $i = 1$ )  $\text{Na}^+$  – сорбируемый катион с изотермой сорбции легмюрковского типа. Его концентрация на границе (5.4 г/л) существенно превышает сорбционную емкость исследуемых отложений, поэтому в широком диапазоне относительных концентраций его можно рассматривать как несорбируемый, поскольку его расчетное  $K_d^i$  стремится к нулю. Однако при этом он занимает большую часть сорбционной емкости породы в процессе диффузии. Можно предположить, что сорбция остальных катионов-микрокомпонентов проходит по закону Генри с постоянным значением  $K_d^i$  ( $i > 1$ ), независящем от концентрации.

При данных начальных и граничных условиях и сделанных предположениях о характере коэффициентов распределения решение уравнения (3) имеет вид [5]:

$$\bar{C}_i(x,t) = \frac{C_i(x,t) - C_{0i}}{C_i^0 - C_{0i}} = \sum_{j=1}^{\infty} \frac{2}{j p_j} (-1)^{j+1} \cos p_j \frac{L-x}{L} \exp\left(-p_j^2 \frac{D_i t}{n_{ei} L^2}\right),$$

$$p_j = (2j-1) \frac{\pi}{2}, \quad (4)$$

где  $L$  – длина модели,  $x$  – расстояние до границы с постоянной концентрацией,  $t$  – время,  $j$  – номер члена ряда. По этому решению, используя выходные кривые изменения концентрации во времени по датчикам и распределение концентрации по длине на конец опыта, можно найти отношение  $D/n_a$  для несорбируемого макрокомпонента (иона  $\text{Na}^+$ ), и  $D_i/n_{ei}$  для каждого сорбируемого элемента:  $\text{Cs}^+$ ,  $\text{Ba}^{2+}$ ,  $\text{Ni}^{2+}$ ,  $\text{Co}^{2+}$ .

### РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Полученные значения коэффициентов фильтрации приведены в табл. 2. Время диффузионного эксперимента для образцов 337.9, 211.5, 378.5 составило соответственно 119, 89 и 77 сут. Для расчета безразмерной концентрации иона  $\text{Na}^+$  в левой части уравнения (4) по датчикам, измеряющим электрическую проводимость, предполагалось, что удельная электрическая проводимость в образце на начало эксперимента  $\rho_0$  соответствует концентрации на начало эксперимента  $C_0$ , а удельная электрическая проводимость в образце насыщенного солевым раствором  $\rho_s$ , соответствующая концентрации  $C^0$ , рассчитывалась по формуле, предложенной Арчи [8]:

$$R = \rho_n / \rho, \quad (5)$$

где  $R$  – фактор пористости, оцениваемый по эмпирической зависимости Г. Арчи  $R = n^{-1.3}$ ;  $\rho_n$ ,  $\rho$  – удельная электрическая проводимость в пористой и свободной средах соответственно.

**Таблица 2.** Экспериментально полученные значения коэффициентов фильтрации

Образец	Коэффициент фильтрации $k$ , м/сут
337.9	$5.2 \cdot 10^{-5}$
236.7	$7.7 \cdot 10^{-5}$
240.0	$7.0 \cdot 10^{-5}$
211.5	$2.2 \cdot 10^{-5}$

На рис. 2а приведены экспериментальные данные, полученные по кондуктометрическому датчику для образца 211.5, и подобранная по аналитическому решению (4) теоретическая кривая. Анализ графиков показал, что максимальная относительная концентрация иона  $\text{Na}^+$  для первых по пути миграции датчиков больше 0.6. Для образца 337.9 эта величина составила 0.8.

