

ISSN (print) – 2500-1019 ISSN (on-line) – 2413-1830

## ИЗВЕСТИЯ ТОМСКОГО ПОЛИТЕХНИЧЕСКОГО УНИВЕРСИТЕТА ИНЖИНИРИНГ ГЕОРЕСУРСОВ

Том 332, № 9, 2021

Издательство Томского политехнического университета 2021

## ИЗВЕСТИЯ ТОМСКОГО ПОЛИТЕХНИЧЕСКОГО УНИВЕРСИТЕТА. ИНЖИНИРИНГ ГЕОРЕСУРСОВ

#### Редакционная коллегия

Семилетов И.П., гл. редактор, д-р геогр. наук (Россия) Кирьянова Л.Г., выпуск. редактор, канд. филос. наук (Россия) Глазырин А.С., выпуск. редактор, д-р техн. наук (Россия) Алексеенко С.В., д-р физ.-мат. наук (Россия) Борисов А.М., д-р физ.-мат. наук (Россия) Воропай Н.И., д-р техн. наук (Россия) Джин-Чун Ким, Dsc (Южная Корея) Заворин А.С., д-р техн. наук (Россия) Зиатдинов Р.А., канд. физ.-мат. наук (Южная Корея) Ильин А.П., д-р физ.-мат. наук (Россия) Конторович А.Э., д-р геол.-минерал. наук (Россия) Коротеев Ю.М., д-р физ.-мат. наук (Россия) Коршунов А.В., д-р хим. наук (Россия) Кочегуров А.И., канд. техн. наук (Россия) Маркович Д.М., д-р физ.-мат. наук (Россия) Муравьев С.В., д-р техн. наук (Россия) Никитенков Н.Н., д-р физ.-мат. наук (Россия) Оствальд Р.В., канд. хим. наук (Россия) Пестряков А.Н., д-р хим. наук (Россия) Покровский О.С., канд. геол.-минерал. наук (Франция) Руи Д., PhD (Португалия) Савичев О.Г., д-р геогр. наук (Россия) Силкин В.М., д-р физ.-мат. наук (Испания) Спицын В.Г., д-р техн. наук (Россия) Старостенко В.И., д-р физ.-мат. наук (Украина) Тойпель У., Dsc (Германия) Уленеков О.Н., д-р физ.-мат. наук (Россия) Ханьялич К., Dsc (Нидерланды) Пойлов В.З., д-р техн. наук (Россия) Боярко Г.Ю., д-р экон. наук, канд. г.-м. наук, проф. (Россия) Софронов В.Л., д-р хим. наук (Россия) Бузник В.М., д-р хим. наук (Россия) Захаров Ю.А., д-р хим. наук (Россия) Антипенко В.Р., д-р хим. наук (Россия) Голик В.И., д-р техн. наук (Россия) Абуталипова Е.М., д-р техн. наук (Россия) Полищук В.И., д-р техн. наук (Россия) Хамитов Р.Н., д-р техн. наук (Россия) Зюзев А.М., д-р техн. наук (Россия) Белозеров В.Б., д-р геол.-минерал. наук (Россия) Третьяк А.Я., д-р техн. наук (Россия) Арбузов С.И., д-р геол.-минерал. наук (Россия) Ковалев В.З., д-р техн. наук (Россия) Романенко С.В., д-р хим. наук (Россия) Стрижак П.А., д-р физ.-мат. наук (Россия)

> Входит в Перечень ВАК РФ – ведущих рецензируемых научных журналов и изданий, в которых должны быть опубликованы основные научные результаты диссертаций на соискание ученых степеней доктора и кандидата наук.

> > Подписной индекс в объединённом каталоге «Пресса России» – 18054

> > > © ФГАОУ ВО НИ ТПУ, 2021

#### УВАЖАЕМЫЕ ЧИТАТЕЛИ!

Журнал «Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов» – рецензируемый научный журнал, издающийся с 1903 года.

Учредителем является Томский политехнический университет.

Журнал зарегистрирован Федеральной службой по надзору в сфере связи, информационных технологий и массовых коммуникаций (свидетельство ПИ № ФС 77-65008 от 04.03.2016 г.)

ISSN (print) – 2500-1019 ISSN (on\_line) – 2413-1830

Пятилетний импакт-фактор РИНЦ за 2015 г. – 0,339 (без самоцитирования – 0,287)

«Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов» публикует оригинальные работы, обзорные статьи, очерки и обсуждения, охватывающие последние достижения в области геологии, разведки и добычи полезных ископаемых, технологии транспортировки и глубокой переработки природных ресурсов, энергоэффективного производства и преобразования энергии на основе полезных ископаемых, а также безопасной утилизации геоактивов.

Журнал представляет интерес для геологов, химиков, технологов, физиков, экологов, энергетиков, специалистов по хранению и транспортировке энергоресурсов, ИТ-специалистов, а также ученых других смежных областей.

Тематические направления журнала «Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов»:

- Прогнозирование и разведка георесурсов
- Добыча георесурсов

•

- Транспортировка георесурсов
- Глубокая переработка георесурсов
  - Энергоэффективное производство и преобразование
- энергии на основе георесурсов
- Безопасная утилизация георесурсов и вопросы геоэкологии
- Инженерная геология Евразии и окраинных морей
- Экономические и социальные аспекты использования георесурсов

К публикации принимаются статьи, ранее нигде не опубликованные и не представленные к печати в других изданиях.

Статьи, отбираемые для публикации в журнале, проходят закрытое (слепое) рецензирование.

Автор статьи имеет право предложить двух рецензентов по научному направлению своего исследования.

Окончательное решение по публикации статьи принимает главный редактор журнала.

Все материалы размещаются в журнале на бесплатной основе.

Журнал издается ежемесячно.

Полнотекстовый доступ к электронной версии журнала возможен на сайтах www.elibrary.ru, scholar.google.com



ISSN (print) – 2500\_1019 ISSN (on\_line) – 2413\_1830

## BULLETIN OF THE TOMSK POLYTECHNIC UNIVERSITY GEO ASSETS ENGINEERING

Volume 332, № 9, 2021

Tomsk Polytechnic University Publishing House 2021

## BULLETIN OF THE TOMSK POLYTECHNIC UNIVERSITY. GEO ASSETS ENGINEERING

#### Editorial Board

Semiletov I.P., editor in chief, Dr. Sc. (Russia) Kiryanova L.G., managing editor, Cand. Sc. (Russia) Glazyrin A.S., managing editor, Dr. Sc. (Russia) Alekseenko S.V., Dr. Sc. (Russia) Borisov A.M., Dr. Sc. (Russia) Voropai N.I., Dr. Sc. (Russia) Jin-Chun Kim, Dsc (South Korea) Zavorin A.S., Dr. Sc. (Russia) Ziatdinov R.A., Cand. Sc. (South Korea) Ilyin A.P., Dr. Sc. (Russia) Kontorovich A.E., Dr. Sc. (Russia) Koroteev Yu.M., Dr. Sc. (Russia) Korshunov A.V., Dr. Sc. (Russia) Kochegurov A.I., Cand. Sc. (Russia) Markovich D.M., Dr. Sc. (Russia) Muravyov S.V., Dr. Sc. (Russia) Nikitenkov N.N., Dr. Sc. (Russia) Ostvald R.V., Cand, Sc. (Russia) Pestryakov A.N., Dr. Sc. (Russia) Pokrovsky O.S., Cand. Sc. (France) Rui D., PhD (Portugal) Savichev O.G., Dr. Sc. (Russia) Silkin V.M., PhD (Spain) Spitsyn V.G., Dr. Sc. (Russia) Starostenko V.I., Dr. Sc. (Ukraine) Teipel U., Dsc (Germany) Ulenekov O.N., Dr. Sc. (Russia) Hanjalic K., Dsc (Netherlands) Poilov V.Z., Dr. Sc. (Russia) Sofronov V.L., Dr. Sc. (Russia) Buznik V.M, Dr. Sc. (Russia) Zakharov Yu.A., Dr. Sc. (Russia) Boyarko G.Yu., Dr. Sc., Cand. Sc.(Russia) Antipenko V.R., Dr. Sc. (Russia) Golik V.I., Dr. Sc. (Russia) Abutalipova E.M., Dr. Sc. (Russia) Polishchuk V.I., Dr. Sc. (Russia) Khamitov R.N., Dr. Sc. (Russia) Zyuzev A.M., Dr. Sc. (Russia) Belozerov V.B., Dr. Sc. (Russia) Tretiak A.Ya., Dr. Sc. (Russia) Arbuzov S.I., Dr. Sc. (Russia) Kovalev V.Z., Dr. Sc. (Russia) Romanenko S.V., Dr. Sc. (Russia) Strizhak P.A., Dr. Sc. (Russia)

© Tomsk Polytechnic University, 2021

#### AIMS AND SCOPES

Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering is peer-reviewed journal owned by Tomsk Polytechnic University.

The journal was founded in 1903.

The journal is registered internationally (ISSN 2413-1830) and nationally (Certificate PE no. FM 77-65008, March 04, 2016 from the Federal Service for Supervision in the Sphere of Communications, Information Technology and Mass Media).

ISSN (print) – 2500-1019 ISSN (on-line) – 2413-1830

The journal publishes research papers in the field defined as "life cycle of georesources". It presents original papers, reviews articles, rapid communications and discussions covering recent advances in geology, exploration and extraction of mineral resources, transportation technologies and deep processing of natural resources, energy-efficient production and energy conversion based on mineral resources as well as on safe disposal of geo assets.

The journal will be of interest to geologists, chemists, engineers, physicists, ecologists, power engineers, specialists in storage and transportation of energy resources, IT specialists as well as to other specialists in the related fields.

Scope of the journal issue "Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering" in accordance with Geo Assets (GA) strategy includes:

- Geo Assets exploration and refining;
- Geo Assets mining and transportation;
- Geo Assets deep processing;
- Energy-efficient production and conversion of energy based on Geo Assets;
- Safe disposal of Geo Assets and Geoecology issues;
- · Geo-engineering of Eurasia and marginal sea;
- Economic and social aspects of using Geo Assets.

Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering publishes only original research articles. All articles are peer reviewed by international experts. Both general and technical aspects of the submitted paper are reviewed before publication. Authors are advised to suggest two potential reviewers who are familiar with the research focus of the article. Final decision on any paper is made by the Editor in Chief.

Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering is published monthly.

The publication of manuscripts is free of charge.

The journal is on open access on www.elibrary.ru, scholar.google.com.

7

### СОДЕРЖАНИЕ

- Создание подземных противофильтрационных экранов с помощью направляющих скважин и шнекового устройства Менейлюк А.И., Никифоров А.Л., Менейлюк И.А., Руссый В.В.
  - Изотопный состав (δ<sup>18</sup>Ο, δD, δ<sup>13</sup>C, δ<sup>34</sup>S) подземных вод территории Торейских озер (Восточное Забайкалье) Лепокурова О.Е., Дребот В.В.
    - О воздействии объектов северо-западного атомно-промышленного комплекса на загрязнение подземных вод (Ленинградская область) Ерзова В.А., Румынин В.Г., Судариков С.М., Шварц А.А., Владимиров К.В.
- Влияние микроэлементного состава углеродсодержащих пород на возможность их использования в водоочистке (на примере шунгитов из Онежской палеопротерозойской структуры Карелии) Кондрашова Н.И., Медведев П.В.
- Особенности грунтов и потенциал восстановления природнотехнической системы «хвостохранилище EBPA3 КГОК» Меньшикова Е.А., Караваева Т.И., Хайрулина Е.А., Митракова Н.В.
  - Оценка эффективности парлифтной добычи флюида на Мутновском геотермальном месторождении (Камчатка) при разработке глубоких горизонтов Шулюпин А.Н., Любин А.А., Чернев И.И.
  - Характер распределения фосфатов в золотоносных корах выветривания Томского района Янченко О.М., Тимкин Т.В., Ворошилов В.Г., Якич Т.Ю., Зиаии М.
    - Перспективная технология для увеличения нефтеотдачи на месторождениях с разной проницаемостью пластов Манжай В.Н., Ульянюк М.П., Рождественский Е.А.
    - Особенности рудообразования Барун-Шивеинского вольфрамового месторождения (Восточное Забайкалье) Абрамов Б.Н.
    - Влияние параметров процесса полукоксования горючих сланцев на качество сланцевого полукокса Назаренко М.Ю., Салтыкова С.Н.
  - Влияние среды призабойной зоны скважины на эффективность разрушения горной породы резцом PDC Нескоромных В.В., Попова М.С., Баочанг Л.
- Анализ преимуществ систем обеспечения теплового режима локальных рабочих зон на основе газовых инфракрасных излучателей по сравнению с традиционными конвективными системами отопления Максимов В.И., Нагорнова Т.А., Куриленко Н.И., Волошко И.В.
  - Особенности распределения микроэлементов в почвах фоновых и импактных зон на участках алмазодобычи на северо-западе Сибирской платформы Легостаева Я.Б., Гололобова А.Г.
- Оптимизация порядка редуцированной динамической модели ненагруженного нефтепогружного кабеля на основе аппроксимации амплитудно-частотной характеристики Глазырин А.С., Исаев Ю.Н., Кладиев С.Н., Леонов А.П., Раков И.В., Колесников С.В., Ланграф С.В., Филипас А.А., Копырин В.А., Хамитов Р.Н., Ковалев В.З.
- Модифицированная оценка Прэтта–Яскорского в обобщенном показателе качества алгоритмов контурного детектирования Кочегуров А.И., Дубинин Д.В., Герингер В.
- Повышение энергетической эффективности бинарной ГЕОЭС (на примере Кумухского месторождения) Джаватов Д.К., Азизов А.А.

## CONTENTS

- Arrangement of underground anti-filtration shields using pilot wells and auger device Meneylyuk A.I., Nikiforov A.L., Meneylyuk I.A., Russyi V.V.
- 20 Isotopic composition (δ<sup>18</sup>O, δD, δ<sup>13</sup>C, δ<sup>34</sup>S) of groundwaters in the area of Torey lakes (Eastern Transbaikal region) Lepokurova O.E., Drebot V.V.
- 30 Influence of north-west nuclear complex facilities on groundwater contamination (Leningrad region) Erzova V.A., Rumynin V.G., Sudarikov S.M., Shvarts A.A., Vladimirov K.V.
- 43 Carbon bearing rocks (shungites). Are they so safe for drinking water purification? Kondrashova N.I., Medvedev P.V.
- 54 Specific features of soil and ecological state of natural technical system «EVRAZ KGOK tailing dump» Menshikova E.A., Karavaeva T.I., Khayrulina E.A., Mitrakova N.V.
- 67 Assessment of the efficiency of steam-lite fluid production at the Mutnovskoe geothermal field (Kamchatka) in the development of deep horizons Shulyupin A.N., Lyubin A.A., Chernev I.I.
- 74 Nature of phosphate distribution within the golden weathering crusts of the Tomsk region Yanchenko O.M., Timkin T.V., Voroshilov V.G., Yakich T.Yu., Ziaii M.
- 92 Promising technology for enhanced oil recovery of oilfields with different reservoir permeability Manzhay V.N., Ulyanyuk M.P., Rozhdestvensky E.A.
- 100 Specific features of ore formation of Barun-Shiveinskoe tungsten deposit (Eastern Transbaikalia) Abramov B.N.
- 109 Influence of oil shale semi-coking parameters on the quality of shale semi-coke Nazarenko M.Yu., Saltykova S.N.
- 119 Influence of the bottom borehole zone environment on the efficiency of rock breaking by the PDC cutter Neskoromnykh V.V., Popova M.S., Baochang L.
- 128 Advantage analysis of systems for ensuring local working zones thermal conditions based on gas infrared emitters in comparison with traditional convective heating systems Maksimov V.I., Nagornova T.A., Kurilenko N.I., Voloshko I.V.
- 142 Features of distribution of trace elements in soils of background and impact zones in diamond mining sites in the northwest of the Siberian platform Legostaeva Ya.B., Gololobova A.G.
- 154 Unloaded oil-submersible cable reduced dynamic model order optimization based on the frequency response approximation Glazyrin A.S., Isaev Yu.N., Kladiev S.N., Leonov A.P., Rakov I.V., Kolesnikov S.V., Langraf S.V., Filipas A.A., Kopyrin V.A., Khamitov R.N., Kovalev V.Z.
- 168 Modified evaluation of Prett–Yaskorsky in the generalized quality indicator of contour detection algorithms Kochegurov A.I., Dubinin D.V., Geringer V.
- 178 Increasing the energy efficiency of a binary geo-electric power station (on the example of the Kumukh deposit) Dzhavatov D.K., A.A. Azizov

- Оптимизация процессов водоподготовки оборотной воды завода по вторичной переработке пластмасс Дюрягина А.Н., Островной К.А., Голодова И.В., Шаймерденова З.Н., Козик Д.Ю., Дюсикеева А.К.
  - Влияние технологических параметров на термические превращения Барзасских углей в различных средах Ушаков К.Ю., Петров И.Я., Богомолов А.Р.
  - Минералогия барит-полиметаллических месторождений Змеиногорского рудного района (Рудный Алтай) Бестемьянова К.В., Гринев О.М.
  - Построение трехмерных моделей нефтенасыщенности. Основные проблемы и подходы к их решению Белкина В.А., Антипин Я.О., Забоева А.А.
- 187 Recycled water treatment optimization at a plastics recycling plant Dyuryagina A.N., Ostrovnoy K.A., Golodova I.V., Shaimerdenova Z.N., Kozik D.Y., Dyusikeeva A.K.
- 196 Effects of technological parameters on Barzas coals thermal conversions in various media Ushakov K.Yu., Petrov I.Ya., Bogomolov A.R.
- 210 Mineralogy of barite-polymetalic deposits of Zmeinogorsk ore district (Rudny Altai) Bestemianova K.V., Grinev O.M.
- 223 Building three-dimensional models of oil saturation. Main problems and approaches to their solution Belkina V.A., Antipin Ya.O., Zaboeva A.A.

УДК 699.85:621.039.743

### СОЗДАНИЕ ПОДЗЕМНЫХ ПРОТИВОФИЛЬТРАЦИОННЫХ ЭКРАНОВ С ПОМОЩЬЮ НАПРАВЛЯЮЩИХ СКВАЖИН И ШНЕКОВОГО УСТРОЙСТВА

#### Менейлюк Александр Иванович<sup>1</sup>,

meneilyk@gmail.com

#### Никифоров Алексей Леонидович1,

nikiforov.aleksey@yahoo.com

#### Менейлюк Иван Александрович<sup>2</sup>,

ivmen11112019@gmail.com

### Руссый Виктор Викторович<sup>1</sup>,

viruswot@gmail.com

- <sup>1</sup> Одесская государственная академия строительства и архитектуры, Украина, 65029, г. Одесса, ул. Дидрихсона, 4.
- <sup>2</sup> Харьковский национальный университет строительства и архитектуры, Украина, 61000, г. Харьков, ул. Сумская, 40.

**Актуальность.** Одним из путей обеспечения экологической безопасности является локализация действующих и потенциальных источников загрязнения путем устройства защитного экрана. Для этого рациональным представляется устройство подземных противофильтрационных экранов под источником загрязнения, препятствующих эмиссии радиоактивных частиц в окружающую среду, в частности, загрязнению подземных вод. Данное исследование посвящено разработке шнековой технологии устройства противофильтрационного экрана, которая заключается в устройстве направляющих скважин методом горизонтально направленного бурения с последующим устройством водонепроницаемого слоя с помощью замены грунта шнеком на специальный бетонный раствор.

**Цель:** экспериментальное обоснование эффективности инековой технологии устройства подземных противофильтрационных экранов для обеспечения радиационной безопасности объектов.

Объект: устройство подземных противофильтрационных экранов с помощью шнековой технологии.

**Методы:** экспериментально-статистическое моделирование, лабораторный эксперимент, корреляционно-регрессионный анализ.

**Результаты.** Для сооружений небольшой ширины (10–20 м) допускается медленное бетонирование со скоростью 5–6 м/ч (угловая скорость 1,5 с<sup>-1</sup> и производительность подачи состава 50 м<sup>3</sup>/ч). Для сооружений большой ширины (40–60 м) подходят составы с большим временем набора пластической прочности при концентрации фибры (9 %), бентонита (5 %) и жидкого стекла (6 %). При этом скорость бетонирования должна быть максимальной (10–11 м/ч при угловой скорости 0,5 с<sup>-1</sup> и производительности подачи состава 30 м<sup>3</sup>/ч). Дря сооружений большой иирины (40–60 м) подходят составы с большим временем набора пластической прочности при концентрации фибры (9 %), бентонита (5 %) и жидкого стекла (6 %). При этом скорость бетонирования должна быть максимальной (10–11 м/ч при угловой скорости 0,5 с<sup>-1</sup> и производительности подачи состава 30 м<sup>3</sup>/ч). Предельно большая скорость бетонирования достигается при угловой скорости 1,5 с<sup>-1</sup> и тяговом усилии 50,96 Н. Дальнейшее увеличение угловой скорости является нецелесообразным, так как при большей скорости вращения (более 1,5 с<sup>-1</sup>) наблюдались сильные вибрации и обвалы грунта. Эти экспериментальные результаты позволили разработать технологические рекомендации по устройству противофильтрационных экранов шнековой технологией. А именно, разработать концепцию и порядок производства работ, рассчитать затраты труда и машинного времени.

#### Ключевые слова:

Экологическая безопасность, шнековая технология, горизонтально направленное бурение, противофильтрационный экран, экспериментально-статистическое моделирование.

#### Введение

Анализ проблем, возникающих при захоронении последствий аварии на Чернобыльской АЭС, показал, что по масштабам воздействия и необходимым финансовым и техническим ресурсам ведущее место занимает локализация загрязнений и снижение эмиссии радиоактивных веществ в подземные воды. Устройство противофильтрационных экранов способом горизонтально направленного бурения может быть использовано для защиты подземных вод от миграции загрязняющих веществ. Были предложены многочисленные способы устройства защитных экранов, однако их анализ показал низкую экономическую и экологическую эффективность. По этим критериям использование горизонтально направленного бурения более предпочтительно. В последние годы был разработан ряд технологий (инъекционная технология А.Ф. Петровского, ножевая технология А.М. Галинского), использующих горизонтально направленное бурение для устройства противофильтрационных экранов. Поисковые исследования показали, что применение шнековой технологии может дать более надёжный экран при меньших затратах на его изготовление.

#### Анализ литературных данных

Большое количество исследований показывает, что земля и подземные воды в зоне 30 км вокруг места Чернобыльской аварии заражены большим количеством радионуклидов. Почти все радиоактивные элементы сосредоточены в заглубленном слое земли [1, 2]. Исследования [3] показывают, что наиболее опасным путём распространения радионуклидов являются подземные воды. Также установлено [4], что радиоактивные подземные воды способны загрязнять окружающую среду в течение долгого времени.

Устройство подземных противофильтрационных экранов под источниками загрязнения способно обеспечить экологическую безопасность. Среди технологий, которые могут обеспечить противофильтрационную защиту подземного пространства, следует отметить инъекцию грунта [5, 6], устройство фибробетонных защитных конструкций [7] и другие. Также существуют комбинации данных технологий, в частности, для решения проблемы локализации загрязненных почв [8]. Наиболее актуальными для устройства подземных противофильтрационных экранов являются технологии с применением горизонтально направленного бурения. Инъекционная технология А.Ф. Петровского [9, 10] предполагает устройство серии направляющих скважин, с помощью которых подаётся инъекционный раствор, превращающий слой грунта в водонепроницаемый экран. Однако из-за отсутствия рабочего органа невозможно достоверно утверждать, что после применения данной технологии обеспечена сплошность экрана, что приводит к необходимости избыточного расхода инъекционного состава. Ножевая технология А.М. Галинского [11] основана на устройстве направляющих скважин с последующим протягиванием по ним ножа, «разрезающего» толщу грунта. В образовавшуюся полость подаётся раствор, образующий противофильтрационный экран. Однако для движения рабочего органа в толще грунта требуются значительные усилия, которые могут разорвать уже устроенные участки экрана. Возможной альтернативой данным технологиям может стать способ, предполагающий устройство направляющих скважин и рабочего органа, испытывающего меньшее сопротивление в грунте, например, шнек. Кроме того, в последнее время появились технологии горизонтально-направленного бурения, позволяющие повышать усилия в направляющих скважинах [12, 13] и делать их криволинейными.

Определение оптимальных технологических режимов при строительстве или реконструкции инженерных сооружений возможно с применением экспериментально-статистического моделирования [14, 15]. Особенностям и методике этого способа исследования посвящены ряд классических работ, среди которых [16, 17].

Проведенные исследования по подбору водонепроницаемых растворов показывают, что для использования в подземных сооружениях часто применяется бентонит, жидкое стекло, инъекционные смолы [18, 19]. В рамках предлагаемой шнековой технологии растворы применяются для создания грунтобетонного экрана путем смешивания с существующим грунтом под сооружением. Применение существующих технологий уплотнения бетонной смеси не представляется возможным, поэтому используемые растворы имеют высокое водоцементное отношение. Полученные результаты показывают, что применение добавки бентонита и жидкого стекла эффективно в бетонах с высоким водоцементным отношением. С учетом загущающего эффекта бентонит может быть использован для снижения водоотделения и расслоения высокопластичных и литых бетонных смесей [20].

Таким образом, можно заключить, что актуальной является проблема обеспечения радиационной безопасности подземного пространства в местах распространения радиоактивных элементов, например, могильников остатков Чернобыльской аварии. Эта проблема может быть решена путём устройства противофильтрационных экранов с применением технологий горизонтально направленного бурения. Подобные технологии показали низкую эффективность, поэтому требуется разработка и экспериментальное обоснование новой эффективной технологии, устраняющей прежние недостатки.

#### Цель и задачи исследования

Целью исследования является экспериментальное обоснование эффективности шнековой технологии устройства подземных противофильтрационных экранов для обеспечения радиационной безопасности объектов. Эта новая технология позволит экономичным индустриальным способом защитить подземное пространство от радиационного загрязнения. Задачи исследования:

- обосновать актуальность и способы разработки технологии устройства подземных противофильтрационных экранов для обеспечения радиационной безопасности объектов;
- оптимизировать скорость разработки грунта при изменении угловой скорости вращения шнека и тягового усилия;
- найти рациональную скорость бетонирования при изменении производительности подачи состава в полость экрана и угловой скорости вращения шнека;
- выполнить внедрение результатов исследования путём разработки технологических рекомендаций по новой технологии.

#### Материалы, оборудование и методика экспериментальных исследований шнековой технологии устройства противофильтрационного экрана

В работе предложена методика для определения фильтрационных характеристик в лабораторном стенде, а также проведён анализ результатов исследований процесса создания противофильтрационных экранов. Определены аналитические и графические зависимости показателя от технологических режимов. В исследовании определен оптимальный режим бурения и бетонирования по критерию стоимости путем выполнения анализа аналитических и графических зависимостей фильтрационных характеристик от исследуемых технологических факторов. Для реализации описанных задач разработана общая методика исследования (рис. 1).

Под противофильтрационным экраном подразумевается подземное сооружение, имеющее целью препятствовать подтоплению сооружений загрязненными водами либо сбросу загрязненных стоков из объекта локализации радиационных отходов. Это сооружение состоит из грунта основания, приобретающего

противофильтрационные свойства вследствие перемешивания грунта с раствором.

Обоснование направления работы и определение актуальности темы Justification of the research topic relevance

Анализ известных источников по теме исследования Analysis of well-known sources on the research topic

Постановка цели и задач исследования Statement of the purpose and objectives of the study

Создание лабораторного стенда для проведения экспериментальных исследований Development of a laboratory stand for experimental research

Выполнение экспериментов по определению пластической прочности, скорости бетонирования Performing experiments to determine plastic strength setting, speed of concreting

Получение экспериментальных данных по технологическим режимам устройства экрана Obtaining experimental data on selection of the composition of the injected solution and the technological modes of the shield arrangement

> Обработка и анализ результатов исследования Processing and analysis of research results

Разработка технологической карты по устройству защитного экрана с использованием шнековой технологии Development of the technological map for construction of a protective shield using auger technology

# **Puc. 1.** Общая методика исследования **Fig. 1.** General methodology of the research

В экспериментальных исследованиях был использован лабораторный стенл. моделирующий распространение раствора в рассматриваемой толще грунта. Под влиянием переменных комбинаций технологических режимов инъецируемый раствор образует модель защитного экрана с различной противофильтрационной способностью. Ящик для грунта имеет размеры 60×60×60 см исходя из длины шнека (50 см) плюс диаметр направляющей скважины – 10 см. Материал для изготовления ящика - лист OSB. Для передачи вращения шнека и направления разработки скважины в ящике выпилены продольные отверстия. Для устройства наклонных прямоугольных скважин противофильтрационного экрана отверстия для шнека расположены под углом 30°. Направляющая скважина в экспериментальном исследовании образуется при помощи установки поливинилхлоридной трубы диаметром 10 см, которая используется как форма и после уплотнения грунта удаляется. Методика создания экспериментальных образцов в лабораторном стенде показана на рис. 2.

Для определения характеристик грунта были использованы следующие приборы и оборудование:

- весы лабораторные по ГОСТ 24104-88;
- весы для гидростатического взвешивания по ГОСТ 29329;
- шкаф сушильный, обеспечивающий сушку при температуре (105±10) °С;
- противень;
- сосуд для насыщения образцов водой;
- проволочная щетка.

Влажность определялась путем сравнения массы песка в состоянии естественной влажности и после высушивания. Навеска массой 1000 г песка насыпалась в противень и взвешивалась, после чего высушивалась до постоянной массы. Влажность песка (W) в процентах вычислялась по формуле (1):

(1)

$$W = \frac{m - m_1}{m_1} \times 100,$$

где *m* – масса навески в состоянии естественной влажности; *m*<sub>1</sub> – масса навески в сухом состоянии, г.

Установка поливинил хлоридной трубы диметром 10 см под углом 30° в бункер Installation of plastic pipe with a diameter of 10 cm at the angle of  $30^\circ$  into the bunker

Послойное заполнение трубы песчаным водонасыщенным грунтом с последующим трамбованием Layer-by-layer tube filling with sandy water-saturated soil, followed by compaction

Извлечение поливинилхлоридной трубы с образованием направляющей скважины для последующего устройства экрана

Removing the plastic pipe with the formation of a pilot hole for the subsequent arrangement of the shield

Разработка грунта в направляющей скважине при вращении с одновременным поступательным движением шнека

Development of soil in a pilot hole while rotating the auger with simultaneous progressive movement

Подача раствора при обратном вращении шнека Solution supply with reverse rotation of the auger

Изъятие затвердевшего образца экрана из бункера с последующим распиливанием Removal of the hardened sample of the shield from the bunker, followed by sawing

> Визуальный осмотр и проведение испытаний образцов Visual inspecting and testing of samples

*Puc. 2. Методика проведения экспериментальных исследований в лабораторном стенде Fig. 2. Method for conducting experimental research in a laboratory bench* 

Изготовление образцов осуществлялось в бункере лабораторного стенда с помощью подвижного шнека. В качестве привода для вращения однонаправленной части шнека использовался шуруповерт и перфоратор. Поверхность образцов очищалась от пыли, грязи и следов смазки с помощью проволочной щетки. Эталонные образцы испытывались высушенными до постоянной массы, после чего они помещались в сосуд, наполненный водой с таким расчетом, чтобы уровень воды в нём был выше верхнего уровня образцов примерно на 50 мм. Образцы следует класть на прокладки так, чтобы их высота была минимальной. Температура воды в сосуде была (20±2) °С. Образцы взвешивались каждые 24 часа нахождения в воде на весах для гидростатического взвешивания. Испытания проводились до тех пор, пока два последовательных взвешивания не отличались более чем на 0,1 %.

Оценка пластической прочности растворных композиций проводилась на пластометре Ребиндера, модернизированном электроприводом.

Испытания скорости разработки грунта выполнялось следующим образом. Производилась разработка грунта в направляющей скважине при вращении шнека против часовой стрелки. Мощность колебалась от 245 до 560 Вт, соответственно, при низкой и высокой скорости вращения (разработка под собственным весом шнека). Вращение шнека производилось при трех скоростях привода – высокой (1,5 об/с, или 90 об/мин), средней (1 об/с, или 60 об/мин) и низкой (0,5 об/с, или 30 об/мин). При вращении шнека со скоростью выше 2 об/с наблюдались вибрации и обрывы грунта, в связи с этим не рекомендуется превышать данную частоту вращения. Разработка производится под собственным весом шнека – 3,2 кг. В процессе разработки грунта секундомером замерялось время прохождения шнеком 1 метра грунта при непрерывной разработке по оси шнека вдоль направляющей скважины.

Для испытания скорости бетонирования производилась подача раствора с одновременным вращением шнека по часовой стрелке. Для определения скорости бетонирования при различных скоростях вращения шнека (высокой, средней и низкой) засекалось время перемешивания грунта и раствора на одной стоянке шнека. Стоянки производились каждые 5 см (половина диаметра шнека) для тщательного перемешивания подаваемого раствора и грунта до образования однородной массы. Скорость бетонирования в настоящем исследовании равна отношению метра погонного направляющей скважины по оси шнека к времени перемешивания одной стоянки. Для изменения скорости разработки грунта при низкой частоте вращения шнека прикладывался дополнительный вес (тянущее усилие) с обеих сторон бункера к валу шнека. Тянущее усилие прикладывалось вдоль направляющей скважины грузами по направляющим и с помощью электронного динамометра. Величина усилия составляет от 31,36 до 50,96 Н. В связи с тем, что груз дает увеличение скорости разработки за счет большего врезания лопастей, а при 50,96 Н врезание лопастей достигло максимума, применение тянущего усилия свыше 50,96 Н не является целесообразным.

Для получения образцов в качестве основы экрана выбран цементно-песчаный раствор в соотношении 1:3, водоцементное отношение равно 1. Для придания экрану водонепроницаемых и прочностных свойств вводились добавки. Гидрофобизирующая добавка вводилась в равном количестве во все исследуемые образцы – 0,1 %. В помещении лаборатории температура составляла 21 °C, влажность 65 %. Были выбраны следующие гидрофобные и армирующие материалы для устройства противофильтрационного экрана.

- бентонит как вещество, обладающее наиболее выраженными гидрофобными свойствами;
- жидкое стекло, которое проникает в самые мелкие трещинки и поры, хорошо укрепляет бетонные и деревянные основания, создает водонепроницаемую пленку;
- пластификатор препятствует расслоению растворной смеси и, как следствие, предотвращает потерю гидрофобных свойств состава;
- стекловолокнистая фибра, повышающая связывающие характеристики раствора и позволяющая равномерно выполнять армирование конструкции, препятствует образованию микротрещин;
- гидрофобная добавка, которая уменьшает водопоглощение, увеличивает прочность на сжатие и изгиб при растяжении, повышает стойкость в агрессивной среде.

Для бетонирования применялись литые бетоны с осадкой конуса 16–20 см, со сроком схватывания не менее 2 ч, с сохранением подвижности в течение 40 мин и крупностью заполнителя не более 30 мм. Для получения бетонов требуемых технологических параметров (повышенной подвижности, связности и замедленного схватывания) вводились химические добавки.

Обработка результатов экспериментов выполнялась с помощью методов корреляционно-регрессионного анализа в диалоговой системе CompEx. В ходе анализа проверялись гипотезы о равности настоящих коэффициентов экспериментально-статистической модели, а также про адекватность модели экспериментальным данным, по которым она построена. Критерий Стьюдента (t-критерий) выбирался для заданного уровня риска ( $\alpha$ =0,2) и заданного числа степеней свободы эксперимента. Модель проверялась на адекватность с использованием информации про среднеквадратическую ошибку эксперимента, S<sub>E</sub>, и среднеквадратическую ошибку эксперимента, S<sub>E</sub>, и среднеквадратическую опибку эксперимента.

ратическую ошибку неадекватности,  $S_{HA}$ . Проверка по критерию Фишера выполнялась при  $\beta$ =0,05. Построенные экспериментально-статистические модели удовлетворяли двум гипотезам: все оценки коэффициентов значимые (с заданным уровнем риска  $\alpha$ ) и отличаются от нуля. Так как использовались разные факторы и уровни их варьирования, для каждого эксперимента принимались собственные планы экспериментов, описанные в соответствующих разделах, и экспериментально-статистические модели, общий вид которой показан в формуле (2).

$$Y = b_0 + \sum_{i=1}^k b_i x_i + \sum_{i=1}^k b_{ij} x_i x_j + \sum_{i=1}^k b_{ii} x_i^2 + \sum_{i=1}^k b_{jj} x_j^2 + \dots + \varepsilon.$$
(2)

#### Исследование скорости разработки грунта при изменении угловой скорости вращения шнека и тягового усилия

Были выбраны следующие факторы для исследования показателя «скорость разработки грунта»:  $X_1$  – угловая скорость: 0,5, 1 и 1,5 с<sup>-1</sup>;  $X_2$  – тяговое усилие: 31,36, 41,16, 50,96 Н. Серия опытных образцов выполнялась на лабораторном стенде согласно сокращенному плану эксперимента с девятью наблюдениями. План эксперимента, уровни варьируемых технологических параметров и результаты показаны в табл. 1.

По результатам расчёта в программном комплексе CompEx была получена следующая экспериментально-статистическая модель показателя «скорость разработки грунта» (3). Ошибка эксперимента составила  $S_3=0,129$  м/ч. Коэффициенты, признанные неотличимыми от нуля, исключены из модели.

Скорость разработки грунта 
$$Y_1(M/\Psi) = 11,170 + 3,727X_1 + 0,483X_1^2 + +0,345X_1X_2 + 0,990X_2.$$
 (3)

- Таблица 1. План и результаты эксперимента по определению влияния технологических факторов на скорость разработки грунта
- Table 1.
   Plan and results of the experiment to determine the influence of technological factors on concreting speed

| Значе                                  |               |             |                     |                             |
|--|---------------|-------------|---------------------|-----------------------------|
|  |               | Нормал      | изован-             | Скорость разра-             |
| Натурнь                                | Je/Natural    | H           | ые                  | ботки грунта                |
|  | Norm          | alized      | Y <sub>1</sub> ,м/ч |                             |
| Угловая ско-                           | Тяговое       |             |                     | Speed of                    |
| рость $X_1$ , $c^{-1}$                 | усилие Х2, Н  | v           | v                   | concreting Y <sub>1</sub> , |
| Angular                                | Pulling force | $\Lambda_1$ | $\Lambda_2$         | m/h                         |
| speed X <sub>1</sub> , c <sup>-1</sup> | X2, N         |             |                     |                             |
| 0,5                                    | 31,36         | -1          | -1                  | 7,28                        |
| 0,5                                    | 41,16         | -1          | 0                   | 7,89                        |
| 0,5                                    | 50,96         | -1          | 1                   | 8,69                        |
| 1                                      | 31,36         | 0           | -1                  | 10,34                       |
| 1                                      | 41,16         | 0           | 0                   | 11,25                       |
| 1                                      | 50,96         | 0           | 1                   | 11,92                       |
| 1,5                                    | 31,36         | 1           | -1                  | 14,01                       |
| 1,5                                    | 41,16         | 1           | 0                   | 15,25                       |
| 1,5                                    | 50,96         | 1           | 1                   | 16,72                       |
|  |               |             |                     |                             |

Рассмотрим ранжирование степени влияния варьируемых факторов на показатель (рис. 3). Отметим высокое влияние угловой скорости на скорость разработки грунта. При этом влияние тягового усилия ниже и равно 32 % в зоне максимума, которая является более значимой в рамках настоящего исследования.

На рис. 4 показаны однофакторные зависимости скорости разработки грунта  $Y_1$  от угловой скорости  $X_1$  и тягового усилия  $X_2$ . В зоне максимумов и минимумов характер влияния обоих факторов имеет прямо пропорциональную зависимость. В данном исследовании ценность представляют значения в зоне максимумов, которые позволяют быстрее производить разработку грунта. В зоне максимумов наибольшая скорость разработки грунта достигается при угловой скорости 1,5 с<sup>-1</sup> и тяговом усилии 50,96 H.

Рассмотрим изолинии изменения показателя скорости разработки грунта  $Y_1$  от двух факторов: «угловая скорость»  $X_1$  и «тяговое усилие»  $X_2$  (рис. 5). Максимальное значение скорости разработки грунта, равное 16,72 м/ч, наблюдается при угловой скорости 1,5 с<sup>-1</sup>, тяговом усилии 50,96 Н. Минимум полученной ЭС-модели находится в точке ( $X_1$ =0,5 с<sup>-1</sup>;  $X_2$ =31,36 Н). Наиболее рациональным является сочетание уровней факторов в точке максимума показателя. Дальнейшее увеличение скорости и тягового усилия является нецелесообразным. Причинами являются следующие: при тяговом усилии 50,96 Н врезание лопастей достигает максимума; при большей скорости вращения (более 1,5 с<sup>-1</sup>) наблюдались сильные вибрации и обвалы грунта.



Ранжирование по максимуму Ranking in the maximum zone

Ранжирование по минимуму Ranking in the minimum zone

2

- **Рис. 3.** Ранжирование влияния варьируемых факторов на показатель скорости разработки грунта Y<sub>1</sub> (номерами показаны индексы факторов: угловая скорость X<sub>1</sub>, тяговое усилие X<sub>2</sub>)
- Fig. 3. Ranking of the influence of variable factors on concreting speed Y<sub>1</sub> (the numbers show the factor indices: angular speed X<sub>1</sub>, pulling force X<sub>2</sub>)



Рис. 4. Графики зависимости показателя скорости разработки грунта Y<sub>1</sub> от каждого из факторов: угловая скорость X<sub>1</sub>, c<sup>-1</sup>, и тяговое усилие X<sub>2</sub>, H (верхняя линия – влияние в зоне максимума, нижняя – в зоне минимума показателя)

**Fig. 4.** Graphs of the concreting speed  $Y_1$  dependence on each of the factors: angular speed  $X_1$ ,  $s^{-1}$ , and pulling force  $X_2$ , N (the upper line is the dependence in the maximum zone, the lower one is in the minimum zone of the indicator)



- **Рис. 5.** Совместное влияние угловой скорости X<sub>1</sub>, c<sup>-1</sup>, и тягового усилия X<sub>2</sub>, H, на скорость разработки грунта Y<sub>1</sub> (м/ч)
- **Fig. 5.** Influence of the angular speed  $X_1$ ,  $s^{-1}$ , and pulling force  $X_2$ , N, on the concreting speed  $Y_1$  (m/h)

#### Исследование скорости бетонирования при изменении производительности подачи состава в полость экрана и угловой скорости вращения шнека

Были выбраны следующие факторы для исследования показателя «скорость бетонирования»:  $X_1 - y_{\Gamma}$ ловая скорость: 0,5, 1 и 1,5 с<sup>-1</sup>;  $X_2$  – производительность подачи раствора: 30, 40, 50м<sup>3</sup>/ч. Серия опытных образцов выполнялась на лабораторном стенде согласно сокращенному плану эксперимента с девятью наблюдениями. План эксперимента, уровни варьируемых технологических параметров и результаты показаны в табл. 2.

По результатам расчёта в программном комплексе CompEx была получена следующая экспериментально-статистическая модель показателя «скорость бетонирования» (4). Ошибка эксперимента составила  $S_3=0,061$  м/ч. Коэффициенты, признанные неотличимыми от нуля, исключены из модели.

Рассмотрим ранжирование степени влияния варыируемых факторов на показатель (рис. 6). Отметим высокое влияние угловой скорости  $X_1$  на скорость бетонирования  $Y_2$ . При проведении экспериментальных исследований этот факт был в значительной степени очевиден, так как требовалось некоторое время, на протяжении которого производилось перемешивание грунта с раствором на каждой стоянке до образования однородного грунтобетонного экрана. При этом влияние производительности подачи раствора  $X_2$  значительно ниже и равно 16 % в зоне максимума и минимума.

На рис. 7 показаны однофакторные зависимости скорости бетонирования  $Y_2$  от угловой скорости  $X_1$  и производительности подачи раствора  $X_2$ . В зоне максимумов и минимумов характер влияния обоих показателей имеет прямо пропорциональную зависимость. В данном исследовании ценность представляют значения как в зоне максимумов, так и в зоне минимумов. В зоне максимумов наибольшая скорость бетонирования достигается при значении факторов «угловая скорость»  $X_1=1,5 \text{ c}^{-1}$  и «производительность подачи раствора»  $X_2=50 \text{ m}^3/\text{ч}$ . В зоне минимумов наименьшая медленная скорость бетонирования достигается при значении факторов «угловая скорость»  $X_1=0,5 \text{ c}^{-1}$  и «производительность подачи раствора»  $X_2=30 \text{ m}^3/\text{ч}$ .

Рассмотрим изолинии изменения показателя «скорость бетонирования»  $Y_2$  от двух факторов: «угловая скорость»  $X_1$ , с<sup>-1</sup>, и «производительность подачи раствора»  $X_2$ , м<sup>3</sup>/ч (рис. 8). Максимальное значение скорости бетонирования, равное  $Y_2=10,93$  м/ч, наблюдается при угловой скорости  $X_1=1,5$  с<sup>-1</sup> и производительности подачи состава  $X_2=50$  м<sup>3</sup>/ч. Минимум скорости бетонирования находится в точке ( $X_1=0,5$  с<sup>-1</sup>;  $X_2=30$  м<sup>3</sup>/ч) и равен  $Y_2=5,46$  м/ч. Дальнейшее увеличение угловой скорости является нецелесообразным, так как при большей скорости вращения (более 1,5 об/с) наблюдались сильные вибрации и обвалы грунта.

- Таблица 2. План и результаты эксперимента по определению влияния технологических факторов на скорость разработки грунта
- Table 2.
   Plan and results of experiment to determine the influence of technological factors on concreting speed

| Знач                |                                    |             |             |                      |
|---------------------|------------------------------------|-------------|-------------|----------------------|
|                     |                                    | Нормали-    |             | Скорость             |
| Нат                 | урные/Natural                      | зовал       | нные        | бетонирова-          |
|                     |                                    | Norm        | alized      | ния Ү2, м/ч          |
| Угловая ско-        | Производительность                 |             |             | Speed of             |
| рость $X_1, c^{-1}$ | подачи раствора Х2, м3/ч           | v           | v           | concreting           |
| Angular speed       | Feed rate of the solution          | $\Lambda_1$ | $\Lambda_2$ | Y <sub>2</sub> , m/h |
| $X_1, s^{-1}$       | X <sub>2</sub> , m <sup>3</sup> /h |             |             |                      |
| 0,5                 | 30                                 | -1          | -1          | 5,46                 |
| 0,5                 | 40                                 | -1          | 0           | 5,97                 |
| 0,5                 | 50                                 | -1          | 1           | 6,24                 |
| 1                   | 30                                 | 0           | -1          | 7,86                 |
| 1                   | 40                                 | 0           | 0           | 8,60                 |
| 1                   | 50                                 | 0           | 1           | 8,81                 |
| 1,5                 | 30                                 | 1           | -1          | 10,22                |
| 1,5                 | 40                                 | 1           | 0           | 10,63                |
| 1,5                 | 50                                 | 1           | 1           | 10,93                |



Ранжирование по максимуму Ranking in the maximum zone Ранжирование по минимуму Ranking in the minimum zone

- Рис. 6. Ранжирование влияния варьируемых факторов на показатель скорости бетонирования Y<sub>2</sub> (номерами показаны индексы факторов: угловая скорость X<sub>1</sub>, производительность подачи раствора X<sub>2</sub>)
- *Fig. 6. Ranking of the variable factors influence on concreting speed Y*<sub>2</sub> (*the numbers show the factor indices: angular speed X*<sub>1</sub>, *feed rate of the solution X*<sub>2</sub>)

Полученные данные позволяют определять скорость бетонирования для различных по ширине зда-

ний. Для небольших по ширине сооружений (10–20 м) при применении быстротвердеющих составов с быстрым набором пластической прочности допускается медленное бетонирование со скоростью 5–6 м/ч. Для сооружений большой ширины (40–60 м) подходят составы с минимальной пластической прочностью, при этом скорость бетонирования должна быть максимальной (10–11 м/ч).



- Рис. 7. Графики зависимости показателя скорости бетонирования Y<sub>2</sub> от каждого из факторов: угловая скорость X<sub>1</sub>, c<sup>-1</sup>, и производительность подачи раствора X<sub>2</sub>, м<sup>3</sup>/ч (верхняя линия – влияние в зоне максимума, нижняя – в зоне минимума показателя)
- **Fig. 7.** Graphs of concreting rate of  $Y_2$  dependence on each of the factors: angular speed  $X_1$ ,  $s^{-1}$ , and the feed rate of the solution  $X_2$ ,  $m^3/h$  (the upper line is the dependence in the maximum zone, the lower one is in the minimum zone of the indicator)



- **Рис. 8.** Совместное влияние угловой скорости  $X_1$ ,  $c^{-1}$ , и производительности подачи раствора  $X_2$ ,  $M^{3/4}$ , на скорость бетонирования  $Y_2$  (M/4)
- **Fig. 8.** Influence of the angular speed  $X_1$ ,  $s^{-1}$ , and the feed rate of the solution  $X_2$ ,  $m^3/h$ , on the concreting speed  $Y_2$  (m/h)

#### Применение шнековой технологии устройства противофильтрационного экрана для обеспечения радиационной безопасности

Настоящие рекомендации разработаны для применения шнековой технологии устройства противофильтрационных экранов под различными сооружениями, представляющими экологическую опасность: могильниками радиоактивных отходов, зонами разлива нефтепродуктов и других токсичных веществ и другими опасными сооружениями. Также возможно применение технологии для защиты территорий от подтопления подземными водами, защиты каналов и водохранилищ от подземного загрязнения.

Концепция использования шнековой технологии следующая. Бурение технологических скважин производится в шахматном порядке и в два этапа с минимальным воздействием на фундамент существующего здания (рис. 9). На первом этапе скважины бурятся криволинейно, аутентично подошве существующего здания или сооружения. Требуемый наклон скважин определяется с учетом глубины заложения фундамента и ширины участка, возможной для отведения под защитные работы. Шаг скважин зависит от ширины сооружения и геологических условий устройства противофильтрационного экрана и изменяется в пределах от 1 до 2 м. Глубина технологических скважин определяется с учетом пересечения двух противоположных плоскостей в нижнем уровне противофильтрационного экрана и их взаимного сопряжения. Расположение скважин двух плоскостей относительно друг друга целесообразно выполнять с перевязкой для обеспечения их сопряжения при пересечении.

После достижения глубины бурения формируется прорезь при вымывании грунта, выбуриваемого шнеком. Одновременно к шнеку через штанги подается твердеющий раствор, который при обратной проходке (рис. 10) заполняет прорезь. Буровая установка равномерно поднимает вращающийся шнек с помощью направляющих штанг. Гидравлический двигатель вращает шнек, который прикреплен к штангам буровой установки.

Противофильтрационные экраны образуются за счет пересекающихся панелей, получаемых в результате перемешивания грунта основания с твердеющими растворами. По торцам противофильтрационный экран устраивается с помощью вертикальных экранов, которые сопряжены с криволинейными плоскостями, описанными выше (рис. 11). Вертикальные экраны завершают создание сплошного противофильтрационного экрана, который приобретает вид призмы.



**Рис. 9.** Разрез устройства противофильтрационного экрана с помощью инековой технологии: бурение направляющих скважин (1 – объект защиты; 2 – подошва сооружения; 3 – поверхность грунта; 4 – грунт; 5 – буровая установка; 6 – направляющая скважина; 7 – проходческая жидкость; 8 – бур)

*Fig. 9.* Section of the anti-filtration shield arrangement using auger technology: drilling pilot wells (1 – protected structure; 2 – base of the structure; 3 – soil surface; 4 – soil; 5 – drilling rig; 6 – pilot well; 7 – tunneling fluid; 8 – borer)



- Рис. 10. Разрез устройства противофильтрационного экрана с помощью инековой технологии: нагнетание закрепляющего раствора (1 – объект защиты; 2 – подошва сооружения; 3 – поверхность грунта; 4 – грунт; 5 – буровая установка; 6 – миксерная станция; 7 – двунаправленный инек; 8 – раствор)
- Fig. 10. Section of the anti-filtration shield arrangement using auger technology: injection of a solution (1 protected structure; 2 base of the structure; 3 soil surface; 4 soil; 5 drilling rig; 6 mixing station; 7 bi-directional auger; 8 solution)

Расчет требуемого объема бурового раствора для одной скважины можно определить по формуле (5):

$$V_{6.p.} = D_{CKB.} \times L_{CKB.} \times K_{p.}, \tag{5}$$

где  $D_{\text{скв.}}$  проектный диаметр скважины;  $L_{\text{скв.}}$  длина скважины;  $K_{\text{р.}}$  коэффициент расхода бурового раствора.

Расчет требуемого объема инъецируемого раствора определяется по формуле (6):

$$V_{\text{и.р.}} = S_{\text{уч.}} \times L_{\text{скв.}} + \times S_{\text{скв.}} \times L_{\text{скв.}}, \tag{6}$$

где  $S_{yu}$ . – площадь поперечного сечения участка;  $L_{ckb}$ . – длина скважины;  $S_{ckb}$ . – площадь поперечного сечения скважины.



- Рис. 11. План-схема устройства противофильтрационного экрана с помощью шнековой технологии (1 приямок бурового входа; 2 – автосамосвал; 3 – экскаватор-бульдозер; 4 – склад бентонита; 5 – склад гибких буровых штанг; 6 – блок очистки бурового раствора; 7 – установка для подготовки бурового раствора; 8 – установка для горизонтально направленного бурения; 9 – роликовая подставка; 10 – лебедка с редуктором; 11 – компрессор; 12 – подводящие шланги; 13 – насос; 14 – склад цемента; 15 – миксерная станция для раствора; 16 – генератор; 17 – илосос; 18 – выходной приямок)
- Fig. 11. Schematic diagram of the arrangement of an anti-filtration shield using auger technology (1 pit of the drilling entrance; 2 dump truck; 3 excavator; 4 bentonite storage; 5 flexible drill rods storage; 6 drilling mud cleaning unit; 7 machine for drilling mud preparation; 8 machine for horizontal directional drilling; 9 roller stand; 10 winch with a gearbox; 11 compressor; 12 supply hoses; 13 pump; 14 cement storage; 15 mixing station for solution; 16 generator; 17 sludge pump; 18 outlet pit)

Необходимые операции для устройства противофильтрационного экрана для обеспечения радиационной безопасности, а также затраты труда и машинного времени на них показаны в табл. 3. В связи с отсутствием в современной нормативной базе норм на выполнение операций с установками горизонтально направленного бурения соответствующие нормы времени приняты по результатам экспертной оценки.

|  | 1 1 V   |                                    | 8   |  |
|--|---|------------------------------------|---|--|
| Обоснование<br>нормы<br>Identifier of<br>normative<br>document | Наименование работы<br>Name of work   | Ед. изм.<br>Unit                   | Норма времени<br>на ед. изм.<br>челч./машч.<br>Time for unit<br>hours (labor)/<br>hours (machine) | Состав звена по норме<br>Team content  |
| E2-1-9   | Устройство приямков экскаватором<br>Pit excavation  | 100 м <sup>3</sup> /m <sup>3</sup> | 2,7/2,7   | Машинист 5 р. (Machinist) – 1<br>Экскаватор ЭО-2621<br>(Excavator EO-2621) – 1   |
| E14-23   | Приготовление и очистка бурового раствора<br>Preparation and cleaning of drilling mud   | 10 м <sup>3</sup> /m <sup>3</sup>  | 1,68/0,42   | Машинист 5 р. (Machinist) – 1<br>Помощник машиниста 3 р.<br>(Machinist assistant) – 2<br>HP-300 (Vermeer HP-300) – 1   |
| ия, произво-<br>е company<br>k                                 | Бурение пилотной скважины, расширение и<br>затягивание струйного монитора, передвиже-<br>ние и монтаж буровой установки<br>Drilling a pilot well, expanding and tightening the<br>jet monitor, moving and installing the drilling rig | 1 м. п. скв.<br>1 m of well        | 0,40/0,20   | Машинист 6 р. (Machinist) – 2<br>Цементатор 5 р. (Cementator) – 1<br>Цементатор 4 р. (Cementator) – 1<br>Vermeer Navigator<br>(Vermeer Navigator HP-300) – 1 |
| предприят<br>го работы<br>norms of th<br>ing the wor           | Устройство горизонтального противофильтра-<br>ционного экрана<br>Horizontal anti-filtration shield arrangement  | 1 м. п.<br>участка<br>1 m of site  | 0,32/0,08   | Машинист 5 р. (Machinist) – 1<br>Машинист 4 р. (Machinist) – 1<br>Цементатор 5 р. (Cementator) – 1<br>Цементатор 4 р. (Cementator) – 1                       |
| но нормам<br>дяще<br>rding to the<br>perform                   | Устройство вертикального противофильтраци-<br>онного экрана<br>Vertical anti-filtration screen arrangement  | 1 м. п.<br>участка<br>1 m of site  | 0,28/0,06   | Машинист 5 р. (Machinist) – 1<br>Машинист 4 р. (Machinist) – 1<br>Цементатор 5 р. (Cementator) – 1<br>Цементатор 4 р. (Cementator) – 1                       |
| Соглас<br>Ассо   | Откачка буровой пульпы из приямка<br>Pumping drill slurry out of pit  | 1 м. п. скв.<br>1 m of well        | 0,16/0,14   | Машинист 5 р. (Machinist) – 1<br>Помощник машиниста 3 р.<br>(Machinist assistant) – 1  |
| Е4-1-47, п.4а<br>(применительно,<br>applicable)                | Приготовление инъекционного раствора<br>Preparation of injection solution   | 1 м <sup>3</sup> /m <sup>3</sup>   | 0,25/0,00   | Машинист 4 р. (Machinist) – 1<br>Миксерная станция СМ-40/90<br>(Mixer station SM-40/90) – 1  |
| E2-1-22  | Засыпка приямков бульдозером<br>Backfilling of pits with a bulldozer  | 100 м <sup>3</sup> /m <sup>3</sup> | 0,8/0,8   | Машинист 5 р. (Machinist) – 1<br>Бульдозер Д-104<br>(Bulldozer D-104) – 1  |

**Таблица 3.** Затраты труда и машинного времени на операции для устройства противофильтрационного экрана **Table 3.** Labor and machine time spent on operations for anti-filtration shields arrangement

Разработанные технологические приёмы, а также таблица, позволяют использовать новую технологию для обеспечения радиационной безопасности путём эффективной защиты зданий и сооружений от подземных вод, а подземных вод – от загрязнения радиоактивными отходами.

#### Выводы

- Данные по состоянию объектов захоронения радиоактивных отходов в Украине свидетельствуют, что актуальным является разработка экспериментального обоснования и устройства противофильтрационных экранов для препятствования распространению загрязненных радионуклидами подземных вод.
- Максимальная скорость разработки грунта, равная 16,72 м/ч, наблюдается при угловой скорости 1,5 с<sup>-1</sup>, тяговом усилии 50,96 Н. Дальнейшее увеличение скорости и тягового усилия является нецелесообразным. Причинами являются следующие: при тяговом усилии 50,96 Н врезание лопа-

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Radionuclide migration at experimental polygon at Red Forest waste site in Chernobyl zone. P. 2: Hydrogeological characterization and groundwater transport modeling / D. Bugai, A. Skalskyy, S. Dzhepo, Y. Kubko, V. Kashparov, N. van Meir, A. Martin-Garin. – Applied Geochemistry. – 2012. – № 27 (7). – P. 1359–1374. URL: https://doi.org/10.1016/j.apgeochem.2011.09.028 (дата обращения 28.12.2020).
- High 36Cl/Cl ratios in Chernobyl groundwater / C. Roux, C. le Gal La Salle, C. Simonucci, N. van Meir, L. Keith Fifield, O. Diez, J. Lancelot // Journal of Environmental Radioactivity. – 2014. – № 138. – P. 19–32. URL: https://doi.org/10.1016/j.jenvrad. 2014.07.008 (дата обращения 28.12.2020).
- Groundwater residence time downgradient of Trench No. 22 at the Chernobyl Pilot Site: Constraints on hydrogeological aquifer functioning / C. le Gal La Salle, L. Aquilina, E. Fourre, P. Jean-Baptiste, J.-L. Michelot, C. Roux, J. Lancelot // Applied Geochemistry. – 2012. – № 27 (7). – P. 1304–1319. URL: https://doi.org/10.1016/j.apgeochem.2011.12.006 (дата обращения 28.12.2020).
- Shcheglov A., Tsvetnova O., Klyashto A. Biogeochemical cycles of Chernobyl-born radionuclides in the contaminated forest ecosystems. Long-term dynamics of the migration processes // Journal of Geochemical Exploration. – 2014. – № 144 (B). – P. 260–266. URL: https://doi.org/10.1016/j.gexplo.2014.05.026 (дата обращения 28.12.2020).
- Jet grouting with a newly developed technology: The Twin-Jet method / Shui-Long Shen, Zhi-Feng Wang, Suksun Horpibulsuk, Yong-Hyun Kim // Engineering Geology. – 2013. – № 152 (1). – P. 87–95. URL: https://doi.org/10.1016/j.enggeo.2012.10.018 (дата обращения 28.12.2020).
- Makovetskiy O., Zuev S. Practice device artificial improvement basis of soil technologies jet grouting // Procedia Engineering. – 2016. – № 165. – Р. 504–509. URL: https://doi.org/ 10.1016/j.proeng.2016.11.726 (дата обращения 28.12.2020).
- Bernard E.S., Thomas A.H. Fibre reinforced sprayed concrete for ground support // Tunnelling and Underground Space Technology. – 2020. – № 99. – Р. 103–108. URL: https://doi.org/ 10.1016/j.tust.2020.103302 (дата обращения 28.12.2020).
- Combining steam injection with hydraulic fracturing for the in situ remediation of the unsaturated zone of a fractured soil polluted by jet fuel / B. Nilsson, D. Tzovolou, M. Jeczalik, T. Kasela, W. Slack, K.E. Klint, F. Haeseler, C.D. Tsakiroglou // Journal of Environmental Management. – 2011. – № 92 (3). – P. 695–707. URL: https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2010.10.004 (дата обращения 28.12.2020).

стей достигает максимума; при большей скорости вращения (более 1,5 с<sup>-1</sup>) наблюдались сильные вибрации и обвалы грунта.

- 3. Для небольших по ширине сооружений (10–20 м) при применении быстротвердеющих составов с минимальным временем набора пластической прочности допускается медленное бетонирование со скоростью 5–6 м/ч при угловой скорости 0,5 с<sup>-1</sup> и производительностью подачи раствора 30 м<sup>3</sup>/ч. Для сооружений большой ширины (40–60 м) подходят составы с быстрым набором пластической прочности, при этом скорость бетонирования должна быть максимальной (10–11 м/ч при угловой скорости 1,5 с<sup>-1</sup> и производительности подачи раствора 50 м<sup>3</sup>/ч).
- Разработанная концепция шнековой технологии устройства противофильтрационных экранов, рассчитанные затраты труда и машинного времени позволяют использовать технологию в промышленном производстве.
- Innovative technology of horizontal protective shield arrangement using injection / A. Meneylyuk, A. Petrovskiy, A. Borisov, A. Nikiforov // Electronic Journal of the Faculty of Civil Engineering Osijek (e-GFOS). – 2017. – № 15. – Р. 36–49. URL: https://doi.org/10.13167/2017.15.4 (дата обращения 28.12.2020).
- Seepage protection of irrigation canals using horizontal directional drilling / A. Meneylyuk, A. Petrovskiy, A. Borisov, A. Nikiforov // Tehnički glasnik – Technical Journal (TG-TJ). – 2017. – № 4 (11). – P. 201–209. URL: https://hrcak.srce.hr/index.php?show= clanak&id\_clanak\_jezik=281597 (дата обращения 28.12.2020).
- Галинский А.М., Чернухин А.М., Менейлюк А.И. Совершенствование конструктивно-технологических решений локализации источников загрязнения грунтов // Вісник Одеської державної академії будівництва і архітектури. – 2016. – № 63. – С. 309–315. URL: http://nbuv.gov.ua/UJRN/Vodaba\_2016\_63\_53 (дата обращения 28.12.2020).
- Zayed T., Mahmoud M. Data acquisition and factors impacting productivity of horizontal directional drilling HDD // Tunnelling and underground space technology. – 2013. – № 33. – Р. 63–72. URL: https://doi.org/10.1016/j.tust.2012.08.005 (дата обращения 28.12.2020).
- Hungerford F., Ren T. Directional drilling in unstable environments // International Journal of Mining Science and Technology. – 2014. – № 24 (3). – Р 397–402. URL: https://doi. org/10.1016/j.ijmst.2014.03.019 (дата обращения 28.12.2020).
- Meneylyuk A., Nikiforov A. Optimization of managerial, organizational and technological solutions of grain storages construction and reconstruction // Tehnički glasnik – Technical Journal (TG-TJ). – 2020. – № 2 (14). – Р. 121–134. URL: https://doi.org/10.31803/tg-20190313150308 (дата обращения 28.12.2020).
- Designing plaster mortar for a high-rise building / Z. Kos, V. Paruta, O. Gnyp, L. Lavrenyuk, I. Grynyova // Tehnički glasnik – Technical Journal (TG-TJ). – 2019. – № 4 (13). – Р. 331–336. URL: https://doi.org/10.31803/tg-20181206210501 (дата обращения 28.12.2020).
- Kalmus H. The design and analysis of experiments // Annals of Eugenics. – 1952. – № 17 (1). – Р. 96–97. URL: https://doi.org/10.1111/j.1469-1809.1952.tb02500.x (дата обращения 28.12.2020).
- Таблицы планов эксперимента для факторных и полиномиальных моделей / В.З. Бродский, Л.И. Бродский, Т.И. Голикова, Е.П. Никитина, П.А. Панченко. – М.: Металургия, 1982. – 753 р. URL: https://www.twirpx.com/file/789483/ (дата обращения 28.12.2020).
- Biju M.S., Arnepalli D.N. Effect of biopolymers on permeability of sand-bentonite mixtures // Journal of Rock Mechanics and Geotechnical Engineering. – 2020. – № 12 (5). – P. 1093–1102.

URL: https://doi.org/10.1016/j.jrmge.2020.02.004 (дата обращения 28.12.2020).

- Effects of bentonite on pore structure and permeability of cement mortar / H. Yang, D. Long, L. Zhenyu, H. Yuanjin, Y. Tao, H. Xin, W. Jie, L. Zhongyuan, L. Shuzhen // Construction and Building Materials. – 2019. – № 224. – Р. 276–283. URL: https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2019.07.073 (дата обращения 28.12.2020).
- 20. Holmboe M., Wold S., Petterson T. Effects of the injection grout silica sol on bentonite // Physics and Chemistry of the Earth. 2011. № 36 (17–18). Р. 1580–1589. URL: https://doi.org/10.1016/j.pce.2011.07.026 (дата обращения 28.12.2020).

Поступила 30.06.2021 г.

#### Информация об авторах

Менейлюк А.И., доктор технических наук, профессор, заведующий кафедрой технологии строительного производства Одесской государственной академии строительства и архитектуры.

*Никифоров А.Л.*, кандидат технических наук, ассистент кафедры технологии строительного производства Одесской государственной академии строительства и архитектуры.

*Менейлюк И.А.*, кандидат техничеких наук, докторант кафедры технологии строительного производства Харьковского национального университета строительства и архитектуры.

*Руссый В.В.*, аспирант кафедры технологии строительного производства Одесской государственной академии строительства и архитектуры.

UDC 699.85:621.039.743

## ARRANGEMENT OF UNDERGROUND ANTI-FILTRATION SHIELDS USING PILOT WELLS AND AUGER DEVICE

### Aleksandr I. Meneylyuk<sup>1</sup>,

meneilyk@gmail.com

#### Aleksey L. Nikiforov1,

nikiforov.aleksey@yahoo.com

#### Ivan A. Meneylyuk<sup>2</sup>,

ivmen11112019@gmail.com

#### Viktor V. Russyi<sup>1</sup>,

viruswot@gmail.com

- Odesa State Academy of Civil Engineering and Architecture, 4. Didrikhsona street, Odesa, 65029, Ukraine.
- <sup>2</sup> Kharkiv National University of Civil Engineering and Architecture, 40, Sumskaya street, Kharkiv, 61000, Ukraine.

**Relevance.** One of the ways to ensure ecological safety is the localization of existing and potential sources of pollution by enclosing shield arrangement. For this, it seems rational to install underground anti-filtration shields under the source of pollution, preventing the emission of radioactive waste into the environment, in particular, the pollution of groundwater. This study is devoted to the development of auger technology for arrangement of anti-filtration shield, which consists of pilot holes made by the horizontal directional drilling, which is followed by the arrangement of a waterproof layer by replacing the soil with special concrete solution by auger.

**The aim** of the research is the experimental substantiation of the efficiency of the auger technology for construction of underground antifiltration shields to ensure the radiation safety of facilities.

Object: installation of underground anti-filtration shields using auger technology.

Methods: experimental statistical modeling, laboratory experiment, correlation and regression analysis.

**Results.** For structures of small width (10–20 m), slow concreting is allowed at a speed of 5–6 m/h (angular speed of 1,5 s<sup>-1</sup> and feed rate of the composition of 50 m<sup>3</sup>/h). For structures with a large width (40–60 m), there are suitable compositions with a long time of plastic strength at a concentration of fiber (9 %), bentonite (5 %) and water glass (6 %). In this case, the speed of concreting should be maximum (10–11 m/h at an angular speed of 0,5 s<sup>-1</sup> and feed rate of the composition of 30 m<sup>3</sup>/h). The extremely high speed of concreting is achieved at an angular speed of 1,5 s<sup>-1</sup> and a pulling force of 50,96 N. A further increase in the angular speed is not advisable, since at a higher angular speed (more than 1,5 s<sup>-1</sup>), strong vibrations and ground falls were observed. These experimental results made it possible to develop technological recommendations for construction of anti-filtration shields using auger technology. Namely, to develop a concept and procedure of works, to calculate the costs of labor and machine time.

#### Key words:

Ecological safety, auger technology, horizontal directional drilling, anti-filtration shield, experimental statistical modeling.

#### REFERENCES

- Bugai D., Skalskyy A., Dzhepo S., Kubko, Y., Kashparov V., Van Meir N., Martin-Garin, A. Radionuclide migration at experimental polygon at Red Forest waste site in Chernobyl zone. P. 2: Hydrogeological characterization and groundwater transport modeling. *Applied Geochemistry*, 2012, vol. 27 no. 7, pp. 1359–1374. Available at: https://doi.org/10.1016/j.apgeochem.2011.09.028 (accessed 28 December 2020).
- Roux C., Le Gal La Salle C., Simonucci C., Van Meir N., Keith Fifield L., Diez O., Lancelot J. High 36Cl/Cl ratios in Chernobyl groundwater. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2014, vol. 138, pp. 19–32. Available at: https://doi.org/10.1016 /j.jenvrad.2014.07.008 (accessed 28 December 2020).
- Le Gal La Salle C., Aquilina L., Fourre E., Jean-Baptiste P., Michelot J.-L., Roux C., Lancelot J. Groundwater residence time downgradient of Trench No. 22 at the Chernobyl Pilot Site: Constraints on hydrogeological aquifer functioning. *Applied Geochemistry*, 2012, vol. 27 no. 7, pp. 1304–1319. Available at: https://doi.org/10.1016/j.apgeochem.2011.12.006 (accessed 28 December 2020).
- Shcheglov A., Tsvetnova O., Klyashto A. Biogeochemical cycles of Chernobyl-born radionuclides in the contaminated forest ecosystems. Long-term dynamics of the migration processes. *Journal* of Geochemical Exploration, 2014, vol. 144 no. B, pp. 260–266.

Available at: https://doi.org/10.1016/j.gexplo.2014.05.026 (accessed 28 December 2020).

- Shui-Long Shen, Zhi-Feng Wang, Suksun Horpibulsuk, Yong-Hyun Kim. Jet grouting with a newly developed technology: The Twin-Jet method. *Engineering Geology*, 2013, vol. 152 no. 1, pp. 87–95. Available at: https://doi.org/10.1016/j.enggeo.2012.10.018 (accessed 28 December 2020).
- Makovetskiy O., Zuev S. Practice Device Artificial Improvement Basis of Soil Technologies Jet Grouting. *Procedia Engineering*, 2016, vol. 165, pp. 504–509. Available at: https://doi.org/10.1016/ j.proeng.2016.11.726 (accessed 28 December 2020).
- Bernard E.S., Thomas A.H. Fibre Reinforced Sprayed Concrete for Ground Support. *Tunnelling and Underground Space Technol*ogy, 2020, vol. 99, pp. 103–108. Available at: https://doi.org/10.1016/ j.tust.2020.103302 (accessed 28 December 2020).
- Nilsson B., Tzovolou D., Jeczalik M., Kasela T., Slack W., Klint K.E., Haeseler F., Tsakiroglou C.D. Combining steam injection with hydraulic fracturing for the in situ remediation of the unsaturated zone of a fractured soil polluted by jet fuel. *Journal of Environmental Management*, 2011, vol. 92 no. 3, pp. 695–707. Available at: https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2010.10.004 (accessed 28 December 2020).
- 9. Meneylyuk A., Petrovskiy A., Borisov A., Nikiforov A. Innovative technology of horizontal protective shield arrangement using injection. *Electronic Journal of the Faculty of Civil Engineering*

*Osijek (e-GFOS)*, 2017, vol. 15, pp. 36–49. Available at: https://doi.org/10.13167/2017.15.4 (accessed 28 December 2020).

- Meneylyuk A., Petrovskiy A., Borisov A., Nikiforov A. Seepage protection of irrigation canals using horizontal directional drilling. *Tehnički glasnik – Technical Journal (TG-TJ)*, 2017, vol. 4 no. 11, pp. 201–209. Available at: https://hrcak.srce.hr/index.php?show= clanak&id\_clanak\_jezik=281597 (accessed 28 December 2020).
- 11. Galinskiy A.M., Chernukhin A.M., Meneylyuk A.I. Sovershenstvovanie konstruktivno-tekhnologicheskikh resheniy lokalizatsii istochnikov zagryazneniya gruntov [Improvement of constructive and technological solutions for localization of sources of soil pollution]. Bulletin of the Odessa State Academy of Building and Architecture, 2016, vol. 63, pp. 309–315. Available at: http://nbuv.gov.ua/UJRN/Vodaba\_2016\_63\_53 (accessed 28 December 2020).
- Zayed T., Mahmoud M. Data acquisition and factors impacting productivity of horizontal directional drilling HDD. *Tunnelling and underground space technology*, 2013, vol. 33, pp. 63–72. Available at: https://doi.org/10.1016/j.tust.2012.08.005 (accessed 28 December 2020).
- Hungerford F., Ren T. Directional drilling in unstable environments. *International Journal of Mining Science and Technology*, 2014, vol. 24 no. 3, pp. 397–402. Available at: https://doi.org/10.1016/j.ijmst.2014.03.019 (accessed 28 December 2020).
- Meneylyuk A., Nikiforov A. Optimization of managerial, organizational and technological solutions of grain storages construction and reconstruction. *Tehnički glasnik – Technical Journal (TG-TJ)*, 2020, vol. 2 no. 14, pp. 121–134. Available at: https://doi.org/ 10.31803/tg-20190313150308 (accessed 28 December 2020).
- 15. Kos Z., Paruta V., Gnyp O., Lavrenyuk L., Grynyova I. Designing plaster mortar for a high-rise building. *Tehnički glasnik Tech*

nical Journal (TG-TJ), 2019, vol. 13 no. 4, pp. 331–336. Available at: https://doi.org/10.31803/tg-20181206210501

- Kalmus H. The Design and Analysis of Experiments. Annals of Eugenics, 1952, vol. 17, no. 1, pp. 96–97. Available at: https://doi.org/10.1111/j.1469-1809.1952.tb02500.x (accessed 28 December 2020).
- Brodskiy V.Z., Brodskiy L.I., Golikova T.I., Nikitina E.P., Panchenko L.A. *Tablitsy planov eksperimenta dlya faktornykh i polinomialnykh modeley* [Experiment design tables for factorial and polynomial models]. Moscow, Metallurgiya, 1982. 753 p. Available at: https://www.twirpx.com/file/789483/ (accessed 28 December 2020).
- Biju M.S., Arnepalli D.N. Effect of biopolymers on permeability of sand-bentonite mixtures. *Journal of Rock Mechanics and Geotechnical Engineering*, 2020, vol. 12 no. 5, pp. 1093–1102. Available at: https://doi.org/10.1016/j.jrmge.2020.02.004 (accessed 28 December 2020).
- Yang H., Long D., Zhenyu L., Yuanjin H., Tao Y., Xin H., Jie W., Zhongyuan L., Shuzhen L. *Effects of bentonite on pore structure and permeability of cement mortar*. Construction and Building Materials, 2019, vol. 224, pp. 276–283. Available at: https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2019.07.073 (accessed 28 December 2020).
- Holmboe M., Wold S., Petterson T. Effects of the injection grout silica sol on bentonite. *Physics and Chemistry of the Earth*, 2011, vol. 36, no. 17–18, pp. 1580–1589. Available at: https://doi.org/ 10.1016/j.pce.2011.07.026 (accessed 28 December 2020).

Received: 30 June 2021.

#### Information about the authors

Aleksandr I. Meneylyuk, Dr. Sc., professor, Head of Department, Odesa State Academy of Civil Engineering and Architecture.

*Aleksey L. Nikiforov*, Cand. Sc., assistant, Odesa State Academy of Civil Engineering and Architecture. *Ivan A. Meneylyuk*, Cand. Sc., doctoral student, Kharkiv National University of Civil Engineering and Architecture. *Viktor V. Russyi*, postgraduate student, Odesa State Academy of Civil Engineering and Architecture. УДК 556.314

## ИЗОТОПНЫЙ СОСТАВ (б<sup>18</sup>0, бD, б<sup>13</sup>C, б<sup>34</sup>S) ПОДЗЕМНЫХ ВОД ТЕРРИТОРИИ ТОРЕЙСКИХ ОЗЕР (ВОСТОЧНОЕ ЗАБАЙКАЛЬЕ)

#### Лепокурова Олеся Евгеньевна<sup>1,2</sup>,

LepokurovaOY@ipgg.sbras.ru

#### Дребот Валерия Витальевна<sup>1,2</sup>,

DrebotVV@ipgg.sbras.ru

- <sup>1</sup> Томский филиал Института нефтегазовой геологии и геофизики им. А.А. Трофимука СО РАН, Россия, 634055, г. Томск, пр. Академический, 4.
- <sup>2</sup> Национальный исследовательский Томский политехнический университет, Россия, 634050, г. Томск, пр. Ленина, 30.

**Актуальность** работы связана с проблемой дефицита пресных водных ресурсов аридных областей, решение которой невозможно без понимания условий и механизмов формирования состава вод в природной обстановке.

**Цель:** на основе новых данных о стабильных изотопах воды (δ<sup>18</sup>Ο, δD), растворенного углерода и серы (δ<sup>13</sup>C, δ<sup>34</sup>S) дополнить информацию о генезисе и условиях формирования подземных вод.

**Объекты:** подземные воды верхней динамической зоны района Торейских озер (Восточное Забайкалье) – родники, колодцы и скважины глубиной до 70 м, частично речные и озерные воды.

**Методы:** изотопные исследования воды и растворенных С и S были выполнены на масс-спектрометре Finnigan-MAT 252 (Германия) в аналитическом центре ДВГИ ДВО РАН; макрокомпонентный состав вод – современными стандартными методами: титриметрическим, потенциометрическим, фотометрическим, атомно-абсорбционной спектрометрией с пламенной атомизацией и пламенной атомно-эмиссионная спектрометрией в ИПРЭК СО РАН.

**Результаты.** Приведены новые данные по изотопному составу (H и O) подземных вод верхней гидродинамической зоны района Торейских озер, а также растворенных C и S. Отмечается высотная зональность в их распределении. На основе полученных результатов, а также данных по озерным, частично метеорным водам, сделаны выводы о генезисе и условиях формирования: воды инфильтрационные с небольшим влиянием испарительных процессов (смешение с озерными водами). Отмечен достаточно однородный изотопный состав подземных вод, несмотря на различия в химическом составе. Не выявлены связи между изотопным составом и соленостью, основными ионами и pH в пределах подземных вод, но общая эволюция состава в направлении «атмосферные–подземные–озерные воды» характеризуется увеличением общей минерализации, pH и обогащением изотопами <sup>18</sup>O, <sup>2</sup>H, <sup>13</sup>C.

#### Ключевые слова:

Подземные воды верхней динамической зоны, изотопный состав, Торейские озера, Восточное Забайкалье, генезис.

#### Введение

Проблеме формирования химического состава подземных вод в условиях аридного климата уделяется все больше внимания в связи с дефицитом пресных водных ресурсов и необходимостью рационального их использования, особенно в условиях возрастающей антропогенной нагрузки. Пресные подземные воды зачастую являются единственным питьевым источником в таких регионах. При этом все чаще ученые привлекают для данных целей изотопные исследования, которые позволяют решать различные научные и прикладные задачи, кроме генезиса и возраста вод [1-6] это также: выявление источника засоления [7–9], наличия испарения [10], влияния климатических изменений [11], источника питания или возможности смешения с поверхностными [1, 3, 4, 9, 11-15] и морскими водами [7, 9, 16, 17], влияния взаимодействия системы водапорода [5, 16], наличия антропогенного загрязнения [10], установление направления и скорости движения вод [13, 18], первоисточников растворенных в воде веществ [4, 12] и т. д., чаще эти задачи вытекают одна из другой, их трудно дифференцировать и они решаются в комплексе [1, 3-5, 9-13].

В качестве объекта исследования нами выбраны подземные воды верхней динамической зоны территории Торейских озер, относительно хорошо уже нами изученные на химический состав [19-21]. Район юго-восточного Забайкалья характеризуется одновременно как резко континентальным засушливым климатом, так и существующей проблемой содового засоления вод, являясь при этом развитым сельскохозяйственным регионом. Кроме того, эта территория широко известна своими многочисленными и разнообразными по составу солёными озерами, химический и изотопный состав которых был детально изучен С.В. Борзенко в работах [22-24]. Однако, как показано в наших предыдущих исследованиях [19, 20], химический состав подземных вод отличается не меньшим разнообразием уже на первых этапах взаимодействия системы вода-порода, начиная с первых метров глубины. Здесь, в пределах сравнительно небольшой площади, благодаря засушливому климату, существующим геолого-геоморфологическим условиям, наличию трещиноватых вулканогенных структур, обеспечивающих смешение вод, при непрерывном взаимодействии системы вода-порода сформировались разные типы подземных вод [20]. Все они

отличаются по химическому составу, pH и солёности, а также степени удаленности от озер. В рамках исследования условий формирования состава данных вод на первый план встала задача детального изучения стабильных изотопов, ранее здесь не изученных, как наиболее информативных при выявлении генезиса вод, роли испарительного концентрирования, а также наличия смешения с поверхностными и озерными водами.

Таким образом, цель настоящего исследования – уточнение условий и основных процессов, контролирующих формирование подземных вод в аридной зоне юго-восточного Забайкалья на основе данных о стабильных изотопах воды ( $\delta^{18}$ O,  $\delta$ D), растворенного углерода и серы ( $\delta^{13}$ C,  $\delta^{34}$ S).

#### Методы исследования

Отбор проб был проведен в летние периоды с 2017 по 2019 гг. совместными усилиями сотрудников Томского филиала Института нефтегазовой геологии и геофизики им. А.А. Трофимука Сибирского отделения Российской академии наук (ТФ ИНГГ СО РАН) и Института природных ресурсов, экологии и криологии Сибирского отделения Российской академии наук (ИПРЭК СО РАН, г. Чита). При этом основной акцент был сделан на опробовании подземных вод, однако без изучения озёрных и речных вод исследование было бы не полным. Всего на изотопный состав, но не на все виды анализов, отобрано: 1 проба речных вод (р. Борзя), 8 проб озер и 37 подземных (родники, колодцы и скважины глубиной до 70 м). Также для построения локальной линии метеорных вод использовались данные по пресным поверхностным водам региона из работ [23, 24].

Химический состав вод был определен в аттестованной лаборатории геоэкологии и гидрогеохимии ИПРЭК СО РАН титриметрическим (СО3<sup>2-</sup>, НСО3<sup>-</sup>,  $SO_4^{2-}$ , Cl<sup>-</sup>), потенциометрическим (F<sup>-</sup>), фотометрическим (Si, P) методом, а также атомно-абсорбционной спектрометрией с пламенной атомизацией (Ca<sup>2+</sup>, Mg<sup>2+</sup>) и пламенной атомно-эмиссионная спектрометрией (Na<sup>+</sup>, K<sup>+</sup>). pH, Eh и температура воды определялись на месте in situ с помощью мультиметра АМТАЅТ АМТОЗ (США). Общая минерализация была определена расчетным методом как сумма ионов. Изотопные исследования воды были выполнены в Аналитическом центре Дальневосточного геологического института Дальневосточного отделения Российской академии наук (ДВГИ ДВО РАН) на массспектрометре Finnigan-MAT 252 (Германия). Результаты приводятся в промилле (‰) относительно стандарта ŜMOW для  $\delta^{18}$ O,  $\delta$ D; PDB для  $\delta^{13}$ C и CDT для  $\delta^{34}$ S. Погрешность анализа 1  $\sigma$  по кислороду ±0,15 ‰ и по водороду  $\pm 1,2$  ‰, по углероду и сере  $\pm 0,1$  ‰. П по водороду 2132 ж. по уплороду п сере 20,1 ж. Определены 33  $\delta^{18}$ О и  $\delta$ D, 32  $\delta^{13}$ С и  $\delta^{18}$ О гидрокарбонат-иона (HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> + CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>) и 9  $\delta^{34}$ S в сульфатах (SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>) и 1 в S<sup>2</sup>.

Обзорная карта района исследований со схемой опробования была подготовлена с помощью программного пакета ArcGIS с использованием данных о высотах SRTM.

#### Объект исследования

Район исследования расположен на юго-востоке Забайкальского края практически на стыке трех стран: России, Монголии и Китая, простираясь в пределах от 49° до 51° с.ш. и от 114° до 117° в.д., и является частью Государственного природного биосферного заповедника «Даурский», который с 2017 г. в составе российско-монгольского объекта «Ландшафты Даурии» внесен в список Всемирного наследия ЮНЕСКО. Рельеф территории в большей степени представлен Торейской впадиной неправильно-изометрической формы, большая часть которой занята бессточными озёрами Баруни Зун-Торей [25], а также российской частью их водосбора, и охватывает площадь порядка 10000 км<sup>2</sup>. В целом же район является частью Улдза-Торейской высокой равнины восточного Забайкалья, которая простирается за пределы Российской Федерации на территорию Монголии с абсолютными отметками рельефа от 600 м и выше. Участки заповедника, расположенные вблизи Торейских озёр, относятся к Монгольской степной провинции (Восточномонгольская подпровинция) и генетически связаны со степными центрально-азиатскими ландшафтами Монголии [26].



**Рис. 1.** Обзорная карта района исследования со схемой отбора проб природных вод

Fig. 1. Map showing case study region and sampling locations along with the water type assigned to each sample

Удаленность района от морей и океанов, его положение внутри огромного материка, а также влияние азиатского антициклона зимой и сложная орография определяют континентальность и засушливость климата, а значит на процесс формирования химического состава вод оказывает влияние испарение, ускоряющее процессы взаимодействия воды с породой. К ещё одной особенности Даурского климата можно отнести чередование засушливых и влажных периодов, приводящее в прошлом к почти полному пересыханию Тореев, например, в 1903-1904, 1921-1922 и 1944–1947 гг., а наибольшие наполнения их отмечены в 1963-1965 и 1993-1995 гг. [27]. Предпоследняя фаза аридизации наблюдалась до 1981 г., сменившись затем фазой увлажнения [28]. Все это говорит о высокой степени влияния климатических условий на состояние как поверхностных водных объектов, так и неглубоко залегающих грунтовых вод.

Согласно геологическому строению впадина сложена песчано-глинистыми маломощными отложениями, перекрывающими эффузивно-осадочные меловые породы, выходящие на дневную поверхность в районе озер. Район исследований приурочен к Восточно-Забайкальской гидрогеологической складчатой области (структура 2-го порядка). На основе данных о типе циркуляции вод, гидродинамическомом режиме и возрасте вмещающих пород выделяются водоносные комплексы с пластово-поровыми подземными водами, а также трещиными, трещинно-пластовыми, трещинно-карстовыми и напорными. Существующая локальная трещиноватость вулканогенных структур обеспечивает смешение озерных, речных и подземных вод.

| i dotte i i chemit           | eur compositio                         | n oj na |          | arens in        | me ureu           | oj roney                      | rences, m         | ·8/ E      |                     |                          |                 |      |   |
|------------------------------|--|---------|----------|-----------------|-------------------|-------------------------------|-------------------|------------|---------------------|--------------------------|-----------------|------|---|
| Водные объекты<br>Water body | Точка<br>опробования<br>Sampling point | pН      | Eh       | CO <sub>2</sub> | CO3 <sup>2-</sup> | HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup> | SO4 <sup>2-</sup> | Cl⁻        | Ca <sup>2+</sup>    | Mg <sup>2+</sup>         | Na <sup>+</sup> | K+   | M*  |
|                              | 1P                                     | 6,09    | 145      | 2,64            | <0,3              | 3,66                          | 0,95              | 0,87       | 0,38                | 0,03                     | 1,49            | 0,29 | 0,01  |
| Атм. осадки                  | 2P                                     | 6,5     | _        | <0,4            | <0,3              | 9,76                          | 3,1               | 3,52       | 0,69                | 0,7                      | 5,98            | 0,68 | 0,03  |
| Precipitation                | 3P                                     | 6,8     | _        | <0,4            | <0,3              | 22,2                          | 5,8               | 6,13       | 1,48                | 1,5                      | 11,4            | 1,05 | 0,05  |
| 1                            | 6P                                     | 4,98    | -        | 17,4            | _                 | 4,28                          | 4,5               | 1,72       | 1,03                | 0,35                     | 0,34            | 0,73 | 0,02  |
| р. Онон/Onon river           | 1R                                     | 7,4     | 155      | 3,52            | <0,3              | 50,3                          | 10                | 1,78       | 11,3                | 2,2                      | 6,3             | 1,22 | 0,09  |
| р. Борзя/Borzya river        | 2R                                     | 8,18    | 100      | 0,15            | <0,3              | 298                           | 18,8              | 6,6        | 35,7                | 17,9                     | 49,1            | 4    | 0,48  |
|                              |  | I       | тип, пре | сные Н          | $CO_3$ (Ca,       | Na, Mg)/I                     | type, fres        | h waters I | HCO <sub>3</sub> (C | Ca, Na, N                | (lg)            | ·    | <u>,                                     </u> |
|                              | 3G                                     | 8,47    | 41       | <0,4            | 12                | 427                           | 21,3              | 23,9       | 33,2                | 40,1                     | 67,4            | 3,83 | 0,56  |
|                              | 14G                                    | 8,1     | -45      | <0,4            | <0,3              | 353                           | 39,6              | 7,3        | 42,7                | 27,4                     | 49,6            | 1,13 | 0,55  |
|                              | 18G                                    | 7,7     | 110      | <0,4            | <0,3              | 310                           | 28                | 17,1       | 41,9                | 28,5                     | 38,6            | 2,48 | 0,5   |
|                              | 19G                                    | 8       | -27      | <0,4            | <0,3              | 415                           | 44,9              | 11,7       | 22                  | 55,7                     | 52,3            | 1,58 | 0,63  |
|                              | 20G                                    | 8       | 67       | <0,4            | <0,3              | 361                           | 16,3              | 11,6       | 21,8                | 41.8                     | 35,6            | 1,07 | 0,52  |
|                              | 21G                                    | 7,9     | 1,51     | <0,4            | <0,3              | 358                           | 47,6              | 45,4       | 54,3                | 37,7                     | 52,4            | 2,45 | 0,62  |
|                              | 22G                                    | 8,1     | -98      | <0,4            | <0,3              | 317                           | 26,5              | 5,9        | 27,6                | 28,3                     | 49,6            | 2,26 | 0,48  |
|                              | 5G                                     | 8.32    | -44      | <0.4            | 18                | 342                           | 65                | 17.5       | 25.6                | 28.7                     | 89.7            | 3.25 | 0.51  |
|                              | 6G                                     | 8,38    | 100      | <0,4            | 18                | 342                           | 20,6              | 10,1       | 14                  | 33                       | 68,8            | 11,7 | 0,46  |
|                              | 7G                                     | 8,34    | -73      | <0,4            | 18                | 305                           | 24,6              | 21,9       | 26,8                | 22,8                     | 73,3            | 6,72 | 0,43  |
|                              | 16G                                    | 7.9     | 92       | <0.4            | < 0.3             | 376                           | 30,4              | 6.6        | 24.2                | 20.5                     | 93              | 1.45 | 0.58  |
|                              | 23G                                    | 7.78    | 148      | <0.4            | < 0.3             | 461                           | 87.1              | 85.5       | 93.9                | 76.2                     | 17.2            | 3.3  | 0.85  |
|                              | 24G                                    | 7.68    | 208      | <0.4            | < 0.3             | 284                           | 5.54              | 16.1       | 32.6                | 19.4                     | 44.2            | 1.07 | 0.43  |
| STS                          | 25G                                    | 8.55    | -11      | <0.4            | < 0.3             | 415                           | 163               | 80.6       | 56.9                | 56.2                     | 95.4            | 1.5  | 0.78  |
| 'ate                         | 29G                                    | 7.6     | 101      | 9.9             | -                 | 310                           | 13.6              | 5.6        | 56.4                | 20                       | 21.5            | 2.46 | 0.38  |
| wbi                          | 30G                                    | 7.74    | 122      | 13              | _                 | 517                           | 10.7              | 5.15       | 73.2                | 43.1                     | 29.7            | 2.66 | 0.63  |
| Inc                          | 34G                                    | 7.9     | 138      | 5.5             | _                 | 262                           | 10                | 4.97       | 38.9                | 24.5                     | 24.8            | 0.69 | 0.28  |
| Ğ                            | 35G                                    | 7.53    | 105      | 17.2            | _                 | 412                           | 119               | 75         | 79.2                | 40.7                     | 82.5            | 2.46 | 0.72  |
| )et                          | 36G                                    | 7.7     | 143      | 6.16            | _                 | 370                           | 69.3              | 23.9       | 64.7                | 22.5                     | 74.9            | 1.8  | 0.54  |
| BOJ                          | 37G                                    | 7.46    | -15      | 12.5            | _                 | 265                           | 33.5              | 9.87       | 62.8                | 19                       | 14.9            | 1.69 | 0.33  |
| Pie                          | 38G                                    | 7.41    | 170      | 8.8             | _                 | 272                           | 19,1              | 3.5        | 50.1                | 22.4                     | 22.6            | 0.81 | 0.32  |
| IHW                          | 39G                                    | 7.8     | 102      | 5.06            | _                 | 181                           | 5.03              | 2.55       | 46.9                | 5.96                     | 6.89            | 0.56 | 0.17  |
| 136                          |  | ІІ тиг  | солон    | оватые І        | HCO3 (SC          | A-Cl) Na/                     | I type, br        | ackish wa  | ters HC             | $O_3$ (SO <sub>4</sub> - | Cl) Na          | ,    |   |
| Io                           | 1G                                     | 8,78    | -127     | <0,4            | 12                | 702                           | 436               | 160        | 27                  | 51,9                     | 437             | 7,3  | 1,75  |
|                              | 2G                                     | 8,74    | 71       | <0,4            | 12                | 824                           | 450               | 343        | 27,2                | 75,6                     | 583             | 12,5 | 2,25  |
|                              | 4G                                     | 8.67    | -121     | <0.4            | 36                | 720                           | 343               | 207        | 27.5                | 38.9                     | 465             | 13.5 | 1.8   |
|                              | 8G                                     | 8.32    | -46      | <0.4            | 6                 | 311                           | 53.8              | 11.7       | 4.55                | 4.64                     | 135             | 2.66 | 0.46  |
|                              | 9G                                     | 8.7     | -130     | <0.4            | 21.1              | 787                           | 1126              | 445        | 116                 | 219                      | 523             | 1.67 | 3.15  |
|                              | 10G                                    | 8.5     | -80      | < 0.4           | 15                | 453                           | 32.6              | 21.3       | 26.9                | 34.1                     | 119             | 2.3  | 0.61  |
|                              | 11G                                    | 6.18    | 21       | 2710            | < 0.3             | 1866                          | 15.6              | 24.3       | 253                 | 81.6                     | 302             | 13.5 | 2.5   |
|                              | 12G                                    | 8.3     | 115      | < 0.4           | < 0.3             | 318                           | 277               | 178        | 50.5                | 80.6                     | 149             | 19.5 | 1.11  |
|                              | 13G                                    | 8,2     | 172      | <0,4            | <0,3              | 485                           | 117               | 55         | 37,4                | 22,4                     | 181             | 2,15 | 0,93  |
|                              | 15G                                    | 8,9     | 19       | <0,4            | <0,3              | 1348                          | 890               | 1034       | 36,4                | 52,2                     | 1452            | 10,7 | 4,87  |
|                              | 17G                                    | 8.1     | 37       | < 0.4           | < 0.3             | 309                           | 127               | 81.5       | 45.7                | 31.3                     | 114             | 1.55 | 0.73  |
|                              | 26G                                    | 8.24    | -122     | 7.48            | < 0.3             | 394                           | 96.3              | 65.6       | 37.9                | 32.5                     | 137             | 2.7  | 0.67  |
|                              | 31G                                    | 7.99    | 100      | 9.24            | -                 | 483                           | 210               | 23.5       | 137                 | 42.3                     | 49              | 10   | 0.91  |
|                              | 32G                                    | 7.8     | 173      | 9.46            | _                 | 552                           | 49.7              | 17.9       | 30.1                | 34                       | 136             | 2.78 | 0.74  |
|                              | 33G                                    | 8.3     | 184      | 0.44            | _                 | 456                           | 78                | 50.5       | 34.7                | 36.1                     | 146             | 1.83 | 0.73  |
| Ň                            | 2L                                     | 9,05    | 58       | <0.4            | 6                 | 654                           | 125               | 229        | 12.5                | 4,47                     | 423             | 18.5 | 1.56  |
| ake                          | 3L                                     | 8,95    | 84       | <0.4            | 51                | 779                           | 145               | 253        | 7,02                | 2,99                     | 537             | 5,11 | 1.81  |
| //Li                         | 4L                                     | 9,03    | 94       | <0.4            | 21                | 529                           | 65.7              | 131        | 16                  | 10.2                     | 260             | 40.5 | 1.08  |
| <u> </u>                     | 51.                                    | 9.74    | -30      | <0.4            | 3630              | 4819                          | 5375              | 6310       | 1.59                | 85.3                     | 10910           | 390  | 31.6  |
| BC                           | 6L                                     | 9.48    | 75       | <0.4            | 129               | 522                           | 176               | 780        | 4.57                | 2,67                     | 863             | 3.32 | 2.53  |
| IBIG                         | 7L                                     | 9,99    | -69      | <0.4            | 3240              | 2775                          | 1263              | 3287       | 6.3                 | 3.34                     | 6233            | 31.3 | 17.4  |
| ebi                          | 8L                                     | 9.74    | 15       | <0.4            | 5010              | 4056                          | 8634              | 12399      | 3.12                | 6.6                      | 17410           | 193  | 48.1  |
| 03                           | 9L                                     | 9,65    | 55       | <0.4            | 10560             | 7320                          | 17916             | 45650      | 2,81                | 3,09                     | 48729           | 232  | 131   |
|                              |  | . ,     |          |                 |                   |                               |                   |            | ,                   | - , - /                  |                 |      |   |

 Таблица 1. Химический состав природных вод района Торейских озер, мг/л

 Table 1.
 Chemical composition of natural waters in the area of Torey lakes, mg/L

Примечания:  $M^*$  – Минерализация, «–» – данные отсутствуют.

Note:  $M^*$  – Mineralization of water, «–» – data are not available.

При исследовании химического состава природных вод района установлено [21], что в направлении атмосферные [20]–речные–подземные–озерные воды увеличиваются соленость (от 10 мг/л до 120 г/л) и значение pH (от 5,0 до 9,9), накапливается Si (до 130 мг/л), из макрокомпонентов сначала превалируют  $Ca^{2+}$ ,  $Mg^{2+}$ ,  $HCO_3^-$ , затем Na<sup>+</sup>,  $HCO_3^-$  и  $CO_3^{2-}$ , и далее Na<sup>+</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> и Cl<sup>-</sup>. Также в этом направлении увеличиваются концентрации некоторых микрокомпонентов. Общее описание по каждому объекту представим ниже, данные по составу приведены в табл. 1.

Атмосферные осадки района относятся к ультрапресным (10–50 мг/л), слабокислым (pH 5–6,5), сложного катионного и анионного состава водам, но в основном преобладают  $HCO_3^-$  и Na<sup>+</sup>.

Речные воды (реки Онон и Борзя) характеризуются низкой минерализацией (10–47 мг/л) и слабощелочной средой (рН 7,4–8,2), по составу гидрокарбонатные кальциево-натриевые.

Подземные воды верхней гидродинамической зоны отличаются большим разбросом значений рН и солености. Мы выделили условно два типа вод: 1) с минерализацией 0,17–0,85 г/л и рН 7,4–8,5, по составу HCO<sub>3</sub>, но сложного катионного состава (Ca, Na, Mg) и 2) с минерализацией 0,61–4,87, рН 7,8–8,9, по составу в основном HCO<sub>3</sub>-Na (резко из катионов превалирует натрий), реже в анионном составе появляются SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> и Cl<sup>-</sup> (HCO<sub>3</sub>-SO<sub>4</sub>-Na, HCO<sub>3</sub>-Cl-Na).

Озерные воды отличаются еще большим разбросом солености – от 1 до 131 г/л, но достаточно узким диапазоном pH – от 8,9 до 9,9. Состав при этом очень разнообразен: анионный варьирует – HCO<sub>3</sub>, Cl-SO<sub>4</sub>, SO<sub>4</sub>-Cl, Cl, в катионном преобладает всегда Na.

Подробнее состав воды представлен в [20].

#### Результаты исследования и их обсуждение

В питании подземных вод могут участвовать воды различного генезиса: прежде всего, метеорные (атмосферные и речные), а также, среди поверхностных, озерные, кроме того, седиментационные, магматогенные и прочие. В изучаемых условиях можно исключить глубинные источники. Интерес больше представляет вклад озерных вод в питание подземных.

Величины  $\delta D$  и  $\delta^{18}O$  подземных вод варьировали в достаточно узком интервале значений – от –101 до – 70 ‰ и от –13,7 до –8 ‰ соответственно (табл. 2). Хотя мы по химическому составу и разделили воды на два типа, по изотопному составу особые отличия не были выявлены, и даже средние значения практически идентичны. Диапазон вариаций изотопного состава озерных вод отличный от подземных – от –4,3 до 1,5 ‰ для кислорода и от –49 до –18 ‰ для водорода.

При нанесении полученных данных на график зависимости  $\delta D$  и  $\delta^{18}O$  (рис. 2) можно сделать следующие выводы. Большая часть подземных вод территории имеет метеорный генезис, о чем свидетельствует их распределение вдоль локальной (LMWL) [29] и глобальной (GMWL) линий метеорных вод (на этом участке они практически совпадают).

**Таблица 2.** Изотопный состав природных вод района Торейских озер и водорастворенных веществ, ‰

| Table 2. | Isotopic | compo. | sition of | natu | ral water | rs in the |
|----------|----------|--------|-----------|------|-----------|-----------|
|          | Torey    | Lakes  | area      | and  | water     | soluble   |
|          | substanc | ces, ‰ |           |      |           |           |

|                          | Strostantees       | , ,00      |           |                              |                                 |                                |
|--------------------------|--------------------|------------|-----------|------------------------------|---------------------------------|--------------------------------|
| Водные                   | Точка<br>опробова- | Bo<br>Wa   | да<br>ter | Гидр<br>бона<br>Hydro<br>ate | окар-<br>т-ион<br>carbon<br>ion | Сульфат-<br>ион<br>Sulfate ion |
| ооъекты                  | ния                | ~          |           |                              | >                               |                                |
| Water body               | Sampling           | MO         | M         | В                            | MO                              | 10                             |
| 2                        | point              | SM         | SMC       | ເລີ                          | SM                              | Sci                            |
|                          | F                  | ç          | Ĝ         | 313                          | $^{\circ}$                      | 34                             |
|                          |                    | $\delta^1$ | Ŷ         | ~                            | $\delta^1$                      | $\sim$                         |
| р. Борзя<br>Borzya river | 2R                 | -          | -         | -13,2                        | 21,9                            | _                              |
|                          |                    | ип, пресн  | ные НСС   | $O_3$ (Ca.                   | Na, M                           | g)                             |
|                          | I type             | e, fresh w | aters H   | $CO_3$ (C                    | a, Na, I                        | Mg)                            |
|                          | 3G                 | -12,7      | -95       | -                            | -                               | _                              |
|                          | 14G                | -          | _         | -9,6                         | 19,1                            | -                              |
|                          | 18G                | -          |           | -123                         | 184                             | _                              |
|                          | 100                |            |           | 12,5                         | 10,4                            |                                |
|                          | 190                | _          | _         | -11                          | 19,5                            | _                              |
|                          | 20G                | -          | -         | -10,7                        | 19,2                            | _                              |
|                          | 21G                | -          | -         | -12,2                        | 18,1                            | _                              |
|                          | 22G                | _          | _         | -11                          | 19.5                            | _                              |
|                          | 5G                 | 123        | 02        |                              | ,.                              |                                |
|                          | 50                 | -12,5      | -92       | _                            | _                               | _                              |
|                          | 6G                 | -8         | -72       | -                            | -                               | -                              |
|                          | 7G                 | -12        | -95       | -                            | -                               | -                              |
|                          | 16G                | _          | _         | -10.2                        | 19                              | _                              |
|                          | 23G                | _          | _         | _12.2                        | 10                              | _                              |
|                          | 230                |            |           | 12,2                         | 10.1                            |                                |
|                          | 24G                | -          | -         | -12,1                        | 18,1                            | -                              |
| SI                       | 25G                | -12,1      | -96       | -                            | -                               | _                              |
| ate                      | 29G                | -11,9      | -83       | -13,7                        | 20,8                            | 8,3                            |
| dw 1                     | 30G                | -11        | -79.1     | -92                          | 22.2                            | _                              |
| ŭ                        | 240                | 12.1       | 09.6      | 10.1                         | 10.2                            |                                |
| iro.                     | 340                | -13,1      | -98,0     | -10,1                        | 19,5                            | _                              |
| D/I                      | 35G                | -13,6      | -101,4    | -8,9                         | 17,8                            | _                              |
| ff.                      | 36G                | -13,7      | -100,7    | -9,3                         | 18,4                            | _                              |
| BO                       | 37G                | -12,4      | -89,1     | -13                          | 19,1                            | _                              |
| ble                      | 38G                | -12.5      | -89.6     | -10.7                        | 19.4                            | _                              |
| H                        | 200                | 12,5       | 07,0      | 10,7                         | 10.2                            |                                |
| 3en                      | 390                | -12,7      | -91       | -10,8                        | 19,5                            | _                              |
| Но                       | II тиг             | т, солоно  | оватые І  | HCO <sub>3</sub> (           | SO <sub>4</sub> -Cl             | ) Na                           |
| Ш                        | II type            | , brackisl | n waters  | HCO <sub>3</sub>             | $(SO_4-C)$                      | l) Na                          |
|                          | 1G                 | -11,1      | -85       | -                            | -                               | _                              |
|                          | 2G                 | -11.3      | -89       | _                            | _                               | _                              |
|                          | 46                 | 11.0       | 00        |                              |                                 |                                |
|                          | 40                 | -11,4      | -00       | _                            |                                 | _                              |
|                          | 8G                 | -11,9      | -90       | -                            | -                               | _                              |
|                          | 9G                 | -11,9      | -96       | —                            | —                               | -                              |
|                          | 10G                | -11,9      | -97       | -                            | -                               | -                              |
|                          | 11G                | -12.1      | -95       | _                            | _                               | _                              |
|                          | 12G                | ,-         |           | 13.8                         | 10.8                            |                                |
|                          | 120                | _          | _         | -13,8                        | 19,0                            | _                              |
|                          | 13G                | -          | -         | -9,1                         | 20,2                            | _                              |
|                          | 15G                | -          | _         | -9,5                         | 19,6                            | -                              |
|                          | 17G                | -          | _         | -9,9                         | 19,5                            | _                              |
|                          | 26G                | -12.4      | -98       | _                            | _                               | _                              |
|                          | 316                | _8.0       | _60.8     | _13.6                        | 2/1 3                           | -                              |
|                          | 310                | -0,9       | -09,8     | -13,0                        | 24,3                            | _                              |
|                          | 32G                | -13,7      | -96,5     | -10,6                        | 18,8                            | _                              |
|                          | 33G                | -13,2      | -92,8     | -8,5                         | 20,1                            | -                              |
| s                        | 2L                 | -2,8       | -30       | -                            | -                               | _                              |
| ke                       | 31.                | -1.7       | -28       | -7.6                         | 27                              | 3.5                            |
| (La                      | 41                 | 12         | 40        | 6.6                          | 26.2                            | 2,5                            |
| (Ibl/                    | 4L                 | -4,5       | -49       | -0,0                         | 20,5                            | -                              |
| ПО                       | 5L                 | -1,48      | -44       | 2,1                          | 27,6                            | 8,9                            |
| e F                      | 6L                 | -2,4       | -34       | -6,9                         | 26,8                            | 11,1                           |
| HB                       | 7L                 | 1,46       | -18       | -2,2                         | 29,3                            | 14,5                           |
| eb                       | 81                 | -14        | _32       | _1 5                         | 27.2                            | 33                             |
| 03                       |                    | 1.20       | -32       | -1,5                         | 21,2                            | 3,5                            |
| -                        | 9L                 | -1,28      | -37       | -0,6                         | 28,4                            | /,1                            |

Примечания: «–» – данные отсутствуют. Note: «–» – data are not available.



**Рис. 2.** Распределение изотопов H и O в подземных и озерных водах района



Исключение составляют две фигуративные точки, отклоненные по линии метеорных вод вверх, и одна даже с небольшим (1,4 ‰) кислородным сдвигом. Объяснение этого будет чуть ниже. Если исключить эти точки, то диапазон изменений величин  $\delta D$  и  $\delta^{18}O$  для подземных вод будет еще уже: от –101 до –79 ‰ и от –13,7 до –11,1 ‰ соответственно.

Озерные воды, несмотря на питание их метеорными водами, в результате испарительных процессов, а именно изотопно-обменных реакций при фазовом переходе «вода-пар», приобретают тяжелый изотопный состав, при этом линия тренда имеет более пологий наклон (рис. 2), т. е. величина  $\delta^{18}$ О больше утяжеляется, чем  $\delta$ D. Этот уклон характерен для открытых водоемов, склонных к испарению [29], в результате которого в пар переходят более легкие изотопы воды.

Две выше описанные аномальные фигуративные точки подземных вод как раз попадают на линию смешения метеорных и озерных вод (рис. 2). При этом данные пробы отличаются относительно невысокими значениями минерализации (0,46 и 0,91 г/л) и рН (8,4 и 8,0).



**Рис. 3.** Соотношение б<sup>18</sup>О природных вод района Торейских озер с их pH (a) и соленостью (б) (условные обозначения – на рис. 2)

Fig. 3. Ratio of  $\delta^{18}O$  of natural waters of the Torey Lakes region with pH (a) and salinity (b) (for legend see Fig. 2)

Если, в принципе, сравнивать величину  $\delta^{18}$ О (можно и  $\delta$ D, но первая будет более выразительна) всех вод с показателями общей солености и кислотнощелочными условиями, то можно увидеть следующую картину (рис. 3). При общей эволюции «воды зоны активного водообмена – озерные воды» тенденция очевидна: увеличивается минерализация и рН вод, утяжеляется изотопный состав воды. Однако, если рассматривать только подземные воды, такая зависимость не так очевидна, видимо, из-за недостаточной представительности выборки. При этом на графиках опять выделяются две аномальные точки, попадающие на линию смешения с озерными водами (рис. 3), но только по  $\delta^{18}$ О, по  $\delta$ D несильно выделяются.

Были исследованы зависимости изотопного состава вод от их пространственного расположения. Латеральная зональность ничего не показала, поскольку территория небольшая и расположены водные объекты достаточно близко. Немного проявилась высотная изотопная зональность. В предыдущих работах указывалось [23], что с уменьшением высоты и продвижением вод от областей питания в сторону озер увеличивается соленость и щелочность. Соответственно в этом же направлении увеличиваются значения δ<sup>18</sup>O и δD (рис. 4).

Изотопный состав углерода гидрокарбонат-иона указывает на генезис водорастворенного углерода, особенно это актуально для широко здесь распространенных содовых вод. Источник может быть атмосферный (~ от –11 до –5 ‰), биогенный (~ от –30 до – 12 ‰), в результате разложения карбонатный пород (~ от –2 до 2 ‰), мантийный и магматический (~ от –4 до –8 ‰) (интервалы значений  $\delta^{13}C$  варьируют у разных исследователей, здесь приведены наиболее встречаемые по мнению авторов).



**Рис. 4.** Соотношение изотопного состава кислорода (а) и водорода (б) воды с гипсометрическим положением водных объектов района Торейских озер (условные обозначения – на рис. 2)

*Fig. 4. Ratio of water oxygen (a) and hydrogen (b) isotopic composition with the elevation of water bodies in the Torey Lakes region (for legend see Fig. 2)* 

Тяжелым  $\delta^{13}$ С выделяются озерные воды территории от -7,6 до 2,1 ‰, что указывает на основной вклад атмосферной CO<sub>2</sub>. Данные подтверждают полученную ранее информацию по изотопному составу углерода соседних озер [23] и близость их состава к морским водам [30, 31]. В то время как гидрокарбонат рек легче (-13,2 ‰) и характерен для пресноводных водоемов [32, 33]. Значения  $\delta^{13}$ С(HCO<sub>3</sub>) подземных вод варьируют в интервале от -13,8 до -8,5 ‰, что указывает на биогенный источник, но с некоторым утяжелением из-за еще имеющегося влияния атмосферного CO<sub>2</sub> (воды неглубокие), а возможно, и озерных вод. Разные по химическому составу два ти-

па подземных вод по  $\delta^{13}$ С идентичны. В общей эволюции с увеличением концентрации иона  $HCO_3^-$  возрастает величина  $\delta^{13}$ С, т. е. утяжеляется изотопный состав углерода (рис. 5, *a*).

Гидрокарбонат-ион всех природных вод района обогащен <sup>18</sup>О в среднем на 20–30 ‰: для подземных вод в интервале от 17,8 до 24,3 ‰ (чуть тяжелее для II типа), для озер – от 26,3 до 29,3 ‰. Очевидно, что при его формировании происходит фракционирование кислорода с переходом тяжелого изотопа в карбонатные ионы, а затем и во вторичные карбонаты. При этом, как видно из рисунка 5,  $\delta$ ,  $\delta$ <sup>18</sup>O(HCO<sub>3</sub>) наследует изотопный состав воды.



**Рис. 5.** Зависимость  $\delta^{13}C$  (HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>) природных вод района Торейских озер от содержания HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> (a) и  $\delta^{18}O$  (HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>) от  $\delta^{18}O$  (б) (условные обозначения – на рис. 2)

Fig. 5. Dependence of  $\delta^{13}C$  (HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>) of natural waters of the Torey Lakes region on the content of HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> (a) and  $\delta^{18}O$  (HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>) on  $\delta^{18}O$  (b) (for legend see Fig. 2)

Изотопные определения сульфатных форм серы позволяют оценить различные биогеохимические процессы, происходящие в водах [34–36]. Более широкие вариации  $\delta^{34}$ S сульфатов (от 3,3 до 17,5 ‰) – в озерах, и в среднем большее обогащение тяжелым изотопом <sup>34</sup>S указывает на наличие бактериальной

редукции сульфата, которая в континентальных водоемах сопровождается существенным разделением изотопов серы крайних членов цепи ее превращения [37, 38]. Для подземных вод характерны достаточно однородные (от 5,8 до 8,8 ‰) и легкие значения  $\delta^{34}$ S, что указывает на отсутствие сульфатредукции.

Таким образом, интерпретация результатов изотопных анализов всегда необходима в комплексе с другими исследованиями, например, как в данном случае, геолого-гидрогеологическими и геохимическими данными. По изотопным данным воды и водорастворенной серы на состав подземных вод верхней динамической зоны процессы испарения и смешения с озерными водами не оказывают сильного влияния, за исключением двух точек отбора (т. е. менее 10 %). Однако по химическому составу вод мы уже наблюдаем эти процессы: воды более минерализованы (до 5 г/л), разнообразны по составу, в основном преобладает сода. Изотопный состав водорастворенного углерода гидрокарбонат-иона оказался более чувствителен к процессу смешения с поверхностными водами, очевидно, с озерными (другие источники здесь невозможны, учитывая геолого-гидрогеологические условия). Значения  $\delta^{13}$ C(HCO<sub>3</sub>) значительно тяжелее, чем характерно для атмосферных и речных вод региона. Поэтому мы можем утверждать, что на формирование состава подземных вод по изотопногеохимическим данным оказывают влияние и процессы испарительного концентрирования, и процессы смешения с озерными водами (т. е. водами, подвергающимися испарению) в начальной стадии. А в целом воды имеют типичный для подземных вод верхней зоны инфильтрационный генезис.

#### Выводы

Проведенные исследования по изотопному составу подземных вод верхней динамической зоны (до 70 м) района Торейских озер позволили детализировать генезис и условия их формирования. Результаты оказались следующими.

- Значения δD и δ<sup>18</sup>O подземных вод в условиях аридного климата варьируют в узком интервале, большинство: от -101 до -79 ‰ и от -13,7 до -11,1 ‰ соответственно, что указывает на метеогенный или инфильтрационный генезис (точки полностью ложатся на локальную линию метеорных вод). Только менее 10 % исследованных проб попадают на линию смешения с более утяжеленными (особенно по кислороду) озерными водами, в образовании которых активное участие принимают процессы испарительного концентрирования.
- Высотная зональность проявилась в утяжелении значений δD и δ<sup>18</sup>O при продвижении подземных вод от областей питания в сторону разгрузки – Торейских озер. В этом же направлении увеличивается соленость и щелочность вод. Латеральная зональность в силу небольшой площади территории не проявилась.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Use of multiple age tracers to estimate groundwater residence times and long-term recharge rates in arid southern Oman / T. Müller et al. // Appl. Geochemistry. – 2016. – V. 74. – P. 67–83.
- Understanding the salinisation process for groundwater in an area of south-eastern Australia, using hydrochemical and isotopic

- Изотопный состав водорастворенной серы δ<sup>34</sup>S подземных вод достаточно однородный (от 5,8 до 8,8 ‰) и легкий и указывает лишь на отсутствие сульфатредукции, характерной для озерных вод.
- 4. Величина δ<sup>13</sup>С гидрокарбонат-иона подземных вод оказалась более чувствительна к выявлению смешения с поверхностными озерными водами. Значения варьируют в интервале от –13,8 до –8,5 ‰ и явно указывают на участие в формировании HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> двух источников углекислоты: легкой биогенной и утяжеленной атмосферной (других источников по геолого-гидрогеологическим условиям не должно быть). По имеющимся изотопным данным атмосферных, речных и озерных вод территории все указывает на участие в формировании HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> последних.
- 5. Диапазон изменения концентрации <sup>18</sup>О в гидрокарбонат-ионе – от 17,8 до 24,3 ‰, что тяжелее водного на 20–30 ‰. При формировании HCO<sub>3</sub>иона происходит фракционирование кислорода с переходом тяжелого изотопа в карбонатные ионы, а затем и во вторичные карбонаты. В целом величина δ<sup>18</sup>O(HCO<sub>3</sub>) всех природных вод территории наследует изотопный состав воды, что еще раз говорит об инфильтрационном генезисе и отсутствии влияния глубинных вод или карбонатных пород на формирование состава вод.
- 6. Несмотря на достаточно разнообразный химический состав подземных вод, по изотопному составу они оказались практически идентичными. При этом каких-либо зависимостей от солености, химического состава, рН в пределах подземных вод не было четко выявлено (возможно, выборка недостаточно представительная). Однако при совместном рассмотрении с озерными водами видна общая эволюция состава природных вод региона: при движении вод от областей питания в сторону озер утяжеляются значения δ<sup>18</sup>O, δD, δ<sup>13</sup>C, параллельно с ростом солености и pH.
- При рассмотрении генезиса и условий формирования подземных вод аридного климата нельзя опираться только на изотопные данные, необходима комплексная изотопно-гидрогеохимическая оценка, которая предоставит наиболее достоверные результаты.

Авторы выражают благодарность и.о. заведующего лабораторией геоэкологии и гидрогеохимии ИПРЭК СО РАН д.г.-м.н. Светлане Владимировне Борзенко за помощь в организации полевых исследований и научные консультации.

Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ в рамках научного проекта № 20-35-90040 и проекта фундаментальных научных исследования Российской академии наук № 0331-2019-0026.

evidence / D.A. Bennetts et al. // J. Hydrol. – 2006. – V. 323. –  $N\!\!_{2}$  1–4. – P. 178–192.

 Identifying sources of groundwater in the lower Colorado River valley, USA, with δ180, δD, and 3H: implications for river water accounting / B.E. Guay et al. // Hydrogeol. J. – 2006. – V. 14. – № 1–2. – P. 146–158.

- Geochemical and isotopic evolution of groundwater in the Wadi Watir watershed, Sinai Peninsula, Egypt / M.A. Eissa et al. // Environ. Earth Sci. - 2014. - V. 71. - № 4. - P. 1855-1869.
- 5. Abdeldjebar T., Mohammed H., Messouad H. Origin and age of the surface water and groundwater of the Ouargla basin-Algeria // Energy Procedia. - 2019. - V. 157. - № 2018. - P. 111-116.
- Environmental isotopic study on the recharge and residence time of 6. groundwater in the Heihe River Basin, northwestern China / Z. Chen et al. // Hydrogeol. J. - 2006. - V. 14. - № 8. - P. 1635-1651.
- 7. A hydrogeochemistry and multi-isotope (Sr, O, H, and C) study of groundwater salinity origin and hydrogeochemcial processes in the shallow confined aquifer of northern Yangtze River downstream coastal plain, China / Q. Zhao et al. // Appl. Geochemistry. -2017. - V. 86. - P. 49-58.
- 8. Identifying the seasonal variability in source of groundwater salinization using deuterium excess- a case study from Mewat, Haryana, India / G. Krishan et al. // J. Hydrol. Reg. Stud. - 2020. -V. 31. - P. 1-15.
- Genesis of salinized groundwater in Quaternary aquifer system of 9. coastal plain, Laizhou Bay, China: geochemical evidences, especially from bromine stable isotope / Y. Du et al. // Appl. Geochemistry. - 2015. - V. 59. - P. 155-165.
- 10. Geochemical and isotope evidence for groundwater mineralization in a semi-arid river basin, Sri Lanka / S. Senarathne et al. // Appl. Geochemistry. - 2021. - V. 124. - P. 1-10.
- 11. Zhu B.Q., Ren X.Z., Rioual P. Geological control on the origin of fresh groundwater in the Otindag Desert, China // Appl. Geochemistry. - 2019. - V. 103. - P. 131-142.
- 12. Delineation of groundwater flow and estimation of lake water flushing time using radium isotopes and geochemistry in an arid desert: the case of Badain Jaran Desert in western inner Mongolia (CHN) / Y. Lixin et al. // Appl. Geochemistry. - 2020. - V. 122. -P. 1–9.
- 13. Aggarwal P.K., Gat J.R., Froehlich K.F.O. Isotopes in the water cycle: past, present and future of a developing science. - Springer Science & Business Media, 2006. - 382 p.
- 14. Hydrochemical and isotopic assessment for characterizing groundwater quality and recharge processes under a semi arid area: Case of the Haouz plain aquifer (Central Morocco) / S. Kamal et al. // J. African Earth Sci. - 2021. - V. 174. - P. 1-17.
- 15. Origin of the Crescent Moon Spring in the Gobi Desert of northwestern China, based on understanding groundwater recharge / C. Su et al. // J. Hydrol. – 2020. – V. 580. – P. 1–13.
- 16. Groundwater recharge and salinization in the arid coastal plain aquifer of the Wadi Watir delta, Sinai, Egypt / M.A. Eissa et al. // Appl. Geochemistry. - 2016. - V. 71. - P. 48-62.
- 17. Herczeg A.L., Dogramaci S.S., Leaney F.W.J. Origin of dissolved salts in a large, semi-arid groundwater system: Murray Basin, Australia // Mar. Freshw. Res. - 2001. - V. 52. - P. 41-52.
- 18. Multi-tracer approach for assessing complex aquifer systems under arid climate: case study of the River Tata catchment in the Moroccan Anti-Atlas Mountains / L. Heiß et al. // Appl. Geochemistry. - 2020. - V. 120. - P. 1-17.
- 19. Borzenko S., Drebot V., Fedorov I. Chemical composition and formation conditions of NaHCO<inf>3</inf> type of waters in the eastern Transbaikalia // E3S Web of Conferences. - 2019. - V. 98. - 01005.
- 20. Borzenko S.V., Drebot V.V., Fedorov I.A. Main formation conditions of soda-type groundwater: a case study from southeastern Transbaikal region (Russia) // Appl. Geochemistry. -2020. - V. 123. - P. 1-16.
- 21. Дребот В.В., Лепокурова О.Е. Оценка подвижности химических элементов в системе базальты - природные воды - вто-

ричные отложения территории Торейских озер (Восточное Забайкалье) // Геологическая эволюция взаимодействия воды с горными породами: материалы IV Всероссийской научной конференции с международным участием. – Улан-Удэ, 17-20 Августа 2020. – Улан-Удэ: БНЦ СО РАН, 2020. – Р. 335–338.

- Борзенко С.В. Основные условия формирования химического 22. состава вод соленых и солоноватых озер восточного Забайкалья // Геохимия. - 2020. - V. 65. - № 12. - Р. 1212-1230.
- 23. Borzenko S.V., Shvartsev S.L. Chemical composition of salt lakes in East Transbaikalia (Russia) // Appl. Geochemistry. - 2019. -V. 103. - P. 72-84.
- 24. Борзенко С.В. Изотопный состав вод солёных озёр восточного Забайкалья // Доклады Академии наук. – 2019. – V. 488. – № 2. – P. 176–180.
- 25. Синица С.М. Торейская и Восточно-Торейская впадины (стратиграфия, палеонтология, палеореконструкции) // Ученые записки Забайкальского государственного университета. – 2015. – V. 1. – № 60. – Р. 129–138.
- 26. Биосферный заповедник «Даурский» / О.К. Кирилюк и др. / под ред. О.К. Крилюк. - Чита: Экспресс-издательство, 2009. -104 p.
- 27. Замана Л.В., Борзенко С.В. Гидрохимический режим соленых озер юго-восточного Забайкалья // География и природные ресурсы. – 2010. – № 4. – Р. 100–107.
- 28. Баженова О.И. Современная динамика озерно-флювиальных систем Онон-Торейской высокой равнины (Южное Забайкалье) // Вестник Томского государственного университета. -2013. – V. 371. – Р. 171–177. 29. Ферронский В., Поляков В.А. Изотопия гидросферы Земли. –
- М.: Научный Мир, 2009. 632 р.
- 30. Clark I. Groundwater geochemistry and isotopes // Groundwater Geochemistry and Isotopes. - Boca Raton: CRC Press, Taylor & Francis Group, 2015. - 456 p.
- Юдович Я.Э., Кетрис М.П. Соотношения изотопов углерода в стратисфере и биосфере: четыре сценария // Биосфера. 2010. - V. 2. - № 2. - P. 231-246.
- 32. Галимов Э.М. Геохимия стабильных изотопов углерода. М.: Недра, 1968. - 226 р.
- 33. Гуцало Л.К. Формирование подземных вод и газов земной коры по изотопным данным: автореф. дис. ... д-ра. наук. - СПб., 1997. – 98 p.
- 34. Sulfur cycling in a stratified euxinic lake with moderately high sulfate: Constraints from quadruple S isotopes / A.L. Zerkle et al. // Geochim. Cosmochim. Acta. - 2010. - V. 74. - № 17. - P. 4953-4970.
- 35. Insight into the mechanisms of denitrification and sulfate reduction coexistence in cascade reservoirs of the Jialing River: Evidence from a multi-isotope approach / G. Cui et al. // Sci. Total Environ. - 2020. - V. 749. - P. 141682.
- 36. A multiple isotope (H, O, N, C and S) approach to elucidate the hydrochemical evolution of shallow groundwater in a rapidly urbanized area of the Pearl River Delta, China / X. Li et al. // Sci. Total Environ. - 2020. - V. 724. - P. 137930.
- 37. Борзенко С.В., Замана Л.В. Восстановленные формы серы в рапе содового озера Доронинское (восточное Забайкалье) // Геохимия. – 2011. – № 3. – Р. 268–276.
- 38. Borzenko S.V., Zippa E.V. Isotopic composition and origin of sulfide and sulfate species of sulfur in thermal waters of Jiangxi Province (China) // Aquat. Geochemistry. - 2019. - V. 25. -№ 1-2. – P. 49-62.

Поступила 15.07.2021 г.

#### Информация об авторах

Лепокурова О.Е., доктор геолого-минералогических наук, директор и ведущий научный сотрудник Томского филиала Института нефтегазовой геологии и геофизики им. А.А. Трофимука СО РАН; профессор отделения геологии Инженерной школы природных ресурсов Национального исследовательского Томского политехнического университета.

Дребот В.В., младший научный сотрудник Томского филиала Института нефтегазовой геологии и геофизики им. А.А. Трофимука СО РАН; аспирант, инженер-исследователь отделения геологии Инженерной школы природных ресурсов Национального исследовательского Томского политехнического университета.

