

# ХАРАКТЕРНЫЕ ЧЕРТЫ МИГРАЦИИ СТРОНЦИЯ И ЦЕЗИЯ В ГЛУБОКИХ ВОДОНОСНЫХ ГОРИЗОНТАХ КАРБОНАТНЫХ ПОРОД ПРИ ЗАХОРОНЕНИИ ЖИДКИХ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ

## CHARACTERISTIC FEATURES OF THE MIGRATION OF STRONTIUM AND CESIUM IN THE AQUIFERS OF CARBONATE ROCKS AT THE DEEP-WELL INJECTION OF LIQUID RADIOACTIVE WASTE

**ЛЕХОВ А.В.**

*Профессор кафедры гидрогеологии геологического факультета Московского государственного университета им. М.В. Ломоносова, д.г-м.н., г. Москва, avlekhov@gmail.com*

**LEKHOV A.V.**

*Professor of the Department of Hydrogeology, Faculty of Geology, Lomonosov Moscow State University, DSc (Doctor of Science in Geology and Mineralogy), Moscow, avlekhov@gmail.com*

**ШАРАПУТА М.К.**

*Аспирант кафедры гидрогеологии геологического факультета Московского государственного университета им. М.В. Ломоносова, г. Москва, masha011992@bk.ru*

**SHARAPUTA M.K.**

*Graduate student of the Department of Hydrogeology, Faculty of Geology, Lomonosov Moscow State University, Moscow, masha011992@bk.ru*

### **Ключевые слова:**

*коэффициент распределения; миграция радионуклидов; глубинное захоронение; цезий; стронций; обменный комплекс; коэффициент замедления.*

### **Keywords:**

*distribution coefficient; migration of radionuclides; deep injection; cesium; strontium; ion-exchange complex; retardation factor.*

### **Аннотация**

**В настоящей статье представлены результаты исследования миграции компонентов радиоактивных отходов в карбонатных породах на примере их глубинного захоронения. Доказана возможность перехода от переменного к постоянному режиму нагнетания отходов при расчете поля напоров. Рассмотрена миграция с учетом и без учета разности плотностей природных вод и отходов. При сравнении результатов расчетов было установлено, что на направление и скорость миграции сильно влияет неоднородное строение толщи, что практически исключает естественную конвекцию. Включение блока расчета химических равновесий в системе «подземная вода — минералы — обменный комплекс» позволило установить относительные скорости перемещения радионуклидов и остальных компонентов раствора. По результатам расчета натрия определен как основной компонент, влияющий на концентрацию стронция и цезия в обменном комплексе пород. Установлено, что коэффициент распределения радионуклидов непостоянен и уменьшается при приближении к краевым частям фронта, за счет чего в этой части скорость миграции стронция и цезия практически равна скорости нейтральных компонентов.**

### **Abstract**

**This article presents the results study of radioactive waste components migration in the carbonate rocks on the example of the deep-well injection. The possibility of a transition from constant to variable injection of waste discharge when calculating field heads was proved. Migration is estimated both with and without considering difference between the densities of natural water and waste. In comparing the calculation results was established that irregular structure of strata have strong influence on the direction and rate of migration which almost eliminates natural convection. Including of the unit of chemical equilibria calculation in the system of "underground water — minerals — the ion exchange complex" provide possibility to establish the relative speed of radionuclides' movement and the remaining components of the solution. According to the results of calculation, the sodium is defined as the main component influencing on the strontium and cesium concentration in the ion exchange complex rocks. It was established that the radionuclides distribution ratio is not constant and decreases near the boundary part of the front. It results in approximate equality of strontium and cesium migration rate and rate of neutral components.**

**Введение**

Одним из методов утилизации жидких радиоактивных и нерадиоактивных отходов в России на сегодняшний день является захоронение их в глубокие водоносные горизонты. При этом миграция компонентов отходов происходит с разной скоростью, обусловленной физико-химическими процессами взаимодействия мигрирующих растворов и пород — ионный обмен, растворение/осаждение минералов. Кроме того, среда миграции обычно гетерогенна по фильтрационным свойствам, ее можно представить как чередование проницаемых и слабопроницаемых слоев или тонких зон высокой проводимости, разделенных слабопроницаемыми слоями. Латеральный перенос массы происходит по проницаемым слоям-зонам, а в слабопроницаемые слои масса мигрантов поступает преимущественно диффузией. При этом основная емкость пород чаще всего приурочена к слабопроницаемым слоям.

Целью работы является исследование изменения миграционных свойств цезия и стронция в гетерогенно-слоистой среде карбонатного водоносного горизонта с учетом физико-химических процессов трансформации состава многокомпонентного раствора и взаимодействия его с обменным комплексом и минералами пород.

Задачами исследования являлись:

- формирование модельных составов природной воды и закачиваемого стока;
- построение геофильтрационной модели принимающего пласта и исследование влияния периодической закачки на поведение скоростей фильтрации в целях редукации частоты периодов;
- построение геомиграционной модели для исследования влияния разницы плотностей закачиваемого легкого раствора и природных тяжелых рассолов;
- построение модели миграции внедрения многокомпонентного стока в породы, содержащие также

многокомпонентный раствор;

- исследование поведения радионуклидов в области миграции;
- корректировка базы термодинамических параметров для учета возможных физико-химических процессов.

В качестве объекта выбран пункт глубинного захоронения жидких радиоактивных отходов (ПГЗ ЖРО) в г. Димитровграде [2], где слабоминерализованные отходы закачивают в глубокий водоносный горизонт карбонатных пород, содержащий крепкие рассолы.

Основным методом исследования является математическое моделирование миграции подземных вод с учетом равновесных физико-химических процессов взаимодействия вод с обменным комплексом и минералами вмещающих пород. Моделирование осуществляется при помощи программного комплекса PMWin [9], включающего необходимые для этого программы моделирования фильтрации (Modflow) и массопереноса многокомпонентного раствора переменной плотности без взаимодействия компонентов между собой (Seawat — гибрид программ Modflow и MT3Dms) [11] и миграции растворов с физико-химическими процессами в многокомпонентной гидрогеохимической системе (PHRT3D — гибрид программ MT3Dms и Phreeqc) [10]. Для калибровки химических анализов и создания модельных растворов использовалась программа Phreeqc [13].