Для перехода к безразмерным концентрациям при обработке графиков зависимости концентраций  $\text{Na}^+$  от длины образцов по окончании эксперимента использовались фоновые значения, полученные по водным вытяжкам  $C_0$ , и его концентрация в исходном растворе  $C^0$ . В связи с тем, что полученные значения концентраций определены в размерности  $[\text{M}/\text{L}^3]$  водной вытяжки, выполнялся пересчет полученных концентраций в размерность  $[\text{M}/\text{L}^3]$  порового пространства для связи полученных концентраций с концентрацией исходного раствора по формуле:

$$C_{por} = \frac{C_{\text{Na}} V_w \rho_d}{m_s n_a}, \quad (6)$$

где  $C_{por}$  и  $C_{\text{Na}}$  – концентрация  $\text{Na}^+$  в поровом пространстве образца и водной вытяжке,  $V_w$  – объем воды, используемой для водной вытяжки,  $m_s$  – масса навески породы, используемая для приготовления водной вытяжки,  $n_a$  – пористость,  $\rho_d$  – плотность породы.

В результате этого пересчета на графике добавилось значение концентрации  $\text{Na}^+$  в исходном растворе – 5.4 г/л при  $x = 0$ . В ходе ручного подбора решения (4) выбирали параметр  $D/n_a$  и значения пористости  $n_a$ , которая участвует в выражении (6) и выполняет функцию баланса массы (рис. 2б).

Подобранные значения активной пористости получились в 2 раза меньше, чем значения пористости, определенные расчетным способом через плотности породы  $\rho_d$  и твердой фазы породы  $\rho_s$ , а также по РЭМ-изображениям и томографии  $\mu\text{КТ}$ . По-видимому, они указывают на ту часть пористости, которая участвует в процессе массопереноса. Общая пористость состоит из двух типов пор: транзитных, составляющих активную пористость  $n_a$ , и тупиковых, в которых не идет процесс массопереноса  $n_t$ , т.е.

$$n = n_a + n_t, \quad n_a = n \cdot \alpha, \quad n_t = n \cdot (1 - \alpha),$$

где  $\alpha$  – доля транзитных пор в общей пористости.

Относительно небольшое значение активной пористости можно объяснить сложной

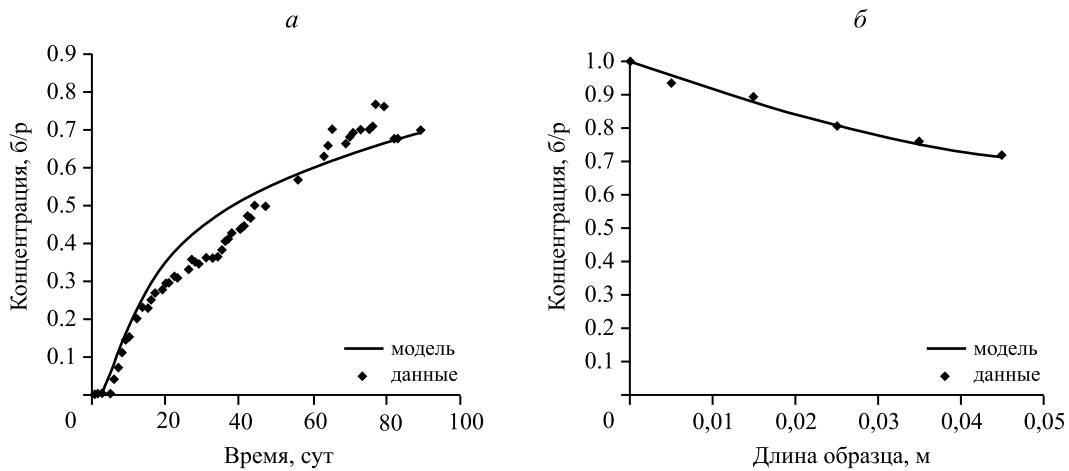


Рис. 2. Обработка опытных данных по образцу 211.5: а – для датчика 1 ( $x = 2.0$  см,  $D/n_a = 1.15 \cdot 10^{-5}$  м<sup>2</sup>/сут); б – по результатам послойных определений ( $t = 89$  сут,  $D/n_a = 2.13 \cdot 10^{-5}$  м<sup>2</sup>/сут).