UDC 556.314

## ISOTOPIC COMPOSITION ( $\delta^{18}$ O, $\delta$ D, $\delta^{13}$ C, $\delta^{34}$ S) OF GROUNDWATERS IN THE AREA OF TOREY LAKES (EASTERN TRANSBAIKAL REGION)

#### Olesya E. Lepokurova<sup>1,2</sup>,

LepokurovaOY@ipgg.sbras.ru

#### Valeriia V. Drebot<sup>1,2</sup>,

#### DrebotVV@ipgg.sbras.ru

- <sup>1</sup> Tomsk Branch of Trofimuk Institute of Petroleum-Gas Geology and Geophysics of SB RAS, 4, Academichesky avenue, Tomsk, 634055, Russia.
- <sup>2</sup> National Research Tomsk Polytechnic University, 30, Lenin avenue, Tomsk, 634050, Russia.

**The relevance** of the work is associated with the problem of fresh water resources shortage in arid regions, the solution of which is impossible without understanding the conditions and mechanisms of water's chemical composition formation in the natural environment.

**The aim** of the research is to supplement information on the origin and conditions of groundwater's formation using the basis of new data on water's stable isotopes ( $\delta^{18}O$ ,  $\delta D$ ) and dissolved carbon and sulfur ( $\delta^{13}C$ ,  $\delta^{34}S$ ).

Study objects are groundwaters of the upper dynamic zone of the Torey Lakes (eastern Transbaikal region) – springs, boreholes and wells depth (no more than 70 m), partly rivers' and lake's waters.

**Methods.** Isotopic studies of water and dissolved C and S were carried out using an isotope mass spectrometer Finnigan-MAT 252 (Germany) at the FEGI FEB RAS Analytical Centre; water's chemical composition – using modern standard methods: potentiometric titration, atomic absorption, flame emission, potentiometric method, titration method at the INREC SB RAS.

**Results.** New data on the isotopic composition (H and O) of groundwater in the upper dynamic zone of the Torey Lakes area, as well as dissolved C and S are presented. Altitudinal zonality is noted in isotope's distribution The conclusions related to the origin and formation conditions were presented based on the results obtained, as well as the data on partially lake's and meteoric waters: water of infiltration with little influence of evaporation processes (mixing with lake waters). A fairly uniform isotopic composition of groundwater was noted, despite the differences in chemical composition. No relationships were found between isotopic composition and salinity, basic ions and pH within groundwater, however, the general evolution of the composition in the direction of «atmospheric–groundwaters–lake waters» is characterized, in addition to the increase in salinity and pH, by enrichment in isotopes <sup>18</sup>O, <sup>2</sup>H, <sup>13</sup>C.

#### Key words:

Upper dynamic zone groundwater, isotopic composition, Torey lakes, eastern Transbaikal region, origin.

The authors appreciate Svetlana V. Borzenko, Dr. Sc., acting for the head of the laboratory of geoecology and hydrogeochemistry at the IEREC SB RAS, for assistance in field works and scientific advice.

The research was financially supported by the RFBR within the scientific project no. 20-35-90040 and the project of fundamental scientific researches of the Russian Academy of Sciences no. 0331-2019-0026.

#### REFERENCES

- Müller Th., Osenbrück K., Strauch G., Pavetich S., Al-Mashaikhi K.S., Herb C., Merchel S., Rugel G., Aeschbach W., Sanford W. Use of multiple age tracers to estimate groundwater residence times and long-term recharge rates in arid southern Oman. *Applied Geochemistry*, 2016, vol.74, pp. 67–83.
- Bennetts D.A., Webb J. A., Stone D.J.M., Hill D.M. Understanding the salinisation process for groundwater in an area of southeastern Australia, using hydrochemical and isotopic evidence. *Journal of Hydrology*, 2006, vol. 323, no. 1–4, pp. 178–192.
- Guay B.E., Eastoe C.J., Bassett R., Long A. Identifying sources of groundwater in the lower Colorado River valley, USA, with δ18O, δD, and 3H: implications for river water accounting. *Hydrogeology Journal*, 2006, vol. 14, no. 1–2, pp. 146–158.
- Eissa M.A., Thomas J.M., Hershey R.L., Dawoud M.I., Pohll G., Dahab K.A., Gomaa M.A., Shabana A.R. Geochemical and isotopic evolution of groundwater in the Wadi Watir watershed, Sinai Peninsula, Egypt. *Environmental Earth Sciences*, 2014, vol. 71. no. 4, pp. 1855–1869.
- Abdeldjebar T., Mohammed H., Messouad H. Origin and age of the surface water and groundwater of the Ouargla basin-Algeria. *Energy Procedia*, 2019, vol. 157, no. 2018, pp. 111–116.
- Chen Z., Nie Zh, Zhang G., Wan Li., Shen J. Environmental isotopic study on the recharge and residence time of groundwater in the Heihe River Basin, northwestern China. *Hydrogeology Journal*, 2006, vol. 14, no. 8, pp. 1635–1651.

- Zhao Qi, Su X., Kang Bo, Zhang Yan, Wu X., Liu M. A hydrogeochemistry and multi-isotope (Sr, O, H, and C) study of groundwater salinity origin and hydrogeochemcial processes in the shallow confined aquifer of northern Yangtze River downstream coastal plain, China. *Applied Geochemistry*, 2017, vol. 86, pp. 49–58.
- Krishan G., Prasad G., Anjali Kumar C.P., Patidar N., Yadav B.K., Kansal M.L., Singh S., Sharma L.M., Bradley A., Verma S.K. Identifying the seasonal variability in source of groundwater salinization using deuterium excess- a case study from Mewat, Haryana, India. *Journal of Hydrology: Regional Studies*, 2020, vol. 31, pp. 1–15.
- Du Ya., Ma T., Chen L., Shan H., Xiao C., Lu Yu, Liu C., Cai H. Genesis of salinized groundwater in Quaternary aquifer system of coastal plain, Laizhou Bay, China: geochemical evidences, especially from bromine stable isotope. *Applied Geochemistry*, 2015, vol. 59, pp. 155–165.
- Senarathne S., Jayawardana J.M.C.K., Edirisinghe E.A.N.V., Chandrajith R. Geochemical and isotope evidence for groundwater mineralization in a semi-arid river basin, Sri Lanka. *Applied Geochemistry*, 2021, vol. 124, pp. 1–10.
- Zhu B.Q., Ren X.Z., Rioual P. Geological control on the origin of fresh groundwater in the Otindag Desert, China. *Applied Geochemistry*, 2019, vol. 103, pp. 131–142.
- 12. Lixin Yi, Xinyan Lu, Zhenlong N., Hongpeng W., Ke Ch., Yongpeng Ya., Luxuan Li. Delineation of groundwater flow and estimation of lake water flushing time using radium isotopes and

geochemistry in an arid desert: the case of Badain Jaran Desert in western inner Mongolia (CHN). *Applied Geochemistry*, 2020, vol. 122, pp. 1–9.

- Aggarwal P.K., Gat J.R., Froehlich K.F.O. *Isotopes in the water cycle: past, present and future of a developing science*. Springer Science & Business Media, 2006. 382 p.
- Kamal S., Sefiani S., Laftouhi N.E., Mandour A. El, Moustadraf J., Elgettafi M., Himi M., Casas A. Hydrochemical and isotopic assessment for characterizing groundwater quality and recharge processes under a semi arid area: case of the Haouz plain aquifer (Central Morocco). *Journal of African Earth Sciences*, 2021, vol. 174, pp. 1–17.
- Su Ch., Wang Y., Ge Sh., Li Zh., Li J. Origin of the Crescent Moon Spring in the Gobi Desert of northwestern China, based on understanding groundwater recharge. *Journal of Hydrology*, 2020, vol. 580, pp. 1–13.
- Eissa M.A., Thomas J.M., Pohll G., Shouakar-Stash O., Hershey R.L., Dawoud M. Groundwater recharge and salinization in the arid coastal plain aquifer of the Wadi Watir delta, Sinai, Egypt. *Applied Geochemistry*, 2016, vol. 71, pp. 48–62.
- Herczeg A.L., Dogramaci S.S., Leaney F.W.J. Origin of dissolved salts in a large, semi-arid groundwater system: Murray Basin, Australia. *Marine and Freshwater Research*, 2001, vol. 52, pp. 41–52.
- Heiß L., Bouchaou L., Tadoumant S., Reichert B. Multi-tracer approach for assessing complex aquifer systems under arid climate: case study of the River Tata catchment in the Moroccan Anti-Atlas Mountains, *Applied Geochemistry*, 2020, vol. 120, pp. 1–17.
- Borzenko S., Drebot V., Fedorov I. Chemical composition and formation conditions of NaHCO3 type of waters in the eastern Transbaikalia. *E3S Web of Conferences*, 2019, vol. 98, pp. 1–5.
- Borzenko S.V., Drebot V.V., Fedorov I.A. Main formation conditions of soda-type groundwater: A case study from south-eastern Transbaikal region (Russia). *Applied Geochemistry*, 2020, vol. 123, pp. 1–16.
- 21. Drebot V., Lepokurova O. Otsenka podvizhnosti khimicheskikh elementov v sisteme bazalty vtorichnye otlozheniya territorii Toreyskikh ozer (Vostochnoe Zabaikale) [Assessment of the mobility of chemical elements in the basalt-natural waters-secondary deposits system in the Torey lakes area (Eastern Transbaikalia)]. Geologicheskaya evolyutsia vzaimodeystviya vody s gornymi pordami. Materialy IV Vserossiyskoy nauchnoy konferentsii s mezhdunarodnym uchastiem [Water-rock interaction: geological evolution. Proc. of the fourth all-Russian scientific conference with international participation]. Ulan-Ude, BSC SB RAS Publ., 2020. pp. 335–338.
- Borzenko S.V. Principal parameters controlling water composition in saline and brackish lakes in eastern Transbaikalia. *Geochemistry international*, 2020, vol. 58, no. 12, pp. 1356–1373.
- Borzenko S.V., Shvartsev S.L. Chemical composition of salt lakes in East Transbaikalia (Russia). *Applied Geochemistry*, 2019, vol. 103, pp. 72–84.
- Borzenko S.V. Isotopic composition of water of salt lakes in eastern Transbaikalia. *Doklady akademii nauk*, 2019, vol. 488, no. 2, pp. 176–180. In Rus.

- Sinitsa S.M. Toreyand East-Torey Basins (Stratigraphy, Paleontology, Paleoreconstruction). Scholarly Notes of Transbaikal State University, 2015, vol. 1, no. 60, pp. 129–138. In Rus.
- Kirilyuk O.K., Kirilyuk V.E., Goroshko O.A., Sarayeva L.I., Sinitsa S.M., Borodina T.I., Tkachenko E.E., Brinikh V.A. *Bi-osferny zapovednik «Daurski»* [State nature biosphere reserve «Daursky»]. Chita, Express-publishing house, 2009. 104 p.
- Zamana L.V., Borzenko S.V. Hydrochemical regime of saline lakes in the southeastern Transbaikalia. *Geography and Natural Resources*, 2010, vol. 31, no. 4, pp. 370–376.
- Bazhenova O.I. Current dynamics of fluvio-lacustrine systems of Onon-Torei high plain (southern Transbaikalia). *Tomsk State University Journal*, 2013, vol. 371, pp. 171–177. In Rus.
- Ferronsky V.I., Polyakov V.A. *Izotopiya gidrosfery Zemli* [Isotops of the Earth's hydrosphere]. Moscow, Nauchny Mir Publ., 2009. 632 p.
- Clark I. Groundwater geochemistry and isotopes. Boca Raton, CRC Press, Taylor & Francis Group Publ., 2015. 456 p.
- Yudovich Ya.E., Ketris M.P. Relationships of carbon isotopes in the sedimentary shell and the biosphere: four scenarios. *Biosfera*, 2010, vol. 2, no. 2, pp. 231–246. In Rus.
- Galimov E.M. Geokhimiya stabilnykh izotopov ugleroda [Geochemistry of stable isotopes of carbon]. Moscow, Nedra Publ., 1968. 226 p.
- 33. Gutsalo L.K. Formirovanie podzemnykh vod i gazov zemnoy kory po izotopnym dannym. Avtoreferat Dis. Kand. nauk [Formation of groundwater and gases of the earth's crust according to isotopic data. Cand. Diss. Abstract]. St-Petersburg, 1997. 98 p.
- Zerkle A.L., Kamyshny A., Kump L.R., Farquhar J., Oduro H., Arthur M.A. Sulfur cycling in a stratified euxinic lake with moderately high sulfate: Constraints from quadruple S isotopes. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2010, vol. 74, no. 17, pp. 4953–4970.
- Cui G., Li X., Yang M., Ding Sh., Li Q., Wang Y., Yang Zh., Ding Hu. Insight into the mechanisms of denitrification and sulfate reduction coexistence in cascade reservoirs of the Jialing River: Evidence from a multi-isotope approach. *Science of the Total Environment*, 2020, vol. 749, pp. 1–10.
- 36. Li X., Tang Ch., Cao Y., Li D. A multiple isotope (H, O, N, C and S) approach to elucidate the hydrochemical evolution of shallow groundwater in a rapidly urbanized area of the Pearl River Delta, China. *Science of the Total Environment*, 2020, vol. 724, pp. 1–13.
- Borzenko S.V., Zamana L.V. Reduced forms of sulfur in the brine of saline-soda lake Doroninskoe, eastern Transbaikal region. *Geochemistry International*, 2011, vol. 49, no. 3, pp. 253–261.
- Borzenko S.V., Zippa E.V. Isotopic composition and origin of sulfide and sulfate species of sulfur in thermal waters of Jiangxi Province (China). *Aquatic Geochemistry*, 2019, vol. 25, no. 1–2, pp. 49–62.

Received: 15 July 2021.

#### Information about the authors

*Olesya E. Lepokurova*, Dr. Sc., head of laboratory, Tomsk Branch of Trofimuk Institute of Petroleum Geology and Geophysics of SB RAS; professor, National Research Tomsk Polytechnic University.

*Valeriia V. Drebot*, junior research associate, Tomsk Branch of Trofimuk Institute of Petroleum Geology and Geophysics of SB RAS; postgraduate student, research engineer, National Research Tomsk Polytechnic University.

УДК 556.114.679

## О ВОЗДЕЙСТВИИ ОБЪЕКТОВ СЕВЕРО-ЗАПАДНОГО АТОМНО-ПРОМЫШЛЕННОГО КОМПЛЕКСА НА ЗАГРЯЗНЕНИЕ ПОДЗЕМНЫХ ВОД (ЛЕНИНГРАДСКАЯ ОБЛАСТЬ)

#### Ерзова Валентина Александровна<sup>1,2</sup>,

Erzova.spmu@yandex.ru

## Румынин Вячеслав Гениевич<sup>2,3</sup>,

rumynin@hgepro.ru

Судариков Сергей Михайлович<sup>1</sup>, Sudarikov SM@pers.spmi.ru

# Шварц Алексей Аркадьевич<sup>2,3</sup>, alarshv@hgepro.ru

# Владимиров Константин Владимирович<sup>2,3</sup>, vladimirov@hgepro.ru

- <sup>1</sup> Санкт-Петербургский горный университет, Россия, 199121, г. Санкт-Петербург, 21 Линия, 2.
- <sup>2</sup> Санкт-Петербургское отделение института геоэкологии им. Е.М. Сергеева РАН, Россия, 199004, г. Санкт-Петербург, Средний пр., 41.
- <sup>3</sup> Санкт-Петербургский государственный университет Института наук о Земле, Россия, 199004, г. Санкт-Петербург, Университетская наб., 7-9.

**Актуальность исследования.** В связи с развитием атомной энергетики, наращиванием мощностей, ростом объемов радиоактивных материалов в районах расположения атомно-промышленных объектов все большее значение приобретает организация системы мониторинга окружающей среды, в частности, подземных вод. Объекты атомной энергетики являются источниками поступления техногенных радионуклидов в подземные воды, приводящего к формированию ореолов загрязнения. Основное внимание в работе уделено территории, где сосредоточено сразу несколько объектов атомной энергетики, которые оказывают воздействие на природные объекты.

**Цель:** определить содержание техногенных радионуклидов в подземных водах на территории Северо-западного атомнопромышленного комплекса Ленинградской области. На основе полученных данных выявить основные источники радиоактивного загрязнения и область его распространения.

**Объекты и методы.** Объектами исследования являются подземные воды четвертичного и нижнекембрийского горизонтов, частично загрязненные техногенными радионуклидами. В основу работы положены данные многочисленных инженерных изысканий, проводившихся в разные годы на территориях размещения действующей и строящейся Ленинградской АЭС, пункта хранения радиоактивных отходов и других площадках. Использованы данные бурения, опытных гидрогеологических опробований и режимных наблюдений, в том числе радиологических.

**Результаты.** Выполнено районирование территории Северо-западного атомно-промышленного комплекса по степени воздействия источников загрязнения на радиационное состояние подземных вод, контролируемое присутствием в них нестабильных изотопов цезия (<sup>137</sup>Cs), стронция (<sup>90</sup>Sr) и трития (<sup>3</sup>H). Превышение естественного радиационного фона подземных вод установлено на нескольких участках размещения предприятий Северо-западного атомно-промышленного комплекса. Максимально повышенные значения активности радионуклидов вплоть до значений выше уровня вмешательства отмечаются вблизи пункта хранения радиоактивных отходов.

#### Ключевые слова:

Мониторинг подземных вод, радиоактивное загрязнение, Ленинградская АЭС, хранилище радиоактивных отходов, радиационный фон.

#### Введение

Развитие промышленности влечет за собой риски загрязнения окружающей среды, в том числе загрязнение атмосферы, почв, поверхностных и подземных вод. В промышленно развитых районах основными загрязняющими элементами могут являться тяжелые металлы, радиоактивные вещества и др. [1–3], накопление которых может привести к негативным последствиям состояния экосистемы [4–7]. С целью оценки и минимизации техногенного воздействия промышленных объектов создают системы мониторинга по наблюдению за состоянием природных систем [8–11]. Основными контролируемыми средами являются воздушная, наземная, водная [12–24].

Развитие атомной энергетики, ввод в эксплуатацию новых мощностей атомных электростанций, увеличение объёмов радиоактивных отходов приводят к изменению состояния окружающей среды [15–18]. Поэтому вблизи размещения объектов атомного профиля актуальна организация системы мониторинга за изменением состояния окружающей среды, в том числе подземных вод [19, 20]. Так, на всех предприятиях Государственной корпорации «Росатом» ведется объектный мониторинг состояния недр (ОМСН).

ОМСН позволяет получать достоверную информацию о воздействии ядерно- и радиационно-опасных объектов на состояние недр и сопредельные среды, необходимую для оценки радиоэкологической безопасности при эксплуатации и выводе из эксплуатации объектов, информационного обеспечения управляющих решений по реализации природоохранных мероприятий. Например, в случае аварийной ситуации, сопровождаемой попаданием радионуклидов в подземные воды, разрабатываются и внедряются следующие мероприятия: локализация радиоактивного загрязнения путем откачки загрязненных подземных вод, ограничения сброса радиоактивных вод, устранение проникновения атмосферных осадков, строительство или усовершенствование дренажной системы, строительство противофильтрационной завесы и др.

Несмотря на то, что подземные воды являются достаточно защищенным природным объектом, история обращения с радиоактивными материалами (Челябинск, ПО «Маяк» [21–23]) и последствия аварии на атомных электростанциях (Чернобыль, 1986 г. [24, 25]; Япония – Фукусима-1, 2011 г. [26, 27]) указывают, что процессы загрязнения окружающей среды могут принимать катастрофический характер и наблюдаться долгие годы [28–30].

На территориях размещения объектов атомной промышленности в рамках мониторинга подземных вод ведётся постоянный контроль за изменением их химического и радионуклидного состава [31, 32]. Это позволяет оперативно получать информацию для оценки радиационных рисков и при необходимости своевременно принимать меры для обеспечения безопасности населения [33–35].

В тех районах, где сосредоточено несколько объектов атомной энергетики, которые оказывают воздействие не только на окружающую среду, но и друг на друга, результаты мониторинга следует анализировать с особым вниманием. Показательным примером данного вида объектов являются объекты Госкорпорации «Росатом», сосредоточенные в г. Сосновый Бор (Ленинградская область).

Целью данной работы является оценка влияния объекта Северо-западного каждого атомнопромышленного комплекса (СЗАПК) на загрязнение окружающей среды, а именно подземных вод, определение основных источников загрязнения, выявление вероятных направлений распространения радиоактивного загрязнения на основе обобщения, интерпретации и анализа данных многолетнего мониторинга по содержанию радиоактивных веществ в подземных водах и гидрогеологических наблюдений в контрольно-наблюдательных скважинах площадки первой очереди Ленинградской АЭС (ЛАЭС-2) и прилегающих территорий.

Результаты настоящей работы могут быть использованы при проведении дальнейших гидрогеологических (гидродинамических и гидрохимических) наблюдений с отбором проб на определение содержания техногенных радионуклидов на исследуемых территориях, которые характеризуются двумя особенностями. Во-первых, наличием источников поступления радионуклидов в подземные воды; вовторых, нестабильной гидродинамической обстановкой, вызванной высокой техногенной нагрузкой (например, строительство второй очереди ЛАЭС-2).

#### Характеристика района исследования

На территории Ленинградской области основными объектами, являющимися источниками радиационного воздействия на подземную гидросферу, являются объекты СЗАПК. К ним относятся (рис. 1):

- Ленинградская АЭС с 4-мя реакторами типа РБМК-1000 (ЛАЭС);
- строящаяся Ленинградская АЭС с реакторами типа ВВЭР (ЛЭАС-2);
- научно-исследовательский технический институт им. А.П. Александрова с комплексом экспериментальных ядерных установок (НИТИ);
- комплекс по переработке отходов, включающий временное хранилище жидких РАО (ХЖО) ЛАЭС (КПО ЛАЭС);
- филиал «Северо-западный территориальный округ» ФГУП «РосРАО» с приповерхностными хранилищами твердых РАО (ФГУП «РосРАО»).

Геологическое строение рассматриваемой территории хорошо изучено в рамках работ, проводившихся для обоснования строительства пункта окончательной изоляции РАО (ПЗРО) в 2009–2016 гг. [36, 37]. В геологическом разрезе района выделяется кристаллический фундамент и перекрывающий его осадочный чехол мощностью до 200 м, где преобладают терригенные породы [38–41].

В гидрогеологическом отношении изучаемая территория приурочена к Ленинградскому артезианскому бассейну, который расположен на северозападном борту Московской синеклизы [42].

В осадочной толще выделяются четвертичный, нижнекембрийский водоносные горизонты и вендский водоносный комплекс. В данной статье особое внимание уделяется двум верхним водоносным горизонтам – четвертичному ( $Q_{IV}$ ) и нижнекембрийскому ( $C_1$ ), в связи с наибольшей опасностью их техногенного загрязнения (рис. 2).

Четвертичный водоносный горизонт  $(Q_{IV})$  широко развит на изучаемой территории. Водовмещающими породами являются надморенные пески различного генезиса, мощность которых не превышает 5 м. Горизонт подстилается слабопроницаемыми прослоями суглинков мощностью до 8 м, являющимися локальным водоупором. Исходя из геологического разреза, горизонт является незащищенным от поверхностного загрязнения.

Нижнекембрийский водоносный горизонт ( $C_1$ ) сложен песками и слабосцементированными песчаниками, которые разделены водоупорными глинистыми прослоями на отдельные зоны. На территории ЛАЭС-2 в разрезе встречаются три такие водоносные зоны, на территории филиала ФГУП «РосРАО» прослеживается только две зоны, а за территорией КПО ЛАЭС, по направлению к заливу, водоносный горизонт полностью выклинивается.



- **Рис. 1.** Схема расположения основных объектов СЗАПК, совмещенная с картами гидроизогипс подземных вод четвертичного горизонта на 2009 г. (А) и 2014 г. (Б): 1 контуры объектов СЗАПК; 2 контуры палеодолин; 3 гидроизогипсы и их отметки; 4 линия схематичного разреза (рис. 2)
- **Fig. 1.** Location of the main facilities of the North-West Nuclear Complex, combined with groundwater table maps of the Lomonosov aquifer in 2009 (A) and in 2014 (B): 1 the North-West Nuclear Complex facilities; 2 paleo-valleys contours; 3 water-table contours and their values; 4 schematical cross-section line (Fig. 2)



- **Рис. 2.** Схема залегания водоносных и водоупорных горизонтов в районе исследований: индексы на схеме четвертичный (Q<sub>IV</sub>) и нижнекембрийский ( $C_1$ ) горизонты; вендский водоносный комплекс (V); архейнижнепротерозойская водоносная зона экзогенной трещиноватости (AR-PR<sub>1</sub>). Нижнекембрийский ( $C_1$ ln) и верхневендский (котлинский) (V<sub>2</sub>(kt)) водоупорные горизонты
- **Fig. 2.** Scheme of aquifers and confining beds at study area: indexes are quaternary  $(Q_{IV})$  and Lower-Cambrian  $(C_1)$  horizons; Vendian aquifer (V); Archean-Lower Proterozoic aquifer zone of the exogenous fractured zone (AR-PR<sub>1</sub>). Lower-Cambrian  $(C_1 ln)$  and Upper Vendian (Kotlin)  $(V_2(kt))$  confining beds

Основным источником питания подземных вод четвертичных и нижнекембрийских отложений является инфильтрация. Нижнекембрийский горизонт также питается за счет перетекания из четвертичного. Область разгрузки нижнекембрийского горизонта находится в районе склона второй приморской террасы, где происходит перетекание в вышележащий горизонт четвертичных отложений, который, в свою очередь, разгружается в Копорскую губу Финского залива. Региональный поток обоих водоносных горизонтов направлен в сторону Финского залива с градиентом 0,005...0,015. В рассматриваемых водоносных горизонтах иногда отмечаются инверсии направления потока, вызванные локальными, в основном техногенными, факторами. Так, после 2009 г. в связи началом строительства первой очереди ЛАЭС-2 на её территории образовалась депрессионная воронка, что привело к локальным изменениям в направлении потока подземных вод (рис. 1, А). На рассматриваемой территории СЗАПК подземные воды описываемых водоносных горизонтов для водоснабжения не используются.

В геологическом разрезе исследуемой территории характерной особенностью является наличие палеодолин, заполненных песками, супесями, суглинками. В руслах древних долин (палеодолин) суммарная мощность четвертичных отложений достигает 30 м, тем самым они прорезают нижележащие нижнекембрийские отложения. Таким образом, палеодолины создают гидрогеологическое окно, за счет которого подземные воды четвертичного и нижнекембрийского водоносных горизонтов имеют хорошую гидравлическую связь. Палеодолины пересекают площадку строящейся ЛАЭС-2, и наблюдаются в северной и южной частях территории ФГУП «РосРАО» (рис. 1).

#### Материалы и методы исследования

Радиологическое состояние окружающей среды, и подземных вод в том числе, на территории предприятий СЗАПК контролируется службами радиационной безопасности, ведущими наблюдения, в том числе, и за элементами гидрогеологического режима. Основными показателями, измеряемыми службами радиационной безопасности предприятий, являются скрининговые (суммарная  $\alpha$ - и  $\beta$ -активности), объемная активность <sup>3</sup>H, <sup>90</sup>Sr, <sup>137</sup>Cs.

Радиационный контроль осуществляется по наблюдательным скважинам, входящим в систему мониторинга предприятий. В связи с проведением строительных работ режимная сеть постоянно модернизируется: часть скважин, вышедших из строя, ликвидируются, бурятся новые. В настоящей работе анализируются данные по 67 скважинам, пробуренным на четвертичный и нижнекембрийский водоносные горизонты (рис. 3).

Измерения скриниговых параметров (суммарная  $\alpha$ - и  $\beta$ -активности) проводились с помощь радиометра УФМ-2000 (НПЦ «ДОЗА», Зеленоград, Россия). Для этого пробы воды упаривали, сушили при 450 °C в течение 30 мин. Пределы обнаружения суммарной  $\alpha$ -и  $\beta$ -активностей составляют 0,02 и 0,1 Бк/л соответственно. Подготовка образца (упаривание жидкой пробы и получение сухого остатка) подразумевает, что измерение  $\alpha$ - и  $\beta$ -активностей исключает влияние трития (<sup>3</sup>H).

Для определения содержания <sup>3</sup>Н в пробах подземных вод использовался спектрометрический радиометр Tri-Carb® 2910TR (Waltham, CША). Предел обнаружения трития составляет 10 Бк/кг. Погрешность измерений составляет 3-25 %.

измерений составляет 3–25 %. Радиохимический анализ <sup>90</sup>Sr в подземных водах выполнялся с использованием радиометра УМФ-2000 (НПЦ «ДОЗА», Зеленоград, Россия) по методике, разработанной НИТИ им. А.П. Александрова (г. Сосновый Бор). Методика основана на измерении активности <sup>90</sup>Sr, находящегося в равновесии с <sup>90</sup>Y (предел обнаружения 10 Бк/м<sup>3</sup>). <sup>137</sup>Cs определялся с помощью γ-спектрометра DSPec jr (ORTEC<sup>®</sup>, США) (предел обнаружения 10 Бк/м<sup>3</sup>).



- Рис. 3. Схема радиологического опробования подземных вод (2009–2015 гг.): скважина и ее номер, оборудованная на 1 – четвертичный и 2 – нижнекембрийский водоносные горизонты
- Fig. 3. Groundwater radiochemical sampling scheme (2009–2015): borehole and number, screening 1 – Quaternary and 2 – Lower-Cambrian aquifers

Для того, чтобы оценить степень воздействия объектов СЗАПК по данным мониторинга, необходимо знать фоновые значения измеряемых показателей. Согласно [36] фоновое содержание <sup>90</sup>Sr и <sup>137</sup>Cs в подземных водах не превышает единиц и первых десятков мБк/л (<sup>90</sup>Sr<3 мБк/л, <sup>137</sup>Cs<4 мБк/л), трития – первых Бк/л (0,27–1,6 Бк/л).

На основании имеющихся материалов, включая материалы по оценке воздействия на окружающую среду, результаты полевых работ, лабораторных исследований, в данной работе решаются следующие задачи: 1) определение основных объектов воздействия на загрязнение подземных вод и их характеристика; 2) определение вклада каждого предприятия в загрязнение подземных вод радионуклидами (<sup>137</sup>Cs, <sup>90</sup>Sr, <sup>3</sup>H) на основании данных мониторинга); 3) выделение зон по степени загрязнения подземных вод техногенными радионуклидами на территории СЗАПК.

#### Результаты и обсуждения

В промышленной зоне г. Сосновый Бор Ленинградской области, как ранее отмечалось, предприятия СЗАПК являются локальными радиационными объектами. Ниже приводится характеристика каждого объекта и его вклад в радиационное состояние подземных вод.

Строящаяся Ленинградская АЭС с реакторами типа ВВЭР (ЛАЭС-2). Первый энергоблок был введен в эксплуатацию в конце 2018 г. В период с 2010 по 2015 гг. на площадке ЛАЭС-2 проводились исследования, которые позволили получить данные о величинах активности <sup>137</sup>Cs, <sup>90</sup>Sr, <sup>3</sup>H,  $\beta$ - и  $\alpha$ -активности (рис. 3). Радиологическое опробование подземных вод ЛАЭС-2 выполнялось в 18 скважинах, оборудованных на четвертичный и нижнекембрийский водоносные горизонты (табл. 1).

- Таблица 1. Статистические данные по содержанию техногенных радионуклидов в подземных водах района строящейся ЛАЭС-2 (период наблюдений 2010–2015 гг.)
- Table 1.
   Statistical data on the content of anthropogenic radionuclides in groundwater in the area of the constructing Leningrad NPP-2 (observation period 2010–2015)

| Радионуклид<br>Radionuclide | исло определений<br>Number<br>of measurements | Среднее<br>Average | Бк/л/Вα/<br>піМ/ниМ | Макс/Мах | соличество проб<br>с превышением<br>норматива, %<br>Оver normative<br>tandard value, % | Норматив, Бк/л<br>Normative<br>standard, Bq/l |
|-----------------------------|---|--------------------|---------------------|----------|--|---|
| TT                          | ιμ  |                    | 1                   |          | I S  |   |
| Чет                         | гвертичны                                     | и водс             | носныи              | горизон  | ht/Quaternary a  | quiter  |
| $\sum \alpha$               | 8   | 0,11               | 0,03                | 0,19     | 0  | 0,2   |
| Σβ                          | 8   | 0,21               | 0,1                 | 0,45     | 0  | 1,0   |
| <sup>137</sup> Cs           | 8   | 0,01               | 0,002               | 0,037    | 0  | 11  |
| <sup>90</sup> Sr            | 7   | 0,02               | 0,0036              | 0,11     | 0  | 4,9   |
| <sup>3</sup> H              | 21  | 8,7                | 1,02                | 56       | 0  | 7600  |
| Нижне                       | екембрийс                                     | кий во             | одоноснь            | ий гори  | зонт/Lomonoso  | v aquifer                                     |
| Σα                          | 28  | 0,11               | 0,02                | 0,28     | 3  | 0,2   |
| Σβ                          | 28  | 0,22               | 0,03                | 0,67     | 0  | 1,0   |
| <sup>137</sup> Cs           | 26  | 0,010              | 0,002               | 0,03     | 0  | 11  |
| <sup>90</sup> Sr            | 29  | 0,009              | 0,001               | 0,027    | 0  | 4,9   |
| <sup>3</sup> H              | 39  | 6,2                | 0,18                | 99,7     | 0  | 7600  |

Из представленных данных видно, что в целом концентрации техногенных изотопов в подземных водах не превышают допустимых уровней. Средние содержания <sup>137</sup>Cs и <sup>90</sup>Sr лежат в пределах фоновых значений. В 60 % опробованных скважинах содержание <sup>3</sup>H не превышает 3,5 Бк/л, и в 16 % – меньше

10 Бк/л. В некоторых скважинах отмечаются временно повышенные значения радионуклидов, которые при дальнейшем опробовании возвращаются на фоновый уровень.

Стоит отметить, что на момент отбора проб исследуемая площадка ЛАЭС-2 находилась на этапе строительства, и также то, что площадка располагается выше по потоку подземных вод относительно всех действующих предприятий по обращению с РАО (рис. 1, А). Таким образом, подземные воды территории строящейся ЛАЭС-2 в наименьшей степени подвержены техногенному воздействию.

Филиал «Северо-западный территориальный округ»  $\Phi \Gamma У \Pi$  «РосРАО» с приповерхностными хранилищами твердых РАО ( $\Phi \Gamma У \Pi$  «РосРАО»). Здесь с конца 1980-х гг. из зданий-хранилищ регистрировались утечки РАО [43]. В начале 1990-х гг. в ближайших к хранилищам скважинам максимальная активность трития (<sup>3</sup>H) достигала п·10<sup>4</sup> кБк/л, <sup>90</sup>Sr и <sup>137</sup>Cs – п кБк/л. После реконструкции хранилищ, с целью устранения контакта подземных вод с РАО, произошли изменения радиационного состава подземных вод, концентрации техногенных радионуклидов начали снижаться.

В 2017 г. сотрудниками СПбО ИГЭ РАН на территории СЗТО ФГУП «РосРАО» проведен комплекс исследований для оценки степени изолированности существующих хранилищ и прогнозирования полей загрязнения вод радионуклидами [44]. В ходе работ было проведено опробование 26 скважин, оборудованных на четвертичный и нижнекембрийский водоносный горизонты. В результате были получены следующие значения удельной активности основных загрязняющих компонентов (Бк/л):  $\alpha$ -активность – 0,9,  $\beta$ -активность – 5,3, <sup>3</sup>H – 6,7·10<sup>4</sup>, <sup>137</sup>Cs – 0,5, <sup>60</sup>Co – 0,013 (рис. 4).



**Рис.** 4. Динамика среднегодовой активности <sup>3</sup>H(A) и суммарной  $\beta$ -активности (Б) в скважинах (1982–2017 гг.) **Fig. 4.** Average annual activity of <sup>3</sup>H(A) and total  $\beta$ -activity (B) in wells (1982–2017)

В ходе данного исследования было определено, что основной очаг радиоактивного загрязнения подземных вод локализуется в той части территории («грязной» зоне) ФГУП «РосРАО», где непосредственно ведутся работы по обращению с РАО. Было установлено, что новые поступления радиоактивных веществ в подземные воды не регистрируется и сформировавшееся загрязнение имеет «исторический» характер [44]. На Ленинградской АЭС на конец 2020 г. действовало четыре реактора типа РБМК-1000. ЛАЭС осуществляет доставку, хранение ядерного топлива и деятельность по обращению с радиоактивными отходами.

На территории промплощадки ЛАЭС за весь период наблюдений службой радиационного контроля станции не было выявлено радиоактивного загрязнения подземных вод – измеренные концентрации радионуклидов не превышали уровня вмешательства (УВ<sub>вода</sub>) по НРБ-99/2009, суммарная  $\beta$ -активность грунтовых вод, как правило, не превышала 1 Бк/л. Данные мониторинга содержания <sup>3</sup>Н отсутствуют.

В подземных водах рассматриваемой площадки регистрируются значения радиационных показателей, превышающие в несколько раз фоновые. Так, в 1991 г. отмечалось превышение активностей изотопов <sup>137</sup>Cs (до 6 раз) и <sup>90</sup>Sr (до 45 раз) над фоновыми значениями [41]. Локальное повышение активности трития наблюдалось в районе площадки первой очереди (170–180 Бк/л). В начале 2000-х гг. в грунтовых водах присутствовали <sup>137</sup>Cs и <sup>90</sup>Sr, причем концентрации последнего превышали природный фон в 2–5 раз. В 2009 г. на площадке ЛАЭС было проведено опробование 9 скважин (рис. 3).

По данным опробования в 2009 г. содержание радиостронция в подземных водах повсеместно ниже УВ<sub>вода</sub> по НРБ 99/2009. В большинстве скважин оно близко к фоновым значениям и не превышает сотых долей Бк/л. Максимальное значение – 0,13 Бк/л, отмечено в одной скважине (табл. 2). Содержания <sup>137</sup>Сs также не превышают УВ<sub>вода</sub> по НРБ 99/2009 и близки к фоновым значениям. Данные мониторинга <sup>3</sup>Н отсутствуют.

- Таблица 2. Статистические данные по содержанию техногенных радионуклидов в подземных водах площадки ЛАЭС (2009 г.)
- Table 2.
   Statistical data on the content of anthropogenic radionuclides in groundwater in the area of the Leningrad NPP (observation period 2009)

| адионуклид<br>Radionuclide | ло определений<br>Number<br>measurements | Среднее<br>Average | Мин/Min | Макс/Мах | личество проб<br>превышением<br>юрматива, %<br>ver normative<br>ndard value, % | орматив, Бк/л<br>Normative<br>standard, Bq/l |
|----------------------------|--|--------------------|---------|----------|--|--|
|                            | Чис<br>of                                | Б                  | к/л/Bq/ | 1        | Kc<br>C<br>Sta   | H "  |
| <sup>137</sup> Cs          | 3  | 0,13               | 0,13    | 0,14     | 0  | 11   |
| <sup>90</sup> Sr           | 9  | 0,05               | 0,01    | 0,13     | 0  | 4,9  |

Научно-исследовательский технологический институт имени А.П. Александрова (НИТИ) включает комплекс экспериментальных ядерных установок и крупномасштабные стенды для исследования их поведения в критических ситуациях; здесь же осуществляют переработку жидких РАО НИТИ.

Радионуклидный состав вод представлен здесь <sup>90</sup>Sr в диапазоне объемных активностей от 10 до 30 мБк/л (табл. 3). Содержание <sup>137</sup>Cs – во всех скважинах ниже минимально детектируемой активности (1,2·10<sup>-2</sup> Бк/л). Суммарная бета-активность грунтовых вод выше суммы активности обнаруженных радионуклидов. Как показывают выполняемые исследования, подземная гидросфера на территории НИТИ не загрязнена, в частности, влияние хранилищ ФГУП «РосРАО» на радиоактивность грунтовых вод не прослеживается.

Возможными источниками радиационной опасности на территории исследования является комплекс по переработке отходов (КПО), включающий действующее временное хранилище жидких РАО (ХЖО) ЛАЭС. В 2009 г. на площадке КПО ЛАЭС было проведено опробование 8 скважин (рис. 2).

- Таблица 3. Статистические данные по содержанию техногенных радионуклидов в подземных водах площадки НИТИ (2009–2010 гг.)
- Table 3.Statistical data on the content of anthropogenic<br/>radionuclides in groundwater in the area of the<br/>Alexandrov Research Institute (observation<br/>period 2009–2010)

| Радионуклид<br>Radionuclide | Число определений<br>Number<br>of measurements | Среднее<br>Average | ііМ/ниМ<br>Бк/л/Во | ————————————————————————————————————— | Количество проб<br>с превышением<br>норматива, %<br>Over normative<br>standard value, % | Норматив, Бк/л<br>Normative<br>standard, Bq/I |
|-----------------------------|--|--------------------|--------------------|---------------------------------------|---|---|
| <sup>137</sup> Cs           | 7  | 0,024              | 0,023              | 0,027                                 | 0   | 11  |
| <sup>90</sup> Sr            | 8  | 0,017              | 0,014              | 0,022                                 | 0   | 4,9   |
| <sup>3</sup> H              | 8  | <5                 | <5                 | <5                                    | 0   | 7600  |

Радиационный фон подземных вод КПО ЛАЭС повышен. В период мониторинга в подземных водах неоднократно фиксировались повышенные значения суммарной удельной  $\beta$ -активность, <sup>3</sup>H, <sup>90</sup>Sr, <sup>137</sup>Cs и <sup>134</sup>Cs. Максимальных величин (превышающих для <sup>3</sup>H и  $\beta$ -активности УВ по НРБ 99/09), как и на территории ФГУП «РосРАО», эти показатели достигли в 1991 г., что позволяет предположить единый источник загрязнения. Опробование ряда скважин КПО ЛАЭС в 2009 г. показало повышенное содержание <sup>3</sup>H в нескольких наблюдательных скважинах, расположенных вдоль границы с ФГУП «РосРАО». Содержание радиоцезия и радиостронция в большинстве опробованных скважин в 2009 г. было также несколько выше фоновых значений (табл. 4).

- Таблица 4. Статистические данные по содержанию техногенных радионуклидов в подземных водах площадки КПО ЛАЭС (2009 г.)
- Table 4.Statistical data on the content of anthropogenic<br/>radionuclides in groundwater in the area of the<br/>Leningrad NPP (observation period 2009)

| Радионуклид<br>Radionuclide | Число определений<br>Number<br>of measurements | Среднее<br>Average | іЮ/ниМ<br>Бк∕л/Вq/І | Макс/Мах     | Количество проб<br>с превышением<br>норматива, %<br>Over погтаtive<br>standard value, % | Норматив, Бк/л<br>Normative<br>standard, Bq/I |
|-----------------------------|--|--------------------|---------------------|--------------|---|---|
| <sup>137</sup> Cs           | 2  | 1,15               | 0,1                 | 2,2          | 0   | 11  |
| <sup>90</sup> Sr            | 8  | 0,13               | 0,01                | 0,67         | 0   | 4,9   |
| <sup>3</sup> H              | 3  | $1,6.10^{5}$       | $2,5 \cdot 10^3$    | $4,7.10^{5}$ | 66  | 7600  |

При направлении потока подземных вод в сторону Копорской губы и локализации наиболее интенсивного загрязнения подземных вод на ФГУП «РосРАО» вдоль его западной границы весьма вероятен перенос радионуклидного загрязнения в этом направлении на соседнюю территорию КПО ЛАЭС.

На территории *между площадками КПО ЛАЭС и ЛАЭС* – в зоне предполагаемого транзита загрязнения от ФГУП «РосРАО» – в начале 1990-х гг. по данным НПО «Радиевый институт» было установлено загрязнение подземных вод тритием (до тысяч Бк/л), повышенные концентрации <sup>90</sup>Sr (до 67 Бк/л) и <sup>137</sup>Cs (до

20 Бк/л). Опробование 2013 г. подтвердило наличие тритиевого загрязнения, не достигающего УВ по НРБ 09/99, но достаточно высокого (на три порядка выше природного фона). Наибольшие значения в 2013 г. – 475,8 и 406,2 Бк/л – отмечены в скважинах на четвертичный горизонт, расположенных рядом с территорией ЛАЭС (рис. 3). На порядок по отношению к фону повышена активность трития в скважинах 20 и 34. Объемная активность <sup>90</sup>Sг на этом участке незначительно повышена в ряде скважин, содержание <sup>137</sup>Cs – в пределах фоновых содержаний. Объемная активность <sup>90</sup>Sг на этом участке незна-

Объемная активность <sup>90</sup>Sr на этом участке незначительно повышена в ряде скважин, содержание <sup>137</sup>Cs – в пределах фоновых содержаний (табл. 5).

На основании данных радиационного мониторинга исследуемой территории построены карты распределения техногенных радионуклидов в подземных водах за период наблюдений 2009–2017 гг. (рис. 5). Таблица 5. Статистические данные по содержанию техногенных радионуклидов в подземных водах территории между площадками КПО и ЛАЭС (2009–2015 гг.)



| Радионуклид<br>Radionuclide | исло определений<br>Number<br>of measurements | Среднее<br>Average | Мин/Міп | Макс/Мах | Количество проб<br>с превышением<br>норматива, %<br>Over normative<br>standard value, % | Норматив, Бк/л<br>Normative<br>standard, Bq/l |
|-----------------------------|---|--------------------|---------|----------|---|---|
|                             | h   | 1                  | эк/л/Во | /l       |   |   |
| $\sum \alpha$               | 19  | 0,18               | 0,03    | 0,58     | 26  | 0,2   |
| Σβ                          | 19  | 0,26               | 0,1     | 0,46     | 10  | 1,0   |
| <sup>137</sup> Cs           | 29  | 0,17               | 0,002   | 4,7      | 3   | 11  |
| <sup>90</sup> Sr            | 28  | 0,02               | 0,003   | 0,1      | 10  | 4,9   |
| <sup>3</sup> H              | 93  | 59                 | 0,02    | 1460     | 0   | 7600  |



Рис. 5. Распределение содержания A) <sup>137</sup>Cs; Б) <sup>3</sup>Н в подземных водах исследуемой территории по данным опробования 2009–2017 гг.: А) скважины с объемной активностью <sup>137</sup>Cs: 1 – близкой к фоновой; 2 – надфоновой; 3 – выше УВ по НРБ-99/2009; 4 – гидроизогипсы четвертичного водоносного горизонта на 2017 г.; Б) скважины с объемной активностью <sup>3</sup>Н: 1 – близкой к фоновой; 2 – надфоновой; 3 – высокой; 4 – выше УВ по НРБ-99/2009; 5 – гидроизогипсы четвертичного водоносного горизонта на 2017 г.

Fig. 5. Distribution of <sup>137</sup>Cs content (A); (B) of <sup>3</sup>H content in groundwater at the study area based on sampling in 2009–2017:
 A) wells with the volumetric activity of <sup>137</sup>Cs: 1 – close to the background; 2 – over background; 3 – above the action level according to NRB-99/2009; 4 – water-table contours of the Quaternary aquifer in 2017; B) wells volumetric activity of <sup>3</sup>H: 1 – close to the background; 2 – over background; 3 – above the action level according to NRB-99/2009; 5 – water-table contours of the Quaternary aquifer in 2017

Оценивая состояние подземных вод СЗАПК в целом, следует констатировать, что основным источником их загрязнения тритием (<sup>3</sup>H) и в меньшей степени радиостронцием (<sup>90</sup>Sr) и радиоцезием (<sup>137</sup>Cs) является деятельность ФГУП «РосРАО» (рис. 5). Причем основное загрязнение сосредоточено в «грязной» зоне предприятия, где непосредственно ведутся работы по обращению с РАО.

Площадки КПО ЛАЭС и в некоторой степени самой ЛАЭС также подвержены радионуклидному за-

грязнению. Здесь фиксируются единичные скважины с повышенными значениями. Это может быть связано с тем, что они расположены близко к ФГУП «РосРАО» и преобладающее направление миграционного потока – на северо-запад в сторону Финского залива.

Территория НИТИ и площадки ЛАЭС-2, находящиеся южнее вышеупомянутых предприятий, являются в настоящее время «чистыми». Площадка ЛАЭС-2 в гидрогеологическом плане располагается выше по потоку, и на её территории в рассматривае-
мый период времени не было действующих объектов атомной энергетики. Таким образом, территорию площадки ЛАЭС-2 можно рассматривать в качестве «фонового» участка для исследуемого района.



Рис. 6. Карты с зонами, выделенными по степени загрязнения подземных вод в районе СЗАПК: 1 – зона с высоким уровнем загрязнения; 2 – зона со средним уровнем загрязнения; 3 – зона с низким уровнем загрязнения; 4 – гидроизогипсы четвертичного водоносного горизонта на 2017 г.

Fig. 6. Maps delineating different zones of groundwater contamination near the North-West Nuclear Complex facilities: 1 – the area with significant contamination; 2 – the area with moderate contamination; 3 – the area with low contamination; 4 – Quaternary aquifer water-table contours in 2017

Исходя из вышеизложенного, на рассматриваемой территории можно выделить три зоны по степени загрязнения подземных вод радионуклидами (рис. 6):

1. Зона с низким уровнем загрязнения. К ней относится территории площадок ЛАЭС-2 и НИТИ, где

# СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Thinova L., Trojek T. Data analysis from monitoring of radionuclides in the nuclear power plant Temelin ecosystem area // Applied Radiation and Isotopes. – 2009. – V. 67 (7–8). – P. 1503–1508.
- 2. Артамонова С.Ю. Техногенные радионуклиды в природных водах районов мирных подземных ядерных взрывов «Кратон-3» и «Кратон-4» // Геоэкология. Инженерная геология, гидрогеология, геокриология. 2013. № 5. С. 417–428.
- Advanced atmospheric 14C monitoring around the Paks Nuclear Power Plant, Hungary / T. Varga, G. Orsovszki, I. Major, M. Veres, T. Bujtás, G. Végh, L. Manga, A.J.T. Jull, L. Palcsu, M. Molnár // Journal of Environmental Radioactivity. – 2020. – V. 213. – P. 1–11.
- Мониторинг загрязненности тяжелыми металлами почвенного покрова и растений (на примере potentilla tanacetifolia Willd. Ex schlecht.) природных экосистем в условиях урбанизированной территории г. Читы / Г.Ю. Самойленко, Е.А. Бондаре-

фиксируются концентрации радионуклидов, соответствующие фоновыми содержаниями.

- 2. Зона со средним уровнем загрязнения. Здесь не наблюдаются точечные источники, а перенос радионуклидов происходит из зоны с высоким уровнем загрязнения. Данная зона характеризуется повсеместным повышенным относительно фона содержанием <sup>3</sup>Н и в отдельных скважинах <sup>90</sup>Sr. Средний уровень загрязнения наблюдается на территории от КПО ЛАЭС в сторону Копорской губы, захватывая площадку ЛАЭС.
- Зона с высоким уровнем загрязнения. К ней относятся территории филиала ФГУП «РосРАО» и частично КПО ЛАЭС, где находятся основные источники поступления радионуклидов в подземные воды рассматриваемого района. Здесь отмечаются превышения УВ по ряду показателей, главным образом по содержанию <sup>3</sup>Н.

# Заключение

Проведена оценка воздействия объектов Северозападного атомно-промышленного комплекса на загрязнение подземных вод. Проведенные исследования показали, что радиоактивность подземных вод рассматриваемого района определяется содержанием техногенных радионуклидов (<sup>137</sup>Cs, <sup>90</sup>Sr, <sup>3</sup>H).

Относительно высокий уровень загрязнения вод регистрируется в «грязной» зоне ФГУП «РосРАО». На смежной территории (от КПО ЛАЭС в сторону Копорской губы, захватывая площадку ЛАЭС) отмечается средний уровень загрязнения. На площадках размещения ЛАЭС-2 и НИТИ содержание техногенных радионуклидов в подземных водах соответствует фоновым значениям.

В связи с нестабильной гидродинамической обстановкой на рассматриваемой территории, вызванной строительством новых очередей ЛАЭС-2, и наличием действующих источников поступления радионуклидов в подземные воды результаты настоящей работы могут быть применены при проведении гидрогеологических наблюдений, включая гидродинамические и гидрохимические, с отбором проб на определение содержания техногенных радионуклидов. Также представленные результаты могут быть учтены при модернизации и расширении действующей сети мониторинга на объектах СЗАПК.

вич, Н.Н. Коцюржинская, И.А. Борискин // Самарский научный вестник. – 2018. – Т. 7. – № 1 (22). – С. 110–115.

- Огородников Б.И. Техногенные радиоактивные аэрозоли продукты аварии Чернобыльской АЭС // Безопасность труда в промышленности. – 2011. – № 4. – С. 42–48.
- Tondel M., Granath G., Wålinder R. 137Cs activity in Sweden after the Chernobyl Nuclear Power Plant accident in relation to quaternary geology and land use // Applied Geochemistry. – 2017. – V. 87. – P. 38–43.
- Spatial variability in the distribution of trace metals in groundwater around the Rooppur nuclear power plant in Ishwardi, Bangladesh / Md. G. Uddin, Md. Moniruzzaman, M.A. Quader, Md. Abu // Groundwater for Sustainable Development. – 2018. – V. 7. – P. 220–231.
- Пашкевич М.А., Мовчан И.Б., Петрова Т.А. Мониторинг техногенного воздействия экологически опасных объектов ОАО «Газпром» // Записки Горного Института. – 2007. – Т. 172. – С. 201–204.

- Пашкевич М.А., Смирнов Ю.Д., Петрова Т.А. Система экологического мониторинга атмосферного воздуха горнопромышленной агломерации // Записки Горного Института. – 2013. – Т. 204. – С. 272–275.
- Пашкевич М.А., Петрова Т.А. Создание системы производственного экологического мониторинга на предприятиях по добыче и транспортировке углеводородов Западной Сибири // Записки Горного института. – 2016. – Т. 221. – С. 737–741.
- Pashkevich M.A., Petrova T.A. Development of an operational environmental monitoring system for hazardous industrial facilities of Gazprom Dobycha Urengoy // Journal of Physics: Conference Series. – 2019. – № 1384. – P. 1–7.
- Пашкевич М.А., Петрова Т.А. Оценка площадного загрязнения атмосферного воздуха в мегаполисе с использованием геоинформационных систем // Записки Горного института. – 2017. – Т. 228. – С. 738–742.
- Пашкевич М.А., Алексеенко А.В., Петрова Т.А. Оценка и контроль эколого-экономического риска в Новороссийской промышленной агломерации // Известия Тульского государственного университета. Науки о Земле. 2018. № 1. С. 23–35.
- 14. Трансграничный аспект оценки воздействия строящихся АЭС на водные экосистемы (на примере Балтийской АЭС) / Е.М. Каплан, А.А. Шварц, Е.В. Лунева, М.Е. Макушенко // Геоэкология. Инженерная геология, гидрогеология, геокриология. – 2015. – № 4. – С. 291–303.
- Analysis of the influence of nuclear facilities on environmental radiation by monitoring the highest nuclear power plant density region / UkJae Lee, Chanki Lee, Minji Kim, Hee Reyoung Kim // Nuclear Engineering and Technology. – 2019. – V. 51 (6). – P. 1626–1632.
- Hyung-Woo Seo, Jae Yong Oh, Weon Gyu Shin Proposal for the list of potential radionuclides of interest during NPP site characterization or final status surveys // Nuclear Engineering and Technology. – 2021. – V. 53 (1). – P. 234–243.
- Russell B.C., Croudace I.W., Warwick Ph.E. Determination of 135Cs and 137Cs in environmental samples: a review // Analytica Chimica Acta. – 2015. – V. 890. – P. 7–20.
- Testoni R., Levizzari R., De Salve M. Transport dynamic of strontium in groundwater: safety assessment study // Progress in Nuclear Energy. – 2020. – V. 119. – P. 1–7.
- Testoni R., Levizzari R., De Salve M. Radionuclide transport in shallow groundwater, progress in nuclear energy // Progress in Nuclear Energy. – 2015. – V. 85. – P. 277–290.
- Optimizing the spatial pattern of networks for monitoring radioactive releases / S.J. Melles, G.B.M. Heuvelink, C.J.W. Twenhöfel, A. van Dijk, P.H. Hiemstra, O. Baume, U. Stöhlker // Computers & Geosciences. – 2011. – V. 37 (3). – Р. 280–288.
   Глаголенко Ю.В., Дрожко Е.Г., Ровный С.И. Основные
- Глаголенко Ю.В., Дрожко Е.Г., Ровный С.И. Основные направления деятельности ФГУП «ПО «Маяк» по решению экологических проблем, связанных с прошлой и текущей деятельностью ФГУП «ПО «Маяк» // Вопросы радиационной безопасности. – 2006. – № 1 (41). – С. 23–24.
- Андреев С.С., Попова И.Я., Пряхин Е.А. Радиоактивное загрязнение некоторых водоёмов - хранилищ жидких радиоактивных отходов ПО «Маяк» // Вестник Челябинского государственного университета – 2013. – № 7 (298). – С. 85–87.
- 23. Современные уровни радиоактивного загрязнения объектов окружающей среды вурс и других территорий в зоне влияния ПО «Маяк» / Н.Н. Казачёнок, В.А. Костюченко, И.Я. Попова, Л.М. Перемыслова, Г.В. Полянчикова, Ю.П. Тихова, К.Г. Коновалов, А.И. Копелов, В.С. Мельников // Вестник Челябинского государственного университета. – 2014. – № 1 (73). – С. 33–48.
- 24. Кудельский А.В., Смит Дж.Т., Пашкевич В.И. Постчернобыльская гидросфера Беларуси в районах радиоактивных выпадений (ретроспективный обзор) // Геоэкология. Инженерная геология, гидрогеология, геокриология. – 2012. – № 4. – С. 293–309.
- Aquilina L., Matray J.M., Lancelot J. 25 years after the Chernobyl power plant explosion: management of nuclear wastes and radionuclide transfer in the environment // Applied Geochemistry. - 2012. - V. 27 (7). - P. 1291–1296.
- 26. Groundwater age and mixing process for evaluation of radionuclide impact on water resources following the Fukushima

Dai-ichi nuclear power plant accident / K. Sakakibara, S. Iwagami, M. Tsujimura, Y. Abe, M. Hada, I. Pun, Y. Onda // Journal of Contaminant Hydrology. – 2019. – V. 223. – P. 1–9.

- On the divergences in assessment of environmental impacts from ionising radiation following the Fukushima accident / P. Strand, S. Sundell-Bergman, J.E. Brown, M. Dowdall // Journal of Environmental Radioactivity. – 2017. – V. 169–170. – P. 159–173.
- Martin-Garin A., Meir V., Simonucci C., Kashparov V., Bugai D. Quantitative assessment of radionuclide migration from nearsurface radioactive waste burial sites: the waste dumps in the Chernobyl exclusion zone as an example. Woodhead Publishing, 2012. – P. 570–600.
- Gallardo A.H., Marui A. The aftermath of the Fukushima nuclear accident: Measures to contain groundwater contamination // Science of The Total Environment. – 2016. – V. 547. – P. 261–268.
- Ho Song J. An assessment on the environmental contamination caused by the Fukushima accident // Journal of Environmental Management. – 2018. – V. 206. – P. 846–852.
- 31. Комплексный радиационно-экологический мониторинг в районе расположения радиационно опасных объектов как составная часть единой системы государственного экологического мониторинга / Н.И. Санжарова, А.В. Панов, В.К. Кузнецов, Н.Н. Исамов, Е.И. Карпенко, Е.В. Гордиенко, Р.А. Микаилова // Известия высших учебных заведений. Ядерная энергетика. – 2019. – № 1. – С. 131–142.
- Бетенков Н.Д. Радиоэкологический мониторинг. Екатеринбург: Изд-во Урал. Ун-та, 2014. – 208 с.
- 33. Design and development of a comprehensive program for the assessment and analysis of environmental effects due to the release of radioactive materials from the stack of nuclear installations: a case study in Bushehr nuclear power plant / N. Delgarm, K. Sepanloo, A.H. Shad, D. Masti // Applied Radiation and Isotopes. – 2020. – V. 166. – P. 1291–1296.
- Development of emergency response tools for accidental radiological contamination of French coastal areas / C. Duffa, P.B. du Bois, M. Caillaud, S. Charmasson, C. Couvez, D. Didier, F. Dumas, B. Fievet, M. Morillon, P. Renaud, H. Thébault // Journal of Environmental Radioactivity. – 2016. – V. 151 (2). – P. 487– 494.
- Ho Min J., Dae-Woong Kim, Chi-Yong Park Demonstration of the validity of the early warning in online monitoring system for nuclear power plants // Nuclear Engineering and Design. – 2019. – V. 349. – P. 56–62.
- 36. Оценка влияния атомно-промышленного комплекса на подземные воды и смежные природные объекты (г. Сосновый Бор Ленинградской области) / В.Г. Румынин, Е.Б. Панкина, М.Ф. Якушев, А.В. Боронина, Е.Л. Кузнецова, Т.А. Кукушкина, И.Л. Хархордин, А.А. Потапов, И.В. Токарев, П.К. Коносавский, В.Ю. Абрамов, В.Н. Епимахов, С.А. Переверзева, К.С. Харьковский. – СПб.: Изд-во СПбУ, 2002. – 249 с.
- 37. Rumynin V.G., Nikulenkov A.M. Geological and physicochemical controls of the spatial distribution of partition coefficients for radionuclides (Sr-90, Cs-137, Co-60, Pu-239,240 and Am-241) at a site of nuclear reactors and radioactive waste disposal (St. Petersburg region, Russian Federation) // Journal of Environmental Radioactivity. – 2016. – V. 162–163. – P. 205–218.
- 38. Дашко Р.Э., Коробко А.А. Инженерно-геологическое обоснование безопасности строительства и эксплуатации сооружений различного назначения в пределах Предглинтовой низменности (Западная часть Ленинградской области) // Записки Горного Института. – 2016. – Т. 206. – С. 22–25.
- Дашко Р.Э., Коробко А.А. Генетические особенности формирования и изменения физико-химических свойств нижнекембрийских глин в разрезе Санкт-Петербургского региона // Сергеевские чтения. – М.: Российский университет дружбы народов (РУДН), 2014. – С. 23–29.
- Особенности инженерно-геологических условий Санкт-Петербурга / Р.Э. Дашко, О.Ю. Александрова, П.В. Котюков, А.В. Шидловская // Развитие городов и геотехническое строительство. – 2011. – № 1. – С. 1–34.
- Geomechanics of low-subsidence construction during the development of underground space in large cities and megalopolises / A.G. Protosenya, M.O. Lebedev, M.A. Karasev, N.A. Belyakov // Journal of Mechanical and Production

Engineering Research and Development. – 2019. – V. 9. – N<br/> $\!\!\!\!\!\!\!$  5. – P. 1005–1014.

- 42. Кирюхин В.А., Толстихин Н.И. Региональная гидрогеология. М.: Изд-во «Недра», 1987. 382 с.
- 43. Оценка и прогнозирование радиационно-экологического воздействия хранилищ радиоактивных отходов Ленинградского отделения филиала «Северо-западный территориальный округ» ФГУП «РосРАО» / И.И. Крышев, А.Ю. Пахомов, С.Н. Брыкин, В.Г. Булгаков, Т.Г. Сазыкина, И.А. Пахомова, И.С. Серебряков, Н.С. Рознова, А.И. Крышев, И.Я. Газиев,

К.В. Лунева, М.А. Дмитриева // Известия высших учебных заведений. Ядерная энергетика. – 2012. – № 3. – С. 44–52.

44. Прогноз воздействия АЭС на радиоактивность поверхностных и подземных вод / В.Г. Румынин, Л.Н. Синдаловский, А.А. Шварц, А.М. Никуленков, В.А. Ерзова, Д.В. Бутырин // Геоэкология. Инженерная геология. Гидрогеология. Геокриология. – 2020. – № 3. – С. 3–22.

Поступила 18.08.2021 г.

# Информация об авторах

*Ерзова В.А.*, аспирант кафедры гидрогеологии и инженерной геологии Санкт-Петербургского горного университета; младший научный сотрудник Санкт-Петербургского отделения института геоэкологии им. Е.М. Сергеева РАН.

**Румынин В.Г.**, член-корреспондент РАН, доктор геолого-минералогических наук, директор Санкт-Петербургского отделения института геоэкологии им. Е.М. Сергеева РАН; профессор Санкт-Петербургского государственного университета Института наук о Земле.

*Судариков С.М.*, доктор геолого-минералогических наук, профессор кафедры гидрогеологии и инженерной геологии Санкт-Петербургского горного университета.

Шварц А.А., кандидат геолого-минералогических наук, ведущий научный сотрудник Санкт-Петербургского отделения института геоэкологии им. Е.М. Сергеева РАН; главный специалист Санкт-Петербургского государственного университета Института наук о Земле.

*Владимиров К.В.*, младший научный сотрудник Санкт-Петербургского отделения института геоэкологии им. Е.М. Сергеева РАН; аспирант Санкт-Петербургского государственного университета Института наук о Земле.

UDC 556.114.679

# INFLUENCE OF NORTH-WEST NUCLEAR COMPLEX FACILITIES ON GROUNDWATER CONTAMINATION (LENINGRAD REGION)

# Valentina A. Erzova<sup>1,2</sup>, Erzova.spmu@yandex.ru

Vyacheslav G. Rumynin<sup>2,3</sup>, rumynin@hgepro.ru

Sergei M. Sudarikov<sup>1</sup>, Sudarikov SM@pers.spmi.ru

Alexei A. Shvarts<sup>2,3</sup>, larshv@hgepro.ru

# Konstantin V. Vladimirov<sup>2,3</sup>,

vladimirov@hgepro.ru

- Saint Petersburg Mining University,
   2, 21st Line V.O., Saint Petersburg, 199121, Russia.
- <sup>2</sup> St. Petersburg Division, Sergeev Institute of Environmental Geology Russian Academy of Sciences, 41, Sredniy avenue, Saint Petersburg, 199004, Russia.
- <sup>3</sup> St. Petersburg State University,
  - 7-9, Universitetskaya embankment, Saint Petersburg, 199004, Russia.

**Relevance of research.** The organization of the environmental monitoring system, particularly, in groundwater, is becoming important because of developing the nuclear power production and the increase in the amounts of radioactive materials in nuclear complex facilities. Nuclear power plant facilities are sources of anthropogenic radionuclides in groundwater and produce aureole contamination. The study focuses on an area with several nuclear facilities that affect the environment and each other.

The aim of the research is to determine the content of anthropogenic radionuclides in the groundwater of the North-West Nuclear Complex in the Leningrad Region; to identify the major sources of radioactive contamination based on the data collected.

**Objects and methods.** Groundwater from the Quaternary and Lower-Cambrian horizons contaminated by anthropogenic radionuclides is being studied. The study was based on large volumes of data from engineering surveys conducted at the construction sites of the operating and planned Leningrad NPP, radioactive waste storage facilities, and other sites. Borehole drilling data, hydrogeological sampling data, and monitoring observations, including radiological data, were used.

**Results.** The article discusses the zoning of the North-West Nuclear Complex based on the impact of contamination sources on groundwater radiological conditions, controlled by unstable isotopes of <sup>137</sup>Cs, <sup>90</sup>Sr, and <sup>3</sup>H. In several areas of the North-West Nuclear Complex, the natural background radiological level in groundwater was exceeded. Maximum radionuclide activities (up to values above the action level) have been observed near the radioactive waste storage facility.

#### Key words:

Monitoring observations of groundwater, radioactive contamination, Leningrad Nuclear Power Plant, radioactive waste disposal, radioactive background.

# REFERENCES

- Thinova L., Trojek T. Data analysis from monitoring of radionuclides in the nuclear power plant Temelin ecosystem area. *Applied Radiation and Isotopes*, 2009, vol. 67 (7–8), pp. 1503–1508.
- Artamonova S.Yu. Technogenic radionuclides in natural water in the areas of peaceful underground nuclear explosions «Craton-3» and «Craton-4». *Geoekologiya. Inzhenernaya geologiya,* gidrogeologiya, geokriologiya, 2013, no. 5, pp. 417–428. In Rus.
- Varga T., Orsovszki G., Major I., Veres M., Bujtás T., Végh G., Manga L., Timothy Jull A.J., Palcsu L., Molnár M. Advanced atmospheric 14C monitoring around the Paks Nuclear Power Plant, Hungary. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2020, vol. 213, pp. 1–11.
- Samoylenko G.Yu., Bondarevich E.A., Kotsyurzhinskaya N.N., Boriskin I.A. Monitoring of heavy metal contamination of soil and plants (for example, Potentilla Tanacetifolia willd. Ex Schlecht) of natural ecosystems in Chita urban areas. *Samarskiy nauchny vestnik*, 2018, vol. 7, no. 1 (22), pp. 110–115. In Rus.

- Ogorodnikov B.I. Tekhnogennye radioaktivnye aerozoli produkty avarii Chernobylskoy AES [Technogenic radioactive aerosols – products of the Chernobyl accident]. *Bezopasnost truda* v promyshlennosti, 2011, no. 4, pp. 42–48.
- Tondel M., Granath G., Wålinder R. 137Cs activity in Sweden after the Chernobyl Nuclear Power Plant accident in relation to quaternary geology and land use. *Applied Geochemistry*, 2017, vol. 87, pp. 38–43.
- Uddin Md.G., Moniruzzaman Md., Quader M.A., Abu Md. Hasan. Spatial variability in the distribution of trace metals in groundwater around the Rooppur nuclear power plant in Ishwardi, Bangladesh. *Groundwater for Sustainable Development*, 2018, vol. 7, pp. 220–231.
- Pashkevich M.A., Movchan I.B., Petrova T.A. Monitoring tekhnogennogo vozdeystviya ekologicheski opasnykh obektov OAO «Gazprom» [Monitoring of technogenic impact of environmentally hazardous facilities of OAO Gazprom]. Zapiski Gornogo Instituta, 2007, vol. 172, pp. 201–204.
- 9. Pashkevich M.A., Smirnov Yu.D., Petrova T.A. System of ecological monitoring of atmospheric air of mining industrial

aglomeration. Zapiski Gornogo Instituta, 2013, vol. 204, pp. 272–275. In Rus

- Pashkevich M.A., Petrova T.A. Creation of a system for industrial environmental monitoring in hydrocarbon producing and transporting companies of western Siberia. *Zapiski Gornogo instituta*, 2016, vol. 221, pp. 737–741. In Rus.
- Pashkevich M.A., Petrova T.A. Development of an operational environmental monitoring system for hazardous industrial facilities of Gazprom Dobycha Urengoy. *Journal of Physics: Conference Series*, 2019, no. 1384, pp. 1–7.
- 12. Pashkevich M.A., Petrova T.A. Assessment of widespread air pollution in the megacity using geographic information systems. *Zapiski Gornogo instituta*, 2017, vol. 228, pp. 738–742. In Rus.
- Pashkevich M.A., Alekseenko A.V., Petrova T.A. Assessment and control of environmental and economic risk in Novorossiysk industrial agglomeration. *Izvestiya Tulskogo gosudarstvennogo universiteta. Nauki o Zemle*, 2018, no. 1, pp. 23–35. In Rus.
- 14. Kaplan E.M., Shvarts A.A., Luneva E.V., Makushenko M.E. Transboundary issues related to the assessment of nuclear power plant impact on aquatic ecosystem (with application to Baltic NPP, Russian Federation). *Geoekologiya. Inzhenernaya geologiya,* gidrogeologiya, geokriologiya, 2015, no. 4, pp. 291–303. In Rus.
- UkJae Lee, Chanki Lee, Minji Kim, Hee Reyoung Kim. Analysis of the influence of nuclear facilities on environmental radiation by monitoring the highest nuclear power plant density region. *Nuclear Engineering and Technology*, 2019, vol. 51 (6), pp. 1626–1632.
- Hyung-Woo Seo, Jae Yong Oh, Weon Gyu Shin. Proposal for the list of potential radionuclides of interest during NPP site characterization or final status surveys. *Nuclear Engineering and Technology*, 2021, vol. 53 (1), pp. 234–243.
   Russell B.C., Croudace I.W., Warwick Ph.E. Determination of
- Russell B.C., Croudace I.W., Warwick Ph.E. Determination of 135Cs and 137Cs in environmental samples: a review. *Analytica Chimica Acta*, 2015, vol. 890, pp. 7–20.
- Testoni R., Levizzari R., De Salve M. Transport dynamic of strontium in groundwater: Safety Assessment study. *Progress in Nuclear Energy*, 2020, vol. 119, pp. 1–7.
- Testoni R., Levizzari R., De Salve M. Radionuclide transport in shallow groundwater, Progress in Nuclear Energy. *Progress in Nuclear Energy*, 2015, vol. 85, pp. 277–290.
- Melles S.J., Heuvelink G.B.M., Twenhöfel C.J.W., Van Dijk A., Hiemstra P.H., Baume O., Stöhlker U. Optimizing the spatial pattern of networks for monitoring radioactive releases. *Computers* & *Geosciences*, 2011, vol. 37 (3), pp. 280–288.
- Glagolenko Yu.V., Drozhko E.G., Rovny S.I. Main directions in solution of ecological problems resulted from the current activities and historical operation of Mayak PA. *Voprosy radiatsionnoy bezopasnosti*, 2006, no. 1 (41), pp. 23–24. In Rus.
- Andreev S.S., Popova I.Ya., Pryakhin E.A. Radioaktivnoe zagryaznenie nekotorykh vodoyomov – khranilishch zhidkikh radioaktivnykh otkhodov PO «Mayak» [Radioactive contamination of some water bodies – storage facilities for liquid radioactive waste at the Mayak Production Association]. Vestnik Chelyabinskogo gosudarstvennogo universiteta, 2013, no. 7 (298), pp. 85–87.
- 23. Kazachyonok N.N., Kostyuchenko V.A., Popova I.Ya., Peremyslova L.M., Polyanchikova G.V., Tikhova Yu.P., Konovalov K.G., Kopelov A.I., Melnikov V.S. Current status of the radioactive contamination of the eurt and other territories in the Mayak effect zone. *Vestnik Chelyabinskogo gosudarstvennogo universiteta*, 2014, no. 1 (73), pp. 33–48. In Rus.
- Kudelskiy A.V., Smit Dzh.T., Pashkevich V.I. Post-Chernobyl hydrosphere of Belarus within the radioactively contaminated territories (retrospective review). *Geoekologiya. Inzhenernaya* geologiya, gidrogeologiya, geokriologiya, 2012, no. 4, pp. 293–309. In Rus.
- Aquilina L., Matray J.M., Lancelot J. 25 years after the Chernobyl power plant explosion: Management of nuclear wastes and radionuclide transfer in the environment. *Applied Geochemistry*, 2012, vol. 27 (7), pp. 1291–1296.
- Sakakibara K., Iwagami S., Tsujimura M., Abe Y., Hada M., Pun I., Onda Y. Groundwater age and mixing process for evaluation of radionuclide impact on water resources following the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident. *Journal of Contaminant Hydrology*, 2019, vol. 223, pp. 1–9.

- Strand P., Sundell-Bergman S., Brown J.E., Dowdall M. On the divergences in assessment of environmental impacts from ionising radiation following the Fukushima accident. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2017, vol. 169–170, pp. 159–173.
- Martin-Garin A., Meir V., Simonucci C., Kashparov V., Bugai D. Quantitative assessment of radionuclide migration from nearsurface radioactive waste burial sites: the waste dumps in the Chernobyl exclusion zone as an example. Woodhead Publishing, 2012. pp. 570–600.
- 29. Gallardo A.H., Marui A. The aftermath of the Fukushima nuclear accident: measures to contain groundwater contamination. *Science of The Total Environment*, 2016, vol. 547, pp. 261–268.
- Ho Song J. An assessment on the environmental contamination caused by the Fukushima accident. *Journal of Environmental Management*, 2018. vol. 206, pp. 846–852.
- 31. Sanzharova N.I., Panov A.V., Kuznetsov V.K., Isamov N.N., Karpenko E.I., Gordienko E.V., Mikailova R.A. Complex radioecological monitoring in the vicinity of radiation hazardous facilities as an integral part of the unified system of state environmental monitoring. *Izvestiya vysshikh uchebnykh zavedeniy. Yadernaya energetika*, 2019, no. 1, pp. 131–142. In Rus.
- 32. Betenkov N.D. *Radioekologicheskiy monitoring* [Radioecological monitoring]. Ekaterinburg, Ural University Publ., 2014. 208 p.
- 33. Delgarm N., Sepanloo K., Shad A.H., Masti D. Design and development of a comprehensive program for the assessment and analysis of environmental effects due to the release of radioactive materials from the stack of nuclear installations: a case study in Bushehr nuclear power plant. *Applied Radiation and Isotopes*, 2020, vol. 166, pp. 1291–1296.
- 34. Duffa C., Du Bois P.B., Caillaud M., Charmasson S., Couvez C., Didier D., Dumas F., Fievet B., Morillon M., Renaud P., Thébault H. Development of emergency response tools for accidental radiological contamination of French coastal areas. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2016, vol. 151 (2), pp. 487–494.
- Ho Min J., Dae-Woong Kim, Chi-Yong Park. Demonstration of the validity of the early warning in online monitoring system for nuclear power plants. *Nuclear Engineering and Design*, 2019, vol. 349, pp. 56–62.
- 36. Rumynin V.G., Pankina E.B., Yakushev M.F., Boronina A.V., Kuznetsova E.L., Kukushkina T.A., Kharkhordin I.L., Potapov A.A., Tokarev I.V., Konosavsky P.K., Abramov V.Yu., Epimakhov V.N., Pereverzeva S.A., Kharkovsky K.S. Otsenka vliyaniya atomnopromyshlennogo kompleksa na podzemnye vody i smezhnye prirodnye obekty (g. Sosnovy Bor Leningradskoy oblasti) [Assessment of the impact of the nuclear-industrial complex on groundwater and adjacent natural objects (Sosnovy Bor, Leningrad Region)]. St-Peterburg, SPbU Publ., 2002. 249 p.
- 37. Rumynin V.G., Nikulenkov A.M. Geological and physicochemical controls of the spatial distribution of partition coefficients for radionuclides (Sr-90, Cs-137, Co-60, Pu-239,240 and Am-241) at a site of nuclear reactors and radioactive waste disposal (St. Petersburg region, Russian Federation). *Journal of Environmental Radioactivity*, 2016, vol. 162–163, pp. 205–218.
- Dashko R.E., Korobko A. A. Engineering-geological substantiation of safety building and operation constructions of different function within the lowland predglintovaya (the western part of the Leningrad region). *Zapiski Gornogo Instituta*, 2016, vol. 206, pp. 22–25. In Rus.
- 39. Dashko R.E., Korobko A.A. Geneticheskie osobennosti formirovaniya i izmeneniya fiziko-khimicheskikh svojstv nizhnekembriyskikh glin v razreze Sankt-Peterburgskogo regiona [Genetic features of the formation and changes in the physical and mechanical properties of the Lower Cambrian clays in the section of the St. Petersburg region]. *Sergeevskie chteniya* [Sergeev Readings]. Moscow, RUDN University Publ., 2014. pp 23–29.
- Dashko R.E., Aleksandrova O.Yu., Kotyukov P.V., Shidlovskaya A.V. Osobennosti inzhenerno-geologicheskikh usloviy Sankt-Peterburga [Features of engineering-geological conditions Saint Petersburg]. *Razvitie gorodov i geotekhnicheskoe stroitelstvo*, 2011, no. 1, pp. 1–34.
- Protosenya A.G., Lebedev M.O., Karasev M.A., Belyakov N.A. Geomechanics of low-subsidence construction during the development of underground space in large cities and megalopolises. *Journal of Mechanical and Production Engineering Research and Development*, 2019, vol. 9, no. 5, pp. 1005–1014.

- 42. Kiryuhin V.A., Tolstihin N.I. Regionalnaya gidrogeologiya [Regional hydrogeology]. Moscow, Nedra Publ., 1987. 382 p.
- 43. Kryshev I.I., Pakhomov A.Yu., Brykin S.N., Bulgakov V.G., Sazykina T.G., Pakhomova I.A., Serebryakov I.S., Roznova N.S., Kryshev A.I., Gaziev I.Ya., Luneva K.V., Dmitrieva M.A. Assessment and prognosis of radioecological impact of the radioactive wastes storage sites of the «north-west territorial district» Leningrad branch of FGUP «Rosrao». *Izvestiya vysshikh*

*uchebnykh zavedeniy. Yadernaya energetika*, 2012, no. 3, pp. 44–52. In Rus.

44. Rumynin V.G., Sindalovskiy L.N., Shvarts A.A., Nikulenkov A.M., Erzova V.A., Butyrin D.V. Forecast of NPP impact on radioactivity of surface and groundwater. *Geoekologiya*. *Inzhenernaya geologiya*. *Gidrogeologiya*. *Geokriologiya*, 2020, no. 3, pp. 3–22. In Rus.

Received: 18 August 2021.

#### Information about the authors

*Valentina A. Erzova*, postgraduate student, Saint Petersburg Mining University; junior researcher, St. Petersburg Division, Sergeev Institute of Environmental Geology Russian Academy of Sciences.

*Vyacheslav G. Rumynin*, corresponding members of the RAS, Dr. Sc., director, St. Petersburg Division, Sergeev Institute of Environmental Geology Russian Academy of Sciences; professor, St. Petersburg State University, Institute for Earth Sciences.

Sergei M. Sudarikov, Dr. Sc., professor, Saint Petersburg Mining University.

Alexei A. Shvarts, Cand. Sc., senior research, St. Petersburg Division, Sergeev Institute of Environmental Geology Russian Academy of Sciences; chief specialist, St. Petersburg State University, Institute for Earth Sciences.

*Konstantin V. Vladimirov*, junior researcher, St. Petersburg Division, Sergeev Institute of Environmental Geology Russian Academy of Sciences; postgraduate student, St. Petersburg State University, Institute for Earth Sciences.

УДК 550.4.02

# ВЛИЯНИЕ МИКРОЭЛЕМЕНТНОГО СОСТАВА УГЛЕРОДСОДЕРЖАЩИХ ПОРОД НА ВОЗМОЖНОСТЬ ИХ ИСПОЛЬЗОВАНИЯ В ВОДООЧИСТКЕ (НА ПРИМЕРЕ ШУНГИТОВ ИЗ ОНЕЖСКОЙ ПАЛЕОПРОТЕРОЗОЙСКОЙ СТРУКТУРЫ КАРЕЛИИ)

# Кондрашова Наталья Ивановна<sup>1,2</sup>,

kondr@krc.karelia.ru

# Медведев Павел Владимирович<sup>1,2</sup>,

pmedved@krc.karelia.ru

<sup>1</sup> Петрозаводский Государственный университет, Россия, 185910, г. Петрозаводск, пр. Ленина, 33.

<sup>2</sup> Карельский научный центр РАН, Россия, 185910, г. Петрозаводск, ул. Пушкинская, 11.

**Актуальность** исследования обусловлена необходимостью получения непротиворечивой информации о возможности использования углеродсодержащих осадочных пород шунгитов для очистки питьевой воды. В настоящее время шунгиты используются во многих отраслях промышленности, доказана их эффективность при очистке сточных вод от органических веществ и нефтепродуктов. Учитывая высокую адсорбционную способность шунгитов, отдельные исследователи без должных на то оснований, рекомендуют использовать их для очистки вод хозяйственно-питьевого водопользования. **Цель:** изучить микроэлементный состав шунгитов, оценить возможность поступления вредных для человека микроэлементов в водный раствор шунгита.

Объекты: образцы шунгитов из палеопротерозойских разрезов Онежской синклинальной структуры, Карелия.

Методика: электронная микроскопия, химический анализ, масс-спектрометрия с индуктивно-связанной плазмой (ICP-MS).

**Результаты.** Изучен макро- и микроэлементный состав шунгитов палеопротерозойской Онежской структуры (Карелия). Их минеральный состав представлен преимущественно кварцем (25–65 %), серицитом, хлоритом, пиритом, встречается карбонат, содержание свободного углерода составляет 21–45 %. Пирит присутствует как в форме нодулей, так и в микропрожилках. Помимо пирита отмечены сульфиды цинка, кобальтин, окислы свинца. Макроэлементы (Si, Ti, Al, Fe, Mn, Ca, Mg, Na, K), обнаруживаемые в химическом составе шунгитов, входят преимущественно в состав породообразующих минералов. Помимо макроэлементов, в шунгитах содержится значительное число микроэлементов, связанных с акцессорными минералами и сульфидами различной размерности. Это S, As, V, Co, Ni, Cr, Cu, Zn, Mo, Ge, B, Sr, Li, Pb, редкоземельные элементы. В шунгитах Зажогинского месторождения содержания хрома составляют от 96 до 151 г/m, содержания никеля – от 102 до 259 г/m. В углеродсодержащих породах Максово хром присутствует в количестве 103–144 г/m, концентрации никеля определены в интервале 47–196 г/m. Для месторождения Шуньга эти значения следующие: Сг присутствует в количестве 74–137 г/m, содержание Ni равно 86–275 г/m. Шунгиты, обладая высокой сорбционной способностью, могут поглощать вредные компоненты из воды. Благодаря данному свойству их предлагают использовать в водочистке питьевой воды. Не следует забывать, что одновременно происходит и обратный процесс – экстрагирование в воду из шунгитов вредных для человека примесных элементов. Существующие в настоящее время способы очистки не позволяют удалить микропримеси, поэтому вопрос об использовании и шунгитов долоси в ободоности и сиелью водоногособы очистки не позволяют удалить микропримеси, поэтому вопрос об использовании шунгитов для водоподготовки с целью питьевого водоснабжения остается открытым.

# Ключевые слова:

Шунгит, микроэлементный состав, Карелия, Онежская синклинальная структура, людиковий, палеопротерозой.

# Введение

Углеродсодержащие осадочные породы в Карелии впервые были описаны как углистые сланцы в XVIII в. Н.Я. Озерецковским, но только в XIX в., после работ А.А. Иностранцева, получили собственное название «шунгиты», ставшее в наши дни довольно известным. А.А. Иностранцев описал четыре разновидности углеродсодержащих пород, одну из которых, обнаруженную им в районе д. Шуньга, предложил называть шунгитом. Но позднее это название стали применять ко всем углеродсодержащим породам, обнаруженным в Карелии (рис. 1).

Шунгитовые породы в Онежском синклинории, где расположены их месторождения и большинство рудопроявлений, приурочены к трем стратиграфическим уровням палеопротерозоя – людиковию, калевию и вепсию (рис. 2).

В состав людиковийского надгоризонта входят карбонатные, терригенные и вулканогенные породы. Встречаются многочисленные силлы габбро-долеритов. Калевийский и вепсийский надгоризонты представлены преимущественно осадочными терригенными породами. На разных уровнях разрезов указанных надгоризонтов встречаются слои и пачки углеродсодержащих сланцев, алевролитов и песчаников. Основной объем шунгитов приурочен к людиковийскому и частично калевийскому надгоризонтам [4, 6, 7].

Мощность слоев шунгитовых пород варьирует в широких пределах, так же как содержание в них углерода и состав вмещающих шунгиты пород. Отмечается циклическое чередование безуглеродистых и шунгитовых отложений. В основании таких циклитов развиты бесшунгитовые (или с небольшим количеством прослоев шунгитовых пород) карбонаткварц-слюдистые породы, которые выше сменяются шунгитсодержащими породами. Вверх по разрезу людиковия происходит увеличение содержания углерода в породах. В этом направлении возрастает также количество туфогенного и кремнистого вещества [8].



- Рис. 1. Геологическая схема Онежского синклинория [1] с местоположением месторождений и отдельных рудопроявлений шунгитовых пород [2]. 1 – вепсийский надгоризонт; 2 – калевийский надгоризонт; 3 – людиковийский надгоризонт; 4, 5 – ятулийский надгоризонт (4 – онежский горизонт; 5 – сегозерский горизонт); 6 – сариолийский надгоризонт; 7 – архейский фундамент; 8 – разрывные нарушения; 9 – элементы залегания слоистости; 10 – шунгитовые: а – месторождения, 6 – рудопроявления. Звездочками показано местоположение скважин проекта FAR-DEEP [3] и Онежской параметрической скважины (ОПС) [4]. На врезке указано расположение Онежского синклинория. Шунгитовые месторождения: 1 – Шуньгское, 2 – Зажогинское, 3 – Нигозерское. Рудопроявления: 4 – Кочкомское, 5 – Пролетарка, 6 – Лычноостровское, 7 – Чевжавара-1, 8 – Петрозаводское, 9 – остров Березовец
- Fig. 1. Geological sketch map of the Onegian paleobasin [1] with the location of deposits and individual ore occurrences of shungite rocks [2]. 1 Vepsian group; 2 Kalevian group; 3 Ludikovian group; 4, 5 Yatulian group (4 Onegian formation; 5 Segozerian formation); 6 Sariolian group; 7 Archean basement; 8 faults; 9 dip and strike; 10 shungite: a deposits, b ore occurrences. The asterisks show the location of the FAR-DEEP drill holes [3] and the Onegian parametric drill hole [4]. The inset shows the location of the Onegian paleobasin. Shungite deposits: 1 Shungskoe, 2 Zazhoginskoe, 3 Nigozerskoe. Ore occurrences: 4 Kochkomskoe, 5 Proletarka, 6 Lychnoostrovskoe, 7 Chevzhavara-1, 8 Petrozavodskoe, 9 Berezovets Island

|                                      |                       | Возраст | Типовые стратиграфические    | Местные стратиграфические     |  |  |
|--------------------------------------|-----------------------|---------|------------------------------|-------------------------------|--|--|
| Эонотема                             | Эратема               | границ  | подразделения (надгоризонты) | подразделения                 |  |  |
|                                      |                       | млн лет | региональной шкалы           | (свиты, Онежский синклинорий) |  |  |
|                                      |                       |         | Вапсийский                   | шокшинская                    |  |  |
| НИЖНЕПРОТЕРОЗОЙСКАЯ<br>( КАРЕЛЬСКАЯ) | Верхне-<br>карельская | 1800    | Венсийский                   | петрозаводская                |  |  |
|                                      |                       |         | Колорийский                  | вашозерская                   |  |  |
|                                      |                       | 1920    | Калевинский                  | кондопожская                  |  |  |
|                                      |                       |         | Пюликорийокий                | суйсарская                    |  |  |
|                                      |                       | 2100    | эподиковийский               | заонежская                    |  |  |
|                                      |                       |         |                              | туломозерская                 |  |  |
|                                      |                       |         | Ятулийский                   | медвежьегорская               |  |  |
|                                      | Нижне-<br>карельская  | 2300    |                              | янгозерская                   |  |  |
|                                      |                       |         | Сариолийский                 |                               |  |  |
|                                      |                       | 2400    | Сариолийский                 | пальсозерская                 |  |  |
|                                      |                       |         | Суланйский                   | кумсинская                    |  |  |
|                                      |                       | 2500    | Суминский                    | глубокоозерская               |  |  |

**Рис. 2.** Расчленение нижнего протерозоя Карелии в общей стратиграфической шкале докембрия России [5] **Fig. 2.** Lower Proterozoic subdivisions of Karelia in the general stratigraphic scale of the Precambrian of Russia [5]

Шунгиты обладают целым рядом таких свойств (экранирующие свойства, электропроводность, адсорбционные свойства и др.), которые позволяют найти им применение во многих отраслях экономики: в металлургической и химической промышленности, строительстве, сельском хозяйстве, медицине [9–15].

Помимо этого, шунгиты – благодатный материал для научных исследований. Изучение стабильных изотопов серы, органического и карбонатного углерода позволяет геологам аргументированно судить об особенностях осадконакопления, о климате, содержании кислорода в атмосфере и в воде морских бассейнов в палеопротерозойское время [16–24].

Запасы шунгитов в Карелии оцениваются в несколько миллиардов тонн [2, 7].

Углеродсодержащие образования, к которым относятся шунгиты, – горные породы, содержащие некристаллический природный не графитизируемый углерод [25], не уникальны. Подобные породы встречаются в Южной и Центральной Африке, Австралии и Северной Америке [26–28]. В России, помимо Карелии, Кольского полуострова, углеродсодержащие осадочные породы известны в Сибири, в Воронежском массиве, на Урале, Таймыре, Саянах и во многих других районах, подтверждая высказанную почти 70 лет назад точку зрения, что «углеродистая составляющая», «углеродистая компонента», является обязательной для всех первично-осадочных образований докембрия [8].

В дискуссионном геологическом поле появляются работы об использовании шунгитов для очистки питьевой воды [9, 10], для удаления из воды бактериальной микрофлоры [29, 30].

Надо отдать должное многим авторам, упоминающим о присутствии в шунгитах минеральных примесей [31], вхождении токсикантов в кристаллическую решетку минералов углеродсодержащих пород [32]. В некоторых работах указываются способы борьбы с ними [17, 33, 34].

Однако приводимые в указанных работах примеры не настолько убедительны, чтобы делать вывод о безопасности очистки питьевой воды при помощи шунгитовых фильтров. Целью данной статьи является рассмотрение состава углеродсодержащих пород Онежской структуры и оценка возможных последствий их использования для очистки питьевой воды.

# Методы, материалы исследования

В статье использованы материалы, полученные в ходе выполнения проекта FAR-DEEP Международной программы научного континентального бурения (ICDP) в 2007–2012 гг., а также материалы полевых исследований 2015–2019 гг.

Отобранные с различных уровней разреза людиковия образцы углеродсодержащих пород изучены на сканирующем электронном микроскопе и проанализированы традиционным методом «мокрой» химии, а также масс-спектрометрическим методом индуктивно-связанной плазмы (ICP–MS).

Состав минералов шунгитовых пород определялся на сканирующем растровом электронном микроскопе TESCAN VEGA II LSH с приставкой INCA Emergy 350, совмещенной с микроанализатором (аналитик А.Н. Терновой) в Аналитическом центре Карельского научного центра РАН. Концентрации редких и редкоземельных элементов определялись на квадрупольном масс-спектрометре X-SERIES 2 (аналитик А.С. Парамонов) там же.

Используемые в работе химические анализы петрогенных элементов (силикатный анализ) выполнены в аналитической лаборатории Института геологии Кар НЦ РАН.

# Обсуждение и результаты исследования

При исследовании шунгитов используют два определения данного термина. Одна часть исследователей определяет шунгит как некристаллический природный неграфитизируемый углерод.

Другая часть исследователей считает, что шунгит – это осадочная порода, в составе которой присутствует углеродистое вещество.

Само название «шунгит» собирательное, т. к. под общим названием объединены породы, различающиеся как по содержанию углерода, так и по содержанию и составу примесного материала. Состав примесей может быть кремнистый, алюмосиликатный, карбонатный или смешанный.

Классификации шунгитов, удовлетворяющей всех исследователей, в настоящее время не разработано. Вероятно, первой классификацией, имеющей чисто геолого-историческое значение, следует назвать разделение углеродсодержащих пород Карелии по внешнему облику и физическим свойствам на 4 группы, выполненное А.А. Иностранцевым в 1879 г.

В 1956 г. опубликована классификация шунгитовых пород П.А. Борисова, которая используется рядом исследователей до настоящего времени [35]. П.А. Борисов, выделяя 5 разновидностей: шунгит I–V, за основной классификационный признак взял содержание в породе углерода и, как следствие, количество минерального компонента (табл. 1).

**Таблица 1.** Классификация шунгитовых пород, предложенная П.А. Борисовым (1956)

 
 Table 1.
 Classification of shungite rocks proposed by P.A. Borisov (1956)

| Разновидности шунгитовых пород<br>Varieties of shungite rocks | Ι  | Π  | Ш  | IV | V     |
|---|----|----|----|----|-------|
| Содержание углерода, %<br>С content, %                        | 98 | 60 | 35 | 20 | 5-10  |
| Содержание золы, %<br>Ash content, %                          | 2  | 40 | 65 | 80 | 90–95 |

Претензии исследователей, занимающихся исследованием шунгитов, предъявляемые к простой и изящной классификации А.П. Борисова, состоят в том, что она не учитывает состав минеральной основы, типы пород и генезис органического вещества. Следствием данного обстоятельства стало появление других классификаций: Л.П. Галдобиной с коллегами в 1975 г., В.И. Горлова в 1984 г., Ю.И. Калинина в 1984 г. В 2002 г. М.М. Филиппов предлагает подразделять шунгиты на основе типа шунгитового вещества [36]. Самый высокий ранг в генетической классификации М.М. Филиппова принадлежит группе (группа 1 – сапропелитовые породы, группа 2 – сапробитумолитовые породы, группа 3 – битумолитовые породы, группа 4 – переотложенные сапробитумолитовые породы).

Подразделение шунгитовых пород, предложенное М.М. Филиповым, можно провести только после значительного объема лабораторных исследований, но даже при этом полученные выводы могут быть неоднозначны. Поэтому, несмотря на недостатки, классификация П.А. Борисова продолжает и сегодня оставаться востребованной.

Широкое внимание к шунгитам не в последнюю очередь определяется их необычной структурой. По данным В.В. Ковалевского [37] она напоминает структуру стеклокристаллических материалов, когда высокодисперсные кристаллы распределены в некристаллической матрице. В шунгитовых породах роль некристаллической матрицы выполняет шунгит, в котором минеральные компоненты присутствуют в виде микрокристаллов, размерами в среднем около 1 мкм, нанокристаллов (до 10 и менее нм), а также углеродсодержащих слоев и кластеров.

Коллектив авторов в своей, ставшей в настоящее время классической, работе, основываясь на величине показателя (H/C=0,0015–0,0050), впервые указал на близость шунгита к стеклоуглероду [38].

Исследования последних лет показали, что шунгит является специфичной формой углерода, представляющей собой некристаллический, неграфитируемый, фуллереноподобный углерод, отличающийся от графитового на уровне надмолекулярной, атомной и зонной (электронной) структуры [11, 37].

Именно по своей структурной специфичности, оцениваемой по величине приведенной энергии активации  $E_0$ , шунгит, или шунгитовый углерод, отличается от графита. Для шунгитового углерода величина  $E_0<4,70$  ккал/моль, для графитоидов этот показатель попадает в интервал  $4,70<E_0<5,00$  ккал/моль, для графитов величина  $E_0>5,00$  [38]. По данным [8] для шунгитов зафиксировано понижение сравнительной степени упорядоченности структуры от минимальной (пос. Нигозеро) через промежуточную (пос. Максово) к максимальной (пос. Шуньга) (рис. 1).

Месторождения шунгитов в Онежском синклинории приурочены к верхней подсвите заонежской свиты, включённой в состав людиковийского надгоризонта палеопротерозоя Карелии (рис. 1, 2). Подсвита разделена на пачки, мощность которых варьирует от 140 до 340 м и которые содержат тела высокоуглеродистых пород. Шунгиты являются верхней частью осадочных циклов, нижняя часть циклов сложена туфами. На Зажогинском месторождении количество таких циклов меняется от трех в нижней осадочной пачке до шести в верхней пачке. В пределах каждого месторождения и рудопроявления шунгитов присутствуют силлы габбро-долеритов. На Зажогинском месторождении их количество достигает десяти, все они приурочены к контактам туфов и высокоуглеродистых пород [2].

Минералы шунгитов представлены кварцем (25–65%), серицитом, хлоритом, пиритом, встречается карбонат. Свободный углерод содержится в количестве 21–45%, Пирит присутствует как в форме нодулей, так и в микропрожилках (рис. 3, 4).

Макроэлементы (Si, Ti, Al, Fe, Mn, Ca, Mg, Na, K), обнаруженные в химическом составе шунгитов, входят главным образом в состав породообразующих минералов.

По данным бурения по проекту FAR-DEEP [3] в разрезе заонежской свиты (людиковий) Онежской структуры породы, обогащенные органическим углеродом, обнаружены на 4 уровнях разреза. Химический состав шунгитов, вскрытых скважиной 12 AB в интервале 156,0–132,9 м при содержании  $C_{opr}$  32,8–40,7 %, следующий: SiO<sub>2</sub> – 33,6–42,5 %, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> – 5–8 %, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> – 2,5–6,9 %, MgO – 0,8–2,4 %, K<sub>2</sub>O – 1,8–3 %. В интервале глубин 56–31 м шунгиты ( $C_{opr}$ =23–26,7 %) содержат SiO<sub>2</sub> – 57–62,8 %, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> – 4,1–5,4 %, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> – 0,8–6,4 %, MgO – 0,9–1,1 %, K<sub>2</sub>O – 1,2–2,6 %.

Изучение керна скважины 13А проекта FAR-DEEP показало присутствие шунгитового материала в песчаниках ( $C_{opr}$ =1,6–28 %) следующего химического состава: SiO<sub>2</sub> – 33–66 %, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> – 8–14 %, K<sub>2</sub>O – 3,3–4,7 %, Na<sub>2</sub>O – 0,2–1 %, S – 1,1–6,6 %.



a/a

б/b

- Рис. 3. Высокоуглеродистая порода (C>20 %) с пиритом в форме нодулей и микропрожилков (а) и шунгитсодержащий алевролит (C<10 %) с пиритом (б)
- Fig. 3. Carbon rich rock (C>20 %) with pyrite nodules and microveins (a) and shungite-bearing siltstone (C<10 %) with pyrite (b)

В кремнистых породах (лидитах) с содержанием  $SiO_2 - 77-94$  %,  $Al_2O_3 - 0,08-2,2$  %,  $K_2O - 0,04-1$  % органического углерода содержится 3–9,3 весовых %.

Обобщение всех имеющихся данных [2] показало следующий химический состав шунгитов Шуньгского месторождения: С – 41,0–61,34 % (ср. 49,44 %), S – в среднем 4,5 %, P – 0,13–0,31 %, As – 0,04–0,09 %. Содержание в золе шунгитов ванадия в целом по месторождению равно 0,48 %. Таким образом, в шунгитах помимо макроэлементов содержится значительное число микроэлементов (табл. 2). Это не только S, As, V, содержания которых приведены выше, но и Co, Ni, Cr, Cu, Zn, Mo, Ge, B, Sr, Li, Pb, редкие земли, связанные с акцессорными минералами и сульфидами [39, 40].



**Рис. 4.** Нодули и микропрожилки пирита в шунгите Зажогинского месторождения

Fig. 4. Pyrite nodules and micro-veins in shungite of the Zazhoginsky deposit

Таблица 2. Содержание некоторых микроэлементов (г/т) в отдельных разновидностях шунгитов разных районов Онежской структуры

Table 2.Content of some trace elements (ppm) in certain<br/>varieties of shungite from different occurrences<br/>of the Onegian paleobasin

| Микро-<br>элементы<br>(г/т)<br>Trace<br>elements<br>(ppm)<br>Район | Cr  | V    | Co  | Ni  | Cu  | Zn  | Li | Rb | Cs | Paзновидность шунгита<br>(количество анализов)<br>Variety of shungite<br>(number of analyzes) |  |
|--|-----|------|-----|-----|-----|-----|----|----|----|---|--|
| Зажогино   | 151 | 375  | 20  | 259 | 24  | 137 | _  | _  | _  | II (6)  |  |
| Zazhogino  | 96  | 263  | 8   | 102 | 40  | 16  | -  | _  | -  | III (4)   |  |
| 10   | 62  | 202  | 8   | 55  | 40  | 32  | 19 | -  | -  | II (14)   |  |
| Карнаволок   | 75  | 213  | 8   | 55  | 16  | 16  | 46 | —  | -  | III(19)   |  |
| Marnavolok   | 171 | 319  | 16  | 236 | 16  | 24  | -  | -  | -  | IV (3)  |  |
| Побошник   | 82  | 196  | 16  | 39  | 40  | 104 | -  | -  | —  | II (1)  |  |
| Jеоещина<br>Lebeshchina  | 103 | 202  | 16  | 71  | 56  | 88  | 9  | 9  | 1  | III (32)  |  |
| Lebeshemila  | 96  | 207  | 16  | 102 | 48  | 64  | 9  | 9  | 1  | IV (10)   |  |
|  | 108 | 123  | <79 | 69  | 18  | 370 | 8  | -  | —  | Ш (37)  |  |
| Максово  | 144 | 2818 | -   | 196 | 72  | 265 | 5  | 18 | 2  | II (5)  |  |
| Maksovo  | 103 | 162  | -   | 47  | 24  | 88  | 9  | 18 | 1  | III (38)  |  |
| WiakS0V0   | 103 | 162  | -   | 47  | 24  | 88  | 9  | 18 | 1  | IV (33)   |  |
|  | _   | -    | -   | _   | _   | 161 | -  | —  | -  | V (3)   |  |
|  | 34  | 913  | 16  | 275 | 104 | 289 | -  | —  | —  | I (1)   |  |
| Шуньга   | 137 | 1036 | 8   | 196 | 64  | 96  | 88 | 9  | 2  | II (5)  |  |
| Shunga   | 137 | 1188 | 24  | 212 | 80  | 137 | 19 | 27 | 1  | II (18)   |  |
|  | 96  | 952  | 16  | 86  | 88  | 88  | -  | —  | -  | III (2)   |  |

Примечание: «-» – нет данных

Note: «–» – no data

В разрезе, вскрытом скважинами 12А и 12В, встречен 80 см интервал шунгитовых прожилков с содержаниями Мо до 376 г/т, V до 1730 г/т, Ni до 510 г/т, U 53,3 г/т. По микротрещинкам в шунгите могут встречаться тонкодисперсные выделения ярозита.

Как видим из приведенных данных по составу шунгитов, они содержат вредные для человека микроэлементы, содержащиеся главным образом в сульфидах и акцессорных минералах размерностью от сотен до нескольких микрон (рис. 5).

При взаимодействии с водой пирита (FeS<sub>2</sub>) образуется серная кислота, что ведет к снижению рН. Образование H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> облегчает экстракцию микроэлементов, содержащихся в шунгите.

По данным [29, 33] в кислой среде (pH=2-2,5) наиболее эффективно происходит процесс экстрагирования макро- и микроэлементов, в том числе лантаноидов, из шунгита в воду.

Эти же авторы [29] указывают на переход в раствор при контакте шунгит-вода до 60 химических элементов от лития до урана.



**Рис. 5.** Онежская параметрическая скважина. Включения кобальтина (CoAsS), гессита (Ag<sub>2</sub>Te), колорадоита (HgTe), мелонита (NiTe<sub>2</sub>), теллурида свинца (PbTe) в углеродсодержащем алевролите (образец 3072) с глубины 1798 м (а). Пириты (FeS<sub>2</sub>) в углеродсодержащем туфе (образец 2356) с глубины 1421 м (б). Изображения в обратно-отраженных электронах (BSE)

Fig. 5. Onegian parametric well. Inclusions of cobaltin (CoAsS), hessite (Ag2Te), coloradoite (HgTe), melonite (NiTe2), lead telluride (PbTe) in carbonaceous siltstone (sample 3072) from a depth of 1798 m (a). Pyrites (FeS<sub>2</sub>) in carbonbearing tuff (sample 2356) from a depth of 1421 m (b). Back-scattered electron (BSE) images

В воде, контактирующей с шунгитами, возрастает содержание ионов  $[SO_4]^2$  (от 23 мг/л в шунгитах I до 130 мг/л в шунгитах II и 52,5 мг/л в шунгитах III), Cl<sup>-</sup> (от 39,3 до 38,4 и 90,8 мг/л соответственно), Na<sup>+</sup>, K<sup>+</sup>, продуктов гидролиза железа [41].

При взаимодействии шунгита с водой происходит повышение в воде содержания железа до 1,1 мкг/л при первоначальном содержании его в воде 0,2 мкг/л, марганца до 16 мкг/л при первоначальном содержании его в воде <10 мкг/л, меди до 1,5 мкг/л при первоначальном содержании его в воде 1,0 мкг/л, цинка до 242 мкг/л при его первоначальном отсутствии в воде [42].

В настоящее время борьба с примесями шунгитов осуществляется химическим и механическим способами [43]. Учитывая микронные размеры примесного дисульфидного железа и его тончайшую смесь с углеродистым веществом, механический способ очистки здесь работать не будет. Существующий химический способ очистки шунгитов не всегда безопасен. Поэтому шунгитовые фильтры для очистки питьевой воды могут принести не только пользу, но и вред изза присутствия в шунгитах опасных для здоровья микроэлементов.

#### Заключение

При взаимодействии шунгитов с водой они обладают разной степенью выщелачивания, то есть выделения из них и поступления в воду химических элементов. Обладая высокой сорбционной способностью, шунгиты могут сорбировать из воды содержащиеся в ней вредные компоненты [44, 45]. Однако не следует

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Атлас текстур и структур шунгитоносных пород Онежского синклинория / под ред. М.М. Филиппова, В.А. Мележик. – Петрозаводск: Карельский научный центр РАН, 2006. – 80 с.
- Минерально-сырьевая база Республики Карелия. Кн. 2. Неметаллические полезные ископаемые. Подземные воды и лечебные грязи / под ред. В.П. Михайлова, В.Н. Аминова. – Петрозаводск: Карелия, 2006. – 356 с.
- Reading the archive of Earth's oxygenation. V. 2: The core archive of the Fennoscandian Arctic Russia – Drilling Early Earth Project / V.A. Melezhik, A.E. C'rne, A.R. Prave, A. Lepland, A.E. Romashkin, D.V. Rychanchik, E.J. Hanski, A.E. Fallick, P.V. Medvedev, Luo Zh // Series: Frontiers in Earth Sciences. The Onega Basin. – Heidelberg: Springer, 2013. – P. 769–1046.
- Shungites: the C-rich rocks of Karelia, Russia / P.R. Buseck, L.P. Galdobina, V.V. Kovalevski, N.N. Rozhkova, A.Z. Zaidenberg, J.W. Valley // The Canadian Mineralogist. – 1997. – V. 35. – № 6. – P. 1363–1378.
- Melezhik V.A., Filippov M.M., Romashkin A.E. A giant Palaeoproterozoic deposit of shungite in NW Russia: genesis and practical applications // Ore geology reviews. – 2004. – V. 24. – P. 135–154.
- Онежская палеопротерозойская структура (геология, тектоника, глубинное строение и минерагения) / отв. ред. Л.В. Глушанин, Н.В. Шаров, В.В. Щипцов. – Петрозаводск: Карельский научный центр РАН, 2011. – 431 с.
- Общая стратиграфическая шкала нижнего докембрия России. Объяснительная записка. – Апатиты: КНЦ РАН, 2002. – 13 с.
- Сидоренко Св.А. Органическое вещество и биолитогенные процессы в докембрии. – М.: Наука, 1991. – 104 с.
- Калинин Ю.К., Калинин А.И., Скоробогатов Г.А. Шунгиты Карелии – для новых стройматериалов, в химическом синтезе, газоочистке, водоподготовке и медицине. – СПб: УНЦХ СПбГУ, ВВМ, 2008. – 219 с.

забывать о возможности обратного процесса: экстрагирования в воду из шунгитов вредных для человека примесных элементов. Это подтверждают результаты опытов с водными вытяжками лидитов, в составе которых присутствует углерод в виде шунгитового вещества [46]. По приведенным в этой работе данным, при взаимодействии лидита с дистиллированной водой в кислых условиях (рН 4,5-4,6) происходило накопление в экстракте ряда кислоторастворимых элементов – Sr, Mn, U и особенно Be, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Y, Ba, Tl. В слабощелочных условиях (pH 7,4-7,5) наблюдались максимальные концентрации V, Mo, W, Zr и Hf. Концентрации Al и Mn превышали значения ПДК для рыбохозяйственных водоемов. Водные экстракты образцов лидитов показали также превышение «нормы» ПДК таких элементов, как Fe, Co, Ni, Cu, Zn, V и Мо.

Как уже отмечалось выше, шунгиты не обладают упорядоченной структурой. Они часто представляют собой тончайшую смесь углеродистого вещества с мельчайшими вкраплениями большей частью сульфидов железа, силикатных минералов. Помимо сульфидов железа в шунгитах отмечены микронные размерности таких минералов, как кобальтин, колорадоит, мелонит и многих других. Встречаются в шунгитовых породах и оксиды свинца, сульфиды цинка.

Существующие в настоящее время методы очистки не позволяют полностью очистить шунгиты от микропримесей, поэтому возможность использования шунгитовых фильтров для очистки питьевой воды остается дискуссионной.

- Игнатов И.И., Мосин О.В. Состав и структурные свойства природного фуллеренсодержащего минерала шунгита. Математическая модель взаимодействия шунгита с молекулами воды // Интернет-журнал «Науковедение». – 2014. – Вып. 2. URL: http://naukovedenie.ru/PDF/12TVN214.pdf (дата обращения 15.10.2020).
- Kovalevski V., Shchiptsov V. Shungites and their industrial potential // 14th International Congress for Applied Mineralogy (ICAM2019). Springer Proceedings in Earth and Environmental Sciences. – 2019. – P. 201–204. DOI: 10.1007/978-3-030-22974-0.47.
- Rozhkova V.S., Kovalevski V.V. Determination of adsorption of cationic and anionic dyes onto shungite by Raman spectroscopy // Spectroscopy. – 2019. – V. 34. – № 7. – P. 45–54.
- Шунгитовый сорбционный материал для очистки сточных и оборотных вод / С.И. Ануфриева, В.И. Исаев, Ю.Н. Лосев, И.О. Крылов, Н.М. Конышев // Промышленная экология. – 2008. – № 4. – С. 28–32.
- 14. Ануфриева С.И., Ожогина Е.Г. Комплексное изучение шунгитсодержащих и шунгитовых пород участка «Полежаевский» Зажогинского месторождения // Современные методы технологической минералогии в процессе комплексной и глубокой переработки минерального сырья. Материалы международного совещания «Плаксинские чтения». – Петрозаводск, 2012. – С. 238–240.
- Алюмоматричные композиционные материалы с наполнителями из шунгитовых пород / И.Е. Калашников, В.В. Ковалевский, Т.А. Чернышова, Л.К. Болотова // Металлы. – 2010. – № 6. – С. 85–95.
- Moshnikov I.A., Kovalevski V.V. Composite materials based on nanostructured shungite filler // Materials Today: Proceedings. – 2018. – № 11. – P. 25971–25975.
- Конюхов И.В. Перспективы использования фуллеренсодержащего сырья в медицинской и фармацевтической практике // Annals of Mechnikov Institute. – 2010. – № 1. – С. 10–14. URL: www.imiamn.org.ua/journal.htm (дата обращения 18.11.2020).

- Kipp M.A., Lepland A., Buick R. Redox fluctuations, trace metal enrichment and phosphogenesis in the ~2.0 Ga Zaonega Formation // Precambrian Research. – 2020. – V. 343. – P. 105716. DOI: https://doi.org/10.1016/j.precamres.2020.105716.
- Oxygenated conditions in the aftermath of the Lomagundi-Jatuli Event: the carbon isotope and rare earth element signatures of the Paleoproterozoic Zaonega Formation, Russia / T. Kreitsmann, A. Lepland, M. Bau, A. Prave, K. Paiste, K. Mänd, H. Sepp, T. Martma, A.E. Romashkin, K. Kirsimäe // Precambrian Research. – 2020. – V. 347. – P. 105855. DOI: https://doi.org/10.1016/ j.precamres.2020.105855.
- Molybdenum record from black shales indicates oscillating atmospheric oxygen levels in the early Paleoproterozoic / D. Asael, O. Rouxel, S.W. Poulton, T.W. Lyons, A. Bekker // American Journal of Science. – 2018. – V. 318. – P. 275–299. DOI: https://doi.org/10.2475/03.2018.01.
- Multiple sulphur isotope records tracking basinal and global processes in the 1.98 Ga Zaonega Formation, NW Russia / K. Paiste, A. Lepland, A.L. Zerkle, K. Kirsimäe, G. Izon, N.K. Patel, F. McLean, T. Kreitsmann, K. Mänd, T.H. Bui // Chemical Geology. – 2018. – V. 499. – P. 151–164. DOI: https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2018.09.025.
- Identifying global vs. basinal controls on Paleoproterozoic organic carbon and sulfur isotope records / K. Paiste, A. Lepland, A.L. Zerkle, K. Kirsimäe, T. Kreitsmann, K. Mänd, A.E. Romashkin, D.V. Rychanchik, A.R. Prave // Earth-Science Reviews. – 2020. – V. 207. – P. 103230. DOI: https://doi.org/ 10.1016/j.earscirev.2020.103230.
- The pyrite multiple sulfur isotope record of the 1.98 Ga Zaonega Formation: evidence for biogeochemical sulfur cycling in a semirestricted basin / K. Paiste, A. Pellerin, A.L. Zerkle, K. Kirsimäe, A.R. Prave, A.E. Romashkin, A. Lepland // Earth Planetary Science Letters. – 2020. – V. 534. – P. 116092. DOI: https://doi.org/10.1016/j.epsl.2020.116092.
- Multiple Palaeoproterozoic carbon burial episodes and excursions / A.P. Martin, A.R. Prave, D.J. Condon, A. Lepland, A.E. Fallick, A.E. Romashkin, P.V. Medvedev, D.V. Rychanchik // Earth Planetary Science Letters. – 2015. – V. 424. – P. 226–236. DOI: https://doi.org/10.1016/j.epsl.2015.05.023.
- Pyrite multiple-sulfur isotope evidence for rapid expansion and contraction of the early Paleoproterozoic seawater sulfate reservoir / C. Scott, B.A. Wing, A. Bekker, N.J. Planavsky, P. Medvedev, S.M. Bates, M. Yun, T.W. Lyons // Earth Planetary Science Letters. - 2014. - V. 389. - P. 95–104. DOI: https://doi.org/10.1016/j.epsl.2013.12.010.
- 26. Enhanced Accumulation of Organic Matter: The Shunga Event / H. Strauss, V.A. Melezhik, A. Lepland, A.E. Fallick, E.J. Hanski, M.M. Filippov, Yu.E. Deines, C.J. Illing, A.E. Črne, A.E. Brasier // Reading the Archive of Earth's Oxygenation. V. 3: Global Events and the Fennoscandian Arctic Russia – Drilling Early Earth Project // Series: Frontiers in Earth Sciences. – Heidelberg: Springer, 2013. – P. 1195–1273.
- Kovalevski V.V., Buseck P.R., Cowley J.M. Comparison of carbon in shungite rocks to other natural carbons: an X-ray and TEM study // Carbon. – 2001. – V. 39. – P. 243–256.
- Karelian shungite an indication of 2.0-Ga-old metamorphosed oil-shale and generation of petroleum: geology, lithology and geochemistry / V.A. Melezhik, A.E. Fallick, M.M. Filippov, O. Larsen // Earth-Science Reviews. – 1999. – V. 47. – P. 1–40.
- Пономарев А.П., Подолец А.А., Макина О.А. Использование водного экстракта минерала шунгита для удаления из воды бактериальной микрофлоры // Водоснабжение и санитарная техника. – 2017. – № 9. – С. 17–24.

- Пономарев А.П. Водный экстракт минерала шунгита комплексообразователь для микроорганизмов при очистке водных растворов // Водоснабжение и санитарная техника. 2018. № 7. С. 11–17.
- Роль высокоуглеродистых (шунгитсодержащих) пород в формировании состава подземных вод Онежской структуры / Г.С. Бородулина, С.А. Светов, И.В. Токарев, М.А. Левичев // Труды Карельского научного центра РАН. – 2020. – № 9. – С. 72–87. DOI: 10.17076/lim1259.
- 32. Рыбаков Д.С. Влияние палеопротерозойских образований Онежской структуры на геохимические особенности почв Заонежья // Труды Карельского научного центра РАН. – 2020. – № 10. – С. 72–83. DOI: 10.17076/geo1283.
- Пономарев А.П. Шунгитовые породы как источник редкоземельных ультрамикроэлементов – лантаноидов // Микроэлементы в медицине. – 2019. – № 20 (2). – С. 55–65.
- 34. Shungite rocks of varying genesis in innovative water treatment technologies / V.V. Kovalevski, S.-P. Reinikainen, V. Reinikainen, V.S. Rozhkova, T. Sihvonen // Transactions of the Karelian Research Centre of the Russian Academy of Sciences. – 2020. – № 6. – P. 97–105. DOI: 10.17076/them1255.
- Борисов П.А. Карельские шунгиты. Петрозаводск: Госиздат КФССР, 1956. – 92 с.
- Филиппов М.М. Шунгитоносные породы Онежской структуры. Петрозаводск: КарНЦ РАН, 2002. 280 с.
- Ковалевский В.В. Шунгит или высший антраксолит? // Записки РМО. – 2009. – № 5. – С. 97–105.
- Шунгиты Карелии и пути их комплексного использования / под ред. В.А. Соколова, Ю.К. Калинина. – Петрозаводск, Карелия. 1975. – 240 с.
- Голубев А.И., Ахмедов А.М., Галдобина Л.П. Геохимия черносланцевых комплексов нижнего протерозоя Карело-Кольского региона. – Л.: Наука, 1984. – 192 с.
- Ромашкин А.Е., Рычанчик Д.В., Голубев А.И. Геохимия РЗЭ углеродсодержащих пород Онежской структуры // Геология и полезные ископаемые Карелии. – 2014. – Вып. 17. – С. 74–85.
- 41. Скоробогатов Г.А., Гончаров Г.Н., Ашмарова Ю.А. Ионообменные и адсорбционные свойства карельских шунгитов, контактирующих с водой // Экологическая химия. 2012. Т. 21. № 1. С. 10–16.
  42. Бородулина Г.С., Рыжаков А.В. О возможности использова-
- 42. Бородулина Г.С., Рыжаков А.В. О возможности использования шунгита для очистки водопроводной воды // Научные основы химии и технологии переработки комплексного сырья и синтеза на его основе функциональных материалов: Всероссийская научная конференция с международным участием. Материалы научно-технической конференции. Апатиты: Изд-во Кольского научного центра РАН, 2008. Т. 2. 288 с.
- 43. Модифицирование шунгитового материала для применения в сорбции и мембранной технологии / И.А. Полунина, И.С. Гончарова, В.В. Высоцкий, Г.А. Петухова и др. // Сорбционные и хроматографические процессы. – 2016. – Т. 16. – № 2. – С. 234–240.
- Сорбционные свойства шунгита / А.С. Шалимов, В.В. Ковалевский, О.Н. Обрезков, А.Б. Ярославцев // Неорганические материалы. 2004. № 40 (4). С. 430–434.
- Щетинская О.С., Соболева О.А. Очистка сточных вод от соединений хрома с помошью шунгита // Вестник Технологического университета. – 2017. – Т. 20. – № 20. – С. 128–132.
- 46. Феоктистов В.М., Медведев П.В. Микроэлементный состав водных экстрактов некоторых образцов диатомитов и лидитов Карелии // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2020. – Т. 331. – № 2. – С. 199–205.

Поступила 18.08.2021 г.

# Информация об авторах

*Кондрашова Н.И.*, кандидат геолого-минералогических наук, доцент кафедры наук о Земле и геотехнологий Института лесных, горных и строительных наук Петрозаводского государственного университета; научный сотрудник Института геологии Карельского научного центра РАН.

*Medsedes П.В.*, кандидат геолого-минералогических наук, доцент кафедры наук о Земле и геотехнологий Института лесных, горных и строительных наук Петрозаводского государственного университета; старший научный сотрудник Института геологии Карельского научного центра РАН.

UDC 550.4.02

# CARBON BEARING ROCKS (SHUNGITES). ARE THEY SO SAFE FOR DRINKING WATER PURIFICATION?

# Natalia I. Kondrashova<sup>1,2</sup>,

kondr@krc.karelia.ru

# Pavel V. Medvedev<sup>1,2</sup>,

pmedved@krc.karelia.ru

<sup>1</sup> Petrozavodsk State University, 33, Lenin avenue, Petrozavodsk, 185910, Russia.

<sup>2</sup> Karelian Research Centre of RAS,

11, Pushkinsky street, Petrozavodsk, 185910, Russia.

**The relevance** of the study is caused by the need to obtain consistent information about the possibility of using carbonaceous sedimentary rocks of shungite for drinking water purification. Currently, shungite is used in many industries, their effectiveness has been proven in the treatment of wastewater from organic and oil products. Using the high adsorption capacity of shungite, a number of authors, without good reason, recommend using shungite for purification of water for domestic and drinking use.

**Purpose:** to study the microelement composition of shungite, to assess the possibility of introducing microelements harmful to humans into an aqueous solution of shungite.

Objects: samples of shungite from the Paleoproterozoic successions of the Onegian paleobasin, Karelia.

Methods: scanning electron microscopy, chemical analysis, Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry (ICP-MS).

**Results.** The macro- and microelement composition of shungites of the Paleoproterozoic of the Onegian paleobasin (Karelia) has been studied. The sulfides and accessory minerals of shungite contain trace elements of various dimensions that are harmful to humans. Their mineral composition mainly consists of quartz (25–65 %), sericite, chlorite, pyrite, carbonate. The organic carbon content varies from 21 to 45 %. Pyrite is present both in the form of nodules and in micro-veins. In addition to pyrite sulphides of zinc, cobaltite, lead oxides are observed. Macroelements (Si, Ti, Al, Fe, Mn, Ca, Mg, Na, K) found in the chemical composition of shungites are mainly part of rockforming minerals. In addition to macroelements, shungites contain a significant number of trace elements associated with accessory minerals and sulfides of various dimensions. These are S, As, V, Co, Ni, Cr, Cu, Zn, Mo, Ge, B, Sr, Li, Pb, rare earth elements. In the shungites of the Zazhogino Deposit, the chromium content varies from 96 to 151 ppm, the nickel content varies from 102 to 259 ppm. In carbon rich rocks of the Maksovo Deposit chromium is present in the amount of 103–144 ppm, nickel concentrations are determined in the range of 47–196 ppm. For the Shunga Deposit, these values are as follows: Cr is present in an amount of 74–137 ppm, Ni content varies from 86 to 275 ppm. The sulfides and accessory minerals of shungite contain trace elements of various dimensions that are harmful to humans. Having a high sorption capacity, shungite can absorb harmful components from water. At the same time, the reverse process also occurs – the extraction of impurity elements harmful to humans from shungite. The currently existing methods for purifying shungites do not allow them to be purified from micro impurities, therefore, the question of using shungites for treatment of drinking water supply remains open.

#### Key words:

Shungite, trace element composition, Karelia, Onegian paleobasin, Ludikovian, Paleoproterozoic.

# REFERENCES

- Atlas tekstur i struktur shungitonosnykh porod Onezhskogo sinklinoriya [Atlas of textures and structures of shungite-bearing rocks of the Onego synclinorium]. Eds. M.M. Filippov, V.A. Melezhik. Petrozavodsk, Karelia scientific center RAN Publ., 2006. 80 p.
- Mineralno-syrevaya baza Respubliki Kareliya. Kn. 2. Nemetallicheskie poleznye iskopaemye. Podzemnye vody i lechebnye gryazi [Mineral resource base of the Republic of Karelia. B. 2. Industrial minerals. Groundwater and medicinal mud]. Eds. V.P. Mikhailov, V.N. Aminov. Petrozavodsk, Kareliya Publ., 2006. 356 p.
- Melezhik V.A., C'rne A.E., Prave A.R., Lepland A., Romashkin A.E., Rychanchik D.V., Hanski E.J., Fallick A.E., Medvedev P.V., Luo Zh. The Onega Basin. Reading the Archive of Earth's Oxygenation. Vol. 2: The Core Archive of the Fennoscandian Arctic Russia – Drilling Early Earth Project. Series: Frontiers in Earth Sciences. Heidelberg, Springer, 2013. pp. 769–1046.
- Buseck P.R., Galdobina L.P., Kovalevski V.V., Rozhkova N.N., Zaidenberg A.Z., Valley J.W. Shungites: the C-rich rocks of Karelia, Russia. *The Canadian Mineralogist*, 1997, vol. 35, no. 6, pp. 1363–1378.
- Melezhik V.A., Filippov M.M., Romashkin A.E. A giant Palaeoproterozoic deposit of shungite in NW Russia: genesis and

practical applications. Ore geology reviews, 2004, vol. 24, pp. 135-154.

- Onezhskaya paleoproterozoiskaya struktura (geologiya, tektonika, glubinnoe stroenie i minerageniya) [Onegian Paleoproterozoic basin (geology, tectonics, deep structure and minerageny)]. Eds. L.V. Glushanin, N.V. Sharov, V.V. Shchiptsov. Petrozavodsk, Karelia scientific center RAN Publ., 2011. 431 p.
- Obshchaya stratigraficheskaya shkala nizhnego dokembriya Rossii. Obyasnitelnaya zapiska [General stratigraphic scale of the Lower Precambrian for Russia. Explanatory note]. Apatity, Kola Scientific Center of RAS Publ., 2002. 13 p.
- Sidorenko Sv.A. Organicheskoe veshchestvo i biolitogennye protsessy v dokembrii [Organic matter and biolithogenic processes in the Precambrian]. Mosow, Nauka Publ., 1991. 104 p.
- Kalinin Yu.K., Kalinin A.I., Skorobogatov G.A. Shungity Karelii dlya novykh stroimaterialov, v khimicheskom sinteze, gazoochistke, vodopodgotovke i meditsine [Shungites of Karelia – for new building materials, in chemical synthesis, gas purification, water treatment and medicine]. St-Petersburg, UNTSKH SPBGU, VVM Publ., 2008. 219 p.
- 10. Ignatov I.I., Mosin O.V. Sostav i strukturnye svoystva prirodnogo fullerensoderzhashchego minerala shungita. Matematicheskaya model vzaimodeistviya shungita s molekulami vody [Composition and structural properties of natural fullerene-containing mineral shungite. Mathematical model of the interaction of shungite with

water molecules]. *Internet-zhurnal «Naukovedenie»*, 2014, Iss. 2. In Rus. Available at: http://naukovedenie.ru/PDF/12TVN214.pdf (accessed 15 October 2020).