**Геофильтрационная модель**

По результатам геологоразведочных работ 60-х годов XX века в толще осадочных пород было выделено 7 водоносных комплексов. Перспективными для захоронения ЖРО были признаны III и IV водоносные комплексы каменноугольного возраста, залегающие на глубинах 1440–1500 и 1130–1410 м соответственно, перекрытые слабопроницаемыми глинистыми отложениями верейского горизонта. Рассматриваемый водоносный комплекс IV представлен известняками и

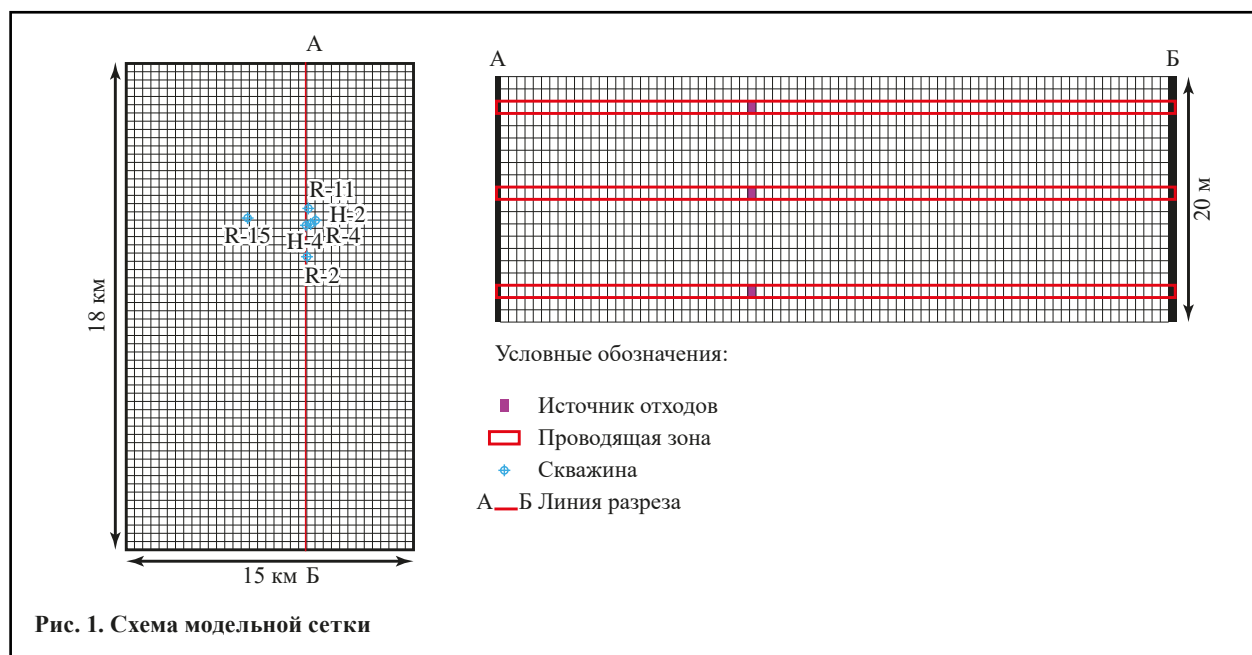


Рис. 1. Схема модельной сетки

доломитами башкирско-окского возраста  $C_2b-C_{1ok}$  [8].

Построение модели обусловлено особенностями геологического строения территории. Ранее проведенными исследованиями установлено, что изучаемый массив карбонатных пород можно представить как набор тонких зон высокой проводимости, разделенных слабопроницаемыми толщами (блоками). Ввиду этого в числе первых задач при построении модели стоит учет зон высокой проницаемости субгоризонтального залегания и блоков — пород с низкой проницаемостью.

Область моделирования в плане соответствует горному отводу ПГЗ ЖРО. В разрезе модель представляет собой верхнюю часть эксплуатируемого башкирско-окского водоносного комплекса  $C_2b-C_{1ok}$  мощностью 20 м (рис. 1). Подземные воды комплекса приурочены к трещиноватым карбонатным породам (известнякам и доломитам). Глубина залегания кровли водовмещающих отложений изменяется от 1100 до 1200 метров. Мощность водоносного комплекса на участке полигона — 300–320 метров.

Размер геофильтрационной модели —  $15 \times 18$  км<sup>2</sup>. Сетка квадратная, равномерная, с шагом 100 м. Модель включает 20 слоев мощностью 1 м. Такая мощность слоев принята ввиду отсутствия достоверных данных о мощности зон высокой проводимости. В дальнейшем задаваемые параметры модифицировались для мощности слоя 1 м. Верхняя и нижняя границы модели непроницаемы. Боковая граница задана условием III рода — граница на бесконечном удалении с постоянным напором 21 м и эквивалентной гидравлической проводимостью  $2 \text{ м}^2/\text{сут}$ , величины которых были установлены в ходе решения вспомогательных задач на упрощенных моделях.

Горизонтальный коэффициент фильтрации блоков пород задан  $0,0001 \text{ м/сут}$  [1], зон —  $0,25 \text{ м/сут}$  по результатам ранее проведенных исследований. Всего три зоны. Вертикальный коэффициент фильтрации на всей модели задан  $0,000001 \text{ м/сут}$ , что практически полностью исключает перетекание между зонами

высокой проницаемости. Упругоэластичность пород составляет  $0,005 \text{ м}^3$  [5].

Скважина закачки задана в виде источника переменной интенсивности в слоях модели, соответствующих зонам высокой проводимости. Принимая во внимание то, что разница во времени достижения отходов каждой зоны по стволу скважины несоизмеримо мала по сравнению с общим временем нагнетания за один цикл, допускаем, что отходы появляются на глубине каждой зоны одновременно. Средний расход нагнетания отходов в водоносный комплекс в период эксплуатации равен примерно  $450 \text{ м}^3/\text{сут}$ . Нами рассматривается только верхняя часть комплекса. Расход, поступающий в каждую зону, —  $50 \text{ м}^3/\text{сут}$ .

Следующий этап включает трансформацию задачи из нестационарного в стационарный режим для ускорения расчетов, учитывая, что наступление квазистационарного режима происходит достаточно быстро в области, занятой мигрирующими отходами. Нагнетание отходов в среднем ведется 15 дней, после чего идет период «простоя» продолжительностью около 15 дней. Такая продолжительность цикла нагнетания при расчете фильтрации и миграции на срок эксплуатации полигона и прогнозный срок весьма увеличивает во времени как само построение модели (создание множества периодов постоянства граничных условий), так и длительность расчета. Ввиду этого было выдвинуто предположение о том, что объединение нескольких циклов нагнетания-релаксации несущественно повлияет на результат расчетов миграции. Таким образом, длительность нагнетания была увеличена до 30, 90 и 180 суток. Для расчетного срока в 1 год результаты решения фильтрационной задачи представлены на графике (рис. 2).