Таблица 3. Параметры, полученные при обработке показаний кондуктометрических датчиков и послойных анализов для  $\text{Na}^+$

Образец	Датчик/образец	$D/n_a$ , м <sup>2</sup> /сут	$n_a$	$D$ , м <sup>2</sup> /сут	$D_{cp}$ , м <sup>2</sup> /сут	$\varphi$	$\chi_{\perp}$	$\delta$
337.9	1	$1.54 \cdot 10^{-5}$	0.23	$3.55 \cdot 10^{-6}$	$3.27 \cdot 10^{-6}$	0.029	0.27	0.37
	2	$1.21 \cdot 10^{-5}$		$2.79 \cdot 10^{-6}$		0.022		0.29
	3	$1.68 \cdot 10^{-5}$		$3.87 \cdot 10^{-6}$		0.031		0.41
	образец	$1.25 \cdot 10^{-5}$		$2.86 \cdot 10^{-6}$		0.023		0.30
211.5	1	$1.15 \cdot 10^{-5}$	0.18	$2.07 \cdot 10^{-6}$	$3.06 \cdot 10^{-6}$	0.017	0.24	0.17
	2	$1.82 \cdot 10^{-5}$		$3.28 \cdot 10^{-6}$		0.026		0.28
	образец	$2.13 \cdot 10^{-5}$		$3.83 \cdot 10^{-6}$		0.031		0.32
378.5	1	$1.86 \cdot 10^{-5}$	0.20	$7.43 \cdot 10^{-6}$	$4.64 \cdot 10^{-6}$	0.030	0.26	0.33
	2	$1.23 \cdot 10^{-5}$		$2.45 \cdot 10^{-6}$		0.020		0.22
	образец	$2.03 \cdot 10^{-5}$		$4.05 \cdot 10^{-6}$		0.033		0.36

Примечание:  $\varphi$  – коэффициент эффективности диффузии,  $\delta$  – коэффициент подвижности диффузии,  $\chi_{\perp}$  – коэффициент извилистости определенный по РЭМ-изображениям.

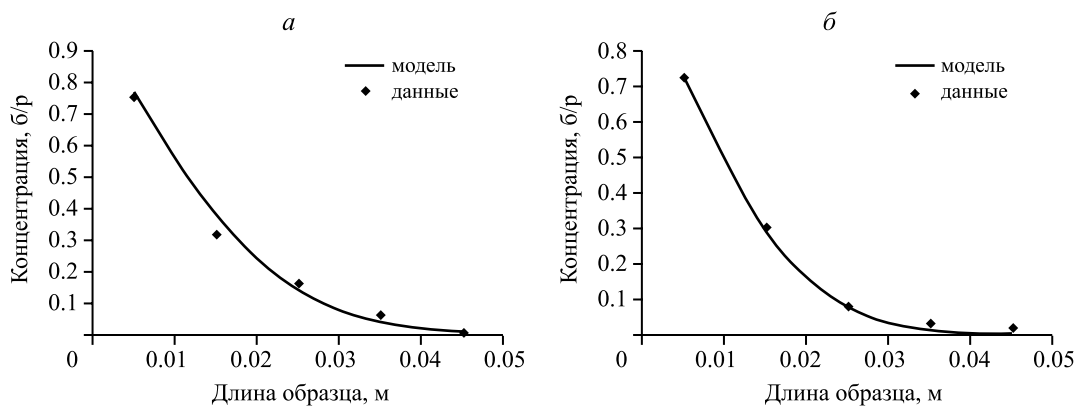


Рис. 3. Обработка опытных данных по образцу 211.5: а – для  $\text{Cs}^+$  ( $t = 89$  сут,  $D/n_e = 1.62 \cdot 10^{-6}$  м<sup>2</sup>/сут); б – для  $\text{Ni}^{2+}$  ( $t = 89$  сут,  $D/n_e = 1.12 \cdot 10^{-6}$  м<sup>2</sup>/сут).