- Kovalevski V., Shchiptsov V. Shungites and their industrial potential. 14<sup>th</sup> International Congress for Applied Mineralogy (ICAM2019). Springer Proceedings in Earth and Environmental Sciences, 2019, pp. 201–204. DOI: 10.1007/978-3-030-22974-0\_47.
- Rozhkova V.S., Kovalevski V.V. Determination of adsorption of cationic and anionic dyes onto shungite by Raman spectroscopy. *Spectroscopy*, 2019, vol. 34, no. 7, pp. 45–54.
- Anufrieva S.I., Isaev V.I., Losev Yu.N., Krylov I.O., Konyshev N.M. Shungitovy sorbtsionny material dlya ochistki stochnykh i oborotnykh vod [Shungite sorption material for waste and recycling water treatment]. *Promyshlennaya ehkologiya*, 2008, no. 4, pp. 28–32.
- 14. Anufrieva S.I., Ozhogina E.G. Kompleksnoe izuchenie shungitsoderzhashchikh i shungitovykh porod uchastka «Polezhaevsky» Zazhoginskogo mestorozhdeniya [Comprehensive study of shungite-bearing and shungite rocks of the Polezhaevsky site of the Zazhoginskoe deposit]. Sovremennye metody tekhnologicheskoy mineralogii v protsesse kompleksnoy i glubokoy pererabotki mineralnogo syrya. Materialy mezhdunarodnogo soveshchaniya «Plaksinskie chteniya» [Modern methods of technological mineralogy in complex deep processing mineral raw material. Materials of International meeting. Plaksin readings]. Petrozavodsk, 2012. pp. 238–240.
- Kalashnikov I.E., Kovalevskii V.V., Chernyshova T.A., Bolotova L.K. Aluminum-matrix composite materials with shungite fillers. *Metally*, 2010, no. 6, pp. 85–95. In Rus.
- Moshnikov I.A., Kovalevski V.V. Composite materials based on nanostructured shungite filler. *Materials Today: Proceedings*, 2018, no. 11, pp. 25971–25975.
- Konyukhov I.V. Prospects for the use of fullerene-containing raw materials in medical and pharmaceutical practice. *Annals of Mechnikov Institute*, 2010, no. 1, pp. 10–14. In Rus. Available at: www.imiamn.org.ua/journal.htm (accessed 18 November 2020).
- Kipp M.A., Lepland A., Buick R. Redox fluctuations, trace metal enrichment and phosphogenesis in the ~2.0 Ga Zaonega Formation. *Precambrian Research*, 2020, vol. 343, pp.105716. DOI: https://doi.org/10.1016/j.precamres.2020.105716.
- Kreitsmann T., Lepland A., Bau M., Prave A., Paiste K., Mänd K., Sepp H., Martma T., Romashkin A.E., Kirsimäe K. Oxygenated conditions in the aftermath of the Lomagundi-Jatuli Event: the carbon isotope and rare earth element signatures of the Paleoproterozoic Zaonega Formation, Russia. *Precambrian Research*, 2020, vol. 347, pp. 105855. DOI: https://doi.org/10.1016/j.precamres. 2020.105855.
- Asael D., Rouxel O., Poulton S.W., Lyons T.W., Bekker A. Molybdenum record from black shales indicates oscillating atmospheric oxygen levels in the early Paleoproterozoic. *American Journal of Science*, 2018, vol. 318, pp. 275–299. DOI: https://doi.org/10.2475/03.2018.01.
- Paiste K., Lepland A., Zerkle A.L., Kirsimäe K., Izon G., Patel N.K., McLean F., Kreitsmann T., Mänd K., Bui T.H. Multiple sulphur isotope records tracking basinal and global processes in the 1.98 Ga Zaonega Formation, NW Russia. *Chemical Geology*, 2018, vol. 499, pp. 151–164. DOI: https://doi.org/10.1016/j.chemgeo. 2018.09.025.
- Paiste K., Lepland A., Zerkle A.L., Kirsimäe K., Kreitsmann T., Mänd K., Romashkin A.E., Rychanchik D.V., Prave A.R. Identifying global vs. basinal controls on Paleoproterozoic organic carbon and sulfur isotope records. *Earth-Science Reviews*, 2020, vol. 207, pp. 103230. DOI: https://doi.org/10.1016/j.earscirev.2020.103230.
- Paiste K., Pellerin A., Zerkle A.L., Kirsimäe K., Prave A.R., Romashkin A.E., Lepland A. The pyrite multiple sulfur isotope record of the 1.98 Ga Zaonega Formation: evidence for biogeochemical sulfur cycling in a semi-restricted basin. *Earth Planetary Science Letters*, 2020, vol. 534. DOI: https://doi.org/10.1016/j.epsl. 2020.116092.
- Martin A.P., Prave A.R., Condon D.J., Lepland A., Fallick A.E., Romashkin A.E., Medvedev P.V., Rychanchik D.V. Multiple Palaeoproterozoic carbon burial episodes and excursions. *Earth Planetary Science Letters*, 2015, vol. 424, pp. 226–236. DOI: https://doi.org/10.1016/j.epsl.2015.05.023.

- 25. Scott C., Wing B.A., Bekker A., Planavsky N.J., Medvedev P., Bates S.M., Yun M., Lyons T.W. Pyrite multiple-sulfur isotope evidence for rapid expansion and contraction of the early Paleoproterozoic seawater sulfate reservoir. *Earth Planetary Science Letters*, 2014, vol. 389, pp. 95–104. DOI: https://doi.org/10.1016/ j.epsl.2013.12.010.
- 26. Strauss H., Melezhik V.A., Lepland A., Fallick A.E., Hanski E.J, Filippov M.M., Deines Yu.E., Illing C.J., Črne A.E., Brasier A.E. Enhanced Accumulation of Organic Matter: The Shunga Event. Reading the Archive of Earth's Oxygenation. Vol. 3: Global Events and the Fennoscandian Arctic Russia – Drilling Early Earth Project. *Series: Frontiers in Earth Sciences*. Heidelberg, Springer, 2013. pp. 1195–1273.
- 27. Kovalevski V.V., Buseck P.R., Cowley J.M. Comparison of carbon in shungite rocks to other natural carbons: an X-ray and TEM study. *Carbon*, 2001, vol. 39, pp. 243–256.
- Melezhik V.A., Fallick A.E., Filippov M.M, Larsen O. Karelian shungite – an indication of 2.0-Ga-old metamorphosed oil-shale and generation of petroleum: geology, lithology and geochemistry. *Earth-Science Reviews*, 1999, vol. 47, pp. 1–40.
- Ponomarev A.P., Podolets A.A., Makina O.A. The use of an aqueous extract of shungite mineral to remove bacterial microflora from water. *Vodosnabzhenie i sanitarnaya tekhnika*, 2017, no. 9, pp. 17–24. In Rus.
- Ponomarev A.P. Aqueous extract of shungite mineral a complexing agent for microorganisms in the purification of aqueous solutions. *Vodosnabzhenie i sanitarnaya tekhnika*, 2018, no. 7, pp. 11–17. In Rus.
- Borodulina G.S., Svetov S.A., Tokarev I.V., Levichev M.A. The role of high-carbon content (shungite-bearing) rocks in the formation of the composition of groundwater in the Onegian paleobasin. *Trudy Karelskogo nauchnogo tsentra RAN*, 2020, no. 9, pp. 72–87. In Rus. DOI: 10.17076/lim1259.
- 32. Rybakov D.S. Influence of the Paleoproterozoic formations of the Onegian basin on the geochemical characteristics of the soils in Zaonezhie. *Trudy Karelskogo nauchnogo tsentra RAN*, 2020, no. 10, pp. 72–83. In Rus. DOI: 10.17076/geo1283.
- Ponomarev A.P. Shungite rocks as a source of rare earth ultramicroelements – lanthanides. *Mikroehlementy v meditsine*, 2019, no. 20 (2), pp. 55–65. In Rus.
- 34. Kovalevski V.V., Reinikainen S.-P., Reinikainen V., Rozhkova V.S., Sihvonen T. Shungite rocks of varying genesis in innovative water treatment technologies. *Transactions of the Karelian Research Centre of the Russian Academy of Sciences*, 2020, no. 6, pp. 97–105. DOI: 10.17076/them1255.
- Borisov P.A. Karelskie shungity [Karelian shungites]. Petrozavodsk, Gosizdat KFSSR, 1956. 92 p.
- Filippov M.M. Shungitonosnye porody Onezhskoi struktury [Shungite-bearing rocks of the Onega structure]. Petrozavodsk, KaRNTS RAN Publ., 2002. 280 p.
- Kovalevskii V.V. Shungite or higher anthraxolite?. Zapiski RMO, 2009, no. 5, pp. 97–105. In Rus.
- Shungity Karelii i puti ikh kompleksnogo ispolzovaniya [Shungites of Karelia and ways of their complex use]. Eds. V.A. Sokolova, Yu.K. Kalinina. Petrozavodsk, Kareliya Publ., 1975. 240 p.
- Golubev A.I., Akhmedov A.M., Galdobina L.P. Geokhimiya chernoslantsevykh kompleksov nizhnego proterozoya Karelo-Kolskogo regiona [Geochemistry of Lower Proterozoic Black Shale Complexes in the Karelo-Kola Region]. Petrozavodsk, Nauka Publ., 1984. 192 p.
- Romashkin A.E., Rychanchik D.V., Golubev A.I. Geokhimiya RZE uglerodsoderzhashchikh porod Onezhskoy struktury [REE geochemistry of carbon-bearing rocks of the Onegian paleobasin]. *Geologiya i poleznye iskopaemye Karelii*, 2014, vol. 17, pp. 74–85.
- Skorobogatov G.A., Goncharov G.N., Ashmarova Yu.A. Ionoobmennye i adsorbtsionnye svoistva karelskikh shungitov, kontaktiruyushchikh s vodoy [Ion exchange and adsorption properties of Karelian shungites in contact with water]. *Ehkologicheskaya khimiya*, 2012, vol. 21, no. 1, pp. 10–16.
   Borodulina G.S., Ryzhakov A.V. O vozmozhnosti ispolzovaniya
- 42. Borodulina G.S., Ryzhakov A.V. O vozmozhnosti ispolzovaniya shungita dlya ochistki vodoprovodnoy vody [On the possibility of using shungite for tap water purification]. Nauchnye osnovy khimii i tekhnologii pererabotki kompleksnogo syrya i sinteza na ego osnove funktsionalnykh materialov. Vserossiiskaya nauchnaya konferentsiya s mezhdunarodnym uchastiem. Materialy nauchno-

*tekhnicheskoy konferentsii* [Scientific bases of chemistry and technology of processing of complex raw materials and synthesis on its basis of functional materials. All-Russian scientific conference with international participation. Proceedings of the scientific and technical conference]. Apatity, KSC RAN Publ., 2008. Vol. 2, pp. 288.

- 43. Polunina I.A., Goncharova I.S., Vysotskii V.V., Petukhova G.A. Modifitsirovanie shungitovogo materiala dlya primeneniya v sorbtsii i membrannoi tekhnologii [Modification of shungite material for use in absorption and membrane technology]. *Sorbtsionnye i khromatograficheskie protsessy*, 2016, vol. 16, no. 2, pp. 234–240. In Rus.
- Shalimov A.S., Kovalevskii V.V., Obrezkov O.N., Yaroslavtsev A.B. Absorption properties of shungite. *Neorganicheskie materialy*, 2004, no. 40 (4), pp. 430–434. In Rus.
- Shchetinskaya O.S., Soboleva O.A. Wastewater treatment from chromium compounds using shungite. *Vestnik Tekhnologicheskogo universiteta*, 2017, vol. 20, no. 20, pp. 128–132. In Rus.
   Feoktistov V.M., Medvedev P.V. Trace element composition of
- 46. Feoktistov V.M., Medvedev P.V. Trace element composition of aqueous extracts of some diatomite and lydite samples from Karelia. Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo assets Engineering, 2020, vol. 331, no. 2, pp. 199–205. In Rus.

Received: 18 August 2021.

#### Information about the authors

*Natalia I. Kondrashova*, Cand Sc., associate professor, Petrozavodsk State University; researcher, Institute of Geology, Karelian Research Centre of RAS.

*Pavel V. Medvedev*, Cand Sc., associate professor, Petrozavodsk State University; senior researcher, Institute of Geology, Karelian Research Centre of RAS.

УДК 502.5

# ОСОБЕННОСТИ ГРУНТОВ И ПОТЕНЦИАЛ ВОССТАНОВЛЕНИЯ ПРИРОДНО-ТЕХНИЧЕСКОЙ СИСТЕМЫ «ХВОСТОХРАНИЛИЩЕ ЕВРАЗ КГОК»

# Меньшикова Елена Александровна1,

menshikova\_e@list.ru

# Караваева Татьяна Ивановна<sup>1</sup>,

jewel\_@list.ru

# Хайрулина Елена Александровна<sup>1</sup>,

elenakhay@gmail.com

# Митракова Наталья Васильевна<sup>1</sup>,

mitrakovanatalya@mail.ru

<sup>1</sup> Пермский государственный национальный исследовательский университет, Россия, 614990, г. Пермь, ул. Генкеля, 4.

**Актуальность.** Природно-технические системы, формирующиеся в горнодобывающих районах, являются объектами повышенного экологического внимания в связи со значительным техногенным преобразованием всех компонентов природной среды. Состояние техногенного ландшафта среди прочих составляющих определяется свойствами литогенного ресурса, которым для территорий горной добычи выступают многотоннажные отходы – породы вскрыши и отходы обогащения полезных ископаемых.

**Целью** настоящей работы является оценка почвенно-экологического потенциала техногенных грунтов природнотехнической системы хвостохранилища Качканарского горно-обогатительного комбината («Хвостохранилище EBPA3 КГОК») и выявление перспектив развития экосистем и потенциала их самовосстановления.

**В задачи** исследований входило: установление признаков почвообразования и определение основных агрохимических и экологических характеристик техногенных грунтов, представленных хвостами мокрой магнитной сепарации, оценка их фитотоксичности; оценка состояния растительного покрова; выявление необходимости проведения рекультивационных работ.

**Объект** исследования – техногенные грунты, являющиеся частью литогенной основы природно-технической системы «Хвостохранилище ЕВРАЗ КГОК».

**Методы.** Исследование техногенных грунтов выполнялось на участках их выноса за пределы хвостохранилища. Полевые исследования включали: общее маршрутное знакомство с территорией; полевое изучение почв и техногенных грунтов, отбор образцов; изучение растительного покрова территории. Лабораторные исследования проведены в специализированных лабораториях с применением унифицированных методик. Содержание микроэлементов определяли методом ICP-MS.

**Результаты.** Хвосты мокрой магнитной сепарации с позиций почвоведения диагностированы как техногенные поверхностные образования группы артифабрикаты, подгруппы артииндустраты. По сравнению с фоновыми почвами они характеризуются меньшим содержанием органического вещества, общего азота, менее кислой реакцией почвенного раствора, по содержанию водорастворимых ионов являются незасоленными, характеризуются допустимым уровнем загрязнения элементами 1–2 классов опасности и отсутствием острого токсического действия на исследуемые тест-системы. Активное протекание лесовосстановительных процессов на техногенных поверхностных образованиях и удовлетворительное состояние растительности демонстрируют отсутствие негативного воздействия указанных отложений на растительность. Вслед за восстановлением растительности в них появляются признаки начального почвеобразования — образование лесной подстилки, накопление органического вещества и начальная дифференциация почвенных горизонтов. Почвенно-экологическое состояние исследуемой природно-технической системы признано удовлетворительных, не требующим в настоящее время проведения специальных поверхностных почвенного и растительного слоя на участках техногенных поверхностию почвенного и растительного слоя на участках техногенных поверхностных образований.

# Ключевые слова:

Хвостохранилище, техногенные грунты, почвы, техногенные поверхностные образования, растительный покров, оценка состояния, почвенно-экологическое состояние, природно-техническая система, техногенные ландшафты.

# Введение

Природно-технические системы, формирующиеся в горнодобывающих районах, являются объектами повышенного экологического внимания в связи со значительным техногенным преобразованием всех компонентов природной среды. Включаясь в природную среду, технические системы становятся источниками воздействия, в разной степени влияющими на процессы, протекающие в естественной части [1], создавая особый вид систем – природно-технические системы [2]. В соответствии с выделенными Г.К. Бондариком структурными уровнями [3], природно-техническую систему «Хвостохранилище» можно определить как элементарную [4], компонентами которой являются отдельное сооружение – хвостохранилище, и сфера его взаимодействия с окружающей природной средой.

Создание хвостохранилищ, площадь которых исчисляется десятками квадратных километров, сопровождается полным уничтожением почвеннорастительного покрова в их границах. Значительная часть нарушенных территорий в течение многих десятилетий по различным причинам сохраняет облик техногенной пустыни и влечет за собой соответствующие негативные последствия в почвенноэкологическом, геоботаническом, общеэкологическом и санитарно-гигиеническом планах [5–8], особенно в случае складирования в хвостохранилище токсичных отходов [9–12].

В результате складирования хвостов обогащения формируется комплекс техногенных отложений, который постепенно начинает выполнять функции почвы и определяет условия обитания живых организмов [13], прежде всего, растительности. Техногенные грунты, частично функционирующие как обычные почвы, являются объектами почвенных классификаций и рассматриваются в почвоведение в качестве техногенных поверхностных образований (ТПО) [14-16]. Зональные различия в строении ТПО не проявляются. Морфологические и химические свойства ТПО определяются технологическим фактором (особенностями производства, свойствами техногенных субстратов, способом заполнения). ТПО хвостохранилищ в почвенной классификации отнесены к группе артифабрикатов, подгруппе артииндустратов [14].

Особенности эволюции почв, формирующихся на техногенных поверхностных образованиях в горнодобывающих районах, изучены В.А. Андрохановым [5]. Установлено, что восстановление почв происходит путем последовательной смены фаз почвообразования, каждая из которых соответствует определенному типу эмбриоземов (слаборазвитых примитивных почв на техногенных и природных грунтах) и сингенетично связана со стадией развития растительной сукцессии – последовательной закономерной сменой растительных сообществ.

Начальные стадии развития почвообразовательных процессов в техногенных ландшафтах характеризуются четырьмя основными типами эмбриоземов: инициальные, органо-аккумулятивные, дерновые, гумусово-аккумулятивные. Со стадиями растительной сукцессии происходит эволюция инициальных эмбриоземов с пионерными растительными группировками в органо-аккумулятивные с простыми группировками, затем в дерновые, характеризующиеся сложными растительными группировками, и далее в гумусово-аккумулятивные с замкнутым фитоценозом [17–20]. Чем выше скорость прохождения стадий растительной сукцессии и стадий развития эмбриоземов, тем лучше почвенно-экологическое состояние техногенных ландшафтов [21].

Результаты оценки почвенно-экологических условий техногенно нарушенных территорий в различных природно-географических зонах, содержащиеся в работах [14, 19, 21–28], свидетельствуют о низких темпах естественного восстановления почвеннорастительного слоя на ТПО хвостохранилищ.

В многолетней динамике восстановления растительности при самозарастании прослеживается постепенное прохождение четырех стадий: инициальной и стадий формирования рудеральных, рудерально-естественных и естественных сообществ. Прохождению этих стадий соответствует увеличение показателей видового разнообразия и общего проективного покрытия формирующихся растительных комплексов [26].Часто, несмотря на расположение хвостохранилищ в окружении высокопродуктивных растительных сообществ, на ТПО практически отсутствует растительный покров, на их поверхности могут присутствовать лишь единичные растения, которые в большинстве случаев угнетены [14].

Параллельно с восстановлением растительного покрова под влиянием факторов почвообразования идут процессы формирования молодых почв, гумусообразования и гумусонакопления, на поверхности отмечается дерновый процесс, идет формирование маломощных почвенных горизонтов и их дифференциация, естественное зарастаниеи появление биоты. Все это свидетельствует о начальных процессах естественного восстановления биокомплексов в техногенно нарушенных ландшафтах, которое фиксируется на протяжении 45 и более лет [24].

В большинстве случаев почвенно-экологическое состояние хвостохранилищ признается авторами [14, 19, 21] неудовлетворительным. Отмечается, что в течение длительного времени (более 30 лет), развитие почвенного покрова соответствует инициальной и органо-аккумулятивной стадиям. Решением проблемы восстановления биологической продуктивности поверхности хвостохранилищ горных предприятий видится рекультивация территорий [21, 23, 29-33] и создание культурных ландшафтов, а также территорий для научного исследования созданных комплексов [34]. Экологическое восстановление и рекультивационные мероприятия являются комплексной технологией борьбы с загрязнением окружающей среды и экологической реабилитации территорий, которые для таких объектов основываются на фито- и биоремедиации [31, 35] в сочетании с различными прогрессивными физико-химическими инженерными технологиями для достижения наилучших результатов при наименьших затратах [36], применением различных отходов [37–39].

Почва является базисом любой наземной экосистемы, а скорость ее формирования определяет скорость формирования всех других компонентов экосистемы и качество их функционирования. Скорость формирования почвы можно считать параметром, характеризующим почвенно-экологический потенциал техногенного ландшафта, который, в свою очередь, определяется свойствами литогенного ресурса [40].

Целью настоящей работы является оценка почвенноэкологического потенциала техногенных грунтов природно-технической системы хвостохранилища Качканарского горно-обогатительного комбината («Хвостохранилище КГОК») и выявление перспектив развития экосистем и потенциала их самовосстановления.

В задачи исследования входило: установление признаков почвообразования и определение основных агрохимических и экологических характеристик техногенныхгрунтов, представленных хвостами мокрой магнитной сепарации, оценка их фитотоксичности; оценка состояния растительного покрова; выявление необходимости проведения рекультивационных работ.

# Объект исследования

В качестве объекта исследования рассматриваются техногенные грунты, являющиеся частью литогенной основы природно-технической системы «Хвостохранилище КГОК». Хвостохранилище используется для размещения хвостов мокрой магнитной сепарации, осветления пульпы и сточных вод с последующим включением их в систему оборотного водоснабжения AO «ЕВРАЗ КГОК», осуществляющего добычу и переработку бедных ванадийсодержащих титаномагнетитовых железных руд Гусевогорского месторождения. С учетом классификации (ГОСТ 25100-2020) указанные техногенные грунты относятся к классу дисперсных, подклассу несвязных грунтов антропогенного подтипа.

Сооружения хвостового хозяйства предприятия находятся в границах Качканарского городского округа и административно-территориального образования «Город Лесной» Свердловской области. Добыча руды ведется предприятием с 1963 г. четырьмя карьерами (Главный, Южная Залежь, Западный и Северный) открытым способом по транспортной схеме с внешним отвалообразованием. Добытая в карьерах руда железнодорожным транспортом отправляется на переработку – в цех дробления, и далее на обогатительную фабрику, где подвергается постадийно сухому и мокрому обогащению с получением железованадиевого концентрата, который затем используется для производства готовой продукции – агломерата или окатышей. В ходе обогащения добытой руды на этапе мокрой магнитной сепарации образуются отходы пустой (обедненной) породы – хвосты мокрой магнитной сепарации, размещение которых осуществляется в хвостохранилище.

Хвостохранилище намывное, косогорное, расположено в долинах реки Выи и её правобережного притока – реки Рогалевки. Хвостохранилище состоит их трех отсеков, расположенных каскадом: Рогалевский, Промежуточный, Выйский, с перепадом высот по зеркалу воды в отстойных прудах в направлении с юга на север. По состоянию на конец 2019 г. общая площадь всех отсеков накопителя составляет 19,63 км<sup>2</sup>, объем размещенных в хвостохранилище отходов достигает 949,75 млн м<sup>3</sup>.

По данным инженерно-геологического бурения толща хвостохранилища имеет неоднородное строение, представленное переслаиванием преимущественно песчаной фракции хвостов, а также прослоев техногенных глинистых и крупнообломочных техногенных грунтов различной мощности. Техногенные грунты подстилаются четвертичными делювиальными глинистыми грунтами и аллювиальными песками (от гравелистых до пылеватых), основанием объекта являются породы нижнего силура (пироксеновые порфириты, плагиоклазовые амфиболиты).

Химический состав хвостов (табл. 1) определяется присутствием преобладающих минералов [41]. В частности, основная масса кремнезема, оксидов кальция и магния объясняется существенным (67–78 %) содержанием в составе хвостов зерен пироксенов соответствующего по составу минерального вида – диопсида CaMg[Si<sub>2</sub>O<sub>6</sub>]. Глинозем в основном присутствует в плагиоклазах и минералах группы эпидота. Железо содержится в эпидоте, амфиболах, гетите и пирите. Из редких элементов наиболее характерны ванадий (в титаномагнетите) и скандий (в пироксенах). Наличие серы связано с присутствием сульфидов, в которых также концентрируются медь, мышьяк, сурьма, свинец, цинк. Хром в основном концентрируется в хромшпинелидах.

| Таблица 1. Химический | состав   | хвостов   | no   | данным |
|-----------------------|----------|-----------|------|--------|
| рентгенофлу           | оресцент | ного анал | иза, | мас. % |

 Table 1.
 Chemical composition of tailings according to X-ray fluorescence analysis, wt. %

|                                | 2.0        | · ·        |            |
|--------------------------------|------------|------------|------------|
| Макроком-                      | Среднее    | Микроком-  | Среднее    |
| поненты                        | содержание | поненты    | содержание |
| Macro                          | Average    | Micro      | Average    |
| components                     | content    | components | content    |
| SiO <sub>2</sub>               | 44,83      | V          | 0,03       |
| CaO                            | 21,14      | Sr         | 0,15       |
| MgO                            | 13,85      | Sc         | 0,011      |
| FeO                            | 9,82       | Sn         | 0,0085     |
| Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | 7,07       | Ba         | 0,0075     |
| Na <sub>2</sub> O              | 0,99       | Cr         | 0,0073     |
| TiO <sub>2</sub>               | 0,786      | W          | 0,0052     |
| MnO                            | 0,119      | Zn, As     | 0,004      |
| K <sub>2</sub> O               | 0,056      | Cu         | 0,002      |
| S                              | 0,022      | Co, Pb, Y  | 0,001      |
| P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>  | 0,015      | Sb, Ni     | <0,0003    |

Хвосты мокрой магнитной сепарации встречаются и за пределами хвостохранилищ. Территория площадью около 280 га к северо-востоку от хвостохранилища представлена техногенно нарушенными землями, на которых условно-естественные почвы были частично смыты и перекрыты слоем рассматриваемых отходов. Массы последних были привнесены на поверхность почвы в 1999 г. в результате аварийного прорыва Восточной дамбы хвостохранилища. Они простираются от Восточной дамбы хвостохранилища преимущественно двумя «рукавами» по тальвегам в направлении р. Выи.

Кроме того, с восточной части хвостохранилища в направлении рек Выи и Большой Медведки разгружаются потоки фильтрационных вод хвостохранилища [42]. Разгрузка сопровождается выносом мелкодисперсной фракции хвостов, в результате чего со стороны дамб Рогалевского и Промежуточного отсеков сформировались участки, представленные техногенными грунтами, площадью 8,6 и 1,9 га, соответственно.

Зональные характеристики экосистем рассматриваемой территории определяются особенностями ее физико-географического расположения. В геоморфологическом отношении территория относится к горно-холмистой зоне Среднего Урала, совпадающей с Приуральской горной грядой, сложенной интрузивными породами основного и ультраосновного состава и продуктами их метаморфизма.

Согласно почвенно-экологическому районированию Российской Федерации рассматриваемая территория расположена в Бореальном географическом поясе Европейско-Западно-Сибирской таежно-лесной

биоклиматической области, зоне дерновоподзолистых почв южной тайги, Среднеуральской горной провинции. В принятой системе почвенногеографического районирования Свердловской области – в пределах Косья-Исинского почвенного района, входящего в состав одноименного округа Среднеуральской южно-таежной почвенной провинции. В структуре почвенного покрова района ведущее место занимают мозаики горных примитивных почв с горными лесными бурыми и с горными подзолистыми почвами. В естественных условиях в составе почвенного покрова доминируют горные подзолистые почвы с заметным участием горных лесных бурых и примитивных. Ограниченно встречаются горные дерново-подзолистые глееватые и глеевые почвы [43, 44].

Почвенный покров района отличается пестротой, обусловленной высотной поясностью, разнообразием горных пород и сложностью рельефа местности. В естественных условиях почвы на рассматриваемой территории формируются на элювиально-делювиальных отложениях, которые подстилаются массивнокристаллическими породами. Почвы отличаются высокой хрящеватостью и небольшой мощностью.

Рассматриваемая территория относится к Средне-Уральскому таежному лесному району таежной лесорастительной зоны. Согласно схеме ботаникогеографического районирования Свердловской области район исследований относится к таежной (хвойно-лесной) зоне, подзоне средней тайги Качканарского округа.

В середине прошлого века в составе лесов данного округа [45] были выделены коренные и производные растительные комплексы. К первым отнесены: сосняки нагорные (IV бонитет) и ельники кисличниковые (III бонитет). Данные группы лесов упорядочены на рассматриваемой плошали по высотноорографическому уровню и условиям увлажнения. Сосняки приурочены к наиболее сухим, дренированным возвышенным участкам рельефа; ельники занимают пониженные, свежие и влажные экотопы. Производные растительные комплексы представлены вторичными лесными ценозами, формирующимися в местах нарушения коренной растительности хозяйственной деятельностью. В их составе значительную долю занимают лиственные породы, полное замещение которых хвойными видами происходит на рубеже восьмого/девятого классов возраста древостоя.

Из лиственных древесных пород, выполняющих функции пионеров-освоителей, встречаются береза и осина. Леса местного ареала представлены лиственными лесами с вкраплениями хвойных пород: ели, сосны, пихты, кедра, лиственницы. В травяном покрове преобладают кислица, папоротники, хвощ, брусничник.

# Методика исследования

Исследование техногенных грунтов, которые рассматриваются в почвоведение в качестве ТПО, выполнялось на участках их выноса за пределы хвостохранилища в результате аварийного прорыва дамбы и фильтрационной разгрузки сточных вод в основании дамб хвостохранилища (рис. 1). Полевые исследования включали: общее маршрутное знакомство с территорией; полевое изучение почв и ТПО, включая заложение и описание почвенных прикопок с определением таксономической принадлежности почв и ТПО; отбор 34образцовдля последующих лабораторных исследований (по ГОСТ 17.4.3.01-2017); изучение растительного покрова территории. Полевые работы по изучению растительности проводились посредством маршрутных наблюдений и рекогносцировочного обследования территории, а также проведением стационарных наблюдений с заложением пробных площадей.

Лабораторные исследования проводились на базе Сектора Наноминералогии «Центра коллективного пользования Пермского государственного национального исследовательского университета», лаборатории гидрохимического анализа геологического факультета ПГНИУ, аналитической лаборатории Пермского НИИСХ ПФИЦ УрО РАН, ФБУЗ «Центр гигиены и эпидемиологии в Пермском крае». Аналитические исследования проведены с применением унифицированных методик. Содержание микроэлементов в пробах почв и ТПО определяли масс-спектральным методом на приборе BRUKER AURORA M90 ICP-MS.

Оценка состояния почв и ТПО проводилась по следующим показателям: агрохимические – содержание органического вещества и общего азота, pH водной вытяжки и pH солевой вытяжки, гидролитическая кислотность, емкость катионного обмена, содержание подвижного калия и обменного натрия, нитратный азот; солевая нагрузка с оценкой суммы токсичных солей; техногенная нагрузка–валовое содержание никеля, меди, цинка, свинца, кадмия, мышьяка и ртути; санитарное состояние – острая токсичность ТПО с использованием в качестве тест-объекта Daphnia Magna Straus.

Для определения уровня загрязнения был рассчитан суммарный показатель загрязнения (Zc). В расчет суммарного показателя загрязнения включаются только элементы, содержание которых превышает фоновые показатели (т.е. коэффициент концентрации превышает 1). В качестве фоновых показателей использовались данные по пробам почв, отобранным в условно-естественных условиях вблизи участков, представленных ТПО. По классификации и диагностике почв России (2004) данные почвы относятся к типу бурозем типичный.

# Результаты и обсуждение

Техногенные грунты, распространенные вблизи хвостохранилища АО «ЕВРАЗ КГОК» за счет аварийного прорыва дамбы и фильтрационной разгрузки сточных вод в основании дамб хвостохранилища и представленные веществом хвостов песчаной фракции, идентифицируются по классификации почв 2004 г. и относятся в указанной систематике к техногенным поверхностным образованиям к группе артифабрикаты, подгруппе артииндустраты (рис. 2). Генетические горизонты в отложениях не выражены, гумусовый горизонт, горизонты, характерные для зональных почв (буроземов типичных и горных дерново-подзолистых почв), отсутствуют, почва не сформирована.



# Условные обозначения

- Пробная почвенная площадка
- Фоновые участки почвенного обследования
- \_\_\_\_ Участки развития техногенных
- -----<sup>ј</sup> поверхностных образований

**Puc. 1.** Схема хвостохранилища AO «EBPA3 КГОК» **Fig. 1.** Layout of the tailing dump of «EVRAZ KGOK»



- **Рис. 2.** Морфологический профиль техногенных поверхностных образований
- Fig. 2. Morphological profile of technogenic surface formations

На техногенных грунтах участка в районе дамбы Рогалевского отсека отмечены процессы самозарастания с развитием молодого подроста сосны (рис. 3, a), березы, рябины, ивы, травяной растительности (рис. 3,  $\delta$ ). Эти процессы более активно идут у кромки леса на восточной и южной границах участка. Проективное покрытие лесных молодняков вблизи кромок леса достигает 10 %. Процесс восстановленияпостепенно захватывает пространство к центру участка.

На участках самозарастания в морфологическом строении техногенных грунтов выделяется слоистость. Верхний слой трансформируется под воздействием растительности, наблюдаются первичные признаки почвообразования, свидетельством которого является образование лесной подстилки и накопление органического вещества в верхнем слое. Горизонты не сформированы. Почвенные слои бесструктурные.

По состоянию растительного покрова возраст формирующихся почв составляет более 20 лет.



a/a

б/b

**Рис. 3.** Процессы самозарастания на участке техногенных поверхностных образований в районе дамбы Рогалевского отсека





**Рис. 4.** Вторичный смешанный лес (а) на техногенных поверхностных образованиях (б) в районе дамбы Промежуточного отсека

Fig. 4. Secondary mixed forest (a) on technogenic surface formations (b) in the area of the dam of the Intermediate section

На техногенных грунтахучастка в районе дамбы Промежуточного отсека произрастает вторичный смешанный лес возрастом 20–30 лет (рис. 4, a,  $\delta$ ). Грунтыхарактеризуются наличием признаков начального почвообразования, свидетельством которого является образование лесной подстилки и накопление органического вещества в верхнем слое. Лесная подстилка имеет мощность около 3 см. Слои техногенных грунтов неоднородные по цвету, от темно-буросерого в верхнем слое мощностью около 20 см, до красно-коричневого в нижних слоях.

На исследуемых участках мощность слоя техногенных грунтов варьирует в зависимости от рельефа местности и достигает местами нескольких метров. Грунты вблизи кромки леса постепенно зарастают древесно-кустарниковой растительностью, а на расстоянии нескольких сотен метров от кромки леса местами практически полностью её лишены.

На техногенных грунтах в настоящее время сформировались смешанные лиственно-хвойные молодняки, средний возраст которых составляет 13-15 лет, состав -6С1ЛЗБ (доля участия в запасе древостоя: сосна 60 %, лиственница 10 %, береза 30 %), высота 2,5...3,0 м (рис. 5, а). Молодняки размещены по площади участка неравномерно. Состояние молодняков хорошее. Подавляющее большинство деревьев сосны и лиственницы находятся в жизнеспособном состоянии, не имеют признаков ослабления и повреждения. Средняя густота молодняков составляет 5000 шт./га, что свидетельствует об успешном лесовосстановлении главной породой. В составе подлеска указанных молодняков встречается ива прутовидная, ива пятитычинковая, шиповник коричный. Подлесок редкий, размещение его неравномерное. Состояние подлеска хорошее (рис. 5,  $\delta$ ).

Живой напочвенный покров техногенных грунтов встречается фрагментарно. Его проективное покрытие составляет в среднем 25 %, состояние хорошее. В составе живого напочвенного покрова встречаются вейник лесной, щучка дернистая, различные виды осок, клевер ползучий, клевер луговой, хвощ полевой, кладония оленья, кладония лесная, кладония альпийская, пельтигера собачья.

Проведенные обследования состояния растительности на техногенных грунтах позволяют сделать выводы об отсутствии видимых признаков их негативного воздействия на растительность. Лесовосстановительные процессы в целом идут активно сосной обыкновенной. На значительной части территории молодняки достигли стадии смыкания крон, что говорит об успешном формировании лесных насаждений и отсутствии необходимости проведения работ по рекультивации нарушенных земель.

Исследуемые техногенные грунты имеют песчаный механический состав, в отличие от природной почвы глинистого механического состава. Они характеризуются крайне низким содержанием органического вещества (0,05...0,16 %) (табл. 2). Относительно повышенное содержание органического вещества (0,13...3,68 %) характерно для техногенных грунтов на участке вторичного смешанного молодого леса с кустарниковой и травянистой растительностью, что связано с наличием лесной подстилки и начальных процессов гумусообразования на территории. Для сравнения органическое вещество в слое 0–10 см зонального бурозема типичного составляет 7,55...10,76 %, его со-



держание резко падает с глубиной – до 2,19...3,84 % в слое 10–20 см.



**Puc. 5.** Лиственно-хвойные молодняки (a) и кустарниковые формы ивы (б), формирующиеся на техногенных грунтах **Fig. 5.** Deciduous-coniferous young stands (a) and shrub forms of willow (b) forming on technogenic surface formations

Таблица 2. Количественные показатели состояния почв и техногенных грунтов природно-технической системы «Хвостохранилище КГОК»

Table 2.
 Quantitative indicators of condition of soils and technogenic surface formations of natural-technical system

 «EVRAZ KGOK tailing dump»

|  | Техногенные       | с грунты.        | Бурозем типичный,   |                         |  |  |
|--|-------------------|------------------|---|-------------------------|--|--|
|  | глубина отб       | бора см          | глубина отбора см   |                         |  |  |
| Показатель /Indicator                                    | Technogenic surfa | ce formations    | Burozem typical   |                         |  |  |
| Hokasaresib/ indicator                                   | sampling depth    | cm (n*-30)       | sompling donth $om(n-4)$                                  |                         |  |  |
|  | 0.10 $10.20$      |                  | sampling deput, $\operatorname{cin}(\operatorname{II}=4)$ |                         |  |  |
|  | 0-10              | 10-20            | 7.55 10.76  | 2 10 2 84               |  |  |
| Содержание органического вещества, %                     | 0,083,08***       | 0,050,99         | <u>/,5510,70</u>  | 2,193,84                |  |  |
| Organic matter content, %                                | 0,65              | 0,30             | 9,16  | 3,02                    |  |  |
| рН водной вытяжки  | 5,887,58          | <u>6,127,50</u>  | 4,616,27  | 4,606,28                |  |  |
| pH of the water extract                                  | 6,58              | 6,70             | 5,44  | 5,44                    |  |  |
| рН солевой вытяжки                                       | <u>5,957,75</u>   | <u>5,847,64</u>  | <u>3,905,98</u>   | <u>3,915,64</u>         |  |  |
| pH of the salt extract                                   | 6,75              | 6,74             | 4,94  | 4,78                    |  |  |
| N общ., мг/кг  | <u>63942</u>      | 42466            | <u>16912134</u>   | <u>511725</u>           |  |  |
| N total, mg/kg   | 206               | 164              | 1913  | 618                     |  |  |
| K <sub>2</sub> O, мг/кг                                  | 5,761,4           | 7,455,1          | <u>77,7147,9</u>  | 65,279,1                |  |  |
| $K_2O$ , mg/kg   | 18,9              | 19,25            | 112,8   | 72,2                    |  |  |
| N-NO <sub>3</sub> , мг/кг                                | 0.852,65          | 0,842,25         | 1,683,35  | 1,703,15                |  |  |
| N-NO <sub>3</sub> , mg/kg                                | 1,69              | 1,57             | 2,52  | 2,43                    |  |  |
| Гилролитическая кислотность, ммоль/100 г                 | 0.060.88          | 0.071.93         | 0.112.84  | 3.85.5.48               |  |  |
| Hydrolytic acidity, mmol/100 g                           | 0.28              | 0.42             | 1.48  | 4.67                    |  |  |
| Na обмен ммоль/100 г                                     | 0.07 0.22         | 0 07 0 50        | 0 29 0 36   | 0 29 0 43               |  |  |
| Na exchange mmol/100 g                                   | 0.13              | 0.17             | 0.33  | 0.36                    |  |  |
| Емкость поглошения (ЕКО) мг-экв/100 г                    | 8 22              | 10 40            | 36 42   | 30 32                   |  |  |
| Absorption capacity mg-eg/100 g                          | 14                | 1/               | 30  | 31                      |  |  |
| Jong Na or EKO %   | 0.40 2.61         | 0.50 5.00        | 0.69 1.00   | 0.01 1.43               |  |  |
| No share of absorption capacity 0/                       | 1 21              | 1 20             | 0.85  | $\frac{0,911,45}{1.17}$ |  |  |
| Curve Tokonyu ya conor %/Toxic colta cum %               | <0.05             | -0.05            | 0,85  | 1,17                    |  |  |
| Ni and/an  | <0,05             | <0,03            | <0,03<br>50,72  | <0,05                   |  |  |
| NI, MI/KI  | <u>3788</u>       | <u>3488</u>      | $\frac{5075}{2}$  | <u>3755</u>             |  |  |
| NI, mg/kg  | 09                | 0/               | 02  | 40                      |  |  |
| Cu, MF/KF  | <u>153</u>        | $\frac{1/6}{20}$ | 446/  | <u>5560</u>             |  |  |
| Cui, mg/kg   | 25                | 29               | 55  | 58                      |  |  |
| Zn, мг/кг  | <u>66141</u>      | <u>72137</u>     | <u>154177</u>   | <u>9095</u>             |  |  |
| Zn, mg/kg  | 96                | 101              | 166   | 93                      |  |  |
| As, Mr/kr  | <u>713</u>        | <u>813</u>       | <u>1417</u>   | <u>13,513,8</u>         |  |  |
| As, mg/kg  | 11                | 11               | 16  | 13,7                    |  |  |
| Cd, мг/кг  | <u>0,050,41</u>   | <u>0,050,73</u>  | <u>0,320,35</u>   | <u>1,191,40</u>         |  |  |
| Cd, mg/kg  | 0,16              | 0,21             | 0,34  | 1,30                    |  |  |
| Нд, мг/кг  | 0,0050,019        | 0,0050,027       | 0,1030,113  | <u>0,0410,045</u>       |  |  |
| Hg, mg/kg  | 0,013             | 0,011            | 0,108   | 0,043                   |  |  |
| РЬ, мг/кг  | 623               | 545              | 115119  | 6073                    |  |  |
| Pb, mg/kg  | 15                | 19               | 117   | 66                      |  |  |
| Zc   | 1.091.84          | 1.422.41         | фон   | фон                     |  |  |
| Total pollution index                                    | 1,33              | 1,86             | background  | background              |  |  |
| Острая токсичность с использованием в качестве           | Не оказывае       | тострое          | Не оказывает острое                                       |                         |  |  |
| тест-объекта Daphnia Magna Straus                        | токсическое       | лействие         | токсическое действие                                      |                         |  |  |
| Acute toxicity using Daphnia Magna Straus as test object | No acute tox      | ic effects       | No acute toxic effects                                    |                         |  |  |
| Theate tomeny using Dupiniu Mugiu Struus us tost object  | 1 to acute toA    |                  | NO acute toxic effects                                    |                         |  |  |

\*Количество образцов почв. \*\*В числителе – диапазон изменений, в знаменателе – среднее значение.

\*Number of soil samples. \*\*The numerator is the range of variation, the denominator is the average value.

Исследуемые грунты характеризуются близкой к нейтральной и нейтральной реакцией почвенной среды, о чем свидетельствует pH солевой вытяжки и значения гидролитической кислотности. Величина емкости катионного обмена техногенных грунтов преимущественно низкая и умеренно низкая (8–22 мгэкв/100 г), в некоторых слоях достигает 40 мгэкв/100 г, соответствуя умеренно высокому уровню. Доля обменного натрия от емкости поглощения в них составила от 0,40 до 5 %, что указывает на незасоленный характер грунтов. Грунты характеризуются очень низким и низким содержанием обменного калия (K<sub>2</sub>O), а также очень низким содержанием азота общего и азота нитратного.

По солевой нагрузке состояние рассматриваемых грунтов удовлетворительное. Результаты оценки техногенной нагрузки по суммарному показателю загрязнения (коэффициент Zc) элементами 1-2 классов опасности свидетельствуют об их удовлетворительном экологическом состоянии: Zc не превышает 2,41 при допустимом уровне до 16 единиц. Суммарный показатель загрязнения определяется преимущественно повышенными содержаниями никеля, а также цинка в слое 10-20 см в техногенных грунтах по сравнению с почвами прилегающих территорий. Содержание остальных анализируемых элементов в них, как правило, ниже, чем в естественных почвах прилегающих территорий: меди в среднем в 2,1...2,7 раза; мышьяка – в 1,2...1,5; кадмия – в 2,1...4,8; ртути – в 2,9...8,6; свинца – в 2,8...7,8 раза.

По результатам анализов на острую токсичность с использованием в качестве тест-объекта Daphnia Magna Straus техногенные грунты характеризуются отсутствием острого токсического действия на исследуемые тест-системы.

В соответствии с методикой оценки, предложенной В.А. Андрохановым [40], почвенно-экологическое состояние рассматриваемой природно-технической системы в целом соответствует категории неудовлетворительного: морфологическое строение ТПО соответствует эмбриоземам органо-аккумулятивным, процесс восстановления растительности по площади протекает неравномерно, активизируясь на участках вблизи существующего леса. Только почвенноэкологическое состояние участка в районе дамбы Промежуточного отсека, покрытого вторичным смешанным лесом, произрастающим на ТПО с более выраженными признаками начального почвообразования, можно охарактеризовать как удовлетворительное.

Тем не менее проведенные исследования позволяют сделать вывод о достаточно благоприятных условиях восстановления экосистем и сохранения

# СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Геохимическая трансформация ландшафтов железногорского промышленного ареала (Курская область)/ О.В. Кайданова, И.В. Замотаев, С.Б. Суслова, Г.С. Шилькрот // Известия Российской академии наук. Серия географическая. 2018. – № 3. – С. 91–104.
- Исаев С.В. Концепция природно-технических систем и ее использование при изучении антропогенной трансформации

ими потенциала самовосстановления. Техногенные грунты (техногенные поверхностные образования) не являются токсичными и не оказывают негативного воздействия на растительность. Восстановление растительности в целом идет активно по зональному типу с преобладанием в составе растительного покрова основных пород.

# Заключение

Таким образом, техногенные грунты, представленные хвостами мокрой магнитной сепарации песчаной фракции, диагностированы как техногенные поверхностные образования группы артифабрикаты, подгруппы артииндустраты. По сравнению с фоновыми почвами они характеризуются меньшим содержанием органического вещества, общего азота, менее кислой реакцией почвенного раствора, по содержанию водорастворимых ионов являются незасоленными, характеризуются допустимым уровнем загрязнения элементами 1–2 классов опасности и отсутствием острого токсического действия на исследуемые тестсистемы.

Активное протекание лесовосстановительных процессов на техногенных грунтах и удовлетворительное состояние растительности без признаков угнетения позволяет утверждать об отсутствии их негативного воздействия на растительность. Вслед за восстановлением растительности в техногенных грунтах появляются признаки начального почвообразования, свидетельством которого является образование лесной подстилки, накопление органического вещества в верхних слоях и начальная дифференциация почвенных горизонтов.

Почвенно-экологическое состояние природнотехнической системы хвостохранилища Качканарского горно-обогатительного комбината можно признать удовлетворительным, не требующим в настоящее время проведения специальных природоохранных мероприятий по восстановлению почвенного и растительного слоя на участках выноса отходов за пределы хвостохранилища в результате аварийного прорыва дамбы и фильтрационной разгрузки сточных вод в основании дамб хвостохранилища.

Экосистемы сохраняют потенциал самовосстановления, за счет чего в перспективе после окончания эксплуатации хвостохранилища можно ожидать благоприятное течение процессов восстановления почвенно-растительного покрова и экологических условий окружающей среды в целом.

Исследования выполнены при финансовой поддержке Пермского научно-образовательного центра «Рациональное недропользование», 2021 г.

природной среды // Географический вестник. – 2016. – № 3 (38). – С. 105–113. DOI:10.17072/2079-7877-2016-3-105-113. Бондарик Г.К. Экологическая проблема и природно-

- Бондарик Г.К. Экологическая проблема и природнотехнические системы. – М.: Икар, 2004. – 152 с.
- Ярг Л.А., Житинская О.М. Информационные основы обеспечения оптимальной эксплуатации природно-технических систем «рудные месторождения» // Известия высших учебных заведений. Геология и разведка. 2017. № 5. С. 78–81.

- Андроханов В.А. Почвенно-экологическое состояние техногенных ландшафтов: динамика и оценка: автореф. дис. ... д-ра биол. наук. – Новосибирск, 2005. – 35 с.
- Шабанов М.В., Маричев М.С. Оценка трансформации природно-территориальных комплексов при горнопромышленном техногенезе // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2020. – Т. 331. – № 3. – С. 90–99.
- Karaca O., Cameselle C., Reddy K.R. Mine tailing disposal sites: contamination problems, remedial options and phytocaps for sustainable remediation // Reviewsin Environmental Science and Bio/Technology. – 2018. – V. 17 (1). – P. 205–228. DOI: 10.1007/s11157-017-9453-y
- Analysis of air and soil quality regarding the cross-border impact risk of the mining tailings ponds in Moldova Nouă Area / S. Raischi, E. Pană, E. Holban, Ş. Zamfir, M. Raischi, G. Deák // International Journal of Environmental Science and Development. – June 2019. – V.10. – № 6. – P. 162–170. DOI: 10.18178/ijesd.2019.10.6.1166.
- ИсследованиеэкологическоговоздействияНовотроицкогохвостохранилища на растительный покров и живые организмы / М.В. Рыльникова, Д.Н. Радченко, М.В. Цупкина, В.А. Сафонов // Известия Тульского государственного университета. Науки о Земле. – 2020. – № 1. – С. 108–120.
- Стровский В.Е., Кубарев М.С. Обеспечение экологической безопасности в условиях моногородов горнопромышленного комплекса // Известия высших учебных заведений. Горный журнал. – 2018. – № 6. – С. 99–108.
- García-Giménez R., Jiménez-Ballesta R. Mine tailings influencing soil contamination by potentially toxic elements // Environmental Earth Sciences. – 2017. – V. 76. – Article number 51. DOI: 10.1007/s12665-016-6376-9.
- Khayrulina E., Maksimovich N. Influence of drainage with high contents of water-soluble salts on the environment in the Verhnekamskoe potash deposit, Russia // Mine Water and the Environment. – 2018. – V. 37. – P. 595–603.
- Transformation and contamination of soils in iron ore mining areas (a review) / I.V. Zamotaev, I.V. Ivanov, P.V. Mikheev, V.P. Belobrov // Eurasian Soil Science. – 2017. – 50. – P. 359–372. DOI: 10.1134/S1064229317030127
- Брагина П.С., Герасимова М.И. Почвообразовательные процессы на отвалах горнодобывающих предприятий (на примере юга Кемеровской области) // География и природные ресурсы. – 2014. – № 1. – С. 45–51.
- Полевой определитель почв России / под ред. К.Т. Остриковой. М.: Почв. ин-т им. В.В. Докучаева, 2008. 182с.
- 16. Введение почв и почвоподобных образований городских территорий в классификацию почв России / Т.В. Прокофьева, М.И. Герасимова, О.С. Безуглова, К.А. Бахматова, А.А. Гольева, С.Н. Горбов, Е.А. Жарикова, Н.Н. Матинян, Е.Н. Наквасина, Н.Е. Сивцева // Почвоведение. – 2014. – № 10. – С. 1–10.
- Андроханов В.А., Куляпина Е.Д., Курачев В.М. Почвы техногенных ландшафтов: генезис и эволюция. – Новосибирск: Изд-во СО РАН, 2004. – 151 с.
- Андроханов В.А., Курачев В.М. Почвенно-экологическое состояние техногенных ландшафтов: динамика и оценка. – Новосибирск: Изд-во СО РАН, 2010. – 224 с.
- Характеристика почвенно-экологического состояния природно-техногенных комплексов г. Новокузнецк / О.Г. Берлякова, В.Г. Двуреченский, А.А. Топоровская, Н.Б. Ермак // Антропогенная трансформация природной среды. – 2011. – № 1. – С. 153–159.
- Почвенно-экологическое состояние урбанизированных территорий Западной Сибири (на примере г. Новокузнецка) / В.Г. Двуреченский, Д.А. Соколов, А.А. Топоровская, О.Г. Берлякова // Почвоведение и агрохимия. 2011. № 2. С. 5–13.
- Двуреченский В.Г., Андроханов В.А. Почвенноэкологическое состояние техногенных ландшафтов Новокузнецкого промышленного комплекса // Живые и биокосные системы. – 2017. – № 20. URL: http://www.jbks.ru/archive/issue-20/article-3 (дата обращения: 12.02.2021).
- Брагина П.С., Герасимова М.И. Техногенные поверхностные образования на отвалах и хвостохранилищах в Кемеровской области: опыт классификации // Бюллетень почвенного института им. В.В. Докучаева. – 2017. – № 89. – С. 90–103.

- 23. Процессы первичного почвообразования на нефелинсодержащих отходах (на примере хвостохранилищ ОАО «АПАТИТ») / Г.А. Евдокимова, В.Н. Переверзев, И.В. Зенкова, М.В. Корнейкова, В.В. Редькина // Вестник КНЦ. – 2011. – № 1. – С. 34–48.
- 24. Первичные процессы почвообразования в условиях естественного зарастания техногенно-нарушенных ландшафтов / Ф.Е. Козыбаева, Г.Б. Бейсеева, С. Утугельбаев, А.А. Курманбаев, К.А. Даутбаева // Почвоведение и агрохимия. – 2010. – № 3. – С. 13–25.
- Кондакова Л.В., Дабах Е.В., Кислицына А.П. Формирование биоценоза на техногенных отходах // Теоретическая и прикладная экология. – 2020. – № 4. – С. 129–135.
- 26. Чадаева В.А., Цепкова Н.Л., Жашуев А.Ж. Многолетняя динамика восстановления растительности техногенных ландшафтов Былымской аридной котловины (Центральный Кавказ) // Аридные экосистемы. 2020. Т. 26. № 4 (85).– С. 127–135.
- Reduction of seepage outflow from potash tailings piles by improvement of greening: results of a hydrological simulation / C. Hildmann, L. Rösel, B. Zimmermann, D. Knoche, W.-D. Hartung, F.-C. Benthaus // Mining meets water – conflicts and solutions: Proc. – Freiberg: TU Bergakademie Freiberg, 2016. – P. 772–779.
- Morphogenetic diagnostics of soil formation on tailing dumps of coal quarries in Siberia / D.A. Sokolov, V.A. Androkhanov, S.P. Kulizhskii, E.A. Domozhakova, S.V. Loiko // Eurasian Soil Science. – 2015. – V. 48 (1). – P. 95–105. DOI: 10.1134/S1064229315010159.
- 29. Техногенные поверхностные образования в границах влияния горно-промышленной системы Дальнегорского района Приморского края как объект рекультивации / Л.Т. Крупская, Д.А. Голубев, М.Ю. Филатова, В.А. Андроханов, И.П. Беланов // Стратегии развития современной науки: сборник научных статей. – М.: Изд-во «Перо», 2019. – С. 183–192.
- Опыты биологической рекультивации на хвостохранилищах Западной Якутии / С.И. Миронова, Л.Д. Гаврильева, З.А. Кудинова, А.А. Петрова // Успехи современного естествознания. – 2015. – № 12. – С. 72–76.
- Fang Chen, Qiang Yao, Jingyi Tian. Review of ecological restoration technology for mine tailings in China // Engineering Review. – 2016. – V. 36. – Iss. 2. – P. 115–121.
- Soil-covered strategy for ecological restoration alters the bacterial community structure and predictive energy metabolic functions in mine tailings profiles / Yang Li, Qingye Sun, Jing Zhan, Yang Yang, Dan Wang // Applied Microbiology and Biotechnology. – 2017. – V. 101 (6). – P. 2549–2561.DOI: 10.1007/s00253-016-7969-7
- 33. Plant species diversity for vegetation restoration in manganese tailing wasteland / Jun Wang, Xinghua Luo, Yifan Zhang, Yanhong Huang, Manikandan Rajendran, Shengguo Xue // Environmental Science Pollution Research. – 2018. – V. 25 (1). – P. 24101–24110.DOI: 10.1007/s11356-018-2275-9
- 34. Основные направления преобразования техноземов в культурные ландшафты / А.И. Стифеев, О.В. Никитина, О.В. Нагорная, Е.Н. Панова, Е.С. Николаева // Вестник Курской государственной сельскохозяйственной академии. 2019. № 3. С. 28–34.
- 35. Occurrence of pharmaceutical and personal care products (PPCPs) in marine sediments in the Todos os Santos Bay and the north coast of Salvador, Bahia, Brazil / M. Beretta, V. Britto, T.M. Tavares, S.M. da Silva, A.L. Pletsch // Journal of Soils and Sediments. - 2014. - V. 14 (7). - P. 1278-1286.
- Removal of heavy metals from lead-zinc mine tailings by improved electrokinetic technique / S. Wang, Y. Liu, X. Li, L. Peng, W. Xia // Environment Protection of Chemical Industry. – 2008. – V. 4. – P. 331–335.
- Krasilnikova S., Blinov S. Global experience in the Use of soda waste // 20th International Multidisciplinary Scientific GeoConference SGEM 2020. Conference Proceedings. – Bulgaria, Sofia, 2020. – P. 19–26. DOI: 10.5593/sgem2020V/4.2/s05.03
- Effectsof organic amendments and biochar on ecological remediation of ionic rare earth mine tailings / Y. Chen, W. Liu, K. Ding, Y. Tang, R. Qiu // Acta Scientiae Circumstantiae. – 2018. – V. 38 (12). – P. 4769–4778. DOI: 10.13671/j.hjkxxb.2018.0295

- Chicken Manure Biochar as Liming and Nutrient Source for Acid Appalachian Soil / A. Hass, J.M. Gonzalez, I.M. Lima, H.W. Godwin, J.J. Halvorson, D.G. Boyer // Journal of Environmental Quality. – 2012. – V. 41 (4). – P. 1096–1106. DOI: 10.2134/jeq2011.0124
- Андроханов В.А., Курачев В.М. Принципы оценки почвенноэкологического состояния техногенных ландшафтов // Сибирский экологический журнал. – 2009. – Т. 16. – № 2. – С. 165–169.
- Reducing the negative technogenic impact of the mining enterprise on the environment through management of the water balance / E. Menshikova, V. Fetisov, T. Karavaeva, S. Blinov, P. Belkin, S. Vaganov // Minerals. - 2020. - V. 10. - 1145. DOI: 10.3390/min10121145.
- 42. Menshikova E., Blinov S., Vaganov S. Recovery of valuable elements from tailings of the Kachkanar Ore Mining and

Processing Plant //Mine Water: Technological and Environmental Challenges. Proceedings of International Mine Water Association Conference 2019. – Russia, Perm: Perm State University, Perm Federal Research Center of the Ural Branch of RAS, 2019. – P. 527–530.

- Гафуров Ф.Г. Почвы Свердловской области. Екатеринбург: Из-во Урал. ун-та, 2008. – 396 с.
- Фирсова В.П.Почвы таежной зоны Урала и Зауралья. М.: Наука, 1976. – 176 с.
- Колесников Б.П. Лесохозяйственное районирование и лесной фонд. Леса Свердловской области // Леса СССР.– М.: Наука, 1969. – Т.4. – 250 с.

Поступила 18.08.2021 г.

# Информация об авторах

*Меньшикова Е.А.*, кандидат геолого-минералогических наук, ведущий научный сотрудник лаборатории экологической геологии Естественнонаучного института Пермского государственного национального исследовательского университета.

*Караваева Т.И.*, кандидат геолого-минералогических наук, старший научный сотрудник лаборатории экологической геологии Естественнонаучного института Пермского государственного национального исследовательского университета.

Хайрулина Е.А., кандидат географических наук, директор Естественнонаучного института Пермского государственного национального исследовательского университета.

*Митракова Н.В.*, кандидат биологических наук, старший научный сотрудник лаборатории биогеохимии техногенных ландшафтов Естественнонаучного института Пермского государственного национального исследовательского университета.

# UDC 502.5

# SPECIFIC FEATURES OF SOIL AND ECOLOGICAL STATE OF NATURAL TECHNICAL SYSTEM «EVRAZ KGOK TAILING DUMP»

Elena A. Menshikova<sup>1</sup>, menshikova\_e@list.ru

Tatyana I. Karavaeva<sup>1</sup>, jewel\_@list.ru

Elena A. Khayrulina<sup>1</sup>, elenakhay@gmail.com

# Natalya V. Mitrakova<sup>1</sup>,

mitrakovanatalya@mail.ru

<sup>1</sup> Perm State National Research University,

4, Genkel street, Perm, 614990, Russia.

The relevance. Soil-ecological potential of technogenic landscape among other components is determined by properties of lithogenic resource, which for mining areas are, primarily, heavy tonnage wastes – overburden rocks and mineral processing wastes.

**The purpose** of this work is to assess the soil-ecological state of the natural-technical system of the tailings dump of the Kachkanarsky Ore Mining and Processing Plant and to identify prospects of ecosystems development and potential for their self-restoration.

The research objectives included identification of soil formation features and determination of basic agrochemical and environmental characteristics of technogenic surface formations, assessment of their phytotoxicity, assessment of the vegetation cover condition, and identification of the need for reclamation.

The object of the study is technogenic soils, which are part of the lithogenic basis of the natural and technical system of the tailings dump of the Kachkanarsky Ore Mining and Processing Plant.

**Methods.** The study of technogenic surface formations was carried out in the areas of their removal outside the tailings dump. The field studies included general acquaintance with the area, field study of soils and technogenic surface formations, soil sampling, and study of vegetation cover of the area. Laboratory investigations were carried out in specialized laboratories using unified methods. The content of microelements was determined by ICP-MS method.

**Results.** According to obtained results, natural and technogenic deposits represented by tailings of wet magnetic separation of sand fraction are identified as technogenic surface formations of artifact group, artiindustrates subgroup. Compared with the background soils, they are characterized by lower content of organic matter, total nitrogen, and less acidic reaction of the soil solution. They are non-saline in the content of water-soluble ions and are characterized by the admissible level of pollution by elements of hazard classes 1–2 and the absence of acute toxic effect on the studied biological test systems. Active reforestation processes on technogenic surface formations and satisfactory state of vegetation demonstrate the absence of negative effect of the mentioned deposits on the vegetation. Following revegetation of technogenic surface formations, signs of initial soil formation appear. These processes are identified by formation of forest floor, accumulation of organic matter in the upper layers, and initial differentiation of soil horizons. The soil-ecological state of the studied natural-technical system can be recognized as satisfactory. Currently, no special environmental protection measures are required to restore the soil and vegetation layer at the waste disposal sites outside the tailings management facility.

#### Key words:

Tailing dump, technogenic grounds, soil, technogenic surface formations, vegetation cover, condition assessment, soil and ecological state, natural and technical system, technogenic landscapes.

The research was supported by the Perm Research and Education Centre for Rational Use of Subsoil, 2021.

#### REFERENCES

- Kaidanova O.V., Zamotaev I.V., Suslova S.B., Shilkrot G.S. Geochemical transformation of landscapes of the Zheleznogorsk industrial area (Kurskregion). *Bulletin of the Russian Academy of Sciences, Geographical series*, 2018, no. 3, pp. 91–104. In Rus.
- Isaev S.V. The concept of natural and technical systems and its use in the study of anthropogenic transformation of the natural environment. *Geographical bulletin*, 2016, no. 3 (38), pp. 105–113. In Rus. DOI: 10.17072 / 2079-7877-2016-3-105-113.
- Bondarik G.K. Informatsionnye osnovy obespecheniya optimalnoy ekspluatatsii prirodno-tekhnicheskikh sistem «rudnye mestorozhdeniya» [Ecological problem and natural-technical systems]. Moscow, Ikar Publ., 2006. 152 p.
- Yarg L.A., Zhitinskaya O.M. Information bases for ensuring the optimal operation of natural and technical systems «ore deposits». *Proceedings of higher educational institutions, Geology and exploration*, 2017, no. 5, pp. 78–81. In Rus.
- Androkhanov V.A. Pochvenno-ekologicheskoe sostoyanie tekhnogennykh landshaftov: dinamika i otsenka. Avtoreferat Dis. Dokt. nauk [Soil-ecological state of technogenic landscapes: dynamics and assessment. Dr. Diss. Abstract]. Novosibirsk, 2005. 35 p.
- Shabanov M.V., Marichev M.S. Assessment of the transformation of natural-territorial complexes during mining technogenesis. Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Engineering of Georesources, 2020, vol. 331, no. 3, pp. 90–99. In Rus.
- Karaca O., Cameselle C., Reddy K.R. Mine tailing disposal sites: contamination problems, remedial options and phytocaps for sustainable remediation. *Reviews in Environmental Science and Bio/Technology*, 2018, vol. 17 (1), pp. 205–228. DOI: 10.1007/s11157-017-9453-y
- Raischi S., Pană E., HolbanE., Zamfir S., Raischi M., Deák G. Analysis of air and soil quality regarding the cross-border impact risk of the mining tailings ponds in Moldova Nouă Area.

International Journal of Environmental Science and Development, June 2019, vol. 10, no. 6, pp. 162–170. DOI: 10.18178/ijesd. 2019.10.6.1166.

- Rylnikova M.V., Radchenko D.N., Tsupkina M.V., Safonov V.A. Study of the environmental impact of the Novotroitsk tailing dump on vegetation and living organisms. *Bulletin of the Tula State University, Earth Sciences*, 2020, no. 1, pp. 108–120. In Rus.
- Strovsky V.E., Kubarev M.S. Ensuring environmental safety in the conditions of single-industry towns of the mining complex. *Proceedings of higher educational institutions, Mining magazine*, 2018, no. 6, pp. 99–108. In Rus.
- García-Giménez R., Jiménez-Ballesta R. Mine tailings influencing soil contamination by potentially toxic elements. *Environmental Earth Sciences*, 2017, vol. 76, 51. DOI: 10.1007/s12665-016-6376-9.
- 12. Khayrulina E., Maksimovich N. Influence of drainage with high contents of water-soluble salts on the environment in the Verhnekamskoe potash deposit, Russia. *Mine Water and the Environment*, 2018, 37, pp. 595–603.
- Zamotaev I.V., Ivanov I.V., Mikheev P.V., Belobrov V.P. Transformation and contamination of soils in iron ore mining areas (a review). *Eurasian Soil Science*, 2017, vol. 50, pp. 359–372. DOI: 10.1134/S1064229317030127
- Bragina P.S., Gerasimova M.I. Soil-forming processes in the dumps of mining enterprises (for example, the south of the Kemerovo region). *Geography and natural resources*, 2014, no. 1, pp. 45–51. In Rus.
- Polevoy opredelitel pochv Rossii [Field guide to soils of Russia].
   Ed. by K.T. Ostrikova. Moscow, V.V. Dokuchaev Publ., 2008. 182 p.
- 16. Prokofieva T.V., Gerasimova M.I., Bezuglova O.S., Bakhmatova K.A., Golieva A.A., Gorbov S.N., Zharikova E.A., Matinyan N.N., Nakvasina E.N., Sivtseva N.E. Vvedenie pochv i pochvopodobnykh obrazovaniy gorodskikh territoriy v klassifikatsiyu pochv Rossii [Introduction of soils and soil-like formations of urban areas into the classification of soils in Russia]. *Soil science*, 2014, no. 10, pp. 1–10.
- Androkhanov V.A., Kulyapina E.D., Kurachev V.M. Pochvy tekhnogennykh landshaftov: genezis i evolyutsiya [Soils of technogenic landscapes: genesis and evolution]. Novosibirsk, SB RAS Publ. house, 2004. 151 p.
- Androkhanov V.A., Kurachev V.M. Pochvy tekhnogennykh landshaftov: genezis i evolyutsiya [Principles of assessing the soilecological state of technogenic landscapes]. *Siberian ecological journal*, 2009, vol. 16, no. 2, pp. 165–169.
- Berlyakova O.G., Dvurechensky V.G., Toporovskaya A.A., Ermak N.B. Characteristics of the soil and ecological state of natural and technogenic complexes in Novokuznetsk. *Anthropogenic transformation of the Natural Environment*, 2011, no. 1, pp. 153–159. In Rus.
- Dvurechensky V.G., Sokolov D.A., Toporovskaya A.A., Berlyakova O.G. Soil-ecological state of urbanized territories of Western Siberia (on the example of Novokuznetsk). Soil science and agrochemistry, 2011, no. 2, pp. 5–13. In Rus.
- Dvurechensky V.G., Androkhanov V.A. Soil and ecological state of technogenic landscapes of the Novokuznetsk industrial complex. *Living and bioinert systems*, 2017, no. 20. In Rus. Available at: http://www.jbks.ru/archive/issue-20/article-3 (accessed 12 February 2021).
- Bragina P.S., Gerasimova M.I. Technogenic surface formations on dumps and tailings in the Kemerovo region: classification experience. *Bulletin of the Soil Institute V.V. Dokuchaeva*, 2017, no. 89, pp. 90–103. In Rus.
- Evdokimova G.A., Pereverzev V.N., Zenkova I.V., Korneikova M.V., Redkina V.V. Protsessy pervichnogo pochvoobrazovaniya na nefelinsoderzhashchikh othodakh (na primere khvostokhranilishch OAO «APATIT» [Processes of primary soil formation on nepheline-containing wastes (on the example of tailing dumps of APATIT)]. *Bulletin of the KSC*, 2011, no. 1, pp. 34–48.
- Kozybaeva F.E., Beiseeva G.B., Utugelbaev S., Kurmanbaev A.A., Dautbaeva K.A. Primary processes of soil formation in conditions of natural overgrowing of technologically disturbed landscapes. *Soil science and agrochemistry*, 2010, no. 3, pp. 13–25. In Rus.

- Kondakova L.V., Dabakh E.V., Kislitsyna A.P. Formation of biocenosis on technogenic waste. *Theoretical and Applied Ecology*, 2020, no. 4, pp. 129–135. In Rus.
- Chadayeva V.A., Tsepkova N.L., Zhashuev A.Zh. Mnogoletnyaya dinamika vosstanovleniya rastitelnosti tekhnogennykh landshaftov Bylymskoy aridnoy kotloviny (Tsentralny Kavkaz) [Long-term dynamics of restoration of vegetation of technogenic landscapes of the Bylym arid basin (Central Caucasus)]. *Arid ecosystems*, 2020, no. 4 (85), vol. 26, pp. 127–135.
- Hildmann C., Rösel L., Zimmermann B., Knoche D., Hartung W.-D., Benthaus F.-C. Reduction of seepage outflow from potash tailings piles by improvement of greening: Results of a hydrological simulation. *Mining Meets Water – Conflicts and Solutions: Proceedings.* Freiberg, TU Bergakademie Freiberg, 2016. pp. 772–779.
- Sokolov D.A., Androkhanov V.A., Kulizhskii S.P., Domozhakova E.A., Loiko S.V. Morphogenetic diagnostics of soil formation on tailing dumps of coal quarries in Siberia. *Eurasian Soil Science*, 2015, vol. 48 (1), pp. 95–105. DOI: 10.1134/S1064229315010159.
- 29. Krupskaya L.T., Golubev D.A., Filatova M.Yu., Androkhanov V.A., Belanov I.P. Tekhnogennye poverkhnostnye obrazovaniya v granitsakh vliyaniya gorno-promyshlennoy sistemy Dalnegorskogo rayona Primorskogo kraya kak obekt rekultivatsii [Technogenic surface formations within the influence of the mining and industrial system of the Dalnegorsk district of Primorsky Krai as an object reclamation]. *Strategii razvitiya sovremennoy nauki: sbornik nauchnykh statey* [Strategies for the development of modern science: a collection of scientific articles]. Moscow, Pero Publ. house, 2019. pp. 183–192.
- Mironova S.I., Gavrileva L.D., Kudinova Z.A., Petrova A.A. Opyty biologicheskoy rekultivatsii na khvostokhranilishchakh Zapadnoy Yakutii [Experiments in biological reclamation at tailing dumps in Western Yakutia]. Successes of modern natural science, 2015, no. 12, pp. 72–76. In Rus.
- Fang Chen, Qiang Yao, Jingyi Tian. Review of ecological restoration technology for mine tailings in China. *Engineering Review*, 2016, vol. 36, Iss. 2, pp. 115–121.
- 32. Yang Li, Qingye Sun, Jing Zhan, Yang Yang, Dan Wang. Soilcovered strategy for ecological restoration alters the bacterial community structure and predictive energy metabolic functions in mine tailings profiles. *Applied Microbiology and Biotechnology*, 2017, vol. 101 (6), pp. 2549–2561. DOI: 10.1007/s00253-016-7969-7
- 33. Jun Wang, Xinghua Luo, Yifan Zhang, Yanhong Huang, Manikandan Rajendran, Shengguo Xue. Plant species diversity for vegetation restoration in manganese tailing wasteland. Environmental Science Pollution Research, 2018, vol. 25(1), pp. 24101–24110. DOI: 10.1007/s11356-018-2275-9
- 34. Stifeev A.I., Nikitina O.V., Nagornaya O.V., Panova E.N., Nikolaeva E.S. The main directions of transformation of technozems into cultural landscapes. *Bulletin of the Kursk State Agricultural Academy*, 2019, no. 3, pp. 28–34. In Rus.
- 35. Beretta M., Britto V., Tavares T.M., da Silva S.M., Pletsch A.L. Occurrence of pharmaceutical and personal care products (PPCPs) in marine sediments in the Todos os Santos Bay and the north coast of Salvador, Bahia, Brazil. *Journal of Soils and Sediments*, 2014, vol. 14 (7), pp. 1278–1286.
- Wang S., Liu Y., Li X., Peng L., and Xia W. Removal of heavy metals from lead-zinc mine tailings by improved electrokinetic technique. *Environment Protection of Chemical Industry*, 2008, vol. 4, pp. 331–335.
- Krasilnikova S., Blinov S. Global experience in the Use of soda waste. 20<sup>th</sup> International Multidisciplinary Scientific GeoConference – SGEM 2020. Conference Proceedings. Bulgaria, Sofia, 2020. pp. 19–26. DOI: 10.5593/sgem2020V/4.2/s05.03
- Chen Y., Liu W., Ding K., Tang Y., Qiu R. Effectsof organic amendments and biochar on ecological remediation of ionic rare earth mine tailings. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2018, vol. 38 (12), pp. 4769–4778. DOI: 10.13671/j.hjkxxb.2018.0295
- Hass A., Gonzalez J.M., Lima I.M., Godwin H.W., Halvorson J.J., Boyer D.G. Chicken Manure Biochar as Liming and Nutrient Source for Acid Appalachian Soil. *Journal of Environmental Quality*, 2012, vol. 41(4), pp. 1096–1106. DOI: 10.2134/jeq2011.0124

- Androkhanov V.A., Kurachev V.M. Principles of assessing the soil-ecological state of technogenic landscapes. *Siberian ecological journal*, 2009, vol. 16, no. 2, pp. 165–169. In Rus.
- Menshikova E., Fetisov V., Karavaeva T., Blinov S., Belkin P., Vaganov S. Reducing the Negative Technogenic Impact of the Mining Enterprise on the Environment through Management of the Water Balance. *Minerals*, 2020, vol. 10, 1145. DOI: 10.3390/min10121145.
- 42. Menshikova E., Blinov S., Vaganov S. Recovery of valuable elements from tailings of the Kachkanar Ore Mining and Processing Plant. *Mine Water: Technological and Environmental Challenges. Proceedings of International Mine Water Association Conference 2019.* Russia, Perm, Perm State University, Perm

Federal Research Center of the Ural Branch of RAS, 2019. pp. 527–530.

- Gafurov F.G. *Pochvy Sverdlovskoy oblasti* [Soils of the Sverdlovsk region]. Yekaterinburg, Ural University Publ. House, 2008. 396 p.
- Firsova V.P. Pochvy taezhnoy zony Urala i Zauralya [Soils of the taiga zone of the Urals and Trans-Urals]. Moscow, Nauka Publ., 1977. 176 p.
- 45. Kolesnikov B.P. Lesokhozyaystvennoe rayonirovanie i lesnoy fond. Lesa Sverdlovskoy oblasti [Forestry zoning and forest fund. Forests of the Sverdlovsk region]. *Lesa SSSR* [Forests of the USSR]. Moscow, Nauka Publ., 1969. Vol. 4, 250 p.

Received: 18 August 2021.

#### Information about the authors

Elena A. Menshikova, Cand. Sc., leading researcher, Perm State National Research University.

Tatyana I. Karavaeva, Cand. Sc., senior researcher, Perm State National Research University.

Elena A. Khayrulina, Cand. Sc., director of the Natural Science Institute, Perm State National Research University.

Natalya V. Mitrakova, Cand. Sc., senior researcher, Perm State National Research University.

УДК 622.06

# ОЦЕНКА ЭФФЕКТИВНОСТИ ПАРЛИФТНОЙ ДОБЫЧИ ФЛЮИДА НА МУТНОВСКОМ ГЕОТЕРМАЛЬНОМ МЕСТОРОЖДЕНИИ (КАМЧАТКА) ПРИ РАЗРАБОТКЕ ГЛУБОКИХ ГОРИЗОНТОВ

Шулюпин Александр Николаевич<sup>1</sup>,

ans714@mail.ru

Любин Алексей Анатольевич<sup>2</sup>,

# Lyubin-AA@kamenergo.ru

Чернев Иван Иванович<sup>2</sup>, Chernev-II@kamenergo.ru

<sup>1</sup> Институт горного дела ДВО РАН, Россия, 680000, г. Хабаровск, ул. Тургенева, 51.

<sup>2</sup> Филиал ПАО «Камчатскэнерго» Возобновляемая энергетика, Россия, 680009, г. Петропавловск-Камчатский, ул. Ак. Королева, 60.

**Актуальность** исследования обусловлена необходимостью расширения ресурсной базы Мутновского геотермального месторождения (Камчатка) для восполнения дефицита теплоносителя на действующих ГеоЭС и наращивания мощности станций.

**Цель:** оценить эффективность парлифтной добычи теплоносителя на Мутновском месторождении при переходе к освоению глубоких горизонтов (скважинами глубиной 3 и 4 км при существующей глубине освоения 2 км).

**Методы:** теоретическое обоснование показателя эффективности парлифтной добычи геотермального флюида; математическое моделирование течения в добычной парлифтной скважине при существующей типовой конструкции (глубиной 2 км), а также в планируемых к бурению скважинах глубиной 3 и 4 км; анализ результатов моделирования.

**Результаты.** Обосновано использование в качестве показателя эффективности парлифта максимальной депрессии в пласте, которую может обеспечить парлифтная технология добычи; установлено, что освоение более глубоких горизонтов Мутновского месторождения скважинами до 3 км, при существующей глубине освоения до 2 км, позволит существенно повысить эффективность парлифтной добычи, увеличив максимальную депрессию в пласте, создаваемую добычными скважинами, примерно в два раза; установлено, что увеличение глубины освоения Мутновского месторождения до 4 км целесообразно в случае наличия роста температуры резервуара на планируемой к освоению глубине, так, в случае увеличения температуры по наиболее вероятному варианту (с геотермическим градиентом 1,6 градусов на 100 м) максимальная депрессия увеличится, по сравнению с существующим состоянием, в 3,3 раза.

**Вывод.** Полученные результаты указывают на технологическую целесообразность постановки вопроса о переходе на Мутновском геотермальном месторождении к разработке более глубоких горизонтов.

# Ключевые слова:

Геотермальные ресурсы, месторождение, скважина, парлифт, пласт, максимальная депрессия.

# Введение

Интерес к геотермальным ресурсам на протяжении многих лет характеризуется неуклонным ростом как в исследовательском, так и в практическом аспектах [1, 2]. Новый импульс в развитии данного направления связан с исследованием и внедрением скважинных теплообменников [3–6], которые в комбинации с тепловыми насосами [7] позволяют использовать геотермальные ресурсы практически в любом месте Земного шара. Однако тепловая мощность таких систем ограничена и в десятки раз уступает мощности скважин, непосредственно выводящих геотермальные флюиды на поверхность. Поэтому скважинные теплообменники - это, прежде всего, неглубокие (и недорогие) скважины и локальные (маломощные) системы. Для масштабных пользователей на ближайшее время наибольше перспективы по-прежнему связываются с эксплуатацией скважин, выводящих геотермальные флюиды на поверхность.

Геотермальные ресурсы, являясь частью георесурсов, в отечественной сфере исследований и разработок имеют неоднозначную трактовку. Часто данное понятие определяется в неразрывной связи с гидрогеологическими объектами [8, 9], фактически исключая из рассмотрения возможность использования энергии сухих пород. Вместе с тем вопросы об использовании энергии сухих горячих пород имеют богатую историю [10] и вызывают непроходящий интерес [11–13]. В настоящей работе, вслед за [14], под геотермальными ресурсами будет пониматься энергия пород и флюидов в недрах Земли, которая может быть извлечена в форме теплоты для эффективного практического использования.

Обозначившийся в начале текущего века переход к самоокупаемым проектам обуславливает актуальность исследований, направленных на повышение эффективности технологий добычи и использования геотермальных ресурсов [14]. В отечественной практике наибольшей тепловой мощностью характеризуются добычные скважины, работающие в режиме парлифта, осуществляющего подъем флюида из продуктивного пласта за счет пластового давления и облегчения флюида в стволе скважины в результате кипения. При этом скважины, обладающие наибольшей производительностью, находятся на Мутновском геотермальном месторождении, обеспечивающем теплоносителем (паром) работу двух электростанций, вырабатывающих более 80 % всей отечественной электроэнергии на геотермальном теплоносителе.

Разработка Мутновского геотермального месторождения, так же как и аналогичных объектов мира, показала актуальность изучения парлифтной технологии добычи, что способно существенно расширить возможности для повышения эффективности технологий разработки месторождений. Например, существует заблуждение о том, что малый диаметр скважины является одной из причин невозможности ее работы в режиме парлифта [15]. Вместе с тем ранее отечественными исследователями отмечалось, что, напротив, завышенный диаметр может служить причиной неспособности скважины к работе [16]. Детальное исследование этого вопроса позволило обосновать и с успехом внедрить способ введения в эксплуатацию скважин, потерявших кондиции, или считавшихся некондиционными, путем уменьшения внутреннего диаметра обсадных колонн [17].

В настоящей работе на примере Мутновского месторождения исследуется возможность повышения эффективности парлифтной добычи геотермального флюида при переходе к освоению более глубоких горизонтов.

# Методика оценки эффективности парлифта

В качестве характеристики подъемной способности парлифта в [18] предложено использовать предельное пластовое давление, соответствующее значению, ниже которого парлифт будет не в состоянии обеспечить подъем глубинного флюида на поверхность, т. е. скважина принципиально не сможет работать на самоизливе за счет парлифта. На основе этого для характеристики эффективности парлифтной добычи предлагается использовать максимальную депрессию в пласте, которую может обеспечить парлифт. Данная величина определяется как разность пластового давления на уровне питания скважины в невозмущенном состоянии (до начала работы) и предельного пластового давления. Следовательно, эта величина определяет принципиальный предел в снижении пластового давления в процессе эксплуатации. Кроме того, поскольку депрессия в пласте, создаваемая на забое скважин, имеет непосредственную связь с расходом добываемого флюида, предложенная величина может быть использована для оценки максимального расхода, который может быть достигнут парлифтной добычей в данных условиях. Причем в этом случае под максимальным расходом следует понимать не расход одиночной скважины, имеющей ограниченную пропускную способность, а расход, который может быть достигнут группой скважин, создающих депрессию в пласте.

На рис. 1 представлена характеристика типовой скважины Мутновского месторождения, отражающая зависимость забойного давления (для исключения

необходимости детализации условий течения в области питания, обычно являющейся неразрешимой задачей, под забойным давлением принимается давление на уровне верхней границы области питания) от расхода (линия 1). Параметры скважины: общая глубина 2000 м, глубина до области питания 1400 м, внутренний диаметр до глубины 1100 м – 0,225 м, в интервале 1100-1400 м - 0,152 м, энтальпия флюида 1200 кДж/кг, устьевое давление 7 бар (принимается постоянным). Расчет давления в скважине на уровне верхней границы области питания проводился с помощью программы WELL-4 [19]. Предельное пластовое давление определяется точкой экстремума на данной характеристике (27 бар). На рис. 1 также обозначен уровень давления в типовой скважине на верхней границе области питания в невозмущенном состоянии (70 бар). Таким образом, максимальная депрессия в пласте, которую может обеспечить парлифт, в данном случае составляет 43 бара.



- Рис. 1. Характеристика типовой скважины Мутновского месторождения (кривая 1) и уровень невозмущенного давления на верхней границе области питания (линия 2)
- Fig. 1. Characteristics of a typical well of the Mutnovskoe field (curve 1) and the level of undisturbed pressure at the upper boundary of the feed area (line 2)

# Оценка максимальной депрессии в пласте при переходе к освоению глубоких горизонтов Мутновского месторождения

Согласно имеющимся данным, Мутновское геотермальное месторождение по типу резервуара относится к классу вододоминирующих. Продуктивный пласт месторождения, исключая некоторые близповерхностные паровые «шапки», содержит однофазный флюид (воду), включает многочисленные продуктивные зоны и имеет субвертикальное расположение. В настоящее время разработка месторождения осуществляется скважинами, имеющими глубину до 2 км, вскрывающими продуктивные зоны в диапазоне глубин от 1 до 2 км. Существенной проблемой разработки месторождения является падение пластового давления ниже предельных значений для устойчивой работы парлифта, что приводит к самозадавливанию добычных скважин и выводу их из эксплуатации. На рис. 2 приведена динамика пластового давления по измерениям в скважине Гео-4 на глубине 1400 м. Скважина находилась в эксплуатации, измерения проводились во время плановых остановов, а в 2018 г. была выведена из эксплуатации.



**Рис. 2.** Изменение давления в скважине Гео-4 на глубине 1400 м

Fig. 2. Pressure change in well Geo-4 at a depth of 1400 m

Как видно из рисунка, давление в пласте в процессе эксплуатации снизилось до значений, менее предельных для ранее рассмотренного примера с типовой скважиной. Отметим, что скважина Гео-4 характеризуется энтальпией, превышающей расчетную для типовой скважины, что снижает предельное пластовое давление [18] по отношению к типовой скважине.

Учитывая данную проблему, в настоящее время организацией, эксплуатирующей месторождение (Филиал ПАО «Камчатскэнерго» Возобновляемая энергетика), рассматривается вопрос о переходе к разработке более глубоких горизонтов скважинами, глубиной 3 и 4 км. Предполагается, что такое решение повысит эффективность парлифта, т. е. увеличит максимальную депрессию, создаваемую скважинами.

Рассмотрим конкретные предложения по переходу к разработке более глубоких горизонтов – скважины 3 и 4 км. Для скважины глубиной 3 км примем конструкцию: глубина до области питания 2400 м, внутренний диаметр от устья до глубины 1000 м – 0,302 м, в интервале 1000–1900 м – 0,225 м, от 1900 м до забоя – 0,152 м. Для скважины глубиной 4 км примем конструкцию: глубина от устья до области питания 3400 м, внутренний диаметр до глубины 1200 м – 0,302 м, в интервале 1200–2600 м – 0,225 м, от 2600 м до забоя – 0,152 м.

В отношении температуры, а следовательно, и энтальпии флюида на рассматриваемых глубинах имеются различные мнения, основанные на результатах математического моделирования геотермального резервуара, – увеличение температуры [20, 21], снижение температуры [22]. Отметим, что результаты математического моделирования имеют связь с качеством и объемом исходных данных. Авторы настоящей работы располагают полным набором данных натурных исследований на месторождении, в отличие от авторов указанных работ, имевших ограниченный доступ к таким данным. При отсутствии прямых измерений температур на рассматриваемых глубинах текущее состояние исследований показывает, что не следует ожидать снижения температуры с глубиной. С учетом этого расчеты для глубоких скважин осуществлялись для двух вариантов: 1) типовое значение на устье существующих скважин энтальпии (1200 кДж/кг), 2) значение, советующего росту температуры в геотермальном резервуаре с геотермическим градиентом 1,6 градусов на 100 м, что соответствует увеличению расчетной энтальпии для скважины 3 км до 1284 кДж/кг, и для скважины 4 км до 1368 кДж/кг.

Результаты расчетов зависимости давления на верхней границе области питания для глубоких скважин представлены на рис. 3, 4. Расчеты выполнялись с помощью программы WELL-4. Во всех случаях устьевое давление принималось постоянным и равным 7 бар. Там же приведены расчетные уровни в невозмущенном состоянии, советующие значению 70 бар на глубине 1400 м, что было принято для типовой скважины. Расчет давления в невозмущенном состоянии осуществлялся с учетом зависимости плотности флюида от температуры. Максимальная депрессия в пласте для скважины 3 км составляет по варианту 1 – 82 бара, по варианту 2 – 96 бар, для скважины 4 км по варианту 1 – 74 бара, по варианту 2 – 143 бара.



Рис. 3. Зависимость давления на верхней границе области питания (забойного давления) от расхода в скважине 3 км: 1 – вариант 1 (энтальпия 1200 кДж/кг), 2 – вариант 2 (энтальпия 1284 кДж/кг), 3 и 4 – уровни в невозмущенном состоянии по вариантам 1 и 2, соответственно

Fig. 3. Dependence of pressure at the upper boundary of the feed area (bottomhole pressure) on the flow rate in the well 3 km: 1 – option 1 (enthalpy 1200 kJ/kg), 2 – option 2 (enthalpy 1284 kJ/kg), 3 and 4 – levels in undisturbed state according to options 1 and 2, respectively



- Рис. 4. Зависимость давления на верхней границе области питания (забойного давления) от расхода в скважине 4 км: 1 – вариант 1 (энтальпия 1200 кДж/кг), 2 – вариант 2 (энтальпия 1368 кДж/кг), 3 и 4 – уровни в невозмущенном состоянии по вариантам 1 и 2, соответственно
- Fig. 4. Dependence of pressure at the upper boundary of the recharge area (bottomhole pressure) on the flow rate in the 4 km well: 1 – option 1 (enthalpy 1200 kJ/kg), 2 – option 2 (enthalpy 1368 kJ/kg), 3 and 4 – levels in undisturbed state according to options 1 and 2, respectively

#### Обсуждение полученных результатов

Напомним, максимальная депрессия в пласте, которую может обеспечить парлифт в типовой скважине Мутновского месторождения глубиной 2 км составляет 43 бара. При увеличении глубины до 3 км максимальная депрессия вырастает до 82 бар по варианту 1, до 96 бар по варианту 2. То есть приближенно следует ожидать увеличения максимальной депрессии в два раза. Данный эффект достигается увеличением (удлинением) области двухфазного (пароводяного) течения в скважине. Характерные для пароводяного потока градиенты давления существенно ниже гидростатического градиента давления в однофазном (водяном) геотермальном резервуаре. В результате чем больше будет область пароводяного течения в скважине, тем больше будет создаваться депрессия на забое.

Согласно классическим представлениям динамики подземных вод [23], рост депрессии в два раза в условиях стационарной фильтрации увеличивает расход добычи в два раза. Мутновское месторождение является сложным, эволюционирующим в процессе (и в результате) эксплуатации объектом, и стационарность фильтрации в нем может быть принята с большой долей условности. Тем не менее можно однозначно утверждать – переход к освоению горизонтов до 3 км способен существенно повысить эффективность парлифтной добычи, что позволит увеличить как объем добычи, так и срок эксплуатации месторождения.

При увеличении глубины до 4 км максимальная депрессия увеличивается по варианту 1 до 74 бар, по варианту 2 до 143 бар. Следует отметить, что по варианту 1 увеличение депрессии оказалось меньше по сравнению с аналогичным вариантом для скважины 3 км. Как показали расчеты по варианту 1, область двухфазного течения в скважине 4 км не опускается ниже 2450 м, т. е. ниже этой отметки имеет место однофазное (водяное) течение. Дальнейшее увеличение глубины скважины расширяет область однофазного течения, в котором градиенты давления выше гидростатического градиента в резервуаре за счет дополнительного влияния потерь на трение при течении в скважине. Наличие градиентов давления в скважине, превышающих гидростатический градиент давления в резервуаре, негативно отражается на величине создаваемой депрессии.

Если область двухфазного течения распространяется не на всю скважину, ее размер существенно зависит от давления, при котором начинается кипение (давление насыщения), а это давление зависит от начальной температуры воды – чем выше начальная температура воды, тем выше давление насыщения и тем больше область двухфазного течения. Следовательно, если при увеличении глубины температура резервуара не будет возрастать, бурение скважины глубже 3 км не даст положительного эффекта.

Рост температуры воды в резервуаре согласно наиболее вероятному варианту 2 дает увеличение максимальной депрессии в 3,3 раза. Отдельный расчет показал, что даже небольшой рост температуры, соответствующий геотермическому градиенту 0,8 градусов на 100 м, увеличит максимальную депрессию до 121 бара. То есть с высокой долей вероятности можно утверждать, что бурение скважин до 4 км позволит еще больше повысить эффективность разработки месторождения. Окончательный вывод в этом случае можно будет сделать только при получении достоверных данных о температурах в резервуаре на соответствующих глубинах.

Рассматривая вопрос об освоении глубоких горизонтов геотермальных месторождений, необходимо иметь в виду важный аспект – геотермальные ресурсы определяются не только энергией глубинных флюидов, но и энергией вмещающих пород. Увеличение глубины добычных скважин способствует вовлечению в осваиваемые ресурсы большего объема массива пород. Это, так же как и оценка повышения эффективности парлифта, является существенным аргументом в пользу перехода к разработке глубоких горизонтов Мутновского месторождения.

#### Заключение

Проведенные исследования показали:

- Разработка более глубоких горизонтов Мутновского месторождения скважинами до 3 км, при существующей глубине освоения до 2 км, позволит существенно повысить эффективности парлифтной добычи, увеличив максимальную депрессию в пласте, создаваемую добычными скважинами, примерно в два раза.
- Увеличение глубины освоения Мутновского месторождения до 4 км целесообразно в случае наличия роста температуры резервуара на планируемой к освоению глубине. Так, в случае роста температуры по наиболее вероятному варианту (с

геотермическим градиентом 1,6 градусов на 100 м) максимальная депрессия увеличится, по сравнению с существующим состоянием, в 3,3 раза.

Полученные результаты, а также возможность увеличения ресурсов месторождения за счет вовлече-

# СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Bertani R. Geothermal power generation in the world 2010–2014 update report // Geothermics. – 2016. – V. 60. – P. 31–43.
- Lund J.W., Boyd T.L. Direct utilization of geothermal energy 2015 worldwide review // Geothermics. – 2016. – V. 60. – P. 66–93.
- Renaud T., Verdin P., Falcone G. Numerical simulation of a deep borehole heat exchanger in the Krafla geothermal system // International Journal of Heat and Mass Transfer. – 2019. – V. 143. – № 118496. – P. 1–11.
- Kayaci N., Demir H. Comparative performance analysis of building foundation Ground heat exchanger // Geothermics. – 2020. – V. 83. – № 101710. – P. 1–16.
- Kumar S., Murugesan K. Optimization of geothermal interaction of a double U-tube borehole heat exchanger for space heating and cooling applications using Taguchi method and utility concept // Geothermics. – 2020. – V. 83. – № 101723. – P. 1–17.
- Moore K.R., Hollander H.M. Evaluation of NaCl and MgCl<sub>2</sub> heat exchange fluids in a deep binary geothermal system in a sedimentary halite formation // Geothermal Energy. – 2021. – V. 9. – № 8. – P. 1–23.
- Luo Y., Yan T., Yu J. Integrated analytical modeling of transient heat transfer inside and outside U-tube ground heat exchanger: a new angle from composite-medium method // International Journal of Heat and Mass Transfer. – 2020. – V. 162. – № 120373. – P. 1–16.
- ГОСТ Р 56909-2016. Нетрадиционные технологии. Геотермальная энергетика. Термины и определения. – М.: Стандартинформ, 2016. – 12 с.
- Кирюхин А.В. Геотермофлюидомеханика гидротермальных, вулканических и углеводородных систем. – СПб.: Эко-Вектор Ай-Пи, 2020. – 431 с.
- Дядькин Ю.Д. Разработка геотермальных месторождений. М.: Недра, 1989. – 229 с.
- Numerical evaluation of hot dry rock reservoir through stimulation and heat extraction using a three-dimensional anisotropic coupled THM model / J. Liao, Z. Hou, M. Haris, Y. Tao, Y. Xie, Y. Yue // Geothermics. – 2020. – V. 83. – № 101729. – P. 1–1.
- Geologic setting of the potential EGS site at the Gonghe Basin, China: suitability for research and demonstration of Hot Dry Rock geothermal energy development / T. Xu, X. Liang, B. Feng, Z. Jiang // Proceedings, 44th Workshop on Geothermal Reservoir Engineering, Stanford University. – Stanford, California, 2019. – 6 p.

ния в разработку энергии большего объема массива вмещающих пород обосновывают технологическую целесообразность постановки вопроса о переходе к разработке более глубоких горизонтов на Мутновском месторождении.

- Zhang Y., Feng J., Wu X. Analysis of HDR resources development potential in North China // Proceedings, 44th Workshop on Geothermal Reservoir Engineering, Stanford University. – Stanford, California, 2019. – 6 p.
- Шулюпин А.Н., Варламова Н.Н. Современные тенденции в освоении геотермальных ресурсов // Георесурсы. – 2020. – Т. 22. – № 4. – С. 113–122.
- Mubarok M.H., Zarrouk S.J. Discharge stimulation of geothermal wells: overview and analysis // Geothermics. – 2017. – V. 70. – P. 17–37.
- Паужетские горячие воды на Камчатке / под ред. В.И. Пийпа. М.: Наука, 1965. – 208 с.
- Shulyupin A.N., Chernev I.I. Some methods for reducing of steam deficit at geothermal power plants exploitation: Experience of Kamchatka (Russia) // Geothermal Energy. – 2015. – V. 3. – № 23. – P. 1–11.
- Васянович Ю.А., Шулюпин А.Н., Варламова Н.Н. Оценка предельного пластового давления для парлифтной добычи флюида на Мутновском геотермальном месторождении // Горный информационно-аналитический бюллетень. – 2019. – № 8. – Спец. вып. 30: Проблемы освоения георесурсов Дальнего Востока. – С. 25–32.
- Шулюпин А.Н., Чермошенцева А.А. Семейство математических моделей WELL-4 для расчета течений в пароводяных геотермальных скважинах // Математическое моделирование. – 2016. – Т. 28. – № 7. – С. 56–64.
- Пашкевич Р.И. Научно-техническое обоснование рациональных параметров теплопереноса и фильтрации двухфазного теплоносителя при освоении геотермальных месторождений Камчатки: автореф. дис. ... д-ра техн. наук. – Хабаровск, 2009. – 39 с.
- Кирюхин А.В., Сугробов В.М. Геотермальные ресурсы Камчатки и ближайшие перспективы их освоения // Вулканология и сейсмология. 2019. № 6. С. 50–65.
- Поляков А.Ю. Анализ условий водного и газового питания Мутновского геотермального резервуара (Камчатка): автореф. дис. ... канд. техн. наук. – СПб., 2018. – 24 с.
- Мироненко В.А. Динамика подземных вод. М.: Горная книга, 2009. 519 с.

Поступила 18.08.2021 г.

# Информация об авторах

Шулюпин А.Н., доктор технических наук, директор Института горного дела ДВО РАН.

Любин А.А., директор Филиала ПАО «Камчатскэнерго» Возобновляемая энергетика.

**Чернев И.И.**, кандидат технических наук, заместитель главного инженера Филиала ПАО «Камчатскэнерго» Возобновляемая энергетика.

#### UDC 622.06

# ASSESSMENT OF THE EFFICIENCY OF STEAM-LITE FLUID PRODUCTION AT THE MUTNOVSKOE GEOTHERMAL FIELD (KAMCHATKA) IN THE DEVELOPMENT OF DEEP HORIZONS

# Aleksandr N. Shulyupin<sup>1</sup>,

ans714@mail.ru

# Aleksey A. Lyubin<sup>2</sup>,

Lyubin-AA@kamenergo.ru

# Ivan I. Chernev<sup>2</sup>,

Chernev-II@kamenergo.ru

<sup>1</sup> Mining Institute of the Far Eastern Branch of the Russian Academy of Sciences, 51, Turgenev street, Khabarovsk, 680000, Russia.

<sup>2</sup> Renewable Energy Branch of Kamchatskenergo, 60, Academician Korolev street, Petropavlovsk-Kamchatsky, 680009, Russia.

The relevance of the research is caused by the need to expand the resource base of the Mutnovskoe geothermal field (Kamchatka) in order to fill the heat carrier deficit at existing geothermal power plants and increase the capacity of the plants.

The main aim of the research is to assess the efficiency of steam-lite fluid production at the Mutnovskoe geothermal field (Kamchatka) in the development of deep horizons (by wells having deep of 3 and 4 km at existing developing deep of 2 km).

**Methods:** theoretical substantiation of the efficiency indicator for steam-lift production of geothermal fluid; mathematical modeling of the flow in a production steam-lift well with the existing typical design (2 km deep), as well as in wells planned for drilling with depth of 3 and 4 km; analysis of simulation results.

**Results.** The use of the maximum depression in the reservoir, which can be provided by the steam-lift technology of production, was substantiated as an indicator of the steam-lift efficiency; it was found that the development of deeper horizons of the Mutnovskoe field with wells up to 3 km, with the existing development depth of up to 2 km, will significantly increase the efficiency of steam-lift production, increasing the maximum drawdown in the reservoir created by production wells by about two times; it was found that the increase in the development depth of the Mutnovskoe field to 4 km is advisable if there is an increase in the temperature of the reservoir at the depth planned for development, so, in the case of temperature growth according to the most probable option (with a geothermal gradient of 1,6 degrees per 100 m), the maximum depression will increase, in cimparison with the existing state, by 3,3 times.

**Conclusion.** The results obtained indicate the technological feasibility of raising the question of the transition at the Mutnovskoe geothermal field to the development of deeper horizons.

#### Key words:

Geothermal resources, field, well, steam-lift, reservoir, maximum depression.

# REFERENCES

- 1. Bertani R. Geothermal power generation in the world 2010–2014 update report. *Geothermics*, 2016, vol. 60, pp. 31–43.
- Lund J.W., Boyd T.L. Direct utilization of geothermal energy 2015 worldwide review. *Geothermics*, 2016, vol. 60, pp. 66–93.
- Renaud T., Verdin P., Falcone G. Numerical simulation of a deep borehole heat exchanger in the Krafla geothermal system. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2019, vol. 143, no. 118496, pp. 1–11.
- Kayaci N., Demir H. Comparative performance analysis of building foundation Ground heat exchanger. *Geothermics*, 2020, vol. 83, no. 101710, pp. 1–16.
- Kumar S., Murugesan K. Optimization of geothermal interaction of a double U-tube borehole heat exchanger for space heating and cooling applications using Taguchi method and utility concept. *Geothermics*, 2020, vol. 83, no. 101723, pp. 1–17.
- Moore K.R., Hollander H. M. Evaluation of NaCl and MgCl2 heat exchange fluids in a deep binary geothermal system in a sedimentary halite formation. *Geotherm Energy*, 2021, vol. 9, no. 8, pp. 1–23.
- Luo Y., Yan T., Yu J. Integrated analytical modeling of transient heat transfer inside and outside U-tube ground heat exchanger: a new angle from composite-medium method. *International Journal* of Heat and Mass Transfer, 2020, vol. 162, no. 120373, pp. 1–16.
- GOST R 56909-2016. Netraditsionnye tekhnologii. Geotermalnaya energetika. Terminy i opredeleniya [State Standard R 56909-2016. Unconventional technology. Geothermal

energy. Terms and definitions]. Moscow, StandardInform Publ., 2016. 12 p.

- Kiryukhin A.V. Geotermoflyuidomekhanika gidrotermalnykh, vulkanicheskikh i uglevodorodnykh sistem [Geothermofluidemechanics of hydrothermal, volcanic and hydrocarbon systems]. St-Petersburg, Eko-Vektor I P Publ., 2020. 431 p.
- Dyadkin Yu.D. Razrabotka geotermalnykh mestorozhdeniy [Development of geothermal fields]. Moscow, Nedra Publ., 1989. 229 p.
- 11. Liao J., Hou Z., Haris M., Tao Y., Xie Y., Yue Y. Numerical evaluation of hot dry rock reservoir through stimulation and heat extraction using a three-dimensional anisotropic coupled THM model. *Geothermics*, 2020, vol. 83, no. 101729, pp. 1–15.
- 12. Xu T., Liang X., Feng B., Jiang Z. Geologic setting of the potential EGS Site at the Gonghe Basin, China: Suitability for research and demonstration of hot dry rock geothermal energy development. *Proceedings, 44th Workshop on Geothermal Reservoir Engineering.* Stanford, California, 2019. 6 p.
- Zhang Y., Feng J., Wu X. Analysis of HDR resources development potential in North China. *Proceedings*, 44th Workshop on Geothermal Reservoir Engineering. Stanford, California, 2019. 6 p.
- Shulyupin A.N., Varlamova N.N. Current trends in the development of geothermal resources. *Georesursy = Georesources*, 2020, vol. 22, no. 4, pp. 113–122. In Rus.
- Mubarok M.H., Zarrouk S.J. Discharge stimulation of geothermal wells: overview and analysis. *Geothermics*, 2017, vol. 70. pp. 17–37.
- Pauzhetskie goryachie vody na Kamchatke [Pauzhetka hot waters in Kamchatka]. Ed. by V.I. Piyp. Moscow, Nauka Publ., 1965. 208 p.
- Shulyupin A.N., Chernev I.I. Some methods for reducing of steam deficit at geothermal power plants exploitation: Experience of Kamchatka (Russia). *Geothermal Energy*, 2015, vol. 3, no. 23, pp. 1–11.
- Vasyanovich Yu.A., Shulyupin A.N., Varlamova N.N. Assessment of the maximum aquifer pressure for the steam-lift fluid extraction at the Mutnovskoe geothermal field. *Mining informational and analytical bulletin*, 2019, no. 8, special. vol. 30 (Problems of georesources development of the Far East), pp. 25–32. In Rus.
- Shulyupin A.N., Chermoshentseva A.A. The collection of mathematical models of WELL-4 for the calculation of flows in steam-water geothermal wells. *Mathematical Models and Computer Simulations*, 2017, vol. 9, no. 1, pp. 127–132.
- 20. Pashkevich R.I. Nauchno-tekhnicheskoe obosnovanie ratsionalnykh parametrov teploperenosa i filtratsii dvukhfaznogo teplonositelya pri osvoenii geotermalnykh mestorozhdeniy

*Kamchatki*. Avtoreferat Dis. Dokt. nauk [Scientific and technical justification for the rational parameters of heat transfer and filtration of two-phase coolant in the development of geothermal fields of Kamchatka. Dr. Diss. Abstract]. Khabarovsk, 2009. 39 p.

- Kiryukhin A.V., Sugrobov V.M. Geothermal resources of Kamchatka and the immediate prospects of their extraction. *Journal of Volcanology and Seismology*, 2019, vol. 13, no. 6, pp. 389–402.
- 22. Polyakov A.Yu. Analiz usloviy vodnogo i gazovogo pitaniya Mutnovskogo geotermalnogo rezervuara (Kamchatka). Avtoreferat Dis. Kand. nauk [Analysis of water and gas supply conditions of the Mutnovsky Geothermal Reservoir (Kamchatka). Cand. Diss. Abstract]. Sankt-Petersburg, 2018. 24 p.
- Mironenko V.A. Dinamika podzemnykh vod [Groundwater Dynamics]. Moscow, Gornaya Kniga Publ., 2009. 519 p.

Received: 18 August 2021.

#### Information about the authors

Aleksandr N. Shulyupin, Dr. Sc., director, Mining Institute of the Far Eastern Branch of the Russian Academy of Sciences.

Aleksey A. Lyubin, director, Renewable Energy Branch of Kamchatskenergo.

Ivan I. Chernev, Cand Sc., deputy chief engineer, Renewable Energy Branch of Kamchatskenergo.

УДК 551.311.231:553.086

### ХАРАКТЕР РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ФОСФАТОВ В ЗОЛОТОНОСНЫХ КОРАХ ВЫВЕТРИВАНИЯ ТОМСКОГО РАЙОНА

#### Янченко Ольга Михайловна1,

olmininayanchenko@mail.ru

#### Тимкин Тимофей Васильевич<sup>1</sup>,

timkin@tpu.ru

Ворошилов Валерий Гаврилович<sup>1</sup>, v q v@tpu.ru

**Якич Тамара Юрьевна**<sup>1</sup>, cherkasovatu@tpu.ru

#### Мансур Зиаии<sup>1</sup>,

m.ziaii47@gmail.com

- <sup>1</sup> Национальный исследовательский Томский политехнический университет, Россия, 634050, г. Томск, пр. Ленина, 30.
- <sup>2</sup> Шахрудский технологический университет, Иран, 3619995161, Болвар Данешка, Шахруд.

В Томском районе коры выветривания развиты очень широко, установлена их золотоносность, но детального изучения минерального состава ранее не проводилось. Актуальность исследования обусловлена необходимостью выявления условий формирования кор выветривания и установления закономерностей накопления в них широкого круга минералов.

**Цель:** изучение морфологических и химических особенностей, парагенетических ассоциаций и распространения минералов группы фосфатов, разделение на первичные, преобразованные и новообразованные, использование фосфатов в качестве минералов-индикаторов условий формирования кор выветривания и связи их с распространением золота.

**Объект:** остаточные и переотложенные коры выветривания Томского района и содержащиеся в них минералы группы фосфатов.

**Методы.** Кристалломорфологические особенности минералов группы фосфатов, их парагенетические ассоциации изучались микроскопически при помощи стереомикроскопа OLYMPUS SZX10, химический состав минералов определялся на РФА микроскопе HORIBA X-Ray Analytical Microscope XGT 7200 и сканирующем электронном микроскопе TESCAN VEGA 3 SBU с ЭДС ОХFORD X-Max 50.

**Результаты.** В корах выветривания Томского района установлены: 1) фосфаты группы апатита, 2) ортофосфаты редкоземельных элементов и тория и 3) алюмофосфаты группы крандаллита. По генетическому признаку фосфатные минералы разделены на группы: а) первичные терригенные фосфаты, устойчивые в корах выветривания и выделившиеся при разрушении коренных пород (монацит, ксенотим, anamum), б) преобразованные, измененные в процессе выветривания (монацит), и в) новообразованные, образованные в процессе формирования кор выветривания (монацит, куларит, флоренсит, крандаллит, гояцит, горсейксит, плюмбогуммит). Установленные в различных зонах коры выветривания ассоциации фосфатов большей частью представляют собой звенья последовательного преобразования минералов от кальциевых и редкоземельных фосфатов к алюминиевым, указывающего на возрастание кислотности среды минералобразования. В верхней части зоны гидролиза остаточной коры выветривания отмечается наибольшее накопление золота.

#### Ключевые слова:

Фосфаты, кора выветривания, минералогический анализ, сканирующая электронная микроскопия, Кольвань-Томская складчатая зона, Томский район.

#### Введение

В настоящее время в природе известно около 200 минералов, содержащих пятиокись фосфора ( $P_2O_5$ ) в количестве 1 % и более [1–6]. Фосфор как химический элемент может быть либо отрицательно трехвалентным, либо положительно пятивалентным. В земной коре содержится около 0,12 % (масс.) фосфора в связанном состоянии в виде солей – фосфатов. В состав фосфатов элемент входит в высшем валентном состоянии  $P^{5+}$ , связываясь с кислородом и образуя комплексный анион [ $PO_4$ ]<sup>3-</sup>. Основные природные соединения фосфора – фосфаты кальция Ca<sub>5</sub>[ $PO_4$ ,CO<sub>3</sub>]<sub>3</sub>(F,Cl,OH) (минералы группы апатита) [2]. Фосфаты и родствен-

ные им минералы – сравнительно сложные по составу соединения, поэтому кристаллизуются в низших сингониях. В соответствии с общим химизмом и количеством главных катионов формулы фосфатов сводятся к следующим типам:  $A_m[XO_4]_p$ ,  $A_m[XO_4]_pZ_q \cdot H_2O$  и  $A_mB_n[XO_4]_pZ_q \cdot H_2O$ . Второй тип соответствует двойным соединениям. В обобщенных формулах группа  $XO_4$  представлена  $PO_4^{3-}$  либо добавочными анионами  $SO_4^{2-}$ ,  $SiO_4^{2-}$ ,  $AsO_4^{3-}$ ,  $CO_3^{2-}$ ,  $SbO_4^{3-}$ ,  $CrO_4^{2-}$ , Z - OH, F, Cl или O; A, B – металлы [3]. Широкое распространение фосфатных минералов в различных геологических средах и уникальные химические особенности привлекают к ним внимание ученых на протяжении многих лет. Не-

смотря на это, вопросы изучения фосфатных минералов остаются актуальными в аспекте их использования в различных отраслях [7–13], для палеогеографических реконструкций и расшифровки условий образования горных пород [14, 15]. С прикладной точки зрения основная область применения фосфатов - это сельское хозяйство, где они используются в качестве минеральных удобрений [12, 13, 16-20], достаточно широко фосфаты применяются также в чёрной и цветной металлургии [21-23], в производстве керамики и стекла [24-26]. Фосфатные минералы формируются в абсолютном большинстве геохимических обстановок поэтому являются ценными индикаторами режима осадконакопления [27, 28] взаимодействия этих осадков с магматическими породами в процессе рудообразования [29], а некоторые из них могут служить для геохронологической датировки абсолютного геологического возраста U-Th-Pb методом [30-32]. Этот далеко неполный перечень типоморфных особенностей фосфатов указывает на важность исследования минералов этой группы в различных геологических обстановках.

В Томском районе коры выветривания развиты очень широко. В результате геологоразведочных работ, вы-

полненных ООО ГРК «Геосфера» в 2013–2015 гг. в пределах Колбихинской площади, и проведенных в дальнейшем научных исследований установлена золотоносность кор выветривания [33–35]. Данная статья посвящена детальному исследованию минералов группы фосфатов в золотоносных корах выветривания Томского района. Изучении тонкой минералогии нередко играет важную роль при уточнии процессов рудообразования и технологий извлечения золота [36–38].

Цель работы заключается в изучении морфологических и химических особенностей, парагенетических ассоциаций и распространения минералов группы фосфатов, разделении на первичные, преобразованные и новообразованные и использовании их в качестве минералов-индикаторов условий формирования кор выветривания.

#### Объект исследования

Объектом исследования послужили мел-палеогеновые золотоносные коры выветривания Колбихинской перспективной площади. Площадь располагается в Томской области, в 25 км к востоку от г. Томска (рис. 1, *a*, *b*).



**Рис. 1.** а, b) обзорные схемы расположения изучаемого района; c) геологическая карта Колбихинской площади с областями распространения площадных кор выветривания

Fig. 1. a, b) overview diagrams of the study area location; c) geological map of the Kolbikhinskaya area with areas of distribution of areal weathering crusts

#### Геологическое строение

В региональном плане Томский район находится в зоне сочленения крупных геологических структур – Колывань-Томской складчатой зоны, Западно-Сибирской плиты и Кузнецкого Алатау.

Коры выветривания сформированы по вулканогенным и терригенным породам и дайкам различного состава (рис. 1, с). Вулканогенные породы среднедевонского возраста представлены отложениями митрофановской свиты (D<sub>2</sub>mt), сложенной преимущественно лавами базальтов, базальтовых порфиритов и их туфами, в подчиненном количестве в составе наблюдаются кислые вулканиты (риолиты, риодациты), линзы известняков и известковистые туфоосадочные породы. В зонах повышенной тектонической проницаемости породы свиты преобразованы в метабазальты и метаморфизованы до хлорит-серицитовых сланцев. Терригенные породы на площади работ представлены пачинской, юргинской свитами, нерасчлененной саламатовской и ярской толщей, лагерносадской и басандайской свитами. Пачинская свита (D<sub>3</sub>pč) подразделена на три подсвиты. В составе нижней подсвиты доминируют аргиллиты кремнистого состава с тонкими прослоями алевролитов и слабосортированных кварцполевошпатовых песчаников с незначительным количеством туфогенного материала. Средняя подсвита представлена битуминозными аргиллитами и алевролитами с конкрециями фосфоритов. Верхняя подсвита сложена серыми алевролитами с редкими прослоями глинистых и алевритистых известняков. В зонах тектонических нарушений породы свиты преобразованы в филлиты. Юргинская свита (D<sub>3</sub>jur) сложена породами двух подсвит. В составе нижней подсвиты наблюдаются мелко-, средне- грубозернистые, гравелитистые кварц-полевошпатовые, полимиктовые песчаники с подчиненными прослоями алевролитов, аргиллитов и глинистых сланцев. В состав саламатовской и ярской толщи (D<sub>3</sub>sl-C<sub>1</sub>jar) входят алеврито-глинистые, известково-глинистые, углеродисто-глинистые сланцы и глинистые, слабоизвестковистые алевролиты. В зонах метаморфизма породы часто филлитизированы. В составе толщи наблюдаются маломощные прослои тонко- и мелкозернистых известковистых полевошпаткварцевых песчаников. Лагерносадская свита (C<sub>1</sub>lg) представлена алеврито-глинистыми, иногда углистоглинистыми сланцами с прослоями мелкозернистых песчаников и алевролитов. Басандайская свита (C<sub>1-2</sub>bs) представлена средне-, мелко- и крупнозернистыми, массивными песчаниками с кварц-полевошпатовым, аркозовым иногда полимиктовым составом с примесью известковистого материала в цементе, в подчиненном количестве встречаются прослои алевролитов и глинистых сланцев.

Интрузивные образования представлены дайками томского ареала изылинского базитового комплекса ( $\mu$ - $\epsilon$ vT<sub>1-2</sub>t) (рис. 1, *c*). Дайки характеризуются значительным петрографическим разнообразием пород. Среди них выделяются долериты, монцониты и гибридные породы. Возраст даек Томского района ранне-среднетриасовый, что обосновывается их сход-

ством с кузбасскими траппами, секущим положением по отношению к складчатым структурам Колывань-Томской зоны и изотопно-геохронологическими данными (243–238 млн лет).

По генезису образовавшиеся коры выветривания делятся на остаточные (ОКВ) и переотложенные (ПКВ), по морфологии распространения – на площадные и линейные (рис. 1, *c*).

Площадные и линейные остаточные коры выветривания имеют зональное строение. В нижней части остаточных кор выветривания всегда залегает горизонт слабовыветрелых трещиноватых коренных пород (зона дезинтеграции), замещенных по трещинам гидрослюдами и хлоритом. Отмечается, что в строении площадных кор выветривания, помимо зоны дезинтеграции, выделяется зона гидратации, представленная преимущественно гидрослюдистыми глинами с дресвой и щебнем выветрелых пород и кварца. Мощность площадных кор выветривания достигает 10 м.

Линейные коры выветривания связаны с зонами повышенной тектонической проницаемости палеозойских пород, которые часто приурочены к участкам пересечения дайковых поясов с зонами трещиноватости и разрывных нарушений, вмещающими послойную кварцевую минерализацию. В строении линейных кор выветривания отмечаются зоны дезинтеграции и гидратации, а также зона гидролиза. Зона гидролиза исходных пород представлена глинами каолинит-гидрослюдистого состава. Глины преимущественно бесструктурные, участками со слабо выраженной реликтовой сланцеватостью. Мощность линейных кор выветривания составляет около 30 м.

В результате эрозии остаточных кор выветривания и плоскостного делювиального смыва происходит переотложение остаточных кор выветривания в виде аллювиально-пролювиальных отложений. Продукты переотложения остаточных кор выветривания представлены пестрыми бесструктурными глинами. Наибольшие содержания золота приурочены именно к переотложенной коре выветривания и зоне гидролиза остаточной коры выветривания [34]. Среди спутников золота установлены минералы группы карбонатов, сульфидов, фосфатов, окислов титана.

#### Материалы и методы исследования

Исходным материалом для исследования минералов послужили концентраты керновых и групповых проб весом 1–80 кг из керна скважин Колбихинской площади (рис. 1, *c*).

Минеральный и химический состав исследуемых проб изучался с использованием классического минералогического анализа, рентгено-флуоресцентного анализа (РФА) и сканирующей электронной микроскопии (СЭМ).

Минералогический анализ проведен по следующей методике: дробление исходной породы, двукратное обогащение на центробежном концентраторе Пугачева, рассев на фракции по размерности на ситах 1; 0,5; 0,25; 0,1 мм. Далее выделение тяжелой фракции минералов в бромоформе, разделение тяжелой фракции на неэлектромагнитную и электромагнитную фракции, изучение минерального состава под бинокуляром Olympus SZX. РФА выполнялся с использованием микроанализатора HORIBA X-Ray Analytical Microscope XGT 7200, оснащенного энергодисперсионным детектором с пространственным разрешением до 10 мкм. СЭМ проводился с использованием микроскопа TESCAN VEGA 3 SBU с энергодисперсионной приставкой фирмы Oxford X-Max 50. Ускоряющее напряжение для СЭМ съемки и анализа было 20 кВ с интенсивностью тока зонда в пределах 4–15 нА.

#### Результаты

В корах выветривания Томского района установлены: 1) фосфаты группы апатита; 2) ортофосфаты редкоземельных элементов и тория; 3) алюмофосфаты группы крандаллита. По генетическому признаку фосфатные минералы разделены на группы: а) первичные терригенные фосфаты, устойчивые в корах выветривания и выделившиеся при разрушении коренных пород (монацит, ксенотим, апатит); б) преобразованные, измененные в процессе выветривания (монацит); в) новообразованные, образованные в процессе формирования кор выветривания (монацит, куларит, флоренсит, крандаллит, гояцит, горсейксит, плюмбогуммит).

*Апатит* отмечается во всех частях разреза коры выветривания и по происхождению является первичным обломочным.

В зонах гидратации и гидролиза минерал присутствует в виде мелких, размером менее 0,1...0,05 мм, бесцветных прозрачных хорошо ограненных кристаллов гексагональной призмы, трещиноватых обломков удлиненной и неправильной формы, в виде включений в кубических кристаллах пирита со ступенчатым ростом граней, в окатанном цирконе и обломках магматических пород. Совместно с апатитом в кристаллах пирита встречаются удлиненные чешуйки гидрослюд, игольчатые кристаллы рутила, удлиненные зерна плагиоклаза. В магматических породах апатит встречается совместно с кварцем, калиевым полевым шпатом, хлоритом, сфеном, карбонатом, пироксеном и цирконом (рис. 2, a-d).

Кристаллохимические формулы апатита:

- а) из зоны дезинтеграции:
  - 1)  $Ca_{10.14}[P_{6.32}O_{26.00}](F_{?});$
  - 2)  $Ca_{10.09}[P_{6.20}Si_{0.14}O_{25.91}](F_{?}Cl_{0.09}).$
- б) из зоны гидратации:
  - 1)  $Ca_{9.17}[P_{5.74}S_{0.22}Si_{0.19}O_{23.75}](F_{2.25});$
  - 2)  $Ca_{9.25}[P_{5.493}Si_{0.20}S_{0.09}O_{23.72}](F_{2.28}).$
- в) из зоны гидролиза:
  - 1)  $Ca_{9.75}[P_{6.09}O_{24.25}](F_{1.75});$
  - 2)  $Ca_{9.68}[P_{6.11}O_{24.11}](F_{1.89});$
  - 3)  $Ca_{8.96}[P_{5.79}Si_{0.38}S_{0.10}O_{23.98}](F_{2.02});$
  - 4)  $Ca_{8.86}[P_{5.63}Si_{0.84}O_{23.68}](F_{2.32}).$



Рис. 2. Морфология и парагенетические ассоциации апатита: включения гексагональных призм апатита в кубических кристаллах пирита (a, c), в обломке магматической породы (d), в цирконе (e), сфене (f); интенсивно трещиноватый призматический кристалл апатита с микроскопическими включениями монацита и галенита (b) (зона гидратации (a, b), зона гидролиза (c, d) ОКВ, ПКВ (e, f))

Fig. 2. Morphology and paragenetic associations of apatite: inclusions of hexagonal prisms of apatite in cubic pyrite crystals (a, c), in a fragment of igneous rock (d), in zircon (e), sphene (f); intensely fractured prismatic apatite crystal with microscopic inclusions of monazite and galena (b) (hydration zone (a, b), hydrolysis zone (c, d) residual weathering crust, redeposited weathering crust (e, f))

В переотложенной коре выветривания *апатит* встречается в виде единичных окатанных обломков изометричной или удлиненной формы размером до 0,5 мм, включений призматических кристаллов и неправильных зерен размером менее 0,02–0,01 мм в кубических кристаллах пирита, обломках дайки, сфене, цирконе (рис. 2, *e*, *f*).