Как показано на графике (см. рис. 2), изменения уровней в случаях нагнетания в реальном режиме тридцатидневного и девятистодневного схожи, и разница в абсолютных значениях не превышает  $0,5 \text{ м}$ , что в масштабах данного исследования вполне допустимо. График изменения уровня при цикле

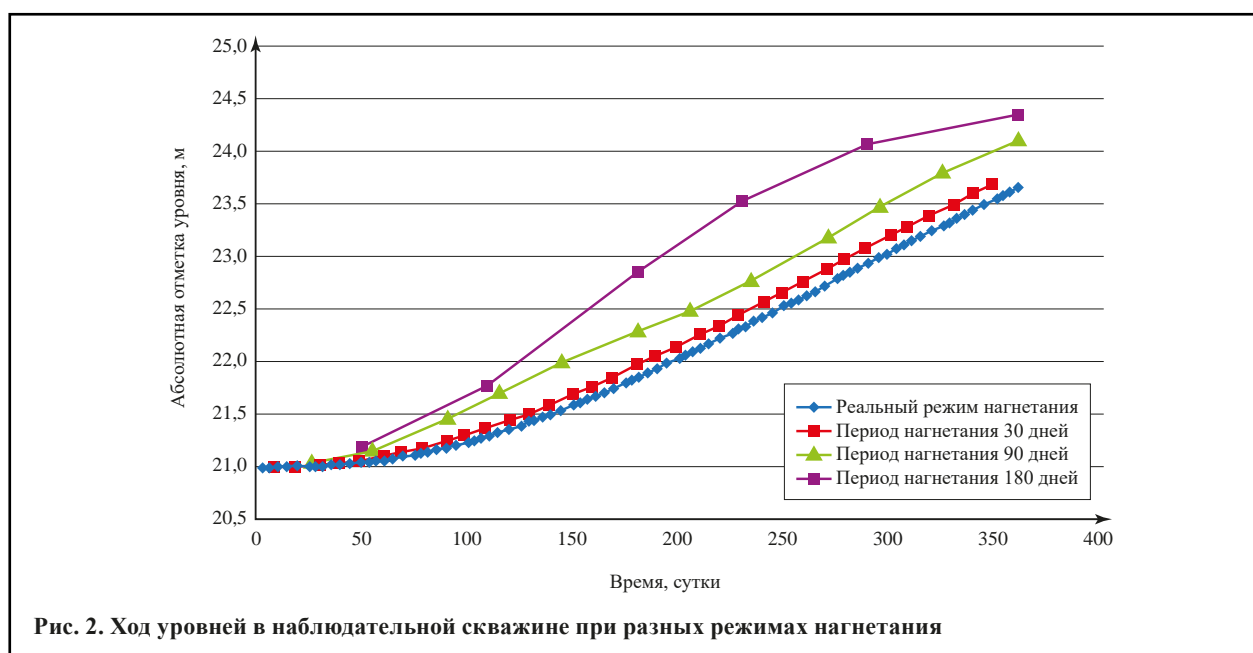


Рис. 2. Ход уровней в наблюдательной скважине при разных режимах нагнетания

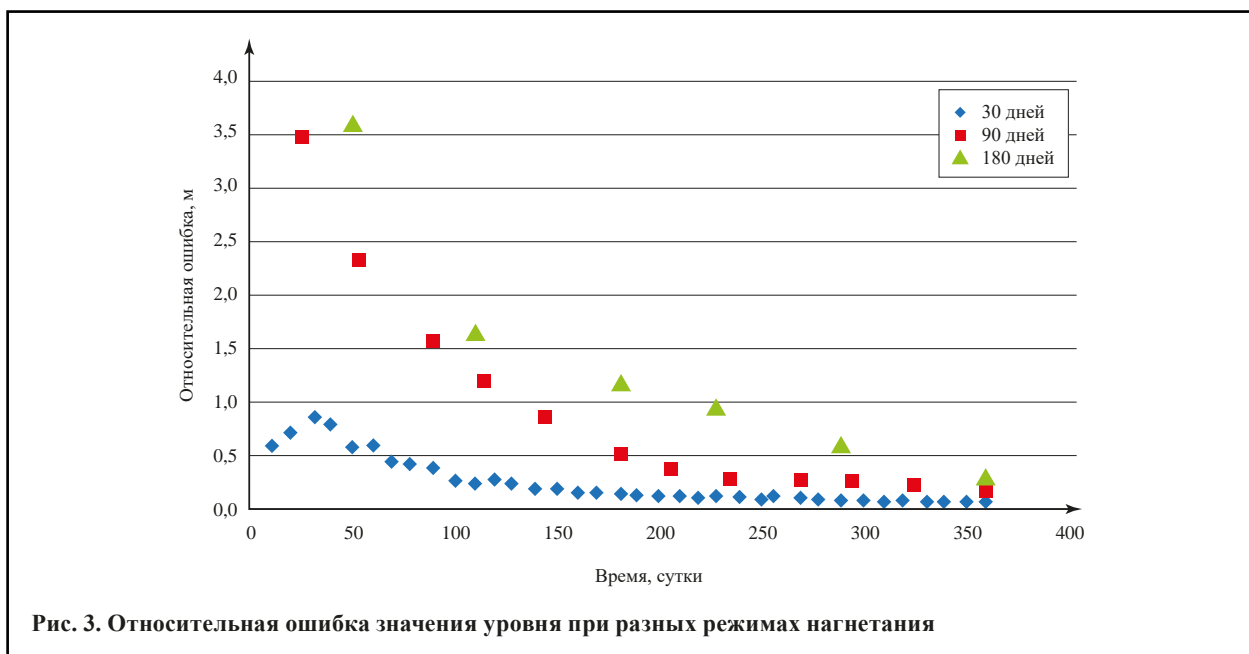


Рис. 3. Относительная ошибка значения уровня при разных режимах нагнетания

нагнетания 180 суток и «простоя» 180 суток отличается от графика реального режима нагнетания. Максимальное среднеквадратическое отклонение по четырем измерениям составляет 0,46 м. На следующем графике (рис. 3) приведены относительные ошибки для каждого из вариантов режима. В первые сутки каждый из режимов дает серьезную ошибку относительно искомого значения. Но с увеличением продолжительности расчета величина ошибки экспоненциально уменьшается. Через 1 год относительная ошибка каждого варианта режима практически одинаковая. Это говорит о том, что при долгосрочном прогнозном расчете режим нагнетания не имеет принципиального значения.

Таким образом, режим нагнетания был выбран следующий: 180 суток — нагнетание с дебитом 50 м³/сут в одну проводящую зону, 180 суток — «простоя» скважины. Общее время 100 лет: 50 лет — период эксплуатации полигона (закачка) и последующие 50 лет — отсутствие поступления отходов в пласт.