**Таблица 4.** Коэффициенты распределения  $K_d$  (л/кг) и  $K_{dcp}$  (л/кг) для  $Cs^+$ ,  $Ba^{2+}$ ,  $Ni^{2+}$ ,  $Co^{2+}$

Образец	Датчик / образец	$Ni^{2+}$		$Co^{2+}$		$Cs^+$		$Ba^{2+}$	
		$K_d$	$K_{dcp}$	$K_d$	$K_{dcp}$	$K_d$	$K_{dcp}$	$K_d$	$K_{dcp}$
337.9	1	2.57	2.4	3.68	3.4	2.31	2.1	1.43	1.3
	2	1.99		2.86		1.79		1.09	
	3	2.82		4.03		2.53		1.57	
	образец	2.05		2.95		1.84		1.13	
211.5	1	1.02	1.8	0.91	1.6	0.67	1.2	0.61	1.1
	2	1.68		1.51		1.13		1.04	
	образец	2.68		2.42		1.83		1.68	
378.5	1	1.07	0.8	4.88	3.5	1.99	1.5	1.99	1.5
	2	0.31		1.57		0.61		0.61	
	образец	0.98		4.20		1.76		1.76	

микроморфологией порового пространства образцов. Нельзя также исключить влияние плесени в порах образца, обнаруженной в ходе количественного анализа микроструктуры, которая может закупоривать межчастичные ультрамикроразоры (< 0.1 мкм) и частично мелкие межультрамикроагрегатные микроразоры (0.1–1 мкм) для миграции вещества. Кроме того, существуют представления, что межчастичные ультрамикроразоры и межультрамикроагрегатные микроразоры могут не участвовать в процессах массопереноса, так как они заняты связанной водой. Так, например, в статье [4] выявлено, что в юрских глинах Московского региона часть микроразор не задействована в процессах миграции. Доля этих категорий микроразор для исследуемых образцов составляет от 0.3 до 0.43 от общей пористости  $n$ .

Для расчета коэффициентов молекулярной диффузии  $D$  использовались значения активной пористости  $n_a$  (табл. 3). Значение коэффициента диффузии в сплошной среде для  $Na^+$  принималось  $1.24 \cdot 10^{-4} \text{ м}^2/\text{сут}$  при  $t = 25 \text{ }^\circ\text{C}$  и  $C = 25.1 \text{ г/л}$  [7]. Для расчета коэффициента подвижности диффузии  $\delta$  использовался коэффициент извилистости  $\chi_\perp$ , определенный по РЭМ-изображениям (см. табл. 3).

На рис. 3а, б приведены экспериментально полученные значения концентраций микрокомпонентов  $Cs^+$ ,  $Ni^{2+}$  по длине образца 211.5 и подобранные для них кривые аналитического решения (4), имеющие лучшее совпадение при указанных на графике значениях  $D/n_{ej}$ . Из графиков видно, что в среднем диффузионный фронт за время эксперимента прошел только 3–4 см, что свидетельствует о существенном влиянии

сорбции. Полагая, что величины  $D$  и  $n_a$  для макрокомпонента и микрокомпонентов одинаковы, и используя полученные при обработке значения  $D_i/n_{ei}$ , приведенные в табл. 3, рассчитывались коэффициенты распределения  $K_d^i$  индивидуально для каждого образца и элемента (табл. 4). Полученные относительно малые значения  $K_d$  (< 3.5 л/кг) для рассматриваемых элементов можно объяснить присутствием в большом количестве ионов  $Na^+$ , которые, как уже было сказано, сорбируются на активные центры и тем самым понижают сорбцию катионов, добавленных в малых концентрациях.

### ВЫВОДЫ

Определение коэффициента фильтрации проводилось по нестационарному режиму фильтрации, и получившиеся значения коэффициента фильтрации лежат в диапазоне  $(2.2 \div 7.7) \cdot 10^{-5} \text{ м/сут}$ , что в 2–5 раз меньше приведенных в литературе по слабопроницаемым отложениям СХК [10] и полученных на основании опытно-фильтрационных работ и математического моделирования [1, 16]. Это можно объяснить тем, что в упомянутых публикациях использовались осредненные значения коэффициента фильтрации не только для глин, но и для некоторой обобщенной толщи, состоящей как из плохо, так и из хорошо проницаемых прослоев.