Кристаллохимические формулы апатита переотложенной коры выветривания:

- 1)  $(Ca_{9.71}Mn_{0.05}Sr_{0.02})_{9.78}[P_{5.81}Si_{0.16}S_{0.22}O_{25.99}](F_{?}Cl_{0.01});$
- 2)  $Ca_{9.41}[P_{6.03}Si_{0.18}O_{24.09}](F_{1.91});$
- 3)  $Ca_{9.50}[P_{5.94}O_{24.22}](F_{1.78});$
- 4)  $Ca_{9.45}[P_{5.97}Si_{0.10}S_{0.08}O_{24.10}](F_{1.90});$
- 5)  $Ca_{9.66}[P_{6.05}Si_{0.11}O_{24.15}](F_{1.85});$
- 6)  $Ca_{9.04}[P_{5.11}O_{24.50}](F_{1.50});$
- 7)  $Ca_{9,10}[P_{5,94}Si_{0,59}O_{24,28}](F_{1,68}Cl_{0,04});$
- 8)  $Ca_{8.07}[P_{5.51}Si_{1.64}O_{24.68}](F_{1.32}).$

 Таблица 1. Химический состав апатита

 Table 1.
 Chemical composition of apatite

Все изученные апатиты по составу соответствуют фтор-апатитам с содержанием фтора 2,58-4,40 %. В единичных зернах минерала установлено незначительное содержание хлора (до 0,33 %). В химическом составе наблюдаются некоторые вариации в средних содержаниях оксида кальция 51,48-53,82 % и оксида фосфора 40,16-43,47 %, значительное увеличение содержания CaO до 55,72 % и P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> до 43,93 % в апатитах зоны дезинтеграции обусловлено тем, что здесь не установлено содержание фтора (табл. 1). Также значительные расхождения в составе обусловлены примесями элементов, входящих в состав вмещающих апатит минералов – пирита, циркона, сфена. В зоне гидратации в единичных трещиноватых обломках апатита установлены микроскопические включения галенита размером менее 0,003 мм и монацита размером менее 0,001 мм, вследствие чего в составе апатита устанавливаются примеси церия и неодима.

| Зона коры                          |                    | сора выве                     |                        |                   |  |            |                           |            |  |
|------------------------------------|--------------------|-------------------------------|------------------------|-------------------|--|------------|---------------------------|------------|--|
| выветри-                           |                    | Residual                      | weatherin              | g crust           | -                                      | _          |                           |            |  |
| вания                              | Зона дезинте-      |                               |                        |                   | Зона гид-                              | П          | ереотложенная             | кора вын   | ветривания   |
| Weathering                         | грации             | Зон                           | Зона гидратации ролиза |                   |  |            | Redeposited v             | weatherin  | g crust  |
| crust zone                         | Disintegration     | Ну                            | dration ze             | one               | Hydrolysis                             |            |                           |            |  |
|                                    | zone               |                               |                        |                   | zone                                   |            |                           |            |  |
|                                    | _                  | Морфолог                      | ия и ассо              | циация минера     | лов/Morphology                         | y and ass  | ociation of mine          | rals       |  |
| %                                  | 1910               | И                             | M NO                   | e M               | e g                                    | И          |                           |            | e M  |
| ов,                                | ra.                | MK                            | но                     | скс<br>yrit       | скс<br>IX<br>Doд<br>Vrit               | MIK        | n                         | le fe      | Nrit   |
| цил<br>des                         | ис                 | 010<br>ris                    | raH<br>sd z            | че<br>р:          | He<br>Aka<br>Top<br>Cks                | ощ<br>ris  | jco<br>tco                | per<br>her | He Hka   |
| )<br>Xio                           | кр                 | leb 0                         | кал<br>ie<br>nde       | /би<br>e<br>lbic  | /01<br>TION<br>TIX I<br>TIX I<br>Ibic  | leb        | ЦИ<br>Zi                  | sp]        | /01<br>IN I<br>Ibic  |
| ie (                               | лие                | p d c                         | B 0 B 0                | н<br>И<br>Сп      | r Ky<br>official<br>cu<br>ous          | ble<br>d d | Ш. в                      | i B I      | of the second seco |
| ant o                              | eck                | ure                           | нди<br>г п             | яв<br>INP<br>rins | я в<br>че<br>in<br>nec                 | Ba1<br>ure | sио                       | aHe        | ы в<br>Н<br>Чес  |
| рж<br>nte                          | ни<br>шs           | act                           | ен<br>ц<br>ns j        | I I OUS           | зни<br>ите<br>aти<br>ons<br>ons<br>lig | нo<br>act  | usi                       | POH        | ени<br>ите<br>atra<br>on:<br>l ig  |
| Co                                 | Pri                | ΗH                            | HOH<br>IOIS            | isn               | очо<br>гм<br>usi<br>and                | Η          | ncl                       | KI NC      | оч<br>гм<br>usi<br>and   |
| CC                                 | N3)                | be                            | SKJ<br>clu             | кл<br>пс]         | клл<br>п<br>ncl                        | be         | I                         | B          | ихл<br>п<br>ncl  |
|                                    | Пp                 | Ē                             | р н                    | B                 | I B                                    | L          |                           |            | I B  |
| CaO                                | 55,38-55,72        | 53,14–54,85 52,00 50,46–52,52 |                        |                   | 49,59-53,46                            | 52.02      | 46,46-51,00               | 40.97      | 51,92-53,23  |
| CaO                                | 55,55              | 53,82                         | 52,89                  | 51,48             | 51,51                                  | 55,02      | 48,73                     | 49,87      | 52,40  |
| PaOr                               | <u>43,03–43,93</u> | 40,39-42,66                   | 43 47                  | 40,01-42,52       | <u>39,87–42,53</u>                     | 40.16      | 40,12-42,13               | 35.69      | 41,52-42,23  |
| 1205                               | 43,48              | 41,82                         | 13,17                  | 41,50             | 41,33                                  | 10,10      | 41,13                     | 55,07      | 41,86  |
| F                                  | 9                  | <u>3,37–3,91</u>              | 3.51                   | <u>3,70–4,26</u>  | <u>3,25–4,40</u>                       | ?          | 2,58-3,19                 | 2.81       | <u>3,33–3,57</u>   |
| -                                  | •                  | 3,65                          | 0,01                   | 3,96              | 3,74                                   | •          | 2,88                      | 2,01       | 3,47   |
| Cl                                 | <u>0,00–0,33</u>   | _                             | 0,18                   | _                 | _                                      | 0,03       | <u>0,00–0,13</u>          | _          | _  |
|                                    | 0,16               |                               |                        | 0.00 1.74         | 0.00.070                               | -          | 0,07                      |            | 0.00 1.54  |
| SO <sub>3</sub>                    | _                  | -                             | -                      | 0,00-1,74         | 0.00-0.79                              | 1,68       | _                         | -          | 0.00-1.54  |
|                                    | 0.26 0.25          | 0.00 1.72                     |                        | 0,62              | 0,20                                   |            |                           |            | 0,55   |
| FeO/Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | 0.20-0.35          | 0.00 - 1.72                   | -                      | 1,24-2,12         | 0.04                                   | 3,52       | -                         | -          | <u>0,44–1,09</u><br>1.16   |
|                                    | 0,01               | 0,37                          |                        | 1,00              | 0,94                                   |            | 2 55 10 11                |            | 0.00 1.07  |
| SiO <sub>2</sub>                   | 0.41               | -                             | -                      | 0.00-1.20         | 1.84                                   | 0,94       | <u>5,55-10,11</u><br>6.83 | 5,43       | 0.57   |
|                                    | 0,41               |                               |                        | 0,00              | 0.00-0.72                              |            | 0,05                      |            | 0,57   |
| Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>     | -                  | -                             | -                      | -                 | 0.33                                   |            | 0.37                      | -          | -  |
|                                    |                    |                               |                        |                   | 0.00-0.50                              |            | 0,57                      |            |  |
| K <sub>2</sub> O                   | -                  | -                             | -                      | -                 | 0.13                                   |            | -                         | -          | -  |
|                                    | 0.00-0.14          |                               |                        |                   | 0,10                                   |            |                           |            |  |
| TiO <sub>2</sub>                   | 0.07               | -                             | -                      | -                 | -                                      |            | -                         | 6,21       | -  |
|                                    | 0.00-0.02          |                               |                        |                   |  | 0.1.6      |                           |            |  |
| SrO                                | 0,01               | -                             | -                      | _                 | -                                      | 0,16       | -                         | -          | -  |
| As <sub>2</sub> O <sub>5</sub>     | _                  | _                             | -                      | -                 | _                                      | 0,01       | _                         | -          | _  |
| MnO <sub>2</sub>                   | -                  | -                             | -                      |                   | -                                      | 0,42       | -                         | -          | -  |
| MσO                                | _                  | _                             | _                      | 0,00-0,35         | _                                      |            | _                         | _          | _  |
|                                    |                    |                               |                        | 0,09              |  |            |                           |            |  |
| Ce <sub>2</sub> O <sub>3</sub>     | _                  | <u>0,00–1,98</u>              | -                      | _                 | _                                      |            | _                         | _          | _  |
| 2 - 3                              |                    | 0,66                          |                        |                   |  |            |                           |            |  |
| Nd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>     | -                  | 0,00-2,76                     | -                      | _                 | _                                      |            | _                         | _          | _  |
|                                    |                    | 0,92                          | 1                      |                   |  |            |                           | 1          |  |



**Puc. 3.** Наиболее типичные формы выделений первичного монацита в зонах гидратации (a, b) и гидролиза (c, d) **Fig. 3.** Most typical forms of primary monazite precipitation in the zones of hydration (a, b) and hydrolysis (c, d)

**Редкоземельные фосфаты** в изучаемой коре выветривания представлены монацитом, куларитом и ксенотимом.

*Монацит* встречается по всему разрезу остаточной коры выветривания и представлен первичным, преобразованным и новообразованным типами.

Первичный обломочный монацит установлен в зонах гидратации и гидролиза ОКВ, минерал находится в ассоциации с кварцем, полевыми шпатами и гидрослюдами (рис. 3). Присутствует чаще в виде неправильных агрегатов размером 0,05–0,1 мм, реже в виде отдельных удлиненных и изометричных зерен, удлиненных призматических кристаллов размером до 0,02–0,03 мм. Минерал образует срастания с кварцем и полевым шпатом, в которых часто наблюдаются включения иголочек и неправильных зерен рутила, реже присутствует в виде включений в гидрослюдистых агрегатах, также установлены единичные включения – реликты зерен в сфалерите (рис. 4).

По химическому составу в зонах гидратации и гидролиза разновидности исходного терригенного монацита имеют существенно цериевый состав Ce>La≥Nd, осложненный примесями Sm, Th, Gd, Ca, Si, иногда Y. Содержания элементов в химическом составе монацита разных зон сопоставимо, содержания церия в среднем по зонам составляют 31,43–32,16 %, лантана 15,28–15,8 %, неодима 12,47–12,51 %, тория 2,34–2,77 %. В составе минерала могут присутствовать празеодим (до 4,23 %) и средние лантаноиды – самарий (до 3,03 %) и гадолиний (до 2,46 %), а также иногда иттрий (до 1,77 %). Суммарное количество редкоземельных элементов в минерале составляет 63,41–64,62 %. В составе минерала наблюдаются примеси вмещающих минералов – кварца и слюд (SiO<sub>2</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, K<sub>2</sub>O). Иногда присутствует примесь кальция (до 1,07 %), которая может входить в состав катионной группы. В единичных случаях установлены примеси вольфрама (до 0,48 %) и кадмия (до 0,80 %) (табл. 2).

Для мелких включений монацита размером до 5–10 мкм в сфалерите характерно снижение содержаний фосфора (до 28,07 %) и церия (до 27,94 %), содержания лантана (13,17 %), неодима (11,20 %), празеодима (2,96 %), самария (1,66 %), гадолиния (1,38 %) и тория (1,12 %). Состав минерала загрязнен примесями вмещающего сфалерита (цинк, сера), также включений слюды (кремний, алюминий, калий). Формула минерала имеет вид (Ce<sub>0.37</sub>La<sub>0.18</sub>Nd<sub>0.15</sub>Pr<sub>0.04</sub>Sm<sub>0.02</sub>Gd<sub>0.02</sub>Th<sub>0.01</sub>)<sub>0.79</sub>[P<sub>0.87</sub>O<sub>4</sub>] (табл. 2).

Преобразованный монацит встречается в зоне гидратации (рис. 2, *b*, рис. 4). Минерал присутствует в виде мелких реликтовых включений размером менее 0,05 мм в апатите и совместном агрегате алюмофосфатов гояцита и горсейксита, в составе обнаруженного монацита наблюдаются примеси вмещающих минералов – кварца, слюд, алюмофосфатов (SiO<sub>2</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, К<sub>2</sub>О). По соотношению главных компонентов минерал имеет существенно цериевый состав (27,14 %), лантан (12,69 %) преобладает над неодимом (9,37 %), наблюдается снижение содержания фосфора (28,88 %) и суммарного содержания легких лантаноидов (49,20 %) по сравнению с первичным монацитом. В составе минерала отсутствуют средние лантаноиды – самарий и гадолиний. Кристаллохимическая формула минерала имеет вид (Се<sub>0.31</sub>La<sub>0.15</sub>Nd<sub>0.11</sub>)<sub>0.57</sub>[P<sub>0.77</sub>O<sub>4</sub>] (табл. 2).

| 2011 L KODI L DI IDOTDUDQUUG   | Остаточная кора выветривания/Residual weathering crust                   |                  |                          |                             |  |  |  |  |  |
|--------------------------------|--|------------------|--------------------------|-----------------------------|--|--|--|--|--|
| Weathering crust zones         | Зона гидратации Зона г   |                  |                          |                             |  |  |  |  |  |
|                                |  | Hydration zone   |                          | Hydrolysis zone             |  |  |  |  |  |
|                                | Морфология и ассоциация минералов/Morphology and association of minerals |                  |                          |                             |  |  |  |  |  |
|                                | Первичный монацит  | Первичный мона-  | Преобразованный монацит  | Первичный монацит           |  |  |  |  |  |
| Содержание оксидов. %          | (включения в кварце и  | цит (включения в | (включения в гояцит-     | (включения в кварце и       |  |  |  |  |  |
| Content of oxides. %           | гидрослюдах)   | сфалерите)       | горсейксите)             | гидрослюдах)                |  |  |  |  |  |
|                                | Primary monazite   | Primary monazite | Transformed monazite     | Primary monazite            |  |  |  |  |  |
|                                | (inclusions in quartz and  | (inclusions in   | (inclusions in goyazite- | (inclusions in quartz and   |  |  |  |  |  |
|                                |  | sphalerite)      | gorseixite)              |                             |  |  |  |  |  |
| $P_2O_5$                       | $\frac{29,71-33,94}{21,42}$  | 28,07            | 28,88                    | <u>29,95–35,63</u><br>22,16 |  |  |  |  |  |
|                                | 28 46 24 55  |                  |                          | 20.28.22.02                 |  |  |  |  |  |
| $Ce_2O_3$                      | 28,40-34,33  | 27,94            | 27,14                    | <u>29,28–33,02</u><br>31,47 |  |  |  |  |  |
|                                | 12 62 17 45  |                  |                          | 12 47 17 16                 |  |  |  |  |  |
| $La_2O_3$                      | 15.80  | 13,17            | 12,69                    | 15.28                       |  |  |  |  |  |
|                                | 11 41–14 34  |                  |                          | 11 39–13 29                 |  |  |  |  |  |
| $Nd_2O_3$                      | 12 51  | 11,20            | 9,37                     | 12 47                       |  |  |  |  |  |
|                                | 0.00-4.23  |                  |                          | 0.00–3.96                   |  |  |  |  |  |
| $Pr_2O_3$                      | 2.72   | 2,96             | -                        | 2.31                        |  |  |  |  |  |
| Σ Легких лантаноилов           | 57.28-66.77  |                  |                          | 56.70-63.43                 |  |  |  |  |  |
| $\Sigma$ of light lanthanide   | 62,74  | 55,27            | 49,20                    | 61,53                       |  |  |  |  |  |
|                                | 0,00–2,18  | 1.44             |                          | 0,00–3,03                   |  |  |  |  |  |
| $Sm_2O_3$                      | 1,44   | 1,66             | -                        | 1,25                        |  |  |  |  |  |
| G1.0                           | 0,00-1,49  | 1 20             |                          | 0,00-2,46                   |  |  |  |  |  |
| $Gd_2O_3$                      | 0,61   | 1,58             | -                        | 0,64                        |  |  |  |  |  |
| Σ Средних лантаноидов          | 0,00-3,67  | 3.04             |                          | 0,00-5,49                   |  |  |  |  |  |
| $\Sigma$ of media lanthanide   | 1,87   | 5,04             |                          | 1,89                        |  |  |  |  |  |
| 2623<br>2                      | <u>60,56–69,87</u>   | 58 31            | 49 20                    | <u>56,70–66,57</u>          |  |  |  |  |  |
| 2133                           | 64,62  | 50,51            | +9,20                    | 63,41                       |  |  |  |  |  |
| $Y_2O_2$                       | _  | -                | _                        | <u>0,00–1,77</u>            |  |  |  |  |  |
| 1203                           |  |                  |                          | 0,18                        |  |  |  |  |  |
| ThO <sub>2</sub>               | <u>0,91–3,99</u>   | 1.12             | -                        | 0,00-5,71                   |  |  |  |  |  |
| - 2                            | 2,77   | ,                |                          | 2,34                        |  |  |  |  |  |
| SiO <sub>2</sub>               | <u>0,30–3,51</u>   | 2,76             | 10,29                    | <u>0,00–2,00</u>            |  |  |  |  |  |
|                                | 1,04   |                  |                          | 0,88                        |  |  |  |  |  |
| Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | 0.20   | 1,78             | 9,79                     | 0.11                        |  |  |  |  |  |
|                                | 0,20   |                  |                          | 0,11                        |  |  |  |  |  |
| CaO                            | 0.27   | 0,61             | -                        | 0.40                        |  |  |  |  |  |
|                                | 0.00-0.32  |                  |                          | 0.00-0.58                   |  |  |  |  |  |
| K <sub>2</sub> O               | 0.03   | -                | 1,84                     | 0.10                        |  |  |  |  |  |
|                                | 0,00   |                  |                          | 0.00-2.00                   |  |  |  |  |  |
| $SO_3$                         | —  | 3,73             | -                        | 0.25                        |  |  |  |  |  |
|                                |  |                  |                          | 0.00-2.40                   |  |  |  |  |  |
| FeO                            | -  | -                | -                        | 0,30                        |  |  |  |  |  |
| WO                             | 0,00-0,48  |                  |                          |                             |  |  |  |  |  |
| wO <sub>3</sub>                | 0,04   | -                | -                        | -                           |  |  |  |  |  |
| C4O                            | 0,00-0,80  |                  |                          |                             |  |  |  |  |  |
| Cuo                            | 0,07   | _                | —                        | -                           |  |  |  |  |  |
| ZnO                            | -  | 3,61             | -                        | -                           |  |  |  |  |  |

 Таблица 2. Химический состав первичных и преобразованных монацитов OKB

 Table 2.
 Chemical composition of primary and hypergene-transformed monazites of the residual weathering crust

В зоне гидролиза появляются *новообразованные* редкоземельные фосфаты – монацит и куларит, при этом первичный куларит в пробах не установлен (рис. 4). Содержание новообразованных фосфатов незначительно.

Монацит встречается в виде мелких включений неправильной формы размером до 0,02 мм в железистом карбонате – сидерите. Минерал имеет существенно цериевый состав, соотношение элементов соответствует Ce>La≥Nd, но приближается к Ce>Nd ≥La, в отличие от исходного монацита снижается содержание церия (менее 30 %), лантана (менее 15 %), тория (менее 2 %) и суммы редкоземельных элементов (менее 65 %) с уменьшением доли легких (до около 60 %), возрастает роль неодима (более 13 %) и доля средних лантаноидов (до около 4 %) (табл. 3). Несколько возрастают средние содержания празеодима (3,75 %), самария (2,65 %), гадолиния (1,41 %).

Куларит находится в ассоциации с сидеритом и кварцем, присутствует в виде единичного кристалла с прямоугольным сечением размером менее 0,015 мм. Минерал имеет существенно цериевый состав, но содержание церия по сравнению с монацитом снижено до 22,73 %, содержание неодима (17,47 %) превосходит содержание лантана (10,41 %), соотношение элементов соответствует Ce>Nd ≥La (табл. 3). В состав минерала входит около 7 % иттрия. Празеодим, самарий, гадолиний, торий отсутствуют. Иногда присутствует примесь кальция (до 4,88 %), которая может входить в состав катионной группы минерала. В составе минерала установлена примесь кремния.

| Tuble 5. Chemicai to           | imposition of newly formed monaztie and calar                            | ue in me restaudi weathering crusi                       |  |  |  |  |  |  |
|--------------------------------|--|--|--|--|--|--|--|--|
| Зона коры выветривания         | Остаточная кора вывет  | ривания/Residual weathering crust                        |  |  |  |  |  |  |
| Weathering crust zone          | Зона гидро   | лиза/Hydrolysis zone                                     |  |  |  |  |  |  |
| 6 8/                           | Морфология и ассоциация минералов/Morphology and association of minerals |  |  |  |  |  |  |  |
| Content of conider 0           | Гипергенный монацит (включения в сидерите)                               | Гипергенный куларит (включения в кварце с сидеритом)     |  |  |  |  |  |  |
| Content of oxides, %           | Hypergenic monazite (inclusions in siderite)                             | Hypergenic kularite (inclusions in quartz with siderite) |  |  |  |  |  |  |
| RO                             | 29,21-29,96  | 26.06  |  |  |  |  |  |  |
| $P_2O_5$                       | 29,69  | 30,00  |  |  |  |  |  |  |
| Co O                           | <u>29,03–29,22</u>   | 22.73  |  |  |  |  |  |  |
| $Ce_2O_3$                      | 29,15  | 22,13  |  |  |  |  |  |  |
| La-O-                          | 13,66-14,57  | 10.41  |  |  |  |  |  |  |
| La <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | 14,14  | 10,41  |  |  |  |  |  |  |
| NdaOa                          | <u>13,09–13,53</u>   | 17 /7  |  |  |  |  |  |  |
| 110203                         | 13,28  | 17,77  |  |  |  |  |  |  |
| Pr <sub>2</sub> O <sub>2</sub> | <u>3,53–4,08</u>   | _  |  |  |  |  |  |  |
| 11203                          | 3,75   |  |  |  |  |  |  |  |
| Σ Легких лантаноидов           | <u>60,16–60,66</u>   | 50.61  |  |  |  |  |  |  |
| $\Sigma$ of light lanthanide   | 60,33  | 50,01  |  |  |  |  |  |  |
| Sm <sub>2</sub> O <sub>2</sub> | <u>2,58–2,72</u>   | _  |  |  |  |  |  |  |
| 5203                           | 2,65   |  |  |  |  |  |  |  |
| Gd2O3                          | <u>1,35–1,46</u>   | _  |  |  |  |  |  |  |
|                                | 1,41   |  |  |  |  |  |  |  |
| Σ Средних лантаноидов          | <u>3,93–4,14</u>   | _  |  |  |  |  |  |  |
| $\Sigma$ of media lanthanide   | 4,06   |  |  |  |  |  |  |  |
| ΣΡ3Э                           | <u>64,10–64,77</u>   | 50,61  |  |  |  |  |  |  |
|                                | 64,39  |  |  |  |  |  |  |  |
| Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>  | -  | 7,16   |  |  |  |  |  |  |
| ThO <sub>2</sub>               | <u>0,00–1,89</u>   | _  |  |  |  |  |  |  |
| _                              | 0,63   |  |  |  |  |  |  |  |
| SiO <sub>2</sub>               | 0,69–0,85  | 1.27   |  |  |  |  |  |  |
|                                | _0,75  | y  |  |  |  |  |  |  |
| CaO                            | <u>0,36–0,51</u>   | 4.88   |  |  |  |  |  |  |
|                                | 0,42   | y  |  |  |  |  |  |  |
| FeO                            | 2,17-2,55  | _  |  |  |  |  |  |  |
|                                | 2,30   |  |  |  |  |  |  |  |
| $As_2O_5$                      | $\frac{0,00-2,86}{1.91}$   | _  |  |  |  |  |  |  |
|                                | 1.81   |  |  |  |  |  |  |  |

**Таблица 3.** Химический состав новообразованных монацита и куларита в OKB **Table 3** Chemical composition of nawly formed monazite and cularite in the residual weathering crust

Кристаллохимические формулы новобразованных монацита (1–3) и куларита (4) зоны гидролиза ОКВ:

 $1) \quad (Ce_{0.41}La_{0.21}Nd_{0.19}Pr_{0.04}Sm_{0.04}Th_{0.02}Gd_{0.02}Ca_{0.02})_{0.95}[P_{0.98}O_4];$ 

 $2) \quad (Ce_{0.42}La_{0.20}Nd_{0.18}Pr_{0.06}Sm_{0.03}Gd_{0.02}Ca_{0.02})_{0.93}[P_{0.98}O_4];$ 

3)  $(Ce_{0.41}La_{0.20}Nd_{0.18}Pr_{0.05}Sm_{0.04}Gd_{0.02}Ca_{0.01})_{0.91}[P_{0.95}O_4].$ 

 $\label{eq:central_state} 4) \ \ (Ce_{0.28}Nd_{0.21}Ca_{0.18}La_{0.13}Y_{0.13})_{0.90}[P_{1.04}O_4];$ 

В переотложенной коре выветривания *монацит* представлен первичным и преобразованным типами.

В переотложенной коре выветривания для терригенных монацитов характерны широкие вариации состава, возможно, свидетельствующие о различных источниках его переотложения.

Первичный обломочный монацит встречается в виде неправильных агрегатов размером менее 0,1 мм в срастании с кварцем и рутилом, реже присутствует в виде единичных самостоятельных в различной степени окатанных трещиноватых зерен неправильной формы размером до 0,1–0,4 мм желтоватого, светлобурого цвета (рис. 4).

По химическому составу минерал незначительно отличается от первичных монацитов зон гидратации и гидролиза остаточной коры выветривания. Средние содержания элементов составляют: церия – 31,69–31,81 %, лантана – 15,21–15,62 %, неодима 11,18–12,45 %, в составе минерала может присутствовать празеодим (до 3,85 %). В отдельных зернах присутствует иттрий (до 2,87 %) и торий (до

12,85 %, средние содержания 2,47–4,52 %), суммарное количество редкоземельных элементов составляет 63,44–64,05 %.

Кристаллохимические формулы первичного монацита переотложенной коры выветривания:

- 1)  $(Ce_{0.41}La_{0.21}Nd_{0.17}Pr_{0.04}Sm_{0.02}Gd_{0.01}Th_{0.01})_{0.86}[P_{0.96}O_4];$
- 2)  $(Ce_{0.42}La_{0.21}Nd_{0.13}Th_{0.11}Pr_{0.02}Sm_{0.01}Y_{0.01})_{0.91}[P_{0.92}O_4];$
- 3)  $(Ce_{0.45}La_{0.26}Nd_{0.14}Pr_{0.04}Sm_{0.02}Gd_{0.01})_{0.92}[P_{1.01}O_4];$
- 4)  $(Ce_{0.47}La_{0.20}Nd_{0.18}Pr_{0.05}Sm_{0.03}Th_{0.01})_{0.94}[P_{1.03}O_4];$
- 5)  $(Ce_{0.38}La_{0.16}Nd_{0.15}Pr_{0.05}Sm_{0.03}Th_{0.03}Gd_{0.02}Ca_{0.02})_{0.84}[P_{0.95}O_4];$
- 6)  $(Ce_{0.45}La_{0.18}Nd_{0.14}Th_{0.10}Ca_{0.05})_{0.92}[P_{1.00}O_4];$
- 7)  $(Ce_{0.44}La_{0.21}Nd_{0.17}Pr_{0.05}Sm_{0.03}Th_{0.03}Gd_{0.01})_{0.94}[P_{1.01}O_4];$
- 8)  $(Ce_{0.38}La_{0.19}Nd_{0.15}Y_{0.06}Pr_{0.04}Th_{0.04}Sm_{0.03}Ca_{0.03}Gd_{0.02})_{0.94}[P_{1.01}O_4];$
- 9)  $(Ce_{0.41}La_{0.21}Nd_{0.17}Pr_{0.04}Sm_{0.02}Gd_{0.02}Ca_{0.02}Th_{0.01})_{0.86}[P_{0.96}O_4];$
- 10)  $(Ce_{0.46}La_{0.22}Nd_{0.17}Pr_{0.05}Sm_{0.03}Th_{0.01}Gd_{0.01})_{0.95}[P_{1.02}O_4];$
- 11)  $(Ce_{0.46}La_{0.23}Nd_{0.16}Th_{0.02})_{0.87}[P_{1.05}O_4];$
- 12) ( $Ce_{0.43}La_{0.22}Nd_{0.16}$ )<sub>0.81</sub>[ $P_{1.01}O_4$ ];
- 13)  $(Ce_{0.43}La_{0.22}Nd_{0.16}Pr_{0.05}Sm_{0.03}Th_{0.03}Ca_{0.01})_{0.93}[P_{0.99}O_4];$
- 14)  $(Ce_{0.45}La_{0.23}Nd_{0.18}Pr_{0.05}Sm_{0.03})_{0.94}[P_{1.02}O_4];$
- 15)  $(Ce_{0.45}La_{0.21}Nd_{0.19}Pr_{0.04}Sm_{0.04}Gd_{0.01}Th_{0.01})_{0.95}[P_{1.02}O_4];$
- 16) (Ce<sub>0.46</sub>La<sub>0.23</sub>Nd<sub>0.18</sub>Pr<sub>0.05</sub>Sm<sub>0.04</sub>Gd<sub>0.02</sub>)<sub>0.98</sub>[P<sub>1.01</sub>O<sub>4</sub>];
- $17)\,(Ce_{0.48}La_{0.25}Nd_{0.19})_{0.92}[P_{1.05}O_4].$

Преобразованный монацит в переотложенной коре выветривания встречается в срастаниях с кварцем, в совместном агрегате минералов образуют вростки новообразованные удлиненные кристаллы рутила. Размер агрегатов минерала неправильной формы не превышает 0,02 мм. По соотношению главных компонентов минерал имеет существенно цериевый состав (32,98 %), лантан (18,71 %) преобладает над неодимом (9,67 %), содержание празеодима составляет около 3 %, несколько снижено содержание фосфора (29,21 %), суммарное содержание легких лантаноидов не превышает 65 %. В составе минерала присутствует небольшое количество средних лантаноидов, представленных самарием (1,25 %), а также торий (2,4 %). В составе минерала наблюдаются примеси вмещающих минералов – кварца (SiO<sub>2</sub>), примесь кальция может входить в состав катионной группы, замещая редкоземельные элементы, примесь серы может входить в состав анионной группы. Кристаллохимическая формула минерала имеет вид ( $Ce_{0.46}La_{0.27}Nd_{0.13}Pr_{0.04}Ca_{0.03}Sm_{0.02}Th_{0.02})_{0.98}[P_{0.95}S_{0.04}O_4].$ 





Fig. 4. Plots of distribution of the main components, morphology and paragenetic associations of primary clastic, transformed monazite and newly formed monazite and kularite

В переотложенной коре выветривания установлены *новообразованные* редкоземельные фосфаты – монацит и куларит.

Монацит здесь встречается в виде мелких удлиненных включений неправильной формы размером до 0,01 мм в сидерите и сферическом магнетите. Монациты имеют сильно различающийся состав. Состав монацита из сидерита сходен по соотношению элементов с таковым из зоны гидролиза, но характеризуется снижением содержаний вследствие значительной примеси в составе вмещающего его сидерита (до 2,95 % кальция, до 18,06 % железа). Монацит, обнаруженный в магнетите, характеризуется значительным снижением содержания фосфора (до 23 %), неодима (до 9,41 %), резким возрастанием содержания церия (до 40 %), высоким содержанием лантана (18,78 %) и празеодима (4,37 %). Несмотря на то, что в составе отсутствуют средние лантаноиды, суммарное содержание редкоземельных элементов составляет около 73 %. Также в составе минерала присутствуют примеси железа (4 %) и кальция (0,4 %).

Куларит присутствует в виде микроскопического включения в рутиле, размер установленного включения неправильной формы не превышает 0,01 мм. Минерал имеет существенно цериевый состав и сходен с таковым из зоны гидролиза, содержание церия по сравнению с монацитом снижено до 21,82 %, содержание неодима (16,78 %) превосходит содержание лантана (8,88 %), соотношение элементов соответствует Ce>Nd ≥La. Содержание празеодима составляет 3,57 %. Минерал содержит в своем составе свинец, возможно, за счет мелких включений галенита или его разрушения. В составе минерала отсутствуют иттрий, самарий, гадолиний, торий. Из примесей в составе минерала установлены титан, кремний, алюминий, кальций.

Кристаллохимические формулы новообразованного монацита (1, 2) и куларита (3) переотложенной коры выветривания:

- 1)  $(Ce_{0.37}La_{0.20}Nd_{0.14}Th_{0.01})_{0.72}[P_{0.88}O_4];$
- 2)  $(Ce_{0.64}La_{0.30}Nd_{0.15}Pr_{0.07}Ca_{0.02})_{1.18}[P_{0.84}O_4];$
- 3)  $(Ce_{0.27}Nd_{0.20}La_{0.11}Ca_{0.10}Pr_{0.04}Pb_{0.02})_{0.44}[P_{0.94}O_4].$

Ксенотим распространен в остаточной и переотложенной корах выветривания и представлен первичным обломочным типом. Минерал встречается в виде агрегатных скоплений размером до 0,05–0,06 мм и единичных изометричных трещиноватых зерен и кристаллов бледно-желтой, бесцветной окраски размером до 0,25 мм в ассоциации с кварцем и гидрослюдами (рис. 5).



**Рис. 5.** Морфология и парагенетические ассоциации ксенотима: мелкое изометричное включение (a) и агрегат (b) ксенотима в срастании с кварцем и гидрослюдой (зона гидратации (a), зона гидролиза (b) OKB)

Fig. 5. Morphology and paragenetic associations of xenotime: small isometric inclusion (a) and aggregate (b) of xenotime in intergrowth with quartz and hydromica (hydration zone (a), hydrolysis zone (b) residual weathering crust)

В химическом составе ксенотима наблюдаются вариации в содержании фосфора (29,41-42,96 %). Среднее содержание суммы тяжелых лантаноидов составляет 3,26-9,95 %, с содержанием иттрия 37,18-48,60 %, эрбия 2,90-5,17 %. Иттербий в составе минерала присутствует не всегда (до 4,85 %), в единичных зернах ксенотима из зоны дезинтеграции присутствует лутеций. Среднее содержание суммы средних лантаноидов составляет 9,09-11,41 %, с содержанием диспрозия 5,34-9,90 %, гадолиния 3,00-7,45 %. В зоне гидролиза в минерале обнаружены гольмий, европий, галлий. В зонах дезинтеграции и гидратации в минерале встречается незначительное количество тория. Из примесей в составе минерала установлены кремний, титан, стронций, кальций, железо, цирконий, обуславливающие колебания в содержаниях основных компонентов.

Кристалоохимические формулы ксенотима:

- а) из зоны дезинтеграции:
  - 1)  $(Y_{0.75}Dy_{0.09}Er_{0.05}Gd_{0.04}Yb_{0.03})_{0.96}[P_{1.01}O_4];$

- 2)  $(Y_{0.76}Dy_{0.07}Er_{0.04}Gd_{0.04}Yb_{0.03})_{0.94}[P_{1.00}O_4];$
- 3)  $(Y_{0.80}Gd_{0.09}Dy_{0.07}Er_{0.05}Yb_{0.04})_{1.05}[P_{0.94}O_4];$
- 4)  $(Y_{0.72}Dy_{0.06}Er_{0.04}Gd_{0.03}Yb_{0.02})_{0.87}[P_{0.98}O_4].$
- б) из зоны гидратации:
  - 1)  $(Y_{0.84}Dy_{0.08}Gd_{0.05}Er_{0.04}Yb_{0.01})_{1.02}[P_{0.94}O_4];$ 2)  $(Y_{0.78}Dy_{0.05}Er_{0.03}Gd_{0.03})_{0.89}[P_{1.00}O_4].$
- в) из зоны гидролиза:
  - 1)  $(Y_{0.82}Dy_{0.07}Ho_{0.13}Er_{0.03}Yb_{0.02}Gd_{0.03})_{1.10}[P_{1.01}O_4];$
  - 2)  $(Y_{0.82}Dy_{0.06}Er_{0.03}Gd_{0.04})_{0.95}[P_{1.03}O_4];$
  - 3)  $(Y_{0.87}Dy_{0.09}Er_{0.04}Gd_{0.04}Yb_{0.02})_{1.06}[P_{0.95}O_4];$
  - 4)  $(Y_{0.80}Dy_{0.11}Er_{0.05}Gd_{0.04}Yb_{0.03})_{1.03}[P_{0.87}O_4];$
  - 5)  $(Y_{0.60}Dy_{0.06}Er_{0.05}Gd_{0.03}Yb_{0.03})_{0.77}[P_{1.10}O_4];$
  - 6)  $(Y_{0.69}Dy_{0.08}Er_{0.05}Gd_{0.05}Yb_{0.05}Eu_{0.01})_{0.93}[P_{0.96}O_4].$

Кристалоохимическая формула ксенотима из переотложенной коры выветривания – (Y<sub>0.78</sub>Dy<sub>0.06</sub>Gd<sub>0.03</sub>Er<sub>0.03</sub>Yb<sub>0.02</sub>)<sub>0.92</sub>[P<sub>1.04</sub>O<sub>4</sub>].

Фосфаты группы крандаллита встречаются в зонах гидратации и гидролиза остаточной коры выветривания, в зоне гидратации минералы представлены гояцитом, горсейкситом, флоренситом, крандаллитом, в зоне гидролиза – горсейкситом, флоренситом и плюмбогуммитом (рис. 6). Минералы имеют тесные взаимоотношения.

В зоне гидратации наиболее распространены гояцит и горсейксит (рис. 6, *c*, *d*). Как правило, минералы образуют совместные агрегаты переменного химического состава неправильной формы размером до 0,14–0,15 мм. Чаще всего гояцит занимает в этих агрегатах центральные части либо располагается тонкими параллельными полосами, внешняя, существенно бариевая зона – горсейксит, нарастает на кристаллы гояцита, в единичных агрегатах присутствуют реликтовые остатки крандаллита. Часто агрегаты минералов корродированны, крайне редко минералы встречаются отдельно – гояцит в виде корродированных зерен размером менее 0,08 мм, а также горсейксит в виде зерен размером менее 0,15 мм и хорошо образованных кристаллов псевдокубического облика размером до 0,2 мм. В зоне гидролиза горсейксит полностью замещает гояцит и встречается в виде единичных обломков кристаллов размером менее 0,1 мм. Минералы находятся в срастаниях с кварцем и каолинитом, реже гидрослюдой, в зоне гидратации в кристалле горсейксита установлено включение циркона.



**Рис. 6.** Морфология агрегатов минералов группы крандаллита (a, b – образование флоренсита в зонах гидратации и гидролиза ОКВ, c, d – образование крандаллита, гояцита и горсейксита в зоне гидратации ОКВ)

**Fig. 6.** Morphology of aggregates of minerals of the crandallite group (a, b - the formation of florensite in the zones of hydration and hydrolysis of the residual weathering crust, c, <math>d - the formation of crandallite, goyacite and gorseixite in the hydration zone of the residual weathering crust)

По химическому составу в ряду гояцит-горсейксит распространены минералы с промежуточным химическим составом. Для минералов характерны значительные вариации в содержании элементов, содержание фосфора 29,64-33,84 %, алюминия 25,59-34,51 %, в гояците стронций (7,17-20,15 %) преобладает над барием (1,70-10,78 %), в горсейксите барий (12,64-24,63 %) доминирует над стронцием (3,19-9,60 %). В структурной позиции стронция в виде изоморфной примеси практически, всегда присутствуют кальций (до 3,87 %) и редкоземельные элементы (церий – до 6,59 %, лантан – до 3,79 %, неодим – до 1,88 %) (табл. 4). Наличие кальция свидетельствует о примеси молекулы крандаллита, редкоземельных элементов - об образовании за счет разрушения редкоземельных фосфатов – монацитов. Также в составе минералов часто присутствует фтор (до 4,65 %), вероятно, наследуемый из состава апатита. Примеси, обусловленные вмещающими минералами, представлены кремнием, калием, титаном. Примеси свинца, железа и серы обусловлены включениями и реликтами сульфидов.

Кристалоохимические формулы гояцита (1–12) и горсейксита (13–23) зоны гидратации:

- 1)  $(Sr_{0.63}Ba_{0.24}Ca_{0.03})_{1.79}(Al_{2.71}Fe_{0.01})_{2.72}[PO_4][PO_{2.34}(OH)] \times (OH_{5.93}F_{0.73});$
- 2)  $(Sr_{1.29}Ba_{0.43}Ca_{0.07})_{1.79}Al_{2.71}[PO_4][PO_{1.99}(OH)](OH_{5.27}F_{0.73});$
- 3)  $(Sr_{0.72}Ba_{0.15}Ca_{0.04})_{0.91}Al_{3.00}[PO_4][PO_{4.77}(OH)](OH_{3.70}F_{0.53});$
- 4)  $(Sr_{0.83}Ba_{0.05})_{0.88}Al_{2.80}[PO_4][PO_{2.14}(OH)](OH_{6.23}F_{0.63});$
- 5)  $(Sr_{0.54}Ce_{0.20}La_{0.11}Ba_{0.09}Ca_{0.08}Nd_{0.05})_{1.07}(Al_{2.59}Fe_{0.05})_{2.64}$ [PO<sub>4</sub>][PO<sub>2.91</sub>(OH)](OH<sub>6.09</sub>);
- 6)  $(Sr_{0.58}Ce_{0.15}Ba_{0.15}La_{0.08}Ca_{0.08}Nd_{0.03})_{1.07}Al_{2.36}[PO_4] \times \times [PO_{1.48}(OH)](OH_{7.52});$

- 7)  $(Sr_{0.69}Ba_{0.19}Ca_{0.02})_{0.91}Al_{2.80}[PO_4][PO_{2.20}(OH)](OH_{6.42}F_{0.38});$
- 8)  $(Sr_{0.56} Ba_{0.30} Ca_{0.03})_{0.90} Al_{2.80} [PO_4] [PO_{2.12}(OH)] (OH_{6.41}F_{0.47});$
- 9)  $(Sr_{0.69} Ba_{0.39} Ca_{0.07})_{1.15}Al_{2.91}[PO_4][PO_{2.64}(OH)](OH_{6.11}F_{0.26});$
- $10)\,(Sr_{0.78}\,Ba_{0.09})_{0.87}Al_{2.83}[PO_4][PO_{2.23}(OH)](OH_{6.10}F_{0.67});$
- 11)  $(Sr_{0.32}Ca_{0.31}Ba_{0.21})_{0.86}(Al_{2.97}Fe_{0.12})_{3.09}[PO_4][PO_{3.67}(OH)] \times (OH_{5.33});$
- 12)  $(Sr_{0.34}Ca_{0.32}Ba_{0.19}Ce_{0.05}La_{0.02})_{0.92}(Al_{3.03}Fe_{0.11})_{3.14}[PO_4] \times [PO_{4,83}(OH)](OH_{3.74}F_{0.43});$
- 13)  $(Ba_{0.44}Sr_{0.37}Ca_{0.11})_{0.92}Al_{2.92}[PO_4][PO_{2.60}(OH)](OH_{5.84}F_{0.56});$
- 14)  $(Ba_{0.69}Sr_{0.14}Ca_{0.12})_{0.95}Al_{2.93}[PO_4][PO_{2.70}(OH)](OH_{5.64}F_{0.67});$

- 15)  $(Ba_{0.38}Sr_{0.35}Ca_{0.10})_{0.83}(Al_{2.63}Fe_{0.07})_{2.70}[PO_4][PO_{2.19}(OH)] \times (OH_{6.81});$
- 16)  $(Ba_{0.73}Sr_{0.18}Ca_{0.07})_{0.98}Al_{2.92}[PO_4][PO_{2.72}(OH)](OH_{5.59}F_{0.68});$
- 17)  $(Ba_{0.58}Sr_{0.29}Ca_{0.09})_{0.96}Al_{2.90}[PO_4][PO_{2.60}(OH)](OH_{6.03}F_{0.37});$
- 18)  $(Ba_{0.61}Sr_{0.16}Ca_{0.15})_{0.92}Al_{2.93}[PO_4][PO_{2.65}(OH)](OH_{5.83}F_{0.52});$
- 19)  $(Ba_{0.77}Sr_{0.15})_{0.92}Al_{2.94}[PO_4][PO_{2.67}(OH)](OH_{5.66}F_{0.68});$
- $20) (Ba_{0.72} Sr_{0.20} Ca_{0.02})_{0.96} Al_{2.90} [PO_4] [PO_{2.53} (OH)] (OH_{5.84} F_{0.63});$
- 21) (Ba\_{0.56} Sr\_{0.27} Ca\_{0.15}Pb\_{0.03})\_{1.01}Al\_{3.08}[PO\_4][PO\_{3.27}(OH)] \times \\ \times (OH\_{5.06}F\_{0.67});
- 22)  $(Ba_{0.69} Sr_{0.28})_{0.98} Al_{3.03} [PO_4] [PO_{3.02}(OH)] (OH_{4.82}F_{1.16});$
- 23) (Ba<sub>0.50</sub> Sr<sub>0.41</sub>Ca<sub>0.03</sub>)<sub>0.94</sub>Al<sub>2.86</sub>[PO<sub>4</sub>][PO<sub>2.48</sub>(OH)](OH<sub>6.09</sub>F<sub>0.43</sub>).

 Таблица 4. Химический состав алюмофосфатов группы крандаллита из ОКВ

 Table 4.
 Chemical composition of aluminophosphates of the crandallite group from the residual weathering crust

|                                | 1  | 5 1              | 1 5              | 0                | 15                             |                  | 0            |  |  |
|--------------------------------|--|------------------|------------------|------------------|--------------------------------|------------------|--------------|--|--|
| Содержание ок-                 | Остаточная кора выветривания/Residual weathering crust |                  |                  |                  |                                |                  |              |  |  |
| сидов, %                       |  | Зона гидратации  | 1/Hydration zone |                  | Зона гидролиза/Hydrolysis zone |                  |              |  |  |
| Content of                     | Горсейксит   | Гояцит           | Крандаллит       | Флоренсит        | Горсейксит                     | Флоренсит        | Плюмбогуммит |  |  |
| oxides.%                       | Gorseixit  | Govazite         | Crandallit       | Florensite       | Gorseixit                      | Florensite       | Plumbogumite |  |  |
|                                | 29.64-33.39  | 29.00-33.84      | Crundulit        | 25 10-30 80      | Constant                       | 26.90-29.32      | Tunicogunite |  |  |
| $P_2O_5$                       | 20,04-33,37  | 31.70            | 30,24            | 23,10-30,00      | 30,57                          | 20,00-20,52      | 19,33        |  |  |
|                                | 20.24.25.02  | 25 50 24 51      |                  | 27,43            |                                | 20,11            |              |  |  |
| $Al_2O_3$                      | <u>29,24–35,05</u>                                     | 25,59-34,51      | 30,96            | 25,96-33,50      | 31,55                          | 27,00-30,10      | 24,55        |  |  |
| 2 9                            | 32,29  | 31,92            |                  | 28,94            | ,                              | 28,88            |              |  |  |
| SrO                            | <u>3,29–9,60</u>                                       | 7,17-20,15       | 4.78             | 2,90-5,52        | 3.19                           | <u>1,74–3,02</u> | _            |  |  |
| 510                            | 5,77   | 14,22            | .,, , o          | 4,19             | 5,17                           | 2,38             |              |  |  |
| PaO                            | 12,64-24,63  | 1,70-10,78       | 1 29             | 0,00-0,59        | 22.05                          | 0,00-2,08        |              |  |  |
| BaO                            | 20,15  | 5,93             | 4,30             | 0,15             | 25,05                          | 1,04             | —            |  |  |
| DI O                           | 0,00-1,34  | 0,00-1,71        |                  |                  |                                |                  | 21.00        |  |  |
| PbO                            | 0,12   | 0,14             | _                | _                | -                              | -                | 31,86        |  |  |
|                                | 0.00-1.84  | 0.00-3.87        |                  | 0.26-1.59        |                                |                  |              |  |  |
| CaO                            | 0.94   | 1.08             | 5,51             | 1.01             | 1,30                           | -                | 0,21         |  |  |
|                                | 0.00-4.66  | 0.00_6.59        |                  | 9.03_13.55       |                                | 13 60-13 06      |              |  |  |
| $Ce_2O_3$                      | 0.42   | 1 12             | 2,77             | 10.04            | -                              | 13.83            | 2,20         |  |  |
|                                | 0,42   | 1,12             |                  | 10,94            |                                | 6 94 7 07        |              |  |  |
| $La_2O_3$                      | 0,00-2,32  | 0,00-3,79        | 1,82             | 4,54-6,07        | -                              | <u>0,84–7,07</u> | 1,09         |  |  |
|                                | 0,21   | 0,61             |                  | 5,45             |                                | 6,96             |              |  |  |
| Pr <sub>2</sub> O <sub>2</sub> | _  | _                | _                | 0,00-1,59        | _                              | 1,26-1,62        | _            |  |  |
| 11203                          |  |                  |                  | 0,91             |                                | 1,44             |              |  |  |
| Nd.O.                          | 0,00-1,88  | <u>0,00–1,81</u> | 0.90             | <u>2,43–5,51</u> | _                              | <u>3,78–4,42</u> | _            |  |  |
| 110203                         | 0,17   | 0,25             | 0,70             | 3,90             | _                              | 4,10             |              |  |  |
| TLO                            |  |                  |                  | 0,00-1,16        |                                |                  |              |  |  |
| $InO_2$                        | -  | -                | _                | 0,29             | -                              | -                | _            |  |  |
| F                              | 0,00-4,65  | 0,00-3,31        |                  |                  | 2.1.4                          |                  |              |  |  |
| F                              | 2.38   | 1.74             | —                | —                | 3,14                           | —                | —            |  |  |
|                                | 0.00-1.15  | 0.00-1.82        |                  | 0.57-3.27        |                                |                  |              |  |  |
| FeO                            | 0.10   | 0.36             | 1,93             | 2 09             | -                              | -                | -            |  |  |
| E <sub>2</sub> O               | 0,10   | 0,50             |                  | 2,07             |                                |                  | 0.01         |  |  |
| 10203                          | _  | 0.00.1.09        |                  | -                |                                | _                | 0,91         |  |  |
| $SO_3$                         | -  | 0.00             | 0,77             | 0,00-0,40        | -                              | -                | -            |  |  |
| 1.0                            |  | 0,09             |                  | 0,11             |                                |                  | 0.44         |  |  |
| $As_2O_5$                      | -  | -                | _                | -                | -                              | _                | 0,44         |  |  |
| Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub> | _  | _                | _                | 0,00-1,40        | _                              | _                | _            |  |  |
| 14203                          |  |                  |                  | 0,35             |                                |                  |              |  |  |
| SiO.                           | 0,00-1,62  | <u>0,00–3,90</u> | _                | _                | _                              | _                | 0.98         |  |  |
| 5102                           | 0,15   | 0,84             |                  |                  |                                |                  | 0,70         |  |  |
| КO                             | 0,00-0,12  | 0,00-0,86        | 0.19             |                  |                                |                  |              |  |  |
| $\mathbf{K}_2\mathbf{O}$       | 0,01   | 0,12             | 0,18             | -                | -                              | -                | -            |  |  |
| Fio                            |  | 0.00-2.63        |                  |                  |                                |                  |              |  |  |
| $T_1O_2$                       | -  | 0.40             | -                | -                | -                              | -                | -            |  |  |
|                                | 0.00-8.86  | 0.00-12.19       |                  | 18 37-26 35      |                                | 25 80-26 84      |              |  |  |
| ΣРЗЭ                           | 0.81   | 1 98             | 5,49             | 21 20            | -                              | 26 32            | 3,29         |  |  |
|                                | 00 74 07 41  | 83 68 06 59      |                  | 78 20 02 27      |                                | 84 18 80 20      |              |  |  |
| Сумма                          | 93.60  | 90 50            | 84,24            | 85 74            | 92,80                          | 86 73            | 81,57        |  |  |

Кристалоохимическая формула горсейксита зоны гидролиза имеет вид  $(Ba_{0.70}Sr_{0.14}Ca_{0.11})_{0.95}Al_{2.87}[PO_4] \times \times [PO_{2.52}(OH)](OH_{5.71}F_{0.77}).$ 

*Крандаллит* встречается только в зоне гидратации в виде единичных реликтов размером до 0,08 мм в центральных частях совместных агрегатов гояцитгорсейкситового состава (рис. 6, *c*). По химическому составу для минерала характерен промежуточный между крандаллитом, гояцитом и горсейкситом состав с незначительным преобладанием кальция (5,51 %), содержание стронция и бария сопоставимо и составляет соответственно 4,78 % и 4,38 %. Содержание фосфора составляет 30,24 %, алюминия – 30,96 %. Также в составе минерала присутствуют редкоземельные элементы – церий, лантан, неодим. Примеси железа и серы обусловлены реликтами сульфидов, примесь калия – включениями слюды. Кристаллохимическая формула минерала –  $(Ca_{0.46}Sr_{0.22}Ba_{0.13})_{0.81}(Al_{2.85}Fe_{0.13})_{2.98}[PO_4][PO_{2.92}(OH)] \times \times (OH_{6.08})$  (табл. 4).

Флоренсит встречается в зонах гидратации и гидролиза остаточной коры выветривания. В зоне гидратации установлен единичный агрегат минерала размером около 0,05 мм переменного химического состава. В зоне гидролиза флоренсит встречается в виде трещиноватых зерен неправильной формы размером менее 0,1 мм в срастании с рутилом, в одном зерне минерала встречен плюмбогуммит (рис. 6, *a*, *b*).

Большая часть минерала представлена флоренситом с содержанием фосфора - 25,1 %, алюминия -26,56 %, общим содержанием редкоземельных элементов около 20 %, представленных церием (9,03 %), лантаном (6,07 %), неодимом (2,43 %), празеодимом (0,84 %). Также в составе установлен торий (1,16 %). Содержание гояцитового - стронциевого, крандаллитового - кальциевого и горсейкситового - бариевого компонентов составляют соответственно 5,52, 1,59 и 0,59 %. Тонкие более светлые по тону полосы в агрегате характеризуются следующими содержаниями элементов: фосфора - 25,2-30,8 %, алюминия -25,96-33,50 %, церия - 9,91-13,55 %, содержания лантана (4,54-5,7 %) и неодима (3,25-5,51 %) сопоставимы, содержание празеодима до 1,59 %, стронция - 2,9-4,28 %, кальция - 0,85-1,32 %. Примеси железа и серы в составе минерала, возможно, обусловлены реликтами сульфидов, также присутствует примесь тантала (табл. 4).

В зоне гидролиза в составе минерала происходят изменения: снижается среднее содержание стронция до 2,38 %, увеличиваются содержания бария (до 1,04 %), церия (до 13,83 %), незначительно увеличиваются содержания лантана (до 6,96 %), неодима (до 4,10 %), празеодима (до 1,44 %). В составе минерала отсутствуют торий и кальций (табл. 4).

Флоренсит наследует закономерности состава от монацита, он представлен цериевой разновидностью с соотношением Ce>La>Nd.

Кристалоохимические формулы флоренсита зон гидратации (1–4) и гидролиза (5, 6):

- 1) (Ce<sub>0.34</sub>Sr<sub>0.23</sub>La<sub>0.19</sub>Ca<sub>0.13</sub>Nd<sub>0.11</sub>)<sub>1.00</sub>(Al<sub>2.86</sub>Fe<sub>0.22</sub>)<sub>3.08</sub>[PO<sub>4.22</sub>]<sub>2</sub>× ×(OH<sub>5.56</sub>);
- 2) (Ce<sub>0.41</sub>La<sub>0.17</sub>Nd<sub>0.16</sub>Sr<sub>0.14</sub>Pr<sub>0.05</sub>Ca<sub>0.02</sub>)<sub>0.95</sub>(Al<sub>2.90</sub>Fe<sub>0.04</sub>)<sub>2.94</sub>×  $\times$ [PO<sub>4.12</sub>]<sub>2</sub>(OH<sub>5.77</sub>);
- 3) (Ce<sub>0.32</sub>Sr<sub>0.18</sub>La<sub>0.13</sub>Nd<sub>0.12</sub>Ca<sub>0.07</sub>Pr<sub>0.03</sub>)<sub>0.85</sub>(Al<sub>3.03</sub>Fe<sub>0.11</sub>)<sub>3.14</sub>× ×[PO<sub>4.13</sub>]<sub>2</sub>(OH<sub>5.75</sub>);
- 4) (Ce<sub>0.31</sub>Sr<sub>0.30</sub>La<sub>0.21</sub>Ca<sub>0.16</sub>Nd<sub>0.08</sub>Ta<sub>0.04</sub>Pr<sub>0.03</sub>Th<sub>0.02</sub>Ba<sub>0.02</sub>)<sub>1.17</sub>×  $\times$  (Al<sub>2.94</sub>Fe<sub>0.26</sub>)<sub>3.20</sub>[P<sub>2.00</sub>S<sub>0.03</sub>O<sub>9.42</sub>] (OH<sub>4.58</sub>);
- 5)  $(Ce_{0.41}La_{0.20}Sr_{0.14}Nd_{0.13}Pr_{0.05})_{0.93}Al_{2.86}[PO_{3.44}]_2(OH_{7.12});$
- 6) (Ce<sub>0.44</sub>La<sub>0.23</sub>Nd<sub>0.12</sub>Sr<sub>0.21</sub>Pr<sub>0.04</sub>)<sub>0.69</sub>Al<sub>2.86</sub>[PO<sub>4.23</sub>]<sub>2</sub>(OH<sub>4.54</sub>). Плюмбогуммит установлен только в зоне гидро-

лиза в виде единичного зерна неправильной формы размером менее 0,01 мм в зерне флоренсита (рис. 7).

Минерал по химическому составу представляет собой водный алюмофосфат свинца с содержаниями

фосфора 19,33 %, алюминия – 24,55 %, свинца – 31,86 %. Также минерал содержит церий (2,20 %), лантан (1,09 %), незначительное количество кальция (0,21 %). Кристаллохимическая формула минерала – (Pb<sub>1.05</sub>Ce<sub>0.10</sub>La<sub>0.05</sub>Ca<sub>0.03</sub>)<sub>1.23</sub>Al<sub>3.54</sub>[PO<sub>4</sub>][PO<sub>4.13</sub>

(OH)<sub>0.95</sub>](OH<sub>4.87</sub>) (табл. 4).

В зоне гидратации был встречен алюмофосфат железа (предположительно, чилдренит) в виде овального короткопризматического зерна размером менее 0,05 мм в зерне алюмофосфата переменного гояцит-горсейкситового состава в срастании с гидрослюдой (рис. 6, d).

По химическому составу минерал представляет собой алюмофосфат железа с содержанием железа – 37,2 % и алюминия – 23,58 %. В отличие от чилдренита в составе минерала наблюдается недостаток фосфора (18,48 %), который частично замещает кремний (4,47 %), также установлены барий (8,86 %), стронций (6,27 %), калыций (0,58 %) из вмещающего алюмофосфатого агрегата минералов, содержание воды в минерале не известно. Кристаллохимическая формула минерала – Fe<sub>0.99</sub>Al<sub>0.89</sub>(Sr<sub>0.12</sub>Ba<sub>0.11</sub>Ca<sub>0.02</sub>)<sub>0.25</sub>[P<sub>0.50</sub>Si<sub>0.14</sub>O<sub>4</sub>](OH<sub>2</sub>)·?H<sub>2</sub>O.

#### Обсуждение результатов

Проведенными исследованиями установлено, что во всех зонах остаточной коры выветривания и в переотложенной коре выветривания встречаются апатит и ксенотим, монацит – в зонах гидратации и гидролиза остаточной коры выветривания и переотложенной коре выветривания.

В зоне гидратации установлены водные алюмофосфаты – крандаллит, гояцит, горсейксит, флоренсит, в зоне гидролиза – горсейксит, флоренсит и плюмбогуммит.

Выявлено, что монацит, фтор-апатит и ксенотим являются наиболее устойчивыми минералами, в коре выветривания эти минералы остаются из исходных материнских пород – терригенных песчаников и алевролитов, в коре выветривания по дайке долеритов – только фтор-апатит. Гипергенные фосфаты представлены редкоземельными – монацитом и куларитом, а также алюмофосфатами группы крандаллита. Встречающиеся в переотложенной коре выветривания гипергенные монацит и куларит перемещены из зоны гидролиза остаточной коры выветривания.

Установленная последовательность преобразования первичных фосфатов представлена на рис. 7. В зоне гидратации происходит образование алюмофосфатов - существенно кальциевого крандаллита, стронциевого гояцита, алюмофосфата редкоземельных металлов – флоренсита, при этом крандаллит по периферии замещается гояцитом, а гояцит - существенно бариевым горсейкситом. В зоне гидролиза горсейксит полностью замещает гояцит, а флоренсит - монацит, также здесь образуется гипергенный алюмофосфат свинца – плюмбогуммит. Горсейксит, флоренсит и плюмбогуммит являются минераламииндикаторами зоны гидролиза. Серная кислота, образующаяся при окислении сульфидных минералов, способствует разложению и растворению алюмосиликатов с выносом из их состава Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> и фосфатов (первичных апатита, монацита) с образованием ряда алюмофосфатов в процессе гидратации (присоединения воды), при этом кальций и фтор в новообразованных минералах высвобождаются при разложении апатита, стронций и барий – возможно, полевых шпатов, редкоземельные металлы – монацита, свинец – галенита, железо – пирита.

Присутствие в зоне гидратации мелких включений алюмофосфата железа, возможно, обусловлено обра-

зованием его при разложении пирита и алюмосиликатных минералов.

В верхней части зоны гидролиза остаточной коры выветривания происходит образование гипергенных редкоземельных фосфатов – монацита, куларита и алюмофосфатов – горсейксита, флоренсита и плюмбогуммита. Здесь же отмечается наибольшее накопление золота (рис. 7).



Рис. 7. Схема распространения фосфатов по разрезу коры выветривания и последовательного преобразования первичных фосфатов (апатита и монацита) с образованием гипергенных алюмофосфатов группы крандаллита (стрелками показана последовательность смены минералов, в скобках указаны основные элементы, содержащиеся в минералах). (Ap – апатит; Mnz – монацит; Xen – ксенотим; Kul – куларит; Kr – крандаллит; Gor – горсейксит; Gc – гояцит; Flr – флоренсит; Plb – плюмбогуммит; Au – золото)

Fig. 7. Diagram of the distribution of phosphates along the section of the weathering crust and the successive transformation of primary phosphates (apatite and monazite) with the formation of hypergene alumophosphates of the crandallite group (arrows show the sequence of mineral changes, the main elements contained in minerals are indicated in brackets). (Ap – apatite; Mnz – monazite; Xen – xenotime; Kul – kularite; Kr – crandallite; Gor – gorceixite; Gc – goyacite; Flr – florensite; Plb – plumbogumite; Au – gold)

#### Заключение

В результате проведенного комплекса детальных исследований кор выветривания Томского района установлены: 1) фосфаты группы апатита, 2) ортофосфаты редкоземельных элементов и тория и 3) алюмофосфаты группы крандаллита.

По генетическому признаку фосфатные минералы разделены на группы: а) первичные терригенные фосфаты, устойчивые в корах выветривания и выделившиеся при разрушении коренных пород (монацит, ксенотим, апатит), б) преобразованные, измененные в процессе выветривания (монацит), и в) новообразованные, образованные в процессе формирования кор выветривания (монацит, куларит, флоренсит, крандаллит, гояцит, горсейксит, плюмбогуммит). Установленные в различных зонах коры выветривания ассоциации фосфатов большей частью представляют собой звенья последовательного преобразования минералов от кальциевых и редкоземельных фосфатов к алюминиевым, указывающего на возрастание кислотности среды минералообразования. В верхней части зоны гидролиза остаточной коры выветривания, где происходит образование гипергенных редкоземельных фосфатов (монацита, куларита) и алюмофосфатов (горсейксита, флоренсита, плюмбогуммита), отмечается наибольшее накопление золота.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 18-45-700019).

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Valsami-Jones E. Phosphates // Encyclopedia of Geology. Elsevier, Academic Press, 2021. – P. 422–427.
- Attfield J.P. Phosphates // Encyclopedia of Materials: Science and Technology. – Oxford, UK: Elsevier, 2001. – P. 6896–6901.
- Apatite trace element compositions: a robust new tool for mineral exploration / M. Mao, A.S. Rukhlov, S.M. Rowins, J. Spence, L.A. Coogan // Economic Geology. – 2016. – V. 111. – № 5. – P. 1187–1222.
- Alunite supergroup: recommended nomenclature / P. Bayliss, U. Kolitsch, E.H. Nickel, A. Pring // Mineralogical Magazine. – 2010. – V. 74. – № 5. – P. 919–927.
- Haldar S.K., Tišljar J. Basic Mineralogy // Introduction to Mineralogy and Petrology. – 2014. – P. 338.
- Фосфор в окружающей среде / Э. Гриффит, А. Битон, Д. Митчелл, Дж. Спенсер. – М.: Мир, 1977. – 760 с.
- Becker P. Phosphates and phosphoric acid, raw materials, technology, and economics of the wet process. 2nd ed. – New York: Marcel Dekker, Inc., 1989. – 760 p.
- Corbridge D.E.C. Phosphorus chemistry, biochemistry and technology. – Boca Raton: CRC Press, Taylor and Francis Group, 2013. – 1473 p.
- Jasinski S.M. Phosphate rock // U.S. Geological Survey Mineral Commodity Summaries. Reston: U.S. Geological Survey, 2011. – P. 118–119.
- Rare earth elements in sedimentary phosphate deposits: solution to the global REE crisis / P. Emsbo, P.I. McLaughlin, G.N. Breit, E.A. du Bray, A.E. Koenig // Gondwana Research. – 2015. – V. 27. – P. 776–785.
- Cordell D., Drangert J.-O., White S. The story of phosphorus: global food security and food for thought // Global Environmental Change. – 2009. – V. 19. – 292–305.
- Heffer P., Prud'homme M. Short-term fertilizer outlook 2017–2021 // IFA Strategic Forum. – Paris: International Fertilizer Industry Association (IFA), 2017. – 5 p.
- Stable soil organic matter: a comparison of C:N:P:S ratios in Australian and other world soils / C.A. Kirkby, J.A. Kirkegaard, A.E. Richardson, L.J. Wade, C. Blanchard, G. Batten // Geoderma. – 2011. – V. 163. – № 3–4. – P. 197–208.
- Phosphorus and phosphorites sedimentology and environments of formation / C.R. Glenn, K.B. Föllmi, S.R. Riggs, G.N. Baturin, K.A. Grimm, J. Trappe, A.M. Abed, C. Galli-Olivier, R.E. Garrison, A.V. Ilyin, C. Jehl, V. Rohrlich, R.M.Y. Sadaqah, M. Schidlowski, R.E. Sheldon, H. Siegmund // Eclogae Geologicae Helvetiae (Journal of the Swiss Geological Society). – 1994. – V. 87. – P. 747–788.
- Hiatt E.E., Budd D.A. Sedimentary phosphate formation in warm shallow waters: new insights into the palaeoceanography of the Permian Phosphoria Sea from analysis of phosphate oxygen isotopes // Sedimentary Geology. – 2001. – V. 145. – P. 119–133.
- Prasad M.N.V. Resource potential of natural and synthetic gypsum waste // Environ Mater Waste. – 2016. – P. 307–337.
- Bhattacharya A. Changing environmental condition and phosphorus-use efficiency in plants // Chang Clim Resour Use Effic Plants. – 2019. – P. 241–305.
- Небытов В.Г. Влияние длительности последействия фосфорных удобрений и навоза на агрохимические свойства чернозёма выщелоченного и урожайность культур севооборота // Агрохимия. – 2005. – № 3. – С. 5–14.
- Макаров М.И., Малышева Т.И. Фосфор в гумусовых кислотах // Почвоведение. – 2006. – Т. 39. – № 11. – С. 1208–1216.
- Contrasting depth distribution of colloid-associated phosphorus in the active and abandoned sections of an alluvial fan in a hyper-arid region of the Atacama Desert / G. Moradi, R. Bol, L. Trbojevic, A. Missong, R. Mörchen, B. Fuentes, S.M. May, E. Lehndorff, E. Klumpp // Glob Planet Change. – 2020. – V. 185. – P. 1–8.
- Leaching and recovery of phosphate and rare earth elements from an iron-rich fluorapatite concentrate. P. II: Selective leaching of calcium and phosphate and acid baking of the residue / F. Soltani, M. Abdollahy, J. Petersen, R. Ram, S.M. Javad Koleini, D. Moradkhani // Hydrometallurgy. - 2019. - V. 184. - P. 29-38.

- Gupta C.K., Krishnamurthy N. Extractive metallurgy of rare earths // International Materials Reviews. – 1992. – V. 37 (1). – P. 197–248.
- Review on hydrometallurgical recovery of rare earth metals / A. Kumari, R. Panda, J. Rajesh Kumar, K. Yoo, J.Y. Lee // Hydrometallurgy. – 2016. – V. 165. – P. 2–26.
- Zhang Y., Santos J. Crystallization and microstructure analysis of calcium phosphate-based glass ceramics for biomedical applications // Journal of Non-Crystalline Solids. – 2000. – V. 272. – P. 14–21.
- Bioactive calcium phosphate-based glasses and ceramics and their biomedical applications / M.T. Islam, R.M. Felfel, E.A. Abou Neel, D.M. Grant, I. Ahmed, K.M.Z. Hossain // Journal of tissue engineering. – 2017. – V. 8. – P. 1–16.
- 26. Сафронова Т.В., Путляев В.И. Медицинское неорганическое материаловедение в России: кальцийфосфатные материалы // Наносистемы: физика, химия, математика. – 2013. – Т. 4. – № 1. – С. 24–47.
- Занин Ю.Н. Геохимические обстановки формирования парагенезов минералов фосфатсодержащих пород // Геология и геофизика – 1993. – Т. 34. – № 7. – С. 3–22.
- McLennan S.M. Rare earth elements in sedimentary rocks influence of provenance and sedimentary processes // Reviews in Mineralogy. – 1989. – V. 21. – P. 169–200.
- Contact metamorphic and metasomatic processes at the Kharaelakh intrusion, Oktyabrskoe deposit, Norilsk-Talnakh ore district: application of LA-ICPMS dating of perovskite, apatite, garnet and titanite / A.E. Marfin, A.V. Ivanov, V.S. Kamenetsky, A. Abersteiner, T.Y. Yakich // Economic Geology. – 2020. – V. 115 (6) – P. 1213–1226.
- Cocherie A., Albarede F. An improved U-Th-Pb age calculation for electron microprobe dating of monazite // Geochimica et Cosmochimica Acta. – 2001. – V. 65. – P. 4509–4522.
- Suzuki K., Kato T. CHIME dating of monazite, xenotime, zircon and polycrase: Protocol, pitfalls and chemical criterion of possibly discordant age data // Gondwana Research. – 2008. – V. 14. – P. 569–586.
- 32. Пономарев В.С., Хиллер В.В., Ерохин Ю.В. Тh-U-Pbдатирование монацита из метаморфических пород иткульской свиты Сысертского комплекса (Средний Урал) // Вестник Санкт-Петербургского университета. Науки о Земле. – 2019. – Т. 64. – № 2. – С. 315–327.
- 33. Минерально-геохимическая зональность золотоносных кор выветривания Томь-Яйского междуречья / О.М. Янченко, В.Г. Ворошилов, Т.В. Тимкин, М. Зиаии // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2019. – Т. 330. – № 2. – С. 83–94.
- 34. Морфология и состав золота кор выветривания Томь-Яйского междуречья / О.М. Янченко, В.Г. Ворошилов, Т.В. Тимкин, И.В. Мартыненко, М. Зиаии // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2019. – Т. 330. – № 3. – С. 84–92.
- Черняев Е.В. Генезис и золотоносность кор выветривания Томского района // Цветные металлы и минералы: Сборник тезисов докладов восьмого международного конгресса. – Красноярск: ООО «Научно-инновационный центр», 2016. – С. 336–337.
- Mineralogy of the Svetloye epithermal district, Okhotsk-Chukotka volcanic belt, and its insights for exploration / T.Y. Yakich, Y.S. Ananyev, A.S. Ruban, R.Y. Gavrilov, D.V. Lesnyak, D.V. Levochskaia, O.V. Savinova, M.A. Rudmin // Ore Geology Reviews. – 2021. – V. 136 (3). – 104257.
- Петрохимическая характеристика кор выветривания Ольховско-Чибижекского района / И.В. Мартыненко, В.Г. Ворошилов, Т.В. Тимкин, М. Зиаии // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2018. – Т. 329. – № 12. – С. 136–144.
- Pshenichkin A., Timkin T., Oskina Y. Noble metals in rocks and ores of Maysko-Lebed ore field (Mountain Shoriya) // IOP Conference Series: Earth and Environmental Science. – 2015. – V. 24. – P. 1–6.

Поступила 15.07.2021 г.

#### Информация об авторах

*Янченко О.М.*, аспирант Инженерной школы природных ресурсов Национального исследовательского Томского политехнического университета.

*Тимкин Т.В.*, кандидат геолого-минералогических наук, доцент отделения геологии Инженерной школы природных ресурсов Национального исследовательского Томского политехнического университета.

**Ворошилов В.Г.**, доктор геолого-минералогических наук, профессор Инженерной школы природных ресурсов Национального исследовательского Томского политехнического университета.

*Якич Т.Ю.*, кандидат геолого-минералогических наук, доцент отделения геологии Инженерной школы природных ресурсов Национального исследовательского Томского политехнического университета.

Зиаии М., PhD, доцент Шахрудского технологического университета.

UDC 551.311.231:553.086

## NATURE OF PHOSPHATE DISTRIBUTION WITHIN THE GOLDEN WEATHERING CRUSTS OF THE TOMSK REGION

Olga M. Yanchenko<sup>1</sup>, olmininayanchenko@mail.ru

Timofey V. Timkin<sup>1</sup>, timkin@tpu.ru

Valery G. Voroshilov<sup>1</sup>, v\_g\_v@tpu.ru

Tamara Yu. Yakich<sup>1</sup>, cherkasovatu@tpu.ru

#### Mansour Ziaii<sup>2</sup>,

m.ziaii47@gmail.com

- National Research Tomsk Polytechnic University, 30, Lenin avenue, Tomsk, 634050, Russia.
- <sup>2</sup> Shahrood University of Technology, Bolvar Daneshka, Shahrood, 3619995161, Iran.

**The relevance of the research.** In the Tomsk region, the weathering crusts are very widespread, their gold content has been established, but a detailed study of the mineral composition has not previously been carried out. The relevance of the research is caused by the need to identify the conditions for formation of weathering crusts and to establish the patterns of accumulation of a wide range of minerals in them. The main aim of the research is to study the morphological and chemical features, paragenetic associations and distribution of minerals of the phosphate group, division into primary, transformed, and newly formed, the use of phosphates as minerals-indicators of the conditions for the formation of weathering crusts and their relationship with the distribution of gold.

**The object:** residual and redeposited weathering crusts of the Tomsk region and the minerals of the phosphate group contained in them. **Methods.** The crystal morphological features of minerals of the phosphate group, their paragenetic associations were studied microscopically using an OLYMPUS SZX10 stereomicroscope, the chemical composition of minerals was determined using a HORIBA Scientific XGT-7200 X-ray fluorescence microscope and a TESCAN VEGA 3 SBU X-50 X-50 EDS Max OXFORD scanning electron microscope.

**Results.** In the weathering crusts of the Tomsk region, phosphates of the apatite group, rare earth elements, and aluminophosphates of the crandallite group have been found. Phosphate minerals are divided into groups: primary terrigenous phosphates, stable in weathering crusts and released during the destruction of bedrock (monazite, xenotime, apatite), hypergene-transformed, altered during weathering (monazite), and secondary (monazite, cularite, flitorensite, crandallite, goyacite, gorseixite, plumbogumite). Established in different zones of the weathering crust, phosphate associations for the most part represent links in the successive transformation of minerals from calcium and rare-earth phosphates to aluminum, indicating an increase in the acidity of the mineral formation environment. In the upper part of the hydrolysis zone of the residual weathering crust, the greatest accumulation of gold is noted.

#### Key words:

Phosphates, weathering crust, mineralogical analysis, scanning electron microscopy, Kolyvan-Tomsk folded zone, Tomsk region.

The research was financially supported by the RFBR grant no. 18-45-700019.

#### REFERENCES

- Valsami-Jones E. Phosphates. Encyclopedia of Geology. Elsevier, Academic Press, 2021. pp. 422–427.
- Attfield J.P. Phosphates. Encyclopedia of Materials: Science and Technology. Oxford, UK, Elsevier, 2001. pp. 6896–6901.
- Mao M., Rukhlov A.S., Rowins, S.M., Spence, J., Coogan, L.A. Apatite trace element compositions: a robust new tool for mineral exploration. *Economic Geology*, 2016, vol. 111, no. 5, pp. 1187–1222.
- Bayliss P., Kolitsch U., Nickel E.H., Pring A. Alunite supergroup: recommended nomenclature. *Mineralogical Magazine*, 2010, vol. 74, no. 5, pp. 919–927.
- Haldar S.K., Tišljar J. Basic Mineralogy. Introduction to Mineralogy and Petrology, 2014, pp. 338.
- Griffith E., Beaton A., Mitchell D., Spencer J. Fosfor v okruzhayushchey srede [Phosphorus in the environment]. Moscow, Mir Publ., 1977. 760 p.

- Becker P. Phosphates and phosphoric acid, raw materials, technology, and economics of the wet process. 2<sup>nd</sup> ed. New York, Marcel Dekker, Inc., 1989. 760 p.
- Corbridge D.E.C. Phosphorus chemistry, biochemistry and technology. Boca Raton, CRC Press, Taylor and Francis Group, 2013. 1473 p.
- Jasinski S.M. Phosphate rock. U.S. Geological Survey Mineral Commodity Summaries. Reston, U.S. Geological Survey, 2011. pp. 118–119.
- Emsbo P., McLaughlin P.I., Breit G.N., Du Bray E.A., Koenig A.E. Rare earth elements in sedimentary phosphate deposits: Solution to the global REE crisis. *Gondwana Research*, 2015, vol. 27, pp. 776–785.
- Cordell D., Drangert J.-O., White S. The story of phosphorus: global food security and food for thought. *Global Environmental Change*, 2009, vol. 19, pp. 292–305.
- Heffer P., Prud'homme M. Short-term fertilizer outlook 2017–2021. IFA Strategic Forum. Paris, International Fertilizer Industry Association (IFA), 2017. 5 p.

- Kirkby C.A., Kirkegaard J.A., Richardson A.E., Wade L.J., Blanchard C., Batten G. Stable soil organic matter: a comparison of C:N:P:S ratios in Australian and other world soils. *Geoderma*, 2011, vol. 163, no. 3–4, pp. 197–208.
- Glenn C.R., Föllmi K.B., Riggs S.R., Baturin G.N., Grimm K.A., Trappe J., Abed A.M., Galli-Olivier C., Garrison R.E., Ilyin A.V., Jehl C., Rohrlich V., Sadaqah R.M.Y., Schidlowski M., Sheldon R.E., Siegmund H. Phosphorus and phosphorites – sedimentology and environments of formation. *Eclogae Geologicae Helvetiae (Journal* of the Swiss Geological Society), 1994, vol. 87, pp. 747–788.
- Hiatt E.E., Budd D.A. Sedimentary phosphate formation in warm shallow waters: new insights into the palaeoceanography of the Permian Phosphoria Sea from analysis of phosphate oxygen isotopes. *Sedimentary Geology*, 2001, vol. 145, pp. 119–133.
- Prasad M.N.V. Resource potential of natural and synthetic gypsum waste. *Environ Mater Waste*, 2016, pp. 307–337.
- Bhattacharya A. Changing environmental condition and phosphorus-use efficiency in plants. *Chang Clim Resour Use Effic Plants*, 2019, pp. 241–305.
- Nebytov V.G Vliyanie dlitelnosti posledejstviya fosfornyh udobrenij i navoza na agrohimicheskie svojstva chernozyoma vyshchelochennogo i urozhajnost kultur sevooborota. [Influence of the duration of the aftereffect of phosphorus fertilizers and manure on the agrochemical properties of leached chernozem and crop yield]. Agrokhimiya, 2005, vol. 3, pp. 5–14.
- Makarov, M.I., Malysheva, T.I. Phosphorus in humus acids. *Eurasian Soil Science*, 2006, vol. 39, no. 11, pp. 1208–1216.
- 20. Moradi G., Bol R., Trojevic L., Missong A., Mörchen R., Fuentes B., May S.M., Lehndorff E., Klumpp E. Contrasting depth distribution of colloid-associated phosphorus in the active and abandoned sections of an alluvial fan in a hyper-arid region of the Atacama Desert. *Glob Planet Change*, 2020. vol. 185, pp. 1–8.
- Soltani F., Abdollahy M., Petersen J., Ram R., Javad Koleini S.M., Moradkhani D. Leaching and recovery of phosphate and rare earth elements from an iron-rich fluorapatite concentrate. P. II: Selective leaching of calcium and phosphate and acid baking of the residue. *Hydrometallurgy*, 2019, vol. 184, pp. 29–38.
- 22. Gupta C.K., Krishnamurthy N. Extractive metallurgy of rare earths. International Materials Reviews, 1992, vol. 37 (1), pp. 197–248.
- 23. Kumari A., Panda R., Rajesh Kumar J., Yoo K., Lee J.Y. Review on hydrometallurgical recovery of rare earth metals. *Hydrometallurgy*, 2016, vol. 165, pp. 2–26.
- Zhang Y., Santos J. Crystallization and microstructure analysis of calcium phosphate-based glass ceramics for biomedical applications. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 2000, vol. 272, pp. 14–21.
- Islam M.T., Felfel R.M., Abou Neel E.A., Grant D.M., Ahmed I., Hossain K.M.Z. Bioactive calcium phosphate-based glasses and ceramics and their biomedical applications: *Journal of tissue engineering*, 2017, vol. 8, pp. 1–16.
- Safronova T.V., Putlyaev V.I. Inorganic materials science for medicine in Russia: materials based on calcium phosphates. *Nanosystems: physics, chemistry, mathematics*, 2013. vol. 4, no. 1, pp. 24–47.

- Zanin Yu.N. Geohimicheskie obstanovki formirovaniya paragenezov mineralov fosfatsoderzhashchih porod [Geochemical environments of the formation of mineral parageneses of phosphate-bearing rocks]. *Russian Geology and Geophysics*, 1993. vol. 34, no. 7, pp. 3–22.
- McLennan S.M. Rare earth elements in sedimentary rocks, influence of provenance and sedimentary processes. *Reviews in Mineralogy*, 1989, vol. 21, pp. 169–200.
- Marfin A.E., Ivanov A.V., Kamenetsky V.S., Abersteiner A., Yakich T.Y. Contact metamorphic and metasomatic processes at the Kharaelakh intrusion, Oktyabrskoe deposit, Norilsk-Talnakh ore district: application of LA-ICPMS dating of perovskite, apatite, garnet and titanite. *Economic Geology*, 2020, vol. 115, no. 6, pp. 1213–1226.
- Cocherie A., Albarede F. An improved U-Th-Pb age calculation for electron microprobe dating of monazite. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2001, vol. 65, pp. 4509–4522.
- Suzuki K., Kato T. CHIME dating of monazite, xenotime, zircon and polycrase: Protocol, pitfalls and chemical criterion of possibly discordant age data. *Gondwana Research*, 2008, vol. 14, pp. 569–586.
- Ponomarev V.S., Khiller V.V., Erokhin Y.V. Th-U-Pb-dating of monazite from the metamorphic rocks of the itkul formation of the Sysert Metamorphic Complex (Middle Urals). *Vestnik of Saint Petersburg University. Earth Sciences*, 2019, vol. 64, pp. 315–327.
- 33. Yanchenko O.M., Voroshilov V.G., Timkin T.V., Ziaii M. Mineral-geochemical zonality of golden bearing weathering crust of the Tom-Yaya interfluve. Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering, 2019, vol. 330, no. 2, pp. 83–94.
- Yanchenko O.M., Voroshilov V.G., Timkin T.V., Martynenko I.V., Ziaii M. Morphology and composition of gold in weathering crust of the Tom-Yaya interfluve. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic* University, Geo Assets Engineering, 2019, vol. 330, no. 3, pp. 84–92.
- 35. Chernyaev E.V. Genezis i zolotonosnost kor vyvetrivaniya Tomskogo rayona [Genesis and gold content of the weathering crust of the Tomsk region]. *Tsvetnye metally i mieraly. Sbornik tezisov dokladov 8 mezhdunarodnogo kongressa* [Non-ferrous metals and minerals. Collection of abstracts of the eighth international congress]. Krasnoyarsk, Science and Innovation Center Publ. House, 2016. pp. 336–337.
- 36. Yakich T.Y., Ananyev Y.S., Ruban A.S., Gavrilov R.Y., Lesnyak D.V., Levochskaia D.V., Savinova O.V., Rudmin M.A. Mineralogy of the Svetloye epithermal district, Okhotsk-Chukotka volcanic belt, and its insights for exploration. Ore Geology Reviews, 2021 vol. 136, no. 3, 104257.
- Martynenko I.V., Voroshilov V.G., Timkin T.V., Ziaii M. Petrochemical characterization of weathering crusts of Olkhovsk-Chibizhek district. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University*. *Geo Assets Engineering*, 2018, vol. 329, no. 12, pp. 136–144.
- Pshenichkin A., Timkin T., Oskina Y. Noble metals in rocks and ores of Maysko-Lebed ore field (Mountain Shoriya). *IOP Conference Series: Earth and Environmental Science*, 2015, vol. 24, pp. 1–6.

Received: 15 July 2021.

#### Information about the authors

*Olga M. Yanchenko*, postgraduate student, National Research Tomsk Polytechnic University. *Timofey V. Timkin*, Cand. Sc., associate professor, National Research Tomsk Polytechnic University. *Valery G. Voroshilov*, Dr. Sc., professor, National Research Tomsk Polytechnic University.

*Tamara Yu. Yakich*, Cand. Sc., associate professor, National Research Tomsk Polytechnic University. *Mansour Ziaii*, PhD., associate professor, Shahrood University of Technology.

УДК 553.981:550.41

# ПЕРСПЕКТИВНАЯ ТЕХНОЛОГИЯ ДЛЯ УВЕЛИЧЕНИЯ НЕФТЕОТДАЧИ НА МЕСТОРОЖДЕНИЯХ С РАЗНОЙ ПРОНИЦАЕМОСТЬЮ ПЛАСТОВ

#### Манжай Владимир Николаевич<sup>1</sup>,

mang@ipc.tsc.ru

#### Ульянюк Максим Павлович<sup>2</sup>,

mega.ulyanyuk@mail.ru

## Рождественский Евгений Александрович<sup>1</sup>, rea876@ipc.tsc.ru

- <sup>1</sup> Институт химии нефти СО РАН, Россия, 634055, г. Томск, пр. Академический, 4.
- <sup>2</sup> Национальный исследовательский Томский политехнический университет, Россия, 634050, г. Томск, пр. Ленина, 30.

**Актуальность работы.** Месторождения часто имеют сложную неоднородную структуру с трудно извлекаемыми запасами, разработка которых осложнена ещё и тем, что различные пропластки имеют разную проницаемость. В результате использования технологии заводнения, наиболее распространенного метода повышения нефтеотдачи, месторождение достаточно быстро становится неэффективным, так как вода после начальной стадии нефтевытеснения начинает фильтроваться к добывающим скважинам по уже промытым высокопроницаемым каналам. Решением данной проблемы является применение блокирующих реагентов из химических композиций, закрывающих промытые каналы и вынуждающих воду вытеснять нефть из ранее незадействованных (низкопроницаемых) зон.

**Цель работы:** сравнительный анализ эффективности действия композиций на основе карбамида и уротропина в качестве блокирующих экранов для высокопроницаемых зон нефтеносного пласта, предварительно промытых водой.

**Методы:** моделирование процесса нефтевытеснения на установке SAP-700 с двумя параллельно работающими колонками; газовый метод определения проницаемости породы.

**Результаты.** В лабораторных условиях на установке SAP-700 с колонками насыпного типа была экспериментально подтверждена эффективность применения композиций на основе карбамида и уротропина в качестве основных компонентов для формирования блокирующих экранов с целью повышения коэффициента извлечения нефти. Так, по первому эксперименту с применением композиции, содержащей в своем составе карбамид, общий коэффициент извлечения нефти составил 0,4, из которых величина 0,16 является добавочной. Во втором же эксперименте общий коэффициент извлечения нефти составил 0,38, при этом 0,24 добавочные. Данные технологии для месторождений с разной проницаемостью пластов позволяют значительно увеличить степень выработки запасов по сравнению с обычным заводнением.

#### Ключевые слова:

Нефтеотдача, коэффициент извлечения нефти, карбамид, уротропин, хлорид алюминия, вязкость.

#### Введение

Месторождения нефти представляют собой сложную комплексную структуру, и их разработка является достаточно сложной задачей. Это подтверждает и тот факт, что после применения первичных методов повышения нефтеотдачи, например, при заводнении, коэффициент извлечения нефти (КИН) редко превышает отметку 0,50 и в основном находится в пределах 0,25...0,45. Углеводородные ресурсы, которые остаются в недрах, в среднем составляют 55–75 % от начальных геологических запасов. Такие показатели на сегодняшний день считаются неприемлемыми, поэтому на месторождениях практически повсеместно применяют различные методы повышения нефтеотдачи, в частности физико-химические методы [1–4].

Большая часть месторождений, расположенных внутри границ Российской Федерации, к настоящему моменту находится на поздних стадиях разработки, и извлекаемая нефть характеризуется значительной обводненностью, причинами которой являются как выработка запасов, так зачастую и высокая неоднородность геологического разреза по проницаемости [5–8]. Следствием этой неоднородности, а также процесса образования техногенной трещиноватости является возникновение высокопроницаемых каналов, по которым происходит фильтрация жидкости, результатом которой становится преждевременное обводнение добываемого флюида, также данные процессы негативно сказываются на значении коэффициента охвата месторождения [9, 10].

Одним из наиболее действенных методов повышения нефтеотдачи месторождений с разной проницаемостью пластов является закачка многокомпонентных композиций различных реагентов в виде маловязких водных растворов (η<sub>флюид</sub>=1-10 мПа·с), которые под действием давления внешнего нагнетания легко входят в уже обводненные каналы. С течением времени под действием повышенной температуры пласта в нем протекают химические реакции с образованием новых соединений высокой вязкости и с практически нетекучей консистенцией (η≥1·10<sup>3</sup> мПа·с). В результате промытые высокопроницаемые пропластки блокируются возникшей пастообразной системой, и дальнейшая закачка вытесняющего флюида (воды) приводит к вытеснению нефти из ранее незадействованных, т. е. низкопроницаемых, зон [11-14].

#### Экспериментальная часть

В ходе лабораторных экспериментов было проведено моделирование нефтеотдачи на месторождениях с разной проницаемостью пластов с использованием двух композиций различного состава. В качестве модели пласта использовали две металлические колонки, заполненные диспергированным керновым материалом. Предварительно подготовленные колонки помещали в стенд для определения газовой проницаемости, проводили фиксацию расхода газа и при необходимости корректировали плотность набивки кернового материала. Затем колонки помещали в экспериментальный стенд SAP-700, где проводили их последовательное насыщение водой и нефтью. Исходные данные проведенных экспериментов по нефтевытеснению на установке SAP-700 представлены в табл. 1, а сама установка – на рис. 1.

 Таблица 1. Исходные данные для проведения экспериментов на установке SAP-700

 Table 1.
 Initial data for making experiments on the SAP-700 installation

| Композиция A (8 % карбамида, 4 % хлорида алюминия)<br>Composition A (8 % urea, 4 % aluminum chloride) |                 |                          |                       |  |   |  |  |                                  |
|---|-----------------|--------------------------|-----------------------|--|---|--|--|----------------------------------|
| Номер колонки<br>Column number  | пустая<br>empty | с керном<br>full of core | Macca<br>керн<br>core | a, г/Mass, g<br>заполненная<br>водой<br>with water | Объем пор, см <sup>3</sup><br>Pore volume,<br>cm <sup>3</sup> | Объем нефти,<br>см <sup>3</sup><br>Oil volume, cm <sup>3</sup> | Проницаемость<br>Permeability, D                               |                                  |
| 1   | 1190,5          | 1307,0                   | 116,5                 | 1331,3   | 1331,0  | 24,3   | 18,2   | 0,17                             |
| 2   | 1188,2          | 1298,8                   | 110,6                 | 1326,6   | 1328,6  | 27,8   | 23,1   | 0,62                             |
|   |                 | I                        | Композиц<br>Compos    | ия Б (8 % уротро<br>ition B (8 % urotr             | пина, 4 % хлорида<br>opin, 4 % aluminum                       | алюминия)<br>n chloride)                                       |  |                                  |
|   |                 |                          | Macca                 | ı, г/Mass, g                                       |   | Of an rap ar   | Obt ov updru   |                                  |
| Номер колонки<br>Column number  | пустая<br>empty | с керном<br>full of core | керн<br>core          | заполненная<br>водой<br>with water                 | заполненная<br>нефтью<br>with oil                             | Pore volume,<br>cm <sup>3</sup>                                | объем нефти,<br>см <sup>3</sup><br>Oil volume, cm <sup>3</sup> | Проницаемость<br>Permeability, D |
| 1   | 1159,0          | 1275,3                   | 116,3                 | 1300,8   | 1301,2  | 25,5   | 18,9   | 0,17                             |
| 2   | 1144,2          | 1252,6                   | 108,4                 | 1280,0   | 1280,2  | 27,4   | 22,7   | 0,59                             |



- Рис. 1. Схема установки для изучения фильтрации жидкостей при моделировании пластовых условий и определения коэффициента вытеснения нефти: 1 поршневой насос; 2 контейнер с композицией; 3 демпфер мерник; 4 термошкаф; 5 колонки с керновым материалом; 6, 7 мерники для нефти и воды; 8, 9 баллоны с азотом для моделирования пластового давления в колонках
- Fig. 1. Scheme of the setup for determining oil recovery factor and studying the fluid filtration during simulation of reservoir conditions: 1 the piston pump; 2 the tank with composition; 3 the damper measuring device; 4 the thermostat; 5 the columns with a core material; 6, 7 the measuring points for oil and water; 8, 9 the cylinders with nitrogen to simulate reservoir pressure in columns

До начала эксперимента две колонки наполнили диспергированным керновым материалом известной проницаемости, которую измерили газовым методом, и затем пропитали их пластовой водой. В опытах с обеими композициями проницаемость низко- и высокопроницаемой колонок отличалась примерно в 3 раза (табл. 1). Динамическая вязкость нефти, использованной в экспериментах, равна  $\eta_{\text{не}\phi\text{ть}}=12$  мПа·с. Плотность нефти при температуре 293 К составляла  $\rho_{\text{не}\phi\text{ть}}=0,854$  г/см<sup>3</sup>, а вязкость ( $\eta_{\text{пл.вода}}$ ) и плотность

(р<sub>пл.вода</sub>) пластовой воды 1,06 мПа·с и 1,04 г/см<sup>3</sup> соответственно. Увеличение массы колонок после введения в них измеренного количества нефти (табл. 1) вместо частично удаленной пластовой воды вызвано тем, что при первичном насыщении их водой не все поры кернового материала были заполнены жидкостью. В колонках оставался воздух, который и искажал массу в меньшую сторону по сравнению с массой колонок, которые затем были полностью заполнены нефтью. Предполагается, что во время насыщения колонок нефтью частично оставшаяся в них вода была продавлена в ранее незанятые пустоты.

Во время проведения эксперимента на лабораторном стенде (рис. 1) вода поршневым насосом (1) через промежуточные ёмкости (2 и 3) с вытесняющим флюидом или композицией нагнеталась в две параллельные колонки (5) с керновым материалом, насыщенные известным количеством нефти. Колонки, помещенные в термошкаф (4) при температуре 363 К, находились под повышенным давлением азота (8), моделирующим пластовое давление. Вытесненная нефть и вода накапливались в мерниках (6 и 7) в контролируемых во времени и измеряемых объёмах (V<sub>ПОР</sub>). Результаты экспериментов использовали в последующих расчетах и при построении графических иллюстраций.

Фильтрацию воды и сбор вытесняемой продукции продолжали до момента прорыва воды через высокопроницаемую колонку, которая происходила примерно через 100 минут (рис. 2). Затем из емкости (2) также при помощи насоса (1) проводили закачку оторочки композиций с карбамидом (А) или с уротропином (Б), равную четверти суммарного порового объёма двух колонок (0,25 V<sub>ПОР</sub>). После введения композиций в колонки в первом (А) или во втором (Б) экспериментах установку оставляли в покое на 24 часа при температуре 363 К в термостате (4). За это время компоненты маловязких композиций успевают прореагировать с образованием высоковязкого геля и заблокировать каналы (капилляры), уже промытые от нефти. Далее возобновили фильтрацию воды через колонки до максимально возможного вытеснения нефти.

Состав первой композиции (А) для получения высоковязкого продукта химической реакции (геля) представляет собой маловязкий водный раствор ( $\eta$ ~1,4 мПа·с), содержащий 8 % карбамида и 4 % хлорида алюминия. Исходный раствор обладает ярко выраженными кислотными свойствами (pH ~2–3), которые являются следствием гидролиза соли (AlCl<sub>3</sub>) сильной кислоты и слабого основания.

Технологическая и физико-химическая суть процесса образования продукта высоковязкой консистенции из исходной маловязкой композиции заключается в том, что при прокачке оторочки трехкомпонентной композиции по стволу скважины её температура повышается незначительно. Но при достижении целевого пласта, температура которого выше 363 К, в растворе начинает протекать химическая реакция со скоростью, нарастающей по мере прогрева и увеличения температуры исходной композиции. Известно,

что растворенный в воде карбамид только при нагревании разлагается с выделением аммиака (NH<sub>3</sub>) и диоксида углерода (СО<sub>2</sub>). Аммиак растворяется в воде и с течением времени способствует постепенному повышению рН среды от кислого до щелочного состояния (pH>7), а диоксид углерода снижает вязкость нефти вследствие его абсорбции в углеводородной фазе [15]. Когда система достигает значений рН примерно равной 4-5, в обводненных капиллярах и трещинах, пропитанных композицией, происходит практически мгновенное и объёмное образование пастообразного геля гидроксида алюминия Al(OH)3, который блокирует промытый высокопроницаемый пропласток. Эффективность данной композиции как блокирующего агента подтверждается и реологическими исследованиями, проведенными на ротационном вискозиметре [16-20], по результатам которых было выявлено, что через 24 часа после начала прогрева вязкость системы увеличивается примерно на три порядка.

### $3(NH_2)_2CO+2AlCl_3+9H_2O \rightarrow 3CO_2\uparrow +6NH_4Cl+2Al(OH)_3\downarrow$

Состав второй композиции (Б) представляет собой также маловязкий водный раствор ( $\eta$ ~1,4 мПа·с), содержащий 4 % хлорида алюминия, но вместо карбамида в ней присутствует 8 % уротропина ( $C_6H_{12}N_4$ ). Процесс изменения pH раствора от кислого к щелочному состоянию протекает аналогично. Уротропин разлагается с образованием формальдегида (CH<sub>2</sub>O) и воды, а также с выделением аммиака, растворение которого в воде ведет к её подщелачиванию. Хлорид алюминия в щелочной среде подвергается гидролизу с образованием гелеобразного осадка Al(OH)<sub>3</sub>. Основное отличие данного процесса от описанного ранее заключается в более низкой температуре реакции (313 K), а также в отсутствии углекислого газа в числе образующихся продуктов.

 $3C_6H_{12}N_4+4AlCl_3+30H_2O \rightarrow 18CH_2O+12NH_4Cl+4Al(OH)_3\downarrow$ 

#### Анализ результатов экспериментов

По данным экспериментов были построены графические зависимости накопления вытесненной нефти от времени (рис. 2), а также зависимость изменения давления в процессе фильтрации (рис. 3). Из представленных зависимостей отчетливо видно (рис. 2), что вплоть до введения композиций в установку вытеснение нефти наблюдается практически только из высокопроницаемой колонки, что значительно снижает КИН.

Анализируя графики изменения давления в установке (рис. 1) для обоих экспериментов с композициями (А и Б), можно выделить два характерных пика (рис. 3). Появление первого пика в обоих экспериментах обусловлено преодолением сопротивления нефти, которая на начальном этапе процесса вытеснения занимает в порах керна большую часть длины высокпроницацаемой колонки (I). Из низкопроницаемой колонки (II) фильтрация при этом практически отсутствует. По мере вытеснения нефти, имеющей более высокую вязкость по сравнению с водой, обльшая часть высокопроницаемой колонки освобождается от нефти и заполняется маловязкой водой, поэтому общее давление в установке уменьшается и выходит на некоторое плато, появление которого на рис. 3 свидетельствует о прорыве воды через высокопроницаемую колонку. После нагнетания в промытую водой высокопроницаемую колонку маловязких композиций А или Б и формирования в ней при повышенной температуре высоковязкого (блокирующего) геля гидроксида алюминия начинается фильтрация жидкости (вытесняющего флюида и нефти) уже из низкопропроницаемой колонки, что сопровождается повторным повышением давления. После вытеснения нефти из низкопропроницаемой колонки давление снова выходит на плато, но уже при больших значениях.



**Рис. 2.** Зависимости накопления вытесненной нефти от времени в экспериментах при использовании композиций на основе: А) карбамида; Б) уротропина: 1 – нефть из высокопроницаемой колонки; 2 – нефть из низкопроницаемой колонки

Fig. 2. Relationships of cumulative oil and water production on time using composition based on: A) urea; B) urotropin: 1 - oil from high-permeable sample; 2 - oil from low-permeable sample



**Рис. 3.** Зависимость изменения давления в установке от времени в экспериментах с разными композициями: 1 – карбамидом; 2 – уротропином

Fig. 3. Dependence of the change in pressure at the entrance to the system on time in the experiment with: 1 - urea; 2 - urotropin

| Таблица 2. | Изменение | КИН д | o u r | юсле з | закачки | компози- |
|------------|-----------|-------|-------|--------|---------|----------|
|            | ций А и В |       |       |        |         |          |

| una D composition                          |       |   |       |  |  |  |  |
|--|-------|---|-------|--|--|--|--|
| Композиция А (8 % карба                    | мида; | Композиция В (8 % уротропина;                   |       |  |  |  |  |
| 4 % хлорида алюмини                        | я;    | 4 % хлорида алюмини                             | я;    |  |  |  |  |
| 88 % вода)                                 |       | 88 % вода)                                      |       |  |  |  |  |
| Composition A (8 % ure                     | ea;   | Composition B (8 % urotro                       | opin; |  |  |  |  |
| 4 % aluminum chloride                      | ;     | 4 % aluminum chloride                           | ;     |  |  |  |  |
| 88 % water)                                |       | 88 % water)                                     |       |  |  |  |  |
| КИН/RF                                     | %     | КИН/RF  | %     |  |  |  |  |
| Без композиции<br>Before using composition | 25,0  | Без композиции<br>Before using composition 14,0 |       |  |  |  |  |
| С композицией<br>After using composition   | 40,0  | С композицией<br>After using composition        | 38,0  |  |  |  |  |
| Добавочный/Additional                      | 15,0  | Добавочный/Additional 24,0                      |       |  |  |  |  |

 Table 2.
 Recovery factor (RF) before and after using A and B composition

Помимо построения графических зависимостей, представленных на рис. 2, 3, также был оценен КИН до и после закачки композиций. Результаты приведены в табл. 2.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

 Шубин А., Шустер М. Химия и нефть. Щелочь-ПАВполимерное заводнение – эффективный метод увеличения нефтеотдачи // Приложение к журналу «Сибирская нефть». – 2014. – № 2/109. – С. 17–25.

#### Заключение

Как видно из результатов экспериментов (табл. 2), суммарные коэффициенты извлечения нефти для каждой композиции составили А=0,40 и Б=0,38 соответственно, при этом величины 0,15 и 0,24 являются добавочными значениями КИН, которые были получены благодаря применению композиций. Экспериментально полученные результаты позволяют сделать вывод, что ввиду значительного увеличения КИН, а также вследствие доступности и невысокой стоимости компонентов композиций их применение является обоснованным как с технологической, так и с экономической точек зрения.

Работа выполнена в рамках государственного задания ИХН СО РАН, финансируемого Министерством науки и высшего образования Российской Федерации.

- Миловидов К.Н., Колчанова Т.И. Мировая практика применения методов повышения нефтеотдачи // НТЖ «Нефтегазопромысловое дело». – 2002. – № 8. – С. 46–48.
- Жданов С.А. Опыт применения методов увеличения нефтеотдачи в России // Нефтяное хозяйство. – 2008. – № 1. – С. 58–61.

- Алтунина Л.К., Кувшинов В.А. Увеличение нефтеотдачи пластов композициями ПАВ. – Новосибирск: Изд-во «Наука», 1995. – 198 с.
- Федорова А.Ф., Шиц Е.Ю., Портнягин А.С. Исследование возможности применения растворов полимеров в качестве агентов вытеснения нефти на месторождениях с аномально низкими пластовыми температурами // Электронный научный журнал «Нефтегазовое дело». – 2008. – № 1. – С. 12–22.
- Tabary R., Bazin B. Advances in chemical flooding // Improved Oil recovery (IOR) Techniques and Their Role in Boosting the Recovery Factor: IFP-OAPEC Joint Seminar. – France, 2007.
- Levitt D.B., Pope G.A. Selection and screening of polymers for enhanced-oil recovery // SPE Symposium on Improved Oil Recovery. – Tulsa: USA, 2008. – P. 1125–1143.
- Shandrygin A., Lutfullin A. Current status of enhanced recovery techniques in the fields of Russia // SPE Annual Technical Conference and Exhibition. – Denver, Colorado, USA, 2008. – P. 1929–1946.
- Thomas A. Polymer Flooding, Chemical Enhanced Oil Recovery (cEOR) – a practical overview / Ed. by Dr. L. Romero-Zerón. – 2016. DOI: 10.5772/64623.
- EOR: Current status and opportunities / E.J. Manrique, C. Thomas, R. Ravikiran, M. Izadi, M. Lantz, J. Romero, V. Alvarado // SPE Improved Oil Recovery Symposium. – Tulsa, USA, 2010. – P. 1584–1604.
- Способ регулирования разработки нефтяного месторождения с разнопроницаемыми пластами: пат. Рос. Федерация. № 2061856; заявл. 30.06.92; опубл. 10.06.96, Бюл. № 16. – 6 с.
- Состав для повышения нефтеотдачи пластов: пат. Рос. Федерация. № 2066743; заявл. 08.02.93; опубл. 20.09.96, Бюл. № 26. 7 с.
- Способ регулирования разработки нефтяного месторождения: пат. Рос. Федерация. № 2467165; заявл. 11.10.10; опубл. 20.11.12, Бюл. № 32. – 9 с.

- Enhanced oil recovery techniques for heavy oil and oilsands reservoirs after steam injection (review) / Xiaohu Donga, Huiqing Liua, Zhangxin Chena, Keliu Wua, Ning Lua, Qichen Zhanga // Journ. Applied Energy. – 2019. – № 239. – P. 1190–1211.
- Кувшинов В.А., Алтунина Л.К., Стасьева Л.А. Кинетика гелеобразования в системе соль алюминия – карбамид – вода // Физико-химические свойства растворов и дисперсий. – Новосибирск: Наука, 1992. – С. 18–24.
- Кувшинов В.А., Манжай В.Н., Алтунина Л.К. Реологическое исследование системы соль алюминия – карбамид – вода // Физико-химические свойства растворов и дисперсий. – Новосибирск: Наука, 1992. – С. 24–30.
- Кувшинов И.В., Алтунина Л.К., Кувшинов В.А. Комбинированная обработка скважин химическими композициями различного назначения в сочетании с термическим воздействием // Журн. СФУ. Химия. 2019. Т. 12. № 4. С. 473–482.
- 18. Увеличение нефтеотдачи залежей высоковязких нефтей кислотными композициями на основе поверхностно-активных веществ, координирующих растворителей и комплексных соединений / Л.К. Алтунина, В.А. Кувшинов, Л.А. Стасьева, И.В. Кувшинов // Георесуры. 2019. Т. 21. № 4. С. 103–113.
- Pope G.A. Overview of Chemical EOR // Casper EOR Workshop. – Austin, The University of Texas, October 26th 2007.
- Enhanced oil recovery for deposits of high viscosity oils using multifunctional systems based on surfactants / L.K. Altunina, V.A. Kuvshinov, L.A. Stasieva, I.V. Kuvshinov // Journ. of Physics: Conference Series. – 2020. – V. 1611. – № 1. – 012033. DOI: 10.1088/1742-6596/1611/1/012033.

Поступила 15.07.2021 г.

#### Информация об авторах

*Манжай В.Н.*, доктор химических наук, старший научный сотрудник Института химии нефти СО РАН. *Ульянюк М.П.*, магистрант Инженерной школы природных ресурсов Национального исследовательского Томского политехнического университета.

Рождественский Е.А., ведущий инженер Института химии нефти СО РАН.

UDC 553.981:550.41

## PROMISING TECHNOLOGY FOR ENHANCED OIL RECOVERY OF OILFIELDS WITH DIFFERENT RESERVOIR PERMEABILITY

## Vladimir N. Manzhay<sup>1</sup>,

mang@ipc.tsc.ru

## Maksim P. Ulyanyuk<sup>2</sup>, mega.ulyanyuk@mail.ru

meya.uiyanyuk@maii.ru

## Evgeny A. Rozhdestvensky<sup>1</sup>, rea876@ipc.tsc.ru

- Institute of Petroleum Chemistry of the SB RAS,
   4, Academichesky avenue, Tomsk, 634055, Russia.
- <sup>2</sup> National Research Tomsk Polytechnic University, 30, Lenin avenue, Tomsk, 634050, Russia.

**Relevance.** Oil deposits often have a complex heterogeneous structure with hard-to-recover reserves, the development of which is complicated by the fact that different layers have different permeability. As a result, the use of flooding, the most common method of increasing oil recovery, quickly becomes ineffective as water begins to circulate through washed, highly permeable channels. The solution to this problem is the use of blocking agents, special compositions that close these channels and force water to displace oil from previously unused zones.

The main aim of the research is the analysis of the effectiveness of compositions based on urea and urotropin as blocking agents in enhanced oil recovery process.

**Research methods:** simulation of oil displacement process on SAP-700 setup with two parallel columns; gas method for determining permeability of the rock.

**Results.** The effectiveness of the use of compositions based on urea and urotropin as blocking agents in order to increase recovery factor was experimentally confirmed in laboratory conditions. The first experiment showed that ultimate oil recovery factor was 0,4, 0,16 of which was additional. The second experiment showed, that ultimate recovery factor was 0,38, 0,24 of which was additional. These technologies for oilfields with different reservoir permeability can significantly increase the degree of reserve development compared to conventional flooding.

#### Key words:

Enhanced oil recovery, oil recovery factor, urea, urotropin, viscosity.

The research was carried out within the State task of the OCI SB RAS, financially supported by the Ministry of Sciences and Higher Education of the Russian Federation.

#### REFERENCES

- Shubin A., Shuster M. Chemistry and oil. Alkali surfactant polymer flooding – an effective method for increasing oil recovery. *Supplement to the journal Siberian Oil*, 2014, no. 2/10, pp. 17–25. In Rus.
- Milovidov K.N., Kolchanov T.I. World practice of application of methods of increase of oil recovery. *Neftegazopromyslovoe delo*, 2002, no. 8, pp. 45–49. In Rus.
- 3. Zhdanov S.A. Experience in applying methods to increase oil recovery in Russia. *Oil industry*, 2008, no. 1, pp. 57–61. In Rus.
- Altunina L.K., Kuvshinov V.A. Uvelichenie nefteotdachi plastov kompozitsiyami PAV [Increase in oil recovery of reservoirs by surfactant compositions]. Novosibirsk, Nauka Publ., 1995. 198 p.
- Fedorova A.F., Shits E.Yu., Portnyagin A.S. Investigation of the possibility of using polymer solutions as agents for displacement of oil in fields with anomalously low reservoir temperatures. *Electronic Scientific Journal «Oil and Gas Business»*, 2008, no. 1, pp. 12–23. In Rus.
- Tabary R., Bazin B. Advances in Chemical Flooding. *IFP-OAPEC* Joint Seminar. Improved Oil Recovery (IOR) Techniques and Their Role in Boosting the Recovery Factor. France, 2007.
- Levitt D.B., Pope G.A. Selection and screening of polymers for enhanced – oil recovery. SPE Symposium on Improved Oil Recovery. Tulsa, USA, 2008. pp. 1125–1142.
- Shandrygin A., Lutfullin A. Current status of enhanced recovery techniques in the fields of Russia. SPE Annual Technical Conference and Exhibition. Denver, Colorado, USA, 2008. pp. 1929–1946.

- Thomas A. Polymer Flooding, Chemical Enhanced Oil Recovery (cEOR) – a practical overview. Ed. by Dr. Sc. L. Romero-Zerón. 2016. DOI: 10.5772/64623.
- Manrique E.J., Thomas C., Ravikiran R., Izadi M., Lantz M., Romero J., Alvarado V. EOR: Current status and opportunities. *SPE Improved Oil Recovery Symposium*. Tulsa, USA, 2010. SPE– 130113. pp. 1584–1604.
- Altunina L.K., Kuvshinov V.A., Stasyeva L.A., Manzhay V.N., Nazarov V.I., Bernshtein A.M., Polkovnikov V.V., Tarasov A.G. A method for regulating the development of an oil field with multi – permeable layers. Patent RF, no. 2061856, 1996.
- Altunina L.K., Kuvshinov V.A., Stasyeva L.A. A composition for oil recovery increasing. Patent RF, no. 2066743, 1996.
- Altunina L.K., Kuvshinov V.A., Stasyeva L.A. A method for regulating the development of an oil field. Patent RF, no. 2467165, 2012.
- Xiaohu Donga, Huiqing Liua, Zhangxin Chena, Keliu Wua, Ning Lua, Qichen Zhanga. Enhanced oil recovery techniques for heavy oil and oilsands reservoirs after steam injection (review). *Journ. Applied Energy*, 2019, no. 239, pp. 1190–1211.
- Kuvshinov V.A., Altunina L.K., Stasyeva L.A. kinetika geleobrazovaniya v sicteme col aluminiya – karbamid – voda [Kinetics of gel formation in aluminate – carbamide – water system]. *Fiziko-khimicheskie svoystva rastvorov i dispersy* [Compendium: physical and chemical properties of solutions and dispersions]. Novosibirsk, Nauka Publ., 1992. pp. 18–24.

- Kuvshinov V.A., Manzhay V.N., Altunina L.K. Reologicheskoe issledovanie sistemy sol aluminiy – karbamid – voda [Rheological study of the aluminum salt – urea – water system]. *Fizikokhimicheskie svoystva rastvorov i dispersy* [Compendium: Physical and chemical properties of solutions and dispersions]. Novosibirsk, Nauka Publ., 1992. pp. 24–30.
- Kuvshinov I.V., Altunina L.K., Kuvshinov V.A. Combined wells treatment with various chemical compositions and thermal methods. *Zhurn. SFU. Khimiya*, 2019, vol. 12, no. 4, pp. 473–482. In Rus.
- Altunina L.K., Kuvshinov V.A., Stasyeva L.A., Kuvshinov I.V. Enhanced oil recovery from high-viscosity oil deposits by acid

systems based on surfactants, coordining solvents and complex compounds. *Georesursy*, 2019, vol. 21, no. 4, pp. 103–113. In Rus.

- Pope G.A. Overview of Chemical EOR. Casper EOR Workshop. Austin, October 26th 2007.
- Altunina L.K., Kuvshinov V.A., Stasieva L.A., Kuvshinov I.V. Enhanced Oil Recovery for deposits of high viscosity oils using multifunctional systems based on surfactants. *Journ. of Physics: Conference Series*, 2020, vol. 1611, no. 1. DOI: 10.1088/1742-6596/1611/1/012033.

Received: 15 July 2021.

#### Information about the authors

Vladimir N. Manzhay, Dr. Sc., senior researcher, Institute of Petroleum Chemistry of the SB RAS.Maksim P. Ulyanyuk, graduate student, National Research Tomsk Polytechnic University.Evgeny A. Rozhdestvensky, leading engineer, Institute of Petroleum Chemistry of the SB RAS.

УДК 553.411(571.5)

## ОСОБЕННОСТИ РУДООБРАЗОВАНИЯ БАРУН-ШИВЕИНСКОГО ВОЛЬФРАМОВОГО МЕСТОРОЖДЕНИЯ (ВОСТОЧНОЕ ЗАБАЙКАЛЬЕ)

#### Абрамов Баир Намжилович,

b\_abramov@mail.ru

Институт природных ресурсов, экологии и криологии СО РАН, Россия, 672014, г. Чита, ул. Недорезова, 16а, а/я 1032.

**Актуальность** исследования состоит в необходимости расширения минеральной сырьевой базы России. Восточное Забайкалье является одним из старейших горнорудных регионов страны. Барун-Шивеинское месторождение относится к ртутносурьмяно-вольфрамовой рудной формации. Для региона остро стоит вопрос о поисках и обнаружении новых рудных месторождений. Для успешного выполнения такой задачи необходимы данные детального изучения уже известных рудных месторождений, которые могут быть использованы для разработки научно обоснованных критериев поиска рудных месторождений и прогноза оруденения. К числу таких данных относится определение источников рудоносных расплавов и условий формирования месторождений ртутно-сурьмяно-вольфрамовой рудной формации.

**Целью** исследования является доказательство участия в рудообразовании нескольких рудоносных источников с разными характеристиками на основании данных изотопного состава кислорода рудоносного кварца и серы сульфидов, а также сравнительного анализа элементного состава кварц-вольфрамитовых руд Барун-Шивеинского месторождения с элементным составом руд кварц-вольфрамитовых руд вольфрамовых месторождений Восточного Забайкалья.

Объектом исследования является Барун-Шивеинское вольфрамовое месторождение, расположенное в Восточном Забайкалье.

Методы. Для определения элементного состав пород использовался рентгенфлуоресцентный метод и стандартный химический анализ в Геологическом институте Сибирского отделения Российской Академии Наук (ГИН СО РАН, г. Улан-Удэ). Определение изотопного состава кислорода проводилось в аналитическом центре (ГИН СО РАН, г. Улан-Удэ) с использованием установки MIR 10-30 системы лазерного нагрева с лазером СО₂ мощностью 100 ватт и длиной волны 10,6 мкм в инфракрасной области, в присутствии реагента BrF₅ по методу Z.D. Sharp (1990). Изучение состава минералов производилось в ГИН СО РАН на растровом электронном микроскопе LEO-1430VP с энергодисперсионным спектрометром INCA Energy 350 (OxfordInstruments) при ускоряющем напряжении 20 кВ, токе зонда меньше 0,5 нА, размере зонда 0,1 мкм. В режиме анализа время набора спектров составило 50 с. Изучение изотопного состава серы сульфидов проведено в центре коллективного пользования многоэлементных и изотопных исследований СО РАН (г. Новосибирск).

**Результаты.** Изотопный состав кислорода во флюиде в равновесии с кварцем продуктивного этапа при 210–150 °C составляет 4,25–14,22 ‰, что соответствует водному флюиду магматической природы. Установлен изотопный состав серы киновари, заключительной рудной стадии формирования месторождения, соответствующий мантийным значениям. Узкий интервал значений серы киновари  $\delta^{34}$ S, ‰ CDT om -3,5 do -4,5 указывает на их единый источник. Впервые на месторождении определено наличие редких минералов киновари (метацинобарит, кордероит), образующихся в зонах окисления ртутных месторождений при низкотемпературных условиях. Определен их элементный состав. В кварц-вольфрамитовых рудах вольфрамовых месторождений Восточного Забайкалья, в том числе Барун-Шивеинского, выявлена тесная корреляционная связь (r - 0,53 - 0,96) с рядом элементов (As, Ta, Nb, Hf), свидетельствующая об единых источниках их формирования. Формирование руд Барун-Шивеинского месторождения проходило из разноуровневых рудоносных источников. Образование вольфрамитов происходило за счет корового источника, ртути – мантийного.

#### Ключевые слова:

Барун-Шивеинское месторождение, вольфрамит, киноварь, изотопы кислорода и серы, мантийный источник, Восточное Забайкалье.

#### Введение

Барун-Шивеинское ртутно-сурьмяно-вольфрамовое месторождение, расположенное в центральной части Забайкальского края, является составной частью Монголо-Охотского ртутного пояса [1]. Ртутные зоны приурочены к разломами северо-восточного простирания, которые являются составляющими Монголо-Охотского глубинного разлома. Породы, вмещающие рудные тела Барун-Шивеинского месторождения, представлены кварцитами ононской свиты (PR<sub>2</sub>) с прослоями слюдисто-хлоритовых сланцев. Рудные тела, локализованные в зонах дробления, представлены прожилково-вкрапленными зонами с редкими кварцевыми жилами и минерализованными зонами брекчий. Характерной особенностью месторождения является отсутствие в районе месторождения магматических образований. Основной задачей исследования является установление источников оруденения с использованием изотопных данных, сравнительного анализа элементного состава руд месторождения с элементным составом руд вольфрамовых месторождений Восточного Забайкалья. Особенности геологического строения месторождения описаны в единичных работах [2]. Приуроченность вольфрамового оруденения к кварцитовым горизонтам ононской серии (PR<sub>2</sub>) позволила отнести данное месторождение к стратиформному типу. Наличие в рудообразовании корового магматического и мантийного источников позволяет отнести Барун-Шивеинское месторождения к числу полигенных месторождений.

#### Методика исследования

Аналитические исследования проведены в Геологическом институте СО РАН (г. Улан-Удэ). Определение элементного состава пород проводилось РФА методом на спектрометре ЭДПС-1, аналитик Б.Ж. Жалсараев. Состав петрогенных компонентов определялся стандартным методом «мокрой» химии. Изучение состава минералов производилось в ГИН СО РАН на растровом электронном микроскопе LEO-1430VP с энергодисперсионным спектрометром INCAEnergy350 (OxfordInstruments) при ускоряющем напряжении 20 кв, токе зонда меньше 0,5 нА, размере зонда 0,1 мкм. В режиме анализа время набора спектров составило 50 с. Определение изотопного состава кислорода и вольфрама проводилось с использованием установки MIR 10-30 системы лазерного нагрева с лазером СО2 мощностью 100 ватт и длиной волны 10,6 мкм в инфракрасной области, в присутствии реагента BrF5 по методу Z.D. Sharp [3] (ГИН СО РАН г. Улан-Удэ), аналитик В.Ф. Посохов. Изотопный состав серы киновари определен в ЦКП многоэлементных и изотопных исследований СО РАН (г. Новосибирск), аналитики М.Н. Колбасова.

#### Краткая геологическая характеристика Барун-Шивеинского вольфрамового месторождения

Барун-Шивеинское месторождение расположено в Агинско-Борщовочной структурно-формационной зоне. Месторождение приурочено к верхней части ононской свиты (PR<sub>2</sub>). Месторождение размещено в южном крыле Барун-Шивеинской брахиантиклинали и субширотной тектонической зоне разломов, оперяющей с востока Хара-Шибирский разлом северо-восточного простирания. Он проявлен зонами дробления, брекчирования и окварцевания пород. В структурах оперения Хара-Шибирского разлома локализуется Барун-Шивеинское месторождение, так и находящееся к северу о него Жипкошинское сурьмянное месторождение (рис. 1). Возраст сурьмяного оруденения соответствует раннему мелу (142,5±1,5 млн лет) [4].



- Рис. 1. Схема геологического строения центральной части Восточного Забайкалья: 1 неоген-четвертичные отложения (N, Q); 2 меловые отложения (K); 3 юрские отложения (J); 4 триассовые отложения (T); 5 рифейские и палеозойские отложения (R, PZ); 5 архейские стратифицированные отложения (AR); 7 интрузии кукульбейского комплекса (J<sub>3</sub>); 8 интрузии амуджиканского комплекса (J<sub>2-3</sub>); 9 интрузии борщевочного комплекса (J<sub>2-3</sub>); 10 интрузии бичурского комплекса (T<sub>3</sub>); 11 интрузии ундинского комплекса (C); 12 тектонические нарушения; 13 Монголо-Охотская сутура: а) основная ветвь Монголо-Охотской сутуры, б) Ононская ветвь Монголо-Охотской сутуры; 14 месторожения: а) вольфрама (1 Барун-Шивеинское, 4 Спокойнинское, 5 Антоновогорское, 6 Букукунское, 7 Белухинское), б) золото (8 Балейское, 9 Средне-Голготайское, 10 Верхне-Алиинское), в) редких металлов (10 Завитинское), г) сурьмы (2 Жипкошинское)
- Fig. 1. Geological structure diagram of the central part of Eastern Transbaikalia: 1 Neogene Quaternary sediments (N, Q);
  2 Cretaceous sediments (K); 3 Jurassic sediments (J); 4 Triassic sediments (T); 5 Riphean and Paleozoic sediments (R, PZ); 5 Archean stratified sediments (AR); 7 intrusions of kukulbeysky complex (J<sub>3</sub>); 8 intrusions of amuzhikansky complex (J<sub>2-3</sub>); 9 intrusions of borshevochniy complex (J<sub>2-3</sub>); 10 intrusions of bichursky complex (T<sub>3</sub>); 11 intrusions of undinsky complex (C); 12 tectonic disturbances; 13 Mongolo-Okhotsky sutura: a) the main branch of Mongol-Okhotsky sutura, b) Ononsky branch of Mongol-Okhotsky sutura; 14 deposits: a) tungsten (1 Barun-Shiveinskoe, 4 Spokoyininskoe, 5 Antonovogorskoe, 6 Bukukunskoe, 7 Belukhinskoe), b) gold (8 Baleyskoe, 9 Sredne-Golgotayskoe, 10 Verkhne-Aliinskoe), c) rare metals (10 Zavitinskoe), d) antimony (2 Zhipkoshinskoe)

В Восточном Забайкалье, как и в Алтае-Саянской области, для ртутных месторождений глубинные разломы, вероятнее всего, являются рудоподводящими, а сопряженные с ними разломы второго и последующих порядков рудовмещающими [5]. Структурный контроль оруденения Барун-Шивеинского месторождения определяется приуроченностью к аллохтонной зоне надвига, имеющего амплитуду смещения пластов около 1 км [6]. Характерной особенностью гео-

логического строения месторождения является отсутствие магматических образований. Рудные тела, представленные прожилковыми зонами и редкими кварцевыми жилами, локализованы в кварцитовых толщах с прослоями метаморфических сланцев. Метаморфические сланцы кварц-биотитовые, кварцсерицитовые, кварц-биотит-серицитовые. Кварциты несут следы катаклаза. Зоны тектонических брекчий часто вмещают рудные тела (рис. 2).



Рис. 2. Схема геологического строения Барун-Шивеинского месторождения: 1 – четвертичные отложения: пески, галечники, валуны, суглинки; 2 – плиоцен-нижнечетвертичные отложения: галечники, глины, суглинки; ононская свита (PR<sub>3</sub>): 3 – кварциты, 4 – слюдисто-хлоритовые сланцы; 5 – рудные тела: а) установленные, б) проекции рудных тел на поверхности по скважинам; 6 – участки пород с прожилково-вкрапленной вольфрамовой минерализацией с содержанием WO<sub>3</sub>>0,1 %; 7 – тектонические нарушения: а – установленные, б – скрытые под чехлом четвертичных отложений; 8 – разрез I-I: а) скважины, б) линии скважин

Fig. 2. Geological structure diagram of Barun-Shiveinskoe deposit: 1 – Quaternary sediments: sand, pebbles, boulders, loams; 2 – Pliocene-Lower Quaternary sediments: pebbles, clays, loams; ononsky formation (PR<sub>3</sub>): 3 – quartzites, 4 – mica-chlorite shales; 5 – ore bodies: a) established, b) ore projections on a surface on boreholes; 6 – sites of rocks with vein and disseminated tungsten mineralization with content of WO<sub>3</sub>>0,1 %; 7 – tectonic infringements: a – established, b – hidden under a cover of quaternary adjournment; 8 – cut I-I: a) boreholes, b) lines of boreholes

В пределах месторождения выделяются три основных кварцитовых горизонта мощностью 30–80 м, разделенные сланцами мощностью 30–60 м (рис. 2). Кварциты до 80–85 % сложены кварцем, реже отмечается калиевый полевой шпат, диопсид. Геохимические особенности отложений ононской свиты указывают на их образование в обстановке активной континентальной окраины [7]. Петрохимические особенности кварцитов и метаморфогенных сланцев на диаграмме ГМ – (Na<sub>2</sub>O+K<sub>2</sub>O) указывают на соответствие кварцевым песчаникам пассивной и активной континентальной окраины (рис. 3).

На месторождении при проведении геологоразведочных работ и тематических исследований выделено несколько стадий минералообразования. Перерывы между стадиями сопровождались частичным брекчированием ранее образованных руд.

Первая стадия характеризуется образованием молочно-белого кварца с редкой крупной вкрапленностью киновари, ферберита и антимонита. Кварц образует скопления маломощных (2–3 см) прожилок и небольшие жилы (до 10 см), развитые по слоистости пород. Во вторую стадию происходило образование гребенчатого кварца с включениями антимонита. Кварц с включениями антимонита цементирует обломки кварцитов и кварца первой стадии. Из рудных минералов наиболее распространены антимонит, реже отмечаются ферберит, киноварь, пирит. Для данной стадии характерно наличие полосчатых руд, где мономинеральные полосы антимонита чередуются с полосами ферберита. Мощность таких полос 3–6 см.

В третью стадию происходило отложение основной массы ферберитовых руд с подчиненным количеством антимонита, киновари, сфалерита. Формирование руд данной стадии имеет наиболее широкое распространение на месторождении. Образование рудных минералов сопровождается формированием прожилков светло-серого гребенчатого кварца. Отмечается следующая последовательность выделения рудных минералов: антимонит-ферберит-киноварь.

Четвертая стадия характеризуется образованием тонких ветвящихся прожилков кварца с основным количеством киновари и незначительным количеством антимонита. В пятую стадию происходило формирование безрудного кварца, секущего руды всех предыдущих стадий.

Для Барун-Шивеинского месторождения характерны главным образом брекчиевые текстуры с подчиненным количеством полосчатых и прожилковых. Наиболее распространенными рудными минералами являются: ферберит, антимонит, киноварь, реже отмечаются пирит, халькопирит, сфалерит, арсенопирит, метацинобарит, кордероит. Окисленные рудные минералы представлены ферротунгститом, мартитом, лимонитом. В единичных пробах содержание вольфрама в рудах достигает 30 % (табл. 1). Среднее содержание WO<sub>3</sub> в рудах составляет 0,59 %. На основном участке месторождения выделен рудный штокверк размером 650×10×60 м и несколько минерализованных зон мощность от 0,5 до 10 м.





Fig. 3. GM diagram – Na<sub>2</sub>O+K<sub>2</sub>O, % Ononsky formation sediments (PR2): 1 – quartzites, 2 – metamorphic oil shale. Clusters of sand and shale formations [8]: 1 – cluster of monomitic and II – cluster of mesomitic quartz sandstones of the passive continental margin, III – cluster of arkose sandstones of the active continental margin and IV cluster of ancient weathering crust by magnesia-iron basic or ultrabasic rocks. GM (hydrolysate module)=TiO<sub>2</sub>+Al<sub>2</sub>O+Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>+FeO+MnO)/SiO<sub>2</sub>

| № проб<br>Sample no. | W   | Cu  | Zn  | Pb  | As         | Hg          | Sb        | Rb       | Sr   | Zr | Nb   | Hf   | U   | Th  |
|----------------------|---|-----|-----|-----|------------|-------------|-----------|----------|------|----|------|------|-----|-----|
|                      | Кварц с вольфрамитом/Quartz with wolframite |     |     |     |            |             |           |          |      |    |      |      |     |     |
| 393                  | 341   | 71  | 15  | 35  | 33         | 21          | <5        | 11       | 76   | 23 | 4,2  | -    | -   | 2,8 |
| 393-1                | 605   | 110 | 23  | 9   | 82         | 7           | 7,4       | 12       | 21   | 38 | 5,3  | 3,9  | -   | 4,7 |
| 394                  | 434   | 64  | 22  | 39  | 97         | -           | 29        | 2,6      | 69   | 34 | 4,5  | -    | _   | 2,6 |
| 395                  | 99  | 435 | 191 | 160 | 2290       | 1159        | 913       | 3        | 1518 | 50 | 5,6  | 3,9  | ١   | -   |
| 396                  | 635   | 32  | 9,3 | 15  | 43         | 2,5         | ١         | 5,8      | 29   | 19 | 2,5  | -    | ١   | 1,2 |
| 397                  | 396   | 28  | 27  | 30  | 198        | 9,0         | 132       | 10,6     | 59   | 26 | 3,5  | 9,0  | 1,4 | 2,0 |
| 399                  | 399   | 75  | 21  | 12  | 57         | 45          | 10        | 9,3      | 163  | 22 | 3,1  | -    | ١   | 2,5 |
| 400                  | 382   | 41  | 30  | 21  | 47         | -           | -         | 2,5      | 93   | 44 | 2,6  | -    | 3,5 | 5,7 |
| 401                  | 30000                                       | 34  | 112 | 36  | 1086       | 42          | 125       | 12       | 867  | 31 | 5,8  | 16,8 | 1,6 | 6,0 |
| 403                  | 1250  | 80  | 29  | 16  | 125        | -           | 12        | 13       | 117  | 34 | 5,7  | -    | -   | 4,9 |
| 406                  | 330   | 5,2 | 11  | 14  | 178        | 5,8         | 55        | 5,5      | 146  | 22 | 2,2  | -    | -   | -   |
| 406-1                | 346   | 16  | 9   | 11  | 249        | 10          | 64        | 6,3      | 470  | 24 | 3,5  | -    | -   | -   |
| 414                  | 565   | 122 | 16  | 7   | 57         | 77          | 6,7       | 2        | 53   | 23 | 3,0  | -    | 1   | 2,7 |
|                      |   |     |     |     | Рудные     | е брекчии/О | re brecci | as       |      |    |      |      |     |     |
| 408                  | 431   | 157 | 128 | 19  | 579        | 83          | 93        | 7        | 528  | 58 | 4,7  | -    | ١   | -   |
| 408-1                | 488   | 45  | 34  | 13  | 133        | 57          | 24        | 7,5      | 86   | 31 | 2,7  | -    | ١   | -   |
| 409                  | 365   | 50  | 22  | 18  | 108        | -           | 9         | 7,4      | 68   | 31 | 4,0  | -    | ١   | 3,1 |
| 413                  | 326   | 61  | 39  | 13  | 967        | 2089        | 51        | 9        | 240  | 29 | 3,6  | 4,7  | ١   | -   |
| 391                  | 290000                                      | 12  | <3  | 31  | 3409       | -           | 727       | 13       | 1197 | 40 | 15,3 | -    | I   | <5  |
| 410                  | 350000                                      | -   | -   | 24  | 3847       | 702         | 942       |          | 3    | 87 | 24   | 475  | -   | -   |
|                      |   |     |     | Ква | арц с кино | оварью/Quar | tz with o | cinnabar |      |    |      |      |     |     |
| 392                  | 1087  | 25  | 9,2 | 4,7 | 70         | 3250        | 28        | 3        | 9    | 16 | 2,4  | 6,6  | -   | -   |
| 407                  | 299   | 14  | 16  | 13  | 875        | 894         | 171       | 6,0      | 485  | 36 | 3,4  | -    | -   | -   |
| 407-1                | 388   | 332 | 25  | 13  | 710        | 332         | 97        | 4,0      | 825  | 30 | 3,2  | -    | -   | -   |
| 407-2                | 385   | 5   | 8   | 22  | 128        | 903         | 205       | 9,0      | 305  | 24 | 3,0  | _    | -   | _   |
| 411                  | 4281  | 42  | 72  | 20  | 51         | 105000      | 30        | 15       | 695  | 16 | 2,9  | 13,5 | -   | -   |

**Таблица 1.** Элементный состав руд Барун-Шивеинского вольфрамового месторождения, г/т **Table 1.** Elemental composition of ores of the Barun-Shiveinsky tungsten deposit, g/t

Изучение рудных минералов на электронном микроскопе выявило наличие редких минералов киновари (метациннобарит, кордероит), образующихся в зонах окисления ртутных месторождений при низкотемпературных условиях (табл. 2).