### Геомиграционная модель

На основе геофильтрационной модели построена модель массопереноса. При помощи программы Seawat, проводящей расчет связанных уравнений фильтрации и миграции с использованием линейной зависимости плотности от концентрации, исследовано влияние плотностной конвекции. Задана минерализация природных вод 221 г/л и нулевые концентрации радионуклидов как начальные условия и в качестве граничного условия на скважине минерализация стоков 2 г/л в ячейке и концентрации радионуклидов <sup>90</sup>Sr — 1,74·10<sup>-8</sup> моль/дм³ и <sup>137</sup>Cs — 2,74·10<sup>-8</sup> моль/дм³. Также для области миграции заданы коэффициенты распределения K<sub>d</sub> для <sup>90</sup>Sr 0,02 м³/кг, для <sup>137</sup>Cs 0,35 м³/кг [7]. Плотность известняков задана 2300 кг/м³ [4].

При решении уравнений конвективного переноса использовался метод конечных разностей с первой производной функции вверх по потоку. Такой метод дает численную дисперсию в горизонтальном и

вертикальном направлениях с дисперсивностью 1/2 размера блока. Была предпринята попытка ускорить расчет конвективного переноса в ячейках модели, соответствующих зонам высокой проводимости, поэтому физическая дисперсия в модели не задавалась, а учитывалась за счет численной дисперсии. Диффузионные процессы в блоках также не учитывались, так как наибольший интерес вызывало влияние естественной конвекции.

В результате прогнозного решения задачи массопереноса на 100 лет был сделан вывод, что изменение минерализации вокруг источника распространяется не более чем на 2,9 км. Ввиду этого размеры модели были сокращены, а размер ячеек уменьшен до 20×20 м², что позволило увеличить детальность и уменьшить время расчетов.

Для понимания определяющего фактора в процессе миграции отходов в анизотропной среде был проведен расчет массопереноса с учетом и без учета разницы плотностей природных вод (1,14 г/см³) и нагнетаемых отходов (1,00 г/см³). Полное отсутствие влияния плотностной конвекции на длину пути и направление миграции позволило перейти к дальнейшим расчетам на примере одной проницаемой зоны, что существенно сокращает суммарное время расчетов.

Для моделирования многокомпонентного переноса совместно с термодинамическим моделированием равновесных процессов необходимо выполнение трех условий реакций ионного обмена.

$$E^+ + 1/2 MX_2 = EX + 1/2 M^{2+} \quad (1)$$

1. Закон действующих масс реакции ионного обмена для каждой пары обменивающихся ионов:

$$K = \frac{N_M C_E}{N_E C_M} \quad (2)$$

2. Уравнение электронейтральности раствора (баланс зарядов):

Таблица 1

$$\sum_1^I m_i z_i = 0 \quad (3)$$

3. Уравнение баланса массы обменного комплекса

$$\sum_1^I N_i = N^T \quad (4)$$

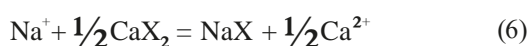
где  $K$  — константа равновесия для данной реакции,  $C_e, C_m$  — концентрации катионов в растворе,  $N_m, N_e$  — концентрации катионов в обменном комплексе,  $N^T$  — емкость катионного обмена породы.

Обменный комплекс породы характеризуется величиной емкости катионного обмена, показывающей максимальное количество нескомпенсированных зарядов на поверхности частиц породы. В случае гетеровалентного обмена, когда многовалентный катион занимает определенное число однозарядных центров, говорят о мольной и эквивалентной доле ионов. В нашем случае рассматривалась мольная доля (конвенция А.П. Ванселова), то есть отношение количества молекул адсорбированного катиона к общему количеству адсорбированных молекул разной валентности:

$$\beta_m^m = \frac{\text{ммоль } MX_z / 100\text{г породы}}{\text{СОК}} \quad (5)$$

где  $\beta_m^m$  — мольная доля иона  $M^{z+}$ , СОК — сумма обменных катионов.

А.П. Ванселов предложил уравнение гетеровалентного ионного обмена, основанное на мольной доле компонентов в твердой фазе [3]. Например, для реакции:



константа равновесия записывается следующим образом:

$$K_{\text{Na/Ca}}^v = \frac{[\text{NaX}] \cdot [\text{Ca}^{2+}]^{1/2}}{[\text{CaX}_2]^{1/2} \cdot [\text{Na}^+]} = \frac{\beta_{\text{Na}}^m \cdot [\text{Ca}^{2+}]^{1/2}}{(\beta_{\text{Ca}}^m)^{1/2} \cdot [\text{Na}^+]} \quad (7)$$

Химические составы природных вод и стоков были подобраны, основываясь на опубликованных данных в отчете Евросоюза [12]. В качестве активного пороодообразующего минерала, к тому же участвующего в ионно-обменных процессах, был использован кальцит. В состав обменного комплекса вошли катионы  $\text{Na}^+, \text{Ca}^{2+}, \text{Mg}^{2+}, \text{Sr}^{2+}, \text{Cs}^+$ . Модельные составы, включая обменный комплекс, были получены в программе Phreeqc. Критерием правильности служило отсутствие растворения или осаждения кальцита в природном рассоле, получение значения pH, адекватного природному рассолу и стоку. Необходимость создания этих моделей определяется ошибками аналитических определений и обычным отсутствием определения угольной кислоты.

Для проведения расчетов в программе Phreeqc и далее в программе PH3D была подобрана и расширена база данных химических соединений и значений

Модельные составы [12]			
Моделируемые химические составы			
Компонент	Размерность	Природные воды	Сток
$t$	°C	27	26
pH	б/р	7,39	7,00
pe	б/р	12,25	12,57
Плотность	кг/дм <sup>3</sup> воды	1,142	1,000
Минерализация	г/дм <sup>3</sup> воды	221,0	2,00
$\text{Ca}^{2+}$	моль/дм <sup>3</sup> воды	4,300E-02	1,400E-03
$\text{Cl}^-$	моль/дм <sup>3</sup> воды	3,187E+00	8,100E-03
$\text{Mg}^{2+}$	моль/дм <sup>3</sup> воды	4,150E-02	1,40E-03
$\text{Na}^+$	моль/дм <sup>3</sup> воды	3,027E+00	3,04E-02
$\text{SO}_4^{2-}$	моль/дм <sup>3</sup> воды	3,380E-03	2,33E-03
$\text{HCO}_3^-$	моль/дм <sup>3</sup> воды	1,570E-03	1,31E-02
$\text{NO}_3^-$	моль/дм <sup>3</sup> воды	8,100E-02	1,37E-02
$\text{Cs}^+$	моль/дм <sup>3</sup> воды	0	2,74E-08
$\text{Sr}^{2+}$	моль/дм <sup>3</sup> воды	0	1,77E-08
Минералы			
Кальцит	моль/дм <sup>3</sup> породы	1,00	
Обменная ёмкость			
NaX	моль/дм <sup>3</sup> воды	4,77E-02	
$\text{CaX}_2$	моль/дм <sup>3</sup> воды	7,58E-04	
$\text{MgX}_2$	моль/дм <sup>3</sup> воды	3,90E-04	
$\text{SrX}_2$	моль/дм <sup>3</sup> воды	0	
CsX	моль/дм <sup>3</sup> воды	0	

их термодинамических параметров, включающая все элементы, присутствующие в составе природных вод и стоков, необходимые компоненты обменного комплекса и минералы. Принята модель активности Питцера. Емкость катионного обмена была задана по имеющимся в литературе результатам исследований известняков на участке шламохранилища (рассолы) в г. Березняки. Обменный комплекс породы составляют катионы  $\text{Ca}^{2+} - 5, \text{Mg}^{2+} - 2$  мг-экв/100 г [4].