В результате диффузионного эксперимента получены оценки коэффициента диффузии основного несорбируемого элемента – иона натрия. Коэффициент диффузии  $Na^+$  по кондуктометрическим датчикам и по распределениям концентраций по длине образцов получен в диапазоне

$(3.06 \div 4.64) \cdot 10^{-6}$  м<sup>2</sup>/сут, при активной пористости исследуемых образцов – 0.18–0.23, составляющей от 45 до 60% от их общей пористости. При этом коэффициент эффективности диффузии в пористой среде ( $\varphi$ ) для исследуемых образцов находится в пределах от 0.017 до 0.033. Это свидетельствует о существенном влиянии микроструктуры порового пространства исследуемых слабопроницаемых отложений на диффузию в них.

Коэффициенты распределения сорбируемых элементов из раствора, отвечающего по составу низкоактивным стокам СХК, составили (л/кг) для: Cs<sup>+</sup> – 1.2 ÷ 2.1, Ba<sup>2+</sup> – 1.1 ÷ 1.5, Ni<sup>2+</sup> – 0.8 ÷ 2.4, Co<sup>2+</sup> – 1.6 ÷ 3.5.

Работа выполнена при поддержке гранта РФФИ № 14-05-00409 А.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Глинский М.Л., Поздняков С.П., Черткова Л.Г., Зубков А.А., Данилов В.В., Бакиевская В.А., Самарцев В.Н. Моделирование последствий эксплуатации полигона глубинного захоронения жидких радиоактивных отходов Сибирского химического комбината на среднесрочный и сверхдолгосрочный периоды // Радиохимия. 2014. Т. 56. № 6. С. 554–560.
2. Гольдберг В.М., Скворцов Н.П. Проницаемость и фильтрация в глинах. М.: Недра, 1986. 160 с.
3. Лабораторные работы по грунтоведению: учеб. пособие / Под ред. В.Т. Трофимова и В.А. Королева. М.: Высшая школа, 2008. 519 с.
4. Лехов А.В., Соколов В.Н. Проблемы миграции продуктов разложения осадка сточных вод // Геоэкология. 2002. № 1. С. 53–62.
5. Лыков А.В. Теория теплопроводности. М.: Высшая школа, 1967. 599 с.
6. Осипов В.И., Соколов В.Н. Глины и их свойства. Состав, строение и формирование свойств. М.: ГЕОС, 2013. 576 с.
7. Робинсон Р., Стокс Р. Растворы электролитов. М.: Изд-во ин. лит., 1963. 647 с.
8. Ромм Е.С. Структурные модели порового пространства горных пород. Л.: Недра, 1985. 240 с.
9. Рошаль А.А. Методы определения миграционных параметров. М.: Обзор ВИЭМС. Серия “Гидрогеол. и инж. геол.”, 1980. 62 с.
10. Рыбальченко А.И., Пименов М.К., Костин П.П. и др. Глубинное захоронение жидких радиоактивных отходов. М.: ИздАТ, 1994. 256 с.
11. Рычкова И.В. Голосеменные растения палеоцена-эоцена юго-востока Западной Сибири // Известия Томского политехнического университета. 2010. Т. 316. № 1. С. 5–8.
12. Соколов В.Н., Юрковец Д.И., Разгулина О.В. Определение коэффициента извилистости поровых каналов с помощью компьютерного анализа РЭМ-изображений // Известия РАН. Сер. физ., 1997. Т. 61. № 10. С. 1898–1902.
13. Barone F.S., Rowe R.K., Quigley R.M. Estimation of chloride diffusion coefficient and tortuosity factor for mudstone // Journal of Geotechnical Engineering. 1992. V. 119. № 7. P. 1031–1046.
14. Boving T.B., Grathwohl P. Tracer diffusion coefficients in sedimentary rocks: correlation to porosity and hydraulic conductivity // Journal of Contaminant Hydrogeology. 2001. V. 53. P. 85–100.
15. Pozdniakov S.P., Bakshevskaya V.A., Zubkov A.A., Danilov V.V., Rubalchenko A.I., Tsang C.F. Modeling of waste injection in heterogeneous sandy clay formations // Underground Injection Science and Technology. Elsevier, 2005. V. 52. P. 203–219.
16. Shestakov V.M., Kuvaev A.A., Lekhov A.V., Pozdniakov S.P., Rybalchenko A.I., Zubkov A.V., Davis P.A., Kalinina E.A. Flow and transport modeling of liquid radioactive waste injection using data from the siberian chemical plant injection site // Environmental geology. 2002. V. 42 (2–3). P. 214–221.
17. Xiang Y., Al T., Scott L., Loomer D. Diffusive anisotropy in low-permeability Ordovician sedimentary rocks from the Michigan Basin in southwest Ontario // Journal of Contaminant Hydrology. 2013. № 155. P. 31–45.