Установлено, что формирование кварц-ферберитовых прожилков происходило при температурах 150-210 °C из хлоридно-углекислых растворов, содержащих до 5 мас. % СО<sub>2</sub>. Образование заключительной кварцкиноварной стадии рудообразования происходило при температурах ниже 130 °С [9]. Для изучения изотопного состава кислорода были отобраны образцы кварца из кварцево-сульфидных руд. Изотопный состав  $\delta^{18}$ О в кварце изменяется от 19,6 до 23,9 ‰ (табл. 3). Изотопный состав кислорода гидротермального флюида рассчитан в системе кварц-вода по уравнению  $\delta^{18}O_{\text{кварит}} - \delta^{18}O_{\text{H2O}} = 3,34 \ (10^6/\text{T}^2) - 3,31.$  Где Т – температура по Кельвину [10]. Рассчитанный изотопный состав кислорода во флюиде в равновесии с кварцем продуктивного этапа 210-150 °С меняется от +4,25 до +14,22 ‰. Часть полученных значений соответствуют интервалу, характерному для водных флюидов магматической природы (8180=+5,5...+9,5 %) [11-13] (табл. 3). Значения, превышающие  $\delta 180...+9,5$  ‰, обусловлены поступлением метаморфогенных вод на заключительном этапе эволюции рудообразующей системы.

Изотопный состав серы киновари соответствует мантийным значениям. Узкий интервал значений  $\delta^{34}$ S, ‰ CDT от –3,5 до –4,5 указывает на единый источник их формирования (табл. 4).

| Таблица 2. Химический | состав   | рудных | минералов | Ба- |
|-----------------------|----------|--------|-----------|-----|
| рун-Шивеин            | ского ме | сторож | дения     |     |

Table 2.Chemical composition of ore minerals of<br/>Barun-Shiveinskoe deposit

вольфрама и сурьмы имеют более глубинное происхождение. Образование ртутной минерализации в зонах глубинных нарушений связывается с процессами дегазации Земли [15]. Севернее Барун-Шивеинского месторождения к структуре Хара-Шибирского глубинного разлома приурочено Жипкошинское сурьмянное месторождение (рис. 1).

| Таблица 3. | Изотопный состав кислорода и расчетный  |
|------------|---|
|            | состав сосуществующего с ним флюида Ба- |
|            | рун-Шивеинского месторождения           |

 Table 3.
 Oxygen isotope composition and estimated composition of Barun-Shiveinskoe deposit fluid

| coexisting with oxygen   |                               |                    |                              |  |      |  |  |  |
|--------------------------|-------------------------------|--------------------|------------------------------|--|------|--|--|--|
| Номер проб<br>Sample no. | Состав руд<br>Ore composition | Минерал<br>Mineral | δ <sup>18</sup> O, ‰<br>SMOW | Изотопный состав флюида<br>при различных температурах<br>Fluid isotopic composition at<br>different temperatures,<br>$\delta^{18}O_{H2O}$<br>210 °C 150 °C |      |  |  |  |
| 392                      | Вольфрамит<br>Wolframite      | Кварц<br>Quartz    | 22,8                         | 11,82  | 7,45 |  |  |  |
| 393                      | -//-                          | Кварц              | 22,3                         | 11,32  | 6,95 |  |  |  |
| 394                      | -//-                          | -//-               | 22,8                         | 11,82  | 7,45 |  |  |  |
| 395                      | -//-                          | -//-               | 24,1                         | 13,12  | 8,75 |  |  |  |
| 396                      | -//-                          | -//-               | 22,9                         | 11,92  | 7,55 |  |  |  |
| 397                      | -//-                          | -//-               | 22,3                         | 11,32  | 8,35 |  |  |  |
| 398                      | -//-                          | -//-               | 23,7                         | 12,72  | 9,85 |  |  |  |
| 399                      | -//-                          | -//-               | 25,2                         | 14,22  | 6,95 |  |  |  |
| 400                      | -//-                          | -//-               | 21,9                         | 10,92  | 6,55 |  |  |  |
| 403                      | -//-                          | -//-               | 19,6                         | 8,62   | 4,25 |  |  |  |
| 403-1                    | -//-                          | -//-               | 20,9                         | 9,92   | 5,55 |  |  |  |
| 405                      | -//-                          | -//-               | 23,6                         | 12,62  | 8,55 |  |  |  |
| 407                      | -//-                          | -//-               | 23,9                         | 12,92  | 8,55 |  |  |  |
| 407-1                    | -//-                          | -//-               | 23,1                         | 12,12  | 7,75 |  |  |  |

| Таблица 4. | Изотопный   | состав  | сульфидов  | Барун-Шивеин- |
|------------|-------------|---------|------------|---------------|
|            | ского и Жиг | ікошинс | ского мест | орождений     |

 
 Table 4.
 Isotopic composition of sulfides of Barun-Shiveinskoe and Zhipkoshinskoe deposits

| Номерп роб                         | Минерал        | \$ <sup>34</sup> 6 % CDT |  |  |  |  |  |  |
|------------------------------------|----------------|--------------------------|--|--|--|--|--|--|
| Sample no.                         | Mineral        | 0 S, 700 CD1             |  |  |  |  |  |  |
| Барун-Шивеинское месторождение     |                |                          |  |  |  |  |  |  |
| Barun-Shiveinskoe deposit          |                |                          |  |  |  |  |  |  |
| 392                                | Киноварь       | 4.2                      |  |  |  |  |  |  |
|                                    | Cinnabar       | -4,5                     |  |  |  |  |  |  |
| 407                                | -//-           | -4,5                     |  |  |  |  |  |  |
| 407-1                              | -//-           | -4,2                     |  |  |  |  |  |  |
| 411                                | -//-           | -3,5                     |  |  |  |  |  |  |
| _                                  | Антимонит [16] | 5.0                      |  |  |  |  |  |  |
|                                    | Antimonite     | -3,2                     |  |  |  |  |  |  |
| -                                  | Киноварь [16]  | 6.0                      |  |  |  |  |  |  |
|                                    | Cinnabar       | -0,9                     |  |  |  |  |  |  |
| Жипкошинское месторождение по [16] |                |                          |  |  |  |  |  |  |
| Zhipkoshinskoe deposit [16]        |                |                          |  |  |  |  |  |  |
| -                                  | Антимонит      | 12.2                     |  |  |  |  |  |  |
|                                    | Antimonite     | +3,2                     |  |  |  |  |  |  |
| -                                  | -//-           | +1,1                     |  |  |  |  |  |  |
| _                                  | -//-           | +1,5                     |  |  |  |  |  |  |
| _                                  | -//-           | +2,7                     |  |  |  |  |  |  |

Ферберит (FeWO<sub>4</sub>)/Ferberite (FeWO<sub>4</sub>) № образца Сумма 0 Mn Fe W Sample no. Total 17,85 63,52 391 4.17 14,87 100,4 -//-18,13 3,99 14,57 61,16 97,85 -//-18,32 3,77 14,95 61,84 98,88 17,12 2,92 61,84 \_//\_ 15,48 97,35 16,97 3,05 97,44 -//-15,27 62,15 96,83 16,93 411 4,41 14 61,48 14,98 98,41 17,62 3,61 62,21 \_//. 5.21 13.93 410 17.38 97.61 61.1 17,01 4,82 13,84 63,43 99,09 -//-Кордероит (Hg<sub>3</sub>S<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>)/Corderoite(Hg<sub>3</sub>S<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>) Сумма 411 0 Hg S C1Total 10,17 86,84 -//-4,32 10,67 112 81,82 108,49 -//-6.9 10.4 9,36 -//-11.31 5.2 74.21 98.33 7.62 Метациннобарит (HgS)/Metacinnabarite (HgS) Сумма 411 Cl S Hg Total -//-16,69 0,42 83,96 101,07 -//-16,87 0 87,89 104,75 84,99 -//-16,76 0 101.76 -//-85.54 16.22 0 101.77 -//-16,74 0 84,11 100,85

Изотопный состав серы во флюиде магматического источника составляет 0–5 ‰ [14]. Установлено, что источники ртути в сравнении с источниками Изотопный состав серы антимонита данного месторождения близок к метеоритному стандарту ( $\delta^{34}$ S, ‰ +1,1 – +3,5). Эти данные свидетельствуют о наличии мантийного источника в формировании БарунШивеинского и Жипкошинского месторождений. В Восточном Забайкалье образование вольфрамовых месторождений связывается с процессами формирования интрузий кукульбейского комплекса [16–18].

Корреляционный анализ элементного состава руд вольфрамовых месторождений Забайкалья выявил тесную связь вольфрама с рядом одних и тех же элементов (табл. 5). Эти данные свидетельствуют о близких составах рудоносных источников Барун-Шивеинского месторождения с рудоносными источниками других вольфрамовых месторождений Восточного Забайкалья. В целом установлена тесная корреляционная связь W с Ta, Nb и As (табл. 5). При этом в рудоносных системах фторидная водносолевая фаза является весьма эффективным экстрагентом вольфрама, в то время как Ta, Nb полностью остаются в алюмосиликатном расплаве [18]. Тантал и ниобий в рассеянной форме фиксируются в качестве изоморфной примеси в минералах титана, циркония. Гафний концентрируется в цирконах [19].

Таблица 5. Корреляционные связи вольфрама с элементами-примесями в кварц-вольфрамитовых жилах вольфрамовых месторождений Восточного Забайкалья

 Table 5.
 Correlations of tungsten with impurity elements in quartz-wolframite veins of tungsten deposits in Eastern Transbaikalia

| Месторождения                              |                     |                     |                      | r                    |       |       |       |       |
|--|---------------------|---------------------|----------------------|----------------------|-------|-------|-------|-------|
| Deposits                                   | As                  | Hf                  | Nb                   | Та                   | Hg    | Sb    | U     | Th    |
| Спокойнинское n=20<br>Spokovninskoe        | -0,01               | 0,74<br>(3.31>2.23) | 0,86<br>(8.32 >2.23) | 0,79<br>(4.25 >2.16) | -     | -0,71 | 0,08  | -0,89 |
| Букукинское n=12<br>Bukukinskoe            | 0,91<br>(6,98>2,18) | 0,80<br>(1,36<3,18) | 0,65<br>(4,36>2,20)  | 0,63<br>(2,88 >2,31) | _     | -0,01 | 0,62  | -0,45 |
| Антоновогорское n=11<br>Antonovogorskoe    | 0,54<br>(1,9<2,26)  | -                   | 0,82<br>(4,28 >2,26) | 0,58<br>(3,69 >2,26) | -     | 0,04  | 0,58  | 0,23  |
| Барун-Шивеинское n=30<br>Barun-Shiveinskoe | 0,66<br>(4,62>2,0)  | 0,82<br>(2,46<2,52) | 0,79<br>(6,88 >2,0)  | 0,75<br>(1,68 <2,77) | -0,02 | 0,36  | -0,21 | 0,48  |

r – значение коэффициента корреляции; n – число анализов; «–» – нет данных;  $T_{\text{набл.}} > T_{\text{кр.}}$  – данные соответствуют значимым.

r – correlation coefficient value; n – number of analyses; «–» – no data.  $T_{nabl.>}T_{kr.}$  – the data corresponds to the significant ones.  $T_{Habh.} = r \times \sqrt{\frac{n-2}{1-r^2}}, T_{\kappa p.} - T$  критерий Стьюдента (по уровню значимости  $\alpha = 0,05$  и числу степеней свободы).

 $T_{nabr} = r \times \sqrt{\frac{n-2}{1-r^2}}, T_{kr} - T \text{ Student's t-test (according the significance level } \alpha = 0,05 \text{ and the number of degrees of freedom)}.$ 

Вопрос генезиса Барун-Шивеинского месторождения, а также источника вольфрама является дискуссионным. Существующие взгляды на происхождение месторождения включают по меньшей мере две концепции. Одни исследователи относят его к стратиформному типу [2], полагая, что источником металлов могут быть породы вулканогенно-осадочной толщи, другие считают, что решающий фактор рудообразования – магматическая дистилляция, которая происходила в процессе остывания интрузивного массива, создавая условия для выноса рудного компонента, содержащегося во флюидной фазе магматического расплава. Источником рудоносных растворов могли быть магматические образования, расположенные юго-восточнее месторождения. В пользу магматического источника оруденения свидетельствуют данные изотопного состава кислорода рудных жил, соответствующие флюиду магматической природы ( $\delta$ 18O=+5,5...+9,5 ‰), а также тесные корреляционные связи вольфрама с Та, Nb и As в рудах, типичных для руд вольфрамовых месторождений Забайкалья, источниками которых являются магматические образования кукульбейского комплекса (J<sub>3</sub>).

Наличие юго-восточнее района месторождения магматических образований доказывается гравиметрическими данными. Судя по аномалии силы тяжести, эти магматические образования погружается на северо-запад в направлении Барун-Шивеинского месторождения [15]. Коровый источник установлен для многих вольфрамовых месторождений Восточного Забайкалья [16–18].

Характерной особенностью ртутных месторождений является отсутствие четких генетических связей с магматическими очагами. Большинство ртутных месторождений являются низкотемпературными гидротермальными образованиями, удаленными от магматических очагов. Это объясняется свойствами ртути, являющейся очень подвижным элементом. Проявления ртути не находятся вблизи магматических очагов, а напротив отмечается их отгонка и рассеивание в окружающих породах [5]. В Восточном Забайкалье, по данным сейсмографических исследований, образование рудно-магматических систем связывается с воздействием в среднеюрский-раннемеловой период в переходной зоне мантии стагнированного океанического слэба на литосферу [20-22]. При этом в результате длительного воздействия мантийных потоков на нижние части литосферы были сформированы разноуровневые рудоносные магматические очаги [23-25]. Вероятно, в этот период произошло образование Барун-Шивеинского месторождения. Установлена пространственная приуроченность рудных месторождений к зонам глубинных нарушений. Этим можно объяснить совмещение в рудах Барун-Шивеинского месторождения вольфрамого (коровый источник) и ртутного (мантийный источник) оруденений. Это объясняется близодновременным функционированием различных по составу и металлогенической специализации источников рудного вещества.

#### Заключение

Барун-Шивеинское месторождение расположено к верхней части ононской свиты (PR<sub>2</sub>). В структурном отношении оно приурочено к субширотной тектонической зоне разломов, оперяющей с востока Хара-Шибирский глубинный разлом северо-восточного простирания. По геофизическим данным наиболее вероятным источником вольфрамового оруденения были не выходящие на дневную поверхность магматические образования, расположенные юго-восточнее района месторождения. Судя по аномалии силы тяжести, эти магматические образования погружены на северозапад в направлении Барун-Шивеинского месторождения. В пользу этого магматического источника вольфрамовых руд Барун-Шивеинского месторождения свидетельствует изотопный состав кислорода кварцвольфрамовых жил, соответствующий водному флюиду магматической природы, а также сходный элемент-

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Металлогения Монгольской Народной Республики (ртуть) / В.А. Кузнецов, А.А. Оболенский, А.С. Борисенко, В.И. Лебедев, Р.В. Оболенская. – Новосибирск: Изд-во СО РАН (Препринт 2), 1986. – 46 с.
- Трубачев А.И. Стратиформные руды важнейший вид полезных ископаемых Восточного Забайкалья // Вестник Читинского государственного университета. – 2011. – № 3 (70). – С. 104–109.
- Z Sharp. D. A laser-based microanalytical method for the in-situ determination of oxygen isotope ratios of silicates and oxides // Geochimica et CosmochimicaActa. – 1990. – V. 54. – P. 1353–1357.
- Редин Ю.О. Золоторудная минерализация Лугоканского рудного узла (Восточное Забайкалье): минеральные ассоциации, возраст, эндогенная зональность: автореф. дис. ... канд. геол.минерал. наук. – Новосибирск, 2015. – 21 с.
- Оболенский А.А. Генезис месторождений ртутной рудной формации. – Новосибирск.: Наука, 1985. – 193 с.
- Барабанов В.Ф. Минералогия вольфрамитовых месторождений Забайкалье. Т. 2. – Л.: Изд-во Ленинградского университета, 1975. – 360 с.
- Литохимические характеристики и геодинамическая природа метаосадочных пород ононской и чинданской свит (Восточное Забайкалье) / Ю.В. Носкова, С.И. Дриль, С.А. Сасим, О.В. Зарубина // Известия Иркутского государственного университета. Серия «Науки о Земле». – 2016. – Т. 18. – С. 105–127.
- Юдович Я.Э., Кетрис. М.П. Основы литохимии. СПб.: Наука, 2000. – 479 с.
- 9. Бергер В.И. Сурьмяные месторожденпя. Л.: Недра, 1978. 295 с.
- Zheng Y.-F. Oxygen isotope fractionation in carbonate and sulfate minerals // Geochemical J. – 1999. – V. 33. – P. 109–126.
- Ridley J.R., Diamond L.W. Fluid chemistry of orogenic lode gold deposits and implications for genetic models // Reviews in Economic Geology. – 2000. – V. 13. – P. 141–162.
- Знаменский С.Е., Анкушева Н.Н., Артемьев Д.А. Условия образования, состав и источники рудообразующих флюидов золото-порфирового месторождения Большой Каран (Южный Урал) // Литосфера. 2020. Т. 20. № 3. С. 397–410.
- Александровское золоторудное месторождение (Восточное Забайкалье): источники вещества пород и руд / Б.Н. Абрамов, Ю.А. Калинин, А.А. Боровиков, Р.А. Бадмацыренова, В.Ф. Посохов // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2020. – Т. 331. – № 4. – С. 83–95.
- Ohmoto H., Rye R.O. Isotopes of sulfur and carbon. Geochemistry of hydrothermal ore deposits. – N.-Y.: John Wiley and Sons, 1979. – P. 509–567.

ный состав кварц-вольфрамитовых жил Барун-Шивеинского месторождения с другими вольфрамовыми месторождениями Восточного Забайкалья, источниками которых являются интрузии кукульбейского комплекса. Близость элементного состава кварцвольфрамитовых жил вольфрамовых месторождений Восточного Забайкалья с элементным составом кварцвольфрамитовых жил Барун-Шивеинского месторождения подтверждается тесными корреляциоными связями (r>0,5) W с Ta, Nb. Изотопный состав серы киновари Барун-Шивеинского месторождения соответствуют мантийным. В пользу мантийного источника оруденения также свидетельствуют мантийные метки изотопов антимонита Жипкошинского месторождения. Эти месторождения приурочены к зоне Хара-Шибирского глубинного тектонического разлома. Таким образом, Барун-Шивеинское месторождение по условиям формирования является полиформационным.

- Об источниках вещества ртутных и сурьмяных месторождений / Н.А. Озерова, П.Н. Горчаков, Б.О., Манучарянц А.С. Борисенко // Источники рудного вещества и физико-химические условия эпитермального рудообразования. – Новосибирск: Наука, Сиб. Отделение, 1990. – С. 53–74.
- 16. Абрамов Б.Н. Источники рудоносных флюидов Аu, Mo, W и Pb-Zn месторождений Восточного Забайкалья (по данным распределения редких и редкоземельных элементов) // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2019. – Т. 330. – № 7. – С. 71–83.
- Редина А.А., Мокрушников В.П., Редин Ю.О. Условия формирования и возраст редкометалльного кукульбейского рудного района (Восточное Забайкалье) // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2019. – Т. 330. – № 9. – С. 90–102.
- 18. Физико-химические условия образования редкометальных месторождений во фторсодержащих гранитоидных системах по экспериментальным данным / Ю.Б. Шаповалов, В.Ю. Чевычелов, В.С. Коржинская, Н.П. Котова, А.Ф. Редькин, А.А. Конышев // Петрология. – 2019. – № 6. – Т. 27. – С. 617–637.
- Таусон Л.В. Геохимия редких элементов. М.: Наука, 1964. 154 с.
- Khomich V.G., Boriskina N.G., Santosh M. Geodynamic framework of large unique uranium ore belts in Southeast Russia and East Mongolia // Journal of Asian Earth Sciences. – 2016. – V. 119. – P. 145–166.
- Zhao D., Yamamoto Y., Yanada T. Global mantle heterogeneity and influence on teleseismic regional tomography // Gondwana Research. – 2013. – V. 23. – P. 595–616.
- Maruyama S., Santosh M., Zhao D. Superplume, supercontinent, and post-perovskite: mantle dynamics and antiplate tectonics on the Core-Mantle Boundary // Gondwana Research. – 2007. – V. 11. – P. 7–37.
- Li Sh.-R., Santosh M. Metallogeny and craton destruction: records from the North China Craton // Ore Geology Reviews. – 2014. – V. 56. – P. 376–414.
- Li C., Van der Hilst R.D. Structure of the upper mantle and transition zone beneath Southeast Asia from travel time tomography // Journal of Geophysical Research. – 2010. – V. 115. – B07308.
- Goldfarb R.J., Santosh M. The dilemma of the Jiaodong gold deposit: are they unique? // Geoscience Frontiers. – 2014. – V. 5. – P. 139–153.

Поступила 18.08.2021 г.

#### Информация об авторах

*Абрамов Б.Н.*, доктор геолого-минералогических наук, ведущий научный сотрудник, Институт природных ресурсов, экологии и криологии СО РАН.

UDC 553.411 (571.5)

## SPECIFIC FEATURES OF ORE FORMATION OF BARUN-SHIVEINSKOE TUNGSTEN DEPOSIT (EASTERN TRANSBAIKALIA)

#### Bair N. Abramov,

b\_abramov@mail.ru

Institute of Natural Resources, Ecology and Cryology, SB RAS, 16a, PO box 1032, Nedorezov street, Chita, 672014, Russia.

**The relevance** of the study is in the need to expand the mineral resource base of Russia. Eastern Transbaikalia is one of the oldest mining regions of the country. Barun-Shiveinskoe field is mercury-antimony-tungsten ore formations. For the region, there is an urgent need to search for and discover new ore deposits. For successful completion of such a task, the data are needed from a detailed study of already known ore deposits, which can be used to develop scientifically reasonable criteria for searching for ore deposits and forecasting mineralisation. Such data includes determination of sources of ore-bearing melts and conditions of formation of mercury-antimony-tungsten ore formation deposits.

**The aim** of the study is to prove participation in ore formation of several ore-bearing sources with different characteristics based on the data of isotopic composition of oxygen of ore-bearing quartz and sulphur sulfides, as well as comparative analysis of elemental composition of quartz-wolframite ores of Barun-Shiveinskoe deposit with quartz-wolframite ores of tungsten deposits in Eastern Transbaikalia.

Object of the study is Barun-Shiveinskoe tungsten deposit located in Eastern Transbaikalia.

**Methods.** To determine the elemental composition of rocks, the X-ray fluorescence method and standard chemical analysis were used at the Geological Institute of the Siberian Branch of the Russian Academy of Sciences (GIN SB RAS, Ulan-Ude). Oxygen isotopic composition was determined at the analytical centre (GIN SO RAS, Ulan-Ude) using a MIR 10-30 laser heating system with a 100 Watt CO<sub>2</sub> laser and a 10,6 µm wavelength in the infrared region, in the presence of the BrF5 reagent using the Z.D. Sharp method (1990). Mineral composition study was carried out in GIN SO RAS on the LEO-1430VP scanning electron microscope with the INCA Energy 350 energy dispersion spectrometer (Oxford Instruments) at an accelerating voltage of 20 kV, probe current is less than 0,5 nA, probe size is 0,1 µm. In the analysis mode, the spectral set time was 50 s. Isotope composition of sulphur sulfides study was carried out at the collective use centre for multi-element and isotope studies of the Siberian Branch of the Russian Academy of Sciences (Novosibirsk).

**Results.** The isotopic composition of oxygen in the fluid was determined in equilibrium with quartz of the productive stage at 210–150 °C, varying from 4,25 to 14,22 ‰, which corresponds to aqueous fluid of magmatic nature. The isotopic composition of sulfur cinnabar, the final ore stage of the deposit formation, corresponding to mantle values, has been established. A narrow interval of  $\delta$ 34S, ‰ CDT values for cinnabar sulphur from –3,5 to to –4,5 indicates a single source. For the first time, a rare cinnabaric minerals (metacinobarite, corderoite) formed in the oxidation zones of mercury deposits under low-temperature conditions were identified at the deposit. Their elemental composition was determined. In quartz-wolframite ores from tungsten deposits in Eastern Transbaikalia, including Barun-Shiveinskoe, a close correlation relation (r - 0,53-0,96) with a number of elements (As, Ta, Nb, Hf) was identified, indicating common sources of their formation. Ore formation at Barun-Shiveinskoe deposit was carried out from different levels of ore-bearing sources. Wolframites were formed from a crust source and mercury – from a mantle one.

#### Key words:

Barun-Shiveinskoe deposit, wolframite, cinnabar, isotopes of oxygen and sulfur, mantle source, Eastern Transbaikalia.

#### REFERENCES

- Kuznetsov B.A., Obolensky A.A., Borisenko A.S., Lebedev V.I., Obolenskaya R.V. *Metallogeniya Mongolskoy Narodnoy Respubliki (rtut)* [Metallogeny of Mongolian people's Republic (mercury)]. Novosibirsk, SO RAN Publ., 1986. 46 p.
- Trubachev A. Stratiform ore a key form of mineral resources of Eastern Transbaikalie. *Bulletin of Chita state University*, 2011, no. 3 (70), pp. 104–109. In Rus.
- Sharp Z.D. A laser-based microanalytical method for the in situ determination of oxygen isotope ratios of silicates and oxides. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1990, vol. 54, pp. 1353–1357.
- Redin Yu.O. Zolotorudnaya mineralizatsiya Lugokanskogo rudnogo uzla (Vostochnoe Zabaykale): mineralnye assotsiatsii, vozrast, endogennaya zonalnost. Avtoreferat Dis. Kand. nauk [Gold mineralisation of Lugokanskoe ore cluster (Eastern Transbaikalia): mineral associations, age, endogenous zoning. Cand. Diss. Abstract]. Novosibirsk, 2015. 21 p.
- Obolensky A.A. Genezis mestorozhdeniy rtutnoy rudnoy formatsii [Genesis of mercury ore formation deposits]. Novosibirsk, Nauka Publ., 1985. 193 p.
- Barabanov V.F. Mineralogiya volframitovykh mestorozhdeniy Zabaykalya. T. 2 [Mineralogy of Transbaikal wolframite deposits. Vol. 2]. Leningrad, Leningrad University Publ. house, 1975. 360 p.

- Noskova Yu.V., Dril S.I., Sasim S.A., Zarubina O.V. Lithochemistry and geodynamics of metasedimentary rocks of ononskaya and chindantskaya suits (East Transbaikalia). *Izvestiya irkutskogo gosudarstvennogo universiteta. Seriya «Nauki o Zemle»*, 2016, vol. 18, pp. 105–127. In Rus.
- Yudovich Ya.E., Ketris. M.P. Osnovy litokhimii [Basics of lithochemistry]. St-Petersburg, Nauka Publ., 2000. 479 p.
- Berger V.I. Surmyanye mestorozhdeniya [Antimony deposits], Leningrad, Nedra Publ., 1978. 295 p.
- Zheng Y.-F. Oxygen isotope fractionation in carbonate and sulfate minerals. *Geochemical J*, 1999, vol. 33, pp. 109–126.
- Ridley J.R., Diamond L.W. Fluid chemistry of orogenic lode gold deposits and implications for genetic models. *Reviews in Economic Geology*, 2000, vol. 13, pp. 141–162.
- 12. Znamenskiy S.E., Ankusheva N.N., Artemev D.A. Formation conditions, composition and ore-forming sources of the Bolshoy Karan gold-porphyry deposit (the Southern Urals). *Lithosphere (Russia)*, 2020, vol. 20, no. 3, pp. 397–410. In Rus.
- Abramov B.N., Kalinin Yu.A., Borovikov A.A., Badmatsyrenova R.A., Posokhov V.F. Alexandrovskoe gold deposit (Eastern Transbaikalia): sources of rock and ore substance. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2020, vol. 331, no. 4, pp. 83–95. In Rus.
- Ohmoto H., Rye R.O. Isotopes of sulfur and carbon. Geochemistry of hydrothermal ore deposits. N.-Y., John Wiley and Sons. 1979. pp. 509–567.

- Ozerova N.A., Gorchakov P.N., Manucharyants B.O., Borisenko A.S. On the sources of matter of mercury and antimony deposits. *Sources of* ore matter and physico-chemical conditions of epithermal ore formation. Novosibirsk, Nauka, Sib. Department, 1990. pp. 53–74.
- Abramov B.N. Sources of ore-bearing fluids Au, Mo, W and Pb-Zn of Eastern Transbaikalia deposits (according to the rare earth elements distribution). Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering, 2019, vol. 330, no. 7, pp. 71–83. In Rus.
- Redina A.A., Mokrushnikov V.P., Redin Yu.O. Formation conditions and age of the rare-metal mineralization of the Kukulbey ore region (Eastern Transbaikalia). *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2019, vol. 330, no. 9, pp. 90–102. In Rus.
- Shapovalov Yu.B., Chevychelov V.Yu., Korzhinskaya V.S., Kotova N.P., Redkin A.F., Konyshev A.A. Physical and chemical parameters of processes producing rare-metal deposits in granitoid systems with fluorine: experimental data. *Petrology*, 2019, vol. 27, no. 6, pp. 617–637. In Rus.
- Tauson L.V. *Geokhimiya redkikh elementov* [Geochemistry of rare elements]. Moscow, Nauka Publ., 1964. 154 p.
- 20. Khomich V.G., Boriskina N.G., Santosh M. Geodynamic framework of large unique uranium ore belts in Southeast Russia

and East Mongolia. Journal of Asian Earth Sciences, 2016, vol. 119, pp. 145-166.

- 21. Zhao D., Yamamoto Y., Yanada T. Global mantle heterogeneity and influence on teleseismic regional tomography. *Gondwana Research*, 2013, vol. 23, no. 2, pp. 595–616.
- Maruyama S., Santosh M., Zhao D. Superplume, supercontinent, and post-perovskite: mantle dynamics and antiplate tectonics on the Core-Mantle Boundary. *Gondwana Research*, 2007, vol. 11, pp. 7–37.
- Li Sh.-R., Santosh M. Metallogeny and craton destruction: records from the North China Craton. *Ore Geology Reviews*, 2014, vol. 56, pp. 376–414.
- Li C., Van der Hilst R.D. Structure of the upper mantle and transition zone beneath Southeast Asia from travel time tomography. *Journal of Geophysical Research*, 2010, vol. 115, B07308.
- Goldfarb R.J., Santosh M. The dilemma of the Jiaodong gold deposit: are they unique? *Geoscience Frontiers*, 2014, vol. 5, pp. 139–153.

Received: 18 August 2021.

#### Information about the authors

Bair N. Abramov, Dr. Sc., leading researcher, Institute of Natural Resources, Ecology and Cryology, SB RAS.
УДК 66.014:66.081:66.092-977

# ВЛИЯНИЕ ПАРАМЕТРОВ ПРОЦЕССА ПОЛУКОКСОВАНИЯ ГОРЮЧИХ СЛАНЦЕВ НА КАЧЕСТВО СЛАНЦЕВОГО ПОЛУКОКСА

# Назаренко Максим Юрьевич1,

nazarenko\_myu@pers.spmi.ru

## Салтыкова Светлана Николаевна1,

saltykova\_sn@pers.spmi.ru

<sup>1</sup> Санкт-Петербургский горный университет, Россия, 199106, г. Санкт-Петербург, Васильевский остров, 21 линия, 2.

**Актуальность** данного исследования обусловлена, прежде всего, ростом мирового интереса к переработке низкосортных твердых горючих ископаемых – горючих сланцев, бурых углей и др. Активное использование такого вида сырья позволит диверсифицировать структуру экономики страны и увеличить общие запасы топливно-энергетических и химических ресурсов, особенно учитывая неизбежное уменьшение запасов традиционных углеводородных ресурсов – нефти и газа. По оценкам специалистов, Россия обладает большими запасами горючих сланцев, которые в основном сосредоточенны в следующих сланцевых бассейнах, млн т: Прибалтийский (10246,7), Волжский (25822,4), Вычегодский (58105,8), Тимано-Печорский (4888,0), Центральный (59,6) и др., поэтому поиск эффективных способов переработки горючих сланцев остается актуальным.

**Цель:** определение влияния параметров процесса полукоксования горючих сланцев (температуры и продолжительности процесса) на качество получаемого сланцевого полукокса, а также изучение поведения органического вещества полученных образцов сланцевого полукокса при нагреве.

**Объекты:** горючие сланцы Ленинградского месторождения Прибалтийского бассейна, который располагается на территориях Ленинградской, Псковской и Новгородской областей. Основные характеристики объекта исследований: влажность – 2,00 % мас., выход летучих веществ – 41,43 % мас., зольность – 50,5 % мас., действительная плотность – 1,64 г/см<sup>3</sup>.

**Методы.** Для проведения процесса полукоксования горючих сланцев использовалась лабораторная установка по полукоксованию твердого низкосортного сырья с системой очистки газообразных продуктов от аммиака, оксида углерода и бензола. Характеристика полученных образцов сланцевых полукоксов определялась по современным отечественным и зарубежным методикам.

**Результаты.** Приведены результаты экспериментального исследования влияния параметров процесса полукоксования горючих сланцев Ленинградского месторождения на характеристики получаемых образцов. В работе использовались два режима полукоксования: режим I – температура (450–470) °С, время выдержки (3, 5, 8 часов); режим II – (510–520) °С, время выдержки (3, 5, 8 часов). Сланцевые полукоксы, полученные при первом режиме процесса, обладают следующими свойствами: влажность (1,15...0,78) % масс, выход летучих веществ (41,50...37,05) % мас., зольность (57,56...46,30) % мас., плотность действительная (1,71...1,98) г/см<sup>3</sup>. Полукокс, полученный при втором режиме, имеет следующие характеристики: влажность (1,08...0,98) % мас., выход летучих веществ (42,8...38,98) % масс, зольность (51,56...53,95) % мас., плотность действительная (1,71...1,99) г/см<sup>3</sup>. Также установлено, что при возрастании времени процесса полукоксования наблюдается увеличение содержания компонентов неорганической составляющей полукоксов и снижение содержания углерода в органической части сланцевого полукокса. Термогравиметрические кривые полученных сланцевых полукоксов показали наличие двух экзотермических пиков, соответствующих выделению влаги и легко связанных летучих веществ (первый пик) и выделению основного объема сланцевой смолы (второй пик) и одного эндотермического пика – разложение минеральной составляющей горючих сланцев.

#### Ключевые слова:

Горючие сланцы, Ленинградское месторождение, низкосортное сырье, рациональное природопользование, комплексное использование, полукоксование, полукокс, смола.

#### Введение

Горючие сланцы являются низкосортным углеводородным сырьем, обладающим огромным потенциалом для получения различных продуктов для химической, энергетической и металлургической промышленности. Ресурсы горючих сланцев огромны и в эквиваленте сланцевой смолы, по последним оценкам, составляют от 5860 до 12160 10<sup>9</sup> баррелей по всему миру (600 месторождений): США, Россия, Эстония, Бразилия, Иордания, Канада, Марокко, Китай, Австралия, Казахстан, Узбекистан и др. [1–5]. В табл. 1 показаны некоторые крупные месторождения горючих сланцев [5–11].

Россия находится на третьем месте в мире, после США и Бразилии, по количеству запасов данного низкосортного сырья. Основные запасы горючих сланцев сосредоточены в следующих регионах: Ленинградская, Псковская, Новгородская (Прибалтийский бассейн), Архангельская, Кировская (Вычегодский бассейн), Костромская (Центральный бассейн), Саратовская, Куйбышевская, Ульяновская (Волжский бассейн) и др. области [12, 13]. Благодаря большому количеству запасов применение горючих сланцев может позволить диверсифицировать структуру энергетической политики и увеличить общий ресурс энергоносителей страны за счет вовлечения местных низкосортных ресурсов.

Выбор эффективного способа переработки горючих сланцев во многом зависит от их свойств (зольность, выход летучих, теплотворная способность и др.) и состава органической и неорганической частей. Органическое вещество горючих сланцев (кероген) обладает высоким атомным соотношением H/C – в среднем 1,7 (уголь 0,4–0,5, нефть – 1,9), благодаря которому с помощью различных методов термической переработки возможно получение жидких продуктов, аналогичных нефтяным (бензины, компоненты моторных топлив и др.). Свойства и состав горючих сланцев различаются в зависимости от месторождения, что объясняется условиями образования и происхождения органического вещества [14–16]. Например, месторождения горючих сланцев по условному оксидному составу неорганической составляющей можно разделить на следующие виды:

- силикатный (преобладает сумма оксидов кремния и алюминия, при этом оксида кремния больше, чем оксида алюминия), месторождения: Глен-Дэвис (Австралия), Квартополи (Швеция), Туксайское (Казахстан), Мэсот (Таиланд), Ухтинское (Россия) и др.;
- алюмосиликатный (преобладает сумма оксидов кремния и алюминия, при этом количество оксида кремния и оксида алюминия примерно одинаково), месторождения: Фушунь (Китай), Эрмело (ЮАР), Новая Скотия (Канада), Отен (Франция), Орепуки (Новая Зеландия) и др.;
- карбонатный (преобладает содержание оксида кальция), месторождения: Ленинградское (Россия), Вади-Аш-Шаллада (Иордания), Нэби-Муса (Иордания), Эфье (Израиль), Египетское (ОАЭ) и др.

Таблица 1. Характеристика запасов горючих сланцев некоторых стран

 Table 1.
 Characteristics of oil shale reserves in some countries

| Месторождение<br>Deposit                               | Страна<br>Country        | Запасы горючих<br>сланцев, 10 <sup>6</sup> т<br>Resources of oil shale,<br>10 <sup>6</sup> tons |
|--|--------------------------|---|
| Грин-Ривер/Green River                                 | CIIIA/USA                | 213,000   |
| Фосфория/Phosphoria                                    | CIIIA/USA                | 35,775  |
| Оленекский бассейн<br>Oleneksky basin                  | Россия<br>Russia         | 24,000  |
| Конго<br>Congo   | Д.Р. Конго<br>D.R. Congo | 14,310  |
| Ирати<br>Irati   | Бразилия<br>Brazil       | 11,448  |
| Тарфая<br>Tarfaya                                      | Марокко<br>Могоссо       | 6,448   |
| Волжский бассейн<br>Volga Basin                        | Россия<br>Russia         | 4,500   |
| Ленинградское<br>месторождение<br>Leningrad deposit    | Россия<br>Russia         | 3,600   |
| Вычегодский бассейн<br>Vychegodsky basin               | Россия<br>Russia         | 2,800   |
| Вади-Магаре<br>Wadi Maghara                            | Япония<br>Japan          | 2,149   |
| Граптолитический<br>Аргиллит<br>Grapholitini Claystone | Эстония<br>Estonia       | 1,900   |
| Коллингвуд<br>Collingwood                              | Канада<br>Canada         | 1,717   |

Органическая составляющая горючих сланцев различных месторождений главным образом отличается содержанием серы и атомным соотношением С/Н, например, атомное соотношение С/Н горючих сланцев Ленинградского месторождения (Россия) – 8,0, Эстонского (Эстония) – 8,1, Кендерлыкское (Ка-

захстан) – 8,8, Эрмело (ЮАР) – 10, Туровское (Белоруссия) – 6,0.

Помимо различий в составе горючие сланцы, в зависимости от месторождения, различаются и по своим основным свойствам (табл. 2), например, зольность горючих сланцев изменяется в пределах значений от 45,0 % мас. (Эстонское месторождение, Эстония) до 80,0 % мас. (Туровское месторождение, Белоруссия), а теплотворная способность – от 5,2 МДж/кг (месторождение Луозигоу, Китай) до 16 МДж/кг (месторождение Пирин, Болгария) [17–20].

Таблица 2. Характеристика горючих сланцев различных месторождений

| Tahlo 🤉  | Characteristics | of ail sh | ale from | various   | onosite |
|----------|-----------------|-----------|----------|-----------|---------|
| Tuble 2. | Characteristics | oj ou su  | uie from | various a | eposiis |

|               |             | Свойства, % мас.  |         |              |  |  |  |
|---------------|-------------|-------------------|---------|--------------|--|--|--|
|               |             | Properties, % wt. |         |              |  |  |  |
| Месторождение | Страна      | Влаж-             | Золь-   | Выход лету-  |  |  |  |
| Deposit       | Country     | ность             | ность   | чих веществ  |  |  |  |
|               |             | Moisture          | Ash     | Volatile     |  |  |  |
|               |             | content           | content | matter yield |  |  |  |
| Ленинградское | Россия      | 2 30              | 50.80   | 40.50        |  |  |  |
| Leningrad     | Russia      | 2,30              | 50,80   | 40,50        |  |  |  |
| Луозигоу      | Китай       | 250               | 72.24   | 20.44        |  |  |  |
| Luozigou      | China       | 2,38              | 12,24   | 20,44        |  |  |  |
| Пирин         | Болгария    | 2.80              | 60.0    | 72.5         |  |  |  |
| Pirin         | Bulgaria    | 2,80              | 00,9    | 72,5         |  |  |  |
| Черниговское  | Казахстан   | 6.00              | 56.00   | 64.00        |  |  |  |
| Chernihiv     | Kazakhstan  | 0,00              | 50,00   | 04,00        |  |  |  |
| Джангичай     | Азербайджан | 2 72              | 71.20   | 22.63        |  |  |  |
| Djangichai    | Azerbaijan  | 2,72              | /1,50   | 22,03        |  |  |  |
| Тарфая        | Марокко     | 17.50             | 54.00   | 40.20        |  |  |  |
| Tarfaya       | Morocco     | 17,50             | 54,90   | 40,20        |  |  |  |

Основными способами переработки горючих сланцев являются процессы, целью которых является преобразование органического вещества в различные продукты (полукокс, кокс, газ, смола) под действием различных температур. Многие современные исследования [21-29] направлены на изучение влияния различных параметров термических процессов, таких как температура, давление, скорость нагрева, атмосфера, продолжительность и др., на поведение органического и неорганического вещества горючих сланцев конкретных месторождений и на качество получаемых продуктов. Например, в работе [30] говорится о необходимости определения таких параметров термических процессов переработки горючих сланцев Эстонского месторождения, как температура, скорость нагрева и реакционная среда, при которых достигается максимальное извлечение органического вещества из них. В своей работе авторы дают детальное описание основных стадий термического разложения органического вещества горючих сланцев Эстонского месторождения. Авторы работы [8] также говорят о необходимости изучения поведения органического вещества горючих сланцев в зависимости от температуры процесса, но уже горючих сланцев месторождения Хуадань (Китай).

Цель работы – определение влияния температуры и продолжительности процесса полукоксования на качество получаемого сланцевого полукокса, а также изучение поведения органического вещества полученных образцов сланцевого полукокса при нагреве. Основные задачи:

- проведение процесса полукоксования горючих сланцев при различных температурах и времени;
- проведение анализа физико-химических свойств полученных сланцевых полукоксов при различных режимах процесса;
- изучение изменения состава неорганической составляющей горючих сланцев в зависимости от параметров процесса полукоксования;
- определение основных стадий поведения органического вещества полученных сланцевых полукоксов при нагреве.

#### Методика экспериментальных исследований

В качестве объекта исследования были выбраны горючие сланцы Ленинградского месторождения (Прибалтийский бассейн), обладающие следующими свойствами: влажность – 2,00 % мас., выход летучих веществ – 41,43 % мас., зольность – 50,5 % мас., действительная плотность – 1,64 г/см<sup>3</sup>.

Пробоподготовка сырья и полученных продуктов полукоксования для проведения анализов осуществлялась на следующем оборудовании: гранулометрический анализатор AS 200Control: для отбора исследуемой пробы размером зерен от (2–4) мм; лабораторный дисковый истиратель ЛДИ-65: подготовка проб полукокса для проведения анализов на физикохимические свойства.

Процесс полукоксования горючих сланцев проводился на лабораторной установке (рис. 1) при следующих параметрах процесса: сырье – горючий сланец крупностью (2–4) мм; масса пробы – 20 г (обеспечивает заполнение 2/3 реактора); время выдержки при выходе на режим – 3, 5, 8 часов; рабочая температура – (450–470) °С (режим I) и (510–520) °С (режим II); скорость нагрева муфельной печи – 4,76 °С/мин; скорость нагрева реактора – 6,11 °С/мин. Температурные интервалы, используемые в данной работе, выбраны исходя из литературных данных [10–20].



Рис. 1. Схема лабораторной установки по полукоксованию горючих сланцев с системой очистки газообразных продуктов: 1 – терморегуляторы; 2, 3 – термопары; 4 – муфельная печь; 5 – реактор; 6 – U-образная трубка (пустая); 7 – емкость с холодной водой; 8 – U-образная трубка, заполненная прокаленным хлоридом кальция; 9 – склянка Дрекселя, заполненная раствором серной кислоты (1 моль/л); 10 – склянка Дрекселя, заполненная раствором 30 % гидроксида натрия; 11 – U-образная трубка, заполненная активированным углем; 12 – колба с водой

Fig. 1. Laboratory installation for oil shale semi-coking with a system for cleaning gaseous products: 1 – heating controller;
2, 3 – thermal converters; 4 – muffle furnace; 5 – reactor; 6 – U-shaped tube (empty); 7 – cold water container;
8 – U-shaped tube filled with calcined calcium chloride; 9 – Drexel flask filled with sulfuric acid solution (1 mol/l);
10 – Drexel flask filled with 30 % sodium hydroxide solution; 11 – U-shaped tube filled with activated carbon;
12 – flask of water

Обеспечение температурного режима осуществлялось посредством муфельной печи – 4 с двумя независимо работающими термопарами – 2 и 3 для контроля температуры в печи и температуры в реакторе – 5. U-образная трубка – 8 с прокаленным хлоридом кальция предназначена для улавливания следов влаги. Склянка Дрекселя – 9 служит для поглощения аммиака и заполняется раствором серной кислоты концентрации 1 моль/л с индикатором метиловым оранжевым. Склянка Дрекселя – 10 предназначена для улавливания оксида углерода и заполняется раствором гидроксида натрия (30 %). U-образная трубка – 11 заполняется активированным углем с целью улавливания сырого бензола.

Анализ свойств полученных образцов полукокса проводился по стандартным методикам: ГОСТ 11022-95 «Топливо твердое минеральное. Методы определения

зольности»; ГОСТ Р 55660-2013 «Топливо твердое минеральное. Определение выхода летучих веществ» и др.

Состав исходного сырья и полученных продуктов полукоксования определялся с помощью следующих приборов: рентгеновский дифрактометр ДРОН-6 и ренгенофлуоресцентный спектрометр Epsilon3 PANalitical.

Термогравиметрический анализ проводился на комплексной калориметрической лаборатории SETARAM Instrumentation: (25–1000) °C, скорость нагрева 18 °C/мин, масса навески 1 г.

#### Результаты и обсуждение

Проведена серия опытов по полукоксованию горючих сланцев Ленинградского месторождения фракцией (2–4) мм на лабораторной установке полукоксования твердого топлива с одновременной

очисткой газообразных продуктов. В реактор полукоксования загружалась проба, обеспечивая заполнение объема реактора на 2/3, после чего производился нагрев со скоростью 4,76 °С/мин (муфельная печь) и – 6,11 °С/мин (в реакторе). После выхода на один из установленных температурных режимов (450-470) или (510–520) °С проба выдерживалась в течение 3, 5 и 8 часов. Образующиеся газообразные продукты выводились из реактора и печи и проходили сначала через опущенную в холодную воду U-образную трубку, где конденсировалась сланцевая смола и водяные пары, а затем через очистку от аммиака, оксида углерода и бензола. Пример материального баланса процесса полукоксования горючих сланцев представлен в табл. 3, условия процесса: температурный режим (450-470) °С, время выдержки 3 часа.

Таблица 3. Материальный баланс процесса полукоксования горючих сланцев Ленинградского месторождения

Table 3.Material balance of semi-coking oil shale of the<br/>Leningrad deposits

| Приход/Income                  |              |  | Pacxoд/Expense        |            |                 |
|--------------------------------|--------------|--|-----------------------|------------|-----------------|
| Vouriousur                     | Macca/Mass   |  | Vourouour             | Macca/Mass |                 |
| Component                      | г/д          | % мас.<br>wt. %  | Component             | г/д        | % мас.<br>wt. % |
|                                |              |  | Полукокс<br>Semi-coke | 13,00      | 65,00           |
| Горючий<br>сланец<br>Oil shale | 20,00 100,00 | Смола<br>и пирогенная вода<br>Oil and pyrogenic<br>water | 4,20                  | 21,00      |                 |
|                                |              | Газ+потери<br>Gas+losses                                 | 2,80                  | 14,00      |                 |
| Итого/Total                    | 20,00        | 100,00   | Итого/Total           | 20,00      | 100,00          |

При увеличении времени выдержки с 3 до 8 часов при температурном режиме (450–470) °С количество сланцевой смолы и пирогенной воды увеличивается с 21 до 27 % мас., а газа+потери с 14 до 20 % мас. При температурном режиме II (510–520) °С наблюдается увеличение выхода газообразных продуктов + потери в сравнении с температурным режимом I (450–470) °С.

После процесса полукоксования было проведено сравнение характеристик полученных образцов сланцевого полукокса (табл. 4). Дополнительно проведено сравнение данных показателей с исходным сырьем – горючими сланцами Ленинградского месторождения.

Исходя из данных, представленных в табл. 4, видно, что выход летучих веществ при температурном режиме II (42,80; 40,59; 38,98 %) выше, по сравнению выходом при режиме I (41,50; 38,09; 37,05 %). При используемых температурных режимах материал становится более компактным, и как следствие увеличивается с плотность. Для режима I плотность увеличивается с 1,64 до 1,98 г/см<sup>3</sup>, а при режиме II – до 1,99 г/см<sup>3</sup> (в сравнении с исходными горючими сланцами). Кроме того, при втором режиме исходный материал более активно теряет массу (подтверждается данными выхода летучести) и, следовательно, зольность повышается. Скорость изменения массы (выхода летучих веществ) при втором режиме в среднем составляет 9,0 % мас/ч, а при первом режиме – 8,5 % мас/ч.

| Таблица 4. | Сравнение  | свойств   | полученных  | сланцевых |
|------------|------------|-----------|-------------|-----------|
|            | полукоксов | при разли | чных режима | ix        |

| Table 4. | Comparison of the properties of the obtained |
|----------|--|
|          | shale semi-cokes under different regimes     |

|                     |              | Xap      | Характеристика/Character |         |                   |  |  |  |  |
|---------------------|--------------|----------|--------------------------|---------|-------------------|--|--|--|--|
| Образец             |              | Влаж-    | Выход лету               | - Золь- | Плот-             |  |  |  |  |
|                     |              | ность    | чих вещести              | в ность | ность,            |  |  |  |  |
| Samp                | le           | Moisture | Volatile                 | Ash     | г/см <sup>3</sup> |  |  |  |  |
|                     |              | content  | matter yield             | content | Density,          |  |  |  |  |
|                     |              |          | % мас/wt. %              |         |                   |  |  |  |  |
| Горючие с<br>Oil sh | ланцы<br>ale | 2,00     | 41,43                    | 50,50   | 1,64              |  |  |  |  |
| Режим I             | 3 ч/3 h      | 1,15     | 41,50                    | 46,30   | 1,71              |  |  |  |  |
| Regime I            | 5 ч/5 h      | 0,81     | 38,09                    | 54,20   | 1,94              |  |  |  |  |
| (450-470) °C        | 8 ч/8 h      | 0,78     | 37,05                    | 57,56   | 1,98              |  |  |  |  |
| Режим II            | 3 ч/3 h      | 1,08     | 42,80                    | 51,56   | 1,71              |  |  |  |  |
| Regime II           | 5 ч/5 h      | 0,99     | 40,59                    | 52,60   | 1,96              |  |  |  |  |
| (510–520) °C        | 8 ч/8 h      | 0,98     | 38,98                    | 53,95   | 1,99              |  |  |  |  |

Рентгенофлуоресцентный анализ полученных образцов сланцевого полукокса показал увеличение относительного содержания основных элементов неорганической составляющей, а именно кальция, кремния, железа, алюминия, калия и др., с ростом времени выдержки с 3 до 8 часов (рис. 2).



Рис. 2. Изменение относительного содержания основных элементов неорганической части (II режим)



Например, если за начальное содержание компонентов неорганической части принять их содержание в исходных горючих сланцах, то при увеличении времени процесса до 8 часов для режима I происходит рост относительного содержания кальция с в 2,3 раза, кремния - в 1,7 раз, железа в 2,3 раза, калия в 2 раза, алюминия – в 1,8 раз, магния – в 1,9 раз. При режиме II для того же времени выдержки происходит увеличение относительного содержания кальция в 1,5 раза, кремния – в 1,4 раз, железа в 1,2 раза, калия – в 1,2 раза, алюминия – в 1,5 раза, магния – в 2 раза. Необходимо отметить, что во время процесса полукоксования горючих сланцев почти половина серы, содержащейся в них, переходит в продукты процесса (сланцевую смолу или газ). Указанные элементы присутствуют в исходном образце горючих сланцев в виде таких минералов, как, % масс: (Ca(Fe,Mg)(SiO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>) - $3,70, (CaSiO_3) - 2,91, (CaAlSiO3O10(OH)_2) - 2,91,$ (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) - 0,75, ((Ca,Fe)SiO<sub>3</sub>) - 2,99, (FeO) - 5,97, (FeS<sub>2</sub>) - 5,01, (CaCO<sub>3</sub>) - 14,36, (SiO<sub>2</sub>) - 10,82, а после

проведения процесса полукоксования преобразуются в различные силикаты Ca и Al, например (Ca<sub>2</sub>Al<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub>O<sub>10</sub>), (CaSiO<sub>3</sub>), (Ca(Fe,Mn)SiO<sub>6</sub>), (CaSiO<sub>3</sub>), (SiO<sub>2</sub>).

Содержание углерода в органической части сланцевого полукокса с увеличением времени процесса для обоих режимов закономерно снижается, % мас.: режим I – 55, 65 (3 часа), 47,54 (5 часов), 40,65 (8 часов); режим II – 49,61 (3 часа), 34,51 (5 часов), 23,97 (8 часов). Данное снижение объясняется переходом органического вещества горючих сланцев в жидкую (сланцевая смола) и газообразную (сланцевый газ) фазу.

Термогравиметрический анализа исходного образца горючих сланцев Ленинградского месторождения (рис. 3) показал, что уменьшение массы образца происходит в три основных этапа: первый этап протекает в температурном интервале от 17 до 425 °C (выделение влаги, легко связанных летучих веществ), второй этап – от 425 до 620 °C (битумизация и выделение основного объема сланцевой смолы), третий этап – от 620 до 939 °C (разложение минеральной составляющей горючих сланцев).



*Puc. 3.* Результаты термогравиметрии горючих сланцев Ленинградского месторождения *Fig. 3.* Results of thermogravimetry of oil shale of the Leningrad field

Потеря массы составляет 28,87, 39,79 и 5,83 % соответственно. Суммарные потери по массе образца составили 74,59 %. При этом наблюдается экзопики при температурах 351,31 и 499,95 °С, которые объясняются выделением надсмольной воды и сланцевой смолы соответственно. Эндопик при температуре 715,20 °С говорит о процессе разложения минеральной составляющей образца горючего сланца.

Результаты термогравиметрического анализа образцов полученного сланцевого полукокса при режиме I показаны в табл. 5 и на рис. 4, 5.

Таблица 5. Термогравиметрический анализ сланцевого полукокса (режим I)

 Table 5.
 Thermogravimetric analysis of shale semi-coke (regime I)

| Maтериал<br>Material                           |                    | Экзотермиче-<br>ский пик<br>Exothermic<br>peak |        | Эндотерми-<br>ческий пик<br>Endothermic<br>peak | Потеря<br>массы, %<br>Weight<br>loss, % |
|--|--------------------|--|--------|---|---|
| Горючие сланцы/Oil shale                       |                    | 351,31   | 499,95 | 715,20  | 74,59                                   |
| Сланцевый                                      | 3 часа<br>3 hours  | 342,38 504,12                                  |        | 702,39  | 60,71                                   |
| болукокс<br>Shale<br>semi-coke<br>(450–470) °С | 5 часов<br>5 hours | 360,02   | 507,29 | 696,74  | 56,04                                   |
|  | 8 часов<br>8 hours | 355,04   | 500,38 | 721,21  | 51,36                                   |

У образцов полукоксов, как и у исходных горючих сланцев, наблюдается по два экзотермических пика и одному эндотермическому пику. Экзотермические пики также соответствуют выделению основного количества сланцевой смолы, а эндотермический пик – разложению минеральной составляющей. Наблюдается уменьшение общей потери массы сланцевых полукоксов при термогравиметрическом анализе с 60,71 (3 часа) до 51,36 % мас. (8 часов), что объясняется переходом большего количества органического вещества горючих сланцев во время полукоксования с увеличением времени выдержки.

Уменьшение массы сланцевых полукоксов происходит так же, как и у горючих сланцев, в три основные стадии: испарение влаги и выделение легколетучих веществ, выделение сланцевой смолы и переход органического вещества в газовую фазу, разложение минеральной составляющей.

Следует отметить, что при втором режиме полукоксования полученные образцы сланцевого полукокса показывают изменение массы на термогравиметрической кривой в два этапа, например, для образца с временем выдержки 3 часа 1 этап протекает в температурном интервале от 17 до 640 °C (потеря массы 45,83 % мас.), 2 этап – от 640 до 785 °C (потеря массы 10,76 % мас.). Общая потеря массы образца сланцевого полукокса составила 56,79 %. Данный эффект можно объяснить тем, что при увеличении температуры процесса полукоксования с (450–470) до

(510–520) °С легколетучие соединения, содержащиеся в горючих сланцах, переходят полностью в газовую фазу и не остаются в сланцевых полукоксах.



*Puc. 4.* Результаты термогравиметрии сланцевых полукоксов, полученных при температуре (450–470) °C *Fig. 4.* Results of thermogravimetry of shale semi-cokes obtained at (450–470) °C

#### Заключение

Получены образцы полукокса из горючих сланцев следующих характеристик: 1) при температурном режиме I (450–470) °C и времени выдержки (3, 5, 8 часов) полукокс имеет влажность (1,15...0,78) % мас., выход летучих веществ (41,50...37,05) % мас., зольность (57,56...46,30) % масс, плотность действительную (1,71...1,98) г/см<sup>3</sup>; 2) при температурном режиме II (510–520) °C и времени выдержки (3, 5, 8 часов) – влажность (1,08...0,98) % мас., выход летучих веществ (42,8...38,98) % мас., зольность (51,56...53,95) % мас., плотность действительная (1,71...1,99) г/см<sup>3</sup>.

Установлено, что при возрастании времени процесса полукоксования наблюдается увеличение относительного содержания компонентов неорганической составляющей полукоксов, например, для режима I происходит рост относительного содержания кальция с 5,74 до 13,08 % масс, кремния с 5,05 до 8,62 % мас., магния с 0,24 до 0,47 % мас. Содержание углерода в органической части сланцевого полукокса с увеличением времени процесса полукоксования для обоих

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Reactivities of American, Chinese and Estonian oil shale semicokes and Argonne premium coal chars under oxy-fuel combustion conditions / C. Culin, K. Tente, A. Konist, B. Maaten, L. Loo, E. Stuuberg, I. Kulaots // Oil shale. – 2019. – V. 36 (3). – P. 353–369.
- 2. Воробьев В.Я., Ильясов В.Н., Меркулов О.И. Перспективы освоения волжских горючих сланцев // Геология нефти и газа. 2017. № 1. С. 57–83.
- Economic geology value of oil shale deposits: Ethiopia (Tigray) and Jordan / Y. Yihdego, H.S. Salem, B.G. Kafui, Z. Veljkovich // Energy sources, part A: Recovery, utilization and environmental effects. – 2018. – V. 40. – № 17. – P. 2079–2096.
- Анализ состава шихты электродной массы / Р.Ю. Фещенко, Е.А. Фещенко, Р.Н. Еремин, О.О. Ерохина, В.М. Дыдин // Металлург. – 2020. – № 7. – С. 615–622.
- Сопоставительный анализ химического состава бензиновых фракций, полученных при полукоксовании сланца кукурсита в газогенераторе и установке с твердым теплоносителем / Н.И. Петрович, Н.Н. Остроухов, В.В. Васильев, Е.В. Саламатова, В.М. Страхов // Кокс и химия. – 2018. – № 10. – С. 33–39.
- Comparison of chemical and physical activation processes at obtaining absorbents from Moroccan oil shale / M. Ounam, A. Abourriche, S. Mansouri, M. Mouiya, A. Benhammou, Y. Abouliatin, Y.El. Hafiane, H. Hannache, M. Birot, R. Pailler, R. Naslain // Oil Shale. – 2020. – V. 37. – № 2. – P. 139–157.
- Керимов Х.М. Скоростной пиролиз и определение кинетических параметров разложения горючих сланцев // Журнал прикладной химии. – 2004. – Т. 77. – № 1. – С. 158–162.
- Research on pyrolysis mechanism of Huadian oil shale / L. Ren, D. Xia, Y. Xu, M. Guo, H. Sun, X. Liu // Energy Procedia. – 2015. – № 66. – Р. 13–16.
- Шабаров А.Н., Николаева Н.В. Комплексное использование отходов переработки теплоэлектростанций // Записки Горного Института. – 2016. – Т. 220. – С. 607–612.
- Сопоставительный анализ химического состава легких мазутных фракций, полученных при полукоксовании сланца кукерсита в газогенераторе и установке с твердым теплоносителем / Н.И. Петрович, Н.Н. Остроухов, В.В. Васильев, Е.В. Саламатова, В.М. Страхов // Кокс и химия. 2019. № 6. С. 32–40.
- Герасимов А.М., Сыроежко А.М., Гарабаджиу А.В. Совместная переработка сланцев различного генетического типа с гудроном // Известия СПбГТИ (ТУ). 2014. № 23. С. 72–74.
- Стрижакова Ю.А., Усова Т.В. Современные направления пиролиза горючих сланцев (обзор) // Химия твердого топлива. – 2008. – № 4. – С. 7–12.

режимов закономерно снижается, % мас.: режим I – 55,65 (3 часа), 47,54 (5 часов), 40,65 (8 часов); режим II – 49,61 (3 часа), 34,51 (5 часов), 23,97 (8 часов).

Термогравиметрический анализ полученных образцов сланцевых полукоксов показал наличие двух экзотермических пиков, которые соответствуют выделению влаги, легко связанных летучих веществ, битумизации и выделению основного объема сланцевой смолы, и одного эндотермического пика – разложение минеральной составляющей горючих сланцев.

Результаты данного исследования показывают, что выбор режима процесса полукоксования зависит от основной цели процесса: первый режим (450–470) °С – целевой продукт – сланцевый полукокс, второй режим (510–520) °С – сланцевая смола.

Работа выполнена при поддержке стипендией Президента Российской Федерации для молодых ученых и аспирантов, проект СП-1275.2021.1 «Установление физикохимических закономерностей, химизма и механизма процесса полукоксования низкосортных видов твердых горючих ископаемых (горючих сланцев и бурых углей)».

- Кусков В.Б., Бажин В.Ю. Использование различных видов углеродсодержащего сырья для получения тепловой энергии // Записки Горного Института. – 2016. – Т. 220. – С. 582–587.
- Assessment of possibility of obtaining alloying components in the process of desalting of heavy hydrocarbon raw materials / I. Bashar, V.Yu. Bazhin, T.A. Aleksandrova, V.G. Povarov // CIS Iron and Steel Review. – 2020. – № 19. – P. 8–12.
- Александрова Т.Н., Афанасова А.В., Александров А.В. Применение микроволновой обработки для снижения степени упорности углеродистых концентратов // Физико-технические проблемы разработки полезных ископаемых. – 2020. – № 1. – С. 148–154.
- Зеленин Н.И., Озеров И.М. Справочник по горючим сланцам. – Л.: Недра, 1983. – 248 с.
- Юдович Я.Э. Горючие сланцы республики Коми: проблемы освоения. – Сыктывкар: Геопринт, 2013. – 90 с.
- Исследование золы углей с применением комплексного термического анализа / Р.Ю. Фещенко, О.О. Ерохина, В.Л. Уголков, М.Ю. Шабалов, В.В. Васильев // Кокс и химия. – 2017. – № 1. – С. 17–22.
- Mohammednoor M., Orhan H. Organic geochemical characteristics and source rock potential of upper Pliocene shales in the Akcalar lignite basin, Turkey // Oil Shale. – 2017. – V. 34. – № 4. – P. 295–311.
- Sabanov S., Mukhamedyarova Z. Prospectivity analysis of oil shales in Kazakhstan // Oil Shale. – 2020. – V. 37. – № 4. – P. 269–280.
- 21. Сопоставительный анализ химического состава дизельных фракций, полученных при полукоксовании сланца кукерсита в газогенераторе и установке с твердым теплоносителем / Н.И. Петрович, Н.Н. Остроухов, В.В. Васильев, Е.В. Саламатова, В.М. Страхов // Кокс и химия. – 2019. – № 1. – С. 29–33.
- 22. Табаков Р.Б., Казаков А.В. Оценка тепловых энергозатрат в технологии получения твердого композитного топлива из низкосортного сырья // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2016. – Т. 327. – № 7. – С. 110–117.
- Oil shale pyrolysis products / B. Maaten, O. Jarvic, O. Pihl, A. Konist, A. Siirde // Oil Shale. – 2019. – V. 36. – № 2. – P. 305–317.
- Aleksandrova T.N., Heide G., Afanasova A.V. Assessment of refractory gold-bearing ores based on interpretation of thermal analysis data // Записки Горного Института. – 2019. – Т. 235. – С. 30–37.
- 25. Litvinenko V. The role of hydrocarbons in the global energy agenda: the focus on liquefied natural gas // Resources. – 2020. – V. 9. – № 5. – P. 59–65.

- 26. Alnawafleh H.M., Al-Harahsheh M.S., Al-Harahsheh A.M. Leachability of oil shale ash from Isfir Al-Mahata Oil Shale, Southern Jordan // Journal of Minerals and Materials Characterization and Engineering. – 2016. – № 4. – P. 292–303.
- Nikolaeva N.V., Aleksandrova T.N., Romashev A. Effect of grinding on the fractional composition of polymineral laminated bituminous shales // Mineral Processing and Extractive Metallurgy Review. – 2018. – V. 4. – № 4. – P. 231–234.
- Совместный крекинг нефтяного остатка и механоактивированного горючего сланца / М.В. Можайская, В.Г. Сурков,

М.А. Копытов, А.К. Головко // Журнал Сибирского федерального университета. Химия. – 2019. – Т. 12 (3). – С. 319–347. 29. Бажин В.Ю. Изменение термопластичности низкосортных уг-

- Бажин В.Ю. Изменение термопластичности низкосортных углей при селективном извлечении металлов // Записки горного института. – 2016. – Т. 220. – С. 578–581.
- института. 2016. Т. 220. С. 578–581.
  30. Fomitsov M. Low-temperature supercritical conversion of kukersite oil shale // Oil Shale. 2019. V. 36. № 28. Р. 171–178.

Поступила 18.08.2021 г.

# Информация об авторах

*Назаренко М.Ю.*, кандидат технических наук, ассистент кафедры химических технологий и переработки Санкт-Петербургского горного университета.

*Салтыкова С.Н.*, кандидат технических наук, доцент кафедры химических технологий и переработки Санкт-Петербургского горного университета. UDK 66.014:66.081:66.092-977

# INFLUENCE OF OIL SHALE SEMI-COKING PARAMETERS ON THE QUALITY OF SHALE SEMI-COKE

## Maksim Yu. Nazarenko<sup>1</sup>,

nazarenko\_myu@pers.spmi.ru

# Svetlana N. Saltykova<sup>1</sup>,

saltykova\_sn@pers.spmi.ru

Saint-Petersburg Mining University,
 2, 21st Line, St Petersburg, 199106, Russia.

**The relevance** of this work is primarily caused by the growing global interest in processing low-grade solid fuels – oil shale, brown coal, etc. The active use of this type of raw material will allow diversifying the structure of the country's economy and increasing the total reserves of fuel, energy and chemical resources, especially given the inevitable reduction in the reserves of traditional hydrocarbon resources-oil and gas. According to experts, Russia has large reserves of oil shale, which are mainly concentrated in the following shale basins, million tons: Baltic (10246,7), Volga (25822,4), Vychegod (58105,8), Timan-Pechora (4888,0), Central (59,6), South Ural (47,55), Olenek (380000,0), Sinsko-Botomsky (220000,0), which also makes the search for effective ways of processing oil shale relevant.

**The main aim** of the research is to determine the influence of oil shale semi-coking parameters (temperature and duration of the process) on the quality of the obtained shale semi-coke, as well as to study the behavior of the organic matter of the obtained samples of shale semi-coke during heating.

**Objects:** oil shale of the Leningrad deposit of the Baltic basin, located on the territory of the Leningrad, Pskov and Novgorod regions. The main characteristics of the object of the research: humidity – 2,00 wt. %, yield of volatile substances – 41,43 wt. %, ash content – 50,5 wt. %, actual density – 1,64 g/sm<sup>3</sup>.

**Methods.** The authors have used a laboratory installation for semi-coking solid low-grade raw materials with a system for cleaning gaseous products from ammonia, carbon monoxide and benzene to carry out oil shale semi-coking. The characteristics of the obtained samples of shale semi-cokes were determined according to modern domestic and foreign methods.

The paper introduces the results of the experimental study of the influence of oil shale semi-coking parameters of the Leningrad deposit on the characteristics of the obtained samples. Two semi-coking regimes: regime I - temperature (450-470) °C, holding time (3, 5, 8 hours); regime I - (510-520) °C, holding time (3, 5, 8 hours), were used. Shale semi-cokes obtained in the first regime have the following properties: humidity (1,15...0,78) wt. %, yield of volatile substances (41,50...37,05) wt. %, ash content (57,56...46,30) wt. %, actual density (1,71...1,98) g/sm<sup>3</sup>. The semi-coke obtained in the second regime has the following characteristics: humidity (1,08...0,98) wt. %, yield of volatile substances (42,8...38,98) wt. %, ash content (51,56...53,95) wt. %, actual density (1,71...1,99) g/sm<sup>3</sup>. It was also found that with the increase in the time of the semi-coking, there is the growth in the content of the components of the inorganic part of the semi-cokes and the decrease in the carbon content in the organic part of the shale semi-cokes. Thermogravimetric curves of the obtained shale semi-coxes showed the presence of two exothermic peaks corresponding to the release of moisture and easily bound volatiles (the first peak) and the release of the main volume of shale resin (the second peak) and one endothermic peak – the decomposition of the mineral component of oil shale.

#### Key words:

Oil shale, Leningrad deposit, low-grade raw materials, rational use of natural resources, integrated use, semi-coking, semi-coke, resin.

The work was supported by the scholarship of the President of the Russian Federation for young scientists and postgraduates, project SP-1275.2021.1 «Establishment of physico-chemical regularities, chemistry and mechanism of semi-coking of low-grade solid fuels (oil shale and brown coal)».

#### REFERENCES

- Culin C., Tente K., Konist A., Maaten B., Loo L, Stuuberg E, Kulaots I. Reactivities of American, Chinese and Estonian oil shale semi-cokes and Argonne premium coal chars under oxy-fuel combustion conditions. *Oil shale*, 2019, vol. 36 (3), pp. 353–369.
- Vorobiev V.Ya., Ilyasov V.N., Merkulov O.J. Prospects for combustible shale production in the Volga region. *Oil and gas* geology, 2017, no. 1, pp. 57–83. In Rus.
- Yihdego Y., Salem H.S., Kafui B.G., Veljkovich Z. Economic geology value of oil shale deposits: Ethiopia (Tigray) and Jordan. *Energy sources, part A: Recovery, utilization and environmental effects*, 2018, vol. 40, no. 17, pp. 2079–2096.
- Feschenko R.Y., Feschenko E.A., Eremin R.N., Erochina O.O., Dydin V.M. Analysis of the anode paste charge composition. *Metallurgist*, 2020, no. 7, pp. 615–622. In Rus.
- Petrovich N.I., Ostroukhov N.N., Vasilyev V.V., Salamatova E.V., Strakhov V.M. Comparison of the composition of gasoline fractions obtained by semicoking of kukersite oil shale in kiveter

and petroter systems. *Coke and Chemistry*, 2018, vol. 61, no. 10, pp. 401–407.

- Ounam M., Abourriche A., Mansouri S., Mouiya M., Benhammou A., Abouliatin Y., Hafiane Y.El., Hannache H., Birot M., Pailler R., Naslain R. Comparison of chemical and physical activation processes at obtaining absorbents from Moroccan oil shale. *Oil Shale*, 2020, vol. 37, no. 2, pp. 139–157.
- Kerimov H.M. High-speed pyrolysis and determination of kinetic parameters of decomposition of oil shale. *Russian Journal of Applied Chemistry*, 2004, vol. 77, no. 1, pp. 158–162. In Rus.
- Ren L., Xia D., Xu Y., Guo M., Sun H., Liu X. Research on pyrolysis mechanism of Huadian oil shale. *Energy Procedia*, 2015, no. 66, pp. 13–16.
- Shabarov A. N., Nikolaeva N. V. Complex utilization of treatment wastes from thermal power plants. *Journal of Mining Institute*, 2016, vol. 220, pp. 607–612. In Rus.
- Petrovich N.I., Ostroukhov N.N., Vasilyev V.V., Salamatova E.V., Strakhov V.M. Comparison of the composition of light fuel oil

fractions produced by semicoking of kukersite shale in a gas generator and in a solid-fuel system. *Coke and Chemistry*, 2019, vol. 62, no. 6, pp. 249–257.

- Gerasimov A.M., Syroejko A.M., Garabadjiu A.V. Joint shale processing different type of genetic tars. *Bulletin of StPbSIT (TU)*, 2014, no. 23, pp. 72–74. In Rus.
- Strizhakova Yu. A., Usova T. V. Modern trends in pyrolysis of oil shales (review). *Solid Fuel Chemistry*, 2008, no. 4, pp. 7–12. In Rus.
- Kuskov V B., Bazhin V.Yu. Use of various types of carboncontaining raw materials to produce thermal energy. *Journal of Mining Institute*, 2016, vol. 220, pp. 582–587. In Rus.
- Bashar I., Bazhin V.Yu., Aleksandrova T.A., Povarov V.G. Assessment of possibility of obtaining alloying components in the process of desalting of heavy hydrocarbon raw materials. *CIS Iron* and Steel Review, 2020, no. 19, pp. 8–12.
- Alexandrova T.N., Afanasova A.V., Aleksandrov A.V. Microwave treatment to reduce refractoriness of carbonic concentrates. *Journal of Mining Science*, 2020, no. 56, pp. 136–141.
- 16. Zelenin N.I., Ozerov I.M. *Spravochnik po goryuchim slantsam* [Handbook of oil shale]. Leningrad, Nedra Publ., 1983. 248 p.
- Yudovich Ya.E. Goryuchie slantsy respubliki Komi: problemy osvoenia [Oil shales of the Komi Republic: problems of development]. Syktyvkar, Geoprint Publ., 2013. 90 p.
- Feshchenko R.Yu., Erokhina O.O., Ugolkov V.L., Shabalov M.Y., Vasiliev V.V. Thermal analysis of coal ash. *Coke and Chemistry*, 2017, vol. 60, no. 1, pp. 17–22. In Rus.
- Mohammednoor M., Orhan H. Organic geochemical characteristics and source rock potential of upper Pliocene shales in the Akcalar lignite basin, Turkey. *Oil Shale*, 2017, vol. 34, no. 4, pp. 295–311.
- Sabanov S., Mukhamedyarova Z. Prospectivity analysis of oil shales in Kazakhstan. *Oil Shale*, 2020, vol. 37, no. 4, pp. 269–280.
- Petrovich N.I., Ostroukhov N.N., Vasilyev V.V., Salamatova E.V., Strakhov V.M. Composition of diesel fractions produced by the

semicoking of kukersite shale in different equipment. Coke and Chemistry, 2019, vol. 62, no. 1, pp. 23–28.

- 22. Tabakaev R.B., Kazakov A.V. Assessment of thermal energy use in technique of producing solid composite fuels from low-grade raw materials. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2016, vol. 327, no. 7, pp. 110–117. In Rus.
- Maaten B., Jarvic O., Pihl O., Konist A., Siirde A. Oil shale pyrolysis products. *Oil Shale*, 2019, vol. 36, no. 2, pp. 305–317.
- Aleksandrova T.N., Heide G., Afanasova A.V. Assessment of refractory gold-bearing ores based on interpretation of thermal analysis data. *Journal of Mining Institute*, 2019, vol. 235, pp. 30–37. In Rus.
- Litvinenko V. The role of hydrocarbons in the global energy agenda: the focus on liquefied natural gas. *Resources*, 2020, vol. 9, no. 5, pp. 59–65.
- Alnawafleh H.M., Al-Harahsheh M.S., Al-Harahsheh A.M. Leachability of oil shale ash from Isfir Al-Mahata Oil Shale, Southern Jordan. *Journal of Minerals and Materials Characterization and Engineering*, 2016, no. 4, pp. 292–303.
- Nikolaeva N.V., Aleksandrova T.N. Effect of grinding on the fractional composition of polymineral laminated bituminous shales. *Mineral Processing and Extractive Metallurgy Review*, 2018, vol. 4, no. 4, pp. 231–234.
- Mozhayskaya M.V., Surkov V.G., Kopytov M.A., Golovko A.K. Combined cracking residue and mechanical activation oil shale. J. Sib. Fed. Univ. Chem., 2019, vol. 12 (3). pp. 319–327. In Rus.
- Bazhin V.Yu. Changes in the thermoplasticity of low-grade coals in the selective extraction of metals. *Journal of Mining Institute*, 2016, vol. 220, pp. 578–581. In Rus.
- Fomitsov M. Low-temperature supercritical conversion of kukersite oil shale. *Oil Shale*, 2019, vol. 36, no. 2S, pp. 171–178.

Received: 18 August 2021.

#### Information about the authors

*Maksim Yu. Nazarenko*, Cand. Sc., assistant, Saint-Petersburg Mining University. *Svetlana N. Saltykova*, Cand. Sc., associate professor, Saint-Petersburg Mining University.

УДК 622.24.051.64

# ВЛИЯНИЕ СРЕДЫ ПРИЗАБОЙНОЙ ЗОНЫ СКВАЖИНЫ НА ЭФФЕКТИВНОСТЬ РАЗРУШЕНИЯ ГОРНОЙ ПОРОДЫ РЕЗЦОМ РDC

Нескоромных Вячеслав Васильевич<sup>1</sup>,

sovair@bk.ru

Попова Марина Сергеевна<sup>1</sup>,

alleniram83@mail.ru

# Лиу Баочанг<sup>2</sup>,

liubc@jlu.edu.cn

<sup>1</sup> Сибирский федеральный университет, Россия, 660025, г. Красноярск, пр. им. газеты «Красноярский рабочий», 95.

<sup>2</sup> Университет Цзилинь, Китай, 130061, г. Чанчунь, ул. Химинжу, 938.

Актуальность. Породоразрушающий инструмент, армированный резцами РDC, зарекомендовал себя как буровой инструмент с хорошими эксплуатационными показателями. Как известно из практики бурения, инструмент такого типа при правильной технологии его применения способен обеспечить высокие скорости проходки скважин и ресурс. Поэтому одним из приоритетных направлений в развитии технических средств бурения является совершенствование конструкций инструмента типа PDC. Методы проектирования бурового инструмента нового поколения должны основываться на комплексном подходе к исследованию его работы на забое. Одним из основных факторов, влияющих на эффективность реализации породоразрушающего инструмента, является сопротивление забоя. Исследованию изменения физико-механических свойств геологического разреза с глубиной повящено большое количество трудов. А жидкая среда, образовавшаяся на забое скважины в результате процесса бурения, изучена слабо. Часто, при проведении научных исследований, наличием шлама в призабойной зоне пренебрегают. Однако, учитывая особенности формы и размеры режущей части резцов PDC, сместь шлама и непрерывно движущейся промывочной жидкости может обладать определенной плотностью и создавать выталкивающее усилие, действующее на плоскость резца, и как следствие оказывать влияние на эффективность работы бурового инструмента в целом. Поэтому актуальным вопросом является исследование свойств среды, состоящей из промывочного агента, шлама и разрушенной горной породы, и определение степени ее влияния на результаты работы бурового инструмента типа PDC. Цель: определить степень влияния сил сопротивления среды, образовавшейся в призабойной зоне скважины, на процесс бурения скважин.

Методы: аналитический метод, метод компьютерного имитационного моделирования.

**Результаты.** Среда, образовавшаяся в призабойной зоне в процессе бурения скважины и состоящая из породы, шлама и промывочной жидкости, находящихся в различном состоянии, оказывает выталкивающее действие на резец, что снижает величину углубления. Показатель степени сопротивления описанной среды определяется скоростью резания, углом установки резца и плотностью ее составляющих. Полученные результаты могут быть использованы при конструировании бурового инструмента типа PDC. Изменение угла установки или формы резца может способствовать не только снижению сил сопротивления, но и улучшению разрушающей способности инструмента за счет разуплотнения породы путем интенсификации проникновения жидкости в породу.

#### Ключевые слова:

Скорость резания–скалывания породы, углубление, бурение, резец РDС, сопротивление среды, глубина резания–скалывания, ядро сжатия, разрушение горной породы.

#### Введение

Породоразрушающий инструмент типа *PDC* в последнее время имеет широкое применение в отрасли бурения различного назначения [1–25]. Это связано с хорошими эксплуатационными показателями данного инструмента [26, 27]. Поэтому актуальность совершенствования бурового инструмента, армированного поликристаллическими алмазными резцами, не исчерпана и нуждается в детальном исследовании механизма его работы на забое, который зависит от множества факторов.

Собственно, основной конструктивной особенностью бурового породоразрушающего инструмента типа *PDC* и является сам резец, который отличается своими прочностными данными, имеет цилиндрическую форму и изготавливается различных размеров. Устанавливаются такие резцы в буровом инструменте по определенной схеме. Каждый резец бурового инструмента имеет свой передний ( $\gamma_n$ ) и фронтальный ( $\phi_p$ ) угол установки. Как показывают аналитические исследования [5], значения данных углов оказывают существенное влияние на работоспособность инструмента в целом.

Эффективность работы бурового инструмента может определяться величиной углубления за оборот. Значение данного параметра бурения зависит от величины глубины резания-скалывания породы каждым отдельным резцом. При внедрении резца в горную породу основным препятствием по увеличению значения глубины резания-скалывания являются силы сопротивления, возникающие со стороны забоя. Причем, как показывают аналитические исследования [10], сопротивление резцу оказывает не только сама порода, но и среда, образовавшаяся в процессе бурения в призабойной зоне скважины. Значение глубины резания–скалывания породы резцом типа *PDC* можно определить по формуле:

$$h = \sqrt[2]{\left\{\frac{\left[\left(P - A\sin\gamma_{\pi}\right)\left(1 - ftg\gamma_{\pi}\right) - Atg\gamma_{\pi}\right]\sin\gamma_{c\kappa}}{\pi\sigma_{c\kappa}\sqrt{d}tg\gamma_{\pi}\cos\phi_{p}\left(1 + tg\phi\right)}\right\}^{3}}, \quad (1)$$

где P – осевая нагрузка на алмаз, Н;  $\gamma_{\pi}$  – передний угол установки резца, град;  $\gamma_{c\kappa}$  – угол скалывания, град;  $\sigma_{c\kappa}$  – предел прочности породы на скалывание, Па; d – диаметр резца, м;  $\varphi_{p}$  – фронтальный угол установки резца, град;  $\varphi$  – угол внутреннего трения породы, град; f – коэффициент внешнего трения на контакте поверхность резца – горная порода;  $A = 0,125 v_{p}^{2} \rho_{c} \pi d^{2} C_{c} \cos \gamma_{n}$ , где  $v_{p}$  – скорость резания–скалывания, м/с;  $\rho_{c}$  – весовая плотность среды с учетом плотности бурового раствора, насыщенного шламом из зоны разрушения и разрушаемой горной породы, кг/м<sup>3</sup>;  $C_{c}$  – коэффициент сопротивления со стороны резца, определяемый формой плоскости резца.

Согласно формуле (1), глубина резания–скалывания породы одним резцом *PDC* помимо углов его установки определяется и другими факторами. Например, режимом бурения, который выражается значением осевой нагрузки на резец (*P*) и скорости перемещения резца по забою ( $v_p^2$ ); свойствами разрушаемой породы (коэффициентом внутреннего трения горной породы ( $\varphi$ ) и прочностью горной породы на скалывание ( $\sigma_{ck}$ )). На величину глубины резания–скалывания также оказывают влияние такие показатели, как диаметр резца (*d*), угол скалывания породы ( $\gamma_{ck}$ ), коэффициент внешнего трения резца о породу (*f*) и плотность жидкой среды, возникающей на забое скважины ( $\rho_c$ ).

Таким образом, регулируя перечисленные параметры, можно добиться наиболее эффективных результатов бурения породоразрушающим инструментом данного типа. Если геометрию инструмента (углы установки, диаметр и размеры резца) нельзя изменить в процессе бурения, то геолого-технологические условия бурения могут иметь периодический характер. Своевременное изменение режимов бурения возможно путем применения средств автоматизации контроля бурения. Единственным, не поддающимся внешнему регулированию, фактором, влияющим на результативность буровых работ, является физикомеханическая характеристика разрушаемых горных пород. Изучению свойств горных пород и их влиянию на процесс бурения посвящено много научных трудов, при этом образовавшейся на забое жидкой среде, состоящей из смеси промывочного агента и породы, уделяется незначительное внимание и только с целью улучшения очистки скважины. Полученные результаты аналитических исследований [10], указывающие на наличие выталкивающей функции среды, образованной в призабойной зоне скважины при бурении, требуют дополнительных исследований данного явления с учетом механизма разрушения горной породы резцом.

# Методика

Согласно схеме механизма разрушения породы резцом типа *PDC*, представленной на рис. 1, на плоскость резца воздействует сопротивление жидкой среды, сформировавшейся над забоем  $R_p$ , и сопротивление со стороны массива горной породы  $R_n$ . Состояние указанных сред, оказывающих сопротивление, зависит от множества факторов. К примеру, степень разрушенности породы, ее насыщенность промывочной жидкостью, собственно сам вид применяемой в данный момент промывочной жидкость циркуляции жидкости на забое и т. д.



**Puc. 1.** Схема механизма разрушения горной породы резцом PDC: 1 – ядро сжатия породы **Fig. 1.** Diagram of the mechanism of rock destruction with a PDC cutter: 1 – rock compression core

При детальном рассмотрении области контакта резца PDC с горной породой (рис. 2) можно выделить несколько основных зон, отличающиеся физикомеханическими свойствами, состоянием и составом. Согласно исследованию [5], при внедрении резца в породу перед его режущей поверхностью образуется ядро сжатия горной породы – 1. Разрушение сопровождается образованием линии скалывания, которая ориентируется от ядра в направлении поверхности забоя. В зависимости от переднего угла установки резца и формы и размера ядра сжатия изменяется и характер скола горной породы. Как правило, в мягких породах даже при малом усилии резца порода выходит из ядра сжатия на поверхность, поэтому ядро формируется слабоуплотненное и больших размеров. В твердых породах образовавшееся ядро по размерам меньше и имеет форму полусферы.

С одной стороны на ядро сжатия действует усилие резца (R), а с другой – реакция еще не разрушенной горной породы  $R_{\rm B}$  (рис. 2). Как указано в работе [10], усилие  $R_{\rm B}$  определяется прочностными свойствами горной породы и зависит от скорости резания– скалывания породы резцом. Значение данного усилия можно определить по формуле (2):

$$R_{\rm B} = \frac{\sigma_{\rm cK} K \pi h^{\frac{3}{2}} \sqrt{d}}{2 \sin \gamma_{\rm cK}}, \qquad (2)$$

где *К* – коэффициент, учитывающий повышение усилия сопротивления горной породы резанию–скалыванию при повышении линейной скорости резца.

Поэтому ядро сжатия представляет собой мелкораздробленную породу. Ю.И. Протасов описал такое состояние породы как «псевдожидкость». Такое определение подходит не только для твердых пород. Механизм разрушения мягких пород и пород средней твердости тоже подразумевает наличие на передней грани резца *PDC* горной породы в уплотненном состоянии [6–12].

Так как обязательным условием процесса разрушения породы является образование ядра сжатия – 1 и трещины отрыва – 3, порода под режущей гранью резца разделяется на зоны, каждая из которых отличается своим состоянием и физико-механическими свойствами. Порода выше трещины отрыва считается разрушенной и отделяется от горного массива, превращаясь в шлам. Поэтому под резцом у забоя скважины, в месте, где промывочная жидкость встречается с разрушенной горной породой, образуется плотная зона обильного насыщения промывочной жидкости шламом – 4 (рис. 2). Именно в этой зоне происходит проникновение части промывочной жидкости в забой, что способствует дополнительному разупрочнению горной породы.

Таким образом, на резец оказывает влияние некая «жидкая среда», состоящая из смеси следующих компонентов:

 собственно промывочной жидкости – 5, плотность которой (ρ<sub>пж</sub>) зависит от принятого для бурения ее вида и в рассматриваемой зоне будет больше, чем на устье скважины;

- промывочной жидкости, обильно насыщенной шламом, плотность которой (ρ<sub>пж+ш</sub>) будет зависеть от вида промывочной жидкости и от свойств разрушаемой в данный момент породы;
- горной породы, плотность которой (ρ<sub>пор</sub>) зависит от ее физико-механических свойств и состояния.



- Рис. 2. Схема зоны контакта резца PDC с горной породой: 1 – ядро сжатия горной породы; 2 – неразрушенная горная порода; 3 – трещина отрыва; 4 – зона обильного насыщения промывочной жидкости шламом; 5 – промывочная жидкость
- Fig. 2. Diagram of the contact zone of the PDC cutter with the rock: 1 – rock compression core; 2 – undisturbed rock; 3 – separation crack; 4 – zone of abundant saturation of the flushing fluid with sludge; 5 – flushing fluid

На практике породоразрушающий инструмент типа *PDC* применяется при бурении в горных породах, обладающих различной твердостью: мягких, средней твердости, а также в разрезах, где происходит переслаивание средних по твердости с пропластками твердых. Плотность таких пород колеблется в пределах от 1,9 г/см<sup>3</sup> (глина) до 2,8 г/см<sup>3</sup> (песчаник). Удельная плотность разрушаемой горной породы может составить 20-25 кН/м<sup>3</sup>. Бурение таким инструментом возможно в условиях с промывкой растворами как на водной основе, плотность которых составляет от 0,9 до 1,2 г/см<sup>3</sup>, малоглинистыми растворами с плотностью p=1,05...1,06 г/см<sup>3</sup>, так и на нефтяной основе (р=0,89...1 г/см<sup>3</sup>). Следовательно, весовая плотность бурового раствора, насыщенного шламом, может быть в пределах от 11 до 14 кН/м<sup>3</sup>.

Если рассмотреть область забоя строго под резцом, то можно выделить находящиеся под ним следующие зоны: зону неразрушенной горной породы; зону уплотненной и разрушенной горной породы; зону промывочной жидкости, насыщенной шламом, и зону прибывающей промывочной жидкости. Все эти составляющие оказывают влияние на свойства среды, находящейся в призабойной зоне скважины и оказывающей выталкивающее действие на резец. Учитывая возможные комбинации этих составляющих, весовая плотность рассматриваемой среды  $\rho_c$  может находиться в широких пределах и составлять от 11 до 18 кН/м<sup>3</sup>.



- **Рис. 3.** Зависимость глубины резания-скалывания породы резцом PDC от весовой плотности среды: а) диаметр резца 15 мм; б) диаметр резца 20 мм ( $\gamma_n$ = -20;  $v_p$ =4 м/c)
- Fig. 3. Dependence of the rock cutting-chipping depth with the PDC cutter on the medium weight density: a) cutter diameter 15 mm; b) cutter diameter 20 mm  $(y_n = -20; v_p = 4 \text{ m/s})$

С целью определения степени влияния сопротивления представленной среды на эффективность разрушения горной породы резцом *PDC* на основании формулы (1) с учетом возможных условий ее образования проведен расчет глубины резания–скалывания породы резцом при различных значениях плотности среды и аналитический анализ полученных результатов. В качестве исходных данных для расчета приняты усредненные для производственных условий значения параметров.

Результаты расчетов показали, что при прочих равных условиях в случае роста значения весовой плотности «жидкой среды» на 40 % глубина резания породы резцом может уменьшиться на 0,2...0,4 % в зависимости от размера резца (рис. 3), что при общем количестве резцов в 20 шт. снизит значение углубления за оборот на 8 %.

При этом особое влияние на степень изменения показателя углубления оказывает величина линейной скорости перемещения резца. Результаты расчетов, учитывающих одинаковые условия бурения, показали, что при скорости  $v_p=2$  м/с повышение весовой плотности на 40 % приведет к снижению глубины резания резцом на 0,11 %, а при  $v_p=4$  м/с – на 0,3 % (рис. 4).

Согласно графику, приведенному на рис. 4, при одновременном увеличении скорости резания и весовой плотности среды глубина резания начинает падать, при этом интенсивность падения ее значения и зависимость от плотности среды при большей  $v_p$  значительно выше. Полученный результат подтверждает положение ранее проведенных научных исследований [9], которое, дополнив результатами данной работы, можно заключить следующим образом: «по мере роста линейной скорости перемещения резца растет сопротивление среды, образовавшейся на забое скважины».



Рис. 4. Зависимость глубины резания-скалывания породы от весовой плотности жидкой среды (d=15 мм; y<sub>n</sub>=-15)

**Fig. 4.** Rock cutting-chipping depth dependence on liquid medium weight density ( $d=15 \text{ mm}; \gamma_n = -15$ )

Как показали исследования гидродинамических процессов, протекающих на забое в процессе бурения породоразрушающим инструментом типа *PDC* [11], перед резцом *PDC* возникает область повышенного давления, созданная жидкой средой. Данную область можно разделить на три зоны, одна из которых, зона максимального давления III, располагается ближе к контакту резца с породой (рис. 5, a). Как показывают результаты компьютерного моделирования [11], чем больше передний угол установки резца, тем более распространенный по рабочей поверхности резца характер и повышенные значение при аналогичных параметрах бурения имеет зона максимального давления (рис. 5).

При этом аналитические расчеты по формуле (1) показывают, что чем больше значение переднего угла установки резца, тем большее влияние оказывает плотность среды на глубину его резания (рис. 6). Причем степень влияния может отличаться более чем в 1,5 раза.

Полученный результат указывает на взаимное влияние повышенного давления, вызванного изменением значения переднего угла установки резца, и плотности жидкой среды.



**Рис. 5.** Давление в пределах резца PDC: a)  $\gamma_n = -15^\circ$ ; б)  $\gamma_n = -25^\circ$ **Fig. 5.** Pressure within the PDC cutter: a)  $\gamma_n = -15^\circ$ ; b)  $\gamma_n = -25^\circ$ 



**Рис. 6.** Зависимость глубины резания–скалывания породы от весовой плотности жидкой среды: 1 – передний угол установки резца –10°; 2 – передний угол установки резца –20°



#### Заключения, предложения

Таким образом, среда, образовавшаяся в призабойной зоне скважины, оказывает сопротивление внедрению резца *PDC* в горную породу, чем значительно снижает глубину резания—скалывания породы и как следствие понижает эффективность работы бурового инструмента.

Повышенное значение сопротивления среды объясняется ее давлением на режущую грань резца, а также плотностью ее состава.

Снижение сопротивления среды внедрению резца возможно путем борьбы с повышением ее плотности (например, за счет улучшения очистки забоя от шлама или применения в качестве промывочного агента ПАВ, воды), а также изменения конструктивных параметров армирования породоразрушающего инструмента резцами *PDC*. В качестве конструктивного метода можно выделить меры изменения величины переднего угла установки резца. Значения переднего угла рекомендуется принимать в пределах от –10 до –20°.

Полученные результаты можно использовать также в направлении интенсификации разрушения горной породы. Как известно, насыщение породы жидкостью способствует ее разупрочнению. Зона повышенного давления жидкой среды находится у контакта резца с породой, к этой же плоскости, согласно схеме на рис. 2, со стороны массива примыкает наиболее разрушенная часть породы – 3. Учитывая полученные данные, появляется возможность, путем управления струи подаваемой жидкости, повысить эффект насыщения этой зоны горной породы жидкостью. Одним из способов такого воздействия может выступить резец PDC с вогнутой поверхностью его режущей грани. Форма резца с углублением в центре его режущей поверхности будет способствовать движению промывочного агента, поступающего из промывочных каналов долота, строго в центр режущей грани резца, что будет способствовать улучшению очистки от шлама самой нагруженной его части и направлению струи под давлением в массив горной породы. К тому же при бурении резцами вогнутой формы результирующая усилия резания-скалывания породы разделится на несколько векторов R, которые будут направлены на встречу друг другу (рис. 7).

Противодействуя, усилия *R* предотвратят поперечные колебания резца и таким образом будут способствовать гашению вибрации инструмента.



- **Рис.** 7. Схема распределения усилия резца с вогнутой режущей поверхностью при внедрении в породу (вид сверху)
- Fig. 7. Diagram of distribution of the force of a cutter with a concave cutting surface when penetrating into the rock (top view)

# СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Принципы конструирования и эксплуатации алмазного породоразрушающего инструмента / А.А. Буканов, Л.К. Горшков, А.И. Осецкий, Н.В. Соловьев // Разведка и охрана недр. – 2013. – № 7. – С. 44–49.
- Горшков Л.К., Осецкий А.И. Развитие принципов конструирования и эксплуатации нового алмазного породоразрушающего инструмента // Записки Горного института. – 2012. – Т. 197. – С. 40–45.
- Brook B. Principles of diamond tool technology for sawing rock // International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences. – 2002. – V. 39 (1). – P. 41–58.
- Tonon F., Amadei B. Effect of elastic anisotropy on tunnel wall displacements behind a tunnel face // Rock Mechanics and Rock Engineering. – 2002. – V. 35 (3). – P. 141–160.
- Нескоромных В.В. Разрушение горных пород при бурении скважин. – М.: ИНФРА-М; Красноярск: Сибирский федеральный университет, 2015. – 336 с.
- Киселев А.Т., Крусир И.Н. Вращательно-ударное бурение геологоразведочных скважин. – М.: Недра, 1984. –102 с.
- Detournay E., Richard T., Shepherd M. Drilling response of drag bits: theory and experiment // International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences. – 2008. – V. 45 (8). – P. 1347–1360.
- Basarir H., Karpuz C. Preliminary estimation of rock mass strength using diamond bit drilling operational parameters // International Journal of Mining, Reclamation and Environment. – 2016. – V. 30 (2). – P. 145–164.
- Борисов К.И. Современные методы оценки сопротивления горных пород резанию-скалыванию при бурении долотами PDC: монография. – Томск: ТПУ, 2013. – 166 с.
- Определение глубины разрушения горной породы резцами РDС с учетом сопротивления среды / В.В. Нескоромных, М.С. Попова, А.В. Чихоткин, А.Е. Головченко, Е.Е. Шубенина // Строительство нефтяных и газовых скважин на суше и на море. – 2020. – Т. 5 (329). – С. 23–27.
- Нескоромных В.В., Попова М.С. Гидродинамика процесса резания резцами PDC // Строительство нефтяных и газовых скважин на суше и на море. 2020. Т. 7 (331). С. 13–15.
- Research on rock-breaking mechanism of cross-cutting PDC bit / Y. Yang, C. Zhang, M. Lin, L. Chen // J. Petrol. Sci. Eng. – 2018. – V. 161. – P. 657–666.
- Блинов Г.А., Васильев В.И., Глазов М.Г. Алмазосберегающая технология бурения. – Л.: Недра, 1989. – 184 с.
- Нескоромных В.В. Оптимизация в геологоразведочном производстве. Красноярск: Сибирский федеральный университет, 2013. – 246 с.
- Нескоромных В.В., Пушмин П.С. Методика оптимальных параметров режима и условий бурения скважин // Известия Си-

# Выводы

- На основе схемы механизма разрушения и аналитической формулы определения глубины резанияскалывания породы резцом *PDC* проведен анализ влияния образовывающейся на забое в процессе бурения среды на результативность работы породоразрушающего инструмента типа *PDC*.
- Среда, образовавшаяся на забое, состоит из промывочной жидкости, шлама и разрушенной горной породы. Ее свойства зависят от вида используемой промывочной жидкости, характера воздействия резца на породу и параметры разрушаемой горной породы.
- 3. На эффективность разрушения горной породы резцом *PDC* оказывает влияние плотность образованной на забое среды.
- Минимизировать влияние «среды» можно путем понижения ее плотности, изменения геометрических параметров установки резца или улучшения очистки забоя.

бирского отделения Секции наук о Земле РАЕН – 2011. – № 1 (38). – С. 151–157.

- 16. Инновационные подходы к конструированию высокоэффективного породоразрушающего инструмента / А.Я. Третьяк, В.В. Попов, А.Н. Гроссу, К.А. Борисов // Горный информационно-аналитический бюллетень. – 2017. – № 8. – С. 225–230.
- Su O., Ali Akcin. Numerical simulation of rock cutting using the discrete element method // International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences. – 2011. – V. 48 (3). – P. 434–442.
- Hasan A.R., Kabir C.S. Wellbore heat-transfer modeling and applications // Journal of Petroleum Science and Engineering. – 2012. – V. 96–97. – P. 109–119.
- A novel method for measuring and analyzing the interaction between drill bit and rock / X. Wang, Z. Wang, D. Wang, L. Chai // Measurement. – 2018. – V. 121. – P. 344–354.
- Kanyanta V., Ozbayraktar S., Maweja K. Effect of manufacturing parameters on polycrystalline diamond compact cutting tool stressstate // International Journal of Refractory Metals and Hard Materials. – 2014. – V. 45. – P. 147–152
- Che D., Zhu W.-L., Ehmann K.F. Chipping and crushing mechanisms in orthogonal rock cutting // International Journal of Mechanical Sciences. – 2016. – № 119. – P. 224–236.
- Евсеев В.Д., Мавлютов М.Р. Пути повышения эффективности разрушения горных пород // Материалы региональной конференции геологов Сибири, Дальнего Востока и Северо-Востока России. – 2000. – Т. І. – С. 463–465.
- Борисов К.И. Актуальные научные и прикладные вопросы развития нового научного метода оценки свойств и эффективности динамического разрушения горных пород инструментами режуще-скалывающего типа PDC // Вестник Ассоциации буровых подрядчиков. 2010. № 3 С. 8–14.
   Нескоромных В.В., Попова М.С., Харитонов А.Ю. Влияние сил со-
- Нескоромных В.В., Попова М.С., Харитонов А.Ю. Влияние сил сопротивления на глубину резания–скалывания горной породы алмазным резцом // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2020. – Т. 331. – № 10. – С. 40–48.
- Closed-form solution of stress state and stability analysis of wellbore in anisotropic permeable rocks / D.-P. Do, N.-H. Tran, H.-L. Dang, D. Hoxha // International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences. – 2019. – V. 113. – P. 11–23.
- Ai Z., Han Y., Kuang Y., Wang Y., Zhang M. Optimization model for polycrystalline diamond compact bits based on reverse design // Advances in Mechanical Engineering. – 2018. – V. 10 (6). – P. 476–479.
- Numerical investigations on the effect of ultra-high cutting speed on the cutting heat and rock-breaking performance of a single cutter / M. Gao, K. Zhang, Q. Zhou, H. Zhou, B. Liu, G. Zheng // Journal of Petroleum Science and Engineering. – July 2020. – V. 190. – № 107120.

# Информация об авторах

*Нескоромных В.В.*, доктор технических наук, профессор, заведующий кафедрой технологии и техники разведки Института горного дела, геологии и геотехнологий Сибирского федерального университета.

**Попова М.С.,** кандидат технических наук, доцент кафедры технологии и техники разведки Института горного дела, геологии и геотехнологий Сибирского федерального университета.

Баочанг Л., профессор геоинженерии кафедры разведки и бурения.

#### UDC 622.24.051.64

# INFLUENCE OF THE BOTTOM BOREHOLE ZONE ENVIRONMENT ON THE EFFICIENCY OF ROCK BREAKING BY THE PDC CUTTER

# Vyacheslav V. Neskoromnykh<sup>1</sup>,

sovair@bk.ru

## Marina S. Popova<sup>1</sup>,

alleniram83@mail.ru

# Liu Baochang<sup>2</sup>,

liubc@jlu.edu.cn

Siberian Federal University,
 95, Krasnoyarskiy rabochiy avenue, Krasnoyarsk, 660095, Russia.

<sup>2</sup> Jilin University,

938, Ximinzhu street, Changchun, 130026, China.

**Relevance.** The PDC cutter reinforced rock cutting tool has proven itself as a rock cutting tool with good performance. As it is known from drilling practice, a tool of this type, with the correct technology of its application, is capable of providing high rates of penetration of wells and resource. Therefore, one of the priority directions in the development of technical means of drilling is to improve the design of the PDC-type tool. New generation drilling tool design methods should be based on an integrated approach to the study of its work at the bottom. One of the main factors affecting the effectiveness of the implementation of rock cutting tools is the bottomhole resistance. A large number of works have been devoted to the study of changes in the physical and mechanical properties of a geological section with depth. And the liquid medium formed at the bottom of the well as a result of drilling is poorly studied. Often, when conducting scientific research, the presence of cuttings in the bottomhole zone is neglected. However, taking into account the peculiarities of the shape and size of the cutting part of the PDC cutters, the displacement of cuttings and continuously moving drilling fluid can have certain density and create a buoyant force acting on the plane of the cutter and, as a result, affect the efficiency of the drilling tool as a whole. Therefore, an urgent issue is to study the properties of the media, consisting of a flushing agent, cuttings and destroyed rock and determine the degree of its influence on the results of the PDC-type drilling tool.

The purpose of the research is to determine the degree of influence of the resistance forces of the medium formed in the bottomhole zone of the well on well drilling.

## Methods: analytical method, computer simulation method.

**Results.** The medium formed in the near-wellbore zone when drilling a well and consisting of rock, cuttings and flushing fluid, which are in different states, has a pushing effect on the cutter, which reduces the size of the deepening. The index of the resistance degree of the described medium is determined by the cutting speed, the angle of the cutter and the density of its components. The results obtained can be used in the design of a PDC-type drilling tool. Changing the angle of installation or the shape of the cutter can help not only to reduce the resistance forces, but also to improve the destructive ability of the tool due to the decompaction of the rock by intensifying liquid penetration into the rock.

#### Key words:

Cutting-chipping speed, deepening, drilling, PDC cutter, medium resistance, cutting-chipping depth, compression core, rock failure.

#### REFERENCES

- Bukanov A.A., Gorshkov L.K., Osetskiy A.I., Soloviev N.V. Printsipy konstruirovaniya i ekspluatatsii almaznogo porodorazrushayushchego instrumenta [Principles for the design and operation of diamond rock cutting tools]. *Razvedka i ohrana nedr*, 2013, no. 7, pp. 44–49.
- Gorshkov L.K., Osetskiy A.I. Development of principles for the design and operation of a new diamond rock cutting tool. *Journal* of *Mining Institute*, 2012, vol. 197, pp. 40–45. In Rus.
- Brook B. Principles of diamond tool technology for sawing rock. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences*, 2002, vol. 39 (1), pp. 41–58.
- 4. Tonon F., Amadei B. Effect of elastic anisotropy on tunnel wall displacements behind a tunnel face. *Rock Mechanics and Rock Engineering*, 2002, vol. 35, no. 3, pp. 141–160.
- Neskoromnykh V.V. Razrushenie gornykh porod pri burenii skvazhin [Rock destruction when drilling]. Moscow, INFRA-M; Krasnoyarsk, SFU, 2015. 336 p.
- Kiselev A.T., Krusir I.N. Vrashchatelno-udarnoe burenie geologorazvedochnykh skvazhin [Rotary-shock drilling of exploration wells]. Moscow, Nedra Publ., 1984. 102 p.
- Detournay E., Richard T., Shepherd M. Drilling response of drag bits: theory and experiment. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences*, 2008, vol. 45 (8), pp. 1347–1360.

- Basarir H., Karpuz C. Preliminary estimation of rock mass strength using diamond bit drilling operational parameters. *International Journal of Mining, Reclamation and Environment*, 2016, vol. 30 (2), pp. 145–164.
- Borisov K.I. Sovremennye metody otsenki soprotivleniya gornykh porod rezaniyu-skalyvaniyu pri burenii dolotami PDC. Monografiya [Modern methods for assessing the resistance of rocks to cutting-chipping when drilling with PDC bits. Monograph]. Tomsk, TPU Publ. house, 2013. 166 p.
- Neskoromnih V.V., Popova M.S., Chikhotkin A.V., Golovchenko A.E., Shubenina E.E. Opredelenie glubiny razrusheniya gornoy porody reztsami PDC s uchetom soprotivleniya sredy [Determination of the depth of destruction of rocks with PDC cutters, taking into account the resistance of the medium]. *Construction of oil and gas wells on land and sea*, 2020, vol. 5 (329), pp. 23–27.
- Neskoromnih V.V., Popova M.S. Development of a drilling process control technique based on a comprehensive analysis of the criteria. *Journal of Mining Institute*, 2019, vol. 240, pp. 701– 710. In Rus. DOI: 10.31897/pmi.2019.6.701.
- Yang Y., Zhang C., Lin M., Chen L. Research on rock-breaking mechanism of cross-cutting PDC bit. J. Petrol. Sci. Eng., 2018, vol. 161, pp. 657–666.

- Blinov G.A., Vasiliev V.I., Glazov M.G. Almazosberegayushchaya tekhnologiya bureniya [Diamond-saving drilling technology]. Leningrad, Nedra Publ., 1989. 184 p.
- Neskoromnykh V.V. Optimizatsiya v geologorazvedochnom proizvodstve [Optimization in geological survey production]. Moscow, INFRA-M Publ.; Krasnoyarsk, SFU Publ., 2013. 246 p.
- Neskoromnyh V.V., Pushmin P.S. Metodika optimalnykh parametrov rezhima i uslovy bureniya skvazhin [Methodology of optimal parameters of the mode and conditions of well drilling]. *Izvestiya Sibirskogo otdeleniya Sektsii nauk o Zemle RAEN*, 2011, no. 1 (38), pp. 151–157.
- Tretyak A.Ya., Popov V.V., Grossu A.N., Borisov K.A. Innovative approaches to the design of highly efficient rock cutting tools. *Gorny informatsionno-analiticheskii byulleten*, 2017, no. 8, pp. 225–230. In Rus.
- Su O., Ali Akcin. Numerucal simulation of rock cutting using the discrete element method. *International Journal of Rock Mechanics* and Mining Sciences, 2011, vol. 48 (3), pp. 434–442.
- Hasan A.R., Kabir C.S. Wellbore heat-transfer modeling and applications. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2012, vol. 96–97, pp. 109–119.
- Wang X., Wang Z., Wang D., Chai L. A novel method for measuring and analyzing the interaction between drill bit and rock. *Measurement*, 2018, vol. 121, pp. 344–354.
- Kanyanta V., Ozbayraktar S., Maweja K. Effect of manufacturing parameters on polycrystalline diamond compact cutting tool stressstate. *International Journal of Refractory Metals and Hard Materials*, 2014, no. 45, pp. 147–152.
- Che D., Zhu W.-L., Ehmann K.F. Chipping and crushing mechanisms in orthogonal rock cutting. *International Journal of Mechanical Sciences*, 2016, no. 119, pp. 224–236.

- Evseev V.D., Mavlyutov M.R. Puti povysheniya effektivnosti razrusheniya gornykh porod [Ways to increase the efficiency of rock destruction]. *Materialy regionalnoy konferentsii geologov Sibiri, Dalnego Vostoka i Severo-Vostoka Rossii,* 2000, vol. I, pp. 463.
- 23. Borisov K.I. Aktualnye nauchnye i prikladnye voprosy razvitiya novogo nauchnogo metoda otsenki svoystv i effektivnosti dinamicheskogo razrusheniya gornykh porod instrumentami rezhushche-skalyvayushchego tipa PDC [Actual scientific and applied issues of the development of a new scientific method for assessing the properties and efficiency of dynamic destruction of rocks with tools of cutting-shearing type PDC]. Vestnik Associatsii burovykh podryadchikov, 2010, no. 3, pp. 8–14.
- Neskoromnykh V.V., Popova M.S., Kharitonov A.Yu. Influence of resistance forces on the depth of rock cutting-chipping by a diamond cutter. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2020, vol. 331, no. 10, pp. 40–48. In Rus.
- Do D.-P., Tran N.-H., Dang H.-L., Hoxha D. Closed-form solution of stress state and stability analysis of wellbore in anisotropic permeable rocks. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences*, 2019, vol. 113, pp. 11–23.
- Ai Z., Han Y., Kuang Y., Wang Y., Zhang M. Optimization model for polycrystalline diamond compact bits based on reverse design. *Advances in Mechanical Engineering*, 2018, 10 (6), pp. 476–479.
- 27. Gao M., Zhang K., Zhou Q., Zhou H., Liu B., Zheng G. Numerical investigations on the effect of ultra-high cutting speed on the cutting heat and rock-breaking performance of a single cutter. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, July 2020, vol. 190, article no. 107120.

Received: 18 August 2021.

#### Information about the authors

*Vyacheslav V. Neskoromnykh*, Dr. Sc., professor, head of the department of technology and equipment of investigation, Siberian Federal University.

Marina S. Popova, Cand. Sc., associate professor, Siberian Federal University.

Liu Baochang, professor, Jilin University.

## УДК 62-6

# АНАЛИЗ ПРЕИМУЩЕСТВ СИСТЕМ ОБЕСПЕЧЕНИЯ ТЕПЛОВОГО РЕЖИМА ЛОКАЛЬНЫХ РАБОЧИХ ЗОН НА ОСНОВЕ ГАЗОВЫХ ИНФРАКРАСНЫХ ИЗЛУЧАТЕЛЕЙ ПО СРАВНЕНИЮ С ТРАДИЦИОННЫМИ КОНВЕКТИВНЫМИ СИСТЕМАМИ ОТОПЛЕНИЯ

# Максимов Вячеслав Иванович<sup>1</sup>,

elf@tpu.ru

# Нагорнова Татьяна Александровна<sup>1</sup>, tania@tpu.ru

Куриленко Николай Ильич<sup>2</sup>,

kurilenkoni@tyuiu.ru

# Волошко Иван Валентинович<sup>3</sup>,

iv\_voloshko@mail.ru

- <sup>1</sup> Национальный исследовательский Томский политехнический университет, Россия, 634050, г. Томск, пр. Ленина, 30.
- <sup>2</sup> Тюменский индустриальный университет, Россия, 625000, г. Тюмень, ул. Володарского, 38.
- <sup>3</sup> «Теплотранзит Караганда», Казахстан, 100017, г. Караганда, ул. Пригородная, 9/2.

Актуальность исследования обусловлена снижением затрат тепловой энергии на обеспечения теплового режима локальных рабочих зон в производственных помещениях, характерные размеры которых существенно (многократно) превышают размеры этих зон. Проблемы энергосбережения являются актуальными уже многие десятилетия по целому ряду объективных причин, но пока нет оснований для вывода о том, что решена большая часть задач энергосбережения, возникающих в производственной и социальной сферах. Известный достаточно давно способ локального «теплоснабжения» рабочего места относительно малых размеров с использованием газовых инфракрасных излучателей до последнего времени используется мало в связи с отсутствием научно-технической базы, обеспечивающей проведение опытно-конструкторских работ по созданию систем обеспечения теплового режима локальных рабочих мест на базе газовых инфракрасных излучателей.

**Цель:** анализ энергоэффективности газовых инфракрасных излучателей как основных элементов систем обеспечения теплового режима локальных рабочих зон.

Объекты: крупногабаритное помещение, обогреваемое газовым инфракрасным излучателем.

**Методы:** экспериментальные измерения температур поверхности пола термопарами типа хромель—алюмель с толщиной спая 0,08 мм и фиксация данных при помощи модуля измерения температуры NI 9214 фирмы National Instruments; математическое моделирование процессов переноса тепла в многослойном полу.

**Результаты**. Приведены результаты экспериментальных и теоретических исследований, выполненных с целью оценки эффективности использования таких систем. Эксперименты проведены в специальном боксе, воспроизводящем условия подвода теплоты от излучателя к рабочему месту малых размеров. Проведены измерения температур поверхности пола в десяти характерных точках при работе достаточно типичного излучателя средней мощности. Результаты экспериментов использовались в качестве краевых условий на границе раздела «воздух – поверхность пола бокса» при решении задач теплопроводности. По результатам экспериментальных и теоретических исследований обоснованы преимущества (по сравнению с традиционными конвективными системами отопления даже малогабаритных производственных помещений) систем обеспечения теплового режима локальных рабочих зон на базе газовых инфракрасных излучателей. Сущность этих преимуществ состоит в том, что при использовании излучателей регламентный тепловой режим обеспечивается без затрат энергии на нагрев ограждающих конструкций и воздуха за пределами рабочей зоны (которая может быть в десятки раз меньше по объему всего производственного помещения).

#### Ключевые слова:

Энергосбережение, газовые инфракрасные излучатели, теплоперенос, термопарные измерения, распределения температур, энергоэффективность.

## Введение

Газовые инфракрасные излучатели (ГИИ) [1–4] в последние годы всё чаще рассматриваются как эффективные системы обеспечения теплового режима локальных рабочих мест [5–9]. Такие излучатели не являются источником газового отопления в традиционном понимании этого термина. Они нагревают не воду, которая затем перемещается в специальных системах отопления. Газовые инфракрасные излучатели нагревают поверхности пола и ограждающих конструкций (если они есть в зоне воздействия ГИИ), а затем эти нагретые поверхности передают теплоту воздуху, который в результате термогравитационной конвекции циркулирует в зоне воздействия ГИИ. Они не занимают полезного пространства и могут охватывать своим излучением избирательную (локальную) площадь помещения. Основное преимущество – возможность создания регламентного теплового режима в малом по

объему пространстве большого производственного помещения. По результатам теоретических (с использованием моделей [10]) [10-12] и экспериментальных [13, 14] исследований установлен механизм теплопереноса в зонах поступления теплоты в результате работы ГИИ [12], существенно отличающийся от механизма теплопереноса при работе традиционных конвективных систем отопления [15-17]. Установлено, что при работе газовых инфракрасных излучателей нагрев воздуха относительно малого объёма, соответствующего области рабочей зоны, происходит вследствие термогравитационной конвекции [10, 11, 13]. Нагретый до относительно высоких температур пол помещения передаёт теплоту воздуху, который поднимается вверх и обеспечивает при необходимых параметрах ГИИ регламентный тепловой режим малогабаритной рабочей зоны [18]. Системы обеспечения теплового режима локальных рабочих зон на основе ГИИ могут быть достаточно эффективны [5, 19]. Но их широкое внедрение сдерживается до последнего времени в связи с тем, что нет объективных (на основании экспериментальных данных) оценок как энергетической, так и экономической эффективности использования таких систем [15, 20, 21]. По этим причинам целью работы является анализ энергоэффективности ГИИ как основных элементов систем обеспечения теплового режима локальных рабочих зон. Для достижения цели проведены экспериментальные и теоретические исследования рассматриваемых процессов теплопереноса при работе таких излучателей.

Решена задача (первая) установления доли вырабатываемой ГИИ теплоты, непосредственно затрачиваемой на нагрев воздуха рабочей зоны. Для решения этой задачи необходимо определение теплоты, аккумулируемой полом помещения - основным инструментом превращения лучистой энергии, вырабатываемой ГИИ, в теплоту воздуха рабочей зоны (вторая задача). Решение второй задачи возможно в результате решения уравнения энергии для слоя напольного покрытия определённой толщины (третья задача) при известных тепловых потоках, генерируемых ГИИ (q) к поверхности пола, или его температуры T<sub>f</sub>. Третья же задача может быть решена после экспериментального определения нескольких типичных для практики вариантов связи q и температуры поверхности пола. Такие связи q и T<sub>f</sub> дают возможность также верифицировать результаты математического моделирования.

# Методика экспериментов

Для достижения поставленной цели использовалась экспериментальная установка (рис. 1), основными элементами которой являются: 1) газовый инфракрасный излучатель – ГИИ-5 светлого типа производства фирмы «Сибшванк» с номинальной тепловой мощностью 5 кВт, в котором происходит выделение лучистого тепла в инфракрасном диапазоне на керамической пластине, нагреваемой теплотой сгорания природного газа в смесительной камере, расположенной в непосредственной близости от нее; 2) источник газа; 3) модель объекта теплоснабжения; 4) термопары типа хромель–алюмель с изолирующим покрытием из фторполимера PFA (толщина спая 0,08 мм); 5) аналого-цифровой преобразователь (АЦП) – сетевой преобразователь National Instruments с DAQ-9181, предназначенный для управления тактированием, синхронизацией и передачей данных с 16-канального, 32битного изотермического модуля измерения температуры NI-9214 фирмы National Instruments; 6) персональная электронно-вычислительная машина (ПЭВМ).

Температурные измерения с погрешностью 0,37 °С через аналого-цифровой преобразователь передавались на компьютер каждую секунду.

Эксперименты проводились в двух закрытых помещениях с различной поверхностью пола: белая керамическая плитка и темно-серый бетон. Габаритные размеры экспериментальных помещений  $10,2 \times 4,9 \times 4,4$ и  $8,7 \times 6,0 \times 3,4$  м, высота от пола до ГИИ – 2,975 и 2,6 м, соответственно. Стены помещения кирпичные толщиной 70 см с пластиковыми оконными проемами ( $R_{кирпич}$ =0,502 м<sup>2</sup>·K/BT,  $R_{окно}$ =0,51 м<sup>2</sup>·K/BT).

Разные поверхности пола, являющегося своеобразным преобразователем энергии излучения в теплоту, аккумулированную воздухом [6], в экспериментах использовались для того, чтобы оценить влияние состояния нагреваемой ГИИ поверхности на тепловой режим локальной рабочей зоны. Можно отметить, что в обычных условиях, соответствующих нормам и правилам промышленной санитарии [22], воздух производственных помещений не должен содержать частиц пыли, а его влажность должна быть минимально регламентированной.

По этим причинам воздух производственных помещений не может быть нагрет непосредственно излучением в подавляющем большинстве практически значимых вариантов. Нагрев воздуха в локальной рабочей зоне осуществляется за счет излучения опосредованно - нагревается до достаточно высоких (20-25 °C) температур тонкий приповерхностный слой пола помещения, и после этого за счет конвекции и теплопроводности уже воздух [9, 23]. При проведении экспериментов интенсивность нагрева последнего зависит от температуры поверхности пола. Начальная температура воздуха в помещении варьировалась от 7 до 18 °C, при этом температура окружающей среды изменялась от -15 до -35 °C. Во время проведения экспериментов ГИИ находился в стационарном положении на контролируемых расстояниях от поверхности нагрева. Термопары размещались на поверхности пола и ориентировались по двум координатным направлениям (рис. 2). Для улучшения термического контакта термопар с поверхностью пола и защиты их от переизлучения использовалась термопаста КПТ-8. Аналого-цифровой преобразователь и система сбора данных находились на расстоянии 4 м от поверхности измерения, на теплоизолирующей подкладке, и также с защитой от переизлучения для термостатирования встроенного в них холодного спая. Персональная электронно-вычислительная машина, запорно-регулирующее оборудование, а также баллон с газом располагались вне исследуемого помещения для исключения их влияния на тепловой режим в исследуемой области. Сигналы с термопар регистрировались измерительным комплексом (аналого-цифровой преобразователь NI 9214 и модуль ввода/вывода NI cDAQ 9171 National Instruments) с временным интервалом не более 1 с. Полученные значения температур передавались на ПЭВМ, где обрабатывались и сохранялись в файл.



Рис. 1. Схематичное изображение области проведения экспериментов: 1 – ГИИ; 2 – блок управления ГИИ; 3 – аналого-цифровой преобразователь; 4 – система сбора данных; 5 – газовый расходомер; 6 – манометр; 7 – регулятор давления газа; 8 – основное отключающее устройство; 9 – газовый баллон; 10 – компьютер; 11 – термопары

Fig. 1. Schematic representation of the experimental area: 1 – GIE; 2 – GIE control unit; 3 – analog-to-digital converter; 4 – data acquisition system; 5 – gas flow meter; 6 – pressure gauge; 7 – gas pressure regulator; 8 – main shut-off device; 9 – gas cylinder; 10 – computer; 11 – thermocouples

С целью обеспечения возможности оценки случайных ошибок измерений все эксперименты при фиксированных условиях их выполнения проводились не менее трех раз. После этого вычислялись среднеквадратические отклонения и соответствующие коэффициенты вариации. Значения последних во всех экспериментах не превышали 1 %. Статистическая обработка результатов измерений была необходима в связи с возможностью влияния на показания средств измерений факторов второго и третьего уровней значимости (влажности воздуха, атмосферного давления, изменения температуры внешней среды в течение длительных экспериментов). Масштабы влияния этих факторов незначительны, но в соответствии с общими положениями теории ошибок экспериментальных исследований их необходимо оценивать.

При планировании, организации и проведении экспериментов рассматривались наиболее неблагоприятные для формирования теплового режима локальной рабочей зоны условия – по периметру зоны не устанавливались никакие специальные ограждающие конструкции, которые могли снизить тепловые потери в область вне рабочей зоны. В экспериментах воспроизводились условия, достаточно типичные для локальных рабочих зон в крупногабаритных помещениях, производственные площади которых используются в небольшой степени [15].



Fig. 2. Diagram of the thermocouples in the field of the experiments

За начало координат принималась проекция центра симметрии ГИИ. Расстояния между двумя соседними термопарами одного и того же координатного направления составляли 0,2 м.

Следует отметить, что локальные рабочие места могут быть расположены в производственных помещениях, характерные размеры которых (и, соответственно, площади и объемы) могут многократно (в десять и более раз) превышать характерные размеры рабочей зоны [15]. По этим причинам условия реализации режима термогравитационной конвекции будут несколько отличаться при подводе лучистой энергии к рабочему месту, расположенному в помещении площадью 200 или 2000 м<sup>2</sup>, если не принимать специальных мер. Размеры бокса, в котором проводились исследования, были выбраны средними, чтобы обеспечить возможность объективной интерпретации результатов экспериментов как для небольших, так и для очень больших производственных помещений. При этом принимались во внимание не только площади, но и объемы помещений, т. к. теплый воздух распространяется по всем трем координатным направлениям в условиях работы газовых инфракрасных излучателей.

#### Результаты экспериментов

Установленные в экспериментах типичные зависимости температур в точках расположения спаев термопар на поверхностях пола от времени представлены на рис. 3, 4.