Гидрогеохимическая система, кроме основных макрокомпонентов растворов, обменного комплекса и минералов, включала и комплексные соединения макрокомпонентов, например  $\text{CaCl}^+, \text{SrNO}_3^+$  и т.п., присутствующие в концентрациях больше 0,01% от валового количества макрокомпонента. Это приводит к сокращению времени счета без практической потери качества, но нуждается в дополнительном исследовании. Модельные составы рассолов и стоков

и состав обменного комплекса, используемые при моделировании миграции программой РНТЗД, приведены в таблице 1.

В результате проведенных расчетов взаимодействия химического состава природных вод и стоков с вмещающими породами был сделан вывод о необходимости создания модели-врезки для более детального изучения миграции радионуклидов  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{90}\text{Sr}$ . Размер модели был сокращен до  $900 \times 900$  м с размером ячейки в плане  $7 \times 7$  м.

В качестве начальных условий во все ячейки модели задавался состав природных вод. В ячейку, соответствующую скважине, был задан модельный состав отходов.

Для радиального потока скорость массопереноса пропорциональна  $\pi r^2$ , где  $r$  — радиус фронта относительно нагнетательной скважины. Отсюда следует, что коэффициент замедления для радионуклидов в радиальном потоке, естественный поток практически нулевой, будет равен:

$$R = \frac{\pi r_1^2}{\pi r_2^2}, \quad (8)$$

где  $R$  — коэффициент замедления,  $r_1$  — радиус фронта нейтрального мигранта, м,  $r_2$  — радиус фронта радионуклида, м.

Коэффициент распределения был получен на основе коэффициента замедления [3]:

$$R = 1 + \frac{\Delta N}{n \Delta C}, \quad (9)$$

где  $\Delta N$  — концентрация радионуклида в твердой фазе,  $\Delta C$  — концентрация радионуклида в растворе. Коэффициент замедления для радиального потока для линейной изотермы сорбции [3]:

$$R = 1 + \frac{K_d}{n}, \quad (10)$$

где  $K_d$  — коэффициент распределения радионуклида,  $n$  — пористость.

### Результаты исследования

1. Было проведено сравнение рассчитанного поля напоров при периодическом нагнетании (180 суток) и постоянном нагнетании со средним дебитом для всего времени расчета. Результаты показывают, что в начальный период времени (первые 15 лет) ход уровней несколько различается: при постоянном нагнетании уровни в наблюдательных скважинах ниже на 30–50 см, чем при периодическом. После 15 лет эксплуатации разница расчетных уровней при сопоставлении двух режимов составляет не более 1 см (рис. 4). Такая точность решения фильтрационной задачи удовлетворяет требованиям. Поэтому для оптимизации расчетов и экономии времени можно задавать постоянный режим нагнетания со средним дебитом.

2. Расчеты массопереноса с учетом разности плотности природных вод и стоков наглядно показывают, что вертикальная миграция стоков между зонами высокой проницаемости не наблюдается. Влияние плотностного эффекта наблюдается исключительно в пределах одной зоны. Таким образом, можно говорить о том, что в рассматриваемой неоднородной среде отходы быстрее заполняют высокопроницаемые зоны и мигрируют в плане, чем в разрезе через слабопроницаемые блоки известняков. Данный факт позволяет в дальнейшем рассматривать одну зону высокой проводимости при расчетах смешения природных вод и отходов, что существенно сокращает время расчета и задания параметров в модели в целях данного исследования.

3. Сравнение режимов нагнетания (постоянного и периодического) также показало, что контуры изолиний минерализации распространяются в обоих случаях на одно и то же расстояние от нагнетательной скважины.

4. Был получен состав обменного комплекса

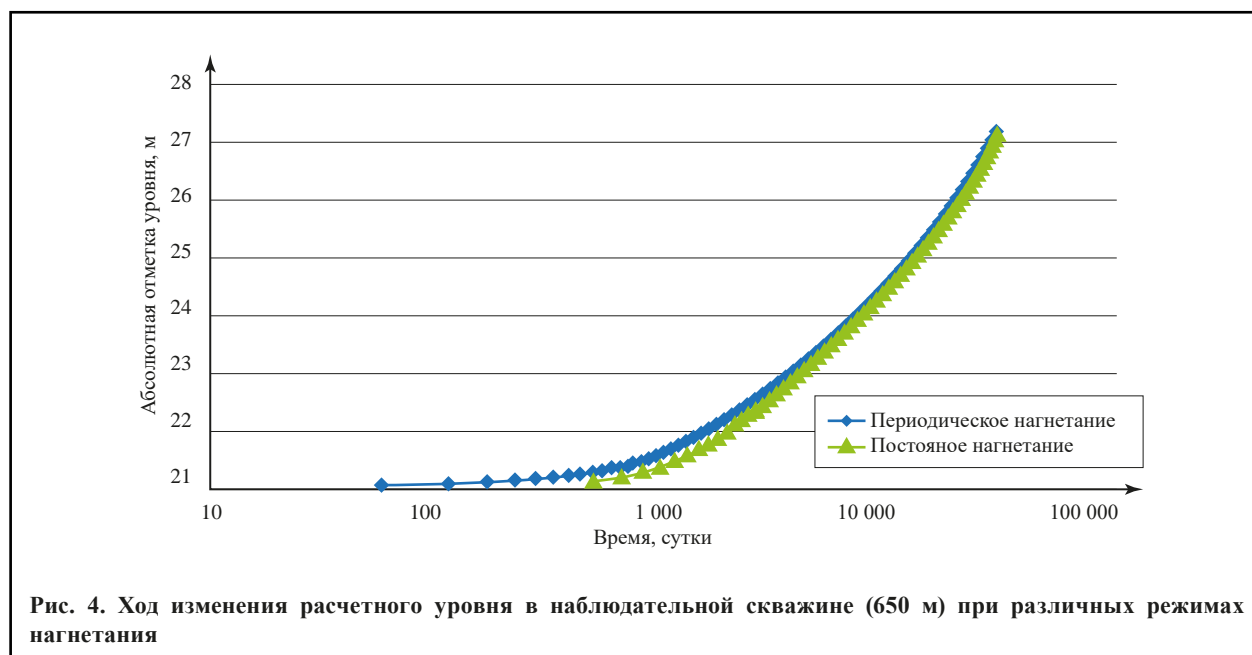


Рис. 4. Ход изменения расчетного уровня в наблюдательной скважине (650 м) при различных режимах нагнетания