### REFERENCES

1. Glinskii, M.L., Pozdnyakov, S.P., Chertkova, L.G., Zubkov, A.A., Danilov, V.V., Bakshevskaya, V.A., Samartsev, V.N. *Modelirovanie posledstviy ekspluatatsii poligona glubinnogo zakhoroneniya zhidkikh radioaktivnykh otkhodov Sibirskogo khimicheskogo kombinata na srednesrochnyi i sverkhdolgosrochnyi periody* [Modeling the effects of exploitation of deep landfill disposal of liquid radioactive waste of Siberian chemical combine in the medium and super long periods]. *Radiokhimiya*, 56(6): 554–560 p., 2014 (in Russian).
2. Goldberg, V.M., Skvortsov, N.P. *Pronitsaemost' i fil'tratsiya v glinakh* [The permeability and filtering of clays]. Moscow, Nedra, 1986 (in Russian).
3. *Laboratornye raboty po gruntovedeniyu* [The laboratory work on soil science]. Textbook. Trofimov, V.T. and Korolev, V.A., Eds. Moscow, Vysshaya shkola Publ., 2008, 519 p. (in Russian).
4. Lekhov, A.V., Sokolov, V.N. *Problemy migratsii produktov razlozheniya osadka stochnykh vod* [Problems of migration of sewage sludge decomposition products]. *Geoekologiya*, 2002, no. 1, 53–62 p. (in Russian).
5. Lykov, A.V. *Teoriya teploprovodnosti* [The theory of thermal conductivity]. Moscow, Vysshaya shkola Publ., 1967, 599 p. (in Russian).