**Рис. 3.** Изменения с ростом времени температур в десяти точках поверхности пола (покрытой керамической плиткой). Цифры соответствуют номерам термопар на рис. 2

*Fig. 3.* Changes in temperature with increasing time at ten points of the floor surface (covered with the ceramic tiles). The numbers correspond to the numbers of the thermocouples in Fig. 2



**Рис. 4.** Изменения с ростом времени температур в десяти точках поверхности бетонного пола. Цифры соответствуют номерам термопар на рис. 2

Fig. 4. Changes in temperature with increasing time at ten points on the surface of the concrete floor. The numbers correspond to the numbers of the thermocouples in Fig. 2

Можно отметить, что все приведенные на рис. 3, 4 зависимости T<sub>f</sub> (X) являются в некоторой степени немонотонными - отклонения в несколько десятых долей градуса на интервалах времени в несколько минут достаточно типичны для большинства показаний термопар. Такой вид зависимостей  $T_f(t)$  косвенно подтверждает, скорее всего, турбулентный характер термогравитационного течения воздуха вблизи поверхности пола. Вычислены числа Gr, по которым обычно выполняется [24] анализ режима термогравитационного течения воздуха. При исходных данных L=5 м, V=224 м<sup>3</sup> число Gr для типичных исследуемых режимов составляет около  $10^{12}$ . Такое значение Gr по теории [24] соответствует явно выраженному турбулентному режиму свободной конвекции. При этом масштабы этих мини флуктуаций температуры поверхности (0,5-0,7 °C) зависят от положения спая термопары – чем ближе он к центру, тем больше локальные отклонения значений  $T_f$ от средних. Последнее иллюстрирует влияние градиентов  $T_f$  по двум координатным направлениям (X и Y) на степень турбулизации течения нагретого в результате теплоотвода от пола тонкого слоя воздуха, поднимающегося вверх и формирующего тепловой режим рабочей зоны на высоте до двух метров [6, 14]. Как видно из рис. 3, 4, динамика изменения полей температур пола со временем для помещений с различным половым покрытием почти идентична. Максимальная температура поверхности пола достигается, как и можно было ожидать, в точке, соответствующей проекции оси симметрии ГИИ.

На рис. 5–8 представлены типичные распределения температур по координатам X и Y для бетонного пола и пола, покрытого керамической плиткой, в характерные моменты времени. Эксперименты показали, что за 80 минут работы ГИИ температура поверхности пола поднимается на 5–6 °С. В дальнейшем за 60 минут она изменяется менее чем на 1 градус. Поэтому на рисунках приведены результаты экспериментов в диапазоне изменения времени до 80 мин.

Необходимо отметить, что методическая погрешность термопарных измерений составляет не более 1 %. Поэтому зарегистрированные термопарами в начале эксперимента (при t=0) отклонения в  $\pm 0.5$  °C являются, скорее всего, следствием методических погрешностей, а также случайных ошибок, обусловленных неконтролируемыми малозначимыми факторами (неоднородность железобетона, загрязнения и неровности его поверхности и др.). Так, например, показания термопар, как показал анализ, зависят в некоторой степени от вида материала в приповерхностном слое, прилегающем к месту закрепления термопары. Это может быть сталь арматуры железобетона, камень или песок. Соответственно, теплофизические свойства стали значительно отличаются (например, теплопроводность) от аналогичного свойства камня. Поэтому возможны небольшие ( $\pm 0.6$  °C), но заметные отклонения  $T_f(X)$ .

Экспериментально установлено, что по мере удаления термопар от центра симметрии проекции ГИИ значения температур уменьшаются на 0,5–1,0 °С (рис. 5–8). Через 50 мин после включения ГИИ температура в центре зоны измерений T<sub>f</sub> в обоих случаях становится равной 22 °C. Это объясняется тем, что у бетона и керамической плитки схожие теплофизические свойства, а коэффициент излучения в инфракрасном диапазоне одинаков (с=0,95 [25, 26]). Можно сделать вывод о том, что распределение температуры поверхности пола помещения, обогреваемого газовым инфракрасным излучателем, не зависит от коэффициента излучения напольного покрытия в оптическом диапазоне (по сути цвета: бетон черный, керамическая плитка белая). Установленные в экспериментах закономерности позволяют обосновать гипотезу, что перенос энергии в системе «излучатель - воздух - напольное покрытие» происходит, скорее всего, за счет всех механизмов теплопереноса [10, 27]. Также можно сделать вывод о том, что изменение, например, геометрических характеристик крупногабаритных помещений (объёма) на 20 % практически не должно влиять на распределение температур поверхности пола, нагреваемого ГИИ.



**Рис. 5.** Распределение температуры поверхности пола (керамическая плитка) по координатному направлению X в характерные моменты времени





**Рис. 6.** Распределение температуры поверхности пола (керамическая плитка) по координатному направлению У в характерные моменты времени





**Рис.** 7. Распределение температуры поверхности пола (бетон) по координатному направлению X в характерные моменты времени





**Рис. 8.** Распределение температуры поверхности пола (бетон) по координатному направлению Y в характерные моменты времени



Размер помещения по высоте не влияет на распределение температур, т. к. излучатель, нагретый до высоких температур, препятствует движению воздуха вверх и циркуляционные движения происходят в области, ограниченной снизу полом, а сверху излучателем. Поперечные размеры помещения также не оказывают значимого влияния на распределение температуры поверхности, т. к. зона воздействия излучателя ограничена. Так, например, при высоте его размещения 2,95 м и мощности 5 кВт площадь нагреваемой на 1 К поверхности, по сравнению с начальной, составляет не более 20 м<sup>2</sup> (радиус такой площадки около 2,5 м).

Следует отметить, что размещение излучателя всегда возможно на любой высоте (на любом расстоянии от рабочей зоны). Теплый воздух, нагреваемый в результате теплоотдачи от нагретого излучением пола, при движении вверх не может подняться выше ГИИ, т. к. воздух вокруг последнего нагрет до высоких (много больше, например, 23 °C) температур. Поэтому циркуляционные течения в результате работы ГИИ формируются в области между поверхностью пола и излучателем, горячий воздух вокруг которого препятствует движению теплого воздуха с существенно меньшей температурой, который поднимается в результате термогравитационной конвекции вверх, а затем после охлаждения опускается вниз. По этой причине общая высота помещения не играет роли в формировании теплового режима локальной рабочей зоны.

#### Физическая и математическая постановки задачи

Для установления доли вырабатываемой ГИИ теплоты, непосредственно затрачиваемой на нагрев воздуха рабочей зоны, определена теплота, аккумулируемая полом помещения. Для этого решено уравнение энергии для двухслойного (рис. 9, a) и однослойного (рис. 9,  $\delta$ ) пола соответствующей эксперименту толщины при установленных экспериментально тепловых потоках ( $q_t$ ) к поверхности пола (табл. 1), полученных ранее [6, 14].



**Рис. 9.** Область решения задачи для двухслойного (a) и однослойного пола (б): 1 -бетон, 2 -керамическая плитка **Fig. 9.** Solution area for the two-layer (a) and single-layer floors (b): 1 -concrete, 2 -ceramic tile

- **Таблица 1.** Распределение удельного теплового потока по поверхности бетонного пола в сечении Y=0 при 0<X<2,3 м (рис. 1)
- **Table 1.**Specific heat flux distribution over the surface<br/>of the concrete floor in the section Y=0 at<br/>0 < X < 2,3 m (Fig. 1)

| Координата <i>X</i> , м<br>Coordinate <i>X</i> , m | 0   | 0,5 | 0,8 | 1,3 | 1,7 | 2,1 | 2,3 |
|--|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|
| q, BT/M <sup>2</sup> /W/m <sup>2</sup>             | 135 | 125 | 102 | 68  | 40  | 20  | 0,1 |

Зависимость q(X) хорошо описывается полиномом третьей степени  $q_t(X)=10,07X^3-43,34X^2-12,19X+136$  с величиной достоверной аппроксимации (Коэффициент детерминации)  $R^2=0,9973$  и среднеквадратичной ошибкой RMSE=6,651 (рис. 10).

Процесс переноса тепла в такой двухслойной пластине (рис. 9, *a*) описывается уравнением теплопроводности с соответствующими начальными и граничными условиями.



**Puc. 10.** Зависимость q(X): exp – экспериментальные данные; pol – аппроксимационная кривая **Fig. 10.** Dependence q(X): exp – experimental data; pol – approximation curve

$$\rho_2 c_2 \frac{\partial T_2}{\partial t} = \lambda_2 \left( \frac{\partial^2 T_2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T_2}{\partial z^2} \right),$$
  
$$0 < x < l, \ 0 < z < h_1,$$
(1)

$$\rho_1 c_1 \frac{\partial T_1}{\partial t} = \lambda_1 \left( \frac{\partial^2 T_1}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T_1}{\partial z^2} \right), \tag{2}$$

 $0 < x < l, \ h_1 < z < h_1 + h, \tag{2}$ 

Начальные условия:

$$T(x,z) = T_0. \tag{3}$$

Граничные условия:

$$-\lambda \frac{\partial T}{\partial z} = q_t \left( x \right) + \alpha_u \left( T_{air} - T_f \right), \quad z = 0, \quad 0 < x < l, \quad (4)$$

$$\frac{\partial^2 T}{\partial x^2} = 0, \quad x = 0, \quad 0 < z < h_1 + h, \tag{5}$$

$$-\lambda \frac{\partial T}{\partial x} = 0, \ x = l, \ 0 < z < h_1 + h, \tag{6}$$

$$-\lambda \frac{\partial T}{\partial z} = \alpha_d \left( T_e - T_d \right), \ z = h_1 + h, \ 0 < x < l,$$
(7)

$$T_{1}(t, x, z) = T_{2}(t, x, z),$$
  
$$-\lambda_{1} \frac{\partial T_{1}}{\partial z} = -\lambda_{2} \frac{\partial T_{2}}{\partial z}, \quad z = h_{1}, \quad 0 < x < l, \quad (8)$$

где x, z – координаты, м; t – время, c; T – температура, K;  $T_0$  – температура в начальный момент времени, K;  $T_e$  – температура окружающей среды, K;  $T_{air}$  – температура воздуха внутри помещения, K;  $T_f$ ,  $T_d$  – температуры на верхней и нижней границах пола соответственно, K; l – поперечный размер области решения, м; h – толщина области решения, м;  $\rho$  – плотность, кг/м<sup>3</sup>;  $\lambda$  – коэффициент теплопроводности, Bт/(м·K); c – теплоемкость, кДж/(кг·K);  $\alpha_u$ ,  $\alpha_d$  – коэффициенты теплоотдачи между поверхностью пола и воздухом на верхней и нижней границах соответственно, Вт/(м<sup>2</sup>·К), рассчитываются в соответствии с [25] для  $\alpha_{u:}$  $\overline{Nu_{L}^{u}} = 0.15Ra_{L}^{U3}$ , для  $\alpha_{d} \overline{Nu_{L}^{d}} = 0.52Ra_{L}^{U5}$ ;  $\overline{Nu}$  – среднее число Нуссельта; Ra – число Релея. Индексы 1 и 2 соответствуют материалам на рис. 9. Численные значения теплофизических характеристик материалов приведены в табл. 2.

Система уравнений теплопроводности (1), (2) с соответствующими начальными (3) и граничными (4)–(8) условиями решена методом конечных разностей с использованием неявной разностной схемы на равномерной сетке. Для решения системы алгебраических уравнений применялся метод прогонки [10, 11].

При численном решении задачи теплопереноса в однослойном бетонном полу (толщиной h) использовалось уравнение (2) с начальными и граничными условиями (3)–(7).

На рис. 11 представлены типичные результаты численного решения задачи (1)–(7).

Хорошо видно, что через 80 минут работы ГИИ пол прогревается на 0,16 м (от начальной температуры 17,5 °С), а максимальная температура его поверхности достигает 22,7 °С. Материал поверхности пола не оказывает существенного влияния на распределения температуры по толщине (теплофизические характеристики керамической плитки и бетона различаются незначительно). Если сравнить рассчитанные температуры поверхности пола с полученными экспериментально (рис. 12), видно их хорошее соответствие в случае бетонного пола (рис. 12, б) во всем диапазоне изменения времени. В случае же керамической плитки до 40 мин отличия экспериментальных и рассчитанных значений T<sub>f</sub> составляют около 1 °C (рис. 12, а). Затем с ростом времени эта разность уменьшается (становится менее 0,2 °C).

**Таблица 2.** Теплофизические свойства материалов, характерные температуры и коэффициенты теплоотдачи между поверхностью пола и воздухом [25–28]

 Table 2.
 Thermophysical properties of the materials, the characteristic temperatures and heat transfer coefficients between the floor surface and air [25–28]

| Материал       | $\lambda$ , Bt/(M·K) | <i>с</i> , кДж/(кг·К) | <i>ρ</i> , кг/м <sup>3</sup> | $T_0$ , | $T_e$ , | $\alpha_d$ , Bt/(m <sup>2</sup> ·K) | $\alpha_u$ , BT/(M <sup>2</sup> ·K) |
|----------------|----------------------|-----------------------|------------------------------|---------|---------|-------------------------------------|-------------------------------------|
| Material       | $W/(m \cdot K)$      | kJ/(kg·K)             | kg/m <sup>3</sup>            | К       | К       | $W/(m^2 \cdot K)$                   | $W/(m^2 \cdot K)$                   |
| Бетон/Concrete | 1,28                 | 840                   | 2000                         | 290     | 250     | 4,45                                | 7                                   |
| Плитка/Tile    | 1.5                  | 750                   | 2000                         | 290     | 230     | _                                   | 7                                   |



Puc. 11. Распределение температуры в области анализа при тепловом потоке, приведенном на рис. 10, в момент времени 80 мин: а) двухслойная пластина (бетон с керамическим покрытием), б) однослойная пластина (бетон)
Fig. 11. Temperature distribution in the analysis area at the heat flux shown in Fig. 10, at a time point of 80 minutes: a) a two-layer plate (concrete with a ceramic coating), b) a single-layer plate (concrete)



**Рис. 12.** Распределения температуры поверхности пола по направлению X, полученные экспериментально (пунктирные линии) и в результате численного моделирования (сплошные линии) в разные моменты времени: а) двухслойный (бетон с керамическим покрытием), b) однослойный (бетон): 1 – 20 мин, 2 – 40 мин, 3 – 60 мин, 4 – 77 мин

Fig. 12. Floor surface temperature distributions in the X direction, obtained experimentally (a dashed line) and as a result of a numerical simulation (a solid line) at different time points: a) a two-layer (concrete with ceramic coating), b) a single-layer (concrete): 1 – 20 min, 2 – 40 min, 3 – 60 min, 4 – 77 min

На рис 13. представлена динамика изменения средней температуры поверхности пола (a) и теплового потока ( $\delta$ ) от ГИИ (теплота затрачивается на нагрев воздуха рабочей зоны и на нагрев слоя пола).

Вычисление аккумулированной полом и воздухом теплоты в каждый момент времени (*т*) проводилось по формулам:

$$\begin{aligned} Q_{floor} &= \sum_{z=0}^{h} \sum_{x=0}^{l} \rho_1 \cdot c_1 \cdot \left(T_1 - T_0\right) \cdot y \cdot h_z \cdot h_x, \\ Q_{air} &= \sum_{t=0}^{\tau} \sum_{y=0}^{1} \sum_{x=0}^{l} \alpha_u \cdot \left(T_f - T_e\right) \cdot h_y \cdot h_x \cdot \Delta \tau, \end{aligned}$$

где  $h_x$ ,  $h_y$ ,  $h_z$  – шаг по координатам x, y и z соответственно, м;  $\Delta \tau$  – шаг по времени, с.

Анализируя изменение средней по координате X температуры поверхности во времени (рис. 13, *a*), можно заметить неплохое соответствие между численными и экспериментальными результатами. Интенсивный рост температуры продолжается до 40 мин, после чего происходит снижение темпа этого роста.

Численный анализ показывает, что из всей теплоты, поступающей от ГИИ к напольному покрытию в начальный период (до 10 мин) времени (рис. 13,  $\delta$ ), около 90 % расходуется на нагрев пола и 10 % – на нагрев воздуха рабочей зоны. С ростом времени их соотношение изменяется и становится 70 %/30 %.

На основании анализа результатов выполненных исследований можно сделать вывод что использование систем обеспечения теплового режима на базе ГИИ для локального обогрева рабочей зоны в закрытых помещениях являются энергоэффективными и экономичными. При этом часть теплоты (70 %) (рис. 14), излучаемой ГИИ, расходуется на нагрев пола в локальной обогреваемой рабочей зоне, который в рассматриваемом случае является своеобразным ак-кумулятором энергии.



Рис. 13. Изменение средней температуры поверхности пола (по координате X) во времени (a) и тепловых потоков (б), при нагреве воздуха рабочей зоны (Air) и пола (Floor) во времени: 1 – экспериментальные значения для бетона с керамическим покрытием, 2 – экспериментальные значения для бетона, 3 – теоретические значения для двухслойной (бетон с керамическим покрытием) и однослойной пластины (бетон)

*Fig. 13.* Floor surface average temperature change over time (a) and heat fluxes (b), when the air of the working area (Air) and the floor (Floor) is heated over time: 1 – the experimental values for concrete with a ceramic coating, 2 – the experimental values for concrete, 3 – the theoretical values for a two-layer (ceramic-coated concrete) and one-layer plate (concrete)



Рис. 14. Изменение количества теплоты, аккумулируемой полом (Q<sub>Floor</sub>) и воздухом (Q<sub>Air</sub>), поступающей от ГИИ

Fig. 14. Change in the amount of heat accumulated by the floor  $(Q_{Floor})$  and air  $(Q_{Air})$  coming from the gas infrared emitter

Целесообразно сравнение систем локального лучистого отопления с широко распространённым вариантом водяного отопления, использующегося в большинстве случаев для создания комфортных рабочих условий (например, заданной температуры) в производственных помещениях. В этом случае источник теплоты (как правило, радиаторы) нагревает воздух, а воздух в результате естественной конвекции в замкнутом объеме отдает большую часть тепла в ограждающие конструкции. При работе таких систем теплоснабжения значительная часть теплоты будет отводиться через ограждающие конструкции во внешнюю среду [29–35].

Для сравнения количества теплоты, необходимого для обеспечения регламентного теплового режима с использованием ГИИ и обычного водяного отопления решена задача теплопереноса в рассматриваемом объекте (рис. 15). Использована относительно простая, но обеспечивающая учет всех основных значимых факторов, математическая модель [36].

$$\rho \cdot c \cdot \frac{dT}{dt} = Q_1 - Q_2 - Q_3; \quad T(0) = T_0,$$

 $Q_1$  – теплота, подводимая от источников системы водяного отопления;  $Q_2$  – теплота, отводимая через поверхность ограждающей конструкции во внешнюю среду (условия вынужденной конвекции);  $Q_3$  – теплота, отводимая через внутренние ограждающие конструкции (условие естественной конвекции) в воздух помещения.

В качестве примера рассмотрено производственное помещение относительно малых размеров –  $20 \times 15$  м, высотой 4 м с локальной рабочей зоной общей площадью 10 м<sup>2</sup>. При использовании ГИИ для обеспечения регламентного теплового режима (температура воздуха 23 °C [34]) необходим (как показали эксперименты) подвод теплоты от излучателя в эту зону с интенсивностью Q=5 кВт. Если же использовать обычное водяное отопление с расположенными на стенах радиаторами, то для нагрева воздуха (рис. 15) до такой же (23 °C) температуры во всем помещении и сохранения регламентного теплового режима в течении хотя бы рабочего времени (8 часов) необходим подвод Q=28 кВт в отапливаемое помещение. Такое значительное отклонение основных характеристик систем теплоснабжения обусловлено тем, что при таком расположении системы (рис. 15) водяного отопления необходим нагрев всего объема воздуха помещения 1200 м<sup>3</sup> и (это главное) вынужденный нагрев всех ограждающих конструкций (стен и перекрытий), а не только пола (как в варианте с ГИИ). Важным при этом также является нестационарный характер теплоотвода в ограждающие конструкции.



**Рис. 15.** Схематичное изображение помещения с водяным отоплением

Fig. 15. Schematic representation of the room with water heating

Системы водяного отопления (в отличии от систем лучистого нагрева) в отопительный сезон при отрицательных температурах внешней среды нельзя выключать - возможны аварийные ситуации. Поэтому водяное отопление должно работать круглосуточно (другие варианты в большинстве случаев невозможны). С целью оценки значений Q решена задача теплопереноса для области «воздух - ограждающие конструкции» при теплоотводе в окружающую среду в стационарном режиме [31, 33]. В общем случае возможны различные варианты положения производственного помещения относительно окружающей среды. Так, например, теплоотвод может осуществляться с поверхности всех ограждающих конструкций (отдельно стоящее здание). Возможно размещение помещения внутри большого, но не отапливаемого здания. В этом случае теплоотвод с поверхностей внутренних ограждающих конструкций будет происходить с меньшей интенсивностью (отсутствие ветра). Но при низкой температуре за ограждающими конструкциями в соседних помещениях охлаждение воздуха в отапливаемом помещении за счет теплоотвода через внутренние стены также будет значимым, даже в условиях естественной конвекции [34, 36].

Соответственно, с увеличением объема помещений необходимая тепловая мощность источника может возрастать в десятки раз. При работе ГИИ ком-

фортные условия для работающего достигаются в рабочей зоне достаточно быстро (через 20 минут после включения ГИИ, рис. 3, 4). При этом разность температур 1,5-2 °С на расстоянии 1-2 м не является дискомфортной. Такой перепад температур формируется вследствие циркуляционного движения снизу вверх воздуха, нагреваемого теплым полом помещения. При водяном отоплении необходимое время для прогрева всего объема воздуха в помещении, ограждающих конструкций и оборудования, находящегося в нем (например, помещения с керамической плиткой для достижения температуры в воздухе 23 °C [34]) составляет как минимум 4,5 часа. С учетом того, что на нагрев воздуха (аккумулированное тепло) тратится всего 1 % тепловой энергии, поставляемой при водяном отоплении, а 99 % расходуется на нагрев ограждающих конструкций, реальное время прогрева всего помещения для создания комфортных условий может составлять до суток.

Целесообразно уточнить, что ГИИ «подходят» не для отопления больших помещений, а только для обеспечения регламентного теплового режима в локальной рабочей зоне такого помещения. При этом эффективность системы лучистого отопления обусловлена не столько нагревом верхней части поверхности одежды работающего. Площадь этой поверхности около 0,1 м<sup>2</sup> и составляет менее 0,05 % от общей площади воздействия радиационного потока, поступающего в рабочую зону от излучателя. Механизм нагрева воздуха в результате его термогравитационной конвекции установлен экспериментально [13] и обоснован теоретически [11]. Нагретый под действием лучистого потока пол помещения передает часть теплоты прилегающему к нему слою воздуха, который поднимается вверх и формирует циркуляционные течения в рабочей зоне. В результате холодный воздух верхних слоев этой зоны опускается вниз, нагревается в результате теплоотвода от поверхности пола и поднимается вверх, где охлаждается и опять опускается вниз. Излучение же напрямую может нагреть только малую часть поверхности одежды раориентированную ботающего, перпендикулярно направлению лучистого теплового потока. Остальная часть поверхности одежды работающего участвует только в конвективном теплообмене с воздухом, окружающем работающего. Температура же последнего зависит от интенсивности термогравитационной конвекции, инициируемой нагретым полом. Ранее, в работах [11, 13], установлено, что при работе системы лучистого отопления в рабочей зоне формируется температурное поле с малым перепадом температур (рис. 3–8) – не более 2 °С.

В заключение необходимо подчеркнуть, что преимущества системы отопления на базе ГИИ заключаются в следующем.

# СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

 Wang H., Kaur S., Elzouka M., Prasher R. A nano-photonic filter for near infrared radiative heater. *Applied Thermal Engineering*, 2019, vol. 153, pp. 221–224. Available at: https://doi.org/10.1016/ j.applthermaleng.2019.03.001 (accessed 15 August 2021).

- При работе ГИИ нагревается только прилегающий к поверхности пола материал напольного покрытия и воздух рабочей зоны, которая по объему много меньше, как правило, общего объема помещения (в 10 и более раз). При работе же системы конвективного отопления нагревается не только тонкий слой вблизи поверхности пола, но все ограждающие вертикальные конструкции на всю толщину (чтобы обеспечить минимальный теплоотвод в окружающую среду с внешних поверхностей ограждающих конструкций) и перекрытия.
- Также при работе системы конвективного отопления нагревается воздух не только в малом объеме локальной рабочей зоны, но и во всем помещении.
- 3. Кроме этого, для поддержания нормального теплового режима производственного помещения с системой конвективного отопления последняя должна работать круглосуточно. При работе же ГИИ регламентный тепловой режим локальной рабочей зоны устанавливается через 1–1,5 часа после начала работы излучателей. Соответственно, при односменной работе предприятия затраты энергии на работу ГИИ (без учета других перечисленных выше факторов) в 2–2,8 раза меньше по сравнению с затратами энергии на работу традиционных конвективных систем отопления.

Результаты выполненных экспериментальных и теоретических исследований дают основания для вывода о преимуществе (по сравнению с системами водяного отопления) в энергоэффективности систем лучистого отопления. При работе ГИИ вырабатываемая им теплота затрачивается на нагрев тонкого приповерхностного слоя пола и воздуха локальной рабочей зоны [37]. При работе систем водяного отопления вырабатываемая ими теплота затрачивается на нагрев не только приповерхностного слоя пола, но также вертикальных ограждающих конструкций и перекрытий. Кроме того, в последнем случае нагревается многократно больший объем воздуха по сравнению с системой лучистого отопления.

#### Заключение

В результате экспериментальных и теоретических исследований основных закономерностей процессов переноса теплоты в системе «газовый инфракрасный излучатель – воздух – пол» локальной рабочей зоны установлена достаточно высокая эффективность систем лучистого нагрева (газовых инфракрасных излучателей) при формировании тепловых режимов локальных рабочих зон, расположенных в производственных помещениях, характерные размеры которых и, соответственно, площади и объемы в десятки раз больше характерных размеров локальной рабочей зоны.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского Научного Фонда (проект № 20-19-00226).

 Maznoy A., Kirdyashkin A., Pichugin N., Zambalov S., Petrov D. Development of a new infrared heater based on an annular cylindrical radiant burner for direct heating applications. *Energy*, 2020, vol. 204, article number 117965. Available at: https://doi.org/ 10.1016/j.energy.2020.117965 (accessed 15 August 2021).

- Lee E.-H., Yang D.-Y. Experimental and numerical analysis of a parabolic reflector with a radiant heat source. *International Journal* of Heat and Mass Transfer, 2015, vol. 85, pp. 860–864. Available at: https://doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2015.02.042 (accessed 15 August 2021).
- Brown K.J., Farrelly R., O'Shaughnessy S.M., Robinson A.J. Energy efficiency of electrical infrared heating elements. *Applied Energy*, 2016, vol. 162, pp. 581–588. Available at: https://doi.org/ 10.1016/j.apenergy.2015.10.064 (accessed 15 August 2021).
- Rhee K.-N., Olesen B.W., Kim K.W. Ten questions about radiant heating and cooling systems. *Building and Environment*, 2017, vol. 112, pp. 367–381. Available at: https://doi.org/10.1016/ j.buildenv.2016.11.030 (accessed 15 August 2021).
- Kurilenko N.I., Mamontov G.Ya., Mikhaylova L.Yu. Temperature patterns in the gas infrared radiator heating area. *EPJ Web of Conferences*, 2015, vol. 82, article number 01006. Available at: https://doi.org/10.1051/epjconf/20158201006 (accessed 15 August 2021).
- Dudkiewicz E., Szałański P. Overview of exhaust gas heat recovery technologies for radiant heating systems in large halls. *Thermal Science and Engineering Progress*, 2020, vol. 18, article number 100522. Available at: https://doi.org/10.1016/ j.tsep.2020.100522 (accessed 15 August 2021).
- Dudkiewicz E., Jeżowiecki J. The influence of orientation of a gas-fired direct radiant heater on radiant temperature distribution at a work station. *Energy and Buildings*, 2011, vol. 43, Iss. 6, pp. 1222–1230. Available at: https://doi.org/10.1016/j.enbuild. 2010.12.030 (accessed 15 August 2021).
- Sarbu I., Adriana Tokar A. Numerical modelling of hightemperature radiant panel heating system for an industrial hall. *International Journal of Advanced and Applied Sciences*, 2018, vol. 5 (5), pp. 1–9. Available at: https://doi.org/10.21833/ ijaas.2018.05.001 (accessed 15 August 2021).
- Kuznetsov G.V., Maksimov V.I., Nagornova T.A. Prognostic potential of free convection models for analysis of thermal conditions of heat supply objects. *Thermal Science*, 2018, vol. 22, № 1B, pp. 545–556. Available at: https://doi.org/10.2298/TSCI150625104K (accessed 15 August 2021).
- Kuznetsov G.V., Kurilenko N.I., Maksimov V.I., Mamontov G.Ya., Nagornova T.A. Heat transfer under heating of a local region of a large production area by gas infrared radiators. *Journal of Engineering Physics and Thermophysics*, 2013, vol. 86, pp. 519–524. Available at: https://doi.org/10.1007/s10891-013-0863-6 (accessed 15 August 2021).
- Zajicek M., Kic P. Heating of large agricultural and industrial buildings. Agronomy Research, 2014, vol. 12 (1), pp. 237–244.
- Kuznetsov G.V., Kurilenko N.I., Maksimov V.I., Nagornova T.A. Experimental and numerical study of heat transfer in production area heated by gas infrared source. *International Journal of Thermal Sciences*, 2020, vol. 154, article number 106396. Available at: https://doi.org/10.1016/j.ijthermalsci.2020.106396 (accessed 15 August 2021).
- 14. Kurilenko N. I., Kurilenko E.Yu., Mamontov G.Ya. New approach to microclimate parameter selection for the production area with heat supply systems based on gas infrared radiators. *EPJ Web of Conferences*, 2016, vol. 110, article number 01033. Available at: https://doi.org/10.1051/epjconf/201611001033 (accessed 15 August 2021).
- Prek M., Krese G. Experimental analysis of an improved regulation concept for multi-panel heating radiators: Proof-ofconcept. *Energy*, 2018, vol. 161, pp. 52–59. Available at: https://doi.org/ 10.1016/j.energy.2018.07.107 (accessed 15 August 2021).
- Pei Peng, Guangcai Gong, Xiaorui Deng, Chun Liang, Wenqiang Li. Field study and numerical investigation on heating performance of air carrying energy radiant air-conditioning system in an office. *Energy and Buildings*, 2020, vol. 209, article number 109712. Available at: https://doi.org/10.1016/j.enbuild.2019.109712 (accessed 15 August 2021).
- Karl-Villem Võsa, Andrea Ferrantelli, Jarek Kurnitskia. A combined analytical model for increasing the accuracy of heat emission predictions in rooms heated by radiators. *Journal of Building Engineering*, 2019, vol. 23, pp. 291–300. Available at: https:// doi.org/10.1016/j.jobe.2019.02.009 (accessed 15 August 2021).

- Guangcai Gong, Jia Liu, Xiong Mei. Investigation of heat load calculation for air carrying energy radiant air-conditioning system. *Energy and Buildings*, 2017, vol. 138, pp. 193–205. Available at: https://doi.org/10.1016/j.enbuild.2016.12.005 (accessed 15 August 2021).
- Kavga A., Karanastasi E., Konstas I., Panidis Th. Performance of an infrared heating system in a production greenhouse. *IFAC Proceedings*, 2013, vol. 46, Iss. 18, pp. 235–240. Available at: https:// doi.org/10.3182/20130828-2-SF-3019.00017 (accessed 15 August 2021).
- Chen Zhang, Michal Pomianowski, Per Kvols Heiselberg, Tao Yu. A review of integrated radiant heating/cooling with ventilation systems – thermal comfort and indoor air quality. *Energy and Buildings*, 2020, vol. 223, article number 110094. Available at: https://doi.org/10.1016/j.enbuild.2020.110094 (accessed 15 August 2021).
- Kavga A., Alexopoulos G., Bontozoglou V., Pantelakis S., Panidis Th. Experimental investigation of the energy needs for a conventionally and an infrared heated greenhouse. *Advances in Mechanical Engineering*, 2012, article ID 789515, pp. 1–16. Available at: https://doi.org/10.1155/2012/789515 (accessed 15 August 2021).
- 22. ISO 11855. Building environment design design, dimensioning, installation and control of embedded radiant heating and cooling systems, 2012.
- ISO 7730. Moderate thermal environment determination of the PMV and PPD indices and specification of the conditions for thermal comfort. International organization for standardization. Geneva, Switzerland, 2005.
- 24. Jaluria Y. Natural convection heat and mass transfer. U.K., Pergamon Press, 1980. 326 p.
- Bergman T.L., Lavine A.S., Incropera F.P., DeWitt D.P. Fundamentals of heat and mass transfer. 7<sup>th</sup> ed. NY, John Wiley & Sons, 2011. 1048 p.
- DOE Fundamentals handbook, thermodynamics, heat transfer and fluid flow (Volume 2 of 3). U.S., Department of Energy, 2016. 80 p.
- Haynes W.M. Handbook of chemistry and physics 2015–2016. Boca Raton, CRC/Taylor & Francis, 2015. 3020 p.
- Aliihsan Koca, Zafer Gemici, Yalcin Topacoglu, Gursel Cetin, Rusen Can Acet, Baris Burak Kanbur. Experimental investigation of heat transfer coefficients between hydronic radiant heated wall and room. *Energy and Buildings*, 2014, vol. 82, pp. 211–221. Available at: https://doi.org/10.1016/j.enbuild.2014.06.045 (accessed 15 August 2021).
- Derbal R., Defer D., Chauchois A., Antczak E. A simple method for building materials thermophysical properties estimation, *Construction and Building Materials*, 2014, vol. 63, pp. 197–205. Available at: https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2014.04.076 (accessed 15 August 2021).
- 30. Obyn S., Van Moeseke G. Variability and impact of internal surfaces convective heat transfer coefficients in the thermal evaluation of office buildings. *Applied Thermal Engineering*, 2015, vol. 87, pp. 258–272. Available at: https://doi.org/10.1016/ j.applthermaleng.2015.05.030 (accessed 15 August 2021).
- Pedersen C.O., Fisher D.E., Liesen R.J. Development of a heat balance procedure for calculating cooling loads. ASHRAE Transactions, 1997, vol. 103, Pt. 2, pp. 459–468.
- Cengel Yu.A., Chajar A.J. Heat and mass transfer, fundamentals and applications. 4<sup>th</sup> ed. New York, McGraw-Hill, 2011. 905 p.
- Wang S., Xiao L.F., Yan C. Quantitative energy performance assessment methods for existing buildings. *Energy and Buildings*, 2012, vol. 55, pp. 873–888. Available at: https://doi.org/ 10.1016/j.enbuild.2012.08.037 (accessed 15 August 2021).
- 34. Yan C., Wang S., Shan K., Lu Y. A simplified analytical model to evaluate the impact of radiant heat on building cooling load. *Applied Thermal Engineering*, 2015, vol. 77, pp. 30–41. Available at: https://doi.org/10.1016/j.applthermaleng.2014.12.017 (accessed 15 August 2021).
- 35. Veselý M., Kramer R., Zeiler W. Energy performance of personalized heating: numerical case study for a medium sized office building including different envelope qualities and climates. *Journal of Building Engineering*, 2018, vol. 21, pp. 113–119. Available at: https://doi.org/10.1016/j.jobe.2018.10.008 (accessed 15 August 2021).

- 36. Wang D., Wu C., Liu Y., Chen P., Liu J. Experimental study on the thermal performance of an enhanced-convection overhead radiant floor heating system, *Energy and Buildings*, 2017, vol. 135, pp. 233–243. Available at: https://doi.org/10.1016/ j.enbuild.2016.11.017 (accessed 15 August 2021).
- 37. Dudkiewicz E., Jeżowiecki J. Measured radiant thermal fields in industrial spaces served by high intensity infrared heater. *Energy*

#### Информация об авторах

and Buildings, 2009, vol. 41, Iss. 1, pp. 27–35. Available at: https://doi.org/10.1016/j.enbuild.2008.07.005 (accessed 15 August 2021).

Поступила 25.08.2021 г.

*Максимов В.И.*, кандидат технических наук, доцент Научно-образовательного центра И.Н. Бутакова Инженерной школы энергетики Национального исследовательского Томского политехнического университета. *Нагорнова Т.А.*, кандидат технических наук, доцент Научно-образовательного центра И.Н. Бутакова Инженерной школы энергетики Национального исследовательского Томского политехнического университета. *Куриленко Н.И.*, кандидат физико-математических наук, профессор кафедры теплогазоснабжения и вентиляции Строительного института Тюменского индустриального университета.

Волошко И.В., ведущий инженер «Теплотранзит Караганда».

## UDC 62-6

# ADVANTAGE ANALYSIS OF SYSTEMS FOR ENSURING LOCAL WORKING ZONES THERMAL CONDITIONS BASED ON GAS INFRARED EMITTERS IN COMPARISON WITH TRADITIONAL CONVECTIVE HEATING SYSTEMS

Vyacheslav I. Maksimov<sup>1</sup>, elf@tpu.ru

Tatiana A. Nagornova<sup>1</sup>, tania@tpu.ru

Nikolay I. Kurilenko<sup>2</sup>, kurilenkoni@tyuiu.ru

# Ivan V. Voloshko<sup>3</sup>,

iv\_voloshko@mail.ru

- <sup>1</sup> National Research Tomsk Polytechnic University, 30, Lenin avenue, Tomsk, 634050, Russia.
- <sup>2</sup> Industrial University of Tyumen,
   38, Volodarsky street, Tyumen, 625000, Russia.
- <sup>3</sup> «Teplotranzit Karaganda»,
   9/2, Suburban street, Karaganda, 100017, Kazakhstan.

The relevance of the study is caused by the decrease in thermal energy consumption to ensure the thermal conditions of local working zones in industrial premises, the characteristic dimensions of which significantly (many times) exceed these zone dimensions. The problems of energy conservation have been relevant for many decades for a number of objective reasons. However, so far there is no occasion to conclude that most of the issues arising in the production and social spheres have been solved. The well-known method of local «heat supply» of a relatively small workplace with the use of gas infrared emitters until recently has been little used due to the lack of a scientific and technical base that provides experimental design work to create systems for ensuring the thermal conditions of local workplaces based on gas infrared emitters.

Aim: analysis of the energy efficiency of gas infrared emitters as the main elements of systems for ensuring the thermal conditions of local working zones.

**Objects:** a large room heated by a gas infrared emitter.

**Methods:** experimental measurements of floor surface temperatures with chromel-alumel type thermocouples with a junction thickness of 0,08 mm and data recording using the NI 9214 temperature measurement module from National Instruments; mathematical modeling of heat transfer processes in a multilayer floor.

**Results.** The article presents the results of experimental and theoretical studies carried out to assess the effectiveness of using such systems. The experiments were carried out in a special box that reproduces the conditions for supplying heat from the emitter to a small workplace. The floor surface temperature was measured at ten characteristic points during typical averaged power emitter operation. The experimental results were used as boundary conditions at the «air – box floor surface» interface when solving heat conduction problems. Based on the results of experimental and theoretical studies, the advantages (in comparison with traditional convective heating systems of even small-sized industrial premises) of systems based on gas infrared emitters for ensuring the thermal conditions of local working zones are substantiated. The essence of these advantages lies in the fact that when using emitters, the routine thermal conditions is provided without energy consumption for heating the enclosing structures and air outside the working area (which can be ten times smaller in terms of the entire industrial premise volume).

#### Key words:

Energy saving, gas infrared emitters, heat transfer, thermocouple measurements, temperature distribution, energy efficiency.

The research was financially supported by the Russian Science Foundation (project no. 20-19-00226).

#### Information about the authors

Vyacheslav I. Maksimov, Cand. Sc., associate professor, National Research Tomsk Polytechnic University. Tatiana A. Nagornova, Cand. Sc., associate professor, National Research Tomsk Polytechnic University. Nikolay I. Kurilenko, Cand. Sc., professor, Industrial University of Tyumen. Ivan V. Voloshko, leading engineer, «Teplotranzit Karaganda».

Received: 25 August 2021.

УДК 631.4:504.5:622.7

# ОСОБЕННОСТИ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ МИКРОЭЛЕМЕНТОВ В ПОЧВАХ ФОНОВЫХ И ИМПАКТНЫХ ЗОН НА УЧАСТКАХ АЛМАЗОДОБЫЧИ НА СЕВЕРО-ЗАПАДЕ СИБИРСКОЙ ПЛАТФОРМЫ

# Легостаева Яна Борисовна<sup>1</sup>,

ylego@mail.ru

# Гололобова Анна Григорьевна<sup>2</sup>,

nuta0687@mail.ru

- <sup>1</sup> Институт геологии алмаза и благородных металлов СО РАН, Россия, 677980, г. Якутск, пр. Ленина, 39.
- <sup>2</sup> Северо-Восточный федеральный университет им. М.К. Аммосова, Россия, 677980, г. Якутск, пр. Ленина, 43.

**Актуальность** исследования обусловлена интенсивным развитием горнодобывающей промышленности на территории Западной Якутии в последний 70-летний период. В результате чего происходит загрязнение окружающей среды химическими веществами в условиях распространения многолетнемерзлых пород. В первую очередь это загрязнение почв поллютантами, которые образуются в техногенных отложениях при извлечении горных масс из недр земли при отработке коренных месторождений алмазов и остаются в почве в течение многих лет даже после ремедиации техногенно-трансформированных территорий. Настоящее исследование позволяет выявить геохимическую специфику мерзлотных почв с разной геологогеохимической обстановкой и ее трансформацию при техногенном воздействии.

**Цель:** изучение элементного состава и его вертикального распределения в профиле мерзлотных почв Северо-Западной Якутии, подверженных техногенному воздействию при проведении алмазодобычных работ.

Объекты: криоземы – мерзлотные почвы северо-таежных ландшафтов Северо-Западной Якутии.

**Объекты и методы.** Статья представляет результаты выполненных работ за период с 1994 по 2019 гг. на территории Далдынского кимберлитового поля, где разрабатываются открытым способом кимберлитовые трубки Удачная и Зарница и где находится Удачнинский горно-обогатительный комбинат АК «Алроса» (ПАО). Объектом изучения являлись мерзлотные почвы северо-таежных ландшафтов Северо-Западной Якутии. Почвы данного района отражают общие закономерности формирования почвенного покрова на территории исследования и входят в состав Восточно-Сибирской мерзлотносеверотаежной области бореального пояса почв России. В ходе полевых наблюдений был применен профильный подход, предполагающий сбор образцов из почвенных генетических горизонтов до границы сезонно-талого слоя. Определены знаковые содержания 23 химических элементов методом спектрального полуколичественного анализа.

**Результаты** геохимических исследований мерзлотных почв приведены с учетом геохимии почвообразующих пород Далдыно-Алакитского горнопромышленного района. Для выявления геохимических характеристик рассчитаны коэффициенты концентрации (Кс) и коэффициенты накопления (К<sub>0</sub>–К<sub>3</sub>) исследуемых элементов в системе породы–почвы. Построены накопительные ряды, отражающие геохимическую специфику доминирующих типов почв территории исследования. Каждый из исследованных типов почв характеризуется своеобразием микроэлементного спектра. Полиэлементные ассоциации создаются в результате геохимического влияния почвообразующего субстрата. Выявлено, что территория Далдыно-Алакитского района отличается повышенными концентрациями в почвах Cr, Ni, Co, V, Cu, Pb, Li, Sr.

#### Ключевые слова:

Криоземы, региональный фон, природная геохимическая аномалия, кимберлитовые трубки, микроэлементы, горно-обогатительный комбинат.

#### Введение

В последнее время серьезной экологической проблемой стало интенсивное развитие промышленности, представляющее собой наиболее мощный источник загрязнения биосферы вредными веществами [1, 2]. В сложной структуре биосферных миграционных циклов химических элементов особое место занимает почва [3–5]. Почвы служат основным поглотителем тяжелых металлов в наземных экосистемах [6], а загрязнение почв тяжелыми металлами является глобальной проблемой [7]. Почвы депонируют в себе разные вещества, в том числе тяжелые металлы, которые в высоких концентрациях являются токсичными для живых организмов, а также могут привести к загрязнению поверхностных и подземных водных систем [8, 9]. Характеристики загрязнения почв тяжелыми металлами и экологические риски являются основой оценки качества окружающей среды почв [10].

Добыча полезных ископаемых открытым способом является одним из мощных видов техногенеза. Его воздействие на окружающую среду ежегодно возрастает и захватывает все большие территории [11, 12]. В северо-западной части Республики Саха (Якутия), где ведутся интенсивные работы по открытой добыче алмазов, за последние десятилетия произошли значительные нарушение природных ландшафтов. Огромные площади заняты карьерами, отвалами пустых пород, отходами первичного обогащения руд – хвостохранилищами и другими источниками техногенных выбросов и аэрорассева, при которых различные вещества, оседая на поверхность почвы, трансформируют ее элементный состав.

В природных ландшафтах зависимость микроэлементного состава почв от особенностей состава подстилающих пород генетически закономерна и общеизвестна. В почвах с маломощным гомогенным почвенным профилем содержание микроэлементов напрямую зависит от состава и свойств подстилающих пород, а распределение микроэлементов в почвенном профиле, процессы аккумуляции и выноса являются следствием активации почвообразования и криотурбационных процессов для районов криолитозоны. Поэтому в северных регионах экологогеохимическое состояние природного почвенного покрова – это отражение комплекса факторов, наиболее важные из которых - сложная литологическая обстановка и близкое к поверхности залегание многолетнемерзлых пород.

Имеется довольно много российских и зарубежных исследований, посвященных изучению микроэлементного состава почв в зонах воздействия различных промышленных предприятий [13–21]. Однако в почвах мерзлотных областей содержание, распределение и в целом поведение элементов значительно различаются, но при этом являются малоизученными. Для исследуемой территории Далдыно-Алакитского горнопромышленного района Якутии с наличием гетерогенных магматических образований изучение проблемы геохимических закономерностей в природной системе «породы-почвы» представляет особый интерес. Данное исследование позволит выявить маркеры природной геохимической аномальности почв, сформированных под влиянием кимберлитового магматизма и химизма агрессивных высокоминерализованных рассолов верхне- и среднекембрийского комплекса и воздействия техногенных ландшафтов импактной зоны промышленной площадки Удачнинского горно-обогатительного комбината.

# Объекты и методы исследования

Почвенно-геохимические исследования проведены в период с 1994 по 2019 гг. на территории Далдынского кимберлитового поля, находящегося в центральной части Далдыно-Алакитского горнопромышленного района на Северо-западе Якутии. Фактографические материалы отражают систему точек наблюдений, где проходило комплексное опробование пород, почв и грунтов (рис. 1).



**Puc. 1.** Карта фактического опробования почв на территории Удачнинского горно-обогатительного комбината **Fig. 1.** Map of the factual soil sampling on the territory of the Udachninsky mining and processing division (UMPD)

В ходе полевых наблюдений был применен профильный подход, предполагающий сбор образцов со всех почвенных генетических горизонтов до границы сезонно-талого слоя. Такой подход представляется более предпочтительным при изучении поведения химических элементов в почвах криогенных ландшафтов, где вертикальные профили и распределение почвенного вещества сильно зависит от уровня проявления мерзлотных процессов в ландшафте. С целью классификации почв закладывался почвенный разрез с погоризонтным отбором проб на всю глубину оттаивания. Техногенно-трансформированные территории исследовались двумя методами: транссекты (удаление от источника воздействия на 1–5–10–20–50–100 м) и ключевые участки (закладка разреза на площадках с разной степенью зарастания). Образцы отбирались по слоям из каждых 10 см на глубину в среднем до 40–80 см.

Всего на территории исследования за весь период было отобрано 2664 почвенных образцов. Образцы почвы были высушены на воздухе при комнатной температуре и просеяны через сито диаметром 1 мм. Общее валовое содержание микроэлементов в почвах определено методом эмиссионного спектрального анализа в сертифицированной Центральной геологоаналитической лаборатории АО Якутскгеология (Аттестат соответствия №СДС «УКАРГЕО»RU 0027.16, действителен до 06.06.2021 г.) на дифракционном спектрографе ДФС-8. Определено 23 химических элемента (Li, Be, B, P, Sc, Ti, V, Cr, Mn, Co, Ni, Cu, Zn, Ga, Ge, Y, Nb, Mo, Ag, Sn, La, Yb, Pb). При анализе использовались стандартные эталоны почв СДПС-1 (Albic Podzols) и ССК-1 (Haplic Calcisols), а также пород типа «габбро», «карбонат», «гранит». Каждый анализ проводился в двух повторностях при d=15-30 %, p=0.95.

Минеральный состав в отвалах пустых пород определялся методом полуколичественного рентгенофазового анализа с использованием дифрактометра D2 PHASER фирмы Bruker (Германия), СиКα излучение, 30 кв, 10 ма на основе базы данных PDF 2.

Значения коэффициентов накопления рассчитывались относительно  $K_0$  – это отношение среднего содержания микроэлемента в конкретном почвенном разрезе к среднему содержанию этого же микроэлемента в почвообразующем субстрате:

$$\begin{split} & K_0 = C_{\text{почв}}/C_{\text{пород}}, \\ & K_1 = C_{\text{гор.BC (или C)}}/C_{\text{пород}}, \\ & K_2 = C_{(\text{гор.B или AB})}/C_{\text{гор.BC(или C)}}, \\ & K_3 = C_{\text{гор.A}_0}/C_{\text{гор.B (или AB)}}. \end{split}$$

По данным наших предыдущих исследований территория Далдынского кимберлитового поля расположена в пределах формирования в почвенном покрове природной геохимической аномалии, где концентрация многих элементов и соединений намного превышает установленные нормативы ПДК [22]. Кроме этого, исследуемая территория по своим природноклиматическим характеристикам находится вне активного сельскохозяйственного освоения. Исходя из этих двух факторов, считаем целесообразным эколого-геохимическую характеристику состояния почвенного покрова проводить на основании параметров регионального фона.

Для геохимической характеристики почв рассчитывается коэффициент концентрации элемента относительно фонового содержания этого элемента (K<sub>c</sub>) [23]:

$$K_{\rm c} = K_{\rm obm}/K_{\rm poh},$$

где  $K_{oбщ}$  – содержание элемента в исследуемой почве;  $K_{\phi o \mu}$  – фоновое содержание элемента.

Значения регионального фона рассчитаны на основе статистически достоверной выборки (n=1241), куда вошли образцы доминирующих и интразональных типов почв природных ненарушенных ландшафтов Северо-Западной Якутии. Таким образом, под термином «параметры регионального фона» мы понимаем средние геометрические значения содержания валовых форм микроэлементов в почвенном покрове по данным наших исследований и с привлечением результатов известных геохимических изысканий в регионе, сопоставимых по химико-аналитическим методам [24–27].

Полученные данные обработаны с использованием программ Microsoft Excel 2013, Statistica 6.0, OriginPro 8.5.1. Построение карт выполнено с помощью программы ArcGIS 9.0.

# Результаты и их обсуждение

Территория Далдынского кимберлитового поля приурочена к области сопряжения юго-западного склона Анабаро-Оленекской антеклизы и северо-восточного борта Тунгусской синеклизы [28]. В его строении участвуют кристаллические породы архея, карбонатные и терригенно-карбонатные отложения венда, кембрия, ордовика и силура, терригенные образования карбона. Глубина залегания кристаллического фундамента составляет 2,4 ... 2,5 км. Осадочный чехол интрудирован пластовыми телами и дайками долеритов, трубками взрыва, дайками и жилами кимберлитов. Четвертичные отложения представлены различного генезиса песками, галечниками, пылеватыми супесями, часто со значительными включениями крупнообломочного материала.

На территории Далдыно-Алакитского горнопромышленного района доминирующее положение занимают карбонатные породы раннего палеозоя, которые выступают в роли почвообразующего субстрата (рис. 2) [29]. Основной вектор современных геохимических процессов в системе порода-почва имеет карбонатную направленность с доминированием Ca-Fe-Mg компоненты.

Уровень содержаний макро- и микроэлементов осадочных пород отвечает параметрам регионального геохимического фона и отражает характер общей геохимической специализации региона. Валовые содержания макро- и микроэлементов в основных почвообразующих породах Далдыно-Алакитского района сведены в табл. 1, которая составлена по материалам Б.С. Ягнышева с соавторами [30, 31].

По данным геолого-геохимических исследований на территории Якутской алмазоносной провинции, направленных на поиски коренных месторождений алмазов, установлено, что при формировании кимберлитовых тел в роли главного концентратора практически всех макро- и микрокомпонентов выступает кимберлит-цемент - это связующая масса, составляющая до 80-85 % от всего объема породы [25, 26]. Порядка 10 % вещества приходится на минеральную составляющую кимберлитов. Это, как правило, гранаты – пиропы и альмандины; высокомагнезиальные ильменит-пикроильмениты, оливины, хромиты, магнетиты, карбонаты, сульфиды и т. д. Не более 5-7 % приходится на долю ксенолитов пород осадочного чехла, кристаллических пород фундамента и глубинных включений - обломков пород мантии преимущественно шелочно-ультраосновного состава. В целом связующая масса характеризуется преимущественным карбонат-серпентиновым составом, очень неустойчивым при выветривании и легко разлагающимся под атмосферным воздействием на поверхности современного ландшафтного среза [3].


- Рис. 2. Геологический разрез на примере фрагмента схемы размещения в пределах обобщенных гидрографических границ [29]: 1 терригенные отложения нижнего палеозоя; 2 инъективные блоки пород нижнего палеозоя; 3 отложения верхнего палеозоя; 4 интрузии долеритов (а), в том числе проводящих каналов (б); 5 туфы; 6 геологические границы; 7 обобщенные гидрографические границы в плане центральной части Далдыно-Алакитского горнопромышленного района; 8 – линии профилей (геологических разрезов) и их номера; 9 – скважины: в плане (а) и на разрезе (б); 10 – график гравитационного поля
- Fig. 2. Geological section on the example of a fragment of the distribution scheme within the generalized hydrographic boundaries [29]: 1 terrigenous deposits of the Lower Paleozoic; 2 injective blocks of rocks of the Lower Paleozoic; 3 deposits of the Upper Paleozoic; 4 intrusion of dolerites (a), including conductive channels (b); 5 tuffs; 6 geological boundaries; 7 generalized hydrographic boundaries in terms of the central part of the Daldyn-Alakit mining region; 8 lines of profiles (geological sections) and their numbers; 9 wells: in plan (a) and in the section (b); 10 graph of the gravitational field

Таблица 1. Средние содержания микроэлементов в почвообразующих породах Далдыно-Алакитского горнопромышленного района (вес. %)

|                      | Осадочн       | ные породы/Sedimen                  | tary rocks | Магматические поро | оды /Igneous rocks |
|----------------------|---------------|-------------------------------------|------------|--------------------|--------------------|
| Element multiplier   | $S_1 mk$      | O <sub>1</sub> ss–O <sub>1</sub> ol | $C_3mrk$   | $\delta D_3 - C_1$ | γβ                 |
| Element, multiplier  | n=18          | n=166                               | n=150      | n=2315             | n=15               |
| Li, 10 <sup>-3</sup> | 1,6±0,24      | 2,26±0,45                           | 6,48±0,97  | 1,36±0,18          | н/о                |
| Be, 10 <sup>-3</sup> | -             | 0,05±0,01                           | -          | 0,14±0,02          | -                  |
| B, 10 <sup>-3</sup>  | 2,8±0,42      | 1,47±0,22                           | 1,7±0,26   | 10,02±1,53         | 2,27±0,36          |
| P, 10 <sup>-2</sup>  | 1,9±0,29      | 0,8±0,16                            | 0,73±0,11  | 9,07±1,81          | 17,1±3,42          |
| Sc, 10 <sup>-3</sup> | -             | 0,05±0,01                           | 0,34±0,05  | н/о                | -                  |
| $Ti, 10^{-1}$        | 2,56±0,38     | 1,33±0,20                           | 5,6±0,84   | 803,3±160,7        | 9,6±1,44           |
| V, 10 <sup>-3</sup>  | 2,14±0,32     | 2,58±0,39                           | 3,02±0,45  | 4,5±0,68           | 13,0±1,95          |
| Cr, 10 <sup>-3</sup> | 2,4±0,36      | 3,39±0,51                           | 4,58±0,67  | 41,6±6,24          | 10,0±1,25          |
| Mn, 10 <sup>-3</sup> | 9,0±1,8       | 7,05±1,06                           | 9,86±1,48  | 101,4±15,21        | 19,6±2,94          |
| Co, 10 <sup>-3</sup> | 0,1±0,02      | 0,33±0,05                           | 0,35±0,07  | 9,16±1,37          | 6,4±0,96           |
| Ni, 10 <sup>-3</sup> | 0,51±0,08     | 1,04±0,21                           | 0,99±0,2   | 66,1±0,92          | 26,6±3,99          |
| Cu, 10 <sup>-3</sup> | 3,4±0,51      | 1,64±0,25                           | 1,19±0,18  | 5,23±0,78          | 48,6±7,29          |
| Zn, 10 <sup>-3</sup> | 3,28±0,66     | 1,31±0,2                            | 1,91±0,29  | 11,94±3,71         | 18,6±2,98          |
| Ga, 10 <sup>-3</sup> | 0,11±0,02     | 0,28±0,04                           | 0,22±0,03  | 0,17±0,02          | 2,46±0,37          |
| Ge, 10 <sup>-2</sup> | н/о           | -                                   | 0,1±0,02   | 0,69±0,11          | 2,5±047            |
| Y, 10 <sup>-3</sup>  | 0,72±0,14     | 0,16±0,03                           | 0,65±0,13  | 1,89±0,38          | 2,13±0,43          |
| Nb, 10 <sup>-3</sup> | 0,61±0,09     | 0,54±0,11                           | н/о        | 4,99±1,3           | 2,1±0,42           |
| Mo, 10 <sup>-4</sup> | 2,6±0,39      | 0,7±0,14                            | 3,04±0,61  | 1,17±0,23          | 1,5±0,3            |
| Ag, 10 <sup>-5</sup> | н/о           | 0,32±0,06                           | 1,0±0,32   | 1,04±0,21          | 5,16±1,04          |
| Sn, 10 <sup>-4</sup> | н/о           | 0,47±0,09                           | 0,3±0,06   | 1,34±0,27          | 4,4±0,88           |
| La, $10^{-3}$        | 0,05±0,01     | 0,05±0,01                           | -          | 0,53±0,11          | н/о                |
| Yb, 10 <sup>-3</sup> | н/о           | 0,77±0,18                           | -          | 0,19±0,04          | 1,8±0,41           |
| Pb, 10 <sup>-3</sup> | $0,64\pm0,08$ | 1,18±0,27                           | 0,73±0,17  | 0,66±0,15          | 0,94±0,22          |
| Bi, 10 <sup>-3</sup> | -             | -                                   | н/о        | 0,009±0,001        | -                  |
| W, 10 <sup>-3</sup>  | -             | 0,34±0,05                           | 0,1±0,02   | 0,02±0,001         | -                  |
| T1, 10 <sup>-4</sup> | -             | -                                   | н/о        | 0,18±0,03          | -                  |

Table 1. Average content of trace elements in soil-forming rocks of the Daldyn-Alakit mining region (wt. %)

Примечание: п –количество образцов в выборке; «–» – не определено, «н/о» – не обнаружено;  $S_1mk$  – ранний Силур, Меикская свита;  $O_1ss$ – $O_1ol$  – ранний Ордовик, Сохсолоохская и Олдондинская свиты;  $C_3mrk$  – поздний Кембрий, Моркокинская свита;  $\delta D_3$ – $C_1$ – кимберлиты;  $\gamma\beta$ – дайки долеритов.

Note: n is the number of samples in the selection;  $(-\infty)$  not defined,  $(-\infty)$  not detected;  $S_1mk$  – Early Silurian rocks, Meiksk suite;  $O_1ss - O_1ol - Early$  Ordovician rocks, Sohsolohsk and Oldondinsk suites;  $C_3mrk$  – Late Cambrian rocks, Morkokinsk suite;  $\delta D_3 - C_1 - K_1$  himberlites;  $\gamma \beta$  – dolerite dikes.

Анализ содержания микроэлементов в почвообразующих породах позволяет считать, что наиболее высокие концентрации отмечены в составе кимберлитов. Достаточно высокими содержаниями характеризуются био- и литофильные элементы – В, Р, Ті, Мп, повышенные содержания отмечены для сидерофильных элементов – Сг, Ni и Co.

По сравнению с кимберлитами, более высокими концентрациями V, Cu, Zn и Pb характеризуются долериты. А по сравнению с осадочными породами, долериты обладают повышенными содержаниями Cr, Ni, Co, V и Cu.

Существенное влияние на параметры местного геохимического фона оказывают регионально распространенные подземные водоносные горизонты, в составе которых присутствуют высокоминерализованные рассолы, насыщенные Li и Sr [32].

Общеизвестно, что в природной обстановке почвы приобретают характерное для них содержание и профильное распределение микроэлементов в результате преобразования исходных пород почвообразовательным процессом. Поэтому вполне логично предположить, что в современных ненарушенных почвах ДалдыноАлакитского горнопромышленного района будут отмечены ассоциации элементов, отражающие геохимическую специфику осадочных пород ордовика и кембрия – Li, Ag, P, Y и Cu, кимберлитов – Cr, Ni, Co, долеритов – V, Cu, Pb и элементов-индикаторов влияния водоносных высокоминерализованных рассолов – Li, Sr [3].

Пространственная дифференциация микроэлементного состава почв

Почвы территории исследований отражают общие закономерности формирования почвенного покрова Северо-Западной Якутии и входят в состав Восточно-Сибирской мерзлотно-северотаежной области бореального (умеренно холодного) пояса почв России и относятся к отделу криотурбированных почв. На типовом уровне они разделяются по сочетанию подстилочно-торфяного и криотурбированного горизонтов. На уровне подтипов – по особенностям строения органогенного горизонта, признакам оглеения, палевои криометаморфизма [33].

По международной системе почвенной классификации [34] в структуре почвенного покрова большую долю занимают криосоли (*Cryosols*) (рис. 3).



19,1%



Fig. 3. Soil cover structure of the Daldyn-Alakit district according to the World Reference Base for Soil Resources

В табл. 2 приведены параметры пространственного распределения микроэлементов в почвах Далдыно-Алакитского горнопромышленного района.

В микроэлементном составе почв отмечаются черты, отражающие геолого-геохимическую специфику подстилающих пород. В почвах относительно фоновых параметров отмечены высокие значения Li, Be, Ti, Cr, Co, Ni, Y и Nb, при этом коэффициенты концентрации практически всех анализируемых элементов варьируют в широком диапазоне.

Литофильные элементы, маркирующие влияние водоносных высокоминерализованных рассолов и пород раннего палеозоя Li, Be, Ti и Y, присутствуют в почвенном покрове района в повышенных концентрациях с невысокими  $K_c$ =1,2–2,03.

Элементы, типоморфные кимберлитам – Сг, Со и Ni – выявлены в почвах исследуемого района с более высокими  $K_c$ =2,5–10,9. Обособленно в почвах района выделяется Nb, относящийся к литофилам и характеризующий влияние даек долеритов с  $K_c$ =7,9.

В почвах исследуемой территории деятельный органоминеральный слой находится на глубине до 30– 40 см. Ниже, как правило, располагаются горизонты СR или C, практически характеризующие микроэлементный состав почвообразующих пород. Поэтому для микроэлементной характеристики доминирующих типов почв мы решили ограничиться почвенным слоем мощностью 0–30 см, включающим верхние гумусовые горизонты (A, AO) и минеральные или переходные органоминеральные горизонты (AB и CR). Подобный принцип выбора части почвенного профиля, в наибольшей степени характеризующего специфику микроэлементного состава доминирующих типов почв, носит условный характер. Например, мощность почвенного профиля карбо-петрозема гумусового зачастую намного меньше даже с горизонтом  $CR_{Ca}[3]$ .

| Таблица 2. | Обобщенная микроэлементная характери-    |
|------------|--|
|            | стика почв территории Далдыно- Алакит-   |
|            | ского горнопромышленного района (вес. %) |

| Table 2. | Generalized    | trace  | element    | characteristics  | of |
|----------|----------------|--------|------------|------------------|----|
|          | soils of the D | aldyn- | Alakit mir | ning region (wt. | %) |

|                      |              | Содерж  | ે                |                    |
|----------------------|--------------|---|------------------|--------------------|
|                      | нс           | микроэлемент  | °                |                    |
|                      | гou          | ненарушенных  | ландшафтов       | (K) (K)            |
| int                  | bliž<br>kg   | раиона (0-  | -60 см)          | иен<br>ции<br>faci |
| sme                  | bac<br>12/   | Content of trace e                                    | elements in the  | иц<br>раг          |
| Ele                  | на.<br>n= n= | soils of undisturb                                    | (0 60 am)        | фф<br>аtic         |
| L.) , , ,            | ио           | of the region   | (0-60 cm)        | alle<br>ntr        |
|                      | Pei<br>Reg   | cn_reow/mean  |                  | Koi<br>nce         |
|                      |              | n-175   | Min–Max          | Ĝ                  |
|                      |              | m=175   |                  | _                  |
| Элемент              | ты, содерж   | ания которых прев                                     | ышают регионал   | іьный фон          |
| Flor                 | B >50        | % исследованных (                                     | bopasitos nous   | round              |
| Liei                 | in >         | 50 % of the studied                                   | soil samples     | ground             |
| Ni 10 <sup>-3</sup>  | 3.85         | $\frac{120}{120}$ $\frac{120}{100}$ $\frac{120}{100}$ |                  | 03 296             |
| Nh $10^{-3}$         | 0.92         | 7 31+0 37   | 0.5 11.0         | 0,52),0            |
| $Cr \ 10^{-3}$       | 8.06         | 20.8+1.0  | 2.0 57.0         | 0.2 7.1            |
| $C_0 10^{-3}$        | 4 2          | 12 9+0 6  | 0.7 15.5         | 0,2,1              |
| Y. 10 <sup>-3</sup>  | 3.63         | 6 71±0 34   | 15 130           | 04 36              |
| Be. 10 <sup>-3</sup> | 0.27         | 0.55±0.03   | 0.250.7          | 0.92.6             |
| Li. 10 <sup>-3</sup> | 8.02         | 9.59±0.29   | 3.015.0          | 0.41.9             |
| Ti, 10 <sup>-1</sup> | 3,84         | 4,70±0,24   | 2,07,0           | 0,51,8             |
| ,                    | Эле          | ементы, единично в                                    | ыявленные        |                    |
|                      | в выс        | оких надфоновых к                                     | онцентрациях     |                    |
| Element              | s singly de  | tected in high above                                  | -background cond | centrations        |
| Mn, 10 <sup>-3</sup> | 10,36        | 6,59±0,33   | 3,0120,0         | 0,311,6            |
| Sc, 10 <sup>-3</sup> | 1,97         | 1,70±0,09   | 1,05,0           | 0,52,5             |
| Ag, 10 <sup>-5</sup> | 1,0          | $0,90 \pm 0,05$                                       | 0,052,0          | 0,052,0            |
| Yb, 10 <sup>-3</sup> | 2,8          | 2,70±0,14   | 2,55,0           | 0,91,8             |
| La, 10 <sup>-3</sup> | 0,17         | 0,18±0,01   | 0,150,3          | 0,91,8             |
| Э                    | лементы,     | находящиеся на уро                                    | овне или ниже ф  | она                |
|                      | Element      | s that are at or below                                | the background   | -                  |
| Pb, $10^{-3}$        | 1,0          | 0,77±0,04   | 0,31,5           | 0,31,5             |
| $Zn, 10^{-3}$        | 5,42         | 4,18±0,21   | 2,07,0           | 0,41,3             |
| Ga, $10^{-3}$        | 1,5          | 1,41±0,07   | 0,72,0           | 0,51,3             |
| Ge, 10 <sup>-2</sup> | 0,8          | 0,60±0,03   | 0,51,0           | 0,61,3             |
| V, $10^{-3}$         | 8,51         | 7,76±0,39   | 5,010,0          | 0,61,2             |
| Sn, 10 <sup>-4</sup> | 1,7          | 1,60±0,08   | 1,02,0           | 0,61,2             |
| P, 10 <sup>-2</sup>  | 4,4          | 3,46±0,17   | 3,05,0           | 0,71,1             |
| B, $10^{-3}$         | 3,22         | 2,53±0,13   | 1,53,0           | 0,50,9             |
| Cu, 10 <sup>-3</sup> | 3,2          | 2,06±0,10   | 1,53,0           | 0,50,9             |
| Mo. 10 <sup>-4</sup> | 1.6          | $1.10\pm0.06$   | 0.71.5           | 0.40.9             |

Примечание:  $K_c$  – коэффициент концентрации относительно регионального фона.

Note:  $K_c$  – concentration factor over the regional background.

В целом почвенный покров Далдыно-Алакитского горнопромышленного района, сформированный в результате действия биогенно-аккумулятивных, иллювиально-аккумулятивных и криотурбационных процессов, характеризуется концентрациями микроэлементов, находящимися на уровне или несколько ниже значений регионального фона. Внутрипрофильная дифференциация микроэлементного состава в почвах природных ландшафтов вне зоны воздействия объектов алмазодобычи

Отличительной чертой почвенных профилей природных ландшафтов мерзлотно-северотаежной области являются отчетливо выраженные явления криотурбации, которые приводят к нарушению цельности генетических горизонтов и перемешиванию почвенного материала по всему профилю.

Живые организмы аккумулируют необходимые элементы, которые сохраняются в их остатках, и поступают в почву [35]. Далее, под влиянием криотурбационных процессов, органическое вещество насыщает весь почвенный профиль и аккумулируется в надмерзлотном горизонте. Так, совокупность геохимических и биохимических процессов с учетом специфики природно-климатических факторов почв формирует профиль мерзлотных почв, что, на наш взгляд, представляет двухуровневую систему, где горизонты CR и -C (иногда С<sub>о</sub>) в нижней части почвенного профиля являются продуктом геохимического выветривания почвообразующих пород, а горизонты А и Асг в верхней части почвенного профиля аккумулируют биофильные элементы. При этом часть веществ выносится из сферы биологического круговорота под действием атмосферных агентов и, вовлекаясь в миграционные потоки, оказывает влияние на состав подпочвенной минеральной толщи [36]. Таким образом, микроэлементная структура почвенного профиля меняется, образуя качественно новые накопительные ряды.

В результате вариаций геохимической и петрохимической специфики почвообразующих пород меняются микроэлементные ассоциации накопительных рядов доминирующих типов почв. Коэффициенты накопления ( $K_1$ – $K_3$ ) варьируют в очень широких пределах (табл. 3).

При пересчете коэффициентов накопления от подстилающих пород к почвам в почвенном профиле глееземов перегнойных наблюдается явное накопление в минеральной части Li, V, Mn, Ni, Zn, Y и Pb, что носит закономерный, увеличивающийся с глубиной характер.

Горизонт A<sub>1</sub> (гумусово-аккумулятивный) обладает более широким спектром накопления микроэлементов с большими вариациями коэффициентов накопления относительно горизонта CRg, что, конечно, связано с активным участием органики и с выносом из нижележащего горизонта таких элементов, как V, Ti, Ni, Cr, Cu, Nb и Y.

Мп, Ті и Со имеют двойное происхождение: биогенное накопление с постепенным снижением вниз по профилю и выносом из нижележащих горизонтов и аккумуляцией органическим веществом. Для глееземов перегнойных характерна аккумуляция Мп и Ті. Поведение остальных микроэлементов зависит от геохимических свойств почвообразующего субстрата. Необходимо отметить, что криоземы типичные отличаются самым маломощным почвенным профилем, поэтому отмечается относительно равномерное распределение микроэлементов, а незначительная аккумуляция в верхней части профиля связана с сорбцией их органическим веществом.

Таблица 3. Характер распределения микроэлементов по почвенному профилю доминирующих типов почв Далдыно-Алакитского горнопромышленного района

 Table 3.
 Distribution pattern of the trace elements along the soil profile of the dominant soil types in the Daldyn-Alakit mining region

| £ u   |       | Элемент/Element |                         |                          |                      |                        |                        |                    |                       |                         |                    |            |            |       |
|---|-------|-----------------|-------------------------|--------------------------|----------------------|------------------------|------------------------|--------------------|-----------------------|-------------------------|--------------------|------------|------------|-------|
| Коэффициен<br>накопления<br>Accumulatio<br>factor | Li    | В               | Ti                      | V                        | Cr                   | Mn                     | Co                     | Ni                 | Cu                    | Zn                      | Y                  | Nb         | Sn         | Pb    |
|   |       |                 | Гле                     | езем пер                 | егнойный             | і на пород             | цах Меико              | ской свит          | гы ранне              | го силур                | a                  |            |            |       |
|   |       | Um              | bric Gleys              | sol Turbic               | formed o             | n the rock             | s of the M             | leiksk sui         | te of the             | early Silu              | rian perio         | od         |            |       |
| $K_3$   | 0,6   | 0,8             | 1,7*                    | 0,3                      | 0,3                  | 2,5*                   | 14,0*                  | 0,3                | 0,8                   | 0,5                     | 0,7                | 0,3        | 0,3        | 0,6   |
| $K_2$   | 0,9   | 0,7             | 16,6*                   | 1,4*                     | 4,9*                 | 0,6                    | 2,2*                   | 6,0*               | 1,7*                  | 0,8                     | 2,3*               | 2,8*       | 0,5        | 0,7   |
| $K_1$   | 3,6** | 0,7             | 0,1                     | 3,3**                    | 0,6                  | 1,2**                  | 0,2                    | 1,1**              | 0,3                   | 2,2**                   | 4,4**              | 0,8        | -          | 1,1** |
|   |       |                 | КĮ                      | риозем на                | адмерзлот            | по-глеева              | атый на к              | имберлит           | гах тр. «I            | Оность»                 |                    |            |            |       |
|   |       |                 | Stag                    | nic Cryso                | ls Reduct            | aquic forn             | ned on kin             | berlites o         | of the «Y             | unost» pi               | pe                 |            |            |       |
| $K_3$   | 0,8   | 6,2*            | 0,7                     | 3,5*                     | 0,3                  | 0,6                    | 0,5                    | 0,2                | 0,5                   | 0,6                     | 1,7*               | -          | 0,6        | 0,2   |
| $K_2$   | 1.3   | 0,1             | 1,0                     | 0,5                      | 0,8                  | 0,1                    | 0,9                    | 0,5                | 0,9                   | 1,0                     | 1,7                | -          | 1,0        | 1,2   |
| $K_1$   | 0,9   | 0,2             | 0,01                    | 1,4**                    | 1,2**                | 1,2**                  | 1,3**                  | 1,7**              | 1,0                   | 0,5                     | 0,7                | -          | 0,9        | 0,7   |
|   |       |                 |                         | Tradala I                | Криозем              | типичны                | й над дай              | кой доле           | ритов                 | 1:1                     |                    |            |            |       |
| 10  | 1.2*  | 1 1 4           | 1.4*                    |                          | haptic Cry           | /0s01 Oxya             | aquic form             | led above          | adlerite              |                         | 07                 |            | 0.0        | 0.0   |
| $K_2$   | 1,3*  | 1,1*            | 1,4*                    | 1,2*                     | 0,8                  | 1,3*                   | 0,9                    | 1,0                | 0,/                   | 1,2*                    | 0,7                | -          | 0,8        | 0,8   |
| $K_1$   | -     | 0,6             | 0,6                     | 0,/                      | 0,9                  | 0,5                    | 0,/                    | 0,4                | 0,1                   | 0,3                     | 2,3**              | -          | 0,3        | 0,6   |
|   | т     | 1. 0            | Криозе                  | м тиксот]                | ропный н             | а породах              | Coxcoлo                | хской св           | иты ранн              | него ордо               | овика              |            | 1          |       |
| 10  | 1 ur  | bic Cryos       | sol Thixot              | ropic form               | ned on car           | bonate ro              | cks of the             | Sonsolon           | sk suite o            | of the earl             | y Ordovi           | cian perio | )a<br>1 7* | 0.6   |
| K <sub>3</sub>                                    | 1,4*  | 0,/             | 2,8                     | 1,9*                     | 0,7                  | 0,/                    | 0,3                    | 1,3*               | 0,3                   | 0,6                     | 1,5*               | 0,4        | 1,/*       | 0,6   |
| K <sub>2</sub>                                    | 0,9   | 1,9**           | 0,5                     | 2,8**                    | 2,2**                | 1,9**                  | /,9**                  | 4,/**              | 6,1**                 | 1,/**                   | 1,/**              | 4,5**      | 0,5        | 1,0   |
| $K_1$   | 3,3** | 1,9**           | 0,4                     | 0,1                      | 0,6                  | 0,3                    | 0,1                    | 0,04               | 0,02                  | 0,3                     | 0,9                | 0,2        | 0,5        | 0,5   |
|   | R     | endzic Le       | Kapoo-пет<br>eptosol Sk | грозем гу<br>eletic forr | мусовыи<br>ned on ca | на пород<br>rbonate ro | ах Морко<br>cks of the | кинскои<br>Morkoki | свиты по<br>nsk suite | озднего к<br>of the lat | емория<br>e Cambri | an period  |            |       |
| $K_3$   | 0,4   | 0,6             | 0,6                     | 0,3                      | 1,0                  | 1,1*                   | 0,4                    | 0,6                | 0,9                   | 2,1*                    | 0,6                | 2,0*       | 0,5        | 1,0   |
| $K_2$   | 0,4   | 0,9             | 1,5**                   | 3,6**                    | 1,0                  | 0,9                    | 1,5**                  | 1,5**              | 1,0                   | 0,5                     | 2,3**              | 0,3        | 0,5        | 0,2   |
| $K_1$   | 2,3** | 2,1**           | 0,9                     | 0,5                      | 0,6                  | 1,0                    | 0,9                    | 0,9                | 1,7**                 | 4,2**                   | 4,9**              | -          | 6,6**      | 1,5** |

Примечание: 2,3\* – выделены элементы, аккумулирующиеся органикой; 4,2\*\* – вынос элемента из нижележащего горизонта.

Note:  $2,3^*$  – marked the elements accumulated by organic matter;  $4,2^{**}$  – marked the elements transferred from the underlying horizon.

Для каждого типа криосолей характерно накопление определенного спектра микроэлементов, которые в природных условиях создаются главным образом в результате геохимического влияния почвообразующего субстрата [3]. При этом ассоциации микроэлементов и их концентрации в каждом конкретном случае имеют ряд отличительных свойств. Например, такие элементы, как Cr, Ni, Cu, Mn, обнаруживают закономерное возрастание содержаний с глубиной по всему почвенному профилю над кимберлитами. Близкое поведение этих элементов, но уже с участием V, отмечается в почвах над дайками долеритов. Резко отличная схема дифференциации микроэлементов в почвенном профиле определена в криоземах над кембрийскими карбонатными породами, где обнаруживается выраженное накопление в минеральном горизонте Cr, Sc, V и Ni, c практически индивидуальным поведением каждого из этих элементов в верхней органогенной части или в составе переходных к почвообразующим породам горизонтов. В частности, ванадий, скандий и хром имеют минимальные количества именно на границе перехода почв и материнской породы (вынос), а Mn закономерно проявляет свои биогенные свойства накопления в составе органогенного горизонта (АО). Все эти выявленные закономерности распределения содержаний микроэлементов отражают особенности почвообразовательных процессов на территории исследования и позволяют оценить степень их участия в каждом конкретном генетическом типе почв.

## Техногенные образования

и техногенно-преобразованные почвы импактных зон

На территории промышленной площадки Удачнинского горно-обогатительного комбината АК АЛРОСА (ПАО) открытым способом разрабатывается кимберлитовая трубка Зарница и комбинированным способом – трубка Удачная. Техногенные образования представлены отвалами вокруг карьеров разрабатываемых месторождений алмазов и сохранными «хвостами» обогащения кимберлитов. Отвалы сложены щебнисто-глыбистым материалом вмещающих и перекрывающих кимберлиты отложений с примесью глинисто-песчаного наполнителя, «хвосты» – супесчано-песчаной фракцией кимберлитов.

Площадь распространения и мощность техногенных отложений напрямую зависят от размеров и глубины разрабатываемых карьеров [37]. Например, техногенные массивы, налегающие на разнообразные по генезису и возрасту четвертичные образования на правом склоне долины р. Далдын, занимают:

- отвал Северный площадь 238 га, высота 125 м;
- отвал Западный площадь 272 га, высота 125 м;

отвал Южный – площадь 70 га, высота 85 м.

Их абсолютные отметки составляют 420, 455 и 425 м соответственно. По результатам рентгенофазового анализа карбонатных пород, в основном слагающих отвалы пустых пород карьеров трубки Удачная и Зарница, подавляющее большинство представлено карбонатными породами – известняками и доломитами с малыми примесями кальцита, кварца, полевых шпатов и слюды (рис. 4).

О возможном воздействии гидротермальных процессов свидетельствует присутствие в небольших количествах (от 2,27 до 9,06 %) клинохлора. Обломки магматических пород в отвалах встречаются достаточно редко и представлены долеритами и кимберлитовыми брекчиями. В кимберлитовых брекчиях отмечен кальцит, доломит, магнетит, пирит, магнезит и минералы группы серпентина, слюд и хлорита.

В микроэлементном составе грунтов промышленной площадки отражена геохимическая специфика пород, слагающих наземные техногенные массивы. Например, мергели – Мп; глинистые карбонатные породы и известняки - Zn; песчаники - P, Ag; кимберлитовые породы - Cr, Ni, Co, Ti, Sr, Nb и Y; долериты – Мп, V, Cu, Sc, Yb и Sn (табл. 5).



Рис. 4. Минеральный состав техногенных образований отвалов пустых пород на территории промышленной площадки УГОКа АК АЛРОСА (ПАО)

Fig. 4. Mineral composition of technogenic formations of waste rock dumps on the territory of the industrial site of UMPD PJSC ALROSA

Таблица 5. Средние содержания валовых форм микроэлементов в грунтах импактной зоны промышленной площадки Удачнинского ГОКа

| 1 4010 01                                 | Udachny MPI  | D  | interocientenis u  | i inc sous of  | ine impuer ce                              | ne of the thats   | inten suc oj inc   |
|---|--|--|--|--|--|---|--|
| ٩   | Средние  | Средние содер  | жания микроэлементов в г   | оунтах (вес. %)  | Average conter                             | nts of trace element  | ts in soils (wt. %)  |
| )лемент, множителл<br>Element, multiplier | содержания<br>в почвах<br>Зап. Якутии<br>Average<br>contents in soils<br>of Western<br>Yakutia         | Селитебной<br>территории,<br>г. Удачный<br>Udachny<br>residential area | Площадки<br>гидрологических<br>скважин на полигоне<br>«Октябрьский»<br>Hydrological well sites at<br>the Oktyabrsky landfill | Хвосто-<br>хранилища<br>1 очереди<br>Tailings<br>dumps<br>of the 1 stage | Дорожных<br>насыпей<br>Road<br>embankments | Южного борта<br>карьера<br>тр. Удачная<br>Southern side of<br>the Udachny<br>pipe | Отвалов пустых<br>пород<br>тр. Удачная<br>Waste rock<br>heaps of the<br>Udachny pipe |
| r.)                                       | n=1241   | n=116  | n=91   | n=19   | n=18                                       | n=20  | n=10   |
| Li, 10 <sup>-3</sup>                      | 8,0±0,4  | 9,8±0,5  | <b>15,7</b> ±0,8   | <b>14,9</b> ±0,7   | 18,3±0,9                                   | 14,9±0,7  | 15,0±0,8   |
| Be, 10 <sup>-3</sup>                      | 0,27±0,01  |  |  | н/о  |  |   | 0,500±0,025  |
| B, 10 <sup>-3</sup>                       | 3,22±0,16  | 2,48±0,12  | 7,53±0,38  | <b>4,86</b> ±0,24  | 5,60±0,28                                  | 4,51±0,23   | 15,4±0,8   |
| P, 10 <sup>-2</sup>                       | 4,40±0,22  | 3,47±0,17  | 4,51±0,23  | 3,62±0,18  | 4,06±0,20                                  | 4,55±0,23   | 10,5±0,5   |
| Sc, 10 <sup>-3</sup>                      | 1,97±0,09  | $1,25 \pm 0,06$  | 1,30±0,07  | $0,40\pm0,02$  | н/о  | 0,420±0,021   | 7,38±0,37  |
| Ti, 10 <sup>-1</sup>                      | 3,84±0,19  | 3,17±0,16  | 7,13±0,36  | <b>4,40</b> ±0,22  | 3,17±0,16                                  | 6,26±0,31   | 10,1±0,5   |
| V, 10 <sup>-3</sup>                       | 8,51±0,43  | 11,8±0,6   | 6,8±0,34   | <b>15,1</b> ±0,8   | 8,3±0,4                                    | 19,2±0,9  | 15,6±0,8   |
| Cr, 10 <sup>-3</sup>                      | 8,06±0,40  | 5,80±0,29  | 8,0±0,4  | 8,0±0,4  | 5,33±0,27                                  | 15,0±0,8  | 20,9±1,0   |
| Mn, 10 <sup>-3</sup>                      | 10,4±0,5   | <b>84,4</b> ±4,2   | 218±11   | 110±6  | 98±5                                       | 195±10  | 152±8  |
| Co, 10 <sup>-3</sup>                      | 4,20±0,21  | 11,6±0,6   | 22,3±1,1   | н/о  | 11,3±0,6                                   | н/о   | 20,0±0,1   |
| Ni, 10 <sup>-3</sup>                      | 3,85±0,19  | 2,51±0,13  | 2,30±0,12  | <b>11,9</b> ±0,6   | 2,23±0,13                                  | 5,56±0,28   | 7,31±0,37  |
| Cu, 10 <sup>-3</sup>                      | 3,20±0,16  | 2,96±0,15  | 2,76±0,14  | <b>4,16</b> ±0,21  | 2,86±0,09                                  | 4,73±0,24   | 5,78±0,29  |
| Zn, $10^{-3}$                             | 5,42±0,27  | 4,2±0,21   | 11,16±0,56   | <b>8,7</b> ±0,4  | 5,40±0,27                                  | 8,06±0,40   | 7,10±0,36  |
| Ga, 10 <sup>-3</sup>                      | 1,50±0,08  | 1,32±0,07  | 2,46±0,12  | <b>2,23</b> ±0,11  | 1,26±0,06                                  | 2,26±0,11   | 2,01±0,10  |
| Ge, 10 <sup>-2</sup>                      | 0,80±0,04  | 0,4±0,02   | 1,00±0,05  | <b>1,00</b> ±0,05  | 1,2±0,06                                   | 0,8±0,04  | 2,10±0,11  |
| Y, 10 <sup>-3</sup>                       | 3,63±0,18  | 1,65±0,08  | 1,21±0,06  | 2,96±0,15  |  | 2,43±0,12   | 7,21±0,36  |
| Nb, 10 <sup>-3</sup>                      | 0,92±0,05  | 1,30±0,07  | 2,00±0,10  | <b>2,1</b> ±0,11   | H/O  | 5,3±0,27  | 11,3±0,6   |
| Mo, 10 <sup>-4</sup>                      | 1,60±0,08  | 0,40±0,02  | 0,70±0,04  | 1,2±0,06   | 0,80±0,05                                  | 1,4±0,07  | 2,2±0,11   |
| Ag, 10 <sup>-5</sup>                      | 1,00±0,05  | 1,00±0,05  | 1,00±0,05  | 1,00±0,05  | 1,00±0,05                                  | 1,00±0,05   | 1,00±0,05  |
| Sn, 10 <sup>-4</sup>                      | 1,70±0,09  | 1,70±0,09  | 2,00±0,10  | <b>2,8</b> ±0,14   | 1,80±0,09                                  | 3,0±0,15  | 3,00±0,15  |
| La, 10 <sup>-3</sup>                      | 0,170±0,009  |  |  | н/о  |  |   | 0,030±0,001  |
| Pb, 10 <sup>-3</sup>                      | 1,00±0,05  | <b>5,17</b> ±0,26  | 1,15±0,06  | 1,23±0,06  | 1,93±0,10                                  | 1,55±0,08   | 1,5±0,08   |
| Bi, 10 <sup>-3</sup>                      | 1  | 0,10±0,005   | 1,30±0,07  | 0,6±0,03   | 0,500±0,025                                | 0,300±0,015   | 1,00±0,05  |
| Tl, 10 <sup>-4</sup>                      | H/O  |  | н/о  |  | · · ·                                      | 1,8±0,09  | н/о  |
| Примечани                                 | Тримечание: n — количество образиов в выборке; «н/о» — не обнаружено; полужирным обозначено превышение |  |  |  |  |   |  |

Average contents of gross forms of microelements in the soils of the impact zone of the industrial site of the Table 5

средних содержаний (регионального фона) в 1,5 и более раз.

Note: n is the number of samples in the selection; (H/o) – not detected; bold indicates the excess of average contents (regional background) by 1,5 and more times.

Грунты импактных зон на разных объектах промышленной площадки отличаются высокими содержаниями Mn, Co, Li и Ti. Во всех образцах зафиксировано невысокое содержание Bi. А в грунтах самого карьера трубки Удачная выявлены значительные содержания таллия.

На каждой площадке грунты характеризуются специфическим микроэлементным спектром. Для грунтов селитебных территорий свойственно накопление Pb-V-Sc. Площадки гидрологических скважин и дорожные насыпи отличаются преобладанием Li-B-Zn.

Наиболее высокие концентрации микроэлементов, среди которых доминируют Mn, Ni, Sc, Nb, Co, Li, V, B, Ti, отмечены в грунтах хвостохранилищ и в отвалах пустых пород.

## Заключение

Содержание и характер распределения микроэлементов в почвах фоновых зон на участках алмазодобычи в северо-западной части Сибирской платформы отражают специфику формирования почвообразующего субстрата.

Внутрипрофильное распределение микро- и макроэлементов обуславливается биогенной аккумуляцией и перемешиванием почвенного материала в результате криогенеза. Это приводит к перераспределению микроэлементов внутри почвенных профилей маломощных гомогенных почв северо-таежных

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Белошейкина А.В., Таловская А.В., Язиков Е.Г. Экологогеохимическая оценка состояния почвенного покрова территории Сорского горного-обогатительного комбината (Республика Хакасия) // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2020. – Т. 331. – № 1. – С. 44–53.
- Басова И.А., Иоина М.А., Глухова Е.Н. Геоэкологическое состояние почвенного покрова в горнопромышленных регионах // Известия Тульского государственного университета. – 2010. – № 1. – С. 16–20.
- Легостаева Я.Б. Пространственная и внутрипрофильная дифференциация мерзлотных почв северо-западной Якутии: дис.... канд. биол. наук. – Улан-Удэ, 2005. – 143 с.
- Nyenda T., Gwenzi W., Jacobs S.M. Changes in physicochemical properties on a chronosequence of gold mine tailings // Geoderma. – 2021. – V. 395, article 115037. URL: https://doi.org/ 10.1016/j.geoderma.2021.115037 (дата обращения 15.08.2021).
- Ушакова Е.С., Караваева Т.И., Белкин П.А. Экологическое состояние почв промышленных территорий (на примере г. Березники, пермский край): сравнение отечественных и зарубежных методов оценки // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2020. – Т. 331. – № 10. – С. 58–70.
- Heavy metal contamination of urban soil in an old industrial city (Shenyang) in Northeast China / X.Y. Li, L.J. Liu, Y.G. Wang, G.P. Luo, X. Chen, X.L. Yang, M.H.P. Hall, R. Guo, H. Wang, J. Cui, X. He // Geoderma. – 2013. – V.192. – P. 50–58.
- Liu X.M., Wu J.J., Xu J.M. Characterizing the risk assessment of heavy metals and sampling uncertainty analysis in paddy field by geostatistics and GIS // Environmental pollution. – 2006. – V. 141. – P. 257–264.
- Zhang Ch.Sh. Using multivariate analyses and GIS to identify pollutants and their spatial patterns in urban soils in Galway, Ireland // Environmental Pollution. – 2006. – V. 142. – P. 501–511.
- Metal mobility at an old, heavily loaded sludge application site / B.K. Richards, T.S. Steenhuis, J.H. Peverly, M.B. McBride // Environmental Pollution. – 1998. – V. 99 (3). – P. 365–377.

ландшафтов на биологическом, сорбционном, карбонатном и надмерзлотном геохимических барьерах.

В криоземах и глееземах отмечается значительная вариабельность содержания валовых форм лито- и сидерофильных элементов – Cr, Ni, Co, Mn, V, B, Zn, Li и Sr.

В целом для почв исследуемой территории отмечены токсичные концентрации Cr, Ni и Co.

В грунтах импактных зон объектов промышленной площадки зафиксированы высокие надфоновые концентрации Mn, Co, Li, Ti, Li и поверхностная аккумуляция P, Ag, Cr, Ni, Co, Ti, Sr, Nb, Y, V, Cu, Sc и Sn, связанная с геохимической спецификой пород, слагающих наземные техногенные массивы.

Выявленные закономерности микроэлементного перераспределения как по латерали, так и внутри почвенного профиля для территории Далдыно-Алакитского горнопромышленного района являются эталонной моделью геохимического состава природного состояния доминирующих типов почв Северо-Западной Якутии.

Статья подготовлена в рамках выполнения проектов Государственного задания Минобразования РФ FUEM-2019-0003 «Эколого-геохимическое изучение техногенных массивов на территории Якутской алмазоносной провинции» и FSRG-2020-0018 «Изучение особенностей функционирования арктических и субарктических экосистем Якутии в условиях усиления техногенного воздействия и глобального изменения климата».

- Soil heavy metal pollution and risk assessment in shenyang industrial district, Northeast China / X. Jiao, Y. Teng, Y. Zhan, J. Wu, X. Lin // PLoS ONE. – 2015 – V. 10 (5): e0127736. DOI: 10.1371/journal. pone.0127736.
- Завалишин С.И., Завалишина О.М., Щевердин А.И. Геохимические особенности профильного распределения тяжелых металлов в почвах средней тайги Западно-Сибирской низменности // Известия Оренбургского государственного аграрного университета. 2005. № 4. С. 36–38.
- Зеньков И.В. Обзор зарубежных исследований в области экологии горнодобывающего производства // Горный журнал. – 2016. – № 10. – С. 96–99.
- Benidire L., Benidire L., Boularbah A. Impacts of mining activities on soil properties: case studies from Morocco mine sites // Soil Science Annual. – 2020. – V. 71 (4). – P. 395–407.
- Hooda P.S. A special issue on heavy metals in soils: editorial foreword // Advances in Environmental Research. – 2003. – V. 8. – P. 1–3. DOI: 10.1016/S1093-0191(03)00030-3
- Ежов А.Ю. Техногенное загрязнение тяжелыми металлами ландшафтов северо-запада Кольского полуострова // Вестник Московского государственного областного университета. Серия «Естественные науки». – 2010. – № 1. – С. 98–103.
- Loska K., Wiechula D., Korus I. Metal contamination of farming soils affected by industry // Environment International. – 2004. – V. 30. – P. 159–165.
- Pollution indices as comprehensive tools for evaluation of the accumulation and provenance of potentially toxic elements in soils in Ojców National Park / R. Mazurek, J.B. Kowalska, M. Gąsiorek, P. Zadrożny, J. Wieczorek // National Park Journal of Geochemical Exploration. 2019. V. 201. P. 13–30. DOI: 10.1016/j.gexplo.2019.03.001.
- Сорокина О.А., Киселев В.И. Загрязнение почв в зоне освоения Джалиндинского россыпного и рудного месторождений золота в Приамурье // Экология и промышленность России. 2005. № 7. С. 24–28.
- Potential ecological risk and human health risk assessment of heavy metal pollution in industrial affected soils by coal mining and metallurgy in Ostrava, Czech Republic / H. Doležalová-Weissmannová, S. Mihočová, P. Chovanec, J. Pavlovský //

International Journal of Environmental Research and Public Health. – 2019. – V. 16 (22): 4495. URL: https://doi.org/ 10.3390/ijerph16224495 (дата обращения 15.08.2021).

- Ants as indicators of the success of rehabilitation efforts in deposits of gold mining ailings / C.R. Ribas, J.H. Schoereder, F.A. Schmidt, R.R.C. Solar, C.L. Valentim, R.B.F. Campos // Restoration Ecology. – 2012. – V. 20 (6). – P. 712–720.
- Zgłobicki W., Telecka M., Skupiński S. Assessment of short-term changes in street dust pollution with heavy metals in Lublin (E Poland) – levels, sources and risks // Environmental Science Pollution Research. – 2019. – Res. 26. – Р. 35049–35060. URL: https://doi.org/10.1007/s11356-019-06496-x (дата обращения 15.08.2021).
- Легостаева Я.Б. Экологическая значимость микроэлементного состава почв Далдынского кимберлитового поля // Проблемы региональной экологии. – 2008. – № 2. – С. 15–20.
- Геохимия окружающей среды / Ю.Е. Сает, Б.А. Ревич, Е.П. Янин, Р.С. Смирнова, И.Л. Башаркевич, Т.Л. Онищенко, Л.Н. Павлова, Н.Я. Трефилова, А.И. Ачкасов, С.Ш. Саркисян. – М.: Недра, 1990. – 335 с.
- 24. Экология Западной Якутии (геохимия геосистем: состояние и проблемы) / Б.С. Ягнышев, Т.А. Ягнышева, М.Н. Зинчук, Я.Б. Легостаева. – Якутск: Изд-во ЯНЦ СО РАН, 2005. – 432 с.
- Ягнышев Б.С., Ягнышева Т.А., Андреев С.К. Вторичное минералообразование пород нижнего палеозоя как основа минералого-геохимического картирования при поисках кимберлитов // Типоморфизм и геохимические особенности минералов эндогенных образований Якутии. Якутск: Изд-во ЯФАН СССР, 1985. С. 110–116.
- 26. Факторы минералообразования и некоторые экологические аспекты кимберлитов / Н.Н. Зинчук, М.Н. Зинчук, А.В. Пизнюр, Б.С. Ягнышев. – Воронеж: Изд-во Воронежский государственный университет, 2003. – 110 с.
- Ягнышев Б.С., Ягнышева Т.А. Геохимическое изучение Якутской алмазоносной провинции (история применения методов прикладной геохимии, их результаты и перспективы развития) // Геология алмазов – настоящее и будущее. – Воронеж: Воронеж. гос. ун-т., 2005. – С. 386–396.
- Мерзлотно-гидрогеологические условия Восточной Сибири / В.В. Шепелев, О.Н. Толстихин, В.М. Пигузова, Н.М. Никитина, Н.С. Ломовцева, Л.Д. Иванова, И.А. Некрасов. – Новосибирск: Наука, 1984. – 191 с.

- 29. Коробков И.Г., Евстратов А.А.Модели базитовых вулканоструктур и их роль в прогнозной оценке закрытых территорий алмазоносных районов на востоке Тунгусской синеклизы // Руды и металлы. – 2011. – № 3/4. Специальный выпуск памяти А.И. Кривцова. – С. 93–94.
- 30. Экологическая минералогия новое направление в практике изучения техногенных ландшафтов Якутии / Н.Н. Зинчук, Б.С. Ягнышев, Д.Д. Саввинов, Ю.Б. Стегницкий // Геология, закономерности распространения, методы прогноза и поисков месторождений алмазов: Материалы научно-практической конференции. – Якутск: Якутское научно-исследовательское геологоразведочное предприятие ЦНИГРИ, 1999. – С. 355–358.
- Ягнышев Б.С. Поиск кимберлитов по первичным геохимическим ореолам // Геология и рудоносность Якутии. – Якутск: Изд-во Якутского государственного университета, 1989. – С. 78–86.
- 32. Легостаева Я.Б., Попов В.Ф., Ксенофонтова М.И. Гидрогеологические условия и геоэкологическая ситуация на территории подземных техногенных хранилищ при утилизации дренажных рассолов Удачнинского горно-обогатительного комбината // Отечественная геология. – 2018. – № 3. – С. 93–102. DOI: 10.24411/0869-7175-2018-10021.
- Шишов Л.Л., Тонконогов В.Д., Лебедева И.И. Классификация и диагностика почв России. – Смоленск: Ойкумена, 2004. – 342 с.
- IUSS Working Group WRB. World Reference Base for Soil Resources 2014. – Rome: FAO, 2015. – 192 p.
- 35. Роль биологического фактора в процессе формирования почвы в таежной зоне / И.Б. Арчегова, А.Н. Панюков, Е.Г. Кузнецова, В.А. Ковалева // Вестник СПбГУ. Сер. 3. Биология. – 2016. – Вып. 2. – С. 127–139. DOI: 10.21638/11701/ spbu03.2016.210
- Арчегова И.Б. Экологическое мировоззрение основа развития // Вестник Российской академии наук. – 2003. – Т. 73 (2). – С. 114–116.
- Опарин Н.А., Легостаева Я.Б. Особенности состава пород наземных техногенных массивов Западной Якутии // Новые познания процессов рудообразования: сборник материалов. – М.: ИГЕМ РАН, 2018. – С. 274–278.

Поступила 25.08.2021 г.

## Информация об авторах

*Легостаева Я.Б.*, кандидат биологических наук, ведущий научный сотрудник лаборатории металлогении Института геологии алмаза и благородных металлов СО РАН.

**Гололобова** А.Г., кандидат биологических наук, старший научный сотрудник лаборатории мерзлотных почв Научно-исследовательского института прикладной экологии Севера им. проф. Д.Д. Саввинова Северо-Восточного федерального университета им. М.К. Аммосова.

#### UDC 631.4:504.5:622.7

# FEATURES OF DISTRIBUTION OF TRACE ELEMENTS IN SOILS OF BACKGROUND AND IMPACT ZONES IN DIAMOND MINING AREAS IN THE NORTHWEST OF THE SIBERIAN PLATFORM

Yana B. Legostaeva<sup>1</sup>, ylego@mail.ru

### Anna G. Gololobova<sup>2</sup>,

nuta0687@mail.ru

- <sup>1</sup> Diamond and Precious Metal Geology Institute, Siberian Branch of the Russian Academy of Sciences, 39, Lenin avenue, Yakutsk, 677980, Russia.
- <sup>2</sup> D.D. Savvinov Research Institute of Applied Ecology of the North, M.K. Ammosov North-Eastern Federal University, 43, Lenin avenue, Yakutsk, 677980, Russia.

The study relevance is caused by the intensive development of the mining industry in the study area, during which the environment is polluted with chemical substances in the conditions of the spread of permafrost. First, this is soil pollution with pollutants, which remain in the soil for many years, even after removing pollution sources. Therefore, this study makes it possible to identify the geochemical specificity of soils under the influence of anthropogenic activity.

**The main aim:** study of the elemental composition and their vertical distribution in the permafrost soils of North-West Yakutia exposed to technogenic impact in the conditions of diamond mining.

**Objects and Methods.** This article presents the results of the work performed for the period from 1994 to 2019 on the territory of the Daldyn kimberlite field, where the kimberlite pipes Udachnaya and Zarnitsa are being mined, and where the Udachny mining and processing plant of AK Alrosa (PJSC) is located. The object of study is the permafrost soils of the north-taiga landscapes of North-West Yakutia. The soils of this region reflect the general patterns of soil cover formation in the study area. They are part of the East Siberian permafrost-northern taiga region of the boreal soil belt of Russia. In field observations, a profile approach was applied, involving the collection of samples from all soil genetic horizons to the boundary of the seasonally thawed layer. The sign contents of 23 chemical elements were determined by the method of spectral-semiquantitative analysis.

**Results.** The geochemical studies of permafrost soils on the territory of the Udachninsky mining and processing plant are presented. To characterize the geochemical environment of soils, the coefficient of technogenic concentration ( $K_c$ ) and the coefficient of accumulation ( $K_c$ – $K_3$ ) of the studied elements were calculated. Accumulative series reflecting the geochemical specifics of the study area were built. Each of the studied soil types is characterized by the originality of the microelement spectrum. Polyelement associations are created as a result of the geochemical influence of the soil-forming substrate. It was revealed that the territory of the Daldyn-Alakit region is characterized by increased concentrations of Cr, Ni, Co, V, Cu, Pb, Li, Sr in soils.

#### Key words:

Cryozems, regional background, natural geochemical anomaly, kimberlite pipes, trace elements, mining and processing division.

The paper was prepared with in the projects of the State Task of the Ministry of Education of the FUEM-2019-0003 «Ecological and geochemical study of man-made arrays in the territory of Yakutia diamond-bearing province» and RFFSRG-2020-0018 «Studying the features of Yakutia arctic and subarctic ecosystems functioning under conditions of increasing man-made impact and global climate change».

#### REFERENCES

- Belosheykina A.V., Talovskaya A.V., Yazikov E.G. Ecological and geochemical assessment of Sorsk mining and processing plant soil cover (republic of Khakassia). *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2020, vol. 331, no. 1, pp. 44–53. In Rus.
- Basova I.A., Ioina M.A., Glukhova E.N. Geoecological condition of soil cover in mining regions. *Izvestiya Tulskogo gosudarstvennogo* universiteta: nauki o zemle, 2010, no. 1, pp. 16–20. In Rus.
- Legostaeva Ya.B. Prostranstvennaya i vnutriprofilnaya differenciatsiya merzlotnykh pochv severo-zapadnoy Yakutii. Diss. Kand. nauk [Spatial and intraprofile differentiation of permafrost soils in northwestern Yakutia. Cand. Diss.]. Ulan-Ude, 2005. 143 p.
- Nyenda T., Gwenzi W., Jacobs S.M. Changes in physicochemical properties on a chronosequence of gold mine tailings. *Geoderma*, 2021, vol. 395, article 115037. Available at: https://doi.org/ 10.1016/j.geoderma.2021.115037 (accessed 15 August 2021).
- Ushakova T.I., Karavaeva P.A. Belkin P.A. Ecological state of soils of industrial territories (on the example of Berezniki, Perm region): comparison of domestic and foreign assessment methods. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2020, vol. 331, no. 10, pp. 58–70. In Rus.

- Li X.Y., Liu L.J., Wang Y.G., Luo G.P., Chen X., Yang X.L., Hall M.H.P., Guo R., Wang H., Cui J., He X. Heavy metal contamination of urban soil in an old industrial city (Shenyang) in Northeast China. *Geoderma*, 2013, vol. 192, pp. 50–58.
- Liu X.M., Wu J.J., Xu J.M. Characterizing the risk assessment of heavy metals and sampling uncertainty analysis in paddy field by geostatistics and GIS. *Environmental pollution*, 2006, vol. 141, pp. 257–264.
- Zhang Ch.Sh. Using multivariate analyses and GIS to identify pollutants and their spatial patterns in urban soils in Galway, Ireland. *Environmental Pollution*, 2006, vol. 142, pp. 501–511.
- Richards B.K., Steenhuis T.S., Peverly J.H., McBride M.B. Metal mobility at an old, heavily loaded sludge application site. *Environmental Pollution*, 1998, vol. 99 (3), pp. 365–377.
   Jiao X., Teng Y., Zhan Y., Wu J., Lin X. Soil heavy metal
- Jiao X., Teng Y., Zhan Y., Wu J., Lin X. Soil heavy metal pollution and risk assessment in shenyang industrial district, Northeast China. *PLoS ONE*, 2015, vol. 10 (5): e0127736. DOI: 10.1371/journal. pone.0127736.
- Zavalishin S.I., Zavalishina O.M., Shcheverdin A.I. Geochemical features of the profile distribution of heavy metals in soils of the middle taiga of the West Siberian lowland. *Bulletin of the Orenburg State Agrarian University*, 2005, vol. 4, pp. 36–38. In Rus.

- Zenkov I.V. Review of foreign studies in the field of ecology of mining production. *Gornyi Zhurnal*, 2016, vol. 10, pp. 96–99. In Rus.
- Benidire L., Benidire L., Boularbah A. Impacts of mining activities on soil properties: case studies from Morocco mine sites. *Soil Science Annual*, 2020, vol. 71 (4), pp. 395–407
- Hooda P.S. A special issue on heavy metals in soils: editorial foreword. Advances in Environmental Research, 2003, vol. 8, pp. 1–3. DOI: 10.1016/S1093-0191(03)00030-3
- Yezhov A.Yu. Technogenic pollution of landscapes of the northwest of the Kola Peninsula by heavy metals. *Vestnik MGOU. Ser. Natural Sciences*, 2010, vol. 1, pp. 98–103. In Rus.
- Loska K., Wiechula D., Korus I. Metal contamination of farming soils affected by industry. *Environment International*, 2004, vol. 30, pp. 159–165.
- Mazurek R., Kowalska J.B., Gąsiorek M., Zadrożny P., Wieczorek J. Pollution indices as comprehensive tools for evaluation of the accumulation and provenance of potentially toxic elements in soils in Ojców National Park. *National Park Journal of Geochemical Exploration*, 2019, vol. 201, pp. 13–30. DOI: 10.1016/ j.gexplo.2019.03.001.
- Sorokina O.A., Kiselev V.I. Zagryaznenie pochv v zone osvoeniya Dzhalindinskogo rossypnogo i rudnogo mestorozhdeniy zolota v Priamure [Soil contamination in the development zone of the Dzhalindinsky placer and ore gold deposits in the Amur region]. Ecology and industry in Russia, 2005, vol. 7, pp. 24–28.
- Doležalová-Weissmannová H., Mihočová S., Chovanec P., Pavlovský J. Potential ecological risk and human health risk assessment of heavy metal pollution in industrial affected soils by coal mining and metallurgy in Ostrava, Czech Republic. *International Journal of Environmental Research and Public Health*, 2019, vol. 16 (22): 4495. Available at: https://doi.org/ 10.3390/ijerph16224495 (accessed 15 August 2021).
- Ribas C.R., Schoereder J.H., Schmidt F.A., Solar R.R.C., Valentim C.L., Campos R.B.F. Ants as indicators of the success of rehabilitation efforts in deposits of gold mining ailings. *Restoration Ecology*, 2012, vol. 20 (6), pp. 712–720.
- Zgłobicki W., Telecka M., Skupiński S. Assessment of short-term changes in street dust pollution with heavy metals in Lublin (E Poland) – levels, sources and risks. *Environmental Science Pollution Research*, 2019, Res. 26, pp. 35049–35060. Available at: https://doi.org/10.1007/s11356-019-06496-x (дата обращения 15.08.2021).
- Legostaeva Ya.B. The ecological significance of the microelement composition of the soils of the Daldyn kimberlite field. *Problems* of regional ecology, 2008, vol. 2, pp. 15–20. In Rus.
- Saet Yu.E., Revich B.A., Yanin E.P., Smirnova R.S., Basharkevich I.L., Onishchenko T.L., Pavlova L.N., Trefilova N.Ya., Achkasov A.I., Sargsyan S.Sh. *Geokhimiya okruzhayushchey sredy* [Geochemistry of the environment]. Moscow, Nedra Publ., 1990. 335 p.
- Yagnyshev B.S., Yagnysheva T.A., Zinchuk M.N., Legostaeva Ya.B. *Ekologiya Zapadnoy Yakutii (geokhimiya geosistem: sostoyanie i problemy)* [Ecology of western Yakutia (geochemistry of geoecosystems: state and problems)]. Yakutsk, YSC SB RAS Publ. House, 2005. 432 p.
- 25. Yagnyshev B.S., Yagnysheva T.A., Andreev S.K. Vtorichnoe mineraloobrazovanie porod nizhnego paleozoya kak osnova mineralogo-geokhimicheskogo kartirovaniya pri poiskakh kimberlitov [Secondary mineral formation of the Lower Paleozoic rocks as the basis of mineralogical and geochemical mapping in the search for kimberlites]. *Tipomorfizm i geokhimicheskie* osobennosti mineralov endogennykh obrazovaniy Yakutii [Typomorphism and geochemical features of minerals of endogenous formations of Yakutia]. Yakutsk, Yakutsk branch of the Academy of Sciences USSR Publ., 1985. pp. 110–116.

- Zinchuk N.N., Zinchuk M.N., Piznur A.V., Yagnyshev B.S. Faktory mineraloobrazovaniya i nekotorye ekologicheskie aspekty kimberlitov [Mineral formation factors and some ecological aspects of kimberlites]. Voronezh, Voronezh State University Publ., 2003. 110 p.
- 27. Yagnyshev B.S., Yagnysheva T.A. Geokhimicheskoe izuchenie Yakutskoy almazonosnoy provintsii (istoriya primeneniya metodov prikladnoy geokhimii, ikh rezultaty i perspektivy razvitiya) [Geochemical study of the Yakut diamondiferous province (history of application of methods of applied geochemistry, their results and development prospects)]. *Geologiya almazov – nastoyashchee i budushchee* [Geology of Diamonds – Present and Future]. Voronezh, Voronezh State University Publ., 2005. pp. 386–396.
- Shepelev V.V., Tolstikhin O.N., Piguzova V.M., Nikitina N.M., Lomovtseva N.S., Ivanova L.D., Nekrasov I.A. *Merzlotnogidrogeologicheskie usloviya Vostochnoy Sibiri* [Permafrosthydrogeological conditions of Eastern Siberia]. Novosibirsk, Nauka Publ., 1984. 191 p.
- 29. Korobkov I.G., Evstratov A.A. Models of basic volcano structures and their role in predictive assessment of closed territories of diamondiferous regions in the east of the Tunguska syneclise. *Ores* and metals, 2011, vol. 3/4, Special issue in memory of A.I. Krivtsova, pp. 93–94. In Rus.
- 30. Zinchuk N.N., Yagnyshev B.S., Savvinov D.D., Stegnitsky Yu.B. Ekologicheskaya mineralogiya – novoe napravlenie v praktike izucheniya tekhnogennykh landshaftov Yakutii [Ecological mineralogy – a new direction in the practice of studying the technogenic landscapes of Yakutia]. Geologiya, zakonomernosti rasprostraneniya, metody prognoza i poiskov mestorozhdeniy almazov. Materialy nauchno-prakticheskoy konferentsii [Geology, distribution patterns, methods of forecasting and prospecting for diamond deposits. Materials of the scientific and practical conference]. Yakutsk, Yakutsk Research Geological Prospecting Enterprise TsNIGRI Publ., 1999. pp. 355–358.
- Yagnyshev B.S. Poisk kimberlitov po pervichnym geokhimicheskim oreolam [Search for kimberlites by primary geochemical halos]. *Geologiya i rudonosnost Yakutii* [Geology and ore content of Yakutia]. Yakutsk, Yakutsk State University Publ., 1989. pp. 78–86.
- 32. Legostaeva Ya.B., Popov V.F., Ksenofontova M.I. Hydrogeological conditions and geoecological situation on the territory of underground technogenic storages during the utilization of drainage brines of the Udachninsky mining and processing plant. *Otechestvennaya geologiya*, 2018, vol. 3, pp. 93–102. In Rus. DOI: 10.24411/0869-7175-2018-10021.
- Shishov L.L., Tonkonogov V.D., Lebedeva I.I. *Klassifikatsiya i diagnostika pochv Rossii* [Classification and diagnostics of soils in Russia]. Smolensk, Oikumena Publ., 2004. 342 p.
- IUSS Working Group WRB. World Reference Base for Soil Resources. 2014. Rome, FAO, 2015. 192 p.
- Archegova I.B., Panyukov A.N., Kuznetsova E.G., Kovaleva V.A. The role of the biological factor in the process of soil formation in the taiga zone. *Bulletin of St. Petersburg State University. Ser. 3. Biology*, 2016, vol. 2, pp. 127–139. In Rus. DOI: 10.21638/11701/spbu03.2016.210.
- Archegova I.B. Environmental outlook the basis for development. Bulletin of the Russian Academy of Sciences, 2003, vol. 73 (2), pp. 114–116. In Rus.
- 37. Oparin N.A., Legostaeva Ya.B. Osobennosti sostava porod nazemnykh tekhnogennykh massivov Zapadnoy Yakutii [Features of the composition of rocks of terrestrial technogenic massifs of Western Yakutia]. Novye poznaniya protsessov rudoobrazovaniya: sbornik materialov [New knowledge of ore formation processes: collection of materials]. Moscow, IGEM Publ., 2018. pp. 274–278.

Received: 25 August 2021.

#### Information about the authors

Yana B. Legostaeva, Cand. Sc., leading researcher, Diamond and Precious Metal Geology Institute, Siberian Branch of the Russian Academy of Sciences.

Anna G. Gololobova, Cand. Sc., senior researcher, M.K. Ammosov North-Eastern Federal University.

УДК 621.315.22

# ОПТИМИЗАЦИЯ ПОРЯДКА РЕДУЦИРОВАННОЙ ДИНАМИЧЕСКОЙ МОДЕЛИ НЕНАГРУЖЕННОГО НЕФТЕПОГРУЖНОГО КАБЕЛЯ НА ОСНОВЕ АППРОКСИМАЦИИ АМПЛИТУДНО-ЧАСТОТНОЙ ХАРАКТЕРИСТИКИ

Глазырин Александр Савельевич<sup>1,2</sup>, asglazyrin@tpu.ru

Исаев Юсуп Ниязбекович<sup>1</sup>, isaev\_yusup@mail.ru

Кладиев Сергей Николаевич<sup>1</sup>, kladiev@tpu.ru

**Леонов Андрей Петрович**<sup>1</sup>, leonov ap@tpu.ru

Раков Иван Витальевич<sup>3</sup>, rakovivan@live.com

Ланграф Сергей Владимирович<sup>4</sup>, sergeylgrf@gmail.com

Филипас Александр Александрович<sup>1</sup>, filipas@tpu.ru

Копырин Владимир Анатольевич⁵, kopyrinva@gmail.com

Хамитов Рустам Нуриманович<sup>6,5</sup>, apple\_27@mail.ru

Ковалев Владимир Захарович<sup>2</sup>, vz\_kovalev@mail.ru

Колесников Станислав Вячеславович<sup>1</sup>, svk3@tpu.ru

- <sup>1</sup> Национальный исследовательский Томский политехнический университет, Россия, 634050, г. Томск, пр. Ленина, 30.
- <sup>2</sup> Югорский государственный университет, Россия, 628012, г. Ханты-Мансийск, ул. Чехова, 16.
- <sup>3</sup> ООО Научно-производственное предприятие «Томская электронная компания», Россия, 634040, г. Томск, ул. Высоцкого, 33.
- <sup>4</sup> ООО «НПФ Мехатроника-Про», Россия, 634021, г. Томск, пр. Фрунзе, 119Е.
- <sup>5</sup> Тюменский индустриальный университет, Россия, 625000, г. Тюмень, ул. Володарского, 38.
- <sup>6</sup> Омский государственный технический университет, Россия, 644050, г. Омск, пр. Мира, 11.

Актуальность. Нефтепогружной кабель предназначен для передачи электрической энергии от источника энергии к погружным электродвигателям установок добычи нефти. Амплитудно-частотная характеристика ненагруженного кабеля отличается резонансными пиками, локализованными в более узкой полосе частот, наличие которых позволяет корректно провести оптимизацию порядка редуцированной модели кабельной линии на основе критерия минимума ошибки. Основными способами математического описания модели нефтепогружного кабеля являются системы обыкновенных дифференциальных уравнений и системы дифференциальных уравнений в частных производных. Первый способ математического описания модели нефтепогружного кабеля, состоящей из одного элементарного четырехполюсника с продольной активно-индуктивной и поперечной активно-емкостной составляющими, позволяет произвести расчёт баланса мощностей и расчёт передачи энергии на первой гармонике, с учетом потерь на омическом (активном) сопротивлении, а также потерь в изоляции кабеля. Применение математической модели, состоящей из одного элементарного четырехполюсника, недопустимо для более сложных задач, таких как диагностика места повреждения кабеля, идентификация и оценивание параметров погружного двигателя на основе наземных измерений, управление переходным процессом погружного двигателя при пуске и других. Второй способ математического описания модели нефтепогружного кабеля основывается на «телеграфных» уравнениях в форме системы дифференциальных уравнений в частных производных. Основное достоинство такой математической модели заключается в повышенной точности анализа специфических режимов, присущих длинным электрическим линиям, таких как прямые и обратные волны, резонансные явления, возникающие при взаимном обмене энергией между электрической и магнитной компонентой электромагнитного поля и т. д. К недостаткам можно отнести технические трудности совмещения математической модели кабеля на основе системы дифференциальных уравнений в частных производных и математической модели погружного двигателя на основе системы дифференциальных уравнений в нормальной форме Коши. Также модели длинных электрических линий на основе «телеграфных» уравнений на практике крайне сложно реализовать в микроконтроллере для использования в системах реального времени, построенных на основе цифровых сигнальных процессов. С точки зрения применения динамических моделей в цифровых системах реального времени, актуальным является переход от математической модели кабеля с распределенными параметрами к математической модели кабеля с сосредоточенными параметрами, т. е. к четырехполюсникам. В то же время при таком переходе недопустимо применять математическую модель, представленную одним звеном, так как возникают неприемлемые несоответствия между работой реального объекта и математической моделью этого объекта. Это, в свою очередь, не позволяет достоверно отобразить процессы, протекающие в кабеле при питании от частотного преобразователя. Применение модели с практически бесконечным числом четырехполюсников не является целесообразным, так как расчет такой модели займет большое количество процессорного времени, что недопустимо в системах реального времени и нивелирует преимущества перехода от математической модели с распределенными параметрами. Учитывая сказанное, определение оптимального порядка редуцированной динамической модели ненагруженного нефтепогружного кабеля на основе аппроксимации его амплитудно-частотной характеристики является актуальной, научной и практически значимой задачей.

**Цель:** разработка методики определения минимально необходимого и достаточного количества звеньев редуцированной динамической математической модели нефтепогружного кабеля с сосредоточенными параметрами для использования с заданной точностью в переходных и установившихся режимах работы.

**Методы:** системы дифференциальных уравнений в нормальной форме Коши, системы дифференциальных уравнений в частных производных, нелинейные алгебраические уравнения, метод Крамера, численные методы, теория четырехполюсников, теория длинных линий с распределенными параметрами, метод пространства состояний, методы частотного анализа, методы оптимизации.

**Результаты.** Получена редуцированная динамическая модель, состоящая из минимально необходимого и достаточного количества четырехполюсников, позволяющая с заданной точностью провести анализ переходных и установившихся электромагнитных процессов по длине кабельной линии и при различных формах напряжения на входе. Полученная редуцированная модель применима для задач идентификации параметров кабеля, диагностики целостности электрических цепей, определения характера распределения напряжений по длине кабельной линии. Полученная редуцированная динамическая модель позволяет оценивать весь спектр динамических режимов работы в отличие от модели прототипа. Разработанная редуцированная динамическая модель погружного кабеля, описанная в обыкновенных дифференциальных уравнениях, представлена в удобной форме записи математического описания кабеля как подсистемы электротехнического комплекса установки электроцентробежного насоса.

#### Ключевые слова:

Длинный кабель, каскадное соединение четырехполюсников, редуцированная модель кабельной линии, длинная линия с распределенными параметрами, амплитудно-частотная характеристика, нефтепогружной кабель, УЭЦН.

## Введение

По данным компании «Газпром нефть», 82 % нефти в Российской Федерации добывается при помощи погружных электроцентробежных насосов, при этом всего 63 % скважин оборудовано подобными насосами [1]. Такое соотношение количества добытой нефти к количеству скважин говорит о том, что механизированный способ добычи нефти с помощью погружных электроцентробежных насосов является эффективным. Однако в процессе эксплуатации установок электроцентробежных насосов (УЭЦН) возникают трудно устранимые технические и технологические проблемы с погружной частью оборудования УЭЦН, такие как: заклинивания и прихваты погружного электродвигателя (ПЭД), появление асфальтосмолопарафиновых отложений на рабочей части насоса, заиливание и запесочивание насоса, что в конечном итоге приводит к его заклиниванию.

Одним из перспективных способов борьбы с обозначенными проблемами является создание замкнутой по моменту и угловой скорости системы управления ПЭД на основе наблюдателей переменных состояний ПЭД [2]. Для создания наблюдателя переменных состояний ПЭД необходимо составить математические модели каждого электротехнического компонента, входящего в силовую электрическую цепь УЭЦН, а именно «Преобразователь частоты (ПЧ) – синус-фильтр (СФ) – повышающий трансформатор (ПТ) – нефтепогружной кабель (НПК) – погружной электродвигатель (ПЭД)», затем объединить каждую отдельную модель в общую систему.

Составление и объединение математических моделей каждого из перечисленных элементов влечет за собой ряд проблем, решение которых нужно описывать в отдельных статьях. В данной статье представлена методика построения оптимальной редуцированной Г-образной математической модели нефтепогружного кабеля, которая с заданной точностью отобразит процессы, происходящие в математической модели с распределенными параметрами.

Необходимость перехода от математической модели кабеля с распределенными параметрами, которая описана уравнениями в частных производных, к редуцированной математической модели кабеля с сосредоточенными параметрами, которая описана системой обыкновенных дифференциальных уравнений (СДУ), обусловлена тем, что в хорошо зарекомендовавших себя существующих системах управления ПЧ используются двухфазные математические модели оборудования, описанные СДУ.

При описании нефтепогружного кабеля однозвенной математической моделью возникают неприемлемые несоответствия между математической моделью и реальным объектом. Применение модели с практически бесконечным числом четырехполюсников является нецелесообразным, так как расчет такой модели займет большое количество процессорного времени.

Таким образом, оптимизация порядка редуцированной динамической модели ненагруженного нефтепогружного кабеля на основе аппроксимации амплитудно-частотной характеристики (АЧХ) является актуальной технической задачей.

#### Допущения, принятые при построении динамической модели ненагруженного нефтепогружного кабеля

При построении модели рассмотрен нефтепогружной кабель марки КПБК температурной группы К1 (длительно допустимая рабочая температура 90 °C). При моделировании были приняты следующие допущения и упрощения:

- В модели рассматривается нефтепогружной кабель круглого сечения, представляющий собой однородную длинную линию [3].
- В рассматриваемом диапазоне температур изменение электрофизических свойств материалов кабеля пренебрежимо мало и их значения принимаются постоянными [4].
- Влияние брони на индуктивность жил кабеля пренебрежимо мало и не учитывается [5].
- Геометрические размеры конструктивных элементов нефтепогружного кабеля и взаимное расположение изолированных токопроводящих жил принимаются постоянными по всей длине [3].
- Вихревые токи в экранах и эффект вытеснения тока в основных проводниках (эффект близости) не учитываются в рассматриваемом диапазоне частот [6].
- Стальная броня кабеля заземлена и выполняет функцию экрана, в связи с чем магнитное влияние колонны насосно-компрессорных труб не учитывается [7].

- Не учитываются потери в металле и эффект насыщения [8].
- 8. На характеристики нефтепогружного кабеля не влияют электротехнические компоненты, находящиеся в силовом канале УЭЦН [7, 8].

## Аналитическое выражение АЧХ ненагруженного нефтепогружного кабеля на основе систем дифференциальных уравнений с частными производными

Эффект непрерывного изменения тока и напряжения вдоль линии имеет место вследствие того, что линии обладают распределенными продольными и поперечными сопротивлениями, ёмкостями и индуктивностями (рис. 1).

На схеме (рис. 1)  $r_0$  – погонное активное сопротивление линии (Ом/м);  $L_0$  – погонная индуктивность линии (Гн/м);  $g_0$  – погонная проводимость линии (См/м);  $C_0$  – погонная ёмкость линии (Ф/м); x – длина линии (м).



**Puc. 1.** Участок кабельной линии с распределенными параметрами с бесконечно малыми элементами длины **Fig. 1.** Section of a cable line with distributed parameters with infinitesimal length elements

В результате утечки через поперечные сопротивления и ёмкости токи на соседних участках линии неодинаковы. Вследствие этого и падение напряжения на соседних поперечных сопротивлениях и ёмкостях, разделенных участком *dx*, тоже отличается.

В электрических линиях с распределенными параметрами продольные сопротивления образованы активными сопротивлениями проводов линии и индуктивностями двух противостоящих друг другу участков линии длиной *dx*. Поперечные сопротивления состоят из сопротивлений утечки, появляющейся вследствие несовершенства изоляции между проводами линии, и емкостей, образованных противостоящими друг другу элементами (участками) линии.

Таким образом, получаем систему дифференциальных уравнений в частных производных (1)

$$\begin{cases} -\frac{\partial u}{\partial x} = r_0 \cdot i + L_0 \cdot \frac{\partial i}{\partial t}; \\ -\frac{\partial i}{\partial x} = g_0 \cdot u + C_0 \cdot \frac{\partial u}{\partial t}. \end{cases}$$
(1)

Один из возможных методов численного решения уравнения в частных производных (1) – это метод Лакса–Вендроффа [9], однако авторы предпочли использовать метод преобразования Лапласа, позволяющий свести уравнения в частных производных к

СДУ, более предпочтительной для инженерных расчетов. Осуществим преобразование Лапласа по временной координате *t*. Введем обозначения  $Z_0(p)=r_0+pL_0$ ,  $Y_0(p)=g_0+pC_0$ ,  $\gamma(p)=(Z_0Y_0)^{1/2}=((r_0+pL_0))$   $(g_0+pC_0))^{1/2}$  и перепишем систему (1) в виде (2)

$$\begin{cases} -\frac{dU(x,p)}{dx} = (r_0 + pL_0) \cdot I(x,p); \\ -\frac{dI(x,p)}{dx} = (g_0 + pC_0) \cdot U(x,p). \end{cases}$$
(2)

Продифференцируем первое уравнение (2) по *х* и подставим в него второе, получим дифференциальное уравнение второго порядка с постоянными коэффициентами (3)

$$\frac{d^2 U(x,p)}{dx} - \gamma^2 \cdot U(x,p) = 0.$$
(3)

Будем искать решение уравнения (1) в виде  $U(x,p)=A(p)e^{\gamma x}$ . Подставляя искомое решение в (1), получим характеристическое уравнение относительно  $\lambda$  (4)

$$\lambda^2 - \gamma^2 = 0 \longrightarrow \lambda_{1,2} = \pm \gamma. \tag{4}$$

Теперь решение можно записать в виде

$$U(x, p) = A(p)e^{\lambda_1 x} + B(p)e^{\lambda_2 x} =$$
  
=  $A(p)e^{\gamma x} + B(p)e^{-\gamma x}.$  (5)

=

Продифференцировав (5), из первого уравнения системы (2) получим ток

$$I(x,p) = \frac{-(A(p)e^{\gamma x} + B(p)e^{-\gamma x})}{Z_{R}(p)}.$$
 (6)

В итоге имеем систему для определения констант интегрирования A(p) и B(p) (7)

$$\begin{cases} U(x, p) = A(p)e^{\gamma x} + B(p)e^{-\gamma x}; \\ I(x, p) = \frac{-(A(p)e^{\gamma x} + B(p)e^{-\gamma x})}{Z_{\scriptscriptstyle B}(p)}. \end{cases}$$
(7)

На рис. 2 представлена схема для определения констант интегрирования, где обозначены источники питания  $E_1$  и  $E_2$  и их сопротивления, соответственно,  $Z_1$  и  $Z_2$ . u(0, t), i(0, t) – напряжение и ток в начале линии при x=0, и u(l,t), i(l,t) – напряжения и ток в конце линии при x=l.