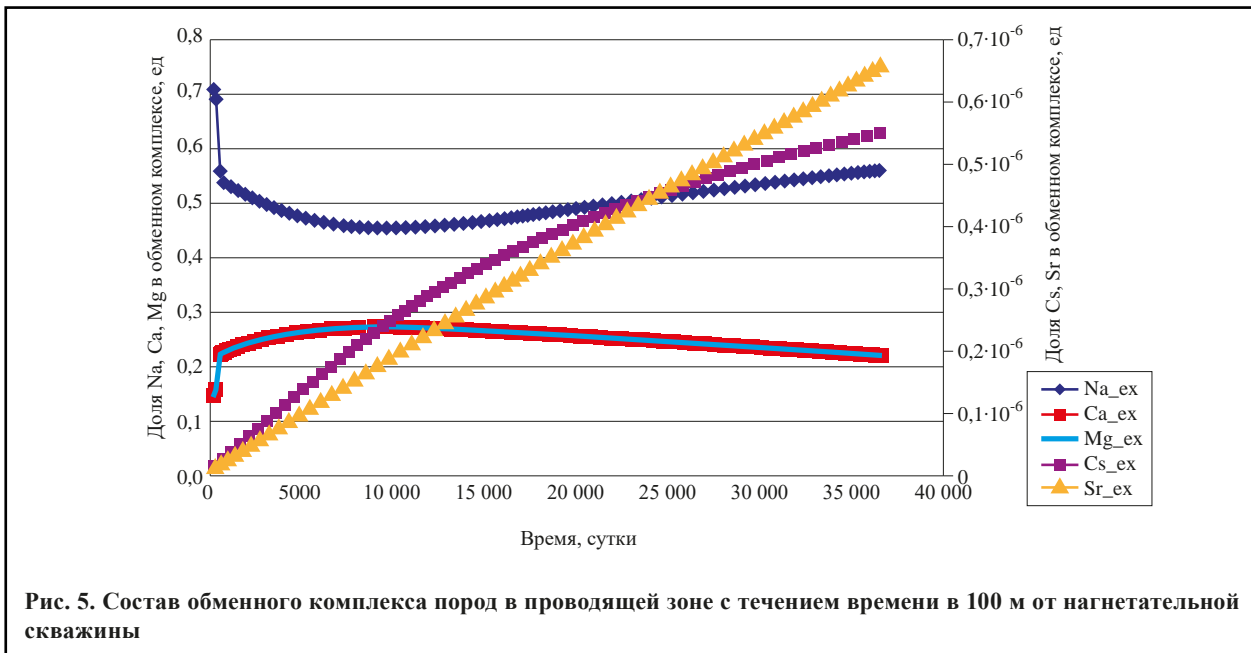


Рис. 5. Состав обменного комплекса пород в проводящей зоне с течением времени в 100 м от нагнетательной скважины

породы и изменение его во времени на различном удалении от центра нагнетания. Как видно на графике (рис. 5), основным компонентом обменного комплекса, так же как и раствора, является натрий. При разбавлении раствора и уменьшении концентрации натрия его количество в обменном комплексе уменьшается, в то время как количество кальция и магния практически постоянно. Концентрация радиоактивных компонентов в обменном комплексе растет.

5. Скорость и характер миграции рассмотренных радиоактивных компонентов Cs<sup>+</sup> и Sr<sup>2+</sup> сильно зависят от состава природных вод и вмещающих пород. Коэффициент распределения радионуклидов зависит от концентраций основных катионов, входящих в состав обменного комплекса, то есть Na<sup>+</sup>, Ca<sup>2+</sup> и Mg<sup>2+</sup>. При уменьшении минерализации природных вод K<sub>d</sub> радионуклидов увеличивается.

6. Как видно на графике (рис. 6) движения макрокомпонентов, через год эксплуатации фронт

находится в 220 м от нагнетательной скважины. Зона дисперсии и диффузионного массообмена зон и слабопроницаемых слоев пород, возникающая из-за выбранного метода решения конвективного переноса, составляет 80 м. В этой зоне происходит изменение химического состава природных вод при взаимодействии их со стоком.

7. При сопоставлении зависимости коэффициентов распределения радионуклидов от расстояния до нагнетательной скважины через год после начала эксплуатации видим, что в краевых частях распространения стока 180–260 м коэффициент распределения стронция и цезия резко уменьшается (рис. 7, 8). Это говорит о том, что скорость движения радионуклидов возрастает и при минимальном коэффициенте для Sr 0,41 дм<sup>3</sup> воды/дм<sup>3</sup> породы на расстоянии 280 м от скважины и для Cs 3,11 дм<sup>3</sup> воды/дм<sup>3</sup> породы на расстоянии 240 м от скважины она практически равна скорости движения макрокомпонентов.