6. Osipov, V.I., Sokolov, V.N. *Gliny i ikh svoistva. Sostav, stroenie i formirovanie svoistv* [Clays and their properties. Composition, structure and the formation of properties]. Moscow, GEOS, 2013, 576 p. (in Russian).
7. Robinson, R., Stokes, R. *Rastvory elektrolitov* [Electrolyte solutions]. Moscow, Izd-vo inostr. literatury, 1963 (in Russian).
8. Romm, E.S. *Strukturnye modeli porovogo prostranstva gornykh porod* [Structural models of the pore space in rocks]. Leningrad, Nedra, 1985, 240 p. (in Russian).
9. Roshal, A.A. *Metody opredeleniya migratsionnykh parametrov* [Methods for determination of migration parameters]. Moscow, VIEMS review. Hydrogeology and engineering geology series, 1980, 62 p. (in Russian).
10. Rybal'chenko, A.I., Pimenov, M.K., Kostin P.P., et al. *Glubinnoe zakhoronenie zhidkikh radioaktivnykh otkhodov* [Deep burial of liquid radioactive waste]. Moscow, Izdat, 1994, 256 p. (in Russian).
11. Rychkova, I.V. *Golosemennye rasteniya paleotsena-eotsena yugo-vostoka Zapadnoi Sibiri* [Paleocene-Eocene gymnosperms in the south-east of Western Siberia]. *Izvestiya Tomskogo politeknicheskogo universiteta*, 2010, vol. 316, no. 1, 5–8 p. (in Russian).
12. Sokolov, V.N., Yurkovets, D.I., Razgulina, O.V. *Opredelenie koeffitsienta izvilistosti porovykh kanalov s pomoshch'yu komp'yuternogo analiza REM-izobrazhenii* [Determination of tortuosity by computer image analysis of SEM images]. *Izvestiya RAN. Ser. fiz.*, 1997, vol. 61, no. 10, 1898–1902 p. (in Russian).
13. Barone, F.S., Rowe, R.K., Quigley, R.M. Estimation of chloride diffusion coefficient and tortuosity factor for mudstone. *Journal of Geotechnical Engineering*, vol. 119, no. 7, 1992.
14. Boving, T.B., Grathwohl, P. Tracer diffusion coefficients in sedimentary rocks: correlation to porosity and hydraulic conductivity. *Journal of Contaminant Hydrogeology*, 2001, vol. 53, pp. 85–100.
15. Pozdniakov, S.P., Bakshevskaya, V.A., Zubkov, A.A., Danilov, V.V., Rubal'chenko, A.I., and Tsang, C.F. Modeling of waste injection in heterogeneous sandy clay formations. *Developments in Water Science*, vol. 52 (Underground Injection Science and Technology), Elsevier, 2005, pp. 203–219.
16. Shestakov, V.M., Kuvaev, A.A., Lekhov, A.V., Pozdniakov, S.P., Rybal'chenko, A.I., Zubkov, A.V., Davis, P.A., and Kalinina, E.A. Flow and transport modeling of liquid radioactive waste injection using data from the Siberian chemical plant injection site. *Environmental geology*, 2002, no. 42 (2–3), pp. 214–221.
17. Xian, Y., Al, T., Scott, L., Loomer, D. Diffusive anisotropy in low-permeability Ordovician sedimentary rocks from the Michigan Basin in southwest Ontario. *Journal of contaminant hydrology*, 2013, no. 155, pp. 31–45.

## EXPERIMENTAL DETERMINATION OF THE HYDRAULIC CONDUCTIVITY AND DIFFUSION COEFFICIENT IN LOW PERMEABLE DEPOSITS

V. A. Lekhov, V. N. Sokolov

*Geological Faculty, Moscow State University, Leninskie gory, Moscow, 119991 Russia.  
E-mail: v.lekhov@gmail.com; sokolov@geol.msu.ru.*

The paper deals with the modeling of long-term migration of radioactive waste in low permeable rocks at the disposal site of the Siberian chemical plant SCC. Experimental studies have shown that the values of the hydraulic conductivity  $(2.2 - 7.7) \times 10^{-5}$  m/day is below the typical values obtained from the filtration experiments. The diffusion coefficient was determined experimentally for three months using samples of 5–8 cm in length and 3 cm in diameter.  $\text{NaNO}_3$  and  $\text{NH}_4\text{NO}_3$  solutions with added Cs, Ba, Ni, Co, La microcomponents were used as a migrating agent. The values of the diffusion coefficient for macrocomponent salts obtained by conductivity sensor for each sample were equal to  $2.49 \times 10^{-6} - 2.91 \times 10^{-7}$  m<sup>2</sup>/day, which agrees with the recognized values for clays. The results of the study of layered samples using aqueous extracts and X-Ray microprobe of chemical and elemental analysis revealed a discrepancy between the distribution of concentrations of macrocomponents compared with the data obtained by conductivity sensors.

**Key words:** *groundwater pollution, hydraulic conductivity, diffusion coefficient, microstructure, low permeable sediments, microprobe analysis, conductometry, multicomponent diffusion.*