**Рис. 2.** Схема представления длинной кабельной линии в общем случае

Fig. 2. Scheme of representation of a long cable line in general case

Запишем краевые условия для определения констант интегрирования A(p) и B(p)

$$\begin{cases} E_1(p) = U(0, p) + Z_1 I(0, p); \\ E_2(p) = U(l, p) + Z_1 I(l, p). \end{cases}$$

С учетом приведенной схемы для граничных условий выполняется соотношение (8), и оно же – в матричном виде (9)

$$\begin{cases} E_{1}(p) = U(0, p) = A(p) + B(p); \\ 0 = U(l, p) - I(l, p) \cdot Z_{2} = \\ = \left(1 + \frac{Z_{2}(p)}{Z_{B}(p)}\right) A(p)e^{\gamma x} + \left(1 - \frac{Z_{2}(p)}{Z_{B}(p)}\right) B(p)e^{-\gamma x}, (8) \\ \begin{cases} A(p) + B(p) = E_{1}(p) \\ \left(1 + \frac{Z_{2}(p)}{Z_{B}(p)}\right) A(p)e^{\gamma x} + \left(1 - \frac{Z_{2}(p)}{Z_{B}(p)}\right) B(p)e^{-\gamma x} = 0 \end{cases}$$

$$\rightarrow \left(\begin{pmatrix}1 & 1 \\ \left(1 + \frac{Z_{2}(p)}{Z_{B}(p)}\right)e^{\gamma x} & \left(1 - \frac{Z_{2}(p)}{Z_{B}(p)}\right)e^{-\gamma x}\right) \cdot \begin{pmatrix}A(p) \\ B(p) \end{pmatrix} = \\ = \begin{pmatrix}E_{1}(p) \\ 0\end{pmatrix}. \qquad (9)$$

Решая матричное уравнение относительно A(p) и B(p), получаем (10)

$$\begin{pmatrix} A(p) \\ B(p) \end{pmatrix} = \\ = \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ \left(1 + \frac{Z_2(p)}{Z_{\text{B}}(p)}\right) e^{\gamma x} & \left(1 - \frac{Z_2(p)}{Z_{\text{B}}(p)}\right) e^{-\gamma x} \end{pmatrix}^{-1} \cdot \begin{pmatrix} E_1(p) \\ 0 \end{pmatrix} = \\ = \begin{pmatrix} \frac{(Z_2(p) + Z_{\text{B}}(p)) \cdot e^{-\gamma x} \cdot E_1(p)}{2(Z_2(p) \cdot \text{ch}(\gamma x) + Z_{\text{B}}(p) \cdot \text{sh}(\gamma x))} \\ \frac{(Z_2(p) - Z_{\text{B}}(p)) \cdot e^{-\gamma x} \cdot E_1(p)}{2(Z_2(p) \cdot \text{ch}(\gamma x) + Z_{\text{B}}(p) \cdot \text{sh}(\gamma x))} \end{pmatrix}.$$
(10)

Запишем окончательное решение для напряжения в произвольной точке (11)

$$U(x, p) =$$

$$= \frac{Z_2(p) \cdot \operatorname{ch}(\gamma[l-x]) + Z_{\scriptscriptstyle B}(p) \cdot \operatorname{sh}(\gamma[l-x])}{Z_2(p) \cdot \operatorname{ch}(\gamma l) + Z_{\scriptscriptstyle B}(p) \cdot \operatorname{sh}(\gamma l)} \cdot E_1(p). (11)$$

Чтобы найти передаточную функцию W(p), нужно выходную величину U(l,p), x=l, разделить на входную  $E_1(p)=U(0,p)$ , x=0 (12)

$$W(p) = \frac{U(l,p)}{U(0,p)} = \frac{Z_2(p)}{Z_2(p) \cdot \operatorname{ch}(\gamma l) + Z_{\scriptscriptstyle B}(p) \cdot \operatorname{sh}(\gamma l)}.$$
 (12)

На рис. 3 показан случай, когда входной источник напряжения не имеет сопротивления (идеальный)  $Z_1=0$ , а на выходе линии нет источника напряжения  $E_2(p)=U(x, p)$ , и выполняется условие холостого хода  $Z_2=\infty$ .



**Рис. 3.** Схема длинной кабельной линии в операторной форме в ненагруженном режиме

*Fig. 3.* Scheme of a long cable line in operator form in nonloaded mode

Если в выражении (12) устремить  $Z_2$  к бесконечности, то можно получить (13)

$$W(p) = \lim_{Z_2 \to \infty} \frac{U(l, p)}{U(0, p)} = \frac{1}{\operatorname{ch}(\gamma(p)l)}.$$
 (13)

Чтобы получить выражение АЧХ, необходимо вместо p подставить  $j\omega$  (14)

$$A(\omega, l) = |W(j\omega)| = \frac{1}{\operatorname{ch}(\gamma(j\omega)l)}.$$
 (14)

После составления уравнения АЧХ (14) построим графически АЧХ линии с распределенными параметрами. В качестве тестового образца выбран кабель КПБК-90 3×16 как один из распространённых кабелей для питания погружных электродвигателей. В уравнение (14) подставим значения электрических параметров КПБК-90 3×16, полученных методами, приведенными в [10] (табл. 1).

| Таблица 1. | Параметры    | нефтепогружного | кабеля |
|------------|--------------|-----------------|--------|
|            | КПБК-90 3×16 | [10]            |        |

Table 1.Parameters of the oil submersible cable KPBK-90 $3 \times 16$  [10]

| Погонная                   | Погонная                     | Погонное                 | Погонная                       |
|----------------------------|------------------------------|--------------------------|--------------------------------|
| ёмкость,                   | индуктивность,               | сопротивление            | проводимость,                  |
| $C_0, \Phi/\kappa м$       | $L_0$ , $\Gamma H/\kappa M$  | сопротивление,           | g <sub>0</sub> , См/км         |
| Linear                     | Linear                       | I inear resistance       | Linear                         |
| capacity, C <sub>0</sub> , | inductance, L <sub>0</sub> , | r. O/km                  | conductivity, g <sub>0</sub> , |
| F/km                       | H/km                         | 1 <sub>0</sub> , 52/KIII | $\Omega^{-1}/\mathrm{km}$      |
| $2,125 \cdot 10^{-7}$      | 300,676.10-6                 | 0,963                    | 10 <sup>-6</sup>               |



**Рис. 4.** Амплитудно-частотная характеристика ненагруженной кабельной линии с распределенными параметрами для кабеля КПБК-90 3×16



На рис. 4 построена АЧХ идеальной линии с сосредоточенными параметрами при длине линии l=1 км. Точка первого резонанса наблюдается на частоте 1,965·10<sup>5</sup> рад/с, с увеличением амплитуды входного сигнала в 78,12 раза. Точка первого антирезонанса наблюдается при частоте 3,986·10<sup>5</sup> рад/с, амплитуда не увеличивается. В дальнейшем данная АЧХ будет являться эталонной и будет рассматриваться в диапазоне круговых частот от 0 до 3·10<sup>5</sup> рад/с в характерном для станций управления УЭЦН диапазоне эксплуатации. Отметим, что полученная АЧХ является эталонной только для кабеля КПБК-90 3×16, для других типов нефтепогружного кабеля резонанс и антирезонанс АЧХ будет наблюдаться в других точках.

### Аналитическое выражение АЧХ ненагруженного нефтепогружного кабеля на основе математической модели, представленной в форме n-каскадно соединенных четырехполюсников

На практике для исследования электромагнитных процессов, происходящих в НПК, используют математическую модель линии с сосредоточенными параметрами [3, 5, 11–18]. Переход от дифференциальных уравнений в частных производных с распределенными параметрами к дифференциальным уравнениям с сосредоточенными параметрами можно осуществить на основе каскадной схемы замещения [11–20].

Фрагмент каскадной схемы замещения представлен на рис. 5, когда схема состоит из одного звена n=1.



Рис. 5. Схема замещения ненагруженного нефтепогружного кабеля, состоящая из одного элементарного звена с сосредоточенными параметрами

Fig. 5. Equivalent circuit of an unloaded oil submersible cable consisting of one elementary link with lumped parameters

На схеме (рис. 5) n – количество звеньев; r, L, C, g – сопротивления токоведущих жил, индуктивность токоведущих жил, эквивалентная ёмкость фазы относительно двух других фаз и брони, проводимость изоляции соответственно.

При переходе к описанию кабеля системой дифференциальных уравнений возникает вопрос, насколько каскадная модель близка по точности к идеальной. Очевидно, что близость каскадной и идеальной моделей определяется количеством звеньев в схеме замещения.

При *n*=1 каскадная схема замещения описывается системой дифференциальных уравнений (15)

$$\begin{cases} u_{\scriptscriptstyle BX}(t) = i_1(t) \cdot r + L \cdot \frac{di_1(t)}{dt} + u_{\scriptscriptstyle BBIX}(t); \\ i_1(t) = C \cdot \frac{du_{\scriptscriptstyle BBIX}(t)}{dt} + g \cdot u_{\scriptscriptstyle BBIX}(t). \end{cases}$$
(15)

Поскольку дальнейшие выкладки подразумевают использование переходных процессов, для аналитического описания отклика исследуемой модели удобно использовать операторный метод. Произведя преобразование Лапласа системы уравнений (15), получим систему уравнений (16)

$$\begin{cases} U_{\scriptscriptstyle \mathsf{BX}}(p) = r \cdot I_{\scriptscriptstyle 1}(p) + p \cdot L \cdot I_{\scriptscriptstyle 1}(p) + U_{\scriptscriptstyle \mathsf{BbIX}}(p); \\ I_{\scriptscriptstyle 1}(p) = p \cdot C \cdot U_{\scriptscriptstyle \mathsf{BbIX}}(p) + g \cdot U_{\scriptscriptstyle \mathsf{BbIX}}(p). \end{cases}$$
(16)

Перепишем уравнения в более удобном, матричном, виде, связывающем входные и выходные величины (17, 18)

$$\begin{cases} (r+L\cdot p)\cdot I_1(p)+U_{\scriptscriptstyle Bbix}(p)=U_{\scriptscriptstyle Bx}(p);\\ I_1(p)+(-1)\cdot (C\cdot p+g)U_{\scriptscriptstyle Bbix}(p)=0; \end{cases} (17)$$

$$\begin{pmatrix} r+L \cdot p & 1 \\ 1 & -(C \ p+g) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I_1(p) \\ U_{\text{BAX}}(p) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} U_{\text{BX}}(p) \\ 0 \end{pmatrix}. (18)$$

Передаточную функцию, содержащую в себе информацию о спектре устройства, связывающего входные и выходные величины, можно получить как отношение изображений выходной и входной величин (19)

$$W(p) = \frac{U_{\text{BMX}}(p)}{U_{\text{BX}}(p)},\tag{19}$$

здесь  $U_{\text{вых}}(p)$  – изображение выходного напряжения каскадной модели;  $U_{\text{вх}}(p)$  – изображение входного напряжения каскадной модели.

Приведем необходимые преобразования с использованием метода Крамера для более детального анализа передаточной функции (20)

$$U_{\text{BMX}}\left(p\right) = \frac{\Delta U_{\text{BMX}}\left(p\right)}{\Delta\left(p\right)} \rightarrow U_{\text{BMX}}\left(p\right) = \frac{\left|r + L \cdot p \quad U_{\text{BX}}\left(p\right)\right|}{\left|1 \quad 0\right|},$$

$$= \frac{\left|r + L \cdot p \quad U_{\text{BX}}\left(p\right)\right|}{\left|r + L \cdot p \quad 1\right|},$$
(20)

$$U_{\text{BEAX}}(p) = \frac{-U_{\text{BX}}(p)}{\left(-g \cdot r - \left(r \cdot C + g \cdot L\right) \cdot p - L \cdot C \cdot p^{2} - 1\right)},$$
$$W(p) = \frac{-U_{\text{BX}}(p)}{\left(-g \cdot r - \left(r \cdot C + g \cdot L\right) \cdot p - L \cdot C \cdot p^{2} - 1\right)} \cdot \frac{1}{U_{\text{BX}}(p)},$$

здесь  $\Delta(p)$  – детерминант матрицы параметров схемы замещения упрощенной модели.

Для построения АЧХ достаточно в передаточной функции заменить p на  $j\omega$ . Ниже приводятся необходимые преобразования для получения АЧХ кабеля как устройства, связывающего входное и выходное напряжения (рис. 6) (21)

$$W(j\omega) = \frac{-1}{-g \cdot r - j \cdot \omega \cdot (r \cdot C + g \cdot L) + \omega^2 \cdot L \cdot C - 1} \cdot A_1(\omega) = |W(j\omega)|.$$
(21)



Рис. 6. АЧХ математической модели ненагруженного нефтепогружного кабеля, состоящей из одного элементарного звена с сосредоточенными параметрами, и АЧХ ненагруженной кабельной линии с распределенными параметрами

Fig. 6. Frequency response of the mathematical model of an unloaded oil-submersible cable, comprising one elementary link with lumped parameters, and frequency response of an unloaded cable line with distributed parameters График АЧХ каскадной математической модели при n=1 на рис. 6 демонстрирует явную недостаточность звеньев в схеме замещения. Для более точного представления модели кабеля необходимо использовать большее количество звеньев. Предлагаемая модель представлена на рис. 7.

Редуцированная математическая модель ненагруженного нефтепогружного кабеля, представленная на рис. 7, с *n* количеством звеньев описывается системой дифференциальных, а также операторных уравнений (22)

$$\begin{cases} u_{\text{BX}}(t) = i_{1}(t)\frac{r}{n} + \frac{L}{n}\frac{di_{1}(t)}{dt} + u_{1}(t); \\ u_{1}(t) = i_{2}(t)\frac{r}{n} + \frac{L}{n}\frac{di_{2}(t)}{dt} + u_{2}(t); \\ \dots \\ u_{n-1}(t) = i_{n}(t)\frac{r}{n} + \frac{L}{n}\frac{di_{n}(t)}{dt} + u_{\text{BAX}}(t); \\ i_{1}(t) = \frac{C}{n}\frac{du_{1}(t)}{dt} + u_{1}(t)\frac{g}{n} + i_{2}(t); \\ i_{2}(t) = \frac{C}{n}\frac{du_{2}(t)}{dt} + u_{2}(t)\frac{g}{n} + i_{3}(t); \\ \dots \\ i_{n}(t) = \frac{C}{n}\frac{du_{n}(t)}{dt} + u_{n}(t)\frac{g}{n}; \\ U_{\text{BX}}(p) = I_{1}(p)\frac{r}{n} + I_{1}(p)p\frac{L}{n} + U_{1}(p); \\ U_{1}(p) = I_{2}(p)\frac{r}{n} + I_{2}(p)p\frac{L}{n} + U_{2}(p); \\ \dots \\ U_{(n-1)}(p) = I_{n}(p)\frac{r}{n} + I_{n}(p)p\frac{L}{n} + U_{2}(p); \\ I_{1}(p) = U_{1}(p)p\frac{C}{n} + U_{1}(p)\frac{g}{n} + I_{2}(p); \\ I_{2}(p) = U_{2}(p)p\frac{C}{n} + U_{2}(p)\frac{g}{n} + I_{3}(p); \\ \dots \\ I_{n}(p) = U_{n}(p)p\frac{C}{n} + U_{n}(p)\frac{g}{n}. \end{cases}$$
(22)

Поскольку в уравнении используются блочные матрицы, удобно перейти к кронекеровскому произведению матриц, предпочтительному для численной реализации алгоритма (23)

$$W(p) = \frac{-1}{I \otimes A - E + E^{T}}, \qquad (23)$$

здесь

$$A = \begin{pmatrix} \frac{r}{n} + p \cdot \frac{L}{n} & 0\\ 0 & \frac{C}{n} \cdot p + \frac{g}{n} \end{pmatrix}; I = \begin{pmatrix} 1 & 0 & \dots & 0\\ 0 & 1 & 0 & \dots\\ & \ddots & & \ddots & \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix};$$



**Рис.** 7. Схема замещения ненагруженного нефтепогружного кабеля, состоящая из п каскадно-соединённых элементарных звеньев с сосредоточенными параметрами

Fig. 7. Equivalent circuit of an unloaded oil submersible cable, comprising n cascade-connected elementary links with lumped parameters

$$E = \begin{pmatrix} 0 & 1 & \dots & 0 \\ 0 & 0 & 1 & \dots \\ \vdots & \vdots & \ddots & 1 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}; \quad E^{T} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & \dots & 0 \\ 1 & 0 & 0 & \dots \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ 0 & 0 & 1 & 0 \end{pmatrix}.$$

В матричной форме (24)

$$W(p) \begin{pmatrix} I_{1}(p) \\ U_{1}(p) \\ I_{2}(p) \\ U_{2}(p) \\ \cdots \\ I_{n}(p) \\ U_{n}(p) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} U_{\text{BX}}(p) \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ \cdots \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}.$$
(24)

В развернутом виде выражение для передаточной функции выглядит так (25)

$$W(p) = \frac{-1}{\begin{vmatrix} a & -1 & 0 & 0 & \vdots & 0 & 0 \\ 1 & b & -1 & 0 & \vdots & 0 & 0 \\ 0 & 1 & a & -1 & \vdots & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & b & \vdots & -1 & 0 \\ \cdots & \cdots & \cdots & \cdots & \cdots & \cdots & \cdots \\ 0 & 0 & 0 & 1 & \vdots & a & -1 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \vdots & 1 & b \end{vmatrix}},$$

$$a = \frac{r}{n} + p \cdot \frac{L}{n}, \ b = \left(\frac{C}{n} \cdot p + \frac{g}{n}\right). \tag{25}$$

На рис. 8 приведены графические зависимости АЧХ каскадной модели кабеля при  $A_1(\omega,n)=W(j\omega)$  (25) для различного количества звеньев *n* в схеме замещения и его сравнение с идеальной АЧХ длиной линии  $A(\omega, l)$  (14).



**Рис. 8.** Семейство АЧХ  $A_1(\omega, n)$  математической модели ненагруженного нефтепогружного кабеля, состоящей из каскадно-соединённых элементарных звеньев с сосредоточенными параметрами при  $n=1, 2, ..., 5, u A Y A(\omega, l)$  ненагруженной кабельной линии с распределенными параметрами

**Fig. 8.** Frequency response family  $A_1(\omega, n)$  of a mathematical model of an unloaded oil-submersible cable, comprising cascade-connected elementary links with lumped parameters at n=1, 2, ..., 5, and frequency response  $A(\omega, l)$  of an unloaded cable line with distributed parameters

На рис. 8 видно, что с увеличением числа звеньев АЧХ редуцированной модели  $A_1(\omega, n)$  приближается к АЧХ идеальной модели  $A(\omega, l)$ . Вопрос нахождения оптимального количества звеньев рассмотрен в следующем разделе.

## Нелинейное алгебраическое уравнение оптимизации и выбор метода его решения

Для определения достаточного количества звеньев в каскаде необходимо сформулировать критерий, который позволил бы согласовать количество звеньев с точностью представления частотной характеристики с допустимым уровнем ошибки контроллера. Таким критерием может служить функционал ошибки, к формированию которого мы приступим ниже.

При замене модели линии с распределенными параметрами каскадной моделью с сосредоточенными параметрами возникает неизбежная ошибка, зависящая как от числа звеньев – n в модели с сосредоточенными параметрами, так и от ширины частотного диапазона –  $\Omega$  спектра входного сигнала. Оценим близость идеальной модели с распределенными параметрами и модели с сосредоточенными параметрами и модели с сосредоточенными параметрами и модели с сосредоточенными параметрами и возники, зависящим от двух параметров, числа звеньев и ширины спектра (26). Для простоты представления опустим зависимость частотных спектров от длины линии *l*.

$$\varepsilon(\Omega, n) = \frac{\int_{0}^{\Omega} |A(\omega) - A_{1}(\omega, n)| d\omega}{\int_{0}^{\Omega} |A(\omega)| d\omega} \cdot 100 \%, \quad (26)$$

здесь  $A(\omega)$  – спектральная характеристика идеальной модели;  $A_1(\omega, n)$  – спектральная характеристика каскадной модели с сосредоточенными параметрами.

Предложенный функционал позволяет согласовать величину ошибки между идеальной и каскадной моделями с числом звеньев n и шириной спектрального диапазона  $\Omega$  входного сигнала. Для примера проведем определение функционала ошибки на рис. 6, 8 по уравнению (26). Функционал ошибки каждого графика АЧХ относительно идеальной АЧХ длинной линии сведем в табл. 2.

Таблица 2. Функционал ошибки ε(Ω, n) (26) графиков АЧХ на интервале от 0 до 62800 рад/с, рассчитанный на основе исходных данных из табл. 1

**Table 2.** Functional error  $\varepsilon(\Omega, n)$  (26) of the frequency response graphs in the range from 0 to 62800 rad/s calculated based on the initial data from table 1

| Количество звеньев, <i>n</i><br>Number of links, <i>n</i>  | 1      | 2      | 3      | 4      | 5      |
|--|--------|--------|--------|--------|--------|
| Функционал ошибки,<br>$\varepsilon(\Omega, n), \%$<br>Error functionality,<br>$\varepsilon(\Omega, n), \%$ | 5,2306 | 2,4255 | 1,5840 | 1,1767 | 0,9362 |

Анализ табл. 2 доказывает, что с увеличением числа звеньев n в редуцированной динамической модели точность отображения процессов, происходящих в этой линии, приближается к идеальной модели. Из рис. 6, 8 видно, что при увеличении рассматриваемого интервала частоты  $\Omega$  функционал ошибки возрастает.

Выбор минимальной величины ошибки диктуется техническими возможностями устройства регистра-

ции и преобразования данных (разрядностью и частотой дискретизации АЦП микроконтроллера). Очевидно, что выбор верхнего порога ошибки ограничивается возможностью контроллера, и дальнейшее увеличение точности модели является нецелесообразным. Ошибка представления модели должна быть ограничена некоторой наперед заданной величиной, определяемой возможностями технического устройства. Следовательно, необходимо решить нелинейное уравнение, задаваемое невязкой (27)

$$\delta(n) = \varepsilon(\Omega, n) - \varepsilon_0, \qquad (27)$$

где  $\varepsilon_0$  – погрешность в %, которую требуется обеспечить приближенной модели с сосредоточенными параметрами, относительно идеальной модели.

Заметим, что функционал ошибки  $\varepsilon(\Omega, n)$  обратно пропорционален числу звеньев n и, следовательно, является монотонной функцией переменной n (28)

$$\varepsilon(\Omega, n) \sim \frac{1}{n}, \ \frac{\partial}{\partial n} \varepsilon(\Omega, n) \sim -\frac{1}{n^2}.$$
 (28)

Возможные варианты минимизации функционала  $\varepsilon(\Omega, n)$ , – это использование итерационных методов поиска корней, метода Ньютона–Рафсона или метода секущих (известный под названием метода хорд). Метод Ньютона–Рафсона требует вычисления производных, что в данном случае является неудобным. Поэтому, в силу дискретности значений *n*, предпочтение отдано методу секущих.

Разлагая функцию невязки  $\delta(n)$  в ряд Тейлора в окрестности корня и удерживая члены первого порядка малости, получим алгебраическое итерационное уравнение для определения n (29)

$$0 \sim \delta(n) + \delta'(n) (\overline{n} - n) + \dots \rightarrow \overline{n} = n - \frac{\delta(n)}{\delta'(n)}, \quad (29)$$

где  $\bar{n}$  – ожидаемый корень.

Заменяя производную дискретной разностью и записывая выражение в виде итерации, получим (30)

$$n_{i+1} = n_i - \frac{(n_i - n_{i-1})\delta(n_i)}{\delta(n_i) - \delta(n_{i-1})}$$
(30)

Итерация начинается с точки, в которой выполняется условие  $\delta(n)\delta'(n)>0$ . Скорость сходимости процесса оценивается выражением, где производные заменяются конечными разностями (31)

$$a = \frac{\delta''(n)}{2\delta'(n)} = \frac{\varepsilon''(n)}{2\varepsilon'(n)} \sim \frac{1}{n}$$
(31)

На рис. 9 представлен итерационный метод секущих для определения корней нелинейного уравнения невязки. Из рис. 9 видно, что решение уравнения методом секущих позволяет находить корень уравнения за относительно малое количество итераций.

Предлагаемый алгоритм позволяет определять оптимальное количество звеньев редуцированной динамической модели кабеля, описываемой системой обыкновенных дифференциальных уравнений. Определение количества звеньев основано на сравнении АЧХ кабеля как линии с распределёнными параметрами и АЧХ кабеля как каскада *n* соединённых *Г*-образных звеньев.



**Рис. 9.** Качественное представление итерационного метода секущих для определения корней нелинейного уравнения невязки δ(n)=ε(Ω,n)-ε<sub>0</sub>

Fig. 9. Qualitative representation of the iterative secant method for determining the roots of the nonlinear residual equation  $\delta(n) = \varepsilon(\Omega, n) - \varepsilon_0$ 

Анализ был проведён для реально используемого в Российской нефтяной отрасли кабеля типа КПБК-90 3×16. Длина кабеля для удобства вычислений принята 1 км, при этом методика позволяет определять оптимальное количество звеньев редуцированной динамической модели кабеля фактически любой используемой длины.

## Результаты расчетов и их обсуждение

При использовании вышеописанного алгоритма в частотном диапазоне от 0 до 314 рад/с (0...50 Гц), что соответствует работе погружного электродвигателя при промышленной частоте переменного тока, алгоритм выдает значение количества элементарных звеньев n=1, что даёт возможность замещения кабеля одним сосредоточенным Г-образным звеном, при этом невязка составляет  $\delta(n)=0,0001$  %, что свидетельствует о хорошей работе алгоритма.

Нефть в России (Западная Сибирь) в основном добывается при помощи УЭЦН, которые в большинстве своем оснащены станциями управления с преобразователями частоты (Электон, Борец, *Triol* и т. д.). Линейная частота коммутации транзисторов в преобразователях может доходить до 10 кГц, что соответствует круговой частоте 62800 рад/с. На частоте 62800 рад/с при принудительном останове алгоритма при n=10 невязка составляет  $\delta(n) = 0,46$  %. Однако при продолжении итераций, при автоматическом останове, величина невязки существенно снижается до  $\delta(n)=0,0919$  %, и алгоритм выдает значение числа звеньев равное n=50. Графическое представление работы алгоритма представлено на рис. 10, а результаты расчета сведены в табл. 3, 4.



**Рис. 10.** Целевая функция определения оптимального порядка редуцированной модели ненагруженного нефтепогружного кабеля и итерационный процесс определения количества звеньев методом секущих



- Таблица 3. Сводная таблица зависимости функционала ошибки ε(Ω, n) на интервале от 0 до 62800 рад/с от количества звеньев КПБК-90 3×16
- **Table 3.** Summary table of the dependence of the functional error  $\varepsilon$  ( $\Omega$ , n) in the interval from 0 to 62800 rad/s on the number of links of the KPBK-90 3×16 cable

|                 |    | Длина кабеля/Cable length <i>l</i> =1 km                            |
|-----------------|----|---|
|                 |    | Функционал ошибки/Error functionality, $\varepsilon(\Omega, n)$ , % |
|                 | 1  | 5,2305  |
|                 | 5  | 0,9362  |
| ⊖ B             | 10 | 0,4632  |
| Hbe             | 15 | 0,3078  |
| 3Be<br>f lii    | 20 | 0,2305  |
| BO<br>LO        | 25 | 0,1842  |
| -IIC            | 30 | 0,1534  |
| - K(            | 35 | 0,1314  |
| - <i>n</i> - (I | 40 | 0,1149  |
|                 | 45 | 0,1021  |
|                 | 50 | 0,0919  |

| Таблица 4. | Итерационный процесс определения порядка |
|------------|--|
|            | редуцированной модели методом секущих    |

| Table 4. | Iterative process of determining the order of the |
|----------|---|
|          | reduced model by the secant method                |

| <i>i</i> , номер<br>итерации<br>(iteration<br>number)            | 1 | 2 | 3 | 4 | 5  | 6  | 7  | 8  | 9  | 10 | 11 | 12 |
|--|---|---|---|---|----|----|----|----|----|----|----|----|
| <i>n<sub>i</sub></i> , кол-во<br>звеньев<br>(number<br>of links) | 2 | 3 | 5 | 8 | 12 | 17 | 25 | 34 | 42 | 47 | 49 | 50 |
| $ n_i - n_{i-1} $  | - | 1 | 2 | 3 | 4  | 5  | 8  | 9  | 8  | 5  | 2  | 0  |

Как видно из табл. 4, решение находится за 12 итераций, что говорит о приемлемой скорости

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Алексеев А.П. Путь наверх // Сибирская нефть корпоративный журнал ПАО «Газпром Нефть». 2018. № 149. С. 14–19.
- Разработка наблюдателя полного порядка с оперативным мониторингом момента сопротивления для погружных асинхронных электродвигателей / А.С. Глазырин, С.Н. Кладиев, К.С. Афанасьев, В.В. Тимошкин, И.Г. Слепнёв, В.И. Полищук // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2018. – Т. 329. – № 2. – С. 118–126.
- Математическая модель кабельной линии электропередачи с изоляцией из сшитого полиэтилена при подземной прокладке / В.А. Ткаченко, О.В. Кропотин, А.О. Шепелев, В.О. Кропотин // Омский научный вестник. – 2018. – № 6 (162). – С. 137–141. DOI: 10.25206/1813-8225-2018-162-137-141
- Физика диэлектриков (область сильных полей). 2-е изд. / Г.А. Воробьев, Ю.П. Похолков, Ю.Д. Королев, В.И. Меркулов. – Томск: Изд-во Томского политехнического университета, 2011. – 245 с.
- Белоруссов Н.И., Саакян А.Е., Яковлева А.И. Электрические кабели, провода и шнуры. Справочник. – М.: Энергоатомиздат, 1987. – 536 с.
- Копылов И.П. Математическое моделирование электрических машин. – М.: Высш. шк., 2001. – 327 с.
- Каганов. З.Г. Волновые напряжения в электрических машинах. – М.: Энергия, 1970. – 208 с.
- Корицкий Ю.В., Пасынков В.В., Тареев Б.М. Справочник по электротехническим материалам. В трех томах. Т. 1. – М.: Энергоатомиздат, 1986. – 368 с.
- Кукуджанов К.В., Левитин А.Л. Процессы деформирования упругопластического материала с дефектами при электродинамическом нагружении // Вестник ПНИПУ. Механика. – 2015. – № 1. – С. 106–120.

сходимости итерационного процесса для инженерной практики.

### Заключение

В статье описан разработанный авторами метод, позволяющий заменить погружной кабель - линию с распределенными параметрами, схемой замещения совокупностью Г-образных звеньев с сосредоточенными параметрами. Метод позволяет оптимизировать количество звеньев редуцированной динамической модели нефтепогружного кабеля с желаемой точностью. Результаты моделирования показали, что для корректной аппроксимации рассматриваемого нефтепогружного кабеля достаточно 50 каскадносоединённых четырёхполюсников. При этом по сравнению с эталонной моделью, представленной линией с распределёнными параметрами, ошибка составляет менее 0,1 %.

В будущем редуцированная динамическая модель нефтепогружного кабеля, оптимизированная по количеству звеньев, станет частью математической модели электротехнического комплекса УЭЦН в составе «ПЧ-СФ-ПТ-НПК-ПЭД». Математическая модель электротехнического комплекса УЭЦН позволит создать наблюдатель переменных состояний ПЭД на забое нефтедобывающей скважины и реализовать замкнутую систему управления ПЭД. Замкнутая система управления ПЭД позволит правильно, с точки зрения электропривода, и с заранее прогнозируемым результатом перевести низко- и среднедебитный фонд нефтяных скважин на циклический режим эксплуатации, а это в конечном итоге приведет к увеличению рентабельности добычи нефти из таких скважин.

- Определение погонных электротехнических параметров нефтепогружного кабеля / А.С. Глазырин, Ю.Н. Исаев, С.Н. Кладиев, А.П. Леонов, И.В. Раков, С.В. Колесников, С.В. Ланграф, А.А. Филипас, В.А. Копырин, Р.Н. Хамитов, В.З. Ковалев, А.В. Лавринович // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2021. – Т. 332. – № 6. – С. 186–197.
- Parida N., Das A. A modular multilevel converter with filter capacitor for long-cable-fed drive application // IEEE Trans. Ind. Appl. – 2019. – V. 55. – № 6. – P. 7833–7842. DOI: 10.1109/TIA.2019.2931674
- Driving AC motors through a long cable: the inverter switching strategy / J.A. Pomilio, C.R. de Souza, L. Matias, P.L.D. Peres, I.S. Bonatti // IEEE Trans. Energy Convers. – 1999. – V. 14. – № 4. – P. 1441–1446. DOI: 10.1109/60.815087
- De Paula V.C., De Paula H. Employing DC transmission in long distance AC motor drives: analysis of the copper economy and power losses reduction in mining facilities // IEEE Trans. Ind. Appl. – 2018. – V. 54. – № 1. – P. 841–847. DOI: 10.1109/TIA.2017.2740829
- Khedher S.A. On the overvoltage of three phase induction motor fed by two levels inverter // 2019 Int. Conf. Signal, Control Commun. – Hammamet, Tunisia, 2019. pp. 1–5. DOI: 10.1109/SCC47175.2019.9116098
- Liang X., Member S., El-kadri A. Operational parameters affecting harmonic resonance in electrical submersible pump systems // Can. J. Electr. Comput. Eng. – 2019. – V. 42. – № 3. – P. 183–197. DOI: 10.1109/CJECE.2019.2922384
- Overvoltage at motor terminals in SiC-based PWM drives / B. Taghia, B. Cougo, H. Piquet, D. Malec, A. Belinger, J.P. Carayon // Math. Comput. Simul. – 2019. – V. 158. – P. 264–280. DOI: 10.1016/j.matcom.2018.09.009

- Overvoltage mitigation of medium voltage electric drives with long cables using multilevel-converters and passive filters / C. Larsson, A. Rydgard, G. Mademlis, Y. Liu, M. Fredriksson // 2019 21st Eur. Conf. Power Electron. Appl. EPE 2019 ECCE Eur. – Genova, Italy, 2019. – P. 1–10. DOI: 10.23919/EPE.2019.8915441
- High-frequency modeling for cable and induction motor overvoltage studies in long cable drives / A.F. Moreira, T.A. Lipo, G. Venkataramanan, S. Bernet // IEEE Trans. Ind. Appl. – 2002. – V. 38. – № 5. – P. 1297–1306. DOI: 10.1109/TIA.2002.802920
- Resonances and overvoltages in a medium-voltage fan motor drive with long cables in an underground mine / J. Rodriguez, J. Pontt,

## Информация об авторах

**Глазырин А.С.**, доктор технических наук, профессор отделения электроэнергетики и электротехники Инженерной школы энергетики Национального исследовательского Томского политехнического университета; профессор Института нефти и газа Югорского государственного университета.

*Исаев Ю.Н.*, доктор физико-математических наук, профессор отделения электроэнергетики и электротехники Инженерной школы энергетики, профессор отделения автоматизации и робототехники Инженерной школы информационных технологий и робототехники Национального исследовательского Томского политехнического университета.

*Кладиев С.Н.*, кандидат технических наук, доцент отделения электроэнергетики и электротехники Инженерной школы энергетики Национального исследовательского Томского политехнического университета.

*Леонов А.П.*, кандидат технических наук, доцент отделения электроэнергетики и электротехники Инженерной школы энергетики Национального исследовательского Томского политехнического университета.

*Раков И.В.*, инженер-проектировщик АСУ ТП, ООО Научно-производственное предприятие «Томская электронная компания».

*Колесников С.В.*, ассистент отделения электроэнергетики и электротехники Инженерной школы энергетики Национального исследовательского Томского политехнического университета.

*Ланграф С.В.*, кандидат технических наук, руководитель сектора разработки встроенного ПО, ООО «НПФ Мехатроника-Про».

**Филипас** А.А., кандидат технических наук, доцент отделения автоматизации и робототехники Инженерной школы информационных технологий и робототехники Национального исследовательского Томского политехнического университета.

*Копырин В.А.*, кандидат технических наук, доцент кафедры электроэнергетики Тюменского индустриального университета.

*Хамитов Р.Н.*, доктор технических наук, профессор кафедры электрической техники Омского государственного технического университета; профессор кафедры электроэнергетики Тюменского индустриального университета.

*Ковалев В.З.*, доктор технических наук, профессор Института нефти и газа Югорского государственного университета.

20. Transient voltage distribution in inverter fed motor windings: Experimental study and modeling / P. Bidan, T. Lebey, G. Montseny, C. Neacsu, J. Saint-Michel // IEEE Trans. Power Electron. - 2001. - V. 16. - № 1. - P. 92-100. DOI: 10.1109/63.903993

Поступила 24.08.2021 г.

## UDC 621.315.22

# UNLOADED OIL-SUBMERSIBLE CABLE REDUCED DYNAMIC MODEL ORDER OPTIMIZATION BASED ON THE FREQUENCY RESPONSE APPROXIMATION

Alexander S. Glazyrin<sup>1,2</sup>, asglazyrin@tpu.ru

Yusup N. Isaev<sup>1</sup>, isaev\_yusup@mail.ru

Sergey N. Kladiev<sup>1</sup>, kladiev@tpu.ru

Andrey P. Leonov<sup>1</sup>, leonov\_ap@tpu.ru

Ivan V. Rakov<sup>3</sup>, rakovivan@live.com

## Stanislav V. Kolesnikov<sup>1</sup>,

svk3@tpu.ru

Sergey V. Langraf<sup>4</sup>, sergeylgrf@gmail.com Alexander A. Filipas<sup>1</sup>,

filipas@tpu.ru

Vladimir A. Kopyrin<sup>5</sup>, kopyrinva@gmail.com

Rustam N. Khamitov<sup>6,5</sup>, apple\_27@mail.ru

Vladimir Z. Kovalev<sup>2</sup>, vz\_kovalev@mail.ru

- <sup>1</sup> National Research Tomsk Polytechnic University, 30, Lenin avenue, Tomsk, 634050, Russia.
- <sup>2</sup> Yugra State University,16, Chekhov street, Khanty-Mansiysk, 628012, Russia.
- <sup>3</sup> Scientific and Manufacturing Enterprise «Tomsk Electronic Company», Ltd., 33, Vysotsky street, Tomsk, 634040, Russia.
- <sup>4</sup> NPF Mechatronica-Pro LTD, 119E, Frunze avenue, Tomsk, 634021, Russia.
- <sup>5</sup> Industrial University of Tyumen, 38, Volodarsky street, Tyumen, 625000, Russia.
- <sup>6</sup> Omsk State Technical University, 11, Mira avenue, Omsk, 644050, Russia.

The relevance. An oil-submersible cable transfers electrical energy from an energy source to submersible electric motors of oil production plants. Resonant peaks localized in a narrower frequency band characterize the frequency response of an unloaded cable, which allows us to correctly optimize the order of the reduced cable line model based on the minimum error criterion. The principal methods of mathematical description of the oil-submersible cable model are systems of ordinary differential equations and systems of partial differential equations. The first method of mathematical description of the model of an oil-submersible cable comprising one elementary four-pole with a longitudinal active-inductive and transverse active-capacitive components allows calculating the power balance and the energy transfer at the first harmonic, considering losses on the ohmic (active) resistance, as well as losses in cable insulation. Using a mathematical model comprising one elementary four-pole is unacceptable for more complex tasks, such as diagnostics of the cable damage site, identification and evaluation of the parameters of the submersible engine based on ground measurements, control of the transient process of the submersible engine during start-up, and others. The second method of mathematical description of the oilsubmersible cable model is based on «telegraphic» equations as partial differential equations. The main advantage of such a mathematical model is the increased accuracy of the analysis of specific modes inherent in long electric lines, such as forward and reverse waves, resonant phenomena that occur during the mutual exchange of energy between the electric and magnetic components of the electromagnetic field. The disadvantages include the technical difficulties of combining a mathematical model of a cable based on a partial differential systems of differential equations and a mathematical model of a submersible engine based on a system of differential equations in the normal Cauchy form. Also, it is extremely difficult to implement models of long electric lines based on «telegraph» equations in practice in a microcontroller for real-time systems built based on digital signal processes. From the point of view of applying dynamic models in real-time digital systems, the transition from a mathematical model of a cable with distributed parameters to a mathematical model of a cable with concentrated parameters, i. e. to four-pole cables, is relevant. With such a transition, it is unacceptable to use a mathematical model represented by one link, since unacceptable inconsistencies arise between the work of a proper object and the mathematical model of this object. This does not allow us to reliably display the processes occurring in the cable when powered by a frequency converter. Using a model with an almost infinite number of four-poles is not advisable, since the calculation of such a model will take a large amount of processor time, which is not acceptable in real-time systems and negates the advantages of switching from a mathematical model with distributed parameters. Considering the above, determining the optimal order of the reduced dynamic model of an unloaded oil-submersible cable based on the approximation of its frequency response is an urgent, scientific and practically significant task.

**The main aim** of the research is to develop a method for determining the minimum required and sufficient number of links of a reduced mathematical model of an oil submersible cable with lumped parameters for its operation with an accuracy in transient and steady-state operating modes.

**Methods:** system of differential equations in Cauchy normal form, system of partial differential equations, nonlinear algebraic equations, Cramer's method, numerical methods, theory of four-poles, theory of long lines with distributed parameters, state space method, methods of frequency analysis, optimization methods.

**Results.** The authors have got a reduced dynamic model, comprising the minimum required and sufficient number of two-port networks, which makes it possible with an accuracy to analyze transient and steady-state electromagnetic processes along the length of the cable line and at various forms of voltage at the input. The resulting reduced model is applied for identification of cable and submersible motor parameters; constructing observers of variable states of a submersible electric motor; diagnostics of the integrity of electrical circuits; determination of stress distribution along the length of the cable line. The resulting reduced dynamic model allows as well evaluating the entire range of dynamic modes of operation, in contrast to the prototype model. The developed reduced dynamic model of a submersible cable, described in ordinary differential equations, is a convenient notation for the mathematical description of the cable as a subsystem of the electrical complex of an electric centrifugal pump installation.

#### Key words:

Long cable, cascade connection of four-port networks, reduced model of a cable line, long line with distributed parameters, frequency response, oil submersible cable, electrical submersible pump.

### REFERENCES

- Alekseev A.P. Way up. Siberian Oil corporate magazine of PJSC Gazprom Neft, 2018, no. 149, pp. 14 – 19. In Rus.
- Glazyrin A.S., Kladiev S.N., Afanasiev K.S., Timoshkin V.V., Slepnev I.G., Polishchuk V.I. Design of full order observer with real time monitoring of load torque for submersible induction motors. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2018, vol. 329, no. 2, pp. 118-126. In Rus.
- Tkachenko V.A., Kropotin O.V., Shepelev A.O., Kropotin V.O. Mathematical model of a cable power line with XLPE insulation for underground laying. *Omsk Scientific Bulletin*, 2018, no. 6 (162), pp. 137–141. In Rus. DOI: 10.25206 / 1813-8225-2018-162-137-141.
- Vorobiev G.A., Pokholkov Yu.P., Korolev Yu.D., Merkulov V.I. *Fizika dielecktrikov (oblast silnykh poley)* [Physics of dielectrics (region of strong fields)]. Tomsk, Tomsk Polytechnic University Publ. house, 2011. 245 p.
- Belorussov N.I., Sahakyan A.E., Yakovleva A.I. *Electricheskie* kabeli, provoda i shnury [Electrical cables, wires and cords]. Moscow, Energoatomizdat Publ., 1987. 536 p.
- Kopylov I.P. Matematicheskoe modelirovanie electricheskikh machin [Mathematical modeling of electrical machines]. Moscow, Vysshaya shkola Publ., 2001. 327 p.
- Kaganov. Z.G. Volnovye napryazheniya v electricheskikh machinakh [Wave voltages in electrical machines]. Moscow, Energiya Publ., 1970. 208 p.
- Koritsky Yu.V., Pasynkov V.V., Tareev B.M. Spravochnik po electricheskim materialam. T. 1 [Reference book on electrical materials. In three volumes. Vol. 1]. Moscow, Energoatomizdat Publ., 1986. 368 p.
- Kukudzhanov K.V., Levitin A.L. Deformation processes of elastoplastic material with defects under electrodynamic loading. *PNRPU Mechanics Bulletin*, 2015, no. 1, pp. 106–120. In Rus. DOI: 10.15593/perm.mech/2015.1.07.
- Glazyrin A.S., Isaev Yu.N., Kladiev S.N., Leonov A.P., Rakov I.V., Kolesnikov S.V., Langraf S.V., Filipas A.A., Kopyrin V.A., Khamitov R.N., Kovalev V.Z., Lavrinovich A.V. Determination of running electrical characteristics of oil submersible cable. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University*. *Geo Assets Engineering*, 2021, vol. 332, no. 6, pp. 186–197. In Rus.
- 11. Parida N., Das A. A modular multilevel converter with filter capacitor for long-cable-fed drive application. *IEEE Trans. Ind.*

*Appl.*, 2019, vol. 55, no. 6, pp. 7833–7842. DOI: 10.1109/TIA.2019.2931674

- Pomilio J.A., De Souza C.R., Matias L., Peres P.L.D., Bonatti I.S. Driving AC motors through a long cable: the inverter switching strategy. *IEEE Trans. Energy Convers.*, 1999, vol. 14, no. 4, pp. 1441–1446. DOI: 10.1109/60.815087
- De Paula V.C., De Paula H. Employing DC transmission in long distance AC motor drives: analysis of the copper economy and power losses reduction in mining facilities. *IEEE Trans. Ind. Appl.*, 2018, vol. 54, no. 1, pp. 841–847. DOI: 10.1109/TIA.2017.2740829
- Khedher S.A. On the overvoltage of three phase induction motor fed by two levels inverter. 2019 Int. Conf. Signal, Control Commun. Hammamet, Tunisia, 2019. pp. 1–5. DOI: 10.1109/SCC47175.2019.9116098.
- Liang X., Member S., El-kadri A. Operational parameters affecting harmonic resonance in electrical submersible pump systems. *Can. J. Electr. Comput. Eng.*, 2019, vol. 42, no. 3, pp. 183–197. DOI: 10.1109/CJECE.2019.2922384
- Taghia B., Cougo B., Piquet H., Malec D., Belinger A., Carayon J.P. Overvoltage at motor terminals in SiC-based PWM drives. *Math. Comput. Simul.*, 2019, vol. 158, pp. 264–280. DOI: 10.1016/j.matcom.2018.09.009
- Larsson C., Rydgard A., Mademlis G., Liu Y., Fredriksson M. Overvoltage mitigation of medium voltage electric drives with long cables using multilevel-converters and passive filters. 2019 21st Eur. Conf. Power Electron. Appl. EPE 2019 ECCE Eur. Genova, Italy, 2019. pp. 1–10. DOI: 10.23919/EPE.2019.8915441
- Moreira A.F., Lipo T.A., Venkataramanan G., Bernet S. Highfrequency modeling for cable and induction motor overvoltage studies in long cable drives. *IEEE Trans. Ind. Appl.*, 2002, vol. 38, no. 5, pp. 1297–1306. DOI: 10.1109/TIA.2002.802920
- Rodriguez J., Pontt J., Silva C., Musalem R., Newman P., Vargas R., Fuentes S. Resonances and overvoltages in a medium-voltage fan motor drive with long cables in an underground mine. *IEEE Trans. Ind. Appl.*, 2006,vol. 42, no. 3, pp. 856–863. DOI: 10.1109/TIA.2006.872936
- Bidan P., Lebey T., Montseny G., Neacsu C., Saint-Michel J. Transient voltage distribution in inverter fed motor windings: Experimental study and modeling. *IEEE Trans. Power Electron.*, 2001, vol. 16, no. 1, pp. 92–100. DOI: 10.1109/63.903993

Received: 24 August 2021.

#### Information about the authors

Alexander S. Glazyrin, Dr. Sc., professor, National Research Tomsk Polytechnic University; professor, Yugra State University.

Yusup N. Isaev, Dr. Sc., professor, National Research Tomsk Polytechnic University.

Sergey N. Kladiev, Cand. Sc., associate professor, National Research Tomsk Polytechnic University. Andrey P. Leonov, Cand. Sc., associate professor, National Research Tomsk Polytechnic University. Ivan V. Rakov, design engineer, Scientific and Manufacturing Enterprise «Tomsk Electronic Company», Ltd.
 Stanislav V. Kolesnikov, graduate assistant, National Research Tomsk Polytechnic University.
 Sergey V. Langraf, head of the embedded software development sector, NPF Mechatronica-Pro Ltd.
 Alexander A. Filipas, Cand. Sc., associate professor, National Research Tomsk Polytechnic University.
 Vladimir A. Kopyrin, Cand. Sc., associate professor, Industrial University of Tyumen.
 Rustam N. Khamitov, Dr. Sc., professor, Omsk State Technical University; professor, Industrial University of Tyumen.
 Vladimir Z. Kovalev, Dr. Sc., professor, Yugra State University.

УДК 004.021; 004.932; 519.673+519.24+621.391

# МОДИФИЦИРОВАННАЯ ОЦЕНКА ПРЭТТА-ЯСКОРСКОГО В ОБОБЩЕННОМ ПОКАЗАТЕЛЕ КАЧЕСТВА АЛГОРИТМОВ КОНТУРНОГО ДЕТЕКТИРОВАНИЯ

Кочегуров Александр Иванович<sup>1</sup>, kaicc@tpu.ru

Дубинин Дмитрий Владимирович<sup>2</sup>,

dmitrii.v.dubinin@tusur.ru

## Виктор Герингер<sup>3</sup>,

geringer@dhbw-ravensburg.de

- <sup>1</sup> Национальный исследовательский Томский политехнический университет, Россия, 634050, г. Томск, пр. Ленина, 30.
- <sup>2</sup> Томский государственный университет систем управления и радиоэлектроники, Россия, 634050, г. Томск, пр. Ленина, 40.
- <sup>3</sup> Баден-Вюртембергский объединенный государственный университет, Германия, 88045, Фридрихсхафен, Фалленбруннен, 2.

Актуальность работы. Получение количественных оценок эффективности алгоритмов анализа изображений является весьма актуальной задачей, в том числе и задача оценки эффективности контурных детекторов. Выбор надежных алгоритмов выделения контуров на изображениях волновых полей имеет особое значение при построении цифровых двойников нефтяных месторождений. Так, для изучения околоскважинного и межскважинного пространства необходимо использовать алгоритмы оконтуривания, обладающие высокой помехоустойчивостью в сложных сейсмогеологических условиях. Выбор таких алгоритмов должен быть основан на комплексном анализе качества выделяемых контуров, включающем такие элементы, как смещение, разрыв и смазывание границ. В этом плане большой интерес представляет метод получения оценок эффективности контурных детекторов на основе расчета обобщённого показателя качества выделения границ, предложенный в работе І. Boaventura и А. Gonzaga в 2009 г. Обобщённый показатель качества определён авторами статьи в виде нормы вектора в евклидовом пространстве. Одну из координат вектора составляет обратная величина метрики Прэтта, которая учитывает интегральную величину смещения элементов обнаруженного контура. Остальные координаты вектора формируются на основе бинарной классификации. В работах Д.В. Дубинина, А.И. Кочегурова и В. Герингера приведены исследования эффективности показателя качества І. Boaventura и А. Gonzaga путем вычислительного эксперимента. Эталонные изображения в процессе эксперимента аппроксимировались двумерным точечным потоком восстановления, что позволило реализовать принципы постановки эксперимента по Фишеру (принцип Рандомизации). Анализ полученных экспериментальных данных показал ряд недостатков обобщённого показателя качества А. Gonzaga и І. Boaventura. В частности, при малых отношениях сигнала к шуму (с/ш) были получены завышенные значения критерия Прэтта, что, в свою очередь, приводило к заниженным оценкам обобщённого показателя качества. Действительно, будучи чувствительным к локальным смещениям границы, критерий Прэтта плохо реагирует на пропуски элементов в разорванных контурах, что и приводит к неоправданно высоким значениям критерия при малых отношениях с/ш. Это утверждение было высказано А.В. Яскорским еще в 1987 г. и нашло свое доказательство в результатах вычислительного эксперимента. Таким образом, существует реальная необходимость повышения достоверности оценок качества детектирования, получаемых на основе обобщённого показателя I. Boaventura и А. Gonzaga. С этой целью предлагается в обобщенный показатель качества вместо критерия Прэтта ввести его модифицированный аналог (Modification Pratt's Figure of Merit), предложенный и детально рассмотренный нами в более ранних работах. Вопросам исследования обобщённого показателя І. Boaventura и А. Gonzaga с модифицированным критерием Прэтта посвящена настоящая работа.

Методы и средства исследования: системный анализ, стохастическое имитационное моделирование, цифровая обработка изображений, методы визуализации данных. Также применялись методы анализа, основанные на постепенной формализации моделей путем активизации интуиции специалистов. Вычислительный эксперимент проводился в среде «Delphi», а валидация численной модели осуществлялась с использованием среды «Mathcad». Результаты исследования дадут возможность выбора объективного критерия оценки качества построения контурных границ при создании цифрового двойника нефтяного месторождения.

#### Ключевые слова:

Стохастическое моделирование, обработка изображений, цифровой двойник нефтяного месторождения, оценки эффективности, критерий качества, критерий Прэтта, бинарная классификация.

## Введение

К настоящему времени создано достаточно большое количество алгоритмов сегментации, скелетизации и оконтуривания, которые широко используются в таких областях, как дактилоскопия, идентификация личности, распознавание текста, обработка изображений, спутниковых и рентгеновских снимков, построение геологических разрезов при поиске нефтяных и газовых месторождений и т. д., что требует построения объективных критериев для сравнения разработанных алгоритмов. Для оценки этих алгоритмов, в том числе операторов получения контурного рисун-

ка [1-10], предложено немало методов, в том числе и в последнее время [11-13]. Однако, несмотря на большое количество предложенных критериев для оценки качества алгоритмов оконтуривания, трудно найти критерий, позволяющий получить объективные оценки с высокой степенью достоверности, особенно при наличии интенсивной шумовой составляющей в сигнале. В связи с этим представляет значительный интерес дальнейшее исследование существующих критериев и создание на их основе новых, более мощных критериев сравнения эффективности контурных детекторов. Одним из подходов к созданию таких критериев является модификация показателя качества алгоритмов детектирования, предложенного в работе [14]. Авторы статьи предлагают получать оценки качества детекторов на основе вычисления нормы вектора с четырьмя компонентами: IMPоценка Прэтта [15], вероятность правильного обнаружения, вероятность пропуска границы (ошибка первого рода), вероятность ложного выделения границ (ошибка второго рода). Такой подход позволяет достаточно объективно оценивать качество работы детекторов при высоких отношениях сигнала к шуму. При малых отношениях сигнал/шум достоверность получаемых оценок существенно снижается, что, прежде всего, связано с завышением значений критерия Прэтта [16]. Эти утверждения следуют из результатов исследований показателя качества DL на программном комплексе статистического моделирования «КИМ СП» [17], где были построены оценки качества по критерию Прэтта в зависимости от мощности шума для нескольких алгоритмов оконтуривания, а также получены ошибки первого и второго рода. Данное обстоятельство привело к необходимости доработки критерия Прэтта [18] и построения модификации этого критерия качества Modification Pratt's Figure of Merit. В настоящей работе предлагается изменить комплексный статистический показатель качества DL [14] путем замены составляющей критерия качества, а в частности метрики Прэтта на её модифицированный аналог – метрику Прэтта–Яскорского [18], провести модификационное изменение обобщённого показателя качества и его нормировку в базисе выбранного евклидового пространства, на основе нового обобщённого комплексного показателя качества MDL провести оценку ряда алгоритмов поиска и локализации границ.

## Математическая формализация задачи

В работе [14] авторами был предложен обобщённый комплексный показатель качества в виде нормы вектора:

$$DL = \sqrt{(P_{co} - 1)^2 + (PFoM - 1)^2 + P_{\alpha}^2 + P_{\beta}^2}, \quad (1)$$

где  $P_{co}$  – вероятность правильного обнаружения; PFoM – оценка качества по критерию Прэтта (*Pratt's Figure of Merit*);  $P_a$  – вероятность пропуска границы (ошибка первого рода, *False Negative*);  $P_{\beta}$  – вероятность ложного выделения границ (ошибка второго рода, *False Positive*). К основным недостаткам данного показателя, как уже отмечалось выше, необходимо отнести завышенные значения критерия Прэтта при низких отношениях с/ш (PSNR: *Peak Signal-to-Noise Ratio*), а также линейную зависимость элементов, входящих в показатель.

Для устранения недостатков обобщённого комплексного показателя качества из [14] проведем следующие рассуждения. Вначале напомним, что первым, еще до появления обобщенного показателя в [14], на высокие значения критерия Прэтта обратил внимание А.В. Яскорский. Поэтому он предложил в критерий Прэтта внести дополнительную метрику так, чтобы данный критерий учитывал не только смещение контура, но и число пропущенных элементов в отдельных разрывах контура, а также и само число разрывов. Однако никаких экспериментальных исследований, предложенных Яскорским по модификации критерия Прэтта проведено не было, что не позволило оценить эффективность предлагаемого подхода. Следующим шагом видоизменения критерия Прэтта-Яскорского является его модифицированный, мультипликативный количественный критерий (MPFoM: Modification Pratt's Figure of Merit), предназначенный для оценки детекторов границ [18]. Модифицированный критерий обобщает уже три основные метрики, оценивающие следующие ошибки: а) смещения границ (LE: Localization Error); б) смазывание или утолщение границ (MRE: Multiples Responses Error); с) разрыв границ (OE: Omission Error). Его обобщённый вид представлен в следующей мультипликативной форме:

$$MPFoM = FoM_{IE} \bullet FoM_{MRE} \bullet FoM_{OE}, \qquad (2)$$

где MPFoM – модифицированный критерий Прэтта– Яскорского;  $FoM_{LE}$  – метрика, учитывающая смещение границ;  $FoM_{MRE}$  – метрика, учитывающая смазывание или утолщение границ;  $FoM_{OE}$  – метрика, учитывающая разрыв границ.

Подробные исследования данного критерия освещены в [18] и показали объективность получаемых оценок при низком отношении с/ш.

Поэтому при формировании нового обобщённого комплексного показателя качества, вместо критерия Прэтта, принятого в показателе DL, будем использовать модифицированный критерий Прэтта–Яскорского (2). Также обратим внимание, что в выражении (1) присутствуют элементы, линейно связанные между собой, а именно вероятность правильного обнаружения  $P_{co}$  и вероятность пропуска границы  $P_{a}$ : $P_{a}=1-P_{co}$ . Исходя из соображений, что отдельно взятые элементы по возможности не должны иметь прямой зависимости, мы исключим из показателя качества MDL вероятность пропуска границы  $P_{a}$  и проведем нормировку результата.

Тогда модифицированный обобщённый комплексный показатель качества MDL принимает вид:

$$MDL = \sqrt{\frac{(\hat{P}_{co} - 1)^2 + (MPFoM - 1)^2 + \hat{P}_{\beta}^2}{3}},$$
 (3)

где *MPFoM* является модификацией *Pratt's Figure of Merit.* Значения комплексного обобщённого показателя качества *MDL* находятся в интервале от 0 до 1. Оптимальное значение нормы вектора можно получить в точке с координатами  $T(P_{co}=1, MPFoM=1, P_{\beta}=0)$ . Эти значения являются наилучшими значениями координат вектора в базисе евклидового пространства  $\mathbb{R}^3$ .

Оценка вероятности правильного обнаружения *P*<sub>co</sub> вычисляется по формуле:

$$\hat{P}_{co} = \frac{N_{TP}}{N_{I}},\tag{4}$$

где  $N_I$  – число точек контура в эталонном растровом контурном поле изображения;  $N_{TP}$  – число точек контура, найденных контурным детектором в ходе детектирования.

Теперь для проведения вычислительного эксперимента кратко остановимся на специфике подготовки эталонных растровых изображений в среде «КИМ СП» [17], а также приведем необходимые математические выражения для вычисления метрик. Эталонные изображения строятся с помощью векторного описания контурного рисунка. Вид контурной структуры, её свойства задаются в ходе подготовки эксперимента. Векторное описание самого контурного рисунка создаётся с использованием случайного точечного потока восстановления. Знание «*a priori»* вида контурной структуры, её морфологии, размеров и положения контурных элементов в эталонном изображении позволяет записать метрику, учитывающую смещение границ в форме:

$$FoM_{LE} = \frac{1}{I_I - CN} \sum_{i=1}^{I_I} \frac{1}{1 + \alpha \cdot d(i)^2},$$
 (5)

где  $I_1$  – число элементов в идеальном контурном поле изображения; CN – количество точек на реальном контурном изображении, которые не участвуют в вычислении метрики (смещение *i*-й точки выделенного контура от идеального контура по нормали превышает размеры анализируемой области (5×5), где  $d_{\text{max}}$ = 2); d(i) – смещение *i*-го элемента выделенного контура от идеального контура по нормали (рис. 1);  $\alpha$  – масштабный множитель, который учитывает величину штрафа за смещение контура.



**Рис. 1.** Локально смещённая граница (ошибка muna: LE – localization error)

*Fig. 1.* Locally offset boundary (type error: LE – localization error)

Учёт ошибок, связанных с утолщением контура и его смазыванием, производится следующей метрикой:

$$FoM_{MRE} = \frac{1}{I_I - CNC} \sum_{i=1}^{I_I} \frac{1}{1 + \beta \cdot b(i)^2},$$
 (6)

где CNC – количество элементов на реальном контурном изображении, которые не участвуют в вычислении метрики (так, например, точка в центре элемента 170 алфавита морфологии «А»);  $\beta$  – масштабный множитель, который учитывает величину штрафа за утолщение (смазывание) контурной линии (рис. 2); b(i) – число смазанных точек идеального контура в *i*-й области (при размерах анализируемой области 5×5,  $b_{max}$ =4).

Таким образом, ошибки, вызванные локальным смещением (*Localization Error*) и смазыванием – утолщением границ (*Multiples Responses Error*), учитываются метриками (5) и (6).

Учёт ошибок, связанных с пропуском элементов границ контура и длиной разрывов (последовательность точек контурного рисунка, примыкающих друг к другу, утерянных в процессе детектирования), описывается метрикой:

$$FoM_{OE} = \frac{1}{N} \sum_{j=1}^{N} \frac{1}{1 + \chi \cdot n(j)^2},$$
(7)

где N – количество анализируемых литер размером (5×5);  $\chi$  – масштабный множитель для учета штрафа за число пропущенных точек в отдельно взятой области (рис. 3); n(j) – число пропущенных точек контура в *j*-й анализируемой области. Значения масштабных множителей –  $\alpha$ =1/9,  $\beta$ =1/2 и  $\chi$ =1/2 модифицированного критерия качества Прэтта были выбраны исходя из проведённых исследований с учётом наибольшей чувствительности МРFоМ и рекомендаций [15, 19].

Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. 2021. Т. 332. № 9. 168–177 Кочегуров А.И., Дубинин Д.В., Герингер В. Модифицированная оценка Прэтта–Яскорского в обобщенном показателе качества ...



**Рис. 2.** Смазанная или утолщённая граница (ошибка типа: MRE – multiples responses error) **Fig. 2.** Blurred or thickened border (type error: MRE – multiples responses error)



**Рис. 3.** Разорванная граница (ошибка типа: OE – ommision error) **Fig. 3.** Broken boundary (type error: OE – ommision error)

Таким образом, модифицированный обобщённый комплексный показатель качества MDL, описываемый выражением (3), был далее использован в вычислительном эксперименте для оценки качества алгоритмов оконтуривания изображений.

#### Результаты вычислительного эксперимента

Получение результатов и накопление статистики осуществлялось на основе проведения вычислительного эксперимента в программном комплексе «КИМ СП». Эталонные контурные структуры изображения получены при использовании двумерного точечного потока восстановления. В качестве базового алфавита в ходе реализации математической модели среды была выбрана совокупность литер  $L_1$ ={0, 10, 34, 40, 42, 130, 136, 138, 160, 162, 168, 170}. Размеры отдельных литер соответствовали размерам анализи-

руемой области и были выбраны равными 5×5. В базисе L<sub>1</sub> строился простейший тип контурной структуры поля на основе элементов  $L_A = \{0, 34, 136, 170\}$  со значениями финальных вероятностей  $r_0=0,49$ ;  $r_1=0,42$ ;  $r_2=0,09$ . Для построения границы контура на эталонных изображениях применялась модель идеального перепада (eng.: Step Edge). Средние значения яркости  $(L_A: Average Luminance)$  и контрастности  $(C_{RMS}: Root$ Mean Square Contrast) для заданных отношений сигнала к шуму варьировались в пределах  $L_A$  {0,41–0,48},  $C_{RMS}$  {0,32–0,42}. Значение «Delt», показывающее минимальную разницу яркости сегментов изображения равнялось 60 [18]. Эталонные растровые изображения, построенные на основе полученных контурных структур, были подвергнуты воздействию аддитивного нормального шума. Эта методика моделирования была выбрана с целью формирования эталонных изображений для проведения сопоставления операторов поиска и локализации границ на основе предполагаемой модификации обобщённого комплексного показателя качества MDL. В соответствии с планом эксперимента полученные изображения обрабатывались различными контурными детекторами. В результате были получены бинарные растровые изображения контуров, а также необходимые экспериментальные данные. Все составляющие показателя качества нормировались и оценивались по принципу: чем меньше значение MDL, тем лучше оценка оператора оконтуривания.

На рис. 4 приведены обобщённые результаты работы модифицированного комплексного статистического показателя качества выделения контурного рисунка MDL для трех контурных детекторов («Canny», «Marr-Hildreth» и «ISEF») и различных отношений сигнала к шуму на примере растрового эталонного изображения, построенного на базе контурной структуры типа «А».

Из рис. 4 видно, что представленный в данной статье метод для оценки качества растрового контурного поля дает возможность получать достаточно объективную оценку эффективности контурных детекторов и производить их количественное сравнение между собой.



**Рис. 4.** Зависимость модифицированного обобщённого показателя качества MDL от отношения сигнал/шум для трех алгоритмов оконтуривания

Fig. 4. Dependence of the modified generalized quality indicator MDL on the signal-to-noise ratio for three delineating algorithms

Как было показано выше, модифицированный комплексный показатель качества MDL (3) обобщает три составляющие, описываемые выражениями (5)–(7). Одна из составляющих – MPFoM – является модифицированным критерием качества Прэтта–Яскорского и представлена на рис. 5, *а*.



- Рис. 5. Зависимости критерия Прэтта и модифицированного критерия Прэтта–Яскорского от отношения сигнал/шум для трех алгоритмов оконтуривания
- Fig. 5. Dependences of the Pratt's criterion and the modified Pratt–Yaskorsky criterion on the signal-tonoise ratio for three edge detection algorithm

На рис. 5, б показана зависимость критерия качества Прэтта из выражения (1) от отношения сигнал/шум для трех алгоритмов оконтуривания. Из сравнения рис. 5, а и б следует, что при малых отношениях с/ш значения критерия Прэтта (PFoM: Pratt's Figure of Merit) сильно завышены. Как известно [18], эта метрика учитывает только смещение границ LE, а ее расчёт производится в соответствии с формулой (5). Оценка, учитывающая смазывание или утолщение границ (MRE: Multiples Responses Error, формула (6)) приведена на рис. 5, в. Результаты работы метрики, учитывающей разрывы границ (OE: Ommision Error) показаны на рис. 5, г. Из рис. 5 следует, что модифицированный критерий Прэтта-Яскорского позволяет получать объективные оценки качества алгоритмов оконтуривания, вводя штраф за три вида ошибок: смещение границы, смазывание и утолщение границы, разрыв границы, вносимых детекторами контуров.

Как следует из выражения (3), обобщенный показатель качества определяется не только модифицированным критерием Прэтта–Яскорского, но также зависит от вероятностей правильного обнаружения (4) и ложного выделения границ, которые в свою очередь характеризуют эффективность бинарной классификации операторов поиска и локализации границ. Для оценки качества бинарной классификации алгоритмов детектирования, исследуемых выше, предварительно рассмотрим степень разделимости классов (DP: *Discriminatory Power*): контур, задний план. На рис. 6 представлена одна из матриц ошибок бинарной классификации.

|                             | Классификация (a-posteriori)           |                                   |  |  |  |  |
|-----------------------------|--|-----------------------------------|--|--|--|--|
| Классификация<br>(a-priori) | Класс (контур)                         | Класс (задний план)               |  |  |  |  |
| Класс<br>(контур)           | $N_{\mathrm{TP}}$                      | $N_{ m FP}$                       |  |  |  |  |
| Класс<br>(задний план)      | ${N}_{ m FN}$                          | $N_{ m TN}$                       |  |  |  |  |
| Количество<br>точек         | Количество точек<br>контурного рисунка | Количество точек<br>заднего плана |  |  |  |  |
|                             |  |                                   |  |  |  |  |
| N - Количество              |  |                                   |  |  |  |  |
| TP - True Positive          |  |                                   |  |  |  |  |
| <b>FN</b> - False Negati    |  |                                   |  |  |  |  |
| <b>FP</b> - False Positiv   |  |                                   |  |  |  |  |
| TN - True Negativ           |  |                                   |  |  |  |  |

**Рис. 6.** Матрица ошибок бинарной классификации (eng.: confusion matrix)

*Fig. 6.* Binary classification error matrix (eng.: confusion matrix)

Исходя из матрицы ошибок, расчёт a-posteriori дисбаланса размеров классов проводился по следующий формуле:

$$K_D = \frac{(N_{TN} + N_{FP})}{(N_{TP} + N_{FN})},$$
(8)

где  $N_{TN}$  – количество правильно выделенных точек класса «задний план»;  $N_{FP}$  – количество ложно продетектированных точек класса «задний план»;  $N_{TP}$  – количество правильно выделенных точек класса «контур»;  $N_{FN}$  – количество ложно продетектированных (пропущенных) точек класса «контур».

Известно [20], что данные считаются сбалансированными по классам, когда отношение  $K_D$  размера большего класса к меньшему лежит в пределах от 1 до 5. Значения дисбаланса размеров классов (8) в ходе проведения эксперимента находились в интервале  $K_D$ ={от 1,61 до 2,74}. Предельные значения дисбаланса размеров классов для контурной структуры поля на основе элементов  $L_A$ ={0, 34, 136, 170}, с учётом зашумления растрового изображения, не превышали  $K_D$ =3,46. Таким образом, используемая нами методика создания и дальнейший анализ данных исключают дисбаланс классов.

Теперь, учитывая, что классы сбалансированы, проведем расчет индекса Юдена для трех рассматриваемых ранее алгоритмов оконтуривания. В ROCанализе (ROC: Receiver Operating Characteristic) значения индекса Юдена являются одним из определяющих значений близости ROC-характеристики к точке с максимальной чувствительностью и специфичностью (точка в верхнем левом углу ROCдиаграммы). Идекс Юдена описывает расстояние между ROC-характеристикой и диагональю AUC=0,5 (AUC: Area under Curve). Причём чем ближе ROCхарактеристика подходит к этой точке, тем выше эффективность метода поиска и локализации границ, а значение индекса Юдена приближается к единице. На рис. 7 показаны усреднённые значения индексов Юдена (eng.: Youden's index) для трёх операторов поиска и локализации границ, рассчитанные в зависимости от отношения с/ш.





Fig. 7. Averaged Youden's index values for three search operators and boundary localization

Известно [20], что значения индекса Юдена даже в случае дисбаланса зависят только от суммарного про-

цента ошибок в двух классах и не изменяются при различном распределении ошибок между классами. Поэтому результаты, представленные на рис. 7, дают наглядное представление о качестве выделения границ тремя алгоритмами в зависимости от отношения с/ш.



Рис. 8. а) вероятность пропуска границы; б) мощность алгоритмов поиска и локализации границ в зависимости от отношения с/ш

*Fig. 8. a)* probability of skipping the border; *δ)* power of the algorithms for finding and localizing the borders depending on the ratio of s/n

На рис. 8, *а* представлена вероятность пропуска границы (ошибка первого рода), а на рис. 8,  $\delta$  – мощность алгоритмов выделения контурного рисунка  $(1-P_{\beta})$  для трех алгоритмов детектирования в зависимости от отношения с/ш. В данном случае физический смысл ошибок первого рода заключается в вероятно-

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Venkatesh S., Kitchen L. Edge evaluation using necessary components // Computer Vision, Graphics, and Image Processing. – 1992. – V. 54. – № 1. – P. 23–30.
- Salotti M., Bellet F., Garbay C. Evaluation of edge detectors: critics and proposal // Proceed. of the ECCV Workshop on Performance Characteristics of Vision Algorithms. – Cambridge, UK, 1996. – P. 81–97.
- Papari G., Petkov N. Edge and line oriented contour detection: state of the art // Image and Vision Computing. – 2011. – V. 29. – № 2. – P. 79–103.
- Contour detection and hierarchical image segmentation / P. Arbeláez, M. Maire, C Fowlkes., J. Malik // IEEE transactions on pattern analysis and machine intelligence. – 2011. –V. 33. – № 5. – P. 898–916.

сти ложного детектирования точек класса «контур», а мощность критерия характеризует изменение вероятности ошибок второго рода, чем выше значение мощности, тем меньше вероятность ошибок второго рода.

Результаты бинарной классификации на примере использования трех алгоритмов детектирования, представленные на рис. 7, 8 наряду с результатами исследования модифицированного критерия Прэтта– Яскорского (рис. 5, *a*-*г*), позволяют говорить об объективности и надежности обобщенного показателя оценки качества детектирования (3), предложенного в данной работе.

## Заключение

Рассмотрен комплексный показатель качества детектирования, включающий не только метрики, позволяющие оценивать геометрические параметры контурного рисунка, но и метрики для оценки статистических параметров процесса бинарной классификации. Полученные результаты вычислительных экспериментов на программном комплексе «КИМ СП» показали, что обобщённый комплексный показатель MDL, рассмотренный в данной работе, дает объективную оценку качества алгоритмов выделения границ. В зависимости от типа морфологии, лежащей в основе построения искусственных эталонных изображений, проведенные исследования дали возможность найти наиболее предпочтительную область применения для каждого из рассмотренных алгоритмов детектирования. При этом следует отметить, что правильный выбор показателя качества для решения конкретной задачи в определённой предметной области является одним из ключевых шагов в исследовании и дальнейшей оптимизации численной модели эксперимента. Корректный выбор обобщённого показателя качества обеспечит возможность детального анализа и позволит наиболее гибко подойти к проверке разрабатываемых алгоритмов и выявлению их недостатков. Это даёт возможность увеличить эффективность стохастического моделирования с целью решения поставленной задачи.

Таким образом, предлагаемый обобщенный показатель качества позволит дать рекомендации по выбору алгоритма детектирования при решении реальных практических задач, в том числе при исследовании межскважинного и околоскважинного пространства нефтяных месторождений.

- An efficient method to evaluate the performance of edge detection techniques by a two-dimensional Semi-Markov model / D.V. Dubinin, V.E. Geringer, A.I. Kochegurov, K. Rayf // IEEE Symposium Series on Computational Intelligence – 4 IEEE Symposium on Computational Intelligence in Control and Automation (SSCI – CICA 2014), Proceedings. – № 7013248. – P. 1–7.
- О количественной оценке эффективности алгоритмов анализа изображений / П.П. Кольцов, А.С. Осипов, А.С. Куцаев, А.А. Кравченко, Н.В. Котович, А.В. Захаров // Компьютерная оптика. – 2015. – Т. 39. – № 4. – С. 542–556.
- A new reference-based edge map quality measure / K. Panetta, C. Gao, S. Agaian, S. Nercessian // IEEE Transactions on Systems, Man, and Cybernetics: Systems. – 2016. – V. 46. – № 11. – P. 1505–1517.

- Magnier B., Le A., Zogo A. A quantitative error measure for the evaluation of roof edge detectors // 2016 IEEE International Conference on Imaging Systems and Techniques (IST). – Chania, Greece: IEEE, 2016. – P. 429–434.
- Deza M., Deza E. Encyclopedia of distances. Berlin, Heidelberg: Springer, 2016. – 756 p.
- Magnier B., Abdulrahman H., Montesinos P. A review of supervised edge detection evaluation methods and an objective comparison of filtering gradient computations using hysteresis thresholds // Journal of Imaging. – 2018. – V. 4. – № 6. – P. 2–63.
- Lopez-Molina C., Baets B., Bustince H. Quantitative error measures for edge detection // Pattern Recognition. – 2013. – V. 46. – № 4. – P. 1125–1139.
- Magnier B. Edge detection evaluation: a new normalized figure of merit // ICASSP 2019 – 2019 IEEE International Conference on Acoustics, Speech and Signal Processing (ICASSP). – Brighton, United Kingdom: IEEE Pres, 2019. – P. 2407–2411.
- Dubinin D.V., Kochegurov A.I., Geringer V.E. Improving the criteria for quality assessment of image processing algorithms // Journal of Physics: Conference Series. – 2021. – V. 1862. – № 012011. – P. 1–5.
- Boaventura I., Gonzaga A. Method to evaluate the performance of edge detector // SIBGRAPI 2009: XXIInd Brazilian Symposium on Computer Graphics and Image Processing. – Rio de Janeiro, 2009. – P. 1–3.

- Abdou I., Pratt W. Quantitative design and evaluation of enhancement/thresholding edge detectors // Proceedings of the IEEE. – 1979. – V. 67. – № 5. – P. 753–763.
- Shahan C. Nercessian, Sos S. Agaian, Karen A. Panetta. A new reference based measure for objective edge map evaluation // Proc. SPIE, V. 7351, Mobile Multimedia/Image Processing, Security, and Applications. – 2009. – № 73510J. – P. 1–12.
- Оценка эффективности контурных детекторов на основе точечного потока восстановления / А.И. Кочегуров, Д.В. Дубинин, В.Е. Герингер, К. Рейф // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2019. – Т. 330. – № 3. – С. 204–216.
- Dubinin D., Kochegurov A., Geringer V. The results of a complex analysis of the modified Pratt-Yaskorskiy performance metrics based on the two-dimensional Markov-Renewal-Process // Lecture Notes in Computer Science. – 2016. – V. 9875. – P 187–196.
- Яскорский А.В. Критерии оценки качества работы детекторов контуров // Автометрия. – 1987. – № 3. – С. 127–128.
- Старовойтов В.В., Голуб Ю.И. Сравнительный анализ оценок качества бинарной классификации // Информатика. – 2020. – Т. 17. – № 1. – С. 87–101.

Поступила 25.08.2021 г.

## Информация об авторах

*Кочегуров А.И.*, кандидат технических наук, доцент отделения информационных технологий Инженерной школы информационных технологий и робототехники Национального исследовательского Томского политехнического университета.

Дубинин Д.В., кандидат технических наук, доцент кафедры радиоэлектроники и защиты информации Томского государственного университета систем управления и радиоэлектроники.

*Герингер В.*, кандидат технических наук, заведующий лабораториями автомобильной электроники и мехатронных систем/энергетики и экологической инженерии Баден-Вюртембергского объединенного государственного университета. UDC 004.021; 004.932; 519.673+519.24+621.391

# MODIFIED EVALUATION OF PRETT-YASKORSKY IN THE GENERALIZED QUALITY INDICATOR OF CONTOUR DETECTION ALGORITHMS

Alexander I. Kochegurov<sup>1</sup>, kaicc@tpu.ru

## Dmitriy V. Dubinin<sup>2</sup>,

dmitrii.v.dubinin@tusur.ru

## Viktor Geringer<sup>3</sup>,

geringer@dhbw-ravensburg.de

- National Research Tomsk Polytechnic University, 30, Lenin avenue, Tomsk, 634050, Russia.
- <sup>32</sup> Tomsk State University of Control Systems and Radioelectronics, 40, Lenin avenue, Tomsk, 634050, Russia.
- <sup>3</sup> Baden-Wuerttemberg Cooperative State University, 2, Fallenbrunnen, Friedrichshafen, 88045, Germany.

Relevance. Obtaining quantitative estimates of the efficiency of image analysis algorithms is a very urgent problem, including the problem of evaluating the efficiency of contour detectors. The choice of reliable algorithms for extracting contours on images of wave fields is of particular importance when constructing digital twins of oil fields. So, to study borehole and interwell space, it is necessary to use contouring algorithms that have high noise immunity in difficult seismic and geological conditions. The choice of such algorithms should be based on a comprehensive analysis of the quality of the selected contours, including such elements as displacement, break and blurring of boundaries. In this regard, the method of obtaining estimates of the efficiency of contour detectors based on the calculation of the generalized indicator of the quality of boundary detection proposed in the work of I. Boaventura and A. Gonzaga in 2009 is of great interest. The generalized quality indicator is defined by the authors of the article in the form of a vector norm in Euclidean space. One of the coordinates of the vector is the reciprocal of the Pratt metric, which takes into account the integral value of the displacement of the elements of the detected contour. The rest of the coordinates of the vector are formed on the basis of binary classification. The works of D.V. Dubinin, A.I. Kochegurov and B. Göringer introduce the studies of the efficiency of the quality indicator of I. Boaventura and A. Gonzaga by a computational experiment. In the course of the experiment, the reference images were approximated by a twodimensional point recovery stream, which made it possible to implement the principles of setting up an experiment according to Fischer (the principle of randomization). The analysis of the obtained experimental data showed a number of shortcomings of the generalized quality indicator of A. Gonzaga and I. Boaventura. In particular, at low signal-to-noise (s/n) ratios, overestimated values of the Pratt's criterion were obtained, which in its turn led to underestimated estimates of the generalized quality indicator. Indeed, being sensitive to local displacements of the boundary, Pratt's criterion reacts poorly to omissions of elements in broken contours, which leads to unjustifiably high values of the criterion at low s/n ratios. This statement was made by A.V. Yaskorskiy in 1987 and found its proof in the results of a computational experiment. Thus, there is a real need to improve the reliability of the detection quality estimates obtained on the basis of the generalized index of I. Boaventura and A. Gonzaga. For this purpose, it is proposed to introduce into the generalized quality indicator instead of the Pratt's criterion its modified analogue (Modification Pratt's Figure of Merit), proposed and considered in detail by us in earlier works. This work is devoted to the study of the generalized indicator of I. Boaventura and A. Gonzaga with the modified Pratt criterion.

**Methods and means of research:** system analysis, stochastic simulation modeling, digital image processing, data visualization methods, as well as the methods of analysis, based on the gradual formalization of models by activating the intuition of specialists. The computational experiment was carried out in the Delphi environment, and the numerical model was validated using the Mathcad environment. The research results will make it possible to choose an objective criterion for assessing the quality of building contour boundaries when creating a digital twin of an oil field.

## Key words:

Stochastic modeling, image processing, oilfield digital twin, performance evaluations, quality criterion, Pratt's criterion, binary classification.

## REFERENCES

- Venkatesh S., Kitchen L. Edge evaluation using necessary components. *Computer Vision, Graphics, and Image Processing*, 1992, vol. 54, no. 1, pp. 23–30.
- Salotti M., Bellet F., Garbay C. Evaluation of edge detectors: critics and proposal. Proceed of the ECCV Workshop on Performance Characteristics of Vision Algorithms. Cambridge, UK, 1996. pp. 81–97.
- Papari G., Petkov N. Edge and line oriented contour detection: State of the art. *Image and Vision Computing*, 2011, vol. 29, no. 2, pp. 79–103.
- Arbeláez P., Maire M., Fowlkes C., Malik J. Contour detection and hierarchical image segmentation. *IEEE transactions on pattern analysis and machine intelligence*, 2011, vol. 33, no. 5, pp. 898–916.
- Dubinin D.V., Geringer V.E., Kochegurov A.I., Rayf K. An efficient method to evaluate the performance of edge detection techniques by a two-dimensional Semi-Markov model. *IEEE* Symposium Series on Computational Intelligence – 4 IEEE Symposium on Computational Intelligence in Control and Automation (SSCI – CICA 2014), Proceedings, no. 7013248, pp. 1–7.
- Koltsov P.P., Osipov A.S., Koutsaev A.S. Kravchenko A.A., Kotovich N.V., Zakharov A.V. On the quantitative performance evaluation of image analysis algorithms. *Computer Optics*, 2015, vol. 39, no. 4, pp. 542–556. In Rus.
- Panetta K., Gao C., Agaian S., Nercessian S. A new reference-based edge map quality measure. *IEEE Transactions on Systems, Man, and Cybernetics: Systems*, 2016, vol. 46, no. 11, pp. 1505–1517.

- Magnier B., Le A., Zogo A. A quantitative error measure for the evaluation of roof edge detectors. 2016 IEEE International Conference on Imaging Systems and Techniques (IST). Chania, Greece, IEEE, 2016. pp. 429–434.
- Deza M., Deza E. Encyclopedia of Distances. Berlin, Heidelberg, Springer, 2016. 756 p.
- Magnier B., Abdulrahman H., Montesinos P. A review of supervised edge detection evaluation methods and an objective comparison of filtering gradient computations using hysteresis thresholds. *Journal of Imaging*, 2018, vol. 4, no. 6, pp. 2–63.
- Lopez-Molina C., Baets B., Bustince H. Quantitative error measures for edge detection. *Pattern Recognition*, 2013, vol. 46, no. 4, pp. 1125–1139.
- Magnier B. Edge detection evaluation: a new normalized figure of merit. ICASSP 2019 – 2019 IEEE International Conference on Acoustics, Speech and Signal Processing (ICASSP). Brighton, United Kingdom, IEEE Pres, 2019. pp. 2407–2411.
- Dubinin D.V., Kochegurov A.I., Geringer V.E. Improving the criteria for quality assessment of image processing algorithms. *Journal of Physics: Conference Series*, 2021, vol. 1862, no. 012011, pp. 1–5.
- Boaventura I., Gonzaga A. Method to evaluate the performance of edge detector. SIBGRAPI 2009: XXIInd Brazilian Symposium on Computer Graphics and Image Processing. Rio de Janeiro, 2009. pp. 1–3.

- Abdou I., Pratt W. Quantitative design and evaluation of enhancement/thresholding edge detectors. *Proceedings of the IEEE*, 1979, vol. 67, no. 5, pp. 753–763.
- Shahan C. Nercessian, Sos S. Agaian, Karen A. Panetta. A new reference based measure for objective edge map evaluation. *Proc.* SPIE, vol. 7351, Mobile Multimedia/Image Processing, Security, and Applications, 2009, no. 73510J, pp. 1–12.
- Kochegurov A.I., Dubinin D.V., Geringer V.E., Reif K. Estimation of the efficiency of Contour Detectors on the Basis of a Point Recovery Flow. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2019, vol. 330, no. 3, pp. 204–216. In Rus.
- Dubinin D., Kochegurov A., Geringer V. The results of a complex analysis of the modified Pratt-Yaskorskiy performance metrics based on the two-dimensional Markov-Renewal-Process. *Lecture Notes in Computer Science*, 2016, vol. 9875, pp. 187–196.
- Yaskorsky A.V. Kriterii otsenki kachestva raboty detektorov konturov [Criteria for assessing the performance of edge detectors]. *Avtometriya*, 1987, no. 3, pp. 127–128.
- Starovoitov V.V., Golub Y.I. Comparative study of quality estimates of binary classification. *Informatics*, 2020, vol. 17, no. 1, pp. 87–101. In Rus.

Received: 25 August 2021.

#### Information about the authors

*Alexander I. Kochegurov*, Cand. Sc., associate professor, National Research Tomsk Polytechnic University. *Dmitriy V. Dubinin*, Cand. Sc., associate professor, Tomsk State University of Control Systems and Radioelectronics. *Viktor Geringer*, Dr./VAK Moskau, Head of Laboratories, Baden-Wuerttemberg Cooperative State University. УДК 550.36, 553.065

# ПОВЫШЕНИЕ ЭНЕРГЕТИЧЕСКОЙ ЭФФЕКТИВНОСТИ БИНАРНОЙ ГЕОЭС (НА ПРИМЕРЕ КУМУХСКОГО МЕСТОРОЖДЕНИЯ)

## Джаватов Джават Курбанович<sup>1,2</sup>

## Азизов Амир Азизович<sup>2</sup>,

azizov\_amir@mail.ru

- <sup>1</sup> Дагестанский государственный университет, Россия, 367000, Махачкала, ул. Гаджиева, 43 а.
- <sup>2</sup> Институт проблем геотермии и возобновляемой энергетики филиал Объединенного института высоких температур Российской академии наук,

Россия, 367030, Махачкала, пр. Имама Шамиля, 39 а.

**Актуальность** исследования обусловлена необходимостью расширения топливно-энергетической и минерально-сырьевой базы путем освоения возобновляемых высокопотенциальных минерализованных ресурсов месторождений термальных вод. Однако эксплуатация таких месторождений затруднена высокой степенью минерализации природных рассолов. Использование бинарных геотермальных электростанций, реализующих термодинамический цикл Ренкина для утилизации тепловой энергии, позволяет решить эту проблему и получить относительно дешевую электрическую энергию. Возникает необходимость поиска и оценки методов повышения энергоэффективности термодинамических циклов, реализуемых при разработке одного из перспективных месторождений термальных вод Дагестана – Кумухское. Положительная оценка перспектив освоения геотермальных ресурсов месторождения показывает значительный потенциал для улучшения экономической структуры региона.

**Цель:** оценить энергоэффективность бинарной геотермальной электростанции, в основе работы которой лежит органический цикл Ренкина в докритическом и сверхкритическом циклах и в разных режимах закачки отработанного теплоносителя для Кумухского месторождения термальных вод; показать перспективность и эффективность комплексного освоения геотермальных ресурсов месторождения

**Объект:** геотермальные системы для электроэнергетического освоения высокопотенциальных минерализованных термальных вод месторождения.

**Методы** исследования основаны на использовании данных геологоразведочных, гидротермальных и геохимических исследований по Кумухскому месторождению термальных вод, методов математического моделирования и оптимизации.

**Результаты.** На примере конкретного месторождения термальных вод проведена оптимизация технологических параметров первичного контура геотермальной электростанции, оценена ее энергоэффективность в докритическом и сверхкритическом органических циклах Ренкина с низкокипящим вторичным теплоносителем. Показано, что утилизация низкопотенциальной энергии рассолов на теплонасосных установках позволяет улучшить эффективность энергетических циклов на месторождении. Проведенный анализ показывает, что создание комплексных технологий освоения высокопотенциальных минерализованных геотермальных ресурсов месторождения позволит существенно улучшить экономическую структуру региона.

#### Ключевые слова:

Месторождение термальных вод, геотермальная циркуляционная система,

бинарные геотермальные электростанции, докритический и сверхкритический циклы Ренкина,

низкокипящее рабочее вещество, оптимизация, низкопотенциальное тепло, теплонасосные установки.

## Введение

Геотермальная энергия как один из видов возобновляемых альтернативных ресурсов имеет практически неиссякаемый ресурс тепловой и электрической энергии [1–6]. Электроэнергетическое освоение высокотемпературных термальных вод (ТВ) с температурой более 100 °С позволяет получать экологически чистую, относительно недорогую электрическую энергию. А освоение низкопотенциальной энергии ТВ с использованием теплонасосных установок – это и экономия традиционных энергоресурсов, и защита окружающей среды [7].

Высокая степень минерализации природных рассолов (до 200 г/л) и тепловой потенциал теплоносителей, достигающий значений более 150 °C [8], ряда перспективных месторождений ТВ на Севере Дагестана делают электроэнергетическое освоение таких ресурсов целесообразным только с использованием технологии двухконтурных, бинарных геотермальных электростанций (ГеоЭС) [9–13]. Использование ГеоЭС такого типа значительно увеличивает перспективы геотермальной энергетики, позволяя получить сравнительно дешевую по стоимости (в среднем на 30 %) электроэнергию, а также расширяет число регионов, перспективных с точки зрения использования геотермальной энергии. Сегодня разработаны и успешно эксплуатируются десятки бинарных ГеоЭС во всем мире с разнообразными технологическими схемами. В России имеются лишь единичные примеры такого использования TB [9].

Имеющиеся большие запасы геотермальных ресурсов с температурой более 100 °С делают актуальной проблему повышения эффективности бинарной ГеоЭС, которая во многом зависит от параметров пласта, термодинамических характеристик теплоносителя, от выбора технологических параметров геотермальной циркуляционной системы (ГЦС), составляющей основу ГеоЭС, и от вида термодинамического цикла вторичного контура в паротурбинной установке (ПТУ).

Несмотря на очевидные преимущества, разработанные технологические схемы бинарных ГеоЭС имеют резервы совершенствования. Так, повышения эффективности ГеоЭС можно добиться разными способами, например, выбором соответствующего рабочего тела для вторичного контура и оптимизацией термодинамического цикла в ПТУ, применением турбин и циклов, работающих на водоаммиачной смеси, оптимизацией технологических параметров первичного контура, выбором соответствующего термодинамического цикла Ренкина (докритический или сверхкритический) во вторичном контуре и др. Значительного экономического эффекта от использования геотермальной энергии для производства электроэнергии можно добиться использованием отработанного в ГеоЭС низкопотенциального теплоносителя с помощью теплонасосных установок для различных целей (отопление, горячее водоснабжение, сельское хозяйство и другие) при разных значениях температуры закачиваемого теплоносителя [14]. Кроме того, значительная температурная зависимость вязкости теплоносителя и, соответственно, потерь давления в цикле ГЦС делают необходимым проведение сравнительной оценки эффективности эксплуатации ГеоЭС при различных значениях температуры отработанной ТВ, закачиваемой обратно в пласт, для выбора наиболее оптимального режима закачки. Такая оценка эффективности бинарной ГеоЭС в докритическом и сверхкритическом циклах Ренкина при различных температурах закачиваемого теплоносителя на устье нагнетательной скважины до настоящего времени не проводилась.

Цель данной работы – показать перспективы освоения ресурсов ТВ и возможности повышения эффективности бинарной ГеоЭС (на примере Кумухского месторождения ТВ) на основе оптимизации технологических параметров первичного контура ГЦС и выбора соответствующего термодинамического цикла в ПТУ при различных температурах закачиваемого теплоносителя, оценить возможный экономический эффект.

## Основная часть

Одним из перспективных в электроэнергетическом освоении высокотемпературных геотермальных рассолов является месторождение Кумухское, расположенное на Севере Дагестана. Основные характеристики месторождения [8] позволяют рассматривать его как перспективное с энергетической точки зрения. Природные рассолы месторождения также содержат химические компоненты – магнезия жженная, карбонат кальция, карбонат лития и поваренная соль [8].

Из-за высокой минерализованности природных рассолов месторождения их электроэнергетическое освоение обусловлено использованием технологии на основе бинарных ГеоЭС. Просчитаем различные варианты проектирования бинарной ГеоЭС на Кумухском месторождении и проведем соответствующую оценку их эффективности.

Рассматривается бинарная ГеоЭС с циркулирующей ТВ в первичном контуре и с низкокипящим вторичным теплоносителем – во вторичном. Полагаем, что в ПТУ реализуется экономичный цикл Ренкина. В России и за рубежом ведутся исследования по проблеме поиска рабочих тел нового поколения, мы в качестве вторичного теплоносителя рассмотрим наиболее перспективный рабочий агент – изобутан, который обладает рядом преимуществ (лучшие теплофизические свойства, совместимость с маслами, не вызывает коррозии оборудования энергоустановок, невысокая стоимость и экологическая безвредность) [10].

Главной целью строительства ГеоЭС является получение максимальной полезной мощности с минимизацией капитальных затрат на ее создание. Капитальные затраты составляют основную статью расходов создания ГеоЭС, и оптимизация параметров первичного контура ГЦС с учетом этих затрат позволит повысить эффективность ГеоЭС, снизить себестоимость получаемой энергии.

За критерий оптимальности рассмотрим функционал удельных капитальных затрат, определяемый по формуле [15]:

$$F=S/N_n,$$
 (1)

где S – капитальные затраты в строительство ГЦС и наземной коммуникации, отн. ед.;  $N_n$  – полезная мощность ГеоЭС, МВт.

Для сравнительной оценки рассмотрим два вида термодинамических цикла ПТУ, в основе работы которых лежит цикл Ренкина – докритический или сверхкритический [16], и проведем оптимизацию и оценку эффективности ГеоЭС в каждом из них.

Анализ эффективности ГеоЭС проведем с учетом значительных энергозатрат на обратную закачку отработанного теплоносителя в ГЦС [17, 18].

Технологическую основу ГеоЭС составляет циркуляционная система с добычной и нагнетательной скважинами. Вид термодинамического цикла, реализуемого в ПТУ ГеоЭС, определяет температуру теплоносителя на устье нагнетательной скважины.

Температура теплоносителя на забое нагнетательной скважины ГЦС  $T_3$  зависит от температуры теплоносителя на устье  $T_y$  от дебита нагнетательной скважины G времени эксплуатации ГЦС t и от геологических характеристик окружающих пород.

Эта зависимость достаточно хорошо описывается формулой Намиота [19]:

$$T_{3}(t) = \Theta_{0} + \frac{\Gamma}{\beta_{0}}(\beta_{0}H - 1) + \left(T_{y} - \Theta_{0} + \frac{\Gamma}{\beta_{0}}\right) \times \exp(-\beta_{0}H), \qquad (2)$$

$$\beta_0 = \frac{2\pi\lambda_{on}}{QC_{\rm B}\rho_{\rm B}\ln\left(\frac{r(t)}{r_{\rm c}}\right)},$$
$$r(t) = 2\sqrt{x_{\rm on}t},$$

где  $\Theta_0$  – температура нейтрального слоя, °С; Г – геотермический градиент, К/м;  $x_{on}$  – температуропроводность окружающих пород, м<sup>2</sup>/с; *H* – глубина скважины, м;  $\lambda_{on}$  – теплопроводность окружающих пород, Вт/м·К; *Q* – объемный дебит скважины, м<sup>3</sup>/с;  $\rho_{\rm B}$ ,  $C_{\rm B}$  – плотность и теплоемкость воды, соответственно, кг/м<sup>3</sup>, КДж/(кг·К);  $r_{\rm c}$  – радиус скважины, м; t – время эксплуатации ГЦС, с.

От температуры теплоносителя на забое нагнетательной скважины зависит важная характеристика ГЦС – вязкость, величина которой существенно влияет на фильтрационные потери давления в пласте, а значит и на полезную мощность ГеоЭС [17]. Проведем оптимизацию технологических параметров первичного контура ГеоЭС – дебит системы, диаметры скважин, расстояние между скважинами, обеспечивающие минимум функционала (1). Соответствующие формулы для расчета основных технологических параметров приведены в работах [16, 20].

### Результаты исследования и обсуждение

На рис. 1 для Кумухского месторождения ТВ показана зависимость температуры теплоносителя на забое нагнетательной скважины  $T_3$  и вязкости  $\mu$  от дебита ГЦС *G* при устьевой температуре  $T_H$ =42 °C по формуле (2).



*Puc. 1.* Изменение температуры и вязкости теплоносителя *Fig. 1.* Change of temperature and viscosity of coolant

Анализ приведенных данных показывает, что прогрев закачиваемого теплоносителя от устья до забоя относительно заметен для значений дебита до 40 кг/с (более 10 °C), для дебитов больше этого значения температуру теплоносителя на устье и забое нагнетательной скважины можно брать одинаковой.

Для этих же дебитов изменение значения вязкости составляет более чем два раза.

Для изобутана, как низкокипящего рабочего агента, при реализации предполагаемой технологической схемы ГеоЭС, при температуре теплоносителя в первичном контуре  $T_{\rm T}$ =180 °С, значение удельной полезной мощности ПТУ  $N_3$  (кВт) в докритическом цикле составит  $N_3$ =76,6 кВт и сверхкритическом –  $N_3$ =101,1 кВт [16]. Температура отработанной термальной воды, закачиваемой обратно в пласт, при этом составляет  $T_{\rm H}$ =55 °С и  $T_{\rm H}$ =42 °С, соответственно.

Полезная мощность турбины в сверхкритическом цикле на 32 % выше, по сравнению с докритическим, а температура отработанной термальной воды  $T_{\rm H}$ 

нагнетаемой обратно в пласт, в докритическом цикле выше, чем в сверхкритическом цикле, на 13 °C.

При этом изменение вязкости ТВ (увеличение) для температур  $T_{\rm H}$ =55 °C и  $T_{\rm H}$ =42 °C составляет более 20 %, что соответственно ведет к увеличению фильтрационных потерь давления в пласте в сверхкритическом цикле.

Результаты расчетов основных технологических параметров ГеоЭС для Кумухского месторождения ТВ при различных значениях диаметров скважин ГЦС приведены в табл. 1. Соответствующие формулы для расчета основных технологических параметров приведены в работах [16, 20].

Результаты оптимизации технологических параметров ГеоЭС приведены в табл. 2.

Отработанная термальная вода как в докритическом, так и в сверхкритическом циклах имеет еще достаточно большой тепловой потенциал, который можно утилизировать, но эта вода практически не годится для нужд теплоснабжения и горячего водоснабжения из-за невысокой температуры.
| Таблица 1. | Параметры ГеоЭС в докритическом и сверхкритическ | ском циклах Ренкина и оптимальные значения этих |
|------------|--|---|
|            | параметров                                       |   |

| <b>Tuble 1.</b> Geodo parameters in subcritical and supercritical Kankine cycles and optimal values of mese parameters |   |  |  |                                    |  |  |   |  |  |
|--|---|--|--|------------------------------------|--|--|---|--|--|
| Диаметр добыч-   | Докритический цикл Ренкина<br>Subcritical cycle Rankine |  |  | Сверхк<br>Sup                      | ритический п<br>ercritical cycl            | цикл Ренкина<br>e Rankine  | е<br>ной<br>ix, %<br>i net<br>%   | е<br>ных<br>грат<br>f unit<br>les, %   |  |
| ной и нагнета-<br>тельной скважин<br>$(d_{H}=d_{\pi}), M$<br>Diameter of<br>production and<br>injection wells, m       | Дебит ГЦС, кг/с<br>Flow rate, kg/s                      | Полезная<br>мощность, MBт<br>Net power, MW | Удельные капи-<br>тальные затраты,<br>отн. ед./MBт<br>Specific capital<br>expenditures, rel.<br>units/MW | Дебит ГЦС, кг/с<br>Flow rate, kg/s | Полезная<br>мощность, МВт<br>Net power, MW | Удельные капи-<br>тальные затраты,<br>отн. ед./MBт<br>Specific capital<br>expenditures, rel.<br>units/MW | Относительно<br>изменение полез<br>мощности в цикля<br>Relative change ir<br>power in cycles, | Относительн<br>изменение удели<br>капитальных за<br>в циклах, %<br>Relative change o<br>capital costs in cyc |  |
| 0,1  | 24,8  | 1,3  | 1,1  | 24,7                               | 1,93                                       | 0,76   | +48   | -32  |  |
| 0,15   | 65,2  | 3,5  | 0,61   | 63,9                               | 5,01                                       | 0,43   | +43   | -42  |  |
| 0,18   | 98,6  | 5,4  | 0,5  | 95,6                               | 7,7  | 0,36   | +42   | -39  |  |
| 0,21   | 137,3   | 7,7  | 0,45   | 131,4                              | 10,7                                       | 0,33   | +39   | -36  |  |
| 0,24   | 179,6   | 10,2                                       | 0,43   | 169,2                              | 13,4                                       | 0,32   | +31   | -34  |  |
| 0,26   | 208,8   | 12,1                                       | 0,42   | 194,5                              | 16,2                                       | 0,32   | +34   | -31  |  |
| 0,27   | 223,4   | 13,0                                       | 0,43   | 206,8                              | 17,3                                       | 0,32   | +33   | -34  |  |
| 0,28   | 238,0   | 13,9                                       | 0,44   | 219,0                              | 18,4                                       | 0,33   | +32   | -33  |  |
| 0,29   | 252,3   | 14,9                                       | 0,44   | 230,8                              | 19,5                                       | 0,34   | +31   | -29  |  |
| 0,30   | 266,5   | 15,8                                       | 0,45   | 242,3                              | 20,5                                       | 0,35   | +30   | -28  |  |

 Table 1.
 GeoES parameters in subcritical and supercritical Rankine cycles and optimal values of these parameters

Для утилизации такой низкопотенциальной энергии в настоящее время активно используются теплонасосные установки (THУ), где осуществляется обратный термодинамический цикл на низкокипящем рабочем веществе. THУ получают наибольшее применение в теплоснабжении, горячем водоснабжении административных, жилых и производственных зданий, в ряде технологических процессов. Применение ТНУ существенно повышают эффективность использования теплового потенциала отработанной ТВ, способствуя при этом и решению экологических проблем.

**Таблица 2.** Оптимальные значения параметров ГеоЭС в докритическом и сверхкритическом циклах Ренкина **Table 2.** Optimal values of GeoES parameters in subcritical and supercritical Rankine cycles

| и<br>ин, м<br>on<br>m  | Докри<br>Sul                       | итический п<br>peritical Rai               | цикл Ренкина<br>nkine cycle  | arнe-<br>M<br>on<br>m  | Сверхкрі<br>Supei                  | итический<br>critical Ra                   | цикл Ренкина<br>nkine cycle  | ение<br>и<br>net   | ение<br>ых<br>о́<br>nit   |
|--|------------------------------------|--|--|--|------------------------------------|--|--|--|---|
| Диаметр добычной<br>нагнетательной скваж<br>Diameter of producti<br>and injection wells, | Дебит ГЦС, кг/с<br>Flow rate, kg/s | Полезная мощность,<br>MBT<br>Net power, MW | Удельные<br>капитальные затраты,<br>отн .ед./MBT<br>Specific capital<br>expenditures, rel.<br>units/MW | Диаметр добычной и н<br>тательной скважин.<br>Diameter of producti<br>and injection wells, | Дебит ГЦС, кг/с<br>Flow rate, kg/s | Полезная мощность,<br>МВт<br>Net power, MW | Удельные<br>капитальные затраты,<br>отн. ед./MBT<br>Specific capital<br>expenditures, rel.<br>units/MW | Относительное измен<br>полезной мощност<br>в циклах, %<br>The relative change in<br>power in cycles, % | Относительное измен<br>удельных капитальн<br>затрат в циклах, <sup>9</sup> ,<br>Relative change of u<br>capital costs in cycles |
| d <sub>н</sub> =0,266<br>d <sub>д</sub> =0,247   | 225,1                              | 12,0                                       | 0,42   | d <sub>n</sub> =0,262<br>d <sub>a</sub> =0,244   | 244,5                              | 16,8                                       | 0,293  | +40  | -43   |
| $d_{\rm H} = d_{\rm g} = 0,257$  | 223,8                              | 12,1                                       | 0,42   | d <sub>H</sub> =d <sub>A</sub> =0,254  | 243,0                              | 16,7                                       | 0,296  | +38  | -42   |



Рис. 2. Зависимость полезной мощности от диаметра добычной и нагнетательной скважин

Fig. 2. Net power dependence on the diameter of production and injection wells



**Puc. 3.** Зависимость удельных капитальных затрат от диаметра добычной и нагнетательной скважин **Fig. 3.** Dependence of specific capital costs on the diameter of production and injection wells

Анализ проведенных расчетов показывает существование оптимума удельных капитальных затрат (рис. 3). Оптимизация по критерию (1) дает следующие значения диаметров:  $d_{\rm H}=d_{\rm g}=0,257$  м – в докритическом и  $d_{\rm H}=d_{\rm g}=0,254$  м – в сверхкритическом циклах. При этом полезная мощность в сверхкритическом цикле, а удельные капитальные затраты на 31 % меньше. Оптимизация ГЦС с разными диаметрами добычной и нагнетательной скважин позволяет улучшить эти показатели (табл. 2).

Экономическая эффективность применения ТНУ определяется капитальными затратами и соотношением цен на электроэнергию и на традиционное топливо, которое используется в котельных. Эффективность использования ТВ в ТНУ также зависит от ее конечной температуры – чем она ниже, тем выше эффективность. Для получения достаточно высоких температур конденсации рабочего вещества и повышения экономической эффективности установки, в зависимости от параметров теплоносителя в ГЦС (дебита и температуры) и конечной температуры воды, в системы теплоснабжения могут быть последовательно включены несколько (до трех) ТНУ. Расчет такой принципиальной схемы установки с двумя ТНУ приведен в [16].

Экономическая эффективность ТНУ существенна только при массовом их использовании, с расширением области применения.

Применение ТНУ для утилизации низкопотенциальной тепловой энергии отработанного теплоносителя позволяет повысить эффективность ГеоЭС с учетом дополнительно получаемой тепловой мощности.

Оценим полезную мощность, которую можно получить дополнительно, считая, что температура ТВ на входе в испаритель равна 55 и 42 °С для докритического и сверхкритического циклов, соответственно, при разных значениях температуры воды на выходе из испарителя. При этом будем считать, что с учетом возможных тепловых потерь КПД ТНУ  $\eta$ =0,3.

**Таблица 3.** Изменение суммарной мощности ГеоЭС в зависимости от температуры закачиваемой воды в докритическом цикле

Table 3. Change in GeoES total power depending on injected water temperature in a subcritical cycle

| 0   | 1 1  | 0 5  | 1 5  |  |
|---|--|--|--|--|
| Температура закачивае-<br>мой обратно в пласт во-<br>ды, °C<br>Temperature of water<br>injected back into the | Оптимальный де-<br>бит ГЦС, кг/с<br>Optimal flow rate,<br>kg/s | Полезная<br>мощность<br>ГеоЭС<br>Net power | Полезная мощность, получаемая до-<br>полнительно с учетом возможных<br>потерь ( $\eta$ =0,3)<br>Net power obtained additionally taking<br>into account possible losses | Суммарная полез-<br>ная мощность<br>ГеоЭС<br>Total net power |
| reservoir, °C   |  |  | MBt/MW   |  |
| 25  | 165,8  | 10,0                                       | 6,4  | 16,4   |
| 30  | 174,1  | 10,4                                       | 5,6  | 16,0   |
| 35  | 181,5  | 10,7                                       | 4,6  | 15,3   |
| 40  | 188,2  | 11,1                                       | 3,6  | 14,7   |
| 45  | 194,2  | 11,3                                       | 2,5  | 13,8   |
| 50  | 199,6  | 11,6                                       | 1,3  | 12,9   |
| 55  | 204.4  | 11.8                                       | 0.0  | 11.8   |

| Таблица 4. | Изменение  | суммарной | мощности | ГеоЭС е | з зависимости | om | температуры | закачиваемой | воды | в свер: | c- |
|------------|------------|-----------|----------|---------|---------------|----|-------------|--------------|------|---------|----|
|            | критическо | эм цикле  |          |         |               |    |             |              |      |         |    |

| Tuble 4. Change in GeoLS total power depending on injected water temperature in a supercritical cycle         |  |  |  |  |  |  |  |  |
|---|--|--|--|--|--|--|--|--|
| Температура закачивае-<br>мой обратно в пласт во-<br>ды, °C<br>Temperature of water<br>injected back into the | Оптимальный де-<br>бит ГЦС, кг/с<br>Optimal flow rate,<br>kg/s | Полезная<br>мощность<br>ГеоЭС<br>Net power | Полезная мощность, получаемая до-<br>полнительно с учетом возможных<br>потерь ( $\eta$ =0,3)<br>Net power obtained additionally taking<br>into account possible losses | Суммарная полез-<br>ная мощность<br>ГеоЭС<br>Total net power |  |  |  |  |
| reservoir, °C   |  | MBt/MW                                     |  |  |  |  |  |  |
| 25  | 165,8  | 14,0                                       | 3,6  | 17,6   |  |  |  |  |
| 30  | 174,1  | 14,6                                       | 2,6  | 17,2   |  |  |  |  |
| 35  | 181,5  | 15,2                                       | 1,5  | 16,7   |  |  |  |  |
| 42  | 190,7  | 15,8                                       | 0,0  | 15,8   |  |  |  |  |

Table 4. Change in GeoES total power depending on injected water temperature in a supercritical cycle

В табл. 3, 4 показана динамика изменения такой суммарной мощности ГеоЭС в зависимости от температуры закачиваемой воды в двух видах циклов.

Из данных таблиц следует, что чем выше температура закачиваемой ТВ, тем выше полезная мощность ГеоЭС. Объясняется это уменьшением фильтрационных потерь давления в цикле ГЦС. Суммарная мощность ГеоЭС при этом меняется в обратном порядке: чем ниже температура воды на выходе из испарителя, тем выше суммарная мощность.



**Puc.** 4. Зависимость мощности от температуры закачиваемой обратно в пласт воды **Fig.** 4. Dependence of power on the temperature of water injected back into the reservoir

Проведенные численные исследования и полученные данные в табл. 2 и 3 позволяют сделать следующие выводы:

- суммарная мощность, вырабатываемая турбиной, без утилизации низкопотенциальной энергии, в сверхкритическом цикле на 34 % больше, чем в докритическом;
- суммарная мощность, вырабатываемая турбиной, с учетом утилизации низкопотенциальной энергии с применением ТНУ, в сверхкритическом цикле больше на более чем 7 %, чем в докритическом;
- эксплуатация ГеоЭС в сверхкритическом цикле более эффективна, чем в докритическом.

Преимущества сверхкритического цикла по сравнению с докритическим очевидны. Однако использование сверхкритического цикла в ПТУ повышают и требования к турбине.

Поэтому к числу наиболее актуальных проблем повышения конкурентоспособности геотермальной энергетики относится и проблема поиска вторичных теплоносителей с более низкой критической температурой. Это позволит использовать сверхкритические циклы с термальными водами с более низкой температурой. Хорошую перспективу здесь имеет хладон R13 B1 (трифторбромметан) с критическими параметрами [16]:  $T_k$ =66,9 °C,  $P_k$ =3,946 МПа,  $\rho_k$ =770 кг/м<sup>3</sup>.

Поиск наиболее удобных рабочих агентов для геотермальных энергетических циклов путем подбора состава смеси – одно из направлений исследований Института проблем геотермии и возобновляемой энергетики – филиала ОИВТ РАН.

В заключение отметим, что создание бинарной геотермальной электростанции на Кумухском месторождении термальных вод позволит получить относительно дешевую электроэнергию мощностью до

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Геотермальная энергетика: Справочно-методическое издание / Г.В. Томаров, А.И. Никольский, В.Н. Семенов, А.А. Шипков / под ред. П.П. Безруких. – М.: Интехэнерго-Издат, Теплоэнергетик, 2015. – 304 с.
- Povarov O.A., Nikolski A.I., Tsimmerman S.D. Geothermal power plant at San Jacinto-Tizate // 21st Geothermal Workshop. – New Zealand, 1999. – P. 205–210.
- Shenghua Z., Xiaokai X. Simplified model for coefficient of performance calculation of surface water source heat pump // Applied Thermal Engineering. – 2016. – V. 112. – P. 200–207.
- Wang Y. Analysis on the practical use of open-loop surface water source heat pump systems (SWHP). – China: Chongqing University, 2011. – 30 p.
- Rybach L. Geothermal energy: sustainability and the environment // Geothermics. – 2003. – T. 32. – № 4–6. – P. 463–470.
- Great expectations for geothermal to 2100 messages for now / B. Goldstein, G. Hiriart, L. Gutierrez-Negrin, J. Tester, R. Bertani, C. Bromley, M. Mongillo, E. Huenges, A. Ragnarsson, H. Muraoka, V. Zui // Transactions – Geothermal Resources Council. «Geothermal Resources Council Annual Meeting 2011, Geothermal 2011». – 2011. – P. 1175–1183.
- Петин Ю.М. Новое поколение тепловых насосов для целей теплоснабжения и эффективность их использования в России // Перспективы энергетики. – 2004. – Т. 8. – С. 27–38.
- Курбанов М.К. Геотермальные и гидроминеральные ресурсы Восточного Кавказа и Предкавказья. – М.: Наука, МАИК «Наука/Интерпериодика», 2001. – 260 с.
- Алхасов А.Б. Технологии комплексного освоения геотермальных ресурсов Северокавказского региона // Теплоэнергетика. – 2018. – № 3. – С. 31–35.
- Алхасов А.Б., Алхасова Д.А. Оценка эффективности создания бинарных геотермальных энергоустановок с использованием отработанных нефтяных и газовых скважин на юге России // Теплоэнергетика. – 2018. – № 2. – С. 24–32.

15 МВт, и 2–3 МВт полезной тепловой мощности на теплонасосных установках, с годовой выработкой 135·10<sup>6</sup> кВт·ч электрической энергии (более 350 млн р./год) и годовой экономией замещающего топлива более 500 т.у.т. в год.

С учетом того, что геотермальные ресурсы месторождения богаты еще содержанием сырья редкоземельных металлов [16], применение технологий комплексного освоения геотермальных рассолов делают это месторождение одним из перспективных для разработки.

Таким образом, комплексное освоение Кумухского месторождения термальных вод позволит существенно улучшить экономическую структуру региона.

- Kalina A. New thermodynamical cycles and power systems for geothermal applications // Geothermische Energie. – 2005. – V. 12/2/4. – P. 10–13.
- Alkhasov A.B., Aliyev R.M., Magomedbekov Kh.G. Prospects of two-contour geothermal power plant construction // Renewable Energy. – 1997. – V. 10. – № 2. – P. 363–366.
- Study of complex heat exchange with account for phase transitions in secondary contour of the geothermal power plant / A.B. Alkhasov, R.M. Aliyev, M.M. Ramazanov, G.M Abasov // Renewable Energy. – 2000. – V. 19. – № 1. – Р. 155–161.
- Алхасов А.Б., Алхасова Д.А. Комплексное использование низкопотенциальных термальных вод юга россии для тепло-, водоснабжения и решения экологических проблем // Теплоэнергетика. – 2019. – № 5. – С. 82–88.
- Алхасов А.Б., Магомедбеков Х.Г. Перспективы строительства Геотэс на базе среднепотенциальных термальных вод // Геотермия. Геотермальная энергетика. Сб. науч. тр. ИПГ ДНЦ РАН. – Махачкала, 1994. – С. 17–35.
- Алхасов А.Б. Геотермальная энергетика: проблемы, ресурсы, технологии. – М.: Физматлит, 2008. – 376 с.
- Джаватов Д.К., Азизов А.А. Оптимизация энергетических потерь геотермальной циркуляционной системы на обратную закачку теплоносителя. // Известия ВУЗов. Северо– Кавказский регион. Технические науки. – 2016. – Вып. 4. – С. 51–56.
- Джаватов Д.К., Азизов А.А. Проблема энергетической эффективности геотермальной циркуляционной системы при различных режимах обратной закачки теплоносителя // Юг России: экология, развитие. – 2017. – Т. 12. – № 1. – С. 73–81.
- Антониади Д.Г. Научные основы разработки нефтяных месторождений термическими методами. – М.: Недра, 1995. – 315 с.
- Джаватов Д.К. Математическое моделирование геотермальных систем и проблемы повышения их эффективности. – Махачкала: Институт проблем геотермии ДНЦ РАН, 2007. – 248 с.

Поступила 04.02.2021 г.

#### Информация об авторах

**Джаватов Д.К.**, доктор технических наук, профессор, заведующий кафедрой математического моделирования, эконометрики и статистики, Дагестанский государственный университет; ведущий научный сотрудник, Институт проблем геотермии и возобновляемой энергетики – филиал Объединенного института высоких температур Российской академии наук.

*Азизов А.А.*, ведущий специалист, лаборатория энергетики, Институт проблем геотермии и возобновляемой энергетики – филиал Объединенного института высоких температур Российской академии наук.

UDC 550.36, 553.065

# INCREASING THE ENERGY EFFICIENCY OF A BINARY GEO-ELECTRIC POWER STATION (ON THE EXAMPLE OF THE KUMUKH DEPOSIT)

#### Dzhavat K. Dzhavatov<sup>1,2</sup>

#### Amir A. Azizov<sup>1</sup>,

azizov\_amir@mail.ru

- <sup>1</sup> Dagestan State University,43 a, Gadzhiev street, Makhachkala, 367000, Russia.
- <sup>2</sup> Institute of Geothermy and renewable energy branch of the Joint Institute of High Temperatures of the Russian Academy of Sciences,

39 a, Imam Shamil avenue, Makhachkala, 367030, Russia.

**The relevance** of the study is caused by the need to expand the fuel and energy and mineral resources base through the development of renewable, high-potential mineralized resources of thermal water deposits. However, the exploitation of such deposits is hindered by the high degree of mineralization of natural brines. The use of binary geothermal power plants that implement the Rankine thermodynamic cycle for utilization of thermal energy allows us to solve this problem and obtain relatively cheap electrical energy. There is a need to search and evaluate methods for improving the energy efficiency of thermodynamic cycles, implemented in the development of one of the most promising deposits of thermal waters of Dagestan – Kumukh. A positive assessment of the prospects for development of geothermal resources of the field shows significant potential for improving the economic structure of the region.

**Purpose:** to evaluate the energy efficiency of a binary geothermal power plant, which is based on the organic Rankine cycle in subcritical and supercritical cycles and in different modes of injection of waste coolant for the Kumukh thermal water field; to show the prospects and effectiveness of integrated development of geothermal resources of the field.

Object: geothermal systems for electric power development of high potential mineralized thermal waters of the field.

The research methods are based on the use of geological exploration, hydrothermal and geochemical research data on the Kumukh thermal water deposit, methods of mathematical modeling and optimization.

**Results.** On the example of a specific thermal water deposit, the technological parameters of the primary circuit of the geothermal power plant were optimized, its energy efficiency was evaluated in subcritical and supercritical organic Rankine cycles with a low boiling secondary coolant. It is shown that the utilization of the low-potential energy of brines in heat pump plants can improve the efficiency of energy cycles in the field. The analysis shows that the creation of integrated technologies for development of high-potential mineralized geothermal resources of the field will significantly improve the economic structure of the region.

#### Key words:

Thermal water field, geothermal circulation system, double-circuit geothermal power plants, subcritical and supercritical Rankine cycles, low-boiling working substance, optimization, low-grade heat, heat pump installations.

#### REFERENCES

- Tomarov G.V., Nikolskii A.I., Semenov V.N., Shipkov A.A. Geotermalnaya energetika Spravochno-metodicheskoe izdanie [Geothermal energy: reference and methodical edition]. Ed. by P.P. Bezrukikh. Moscow, Intekhenergo-Izdat, Teploenergetik Publ., 2015. 304 p.
- Povarov O.A., Nikolski A.I., Tsimmerman S.D. Geothermal power plant at San Jacinto-Tizate. 21<sup>st</sup> Geothermal Workshop. New Zealand, 1999. pp. 205–210.
- Shenghua Z., Xiaokai X. Simplified model for coefficient of performance calculation of surface water source heat pump. *Applied Thermal Engineering*, 2016, vol. 112, pp. 200–207.
- Wang Y. Analysis on the practical use of open-loop surface water source heat pump systems (SWHP). China, Chongqing University, 2011. 30 p.
- Rybach L. Geothermal energy: sustainability and the environment. *Geothermics*, 2003, vol. 32, № 4–6, pp. 463–470.
- Goldstein B., Hiriart G., Gutierrez-Negrin L., Tester J., Bertani R., Bromley C., Mongillo M., Huenges E., Ragnarsson A., Muraoka H., Zui V. Great expectations for geothermal to 2100 – messages for now. *Transactions – Geothermal Resources Council. «Geothermal Resources Council Annual Meeting 2011, Geothermal 2011»*. 2011. pp. 1175–1183.
- Petin Yu.M. Novoe pokolenie teplovykh nasosov dlya tseley teplosnabzheniya i effektivnost ikh ispolzovaniia v Rossii [New generation of heat pumps for heat supply and efficiency of their use in Russia]. *Perspektivy energetiki*, 2004, vol. 8, pp. 27–38.

- Kurbanov M.K. Geotermalnye i gidromineralnye resursy Vostochnogo Kavkaza i Predkavkazya [Geothermal and hydromineral resources of the Eastern Caucasus and the Caucasus]. Moscow, Nauka Publ., MAIK Nauka Interperiodika Publ., 2001. 260 p.
- Alkhasov A.B. Tekhnologii kompleksnogo osvoeniya geotermalnykh resursov Severokavkazskogo regiona [Technologies of integrated development of geothermal resources of the North Caucasus region]. *Teploenergetika*, 2018, no. 3, pp. 31–35.
- 10. Alkhasov A.B., Alkhasova D.A. Otsenka effektivnosti sozdaniya binarnykh geotermalnykh energoustanovok s ispolzovaniem otrabotannykh neftianykh i gazovykh skvazhin na yuge Rossii [Evaluating the effect from constructing binary geothermal power units based on spent petroleum and gas boreholes in the south regions of Russia]. *Teploenergetika*, 2018, no. 2, pp. 24–32.
- Kalina A. New thermodynamical cycles and power systems for geothermal applications. *Geothermische Energie*, 2005, vol. 12/2/4, pp. 10–13.
- Alkhasov A.B., Aliyev R.M., Magomedbekov Kh.G. Prospects of two-contour geothermal power plant construction. *Renewable Energy*, 1997, vol. 10, no. 2, pp. 363–366.
- Alkhasov A.B., Aliyev R.M., Ramazanov M.M., Abasov G.M Study of complex heat exchange with account for phase transitions in secondary contour of the geothermal power plant. *Renewable Energy*, 2000, vol. 19, no. 1. pp. 155–161.
- Alkhasov A.B., Alkhasova D.A. Kompleksnoe ispolzovanie nizkopotentsialnykh termalnykh vod yuga Rossii dlya teplovodosnabzheniya i resheniya ekologicheskikh problem [Complex

use of low-potential thermal waters of the South of Russia for heat, water supply and solution of environmental problems]. *Teploenergetika*, 2019, no. 5, pp. 82–88.

- Alkhasov A.B., Magomedbekov Kh.G. Perspektivy stroitelstva Geotes na baze srednepotentsialnykh termalnykh vod [The prospect of building a Geothermal power station on the basis of mean-potential thermal waters]. *Geotermiia Geotermalnaia* energetika. Sb. nauch. tr. IPG DNTS RAN, 1994. pp. 17–35.
- Alkhasov A.B. Geotermalnaya energetika: problemy, resursy, tekhnologii [Geothermal energy: problems, resources and technology]. Moscow, FIZMATLIT Publ., 2008. 376 p.
- Dzhavatov D.K., Azizov A.A. Optimizatsiia energeticheskikh poter geotermalnoy tsirkulyatsionnoy sistemy na obratnuyu zakachku teplonositelia [Energy loss optimization in geothermal circulating system for heat-carrier reinjection]. *Izvestiia VUZov* Severo Kavkazskiy region. Tekhnicheskie nauki, 2016, no. 4, pp. 51–56.
- Dzhavatov D.K., Azizov A.A. Problema energeticheskoy effektivnosti geotermalnoy tsirkuliatsionnoy sistemy pri razlichnykh rezhimakh obratnoy zakachki teplonositelya [The problem of energy efficiency of the geothermal circulation system in different modes of reinjection of the coolant]. Yug Rossii: ekologiya, razvitie, 2017, vol. 12, no. 1, pp. 73–81.
- Antoniadi D.G. Nauchnye osnovy razrabotki neftianykh mestorozhdenii termicheskimi metodami [Scientific basis for the development of oil fields by thermal methods]. Moscow, Nedra Publ., 1995. 315 p.
- 20. Dzhavatov D.K. Matematicheskoe modelirovanie geotermalnykh sistem i problemy povysheniya ikh effektivnosti [Mathematical modeling of geothermal systems and the problems of increasing their efficiency]. Makhachkala, Institute of geothermal problems DSC RAS, 2007. 248 p.

Received: 4 February 2021.

#### Information about the authors

**Dzhavat K. Dzhavatov**, Dr. Sc., professor, head of department «Mathematical modeling, econometrics and statistics», Dagestan State University; leading researcher, Institute of Geothermy and renewable energy – branch of the Joint Institute of High Temperatures of the Russian Academy of Sciences.

*Amir A. Azizov*, leading specialist, Institute of Geothermy and renewable energy – branch of the Joint Institute of High Temperatures of the Russian Academy of Sciences.

УДК 628.345.9

# ОПТИМИЗАЦИЯ ПРОЦЕССОВ ВОДОПОДГОТОВКИ ОБОРОТНОЙ ВОДЫ ЗАВОДА ПО ВТОРИЧНОЙ ПЕРЕРАБОТКЕ ПЛАСТМАСС

#### Дюрягина Антонина Николаевна<sup>1</sup>,

adyuryagina@inbox.ru

## Островной Кирилл Александрович1,

kostrovnoy@mail.ru

Голодова Ирина Викторовна<sup>1</sup>, igolodova@inbox.ru

Шаймерденова Зарина Нурлановна<sup>1</sup>,

zarina.mambetova@gmail.com

# Козик Дарья Юрьевна<sup>1</sup>,

daria.kozik@mail.ru

### Дюсикеева Алия Кайратовна<sup>1</sup>,

aliya\_dyusikeeva@mail.ru

<sup>1</sup> НАО Северо-Казахстанский университет им. М. Козыбаева, Казахстан, 150000, г. Петропавловск, ул. Пушкина, 86.

**Актуальность.** Одной из наиболее актуальных глобальных проблем является вторичная переработка пластиковых отходов, которая невозможна без качественной тщательной промывки отработанного пластика. В настоящее время проблема вторичной переработки пластмассовых изделий поставлена особенно остро. Вследствие этого на предприятиях, ориентированных на вторичную переработку пластмасс, уделяется особое внимание подготовке исходного сырья. Наличие даже небольших количеств загрязнений приводит к ухудшению показателей качества вторичных полимеров (насыпная плотность, прочность, сылучесть), получаемых в виде флека или регранулята. Для удаления труднорастворимых примесей различной природы используют коагулянты и флокулянты. Отсутствие единой теории применения коагулирующих реагентов, что является как технологически, так и экономически невыгодным. При этом на подавляющем большинстве предприятий выбор режимных параметров водоочистки (концентрация реагентов, температура, время коагуляции) осуществляется чисто эмпирически. В свою очередь точный подбор количества реагентов дает возможность максимально увеличить эффективность водоподготовки и обеспечиты требования стандартов по их остаточной концентрации в оборотной воде. Проблема оптимизации процесса водоподготовки является, безусловно, актуальной, так как эффективность использования коагулянтов и флокулянтов зависит от большого количества факторов. Вместе с тем использование вероятность-

**Целью** исследования является оптимизация режимных параметров очистки оборотной воды предприятия по вторичной переработке пластмасс.