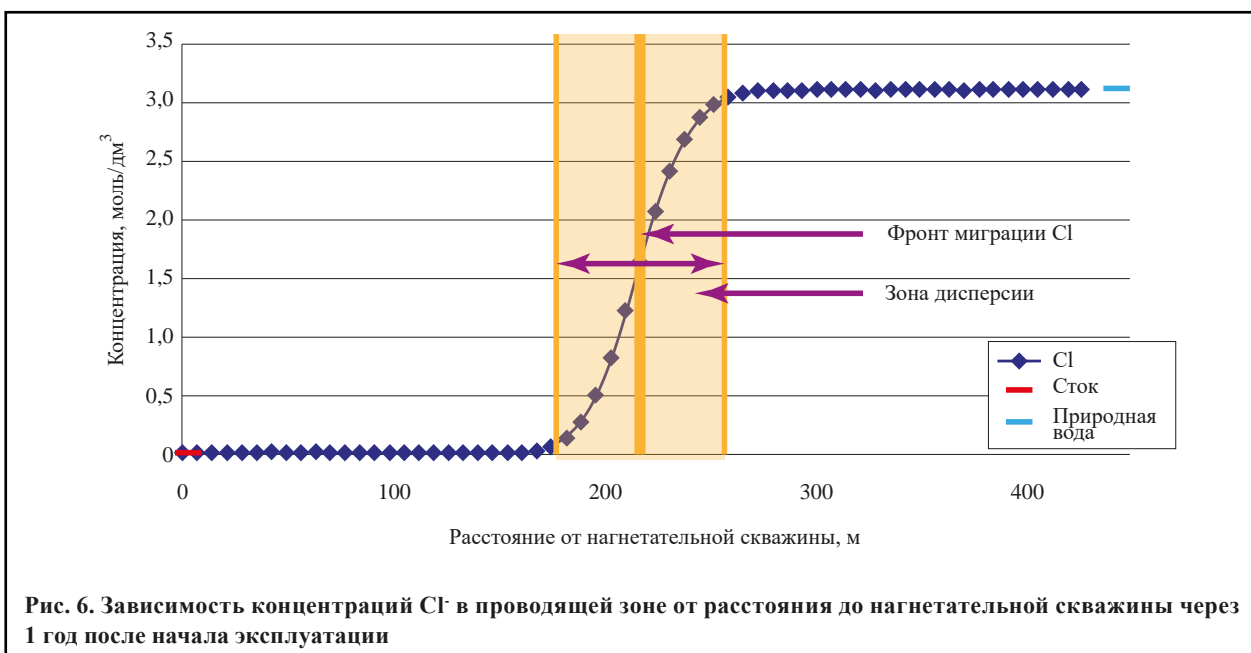
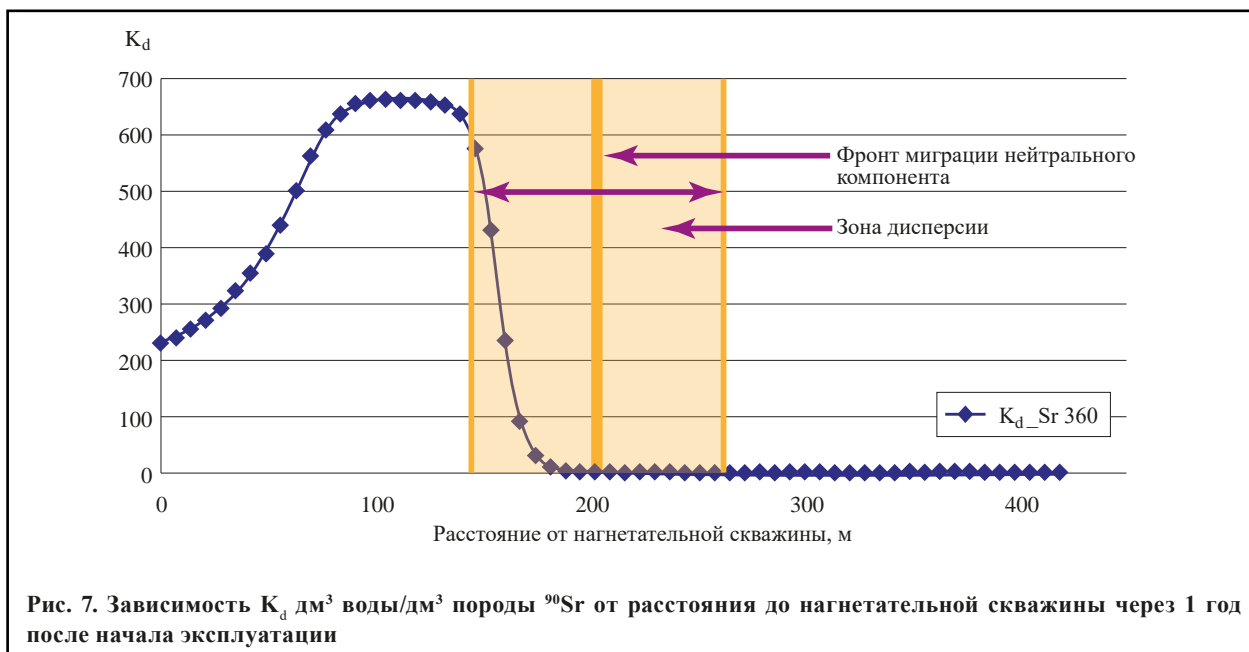


Рис. 6. Зависимость концентраций Cl<sup>-</sup> в проводящей зоне от расстояния до нагнетательной скважины через 1 год после начала эксплуатации



8. Как показано на графиках (см. рис. 7, 8) зависимости коэффициента распределения стронция и цезия, в ближайшей к скважине зоне его значение резко возрастает. Это обусловлено тем, что большая часть поступающего вместе со стоком радионуклида (см. рис. 7, 8) переходит в обменный комплекс породы. С удалением от скважины концентрация радионуклидов сокращается, в связи с чем значение  $K_d$  выходит на постоянное значение. Далее концентрация радионуклидов сокращается до 0, поэтому значение коэффициента распределения резко уменьшается.

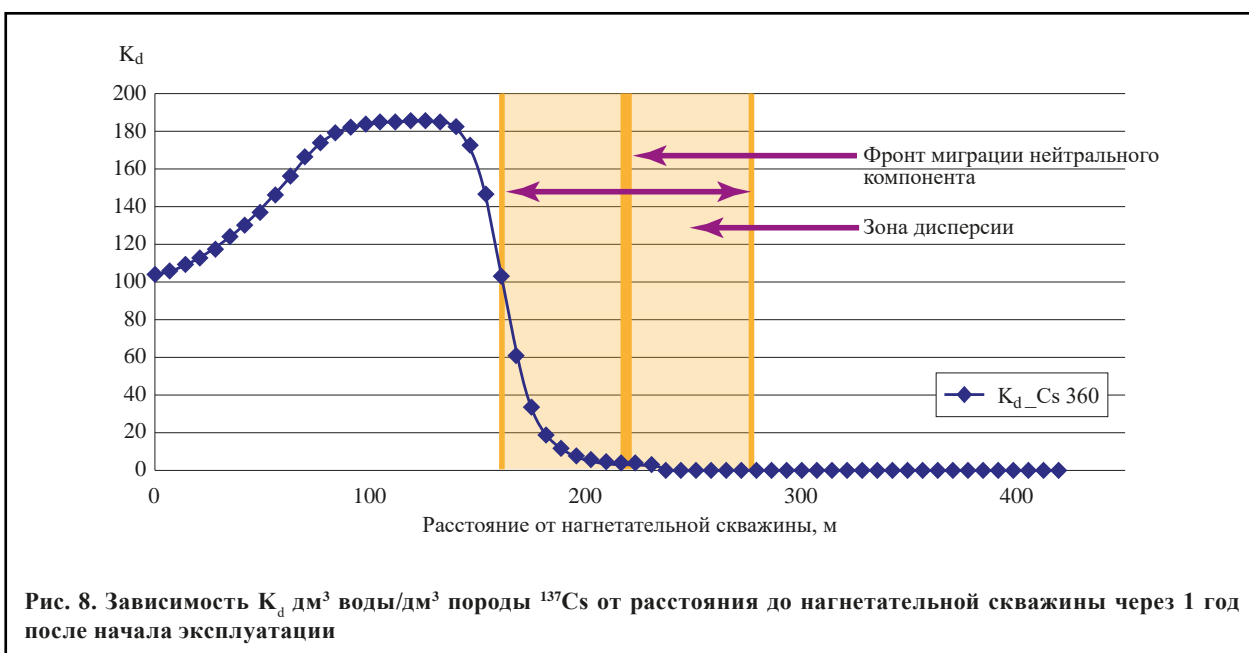
9. По результатам расчета массопереноса распространение радионуклидов через 100 лет без учета радиоактивного распада обнаружено в радиусе 400 м — Sr, 450 м — Cs от нагнетательной скважины. Вследствие того, что концентрации радионуклидов много меньше концентраций остальных компонентов раствора, коэффициенты распределения и расстояния переноса будут практически теми же.

### Заключение

В ходе исследования были разработаны геофильтрационная и геомиграционная модели (далее — модели) верхней части карбонатной толщи, в которую производится захоронение жидких радиоактивных отходов. На их основе проводилось изучение взаимодействия химического состава природных вод со стоками.

В результате исследования процессов массопереноса при периодическом режиме нагнетания стоков был сделан вывод о возможности замены периодов нагнетания на постоянный режим со средним дебитом. Это вывод важен с точки зрения дальнейших исследований при разработке моделей этого полигона, так как наличие циклов нагнетания существенно замедляет процесс задания параметров модели.

Подтвердилась гипотеза об отсутствии влияния плотностного эффекта на миграцию компонентов






раствора в сильно анизотропной среде, возникающего вследствие конвективного переноса нагнетаемых стоков ( $1,00 \text{ г/см}^3$ ) в природных водах ( $1,14 \text{ г/см}^3$ ). В нашем случае в направлении и скорости миграции важную роль играет неоднородное строение толщи, что практически исключает естественную конвекцию.

Проведенное моделирование миграции с включением блока расчета химических равновесий в систему «подземная вода — минералы — обменный комплекс» позволило установить относительные скорости перемещения радионуклидов и остальных компонентов раствора. В среднем цезий движется в 27 раз, а стронций в 20 раз медленнее нитрата или хлора, считающихся в данной постановке нейтральными компонентами.

Содержание радиоактивных компонентов в растворе и обменном комплексе определяется концентрациями катионов-макрокомпонентов ( $\text{Na}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ), сорбирующихся на поверхности породы. Основную часть обменной емкости (0,6–0,8) занимает катион натрия в течение всего моделируемого периода времени. Но его доля в емкости постепенно снижается. Это обусловлено тем, что доля натрия в стоках (0,96) незначительно меньше, чем в природных водах (0,98).

Доля радионуклидов  $\text{Cs}^+$  и  $\text{Sr}^{2+}$  растёт от 0 до  $5 \cdot 10^{-6}$  так, как и доля их в стоках ( $8 \cdot 10^{-7}$ ) больше, чем в природных водах (0,0). Содержание катионов кальция и магния остается примерно на одном уровне, так как доли этих компонентов в природных водах (0,01) и стоках (0,02) соизмеримы. Таким образом, основное влияние на концентрацию стронция и цезия в обменном комплексе оказывает натрий.

Как было установлено, в краевой зоне вытеснения величина коэффициента распределения сильно снижается, вследствие чего возрастает скорость движения радионуклидов и приближается к скорости движения нейтральных компонентов. Отсюда следует, что следовые концентрации цезия и стронция могут присутствовать на большем удалении от центра нагнетания и появляться практически вместе с нитратом.

Получены средние значения коэффициентов распределения для стронция —  $185 \text{ дм}^3 \text{ воды/дм}^3 \text{ породы}$ , или  $4,0 \text{ дм}^3/\text{кг}$ , цезия —  $670 \text{ дм}^3 \text{ воды/дм}^3 \text{ породы}$ , или  $14,6 \text{ дм}^3/\text{кг}$ , на момент времени эксплуатации 1 год в области примерного постоянства химического состава воды — в окрестности нагнетательной скважины. 

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Белицкий А.С., Орлова Е.И. Охрана подземных вод от радиоактивного загрязнения. Медицина. 1969.
2. Гремячкин В.А., Соболев А.М., Улюшкина Ю.Н. Ассоциированная химико-реакционно-транспортная модель полигона подземного захоронения ЖРО НИИАР. 2013. URL: <http://www.atomicenergy.ru/technology/45951>.
3. Лехов А.В. Физико-химическая гидрогеодинамика: учебник. М.: КДУ, 2010. 500 с.
4. Мироненко В.А., Румынин В.Г. Проблемы гидрогеологии: монография; в 3 т. Том 1: Теоретическое изучение и моделирование геомиграционных процессов. М.: Изд-во Московского государственного горного университета, 1998. 611 с.
5. Мироненко В.А. Динамика подземных вод: учебник. 3-е изд., стер. М.: Изд-во Московского государственного горного университета, 2001. 519 с.
6. Рыбальченко А.И., Курочкин В.М., Верещагин П.М., Захарова Е.В., Косарева И.М. Международное сотрудничество в области глубинного захоронения жидких радиоактивных отходов // Российская конференция «Фундаментальные аспекты безопасного захоронения РАО в геологических формациях». Граница, 2013. С. 116–120.
7. Рыбальченко А.И., Пименов М.К., Костин П.П. и др. Глубинное захоронение жидких радиоактивных отходов. М.: ИздАТ, 1994. 256 с.
8. Соболев А.М., Гремячкин В.А., Тихонов А.И. Оценка границ распространения ЖРО в пределах горизонтов глубинного захоронения опытно-промышленного полигона «ГНЦ НИИАР». URL: <http://www.atomicenergy.ru/articles/2014/12/18/53888>.
9. Chiang W.H., Kinzelbach W. 3D-Groundwater modeling with PMWIN. Berlin, Heidelberg, New York: Springer, 2001.
10. Prommer H., Post V. Reactive Multicomponent Transport Model for Saturated Porous Media, User's Manual v2.10. URL: [www.pht3d.org](http://www.pht3d.org), 2010.
11. Zheng C., Wang P.P. MT3DMS: A modular three-dimensional multispecies model for simulation of advection, dispersion and chemical reactions of contaminants in groundwater systems; Documentation and Users Guide, Contract Report SERDP-99-1, U.S. Army Engineer Research and Development Center, Vicksburg, MS, 2002.
12. Measurements, modelling of migration and possible radiological consequences at deep-well injection sites for liquid radioactive waste in Russia, Final report, European Communities, 1997.
13. Parkhurst D., Appelo C.A.J. Description of Input and Examples for PHREEQC Version 3. A Computer Program for Speciation, Batch-Reaction, One-Dimensional Transport, and Inverse Geochemical Calculations, 2014.