Методы: седиментационный анализ, метод вероятностно-детерминированного планирования.

**Результат.** Изучены процессы коагуляции и флокуляции загрязнителей оборотной воды предприятия по вторичной переработке пластмасс. На основе использования принципов вероятностно-детерминированного планирования эксперимента проведен цикл исследований, направленный на установление режимов водоочистки оборотной воды. Установлены кинетические зависимости процесса седиментации в присутствии коагулянта сульфата алюминия и высокомолекулярного катионного низкозарядного флокулянта. Установлены оптимальные режимы коагуляции: расходы коагулянта и флокулянта, температура, продолжительность процесса коагуляции.

#### Ключевые слова:

Коагулянт, флокулянт, сульфат алюминия, оборотная вода, вторичная переработка пластмасс.

#### Введение

В настоящее время проблема вторичной переработки пластмассовых изделий в глобальном масштабе поставлена особенно остро и является актуальной проблемой современности. Причиной тому является загрязнение пластмассой окружающей среды. Пластиковые изделия при сжигании образуют большое количество вредных выбросов в атмосферу, а при подземной утилизации на полигонах процесс разложения пластика занимает очень длительный период [1–5]. Одной из главных проблем, которую приходится решать при переработке вторичных полимеров, является загрязненность отходов пластика, поступающих с городских полигонов. Изготовление качественного гранулята из загрязненного пластика не представляется возможным, вследствие чего возникает необходимость его предварительной очистки водой. Промывка сырья водой осуществляется тремя последовательными стадиями: вымачиванием, зачисткой и разделением. Из экономических соображений вода для промывки пластика чаще всего применяется в за-

Table 1.

мкнутом цикле и после применения подвергается очистке с использованием процессов коагуляции и флокуляции [6–10].

Несмотря на большое количество применяемых технологических решений на подавляющем большинстве предприятий выбор режимных параметров водоочистки (концентрация реагентов, температура, время коагуляции) осуществляется чисто эмпирически [11-15]. Практикующаяся дозировка на очистку одного кубического метра загрязненной воды в среднем составляет 10 литров раствора коагулянта Al<sub>2</sub>(SO<sub>4</sub>)<sub>3</sub> с концентрацией 80 г/дм<sup>3</sup>, 5 литров раствора высокомолекулярного флокулянта с концентрацией 2 г/дм<sup>3</sup>, продолжительность коагуляции составляет примерно 10 минут при комнатной температуре [16-20]. В свою очередь точный подбор количества реагентов дает возможность максимально увеличить эффективность водоподготовки и обеспечить требования стандартов по их остаточной концентрации в оборотной воде. Проблема оптимизации процесса водоподготовки является, безусловно, актуальной, так как эффективность использования коагулянтов и флокулянтов зависит от большого количества факторов. Таким образом, вопрос оптимизации процессов водоподготовки оборотной воды перерабатывающих пластик предприятий становится не только актуальным, но и экономически целесообразным. Вместе с тем использование вероятностно-детерминированного планирования (ВДП) позволяет научно-обосновано оптимизировать процесс очистки воды и тем самым исключить перерасход реагентов [21].

Целью настоящего исследования являлась оптимизация режимных параметров очистки оборотной воды с применением метода вероятностно-детерминированного планирования.

В качестве коагулянта использовали получивший наибольшее распространение сульфат алюминия (ГОСТ 12966-85). Действие коагулянта заключается в развитии процессов агрегации загрязняющих частиц и последующей седиментации последних. Для интенсификации процессов хлопьеобразования за счет формирования мостиковых связей между слипшимися коллоидными частицами вводили полимерные флокулянты на основе полиакриламида: Флопам (SNF FLOERGER, Франция), Полиакриламид ПАА (водоканальный), Вейстфлок 4312 (ТУ 2216-089-26447891-2016); далее по тексту ФЛ-1, ФЛ-2 и ФЛ-3 соответственно.

#### Методика эксперимента

При проведении эксперимента по оптимизации процессов водоподготовки оборотной воды использовали метод ВДП, который состоял из нескольких этапов:

- определение факторов (входных параметров) и уровней их варьирования;
- построение плана эксперимента в виде планматрицы, состоящей из т столбцов, соответствующих количеству входных параметров, и п строк – количество экспериментов. Для обеспечения ортогональности план-матрицы каждый уро-

вень одного входного параметра задавался только один раз с каждым уровнем другого входного параметра;

- проведение активного эксперимента согласно сформированной план-матрице и установление числовых значений функции отклика (выходного параметра);
- выборка функции отклика по каждому уровню каждого фактора;
- построение частных зависимостей функции отклика от каждого фактора;
- аппроксимация частных зависимостей и выведение обобщенной математической модели.

В качестве входных параметров, влияющих на процесс седиментации твердофазных загрязнителей в оборотной воде, использовали: температуру (t, 15–25 °C), продолжительность перемешивания коагулянта с оборотной водой ( $\tau$ , 12–20 мин), концентрации коагулянта ( $C_{\text{коаг}}$ , 0,4–1,2 г/дм<sup>3</sup>) и флокулянта ( $C_{\phi\pi}$ , 0,005–0,015 г/дм<sup>3</sup>). При выборе последних исходили из условий максимального приближения к реальному содержанию вводимых реагентов в оборотную воду, которая подвергается очистке.

Числовые значения уровней для каждого фактора представлены в табл. 1.

Таблица 1. Числовые значения уровней для каждого фактора

Numerical values of levels for each factor

| Vnopeuu | Значениефактора/Value of the factor                                       |  |       |            |  |  |  |
|---------|---|--|-------|------------|--|--|--|
| Level   | С <sub>фл</sub> , г/дм <sup>3</sup><br>С <sub>fl</sub> ,g/dm <sup>3</sup> | $C_{\text{коаг}}$ , г/дм <sup>3</sup><br>$C_{\text{соаg}}$ , g/dm <sup>3</sup> | t, °C | τ, мин/min |  |  |  |
| 1       | 0,005   | 0,4  | 15    | 12         |  |  |  |
| 2       | 0,010   | 0,8  | 20    | 16         |  |  |  |
| 3       | 0,015   | 1,2  | 25    | 20         |  |  |  |

В рамках ВДП полнофакторный эксперимент проводили на основе построенной ортогональной планматрицы четырехфакторного эксперимента на трех уровнях (табл. 2) [21].

Таблица 2. Общий вид многоуровневой план-матрицы четырехфакторного эксперимента на трех уровнях

 Table 2.
 General view of the multi-level plan matrix of a four-factor experiment at three levels

|                     | J J  | ····· · · · · · · · · · · · · · · · ·                                      |       |               |  |
|---------------------|--|--|-------|---------------|--|
| № опыта<br>Ехр. по. | С <sub>фл</sub> ,<br>г/дм <sup>3</sup><br>С <sub>fl</sub> ,<br>g/dm <sup>3</sup> | $C_{\kappa oar},$<br>г/дм <sup>3</sup><br>$C_{coag},$<br>g/dm <sup>3</sup> | t, °C | τ,<br>мин/min | Функция<br>отклика<br>Response<br>function |
| 1                   | 1  | 1  | 1     | 1             | y1   |
| 2                   | 1  | 2  | 2     | 2             | y <sub>2</sub>                             |
| 3                   | 1  | 3  | 3     | 3             | y3   |
| 4                   | 2  | 1  | 2     | 3             | <b>y</b> 4                                 |
| 5                   | 2  | 2  | 3     | 1             | y <sub>5</sub>                             |
| 6                   | 2  | 3  | 1     | 2             | y <sub>6</sub>                             |
| 7                   | 3  | 1  | 3     | 2             | y <sub>7</sub>                             |
| 8                   | 3  | 2  | 1     | 3             | y <sub>8</sub>                             |
| 9                   | 3  | 3  | 2     | 1             | Vo   |

После реализации активного эксперимента (табл. 1) проводили выборку экспериментального массива по каждому уровню каждого фактора согласно табл. 3.

| Уровни актора<br>С <sub>фл</sub> , г/дм <sup>3</sup> | Выборка                     | Уровни фактора<br>С <sub>коаг</sub> , г/дм <sup>3</sup> | Выборка                     | Уровни фактора<br>t, °C | Выборка                     | Уровни фактора<br>т, мин | Выборка                     |
|--|-----------------------------|---|-----------------------------|-------------------------|-----------------------------|--------------------------|-----------------------------|
| Levels of the factor $C = \frac{q}{dm^3}$            | Selection                   | Levels of the factor $C = \frac{g}{dm^3}$               | Selection                   | Levels of the           | Selection                   | Levels of the            | Selection                   |
| Tactor C <sub>fl</sub> , g/um                        |                             | Tactor C <sub>coag</sub> , g/um                         |                             | laciol i, C             |                             |                          |                             |
| 1  | $\frac{y_1 + y_2 + y_3}{3}$ | 1   | $\frac{y_1 + y_4 + y_7}{3}$ | 1                       | $\frac{y_1 + y_6 + y_8}{3}$ | 1                        | $\frac{y_1 + y_5 + y_9}{3}$ |
| 2  | $\frac{y_4 + y_5 + y_6}{3}$ | 2   | $\frac{y_2 + y_5 + y_8}{3}$ | 2                       | $\frac{y_2 + y_4 + y_9}{3}$ | 2                        | $\frac{y_2 + y_6 + y_7}{3}$ |
| 3  | $\frac{y_7 + y_8 + y_9}{3}$ | 3   | $\frac{y_3 + y_6 + y_9}{3}$ | 3                       | $\frac{y_3 + y_5 + y_7}{3}$ | 3                        | $\frac{y_3 + y_4 + y_8}{3}$ |

Таблица 3. Выборка функции отклика из план-матрицыTable 3.Selection of the response function from the plan matrix

На основе выборки экспериментального массива данных (табл. 3) строили графические зависимости функции отклика от каждого фактора.

На последнем этапе осуществляли аппроксимацию частных зависимостей с получением однопараметрических уравнений  $y=f(m_i)$ , характеризующих влияние на функцию отклика каждого фактора в отдельности. Для построения многофакторной статистической математической модели (обобщенного уравнения) использовали предложенную М.М. Протодьяконовым формулу, которая в случае четырехфакторного эксперимента принимает вид:

$$y = \frac{f(m_1) \cdot f(m_2) \cdot f(m_3) \cdot f(m_4)}{g_{cp}^{m-1}},$$
 (1)

где  $f(m_1)$ ,  $f(m_2)$ ,  $f(m_3)$ ,  $f(m_4)$  – зависимость функции отклика от фактора  $m_j$ ;  $g_{cp}$  – среднее значение фактической величины выходного параметра (*y*) для всех п экспериментов (генеральное среднее); m – количество факторов.

Значения *g*<sub>ср</sub> были рассчитаны по формуле:

$$g_{\rm cp} = \frac{\sum y_i}{n},\tag{2}$$

где  $\sum y_i$  – совокупность экспериментальных данных в матрице; n – общее число опытов в план-матрице.

Оценку точности полученных аппроксимированных уравнений и полученных математических моделей оценивали с помощью используемых в методе

ВДП коэффициентов корреляции (R) и значимости (t<sub>R</sub>), рассчитанных по уравнению (3), (4).

$$R = \sqrt{1 - \frac{(n-2)\sum (y_{3} - y_{\tau})^{2}}{(n-1)\sum (y_{3} - y_{cp})^{2}}},$$
(3)

где n – количество опытов;  $y_3$  – экспериментальное значение функции отклика;  $y_{\rm T}$  – теоретическое значение функции отклика;  $y_{\rm cp}$  – среднее значение функции отклика.

$$t_{R} = \frac{R\sqrt{(n-2)}}{1-R^{2}},$$
 (4)

За функцию отклика принимали среднюю скорость седиментации твердофазных загрязнителей ( $v_{cp}$ , мм/с) в оборотной воде.

Скорость осаждения твердофазных частиц контролировали во времени по изменению высоты осветленного слоя (h, мм) в термостатируемом режиме и рассчитывали по уравнению (5) (рис. 1).

$$\nu_{\rm cp} = \sum \frac{\nu_i}{n}, \qquad (5)$$

где n – количество измерений в опыте;  $v_i$  – скорость седиментации на высоте  $h_i$ , рассчитанная по формуле (6).

$$\nu_i = \frac{h_i}{\tau_i},\tag{6}$$

где  $h_i$  – высота осветленного слоя, мм;  $\tau_i$  – время осаждения до высоты  $h_i$ , с.

 $r_1$   $r_2$ 

**Рис.** 1. Измерение высоты осветленного слоя оборотной воды во времени **Fig. 1.** Measurement of the recycled water clarified layer height in time



В опытах использовали рабочие растворы флокулянта с концентрацией 1 г/дм<sup>3</sup> и коагулянта с концентрацией 80 г/дм<sup>3</sup>. Опыты проводили в термостатируемом режиме в стеклянном стакане на 250 мл с калибровочной шкалой, в который помещали 200 мл оборотной воды. В суспензию вводили коагулянт и перемешивали в течение времени, в соответствии с условиями матричных опытов (табл. 2). Перемешивание суспензии осуществлялось импеллерной мешалкой. По истечении заданного времени в суспензию добавляли флокулянт, через 30 секунд прекращали перемешивание и измеряли высоту осветленного слоя во времени (рис. 1).

#### Результаты и их обсуждение

Активный эксперимент проводили согласно матрице четырехфакторного эксперимента на трех уровнях (табл. 4).

# Таблица 4. Матрица четырехфакторного эксперимента на трех уровнях

 Table 4.
 Matrix of a four-factor experiment on three levels

| № опыта<br>Ехр. по. | С <sub>фл</sub> ,<br>г/дм <sup>3</sup><br>С <sub>fl</sub> ,<br>g/dm <sup>3</sup> | $C_{\kappa oar},$<br>$\Gamma/дM^{3}$<br>$C_{coag},$<br>$g/dm^{3}$ | <i>t</i> , 0 °C | т,<br>мин/min | ФЛ-1<br>Fl-1 | ФЛ-2<br>FL-2 | ФЛ-3<br>FL-3 |
|---------------------|--|---|-----------------|---------------|--------------|--------------|--------------|
| 1                   | 0,005  | 0,4   | 15              | 12            | 1,339        | 1,222        | 0,520        |
| 2                   | 0,005  | 0,8   | 20              | 16            | 1,067        | 1,041        | 0,378        |
| 3                   | 0,005  | 1,2   | 25              | 20            | 1,036        | 1,135        | 0,421        |
| 4                   | 0,01   | 0,4   | 20              | 20            | 1,839        | 0,855        | 1,323        |
| 5                   | 0,01   | 0,8   | 25              | 12            | 1,274        | 1,071        | 0,335        |
| 6                   | 0,01   | 1,2   | 15              | 16            | 1,076        | 1,163        | 0,403        |
| 7                   | 0,015  | 0,4   | 25              | 16            | 2,427        | 1,938        | 1,282        |
| 8                   | 0,015  | 0,8   | 15              | 20            | 1,729        | 1,218        | 0,368        |
| 9                   | 0,015  | 1,2   | 20              | 12            | 1,875        | 1,129        | 0,333        |

Влияние температурных режимов, продолжительности перемешивания, концентраций коагулянта и флокулянтов на скорость осаждения иллюстрируют графики частных зависимостей, представленные на рис. 2.

Увеличение температуры (до 20 °С) и продолжительности перемешивания (до 16 минут) благоприятствует интенсификации процессов агрегации твердофазных частиц при введении в оборотную воду на стадии флокуляции ФЛ-1 и ФЛ-3 (рис. 1, *a*, *б*). В системах с ФЛ-2 при аналогичных значениях t и т фиксировали два экстремума в показателях скорости седиментации; при т=16 минут – максимум (V<sub>c</sub>=1,380 мм/с), а при t=20 °С – минимум (V<sub>c</sub>=1,008 мм/с). В более нагретой воде (свыше 20 °С) наблюдалась тенденция к увеличению V<sub>c</sub>, однако дальнейшее увеличение температуры ограничено рамками действующей технологии водоочистки.

Закономерности изменения скорости осветления воды при изменении содержания в ней сульфата алюминия позволяют выделить два концентрационных участка, разграничивающих активность коагулянта (рис. 2, *в*).

При ограниченной концентрации (0,4 г/дм<sup>3</sup>) сульфата алюминия фиксировали максимумы скорости седиментации, которые варьируются в диапазоне 1,041–1,868 мм/с, в зависимости от особенностей химического состава вводимого флокулянта. Увеличение концентрации коагулянта до 0,8 г/дм<sup>3</sup> приводило к замедлению в 2,7 раза скорости осветления отработанной воды для системы с ФЛ-1; в случае использования ФЛ-2 и ФЛ-3 – в 1,2 и 1,4 раза соответственно.

Последующий рост концентрации сульфата алюминия (0,8–1,2 г/дм<sup>3</sup>) почти не оказывал влияния на значения скорости седиментации, которые оставались на том же уровне, что явно свидетельствует о завышенном содержании коагулянта в системах.

Активность флокулянтов (рис. 2, *г*), в сравнении с концентрационным фактором, установленным для коагулянта, имеет кардинально противоположный характер: наибольшее значение скорости осветления фиксировали в области повышенных концентраций  $(C_{\phi,n} \ge 0,010 \text{ г/дм}^3)$ .

При сопоставимых концентрациях флокулянтов наибольший эффект в повышении скорости осветления оборотной воды фиксировали в присутствии ФЛ-1. По мере увеличения его концентрации (от 0,005 до 0,015 г/дм<sup>3</sup>) скорость седиментации увеличилась практически в два раза и составила 2,010 мм/с. Другие разновидности флокулянтов (ФЛ-2 и ФЛ-3) характеризуются меньшими изменениями V<sub>c</sub>, которые варьируются в диапазоне 0,221–0,296 мм/с.

Таким образом, можно удостовериться, что используемые в технологии водоочистки содержания являются завышенными для коагулянта и заниженными для флокулянтов.

С целью уточнения содержания коагулянта и флокулянтов для очистки оборотной воды была осуществлена серия дополнительных опытов. При построении план-матрицы уровни варьирования факторов выбирали в области достижения максимальной скорости осаждения твердофазных частиц (табл. 5, 6).

Таблица 5. Числовые значения уровней для каждого фактора

Table 5. Numerical values of levels for each factor

| Vnoreнь | Значение фактора/Value of the factor            |  |               |            |  |  |  |
|---------|---|--|---------------|------------|--|--|--|
| Level   | $C_{	ext{koar}}, r/дм^3 C_{	ext{koag}}, g/dm^3$ | С <sub>фл</sub> , г/дм <sup>3</sup><br>С <sub>fl</sub> , g/dm <sup>3</sup> | <i>t</i> , °C | τ, мин/min |  |  |  |
| 1       | 0,08  | 0,012  | 16            | 18         |  |  |  |
| 2       | 0,24  | 0,014  | 18            | 20         |  |  |  |
| 3       | 0,40  | 0,016  | 20            | 22         |  |  |  |

Таблица 6. Матрица четырехфакторного эксперимента на трех уровнях

 Table 6.
 Matrix of a four-factor experiment at three levels

| № опыта<br>Ехр. по. | С <sub>фл</sub> ,<br>г/дм <sup>3</sup><br>С <sub>fl</sub> ,<br>g/dm <sup>3</sup> | $C_{\text{коаг}},$<br>г/дм <sup>3</sup><br>$C_{\text{koag}},$<br>g/dm <sup>3</sup> | t, °C | т,<br>мин/min | ФЛ-1<br>FL-1 | ФЛ-2<br>FL-2 | ФЛ-3<br>FL-3 |
|---------------------|--|--|-------|---------------|--------------|--------------|--------------|
| 1                   | 0,012  | 0,08   | 16    | 18            | 2,497        | 0,659        | 0,793        |
| 2                   | 0,012  | 0,24   | 18    | 20            | 1,609        | 1,362        | 0,813        |
| 3                   | 0,012  | 0,40   | 20    | 22            | 1,441        | 1,463        | 0,640        |
| 4                   | 0,014  | 0,08   | 18    | 22            | 2,740        | 1,033        | 1,417        |
| 5                   | 0,014  | 0,24   | 20    | 18            | 2,740        | 0,832        | 1,417        |
| 6                   | 0,014  | 0,40   | 16    | 20            | 1,492        | 1,005        | 1,006        |
| 7                   | 0,016  | 0,08   | 20    | 20            | 3,268        | 0,948        | 1,492        |
| 8                   | 0,016  | 0,24   | 16    | 22            | 2,037        | 0,751        | 0,881        |
| 9                   | 0,016  | 0,40   | 18    | 18            | 2,105        | 1,168        | 0,725        |

На основе объединенного массива экспериментальных данных построены зависимости средней ско-

рости осаждения твердофазных частиц, которые представлены на рис. 3.



<sup>1 –</sup> ФЛ-1 (FL-1); 2 – ФЛ-2 (FL-2); 3 – ФЛ-3 (FL-3)

- **Рис. 2.** Частные зависимости скорости осаждения от температуры (а), продолжительности перемешивания (б), концентрации коагулянта (в), концентрации флокулянта (г), построенные по выборке функции отклика из экспериментального массива (табл. 4)
- *Fig. 2.* Partial dependences of the sedimentation rate on temperature (a), duration of mixing (b), concentration of coagulant (c), concentration of flocculant (d), constructed from a sample of the response function from the experimental array (table 4)



1 – ФЛ-1 (FL-1); 2 – ФЛ-2 (FL-2); 3 – ФЛ-3 (FL-3)

Рис. 3. Зависимости скорости осаждения твердофазных компонентов оборотной воды от температуры (а), продолжительности перемешивания (б), концентрации коагулянта (в), концентрации флокулянта (г), построенные по выборке функции отклика из экспериментального массива (табл. 6)



В системах с ФЛ-2 (рис. 3) наблюдались ярко выраженные экстремумы в показателях средней скорости седиментации в зависимости от всех четырех факторов. Пики фиксировали при Скоаг=0,4 г/дм3,  $C_{\phi \pi} = 0,015 \text{ г/дм}^3, t = 25 \text{ °C}, \tau_{\text{коаг}} = 16 \text{ мин}.$ 

В присутствии ФЛ-1 и ФЛ-3, в отличие от ФЛ-2, были выявлены экстремумы только от трех факторов (рис. 3,  $\delta$ ,  $\theta$ , z), которые свидетельствуют, что очистку воды следует производить при температуре 18-20 °C, при концентрации флокулянтов (ФЛ-1 или ФЛ-3) 0,014 г/дм<sup>3</sup>и времени перемешивания 18 минут. Если говорить о коагулянте, то отсутствие пика (рис. 3, а, кривые 1 и 3) на концентрационной зависимости предопределило исследования в области еще меньших концентраций сульфата алюминия (С≤0,08 г/дм<sup>3</sup>) при оптимальных для данных систем параметрах водоочистки ( $C_{\phi\pi}=0.014 \text{ г/дм}^3$ , t=20 °C,  $\tau_{\kappa oar}=18$  мин).

Экстремумы были выявлены при концентрации коагулянта 0,08 г/дм<sup>3</sup>в системе с ФЛ-1 и 0,04 г/дм<sup>3</sup> – с ФЛ-3 (рис. 4).



Рис. 4. Зависимость скорости осаждения загрязнителей от расходов сульфата алюминия в системах с ФЛ-1 (1) и ФЛ-3 (2)

Fig. 4. Dependence of the deposition rate of pollutants on the consumption of aluminum sulfate in systems with FL-1 (1) and FL-3 (2)

После аппроксимации частных зависимостей получены однопараметрические уравнения, которые объединены в полнофакторные математические модели (уравнения (7)–(12)):

По частным зависимостям рис. 2:

$$V_{cp} = (-0,004t^{2} + 0,201t - 0,614) \times \\ \times (-1,513C_{\kappaoar}^{2} - 3,094C_{\kappaoar} + 2,863) \times \\ \times (0,317e^{56,07C_{\phi n-1}}\tau^{0,05}),$$
(7)

$$V_{cp} = 0,583(-0,011t^{2} + 0,434t + 5,171) \times \\ \times (0,815C_{\kappa_{00}}^{2} - 1,549C_{\kappa_{00}} + 1,827) \times \\ \times (10024C_{\phi_{0,-2}}^{2} - 170C_{\phi_{0,-2}} + 1,736) \\ \times (-0,017\tau^{2} + 0,542\tau - 2,886),$$
(8)

$$\begin{split} V_{\rm cp} &= 4,723(-0,004t^2+0,221t+1,786) \times \\ &\times (2,288C_{\rm koar}^2-4,455C_{\rm koar}+2,451) \times \\ &\times (-5668C_{\phi\pi^{-3}}^2+134,5C_{\phi\pi^{-3}}-0,089) \times \\ &\times (-0,008\tau^2+0,313\tau-2,127). \end{split}$$

(9)

 $\Pi_{0}$  пости и совриси состах вис 2.

$$V_{cp} = (0,023t^{2} - 0,732t + 7,673) \times \\ \times (-41103,8C_{\phi\pi^{-1}}^{2} + 1306,1C_{\phi\pi^{-1}} - 7,905) \times \\ \times (0,295e^{-1,63C_{war}})(0,0343\tau^{2} - 1,4679\tau + 17,739), (10) \\ V_{cp} = 0,95(-0,061t^{2} + 2,27t - 19,83) \times \\ \times (25434C_{\phi\pi^{-2}}^{2} - 763C_{\phi\pi^{-2}} + 6,6) \times \\ \times (-0,03\tau^{2} + 1,25\tau - 11,94)(0,79e^{1,001C_{war}}), (11) \\ V_{cp} = 0,98(0,013t^{2} + 0,407t - 3,998) \times \\ \times (-97317C_{\phi\pi^{-3}}^{2} + 2795C_{\phi\pi^{-3}} - 18,78) \times$$

 $\times (-0.031\tau^2 + 1.247\tau - 11.37)(1.401e^{-1.39C_{\text{koar}}}).$  (12)

Рассчитанные коэффициенты корреляции (R) и значимости (t<sub>R</sub>) подтвердили достаточную точность математических моделей и сходимость экспериментальных и теоретических значений функции отклика: *R*≥0,9; *t*<sub>*R*</sub>>2 (табл. 7).

- **Таблица** 7. Экспериментальные (V<sub>эксп</sub>) и рассчитанные (V<sub>meop</sub>) по уравнениям (10)-(12) значения функции отклика
- Table 7. Experimental  $(V_{exp})$  and calculated  $(V_{teor})$ values of the response function according to equations (10)–(12)

|          | -         |                    |                  |                    |           |                    |  |  |  |  |  |
|----------|-----------|--------------------|------------------|--------------------|-----------|--------------------|--|--|--|--|--|
|          | ФЛ-1      | /FL-1              | ФЛ-2             | 2/FL-2             | ФЛ-3/FL-3 |                    |  |  |  |  |  |
| № опыта  | Vэксп     | V <sub>reop</sub>  | Vэксп            | V <sub>reop</sub>  | Vэксп     | V <sub>reop</sub>  |  |  |  |  |  |
| Exp. no. | Vexp      | V <sub>theor</sub> | V <sub>exp</sub> | V <sub>theor</sub> | Vexp      | V <sub>theor</sub> |  |  |  |  |  |
|          | мм/c/mm/s |                    |                  |                    |           |                    |  |  |  |  |  |
| 1        | 2,497     | 2,355              | 0,659            | 0,612              | 0,793     | 0,770              |  |  |  |  |  |
| 2        | 1,609     | 1,686              | 1,362            | 1,336              | 0,813     | 0,759              |  |  |  |  |  |
| 3        | 1,441     | 1,464              | 1,463            | 1,405              | 0,640     | 0,659              |  |  |  |  |  |
| 4        | 2,740     | 2,685              | 1,033            | 0,912              | 1,417     | 1,469              |  |  |  |  |  |
| 5        | 2,740     | 2,820              | 0,832            | 0,789              | 1,417     | 1,370              |  |  |  |  |  |
| 6        | 1,492     | 1,524              | 1,005            | 0,868              | 1,006     | 0,957              |  |  |  |  |  |
| 7        | 3,268     | 3,373              | 0,948            | 0,848              | 1,492     | 1,562              |  |  |  |  |  |
| 8        | 2,037     | 2,053              | 0,751            | 0,726              | 0,881     | 0,871              |  |  |  |  |  |
| 9        | 2.105     | 2.000              | 1.168            | 1.015              | 0.725     | 0.738              |  |  |  |  |  |

Примечание: номер опыта соответствует условиям активного эксперимента табл. 6.

Note: the experiment number corresponds to the conditions of the active experiment in table 6.

Максимальной скорости оседания твердофазных частиц, рассчитанной по полнофакторным математическим моделям (уравнения (10)-(12)), отвечают следующие режимы водоочистки:

- Система «вода ФЛ-1 сульфат алюминия» V<sub>c</sub>=3,659 мм/с. С<sub>коаг</sub>=0,08 г/дм<sup>3</sup>, С<sub>фл</sub>=0,014 г/дм<sup>3</sup>, *t*=20 °С, τ<sub>коаг</sub>=18 мин.
- Система «вода ФЛ-2 сульфат алюминия» V<sub>c</sub>=1,244 мм/с.  $C_{\text{коаr}} = 0.4$  г/дм<sup>3</sup>,  $C_{\phi \pi} = 0.015$  г/дм<sup>3</sup>, t = 18 °C,
- τ<sub>коаг</sub>=20 мин. Система «вода – ФЛ-3 – сульфат алюминия» V<sub>c</sub>=1,858 мм/с.
- $C_{\text{коаг}} = 0,04$  г/дм<sup>3</sup>,  $C_{\phi \pi} = 0,014$  г/дм<sup>3</sup>, t = 20 °C, ткоаг=22 мин.

Таким образом, проведенные исследования показывают, что используемые на практике в процессе очистки воды расходы сульфата алюминия необходимо сократить ориентировочно в 10–20 раз, флокулянтов – в 1,25 раз, время перемешивания увеличить на 6–8 мин.

#### Выводы

По результатам проведенных исследований можно сделать следующие выводы:

 Показана возможность использования метода вероятностно-детерминированного планирования при нахождении оптимальных режимных параметров очистки оборотной воды завода по вторичной переработке пластмасс.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Потапова Е.В. Проблема утилизации пластиковых отходов // Известия Байкальского Государственного Университета. Рубрика: Экология. – 2018. – Т. 28. – С. 535–544.
- Effects of plastic contamination on water evaporation and desiccation cracking in soil / Yong Wan, Chenxi Wu, Qiang Xue, Xinminnan Hui // Science of the Total Environment. – 2019. – V. 654. – P. 576–582.
- Contamination in plastic recycling: influence of metals on the quality of reprocessed plastic / M.K. Eriksen, K. Pivnenko, M.E. Olsson, T.F. Astrup // Waste Management. – 2018. – V. 79. – P. 595–606.
- Yooeun Chae, Youn-Joo An. Current research trends on plastic pollution and ecological impacts on the soil ecosystem: a review // Environmental Pollution. – 2018. – V. 240. – P. 387–395.
- Plastic pollutants: effective waste management for pollution control and abatement / Kunju Vaikarar Soundararajan Rajmohan, Chandrasekaran Ramya, Manakkal Raja Viswanathan, Sunita Varjani // Current Opinion in Environmental Science & Health. – 2019. – V. 12. – P. 72–84.
- Faraca G., Astrup Th. Plastic waste from recycling centres: characterisation and evaluation of plastic recyclability // Waste Management. – 2019. – V. 95. – P. 388–398.
- Design from recycling: a complex mixed plastic waste case study / K. Ragaerta, S. Huysveld, G. Vynke, S. Hubo, L. Veelaert, J. Dewulf, E. Du Bois // Resources, Conservation and Recycling. – 2020. – V. 155. – P. 104646.
- Rickert J., Cerdas F., Herrmann Ch. Exploring the environmental performance of emerging (chemical) recycling technologies for postconsumer plastic waste // Procedia CIRP. – 2020. – V. 90. – P. 426–431.
- Plastic recycling in additive manufacturing: a systematic literature review and opportunities for the circular economy / F.A.C. Sanchez, H. Boudaoud, M. Camargo, J.M. Pearce // Journal of Cleaner Production. – 2020. – V. 264. – P. 121602
- Sogancioglu M., Yel E., Ahmetli G. Investigation of the Effect of Polystyrene (PS) waste washing process and pyrolysis temperature on (PS) pyrolysis product quality // Energy Procedia. – 2017. – V. 118. – P. 189–194.
- 11. Дубровская О.Г., Евстигнеев В.В., Кулагин В.А. Проблемы очистки сточных вод, содержащих эмульгированные нефте-

- 2. Применяемая в технологии водоочистки дозировка коагулянта и флокулянтов может быть снижена до 0,04...0,40 и 0,014...0,015 г/дм<sup>3</sup> соответственно, что одновременно обеспечит сохранение требуемой скорости осаждения твердофазных частиц и уменьшение остаточной концентрации реагентов в оборотной воде.
- 3. Выведенные полнофакторные математические модели водоочистки с применением трех флокулянтов позволяют рассчитать скорость осветления при задаваемых значениях температуры, времени коагуляции и концентрации коагулянта и могут быть использованы при оптимизации процессов водоподготовки оборотной воды завода по вторичной переработке пластмасс.

продукты в оборотных системах замкнутых циклов водопользования, и пути их решения // Журнал Сибирского федерального университета. Серия: Техника и технологии. – 2013. – № 6. – С. 680–688.

- Технологические и экологические проблемы очистки сточных вод литейного производства и методы их решения / Пономарев А.Я., Манвелов А.Н., Шмырев В.И., Шмырев Д.В. // Человеческий капитал. – 2016. – № 87. – С. 45–47.
- Методическое обоснование исследований по очистке воды в отложениях гидроотвала обогатительной установки / В.П. Тихонов, Т.И. Караваева, О.Б. Наумова, А.Ю. Бардиж // Современные проблемы науки и образования. – 2013. – № 5. – С. 541.
- Paul R., Kenway S., Mukheibir P. How scale and technology influence the energy intensity of water recycling systems-An analytical review // Journal of Cleaner Production. – 2019. – V. 215. – P. 1457–1480.
- Centi G., Perathoner S. Recycle rinse water: problems and opportunities // Catalysis Today. – 1999. – V. 53. – P. 11–21.
- Настенко А.О., Зосуль О.И. Современные коагулянты и флокулянты в очистке природных и сточных вод // Международный студенческий научный вестник. – 2015. – № 3–4. – С. 531–537.
- Дзюбо В.В.О фильтрующих материалах и параметрах работы водоочистных фильтров // Вестник Томского государственного архитектурно-строительного университета. – 2019. – № 21. – С 177–187.
- Царев Н.С. Технико-экономические расчеты для инвестиционных проектов в сфере водоснабжения и водоотведения. – Екатеринбург: Изд-во Урал. ун-та, 2016. – 91 с.
- Produced water characteristics, treatment and reuse: a review / M.A. Al-Ghouti, M.A. Al-Kaabi, M.Y. Ashfaq, D.A. Dana // Journal of Water Process Engineering. – 2019. – V. 28. – P. 222–239.
- Igunnu E.T., Chen G.Z. Produced water treatment technologies // International Journal of Low-Carbon Technologies. – 2014. – V. 9. – P. 157–177.
- 21. Малышев В.П. Вероятностно-детерминированное планирование эксперимента. М.: Наука, 1981. 115 с.

Поступила 25.08.2021 г.

#### Информация об авторах

*Дюрягина А.Н.*, кандидат химических наук, ассоциированный профессор, заведующая кафедрой химии и химических технологий, НАО Северо-Казахстанский университет им. М. Козыбаева.

*Островной К.А.*, старший преподаватель кафедры химии и химических технологий, НАО Северо-Казахстанский университет им. М. Козыбаева.

*Голодова И.В.*, кандидат химических наук, доцент кафедры химии и химических технологий, НАО Северо-Казахстанский университет им. М. Козыбаева.

Шаймерденова 3.Н., докторант кафедры химии и химических технологий, НАО Северо-Казахстанский университет им. М. Козыбаева.

*Козик Д.Ю.*, студент кафедры химии и химических технологий, НАО Северо-Казахстанский университет им. М. Козыбаева. *Дюсикеева А.К.*, магистрант кафедры химии и химических технологий, НАО Северо-Казахстанский университет им. М. Козыбаева.

#### UDC 628.345.9

# **RECYCLED WATER TREATMENT OPTIMIZATION AT A PLASTICS RECYCLING PLANT**

Antonina N. Dyuryagina<sup>1</sup>, adyuryagina@inbox.ru

Kirill A. Ostrovnoy<sup>1</sup>, kostrovnoy@mail.ru

# Irina V. Golodova<sup>1</sup>, igolodova@inbox.ru

Zarina N. Shaimerdenova<sup>1</sup>,

zarina.mambetova@gmail.com

Daria Y. Kozik<sup>1</sup>, daria.kozik@mail.ru

#### Aliya K. Dyusikeeva<sup>1</sup>,

aliya\_dyusikeeva@mail.ru

<sup>1</sup> NC JSC North Kazakhstan University named after M. Kozybayev, 86, Pushkin street, Petropavlovsk, 150000, Kazakhstan.

**Relevance**. One of the most pressing global issues is plastic waste recycling, which is impossible without high-quality thorough washing of the waste plastic. Currently, the issues of recycling plastic products are especially acute. As a result, in the enterprises focused on the recycling of plastics, special attention is paid to the preparation of raw materials. The presence of even small amounts of contaminants leads to a deterioration in the quality indicators of secondary polymers (bulk density, strength, flowability) obtained in the form of fleck or regranulate. Coagulants and flocculants are used to remove sparingly soluble impurities of various natures. The absence of a unified theory of the use of coagulating reagents and the optimal operating parameters of secondary water treatment entails excessive consumption of reagents, which is both technologically and economically unprofitable. At the same time, at the overwhelming majority of enterprises, the choice of regime parameters for water treatment (concentration of reagents, temperature, coagulation time) is carried out purely empirically. Precise selection of the reagent quantity makes it possible to maximize the efficiency of water treatment and meet the requirements of standards for their residual concentration in recycled water. The problem of optimizing water treatment is relevant, since the effectiveness of the use of coagulants and flocculants depends on a large number of factors. At the same time, the use of probabilistic-deterministic planning makes it possible to scientifically optimize the water purification and thereby eliminate the overspending of reagents. **The propose** of the study is to optimize the operating parameters for recycled water purification at an enterprise for recycling plastics. **Methods:** sedimentation analysis, method of probabilistic-deterministic planning.

**Result.** The processes of coagulation and flocculation of contaminants in recycled water of an enterprise for recycling plastics have been studied. Based on the use of the principles of probabilistic-deterministic planning of the experiment, a cycle of studies was carried out aimed at establishing the regimes of water purification of recycled water. The kinetic dependence of sedimentation in the presence of a coagulant aluminum sulfate and a high-molecular-weight cationic low-charge flocculant was established. The optimal modes of coagulation: costs of coagulant and flocculant, temperature, duration of coagulation, was established.

#### Key words:

Coagulant, flocculant, aluminum sulfate, recycled water, recycling of plastics.

#### REFERENCES

- Potapova E.V. The issue of plastic waste utilization. *Proceedings* of the Baikal StateUniversity. Category: Ecology, 2018, vol. 28, pp. 535–544. In Rus.
- Yong Wan, Chenxi Wu, Qiang Xue, Xinminnan Hu. Effects of plastic contamination on water evaporation and desiccation cracking in soil. *Science of the Total Environment*, 2019, vol. 654, pp. 576–582.
- Eriksen M.K., Pivnenko K., Olsson M.E., Astrup T.F. Contamination in plastic recycling: Influence of metals on the quality of reprocessed plastic. *Waste Management*, 2018, vol. 79, pp. 595–606.
   Yooeun Chae, Youn-Joo An. Current research trends on plastic
- Yooeun Chae, Youn-Joo An. Current research trends on plastic pollution and ecological impacts on the soil ecosystem: a review. *Environmental Pollution*, 2018, vol. 240, pp. 387–395.
- Kunju Vaikarar Soundararajan Rajmohan, Chandrasekaran Ramya, Manakkal Raja Viswanathan, Sunita Varjani. Plastic pollutants: effective waste management for pollution control and abatement. *Current Opinion in Environmental Science & Health*, 2019, vol. 12, pp. 72–84.

- Faraca G., Astrup Th. Plastic waste from recycling centres: Characterisation and evaluation of plastic recyclability. *Waste Management*, 2019, vol. 95, pp. 388–398.
- Ragaerta K., Huysveld S., Vynke G., Hubo S., Veelaert L., Dewulf J., Du Bois E. Design from recycling: a complex mixed plastic waste case study. *Resources, Conservation and Recycling*, 2020, vol. 155, pp. 104646.
- Rickert J., Cerdas F., Herrmann Ch. Exploring the environmental performance of emerging (chemical) recycling technologies for post-consumer plastic waste. *Procedia CIRP*, 2020, vol. 90, pp. 426–431.
- Cruz Sanchez F.A., Boudaoud H., Camargo M., Pearce J.M. Plastic recycling in additive manufacturing: A systematic literature review and opportunities for the circular economy. *Journal of Cleaner Production*, 2020, vol. 264, pp. 121602
- Sogancioglu M., Yel E., Ahmetli G. Investigation of the effect of polystyrene (PS) waste washing process and pyrolysis temperature on (PS) pyrolysis product quality. *Energy Procedia*, 2017, vol. 118, pp. 189–194.
- 11. Dubrovskaya O.G., Evstigneev V.V., Kulagin V.A. The problem of purification of waste water containing emulsified oil in the

circulating system closed cycle water use, and the ways of their solution. *Journal of the Siberian Federal University. Series: Equipment and technologies*, 2013, vol. 6, pp. 680–688. In Rus.

- Ponomarev A.Ya., Manvelov A.N., Shmyrev V.I., Shmyrev D.V. Technological and environmental problems of foundry wastewater treatment and methods of their solution. *Human capital*, 2016, vol. 87, pp. 45–47. In Rus.
- Tihonov V.P., Karavaeva T.I., Naumova O.B., Bardizh A.Yu. Methodological substantiation of research on water treatment in the deposits of a hydraulic dump of a processing plant. *Modern problems of science and education*, 2013, vol. 5, p. 541. In Rus.
- Paul R., Kenway S., Mukheibir P. How scale and technology influence the energy intensity of water recycling systems-An analytical review. *Journal of Cleaner Production*, 2019, vol. 215, pp. 1457–1480.
- 15. Centi G., Perathoner S. Recycle rinse water: problems and opportunities. *Catalysis Today*, 1999, vol. 53, pp. 11–21.
- Nastenko A.O., Zosul O.I. Modern coagulants and flocculants in natural and waste water treatment. *International student scientific Bulletin*, 2015, vol. 3–4, pp. 531–537. In Rus.

- 17. Dzyubo V.V. Filtering materials and operating parameters of water purifiers. *Bulletin of the Tomsk state University of architecture and civil engineering*, 2019, vol. 21, pp. 177–187. In Rus.
- Tsarev N.S. Tekhniko-ekonomicheskie raschety dlya investitsionnykh proektov v sfere vodosnabzheniya i vodootvedeniya [Technical and economic calculations for investment projects in the field of water supply and sanitation]. Yekaterinburg, Ural University Publ. house, 2016. 91 p.
- Al-Ghouti M.A., Al-Kaabi M.A., Ashfaq M.Y., Dana A.D. Produced water characteristics, treatment and reuse: a review. *Journal of Water Process Engineering*, 2019, vol. 28, pp. 222–239.
- Igunnu E.T., Chen G.Z. Produced water treatment technologies. International Journal of Low-Carbon Technologies, 2014, vol. 9, pp. 157–177.
- Malyshev V.P. Veroyatnostno-determinirovannoe planirovanie eksperimenta [Probabilistic-deterministic planning of the experiment]. Moscow, Nauka Publ., 1981. 115 p.

Received: 25 August 2021.

#### Information about the authors

Antonina N. Dyuryagina, Cand. Sc., associate professor, head of the Chemistry and chemical technologies Department, NC JSC North Kazakhstan University named after M. Kozybayev.

Kirill A. Ostrovnoy, senior lecturer, NC JSC North Kazakhstan University named after M. Kozybayev.

Irina V. Golodova, Cand. Sc., associate professor, NC JSC North Kazakhstan University named after M. Kozybayev.

Zarina N. Shaimerdenova, postgraduate student, NC JSC North Kazakhstan University named after M. Kozybayev.

Daria Y. Kozik, student, NC JSC North Kazakhstan University named after M. Kozybayev.

Aliya K. Dyusikeeva, postgraduate student, NC JSC North Kazakhstan University named after M. Kozybayev.

УДК 66.046.8:662.65:665.7.032.56

# ВЛИЯНИЕ ТЕХНОЛОГИЧЕСКИХ ПАРАМЕТРОВ НА ТЕРМИЧЕСКИЕ ПРЕВРАЩЕНИЯ БАРЗАССКИХ УГЛЕЙ В РАЗЛИЧНЫХ СРЕДАХ

#### Ушаков Константин Юрьевич1,

ushakovkju@kuzstu.ru

#### Петров Иван Яковлевич<sup>2</sup>,

ipetrov@kemcity.ru

### Богомолов Александр Романович<sup>1,3</sup>,

barom@kuzstu.ru

- <sup>1</sup> Кузбасский государственноый технический университет им. Т.Ф. Горбачева, Россия, 650000, г. Кемерово, ул. Весенняя, 28.
- <sup>2</sup> Федеральный исследовательский центр угля и углехимии СО РАН, Россия, 650000, г. Кемерово, Советский пр., 18.
- <sup>3</sup> Институт теплофизики им. С.С. Кутателадзе СО РАН, Россия, 630000, г. Новосибирск, пр. Академика Лаврентьева, 1.

**Актуальность** исследования связана с перспективами глубокой переработки твердого топлива и необходимостью получения более подробной информации об основных закономерностях термических превращений угля при его ожижении. Разработка и совершенствование технологий прямого ожижения углей в будущем может стать важным источником получения дополнительных ресурсов углеводородов для химической промышленности и энергетики.

**Цель:** изучить влияние технологических параметров (температуры и давления) на процессы ожижения и термические превращения барзасских углей в атмосферах диоксида углерода и водорода с целью установления взаимосвязей между условиями термической обработки угольного сырья и составом и выходами продуктов его конверсии.

**Объекты:** сапромикситы Барзасского месторождения углей (Кемеровская область, Россия) и продукты их термических превращений в углекислотной и водородной средах.

**Методы:** термическая обработка исследуемых углей в лабораторном микроавтоклаве в различных средах (CO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>) и анализ продуктов их превращений методами элементного анализа (CHNOS), ИКФП-спектроскопии и масс-спектрометрии. Исследования производились на тарированном и исправном оборудовании. Перечень оборудования и методы, использованные в данной работе, подробно описаны в экспериментальной части этой статьи.

Результаты. Были найдены практически аналогичные зависимости (кривые экстремального типа) от температуры и давления для изменений ИК-интенсивностей поглощения алкильных групп и выходов «угольных жидкостей» (суммарного количества мальтенов и асфальтенов) при превращениях барзасских углей в углекислотной и водородной средах. Установлены различия в превращениях двух модификаций барзасских сапромикситов, и выявлен преимущественно парафино-нафтеновый характер функционального состава образующихся «угольных жидкостей». Обнаружена явная взаимосвязь между выходами газообразных продуктов и атомными отношениями H/C в твердых продуктах превращений барзасских сапромикситов. «Угольные жидкости» и газообразные соединения, получаемые в результате термической переработки барзасских углей, могут служить потенциальным сырьем для производства углеводородов и других ценных химических продуктов, а также использоваться в качестве топлива при производстве тепла и электроэнергии.

#### Ключевые слова:

Барзасские угли, термообработка, температура, давление, диоксид углерода, водород, «угольные жидкости», атомное отношение H/C.

#### Введение

Дефицит углеводородного сырья и рост цен на продукты его переработки вследствие ожидаемого уже в ближайшем будущем уменьшения запасов и повышения стоимости разработки месторождений жидких и газообразных углеводородов заставляет исследователей заниматься активными поисками альтернативных способов получения жидкого топлива. Одним из возможных решений данной проблемы является разработка и внедрение технологий ожижения ископаемых твердых топлив [1–4], мировые запасы которых значительно превышают разведанные запасы нефти и газа [5]. Термическая и экономическая эффективность процессов прямого ожижения углей, т. е. процессов непосредственного гидрирования угольного сырья водородсодержащими реагентами (direct coal liquefaction – DCL), как правило, выше, чем у процессов их непрямого ожижения, осуществляемого через промежуточное получение синтез-газа (ICL) [6]. Поэтому разработка и совершенствование DCLтехнологий в будущем может стать важным источником получения дополнительных ресурсов углеводородов для химической промышленности и энергетики. Значительное влияние на показатели процессов прямого ожижения углей оказывают характеристики

применяемого в них исходного сырья (в частности, класс углей, их петрографический состав, выход летучих веществ и т. д.) [1-3, 6-8]. Наиболее рациональным подходом для эффективного применения DCL-процессов представляется использование в них качестве угольного сырья низкометаморфизованных углей (т. е. сапропелитовых, бурых, а также каменных углей с низкой степенью углефикации), которые при гидрообработке обеспечивают более высокий выход жидких продуктов с более высокой долей алифатических углеводородов [6-10]. Ранее было установлено [11], что среди углей, встречающихся в пределах Кузнецкого угольного бассейна, довольно перспективным сырьем для процессов прямого ожижения являются барзасские сапромикситы, поскольку они содержат большое количество водорода (до 9-10 мас. % на органическую массу угля) и характеризуются высоким выходом летучих продуктов (50-60 мас. %).

На начальных стадиях процессов DCL при высоких температурах и давлениях в водородной среде протекают, как правило, реакции терморазложения полимолекулярных структур углей до более мелких фрагментов [2, 3, 12–14]. Эти реакции в значительной степени определяют состав и свойства конечных продуктов ожижения. Поэтому ценная информация об основных закономерностях термических превращений угля в ходе его ожижения может быть получена при изучении процессов пиролиза угольного вещества в различных газовых средах. В настоящей работе исследовалось влияние важнейших технологических параметров процессов ожижения (температуры и давления) на выходы и состав продуктов термических превращений барзасских сапромикситов в атмосферах углекислого газа и водорода.

#### Экспериментальная часть

Среди трех основных видов барзасских углей (плитчатый, плотный и камжальский) плитчатый барзасский уголь является наиболее распространенным; он образован крупными, достаточно тонкими плитками, состоящими из легко расслаивающихся листоподобных слоев [15]. Эти слои сформированы из плотно прилегающих друг к другу лентовидных тел, образующих при выветривании так называемую «рогожку» - объемную слоистую массу с легко отщепляющимися тонкими угольными пластинками [15]. В настоящей работе исследовались термические превращения двух форм барзасского угля - плитчатой модификации («плитки») и продукта ее выветривания («рогожки»). Основные характеристики этих форм приведены в табл. 1, а их внешний вид представлен на рис. 1.

 Таблица 1. Характеристики исследуемых образцов барзасских сапромикситов

 Table 1.
 Characteristics of Barzas sapromixite samples studied

| Образец угля<br>Coals ample  | Технический анализ (мас. %)<br>Proximate analysis (wt. %) |         |           | Элементны<br>Ultir | Атомное<br>отношение H/C |      |      |      |                  |
|--|---|---------|-----------|--------------------|--------------------------|------|------|------|------------------|
| · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·  | $W^{a}$   | $A^{a}$ | $V^{aay}$ | С                  | н                        | N    | S    | 0*   | H/C atomic ratio |
| Барзасский сапромиксит<br>(«рогожка»)<br>Barzas sapromixite<br>(«gunny-like coal») | 3,1   | 29,2    | 69,6      | 81,71              | 8,73                     | 0,47 | 0,89 | 8,20 | 1,28             |
| Барзасский сапромиксит<br>(«плитка»)<br>Barzas sapromixite («tile»)                | 1,7   | 25,8    | 50,1      | 84,78              | 8,91                     | 0,56 | 1,24 | 4,51 | 1,26             |

\*По разности/By difference.



**Рис. 1.** Образцы исследуемых барзасских углей: а) плитчатая модификация барзасского угля («плитка»); b) продукт ее выветривания («рогожка»)

Fig. 1. Samples of Barzas coals studied: a) tile-like modification of Barzas coal («tile»); b) product of its weathering («gunny-like coal»)

Технический анализ углей проводили с использованием общепринятых методик [16], а их элементный анализ, наряду с элементным анализом продуктов их термообработки, был выполнен с применением эле-

ментного анализатора Flash 2000 (Thermo Fisher Scientific, США). Инфракрасные спектры с Фурьепреобразованием (ИКФП-спектры) образцов барзасских сапромикситов, а также продуктов их термической обработки в водородной и углекислотной средах регистрировались на ИКФП-спектрометре «Инфралюм» (Симекс, Россия) в спектральном диапазоне 500-4000 см<sup>-1</sup>. Отнесение полос поглощения в ИКФП-спектрах к различным функциональным группам проводилось в соответствии с литературными данными [17]. Анализ состава газообразных продуктов, образующихся при термообработке барзасских углей в различных средах, исследовался на квадрупольном масс-спектрометре Gas Analyzer MS 100 (Stanford Research Systems, США); при этом отбор газовых проб производился с использованием пробоотборных пакетов из тедларовой пленки емкостью 3 л.

Исследования термических превращений барзасских углей в различных средах проводились с использованием микроавтоклава (рабочий объем ~20 см<sup>3</sup>) на лабораторной установке, схема которой изображена на рис. 2. Термообработка барзасских сапромикситов осуществлялась в водородной и углекислотной средах в диапазоне температур 400-550 °C и конечных давлений ~6,0-11,5 МПа. Перед проведением экспериментов образцы углей измельчались, и для изучения превращений углей отбиралась фракция с размером частиц 1-3 мм. Эксперименты по влиянию температуры проводились при начальном давлении газовой среды ~1.0 МПа, а в экспериментах по влиянию давления на термопревращения углей при ~475 °С начальное давление газовой среды варьировалось в пределах ~0,5-2,0 МПа. Продолжительность процесса термообработки при определенных температуре и давлении составляла ~20 мин, после чего автоклав извлекался из печи и с помощью вентилятора быстро охлаждался до комнатной температуры.

В ходе термической обработки барзасских углей, при экспериментальных условиях, выбранных в данной работе, образовывались три основных типа продуктов: 1) газообразные соединения; 2) твердые продукты, содержащие смолу; 3) небольшие количества (~3-5 мас.%) жидких веществ (причем жидкие компоненты появлялись не во всех экспериментах, они фиксировались только после термообработки сапромикситов при 475 °C). Состав органических продуктов, присутствующих в водной фазе, полученной после термообработки барзасского угля («рогожки») при 475 °С в углекислотной или водородной средах, ранее [18, 19] был исследован методом хромато-массспектрометрии. Результаты этих анализов показали, что основными органическими компонентами водной фазы были фенол и его метил- и диметилпроизводные. Их общая концентрация в CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub>-экстракте превышала 77 % по массе и 84,5 % по массе соответственно для сред CO<sub>2</sub> и H<sub>2</sub>; причем содержание собственно фенола превышало 39 мас. %. Среди других кислородсодержащих соединений были идентифицированы низкомолекулярные органические кислоты (бутановая, пентановая, пропановая и ее метилпроизводные),

линейные и циклические кетоны (циклогексанон, бутиролактон, производные пентанона, циклопентанона, фуранона и бензохинона); в небольших количествах отмечено также присутствие пиридина и его производных.



- Рис. 2. Схема установки для исследования термических превращений углей в различных средах под высоким давлением: 1 – баллон с углекислым газом; 2 – баллон с водородом; 3 – газовый редуктор; 4 – вентиль; 5 – терморегулятор; 6 – манометр; 7 – электрическая печь; 8 – образец угля; 9 – микроавтоклав
- Fig. 2. Schematic view of a setup for studying coal transformations under high pressure in various media: 1 gas cylinder with carbon dioxide; 2 gas cylinder with hydrogen; 3 gas reducer; 4 valve; 5 temperature regulator; 6 manometer; 7 electric furnace; 8 coal sample; 9 micro-autoclave

Для каждого эксперимента рассчитывался материальный баланс образующихся твердых, жидких и газообразных продуктов. Кроме того, определялись суммарные концентрации «угольных жидкостей» (мальтенов и асфальтенов), присутствующих в содержащих смолу твердых продуктах, путем последовательной экстракции последних в аппарате Сокслета. При этом в исходных барзасских углях мальтены и асфальтены отсутствовали.

Выходы продуктов термообработки углей определялись в пересчете на 1 г органической массы конвертируемого угля (ОМУ):

$$Y_{g} = [(m_{c}-m_{s}-m_{w})/m_{c}] \times 100/(100-A^{d}-W^{a})/100,$$
  

$$Y_{w} = [m_{w}/m_{c}] \times 100/(100-A^{d}-W^{a})/100,$$
  

$$Y_{m} = [m_{m}/m_{c}] \times 100/(100-A^{d}-W^{a})/100,$$
  

$$Y_{a} = [m_{a}/m_{c}] \times 100/(100-A^{d}-W^{a})/100,$$
  

$$Y_{sr} = 100-(Y_{g}+Y_{w}+Y_{m}+Y_{a}),$$

где  $Y_g$ ,  $Y_w$ ,  $Y_m$ ,  $Y_a$  и  $Y_{sr}$  – выходы газов, водной фазы, мальтенов (веществ, экстрагируемых *н*-гексаном), асфальтенов (веществ, растворимых в бензоле, но не растворимых в *н*-гексане) и твердого углеродного остатка в пересчете на сухую беззольную массу (daf) или ОМУ, мас. %, соответственно;  $A^d$  и  $W^a$  – содержания золы (в пересчете на сухую массу) и аналитической влаги в исходном угольном сырье, мас. %, соответственно;  $m_c$ ,  $m_w$ ,  $m_s$ ,  $m_m$  и  $m_a$  – количества угольного сырья, водной фазы, твердых смолосодержащих продуктов превращений углей, мальтенов и асфальтенов, г, соответственно.



Рис. 3. Типичные инфракрасные спектры с Фурье-преобразованием исходного (а) и термообработанного в среде водорода (b) плитчатого барзасского угля (Условия термообработки: среда – H<sub>2</sub>; T=475 °C; P~7 МПа; t=20 мин)

*Fig. 3. Typical Fourier-transform infrared spectra of tile-like Barzas coals: (a) as-received and (b) heat-treated in a hydrogen medium samples (Heat treatment conditions: H<sub>2</sub> medium; T=475 °C; P~7 MPa; t=20 min)* 

Эффективность процесса ожижения углей оценивалась по суммарным выходам «угольных жидкостей» (мальтенов и асфальтенов), т. е. по значениям  $(Y_m+Y_a)$ , мас. % (в пересчете на ОМУ), а также по изменениям относительных оптических плотностей полос поглощения алкильных групп в твердых смолосодержащих продуктах термообработки углей. Относительные интенсивности этих ИК-полос определялись как суммы оптических плотностей ИК-полос поглощения CH<sub>3</sub>- и CH<sub>2</sub>-групп ( $D_{CH_3}+D_{CH_2}$ ) в области 2800–2970 см<sup>-1</sup>, отнесенные к оптической плотности полосы поглощения C=C-связей аромати-

ческих колец (~1600 см<sup>-1</sup>), т. е. по отношениям  $(D_{CH_3}+D_{CH_3})/D_{C=C_{ar}}$ .

#### Результаты и обсуждение

Результаты экспериментов по изучению влияния среды и параметров (температуры и давления) процесса термического превращения барзасских сапромикситов на их ИКФП-спектры, атомные отношения H/C и выходы продуктов термообработки представлены на рис. 3–9 (зависимости выходов продуктов превращений углей от температуры и давления были получены для образцов выветренной формы плитчатых барзасских сапромикситов).



Рис. 4. Типичные инфракрасные спектры с Фурье-преобразованием исходной (красная линия) и подвергнутой термообработке в среде водорода (черная линия) выветренной формы плитчатого барзасского угля (Условия термообработки: среда – H<sub>2</sub>; T=475 °C; P~7 МПа; t=20 мин)

**Fig. 4.** Typical Fourier-transform infrared spectra of weathered forms of Barzas tile-like coals: as-received (red line) and heat-treated (black line) in a hydrogen medium samples (Heat treatment conditions: H<sub>2</sub> medium; T=475 °C; P~7 MPa; t=20 min)



Рис. 5. Типичные инфракрасные спектры с Фурье-преобразованием исходной (а) и подвергнутой термообработке в среде углекислого газа (b) выветренной формы плитчатого барзасского угля (Условия термообработки: среда – CO<sub>2</sub>; T=475 ℃; P~7 МПа; t=20 мин)

Fig. 5. Typical Fourier-transform infrared spectra of weathered forms of Barzas tile-like coal: (a) as-received and (b) heattreated in a carbon dioxide medium samples (Heat treatment conditions: CO<sub>2</sub> medium; T=475 °C; P~7 MPa; t=20 min)

Обычно предполагается [1, 20], что органическая матрица углей образована в основном конденсированными ароматическими и гетероциклическими кольцами, связанными друг с другом алифатическими мостиками, которые, кроме углеводородных цепей, включают также О-, N- и S-содержащие функциональные группы (-OH, >C=O, C-O-C, -NH<sub>2</sub>, -SH и др.). Термообработка углей приводит к разрушению их макромолекулярной структуры, что отражается в изменениях ИКФП-спектров угольного вещества. Типичные ИКФП-спектры исследуемых барзасских углей, как исходных, так и подвергнутых термообработке в различных средах, показаны на рис. 3–5. Анализ изменений интенсивности характеристических полос поглощения в этих спектрах показывает, что термическая обработка барзасских углей под давлением в атмосфере водорода (рис. 3, *b* и 4) или CO<sub>2</sub> (рис. 5, *b*) приводит к заметному снижению интенсивности поглощения кислородсодержащих групп, особенно полос поглощения, связанных с валентными колебаниями OH-групп (~3430 см<sup>-1</sup>), C=O-групп (~1700 см<sup>-1</sup>) и C-O-C/C-O-H-групп (1000–1100 см<sup>-1</sup>) (ср. спектры исходных углей на рис. 3, *a*, 4, 5, *b*). При этом интенсивность ИК-полос поглощения валентных колебаний алкильных групп (пики при 2800–2970 см<sup>-1</sup>) заметно возрастает, что, очевидно, связано с увеличением количества парафино-нафтеновых структур.



Рис. 6. Влияние температуры (а) и давления (b) на выходы «угольных жидкостей» (O, ●) и относительную интенсивность инфракрасных полос поглощения алкильных групп в инфракрасных спектрах с Фурьепреобразованием барзасских сапромикситов («рогожки») (□, ■) после их термообработки в атмосферах  $CO_2$  (O, □) и  $H_2$  (•, ■) [Выходы газов и «угольных жидкостей» даны в пересчете на ОМУ; эксперименты по влиянию давления были выполнены при T=475 °C]

Fig. 6. Temperature (a) and pressure (b) effects on the yields of «coal liquids» (○, ●) and the relative infrared absorption band intensities of alkyl groups in the Fourier-transform infrared spectra of Barzas sapromixites («gunny-like coals») (□, ■) after their thermal treatments in CO<sub>2</sub> (○, □) and H<sub>2</sub> (●, ■) atmospheres [Yields of gases and «coal liquids» are presented on the dry ash-free (daf) basis; experiments on pressure effects were carried out at T=475 °C]

Эти структуры могут появляться как в ходе термораспада угольной массы, так и в результате удаления О-содержащих функциональных групп и/или протекания реакций гидрирования углей. С повышением температуры и давления режима термообработки относительное содержание алкильных групп в твердых продуктах превращения «рогожки» сначала возрастает, но затем уменьшается (рис. 6, a, b). Такого же рода (экстремального типа) зависимости наблюдались и для изменений выходов «угольных жидкостей» с ростом температуры и давления в реакционной зоне при обработке барзасских углей; причем указанные закономерности проявлялись как в углекислотной, так и в водородной средах (рис. 6, а, b). В случае температурных зависимостей (рис. 6, а) подобное поведение может быть обусловлено тем, что на начальных этапах повышения температуры (т. е. в интервале 400-475 °C) термораспад угольной массы сопровождается постепенным увеличением количества или накоплением алкилсодержащих «угольных жидкостей», содержащих парафино-нафтеновые структуры. Их выход достигает максимума при ~475 °C в обеих исследованных средах термообработки. Однако при более высоких температурах выход «угольных жидкостей» снижается вследствие того, что они подвергаются либо пиролизу с образованием газообразных продуктов (и, возможно, полукокса), либо гидрогенолизу с образованием газообразных углеводородов (особенно, если процесс протекает в водородной среде).

В обоих случаях (как в атмосфере СО<sub>2</sub>, так и в атмосфере H<sub>2</sub>) это приводит к отрыву от мальтенов и асфальтенов алкильных фрагментов и их последующему переходу в газовую фазу, чем и объясняется падение относительной интенсивности ИК-полос поглощения СН<sub>3</sub>- и СН<sub>2</sub>-групп в твердых продуктах термообработки «рогожки» при T>475 °C (рис. 6, а). Действительно, как следует из данных, представленных на рис. 7, а, b, с увеличением температуры термообработки в интервале 400-500-550 °C выход газов в продуктах термопреврашений углей непрерывно возрастает, а значения атомных отношений Н/С в твердых смолосодержащих угольных остатках, наоборот, быстро падают. Иными словами, в ходе проведенных экспериментов наблюдались явные антибатные зависимости между выходами газов, образующихся при разложении угля, и атомными отношениями Н/С в смолосодержащих твердых продуктах. Примечательно, что аналогичная тесная взаимосвязь (такие же антибатные зависимости) прослеживается и при изменении давления среды термообработки (рис. 8 *a*, *b*).





Fig. 7. Temperature effects on gas yields and H/C atomic ratios in solid resin-containing products formed after heat treatment of the Barzas coal in  $H_2(a)$  and  $CO_2(b)$  atmospheres



**Рис. 8.** Влияние давления на выходы газов и атомные отношения *H/C* в твердых смолосодержащих продуктах, образующихся после термообработки барзасского угля в атмосферах *H*<sub>2</sub> (*a*) и *CO*<sub>2</sub> (*b*) (*T*=475 ℃; *t*=20 мин)

*Fig. 8.* Pressure effects on the gas yields and H/C atomic ratios in solid resin-containing products formed after heat treatment of the Barzas coal in H<sub>2</sub> (a) and CO<sub>2</sub> (b) atmospheres (T=475 °C; t=20 min)

Отсюда следует вывод, что с увеличением выхода газообразных продуктов снижается атомное отношение Н/С в твердых смолосодержащих продуктах превращений барзасского угля. С учетом данных, представленных на рис. 6, а, можно предположить, что уменьшение относительной доли водорода (атомных отношений Н/С) в твердых угольных остатках при T>475 °C связано с удалением из них водородсодержащих компонентов (в частности, алкильных групп), переходящих в состав газообразных продуктов. Необходимо отметить, что в водородной среде выходы «угольных жидкостей» были несколько выше аналогичных показателей, полученных в углекислотной атмосфере (рис. 6, *a*). Водородная среда, как известно [21], способствует увеличению степени превращения углей по сравнению с их конверсией при тех же условиях в среде инертных газов. Поэтому более высокая эффективность ожижения барзасских углей в водородной среде может указывать на то, что газообразный водород участвует в реакциях превращений угля даже при отсутствии водорододонорного растворителя или катализатора.



#### Образцы выветренной плитчатой формы барзасского сапромиксита ("рогожки")

- Рис. 9. Влияние температуры на выходы твердых углеродных остатков при термообработке барзасского сапромиксита («рогожки») в различных средах (выходы твердых углеродных остатков даны в пересчете на органическую массу угля)
- Fig. 9. Influence of temperature on the yields of solid carbon residues of Barzas sapromixite («gunny-like coal») at heat treatments in various atmospheres (yields of solid carbon residues are presented on the dry ash-free basis)

Другой причиной снижения выхода «угольных жидкостей» при T>475 °C (помимо газообразования) могут быть так называемые ретроградные реакции, т. е. взаимодействия выделившихся летучих веществ с углем с образованием неэкстрагируемого *н*-гексаном и бензолом твердого углеродного остатка. Это связано с тем, что используемый в данной работе автоклав является замкнутой системой, и отвода продуктов реакции в нем не предусмотрено. Однако, как видно из рис. 9, в углекислотной среде различий между выходами твердых продуктов, образующихся при 475 и 550 °C, практически не наблюдалось. Это означает, что вклад ретроградных реакций в уменьшение выхода «угольных жидкостей» при 550 °C в среде CO<sub>2</sub> практически отсутствует; следовательно, уменьшение выхода жидких продуктов в этом случае связано в основном с усилением реакций газообразования.

В среде водорода небольшое увеличение выхода твердых продуктов при 550 °С, по сравнению с их выходом при 475 °С, все же имеет место (рис. 9); иными словами, в среде  $H_2$  ретроградные реакции могут оказывать некоторое влияние на снижение выхода асфальтенов и мальтенов при T=550 °С, хотя, как и в углекислотной среде (ср. рис. 6, *а* и 7, *b*), основной причиной падения выхода «угольных жидкостей» в атмосфере водорода при T>475 °С является усиление процессов газообразования (ср. рис. 6, *а* и 7, *a*). Добавим также, что некоторое уменьшение выхода жидких продуктов в среде водорода за счет протекания ретроградных реакций летучих веществ с углем при высоких температурах отмечалось ранее в литературе и другими авторами [21].

Как было продемонстрировано выше, экстремального типа зависимости выходов «угольных жидкостей» и изменений интенсивности ИК-поглощения алкильных групп наблюдались не только при увеличении температуры процесса (рис. 6, а), но и при повышении давления среды термообработки (рис. 6, b). Наблюдаемый при этом максимум значений суммарного выхода мальтенов и асфальтенов и интенсивностей ИК-поглощения CH<sub>3</sub>- и CH<sub>2</sub>-групп в области *P*~7–7,5 МПа, вероятно, объясняется оптимальными для выбранной температуры (T~475 °C) при данном давлении условиями образования «угольных жидкостей» и алкилсодержащих структур. Процессы прямого ожижения углей очень тесно связаны с процессами их пиролиза (термораспада органической матрицы угольного вещества) [6, 7, 12-14]. Вместе с тем известно [22-26], что при пиролизе углей повышение давления в реакторе, как правило, препятствует удалению летучих веществ, снижает их выход и способствует протеканию вторичных реакций превращений смол и других жидких продуктов. Однако при относительно низких температурах (T<500 °C) выходы летучих продуктов на начальных стадиях повышения давления сначала могут возрастать за счет усиления реакций крекинга и процессов термического разложения крупных фрагментов угольного вещества [27]. Возможно, этим и обусловлено повышение выхода «угольных жидкостей» и алкилсодержащих структур в интервале давлений ~7-7,5 МПа, наблюдаемое в ходе термообработки барзасских углей в различных средах (рис. 6, b). Но при дальнейшем увеличении давления эти показатели падают вследствие того, что высокое давление в системе препятствует высвобождению крупных молекул предшественников жидких компонентов из угольной матрицы, способствуя тем самым протеканию реакций обугливания и реполимеризации продуктов термораспада угольного вещества [22-25].

- Таблица 2. Состав газообразных продуктов (мас. %), образующихся после термообработки барзасского сапромиксита («рогожки») в различных средах при T=475 °C и P~7 МПа (по данным масс-спектрометрического анализа)
- **Table 2.** Composition of gaseous products (wt. %) formed after heat treatment of Barzas sapromixite («gunny-like coal») in various media at T=475 ℃ and P~7 MPa (according to mass spectrometric analysis data)

| Компонент<br>Component                                 | m/e | Среда термообработки<br>Thermal treatment<br>environment<br>CO <sub>2</sub> H <sub>2</sub> |       |  |  |  |  |
|--|-----|--|-------|--|--|--|--|
| Водород/Hydrogen (H <sub>2</sub> )                     | 2   | 28,48  | 86,55 |  |  |  |  |
| Метан/Methane (CH <sub>4</sub> )                       | 16  | 7,35   | 2,60  |  |  |  |  |
| Вода/Water (H <sub>2</sub> O)                          | 18  | 0,90   | 0,20  |  |  |  |  |
| A30T/Nitrogen (N2)                                     | 28  | 15,78  | 1,50  |  |  |  |  |
| Монооксид углерода<br>Carbon monoxide (CO)             | 28  | 0,60   | 1,30  |  |  |  |  |
| Этан/Ethane (C <sub>2</sub> H <sub>6</sub> )           | 30  | 6,52   | 1,75  |  |  |  |  |
| Кислород/Oxygen (O <sub>2</sub> )                      | 32  | 2,75   | 0,50  |  |  |  |  |
| Метанол/Methanol (CH <sub>3</sub> OH)                  | 32  | 0,20   | 0,05  |  |  |  |  |
| Сероводород<br>Hydrogen sulfide (H <sub>2</sub> S)     | 34  | 0,05   | 0,00  |  |  |  |  |
| Диоксид углерода<br>Carbon dioxide (CO <sub>2</sub> )  | 44  | 29,55  | 2,85  |  |  |  |  |
| Пропан/Propane (C <sub>3</sub> H <sub>8</sub> )        | 44  | 3,37   | 1,70  |  |  |  |  |
| Бутан+ <i>изо</i> -бутан<br>Butane+ <i>iso</i> -butane | 58  | 4,45   | 1,00  |  |  |  |  |

Результаты масс-спектрометрических анализов составов газообразных продуктов, образующихся при термообработке выветренной плитчатой модификации барзасского угля при 475 °C в различных средах, представлены в табл. 2.

При интерпретации данных табл. 2 основное внимание уделялось анализу содержания компонентов, имеющих энергетическую ценность (в первую очередь, анализу содержания  $H_2$ , CO и углеводородов). Полученные результаты показывают, что среди углеводородных компонентов газовой фазы преобладали в основном насыщенные углеводороды состава  $C_1$ - $C_4$ ; олефиновые углеводороды в составе этих продуктов отсутствовали, что, вероятно, объясняется недостаточно высокой температурой проведения эксперимента (T<500 °C). В принципе, газообразные продукты процессов прямого ожижения углей могут рассматриваться как дополнительное высококалорийное сырье для производства тепла и электроэнергии.

Анализ ИКФП-спектров мальтенов и асфальтенов (рис. 10 a, b и 11 a, b), выделенных из твердых продуктов термических превращений барзасских сапромикситов в среде водорода, указывает на существенные различия функционального состава экстрагируемых «угольных жидкостей» от функционального состава исходных углей (рис. 3, a и 4).



Рис. 10. Инфракрасные спектры с Фурье-преобразованием мальтенов, экстрагированных из твердых продуктов термообработки плитчатого барзасского сапромиксита (а) и его выветренной формы (b) в среде водорода (T=475 ℃; P~7 МПа; t=20 мин)

*Fig. 10.* Fourier-transform infrared spectra of maltenes extracted from solid products of heat treatments of Barzas tile-like sapromixite (a) and its weathered form (b) in a hydrogen atmosphere (T=475 ℃; P~7 MPa; t=20 min)



Рис. 11. Инфракрасные спектры с Фурье-преобразованием асфальтенов, экстрагированных из твердых продуктов термообработки плитчатого барзасского сапромиксита (а) и его выветренной формы (b) в среде водорода (T = 475 °C; P ~ 7 МПа; t = 20 мин)

Fig. 11. Fourier-transform infrared spectra of asphaltenes extracted from solid products of heat treatments of Barzas tilelike sapromixite (a) and its weathered form (b) in a hydrogen atmosphere (T=475 °C; P~7 MPa; t=20 min) В частности, «угольные жидкости» характеризуются повышенным содержанием алкильных групп (полосы при ~2920–2940, 2850–2875 см<sup>-1</sup>), а также пониженным содержанием кислородсодержащих (полосы при ~3480, 1700, 1200 и 1100 см<sup>-1</sup>) и ароматических структур (полоса поглощения C=C-связей в области ~1600 см<sup>-1</sup>).

В спектрах мальтенов (рис. 10, a, b) эти изменения наиболее выражены; так, полосы поглощения кислородсодержащих групп здесь практически отсутствуют, а интенсивность полос поглощения СН<sub>3</sub>- и СН<sub>2</sub>групп очень высока. ИКФП-спектры мальтенов и асфальтенов, экстрагированных из продуктов термообработки барзасских углей в углекислотной среде, практически не отличались от спектров их аналогов, полученных при термообработке сапромикситов в атмосфере H<sub>2</sub>.

С увеличением температуры термообработки наблюдалось снижение относительной интенсивности поглощения алкильных групп в мальтенах с одновременным повышением ее интенсивности в асфальтенах, что было зафиксировано в обеих исследуемых средах (углекислотной и водородной) (рис. 12). Данное явление может быть связано как с переносом водорода от мальтенов к асфальтенам, так и с ускорением отрыва водородосодержащих структур (алкильных групп) от мальтенов и их переходом в газовую фазу при повышении температуры процесса.



- Рис. 12. Влияние температуры на интенсивность поглощения алкильных групп в инфракрасных спектрах с Фурье-преобразованием мальтенов (□, □) и асфальтенов (△, ▲), экстрагированных из твердых продуктов термообработки барзасского сапромиксита («рогожки») в углекислотной (□, △) и водородной (□, ▲) средах
- Fig. 12. Temperature effects on the absorption intensities of alkyl groups in the Fourier-transform infrared spectra of maltenes (□, □) and asphaltenes (△, ▲) extracted from solid products of Barzas sapromixite («gunny-like coal») heat-treated in carbon dioxide (□, △) and hydrogen (□, ▲) media environments

Известно [28–30], что когда уголь превращается в присутствии растворителя-донора водорода, раство-

ритель вносит больше собственного водорода в гидрирование угля и в целом более эффективен при конверсии угля, по сравнению с газообразным H<sub>2</sub>. С этой точки зрения, мальтены, образующиеся при термообработке в водородной среде, могут рассматриваться в качестве водорододонорного растворителя, который гидрирует асфальтены в исследуемом барзасском угле. Таким образом, можно сделать вывод, что в составе «угольных жидкостей», образующихся при термообработке барзасских сапромикситов, значительную долю составляют парафино-нафтеновые структуры, содержащие CH<sub>3</sub>- и CH<sub>2</sub>-группы. Это должно способствовать эффективному образованию из них углеводородов в ходе дальнейшей термической переработки продуктов первичных термопревращений исследуемых углей.





Fig 13. Yields of gases and «coal liquids» for 2 different forms of Barzas coals depending on the heat treatment environment (T=475°C; P~7 MPa; t=20 min) [Yields of liquefaction products are presented on the dry ash-free basis]

На рис. 13 приведены сравнительные данные по выходам газообразных и жидких продуктов при термообработке двух исследуемых модификаций барзасских углей в различных средах. Как видно из этого рисунка, термообработка обеих форм барзасских углей в водородной атмосфере приводила к более высоким выходам «угольных жидкостей» и меньшему количеству образующихся газов, по сравнению с этими показателями в углекислотной среде.

Кроме того, при ожижении в среде водорода плитчатой модификации барзасских сапромикситов выход «угольных жидкостей» (~ 37,7 масс. %) был в 1,5 раза выше, а выход газов (~10,3 масс. %) более чем в 2 раза ниже, чем при ожижении в аналогичных условиях выветренной формы этих углей (рис. 13).



Рис. 14. Выходы основных компонентов «угольных жидкостей» (а) и атомные отношения Н/С в этих компонентах (b) для двух различных форм исследуемых барзасских углей в зависимости от среды термообработки (T=475 °C; P~7 МПа; t=20 мин) [Выходы продуктов ожижения даны в пересчете на органическую массу угля]

*Fig.* 14. Yields of main components of «coal liquids» (a) and H/C atomic ratios in these components (b) for two different forms of Barzas coals studied, depending on the heat treatment environment (T=475 °C; P~7 MPa; t=20 min) [Yields of liquefaction products are presented on the dry ash-free basis]

Различия в термическом поведении рассматриваемых форм углей наблюдались ранее и при изучении их методами DTA, TG и DTG [31]; причем указанные различия, вероятнее всего, обусловлены каталитическим влиянием минеральных компонентов, содержащихся в данных углях, на процессы их термических превращений. Эти компоненты могли способствовать каталитическому разложению образующихся «угольных жидкостей» [31]. Действительно, как следует из табл. 1, зольность (А<sup>d</sup>) плитчатой модификации барзасских углей была существенно ниже зольности ее выветренной формы, и поэтому можно было ожидать, что минеральные компоненты в составе «рогожки» могли оказывать большее влияние на процессы крекинга и газообразования образующихся «угольных жидкостей», чем минеральные компоненты в составе плитчатой формы барзасских углей, что и приводило к более низким выходам мальтенов и асфальтенов при термообработке «рогожки» в обеих исследованных газовых средах (рис. 13). Выходы и соотношения основных компонентов «угольных жидкостей», а также атомные отношения Н/С в этих компонентах, полученные для двух различных форм барзасских сапромикситов после их термообработки при 475 °C в углекислотной и водородной средах, представлены на рис. 14, а, b. Как видно из этого рисунка, хотя выходы мальтенов и асфальтенов в водородной атмосфере были в целом выше, чем выходы этих продуктов в углекислотной среде (рис. 14, *a*), атомные отношения Н/С в мальтенах из углекислотной среды имели более высокие значения, а в асфальтенах из этой же среды – более низкие значения, чем аналогичные показатели в данных компонентах, полученных в водородной среде (рис. 14, b). Причем подобные закономерности были характерны для обеих исследованных форм барзасских сапромикситов («рогожки» и «плитки»). Другими словами, результаты по термообработке барзасских углей в водородной среде, представленные на рис. 14, косвенно подтверждают высказанное выше предположение о том, что мальтены выступают в качестве водорододонорного растворителя для асфальтенов, передавая им часть своего водорода. С учетом того, что при термоконверсии барзасских углей в водородной среде при 475 °С выходы газообразных соединений (рис. 13) и углеродного остатка (рис. 9) были ниже, а выходы жидких продуктов (рис. 13) выше, чем аналогичные показатели, наблюдаемые в углекислотной среде, можно сделать вывод, что в водородной атмосфере водород в большей степени, чем в среде СО<sub>2</sub>, расходуется на образование общего количества мальтенов и асфальтенов, увеличивая тем самым выход «угольных жидкостей».

Достаточно высокие выходы «угольных жидкостей», получаемые при термообработке барзасских сапромикситов в водородной среде (до 37,7 мас. % в пересчете на ОМУ), даже при отсутствии катализаторов и водорододонорных растворителей, позволяют рассматривать барзасские угли как перспективное сырье для процессов прямого ожижения с целью производства моторных топлив и ценных химических продуктов.

#### Заключение

При исследованиях термических превращений барзасских углей в углекислотной и водородной средах были найдены практически аналогичные (экстремального типа) зависимости от температуры и давления, как для изменений ИК-интенсивностей алкильных групп в твердых продуктах конверсии сапромикситов, так и для выходов «угольных жидкостей»; причем максимальные значения для этих зависимостей наблюдались при *T*=475 °C и *P*~7 МПа.

Обнаружена также явная взаимосвязь между выходами газов и атомными отношениями H/C в твердых продуктах превращений сапромикситов: с увеличением выхода газообразных продуктов наблюдается снижение отношения H/C в твердых продуктах термообработки барзасских углей.

Функциональный состав «угольных жидкостей», получаемых при термообработке барзасских сапромикситов, характеризуется высоким содержанием парафино-нафтеновых структур, что будет способствовать эффективному образованию из них углеводородов в ходе дальнейшей термической переработки продуктов первичных термопревращений исследуемых углей.

Установлено, что при термических превращениях плитчатой модификации барзасских сапромикситов выход «угольных жидкостей» (~37,7 мас. %) был в 1,5 раза выше, а выход газов (~10,3 мас. %) более чем в 2 раза ниже, чем при ожижении в аналогичных условиях выветренной формы этих углей.

«Угольные жидкости» и газообразные соединения, получаемые в результате термической обработки барзасских углей, могут служить потенциальным сы-

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Haenel M.W. Catalysis in Direct Coal Liquefaction // Handbook of Heterogeneous Catalysis. V. 6. Energy-Related Catalysis / Eds. G. Ertl, H. Knözinger, F. Schüth, J. Weitkamp. 2nd ed. – Germany, Weinheim: Wiley-VCH, 2008. – P. 3023–3036. DOI: 10.1002/9783527610044.hetcat0153.
- Coal Liquefaction / T. Kaneko, F. Derbyshire, E. Makino, D. Gray, M. Tamura // Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry. V. 9. – Weinheim, Germany: Wiley-VCH, 2012. – P. 311–389. DOI: 10.1002/14356007.a07\_197.
- Ali A., Zhao C. Direct Liquefaction Techniques on lignite coal: a review // Chinese Journal of Catalysis. – 2020. – V. 41. – № 3. – P. 375–389. DOI: 10.1016/S1872-2067(19)63492-3.
- Snape C.E. Liquid fuels and chemical feedstocks // Coal in the 21st century: energy needs, chemicals and environmental controls / Eds. R.E. Hester, R.M. Harrison. – London, UK: The Royal Society of Chemistry, 2018. – P. 173–197.
- Schernikau L. Economics of the international coal trade. Why coal continues to power the world. 2nd ed. – Cham, Switzerland: Springer International Publishing AG, 2016. – 463 p.
- Каталитическое ожижение углей перспективный способ производства моторных топлив и ценных химических соединений. Ч. 1. Основные принципы и способы ожижения углей / И.Я. Петров, К.Ю. Ушаков, А.Р. Богомолов, Б.Г. Трясунов // Вестник Кузбасского государственного технического университета. – 2020. – № 5 (141). – С. 20–32. DOI: 10.26730/1999-4125-2020-5-20-32.
- Каталитическое ожижение углей перспективный способ производства моторных топлив и ценных химических соединений. Ч. 2. Структура углей и химизм процессов их прямого ожижения / И.Я. Петров, К.Ю. Ушаков, А.Р. Богомолов, Б.Г. Трясунов // Вестник Кузбасского государственного технического университета. – 2020. – № 5 (141). – С. 33–46. DOI: 0.26730/1999-4125-2020-5-33-46.
- Mochida I., Okuma O., Yoon S.-H. Chemicals from Direct Coal Liquefaction // Chemical Reviews. – 2014. – V. 114. – № 3. – P. 1637–1672. DOI: 10.1021/cr4002885.
- Speight J.G. The chemistry and technology of coal. 3rd ed. Boca Raton; London; New York: CRC Press, Taylor & Francis Group, 2013. – 845 p.
- Малолетнев А.С., Шпирт М.Я. Современное состояние технологий получения жидкого топлива из углей // Российский химический журнал. – 2008. – Т. 52. – № 6. – С. 44–52.
- 11. Petrov I.Y., Tryasunov B.G. Predicting the possibility for deep hydroprocessing of some Kuzbass coals // E3S Web of

рьем для его использования как в химической промышленности (при производстве моторных топлив, ароматических углеводородов и других ценных продуктов), так и в энергетическом секторе (при производстве тепла и электроэнергии).

Авторы благодарят исследователей из Кемеровского регионального центра коллективного пользования СО РАН (КемЦКП) за техническую помощь при проведении ИКспектроскопического и элементного анализов образцов углей, а также продуктов их термообработки. Авторы также признательны старшему преподавателю кафедры углехимии, пластмасс и инженерной защиты окружающей среды КузГТУ Пилину Максиму Олеговичу за техническую помощь при выполнении масс-спектрометрических исследований газообразных продуктов термообработки барзасских углей.

Работа выполнена при финансовой поддержке в соответствии с дополнительным соглашением о предоставлении субсидии из федерального бюджета на финансовое обеспечение выполнения государственного задания на оказание государственных услуг (внутренний номер 075-ГЗ/Х4141/687/3).

Conferences. – 2017. – V. 21. – Article 01004. DOI: 10.1051/e3sconf/20172101004.

- Coal and coal-related compounds: structures, reactivity and catalytic reactions / T. Kabe, A. Ishihara, E.W. Qian, I.P. Sutrisna, Y. Kabe // Studies in Surface Science and Catalysis, V. 150 / Eds. B. Delmon, J.T. Yates, G. Centi. – Amsterdam: Elsevier, 2004. 341 p.
- Hook M., Aleklett K. Review on coal-to-liquid fuels and its coal consumption // International Journal of Energy Research. – 2010. – V. 34. – № 10. – P. 848–864. DOI: 10.1002/er.1596.
- Comprehensive study of structure model, pyrolysis and liquefaction behaviour of heidaigou lignite and its liquefied oil / H. Lin, J. Lian, Y. Liu, Y. Xue, S. Yan, Sh. Han, W. Wei // Fuel. – 2019. – V. 240. – P. 84–91. DOI: 10.1016/j.fuel.2018.11.067.
- Ергольская З.В. Петрографическое изучение барзасских углей // Труды Центрального научно-исследовательского геологоразведочного института цветных и благородных металлов (ЦНИГРИ). – Л.; М.: ОНТИ–НКТП СССР, 1936. – Вып. 70. – С. 5–11.
- Speight J.G. Handbook of Coal Analysis. 2nd ed. Hoboken (NJ, USA): John Wiley & Sons. Inc., 2015. – 368 p.
- Solomon P.R. On-line Fourier transform infrared spectroscopy in coal research // Advances in Coal Spectroscopy / Ed. by H.L.C. Meuzelaar. – New York (USA): Springer, 1992. – P. 341–371.
- IR spectra of low-metamorphosed Barzas coal subjected to thermal treatment in carbon dioxide medium / I. Petrov, K. Ushakov, A. Bogomolov, B. Tryasunov // E3S Web of Conferences. – 2018. – V. 41. – Article 01037. DOI: 10.1051/e3sconf/20184101037.
- IR Spectra of low-metamorphosed Barzas coal thermally treated in hydrogen medium at various temperatures / I.Y. Petrov, K.Y. Ushakov, A.R. Bogomolov, B.G. Tryasunov // International Journal of Engineering & Technology (UAE). – 2018. – V. 7. – № 3.32. – P. 161–165. DOI: 10.14419/ijet.v7i3.32.24668.
- Van Krevelen D.W. Coal: typology-physics-chemistryconstitution. 3rd ed. – Amsterdam-New York: Elsevier Science, 1993. – 1002 p.
- Tomić J., Schobert H.H. Conversion with selected model compounds under noncatalytic, low solvent/coal ratio conditions // Energy & Fuels. - 1996. - V. 10. - № 3. - P. 709-717. DOI: 10.1021/ef9501370.
- Lee C.W., Jenkins R.G., Schobert H.H. Mechanisms and kinetics of rapid, elevated pressure pyrolysis of Illinois no. 6 bituminous coal // Energy & Fuels. – 1991. – V. 5. – № 4. – P. 547–555. DOI: 10.1021/ef00028a004.

- Lee C.W., Scaroni A.W., Jenkins R.G. Effect of pressure on the devolatilization and swelling behavior of a softening coal during rapid heating // Fuel. – 1991. – V. 70. – № 8. – P. 757–765. DOI: 10.1016/0016-2361(91)90051-b.
- 24. The effects of pressure on coal reactions during pulverised coal combustion and gasification / T.F. Wall, G.S. Liu, H.W. Wu, D.G. Roberts, K.E. Benfell, S. Gupta, L J.A. Lucas, D.J. Harris // Progress in Energy and Combustion Science. 2002. V. 28. № 5. P. 405–433. DOI: 10.1016/S0360-1285(02)00007-2.
- Coal Pyrolysis / A.W. Scaroni, M.R. Khan, S. Eser, L.R. Radovic // Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry. V. 9. – Weinheim, Germany: Wiley-VCH, 2012. – P. 391–429. DOI: 10.1002/14356007.a07\_245.
- Linking char reactivity to structural and morphological evolution during high pressure pyrolysis of Morupule coal / K. Bikane, J. Yu, X. Long, N. Paterson, M. Millan // Chemical Engineering Science:
   X. - 2020. - V. 8. - Article 100072. DOI: 10.1016/j.cesx.2020.100072.
- 27. The influence of pressure and temperature on coal pyrolysis/gasification / H. Chen, H Yang., F. Ju, J. Wang, Sh. Zhang // Asia-Pacific Journal of Chemical Engineering. 2007. V. 2. № 3. P. 203–212. DOI:10.1002/apj.042.

- Effect of solvent and atmosphere on product distribution, hydrogen consumption and coal structural change during preheating stage in direct coal liquefaction / P. Hao, Z. Bai, R. Houa, J. Xu, J. Bai, Z. Guo., L. Kong, W. Li // Fuel. – 2018. – V. 211. – P. 783–788. DOI: 10.1016/j.fuel.2017.09.122.
- Effect of hydrogenation of liquefied heavy oil on direct coal liquefaction / X. Shan, G. Shu, K. Li, X. Zhang, H. Wang, X. Cao, H. Jiang, H. Weng // Fuel. – 2017. – V. 194. – P. 291–296. DOI: 10.1016/j.fuel.2017.01.034.
- Role of hydrogen donor and non-donor binary solvents in product distribution and hydrogen consumption during direct coal liquefaction / P. Hao, Z.Q. Bai, Zh.T. Zhao, Z.F. Ge, R.R. Hou, J. Bai, Zh.X. Guo, L.X. Kong, W. Li // Fuel Processing Technology. – 2018. – V. 173. – P. 75–80. DOI: 10.1016/j.fuproc.2018.01.012.
- Термическое разложение барзасских углей / И.Я. Петров, К.Ю. Ушаков, А.Р. Богомолов, А.С. Зябрев, Б.Г. Трясунов // Известия вузов. Химия и химическая технология. – 2021. – Т. 64. – № 3. – С. 92–99. DOI: 10.6060/ivkkt.20216403.6297.

Поступила 25.08.2021 г.

#### Информация об авторах

**Ушаков К.Ю.**, аспирант, старший преподаватель кафедры теплоэнергетики Кузбасского государственного технического университета им. Т.Ф. Горбачева.

**Петров И.Я.**, кандидат химических наук, научный сотрудник лаборатории глубокой переработки угля Института углехимии и химического материаловедения Федерального исследовательского центра угля и углехимии СО РАН.

**Богомолов** А.Р., доктор технических наук, профессор, заведующий кафедрой теплоэнергетики Кузбасского государственного технического университета им. Т.Ф. Горбачева; ведущий научный сотрудник лаборатории проблем тепломассопереноса Института теплофизики им. С.С. Кутателадзе СО РАН.

UDC 66.046.8:662.65:665.7.032.56

# EFFECTS OF TECHNOLOGICAL PARAMETERS ON BARZAS COALS THERMAL CONVERSIONS IN VARIOUS MEDIA

### Konstantin Y. Ushakov<sup>1</sup>,

ushakovkju@kuzstu.ru

# Ivan Y. Petrov<sup>2</sup>, ipetrov@kemcity.ru

# Alexander R. Bogomolov<sup>1,3</sup>,

barom@kuzstu.ru

- <sup>1</sup> T.F. Gorbachev Kuzbass State Technical University, 28, Vessennyaya street, Kemerovo, 650000, Russia.
- <sup>2</sup> Federal Research Center of Coal and Coal Chemistry, SB RAS, 18, Sovetsky avenue, Kemerovo, 650000, Russia.
- <sup>3</sup> Kutateladze Institute of Thermophysics, SB RAS,
  - 1, Lavrentiev avenue, Novosibirsk, 630000, Russia.

**The relevance** of the study is related to the prospects for deep processing of solid fuel and the need to obtain more detailed information about the basic laws of thermal transformations of coal during its liquefaction. The development and improvement of direct coal liquefaction technologies in the future can become an important source of additional hydrocarbon resources for the chemical industry and power engineering.

**The main aim** of the research is to study the effects of technological parameters (temperature and pressure) on liquefaction and thermal transformations of Barzas coals in carbon dioxide and hydrogen atmospheres in order to establish the relationships between thermal treatment conditions of coal feedstocks and the compositions and yields of its conversion products.

**Objects:** sapromixites of the Barzas coal deposit (Kemerovo region, Russia) and products of their thermal transformations in carbon dioxide and hydrogen media.

**Methods:** heat treatment of the coals studied in a laboratory microautoclave in various media (CO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>) and analysis of the products of their transformations by elemental analysis (CHNOS), FTIR spectroscopy and mass spectrometry. The studies were carried out on calibrated and serviceable equipment. The list of equipment and methods used in the given work are described in detail in the experimental part of this article.

**Results.** Almost similar temperature and pressure dependences (extremal type curves) have been revealed for both the changes in the IR absorption intensities of alkyl groups and the yields of «coal liquids» (total amounts of maltenes and asphaltenes) in the process of Barzas coals transformations in carbon dioxide and hydrogen media. Differences in the transformations of two modifications of Barzas sapromixites were established, and a predominantly paraffin-naphthenic character of the functional composition of the resulting «coal liquids» was revealed. A clear relationship was found between the yields of gaseous products and atomic ratios H/C in the solid products of transformations of the Barzas sapromixites. «Coal liquids» and gaseous compounds obtained as a result of Barzas coals thermal processing can serve as potential raw materials for production of hydrocarbons and other valuable chemical products, as well as used as a fuel in production of heat and electricity.

#### Key words:

Barzas coals, thermal treatment, temperature, pressure, carbon dioxide, hydrogen, «coal liquids», H/C atomic ratio.

The authors thank the researchers from Kemerovo Regional Center for Collective Use of the Siberian Branch of the Russian Academy of Sciences (KemCCU) for technical help in carrying out IR spectroscopic and elemental analyzes of coal samples as well as products of their heat treatments. The authors are also grateful to Maxim O. Pilin, senior lecturer of the Department of Coal Chemistry, Plastics and Environmental Engineering of KuzSTU, for technical help in performing mass spectrometric studies of gaseous products of Barzas coals heat treatments.

The research was financially supported according to additional agreement on grants from federal budget for financial support of implementing state assignment in public service delivery (inner number  $075 \cdot \Gamma^3/X4141/687/3$ ).

#### REFERENCES

- Haenel M.W. Catalysis in Direct Coal Liquefaction. Handbook of Heterogeneous Catalysis. V. 6. Energy-Related Catalysis. Eds. G. Ertl, H. Knözinger, F. Schüth, J. Weitkamp. 2<sup>nd</sup> ed. Weinheim, Germany, Wiley-VCH, 2008. pp. 3023–3036. DOI: 10.1002/9783527610044.hetcat0153.
- Kaneko T., Derbyshire F., Makino E., Gray D., Tamura M. Coal liquefaction. Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry. V. 9. Weinheim, Germany, Wiley-VCH, 2012. pp. 311–389. DOI: 10.1002/14356007.a07\_197.
- Ali A., Zhao C. Direct liquefaction techniques on lignite coal: a review. *Chinese Journal of Catalysis*, 2020, vol. 41, no. 3, pp. 375–389. DOI: 10.1016/S1872-2067(19)63492-3.
- Snape C.E. Liquid fuels and chemical feedstocks. *Coal in the 21<sup>st</sup> century: energy needs, chemicals and environmental controls* Eds. R.E. Hester, R.M. Harrison. London, UK, The Royal Society of Chemistry, 2018. pp. 173–197.
- Schernikau L. Economics of the International Coal Trade. Why Coal Continues to Power the World. 2<sup>nd</sup> ed. Cham, Switzerland, Springer International Publishing AG, 2016. 463 p.

- Petrov I.Y., Ushakov K.Y., Bogomolov A.R., Tryasunov B.G. Catalytic liquefaction of coals – a promising way to produce motor fuels and valuable chemical compounds. P. 1. Principal Methods of Coal Liquefaction. *Bulletin of the Kuzbass State University*, 2020, no. 5 (141), pp. 20–32. In Rus. DOI: 10.26730/1999-4125-2020-5-20-32.
- Petrov I.Y., Ushakov K.Y., Bogomolov A.R., Tryasunov B.G. Catalytic liquefaction of coals – a promising way to produce motor fuels and valuable chemical compounds. P. 2. Coal Structures and Chemistry of Their Direct Liquefaction Processes. *Bulletin of the Kuzbass State University*, 2020, no. 5 (141), pp. 33–46. In Rus. DOI: 10.26730/1999-4125-2020-5-20-32. DOI: 0.26730/1999-4125-2020-5-33-46.
- Mochida I., Okuma O., Yoon S.H. Chemicals from Direct Coal Liquefaction. *Chem. Rev.* 2014. vol. 114, no. 3, pp. 1637–1672. DOI: 10.1021/cr4002885.
- Speight J.G. *The chemistry and technology of coal*. 3<sup>rd</sup> ed. Boca Raton, London, New York, CRC Press, Taylor & Francis Group, 2013. 845 p.
- Maloletnev A.S., Shpirt M.Ya. Present state of coal liquefaction technologies. *Russ. J. Gen. Chem.* 2009, vol. 79, no. 11, pp.2499–2508.
- Petrov I.Y., Tryasunov B.G. Predicting the possibility for deep hydroprocessing of some Kuzbass coals. *E3S Web of Conferences*, 2017, vol. 21, article 01004. DOI: 10.1051/e3sconf/20172101004.
- Kabe T., Ishihara A., Qian E.W., Sutrisna I.P., Kabe Y. Coal and coal-related compounds: structures, reactivity and catalytic reactions. *Studies in Surface Science and Catalysis*. Vol. 150 / Eds. B. Delmon, J. T. Yates, G. Centi. Amsterdam, Elsevier Science & Technology Books, 2004. 341 p.
- Hook M., Aleklett K. Review on coal-to-liquid fuels and its coal consumption. *International Journal of Energy Research*, 2010, vol. 34, no. 10, pp. 848–864. DOI: 10.1002/er.1596.
- Lin H., Lian J., Liu Y., Xue Y., Yan S., Han Sh., Wei W. Comprehensive study of structure model, pyrolysis and liquefaction behaviour of heidaigou lignite and its liquefied oil. *Fuel*, 2019, vol. 240, pp. 84–91. DOI: 10.1016/j.fuel.2018.11.067.
- Ergolskaya Z.V. Petrographicheskoe izuchenie barzasskikh ugley [A petrographic study of Barzas coals]. *Trudy tsentralnogo nauchno-issledovatelskogo geologorazvedochnogo instituta tsvetnykh i blagorodnykh metallov (TSNIGRI)* [Proceedings of the Central Research Institute of Geological Prospecting for Base and Precious Metals (TsNIGRI)]. Leningrad, Moscow, ONTI-NTKP USSR Publ., 1936. No. 70, pp. 5–11.
- Speight J.G. Handbook of Coal Analysis. <sup>2nd</sup> ed. Hoboken, NJ, USA, John Wiley & Sons. Inc., 2015. 368 p.
- Solomon P.R. On-line Fourier transform infrared spectroscopy in coal research. *Advances in Coal Spectroscopy*. Ed. by H.L.C. Meuzelaar. New York, USA, Springer, 1992. pp. 341–371.
- Petrov I., Ushakov K., Bogomolov A., Tryasunov B. IR spectra of low-metamorphosed Barzas coal subjected to thermal treatment in carbon dioxide medium. *E3S Web of Conferences*, 2018, vol. 41, article 01037. DOI: 10.1051/e3sconf/20184101037.
- Petrov I.Y., Ushakov K.Y., Bogomolov A.R., Tryasunov B.G. IR spectra of low-metamorphosed Barzas coal thermally treated in hydrogen medium at various temperatures. *International Journal*

of Engineering & Technology (UAE), 2018, vol. 7, no. 3.32, pp. 161–165. DOI: 10.14419/ijet.v7i3.32.24668.

- Van Krevelen D.W. Coal: typology-physics-chemistryconstitution. 3<sup>rd</sup> ed. Amsterdam, New York, Elsevier Science, 1993. 1002 p.
- Tomić J., Schobert H.H. Conversion with selected model compounds under noncatalytic, low solvent/coal ratio conditions. *Energy & Fuels*, 1996, vol. 10, no. 3, pp. 709–717. DOI: 10.1021/ef9501370.
- Lee C.W., Jenkins R.G., Schobert H.H. Mechanisms and kinetics of rapid, elevated pressure pyrolysis of Illinois No. 6 bituminous coal. *Energy & Fuels*, 1991, vol. 5, no. 4, pp. 547–555. DOI: 10.1021/ef00028a004.
- Lee C.W., Scaroni A.W., Jenkins R.G. Effect of pressure on the devolatilization and swelling behavior of a softening coal during rapid heating. *Fuel*, 1991, vol. 70, no. 8, pp. 757–765. DOI: 10.1016/0016-2361(91)90051-b.
- Wall T.F., Liu G.S., Wu H.W., Roberts D.G., Benfell K.E., Gupta S., Lucas J.A., Harris D.J. The Effects of pressure on coal reactions during pulverised coal combustion and gasification. Progress *in* Energy *and* Combustion Science, 2002, vol. 28, no. 5, pp. 405–433. DOI: 10.1016/S0360-1285(02)00007-2.
- Scaroni A.W., Khan M.R., Eser S., Radovic L.R. Coal pyrolysis. Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry. Vol. 9. Weinheim, Germany, Wiley-VCH, 2012. pp. 391–429. DOI: 10.1002/14356007.a07\_245.
- Bikane K., Yu J., Long X., Paterson N., Millan M. Linking char reactivity to structural and morphological evolution during high pressure pyrolysis of Morupule coal. *Chemical Engineering Science:* X, 2020, vol. 8, article 100072. DOI: 10.1016/j.cesx.2020.100072.
- Chen H., Yang H., Ju F., Wang J., Zhang Sh. The influence of pressure and temperature on coal pyrolysis/gasification. *Asia-Pacific Journal of Chemical Engineering*, 2007, vol. 2, no. 3, pp. 203–212. DOI:10.1002/apj.042.
- Hao P., Baia Z., Houa R., Xua J., Baia J, Guoa Z., Konga L., Li W. Effect of solvent and atmosphere on product distribution, hydrogen consumption and coal structural change during preheating stage in direct coal liquefaction. *Fuel*, 2018, vol. 211, pp. 783–788. DOI: 10.1016/j.fuel.2017.09.122.
- Shan X., Shu G., Li K., Zhang X., Wang H., Cao X., Jiang H., Weng H. Effect of Hydrogenation of Liquefied Heavy oil on Direct Coal Liquefaction. *Fuel*, 2017, vol. 194, pp. 291–296. DOI: 10.1016/j.fuel.2017.01.034.
- Hao P., Bai Z.Q., Zhao Zh.-T., Ge Z.-F., Hou R.-R., Bai J., Guo Zh.-X., Kong L.-X., Li W. Role of hydrogen donor and nondonor binary solvents in product distribution and hydrogen consumption during direct coal liquefaction. *Fuel Processing Technology*, 2018, vol. 173, pp. 75–80. DOI: 10.1016/j.fuproc.2018.01.012.
- Petrov I.Ya., Ushakov K.Yu., Bogomolov A.R., Zyabrev A.S., Tryasunov B.G. Thermal decomposition of Barzas coals. *Izvestiya* Vysshikh Uchebnykh Zavedeniy. Khimiya i Khimicheskaya Tekhnologiya [ChemChemTech], 2021, vol. 64, no. 3, pp. 92–99. In Rus. DOI: 10.6060/ivkkt.20216403.6297.

Received: 25 August 2021.

#### Information about the authors

Konstantin Y. Ushakov, graduate student, senior lecturer, T.F. Gorbachev Kuzbass State Technical University.

*Ivan Y. Petrov*, Cand. Sc., research scientist, Institute of Coal Chemistry and Chemical Materials Science, Federal Research Center of Coal and Coal Chemistry, SB RAS.

*Alexander R. Bogomolov*, Dr. Sc., professor, T.F. Gorbachev Kuzbass State Technical University; leading research scientist, Kutateladze Institute of Thermophysics, SB RAS.

УДК 549.32/.33:553.412'44

# МИНЕРАЛОГИЯ БАРИТ-ПОЛИМЕТАЛЛИЧЕСКИХ МЕСТОРОЖДЕНИЙ ЗМЕИНОГОРСКОГО РУДНОГО РАЙОНА (РУДНЫЙ АЛТАЙ)

#### Бестемьянова Ксения Викторовна1,

KsenijaVT@mail.ru

#### Гринев Олег Михайлович<sup>1</sup>,

tomskgrom@yandex.ru

<sup>1</sup> Национальный исследовательский Томский государственный университет, Россия, 634050, г. Томск, пр. Ленина, 36.

**Актуальность** исследования обусловлена пониманием важности разработки современной генетической модели изучаемых месторождений, что в свою очередь ведет к разработке научно-обоснованных прогноза и оценки объектов и в итоге расширению минерально-сырьевой базы для воспроизводства запасов полиметаллических руд, прежде всего, меди свинца и цинка, с учетом продолжающихся поисково-разведочных работ на Рудном Алтае, в том числе на флангах и глубоких горизонтах уже известных месторождений.

**Цель:** изучение минерального состава руд с использованием современных методов исследования вещества, выявление минералого-геохимических характеристик, а также ряда генетических аспектов образования барит-полиметаллических руд месторождений Змеиногорского рудного района.

**Методы.** Проведено комплексное исследование барит-полиметаллических руд, включающее характеристику минерализации в поляризационном микроскопе, исследование руд и отдельных сульфидных минералов рентгеновским энерго-дисперсионным микроанализом, масс спектрометрическим с индуктивно связанной плазмой (ICP-MS), атомно-абсорбционным, а также массспектрометрическим изотопным анализом.

**Результаты.** Изучена минералогия руд барит-полиметаллических месторождений Змеиногорского рудного района, насчитывающая порядка 30 минералов, среди которых, в порядке убывания, отмечены: сульфиды, сульфасоли, теллуриды, окислы, соли кислородных кислот, самородные элементы и интерметаллические соединения. Выделены основные минеральные парагенезисы, соответствующие последовательным стадиям минералообразования (рудной составляющей): пирит-сфалеритхалькопиритовая ассоциация, отвечающая первой стадии минералообразования; галенит-блекловорудная ассоциация (вторая стадия); борнит-халькозиновая ассоциация (третья стадия); барит-кальцит-гематитовая ассоциация (четвертая стадия). Изучен химический состав основных и примесных компонентов в сульфидах, выявлены ранее не диагностированные минералы. Установлена наиболее продуктивная на выделение самостоятельных минеральных фаз благородных металлов третья стадия (борнит-халькозиновый парагенезис). Источник вещества в процессе рудообразования имел гетерогенный характер, который обусловлен мантийными изотопными метками при начальных стадиях и сменой их на коровые, вариации изотопных характеристик (б<sup>34</sup>S) сульфидов первой стадии –0,2...+1,2 ‰; сульфидов второй стадии –2,3...–3,7 ‰; сульфидов третьей стадии –8,9...–12,8 ‰.

#### Ключевые слова:

Змеиногорский рудный район, барит-полиметаллические руды, стадийность, парагенетические ассоциации, изотопы серы.

#### Введение

Рудный Алтай по своему статусу и значению является одним из богатейших на полезные ископаемые регионов России. Особое место, в первую очередь, отводится на полиметаллы (Cu, Pb, Zn), на долю которых приходится 10...15 % от общего числа извлекаемых на территории Российской Федерации, при этом одним из основных геолого-промышленных типов месторождений является семейство колчеданных месторождений [1]. В одном только Змеиногорском рудном районе за 2020 г. добыто 905203 тыс. т полиметаллических руд, в общероссийском масштабе Алтайский край занимает шестое место по добыче полиметаллических руд, которые представлены VMS типом (34 % всех полиметаллических месторождений  $P\Phi$ ) [2], образовавшихся в наиболее продуктивную неопротерозойско-палеозойскую эпоху [3].

Основными типами добываемых в регионе руд являются колчеданно-полиметаллические и баритполиметаллические руды. Наиболее богатым по количеству месторождений является Змеиногорский рудный район. В нем выделяется более 10 месторождений, рудопроявлений, а также множество пунктов минерализации, относящихся к колчеданнополиметаллической субформации.

Основные прогнозно-металлогенические исследования в пределах рудного района проводились в 1960–1963 гг. В это время геологами Рудно-Алтайской экспедиции составлена прогнозная карта Змеиногорского и Золотушинского рудных районов в масштабе 1:200000 [4], в дальнейшем детальные работы с выявлением перспективных рудных зон, установлением детальных схем стратиграфии и магматизма района были проведены в 1970–1976 гг. Однако в историческом аспекте использование недр региона уходит в глубокую древность, к периоду энеолита (ранней бронзы), когда легендарные племена «Чуди» из выходящих на дневную поверхность окисленных полиметаллических руд извлекали медь, свинец, золото, серебро [5].

Минералогия барит-полиметаллических объектов изучена на примере трех месторождений, непосредственно Змеиногорского, Зареченского и Стрижковского, располагающихся в пределах одноименного Змеиногорско-Зареченского рудного поля. Объекты имеют сложное геологическое строение и более богатое минералогическое разнообразие по сравнению с месторождениями колчеданно-полиметаллической субформации. По данным предшественников [6] на изученных месторождениях выделяется около 30 минералов, среди которых основная часть отводится сульфидам, в меньших количествах присутствуют сульфосоли, самородные элементы, еще реже встречаются теллуриды и интерметаллические соединения.

Зареченское месторождение является действующим, эксплуатируемым объектом, Стрижковское месторождение входит в категорию законсервированных, Змеиногорское считается отработанным, однако в ходе очередных разведочных работ (начало 1990-х гг.) подтверждено наличие нескольких рудных тел, залегающих на глубоких горизонтах.

#### Объекты исследования

Выбранные для изучения месторождения – Змеиногорское, Зареченское, Стрижковское, находятся в непосредственной близости друг от друга (4...5 км), в структурном плане приурочены к прибортовой северовосточной части Змеиногорско-Быструшинского прогиба, относящегося в региональном плане к северовосточному флангу Рудно-Алтайского мегапрогиба. Развитие оруденения контролируется локальными вулканотектоническими структурами, положение которых приурочено к узлам пересечения поперечных разломов и продольных межблоковых структур [7]. Согласно новым данным, барит-полиметаллическое оруденение района контролируется довольно крупной Рудничной вулканотектонической структурой раннедевонского возраста заложения, а в ее пределах – разломной решеткой, образуемой субширотными (продольными) и северсеверо-западными (поперечными) разломами, относительно простирания Змеиногорского прогиба [8].

В масштабах рудных полей месторождения обычно приурочены к бортам вулкано-тектонических депрессий, локализуясь в пределах вулканических аппаратов или в непосредственной близости от них [9].

В течение девона на территории прогиба проявлялись процессы вулканизма, носящие эпизодический характер [10], с которым связано образование базальт-риолитовой формации. При этом эволюция вулканизма на территории Рудного Алтая имела антидромную направленность. Антидромная природа развития магматизма обусловила специфическую металлогению региона, выразившуюся сменой баритполиметаллических и полиметаллических месторождений на эмско-эйфельском этапе, колчеданнополиметаллическими на живетско-раннефранском этапе и затем колчеданными на позднефранскораннефаменском этапе [11].

В геологическом строении месторождений (рис. 1) принимают участие вулканогенно-осадочные породы нижнего девона, залегающие на палеозойском зеленокаменном фундаменте, представленном метаморфитами, смятыми в разнопорядковые складки до плойчатых, породами корбалихинской толщи, датированной O-S<sub>1</sub> возрастом U–Pb методом по цирконам и  $Ar^{40}/Ar^{39}$  по серициту.

Рудовмещающий нижнедевонский разрез представлен залегающими практически моноклинально переслаивающимися алевролитами, песчаниками, туфами основного и преимущественно кислого состава и известняками, слагающими нижнемельничную подсвиту ( $D_1mn$ ). В структуре рудных полей месторождений отмечаются многочисленные дайки габброплагиогранит-лейкогранитового Змеиногорского комплекса ( $D_3z_{1.4}$ ).

Месторождения локализуются в зонах пересечения субмеридиональных и субширотных разломов и зон трещиноватости, рассекающих ранне-среднедевонские толщи. Рудные тела представляют усложненные линзо-, ленто- и штокверкообразные формы, с мощностью в пределах от 0,5 до 20 м. Рудные тела приурочены к зонам срыва, рассланцевания и отслаивания на контактах туфов кислого состава, хрупких кремнистых пород с известняками, известковистыми аргиллитами, к зонам дробления кремнистых пород, реже кремнистых аргиллитов, алевролитов, и известняков. Реже оруденение отмечается в зонах межпластового и внутрипластового рассланцевания пород, еще реже в зонах дробления и рассланцевания, сопровождающихся крупными разломами. На изученных месторождениях распространением пользуются следующие типы руд: колчеданно-полиметаллические, полиметаллические (среди которых выделяются существенно медно-свинцовые и свинцово-цинковые) и барит-полиметаллические. Тела данных типов руд последовательно, кулисно сменяют друг друга вверх по разрезу.

Схожая зональность характерна не только для колчеданных месторождений Рудного Алтая, но и для других объектов такой же формационной принадлежности и генезиса, например уральского региона [12] или Салаирской области [13], однако в общем металлогеническом плане, как отмечается исследователями [14], Рудный Алтай имеет полиметаллическую направленность оруденения, в то время как Урал, а именно его южная часть, существенно медноцинковую.

Характерные структуры изученных руд: кристаллически-зернистая, неравномернозернистая, мелко-, средне-, редко крупнозернистая, гипидио- и аллотриоморфнозернистая, эмульсионная, дробления, замещения, колломорфная, смятия. Характерные текстуры руд: вкрапленная, прожилковая, прожилкововкрапленная, гнездовая, массивная.

Рудные тела всех изученных месторождений сопровождаются значительными околорудными изменениями, которые представлены породами, относящимися к бескарбонатной фации березитов и характеризующимися кварц-серицитовым, кварц-хлорит-серицитовым и кварц-серицитовым составом. Эти раннедевонские дорудные породы являются продуктами, которые были сформированы в результате воздействия углекислотных растворов на вмещающие слаболитифицированные нижнедевонские вулканогенно-осадочные породы, преимущественно туфы кислого состава. Зоны их развития, как и сами руды, контролируются субширотными и субмеридиональными разрывными нарушениями, а также зонами рассланцевания [15].



 $10 \qquad 11 \qquad 12 \sim \sim 13 \qquad 14 \qquad 15 \qquad 16 \qquad VIII \qquad 17 \qquad 18$ 



(a)

- **Рис. 1.** Обзорная карта (Google Earth) расположения Змеиногорского рудного района (a) и схематическая карта геологического строения Рудноалтайского мегапрогиба с местоположением Змеиногорского рудного района и месторождений (b) [8]. 1 – девонские и додевонские (?) гранитоиды змеиногорского комплекса; 2 – карбоновые гранитоиды алейского комплекса; 3 – раннепермские гранитоиды калбинского комплекса; 4 – интрузии основного состава нерасчлененные (D, C, P); 5 – метаморфические комплексы (O-S?); 6 – нерасчлененные толщи; 7 – толщи прибортовых депрессионных зон: а) средне-верхнедевонские и б) ранне-средневерхнедевонские; 8 – толщи среднего-верхнего девонабыструшинского и белоубинского синклинориев; 9 – толщи верхнего девона – нижнего карбона Калба-Нарымской СФЗ; 10 – байкалиды и каледониды Горного Алтая; 11 – Калба-Нарымская СФЗ; 12 – Барнаульская впадина; 13 – динамометаморфические образования выступов основания (R- $C_1$ ); 14 – шовные зоны 1-го порядка; 15 – разрывные нарушения; 16 – границы структурно-вещественных комплексов; 17 – основные морфоструктурные элементы: І – Алейский гранитнометаморфический свод (ГМС); II — Синюшинский свод; III — Соловьёвский свод; IV — Золотушинско-Иртышско-Курчумская прибортовая депрессионная зона, приуроченная к Иртышской зоне смятия; V – Змеиногорско-Белоубинско-Маркакольская прибортовая депрессионная зона, приуроченная к северо-восточной зоне смятия, VI – Быструшинский синклинорий; VII – Белоубинский синклинорий; VIII – Коргонский грабенообразный прогиб; ІХ – Курчумский выступ динамометаморфитов докембрия (?) – раннего палеозоя; Х – Терехтинский выступ байкалид; 18 – Змеиногорский рудный район и Змеиногорское, Зареченское, Стрижковское барит-полиметаллические месторождения
- Fig. 1. Overview map (Google Earth) of location of the Zmeinogorsk ore district (a) and a schematic map of the geological structure of Rudnoaltaisk megatrough with location of Zmeinogorsk district and ore deposits (b). 1 Devonian and Predevonian (?) Zmeinogorsk complex granitoids; 2 Carboniferous Aleysk complex granitoids, 3 early Permian Kalbinsky complex granitoids; 4 unsubdivided mafic intrusions (D, C, P); 5 metamorphic complexes (O-S?); 6 unsubdivided strata; 7 boundary depression zones strata: a) middle and upper Devonian and b) lower, middle and upper Devonian; 8 middle and upper Devonian Bystrushinsky and Beloubinsky synclinorium strata; 9 upper Devonian and lower Carboniferous Kalba-Narym zone strata; 10 Altai Baikalides and Caledonides; 11 Kalba-Narym zone; 12 Barnaul sag; 13 dynamometamorphic rocks of basement highs (R-C<sub>1</sub>); 14 first-order suture zones; 15 disjunctive faults; 16 structural-compositional complexes boundaries; 17 main morphostructure elements: 1 Aleysk granite-metamorphic anticline (GMA); II Sinyuschinsk anticline; III Solovyevsk anticline; IV Zolotushinsk-Irtush-Kurchumsk near edge depression zone, confinedness to Irtysh shear zone; V Zmeinogorsk-Beloubinsk-Markakolsk near edge depression zone, confinedness to north-earth shear zone, VI Bystrushinsk synclinore; VIII Korgonski keystone fault trough; IX Kurchumsk outshot of precembrian dynamomorphics (?) early Paleozoic; X Terekhtinsk outshot of baikalides; 18 Zmeinogorsk ore region and Zarechensk, Zmeinogorsk, Strigkovsk barite-polymetallic deposits

Мощность таких зон околорудного изменения составляет 15...130 м. Основными породообразующими минералами околорудноизмененных пород являются: кварц, серицит, хлорит; второстепенными – пирит; редкими – апатит, циркон, рутил, халькопирит, сфалерит, галенит, барит, также в минеральном составе околорудноизменных пород выявлено наличие редкоземельной минерализации, представленной игольчатыми зернами монацита и ксенотима. Данные породы играют индикаторную роль в формировании развития барит-полиметаллических руд и могут косвенно указывать на наличие скрытого оруденения.

Минеральный состав руд месторождений довольно схожий со многими объектами такой же субформации, располагающимися не только на территории Российской Федерации, но и, например, в объектах, находящихся на территории Турции [16], Италии [17], Канады [18]. Главными минералами руд являются: пирит, сфалерит, халькопирит, галенит; второстепенными – блеклые руды, борнит, халькозин; редкими – алтаит, штромейерит, гессит, ялпаит, аргентит (акантит), самородное серебро, электрум, амальгамы золота и серебра. Нерудные минералы – барит, кварц, в меньшей степени кальцит. Наиболее сложным по минеральному составу является Зареченское месторождение, на котором насчитывается около 40 минеральных видов, самым простым по составу считается Стрижковское месторождение.

В качестве примесных в рудах фиксируется широкий комплекс элементов, среди которых Sc, Ti, V, Co, As, Se, Rb, Sr, Cd, Sb, Te, Tl, Bi. Концентрации данных элементов имеют несколько дифференцированное распределение в разных типах руд. При этом такие элементы, как Co, As, Sb, Se Bi, являются типоморфными для объектов данного генезиса [19].

#### Методы исследования

Характеристика рудной минерализации в аншлифах и плоскопараллельных пластинках (160 образцов) проводилась на поляризационном микроскопе Leica DM 750P (аналитик К.В. Бестемьянова). В первую очередь внимание уделялось онтогеническим характеристикам, а также характеру взаимоотношения между минеральными видами.

Анализ вещественного состава рудных минералов, а также качественные изображения характера взаимоотношения минеральных ассоциаций и минеральных индивидов в режиме обратно рассеянных электронов (режим BSE) проводился методом рентгеноспектрального микроанализа (805 определений, по 2-3 определения на зерно, из них 201 определение Змеиногорского сульфидов месторождения, 278 определений на Стрижковском месторождении, 326 определений на Зареченском месторождение) на электронном сканирующем микроскопе Tescan Vega II LMU (Чехия, TESCAN), оборудованном энергодисперссионным спектрометром (с детектором Si(Li) Standart) INCA Energy 350 (аналитик К.В. Бестемьянова). Для этого из отобранных образцов основных типов руд были изготовлены плоскопараллельные аншлифы толщиной 3...4 мм. Перед проведением аналитических работ на поверхность изучаемых образцов предварительно напылялся слой углерода толщиной 25...30 нм, в соответствии с рекомендуемой методикой [20]. Ускоряющее напряжение для СЭМ съемки и анализа было 20 кВ с интенсивностью тока зонда в пределах 1,1...1,4 нА. Локальный рентгено-спектральный микроанализ выполнялся с предварительной калибровкой интенсивности зонда по кобальтовому стандарту при рабочем (фокусном) расстоянии 15 мм. СЭМ фотографии накапливались преимущественно с использованием детектора обратнорассеянных электронов (BSE – backscattered electrons).

Содержания примесных компонентов в различных типах руд (36 порошковых проб, из них 8 проб руд Змеиногорского месторождения, 12 проб руд Стрижковского месторождения, 16 проб руд Зареченского месторождения) определялись методом ICP-MS (масс-спектрометрия с индуктивно связанной плазмой) на приборе Agilent 7500 x (Agilent Technologies, США), аналитик Е.С. Рабцевич.

Аналитика методами рентгеноспектрального микроанализа и ICP-MS выполнена в центре коллективного пользования «Аналитический центр геохимии природных систем» (НИ ТГУ, г. Томск).

Содержания золота и серебра в 36 пробах основных типов руд (из них 8 проб Змеиногорского месторождения, 12 проб Стрижковского месторождения, 16 проб Зареченского месторождения) определялись атомно-абсорбционным методом (аналитик В.Н. Ильина) на атомно-абсорбционном спектрофотометре Solaar M6 (чувствительность анализа 1·10<sup>-8</sup> мас. %) в аналитическом центре «Центр коллективного пользования научным оборудованием много-элементных и изотопных исследований СО РАН» института Геологии и Минералогии им. В.С. Соболева Сибирского отделения Российской Академии наук (г. Новосибирск).

Вариации изотопного состава серы сульфидных минералов (36 монофракций сульфидов, из которых 10 отобраны из образцов Змеиногорского месторождения, 12 из образцов Стрижковского месторождения, 14 проб из образцов Зареченского месторождения) определялись в центре ДВГИ ДВО РАН (г. Владивосток) в лаборатории стабильных изотопов, измерение изотопных соотношений серы проведено на изотопном масс-спектрометре Finnigan MAT 253 (ThermoFinnigan, Bremen, Germany) с использованием двойной системы напуска (аналитик Т.А. Веливецкая).

#### Результаты и их обсуждение

Процесс рудообразования изученных месторождений имел полистадийный характер, что свойственно многим объектам гидротермального генезиса [21]. При изучении были выделены основные минеральные парагенезисы, соответствующие стадиям рудообразования, последовательно сменяющим друг друга, от начала процесса к его завершению.

Пирит-сфалерит-халькопиритовая парагенетическая ассоциация (1 стадия минералообразования). Характерные структуры и текстуры для данной ассоциации: текстуры: вкрапленная, прожилковая, реже брекчиевидная; структуры: тонко-, мелко-, среднезернистая, идиоморфная, аллотриоморфнозернстая, коррозионная, эмульсиевидная.

Пирит I в данной ассоциации представлен тонкои мелкозернистыми массами (рис. 2, a), которые образуют идиоморфные зерна размером 0,1...3 мм кубического, пентагондодекаэдрического габитуса, а также комбинацией куба и октаэдра (указано в порядке распространения). Такие обособления пирита зачастую деформированы, разбиты сетью трещин, фрагменты зерен часто растащены и с признаками замещения более поздними сульфидами. Встречается как в колчеданно-полиметаллическом типе руд, так и в существенно полиметаллическом.



- Рис. 2. Основные микро-структурно-текстурные характеристики руд барит-полиметаллических месторождений Змеиногорского рудного района: а) тонкозернистые обособления пирита, сцементированные халькопиритом и разбитые сетью трещин более позднего барита (полиметаллический тип руд); b) эмульсионная вкрапленность халькопирита в сфалерите; c) замещение пирита галенитом I; d) проявление структуры деформации в галените, искривленные треугольники выкрашивания по спайности, возникише в результате деформации; e) петельчатая структура, образованная замещением халькопирита I халькозином, в прожилках галенит II и сфалерит II; f) обособления борнита и халькозина в агрегате блеклой руды (борнит-халькозиновая парагенетическая ассоциация); g) фрагменты зональных почек более позднего пирита-марказита (из существенной осциляторной зональностью) и обособление галенита I между агрегатами сфалерита II (с проявленной осциляторной зональностью) и обособление галенита I с редкими включениями акантита; i) расщепленные столбчатые кристаллы барита, сцементированные кварцем, в интерстициях агрегаты сфалерита II (барит-полиметаллический тип руд). Примечание: Ру пирит, Spl сфалерит, Chp халькопирит, Gn галенит, Ba барит, Bo борнит, Fh блеклая руда, Akt акантит, Ms марказит, Q кварц
- Fig. 2. Basic micro-structure-texture characteristics of ores of barite-polymetallic deposits of Zmeinogorsk ore district:
  a) fine-grained pyrite segregations cemented by chalcopyrite and broken by a network of cracks of later barite (polymetallic ores type); b) emulsion structure of decomposition of chalcopyrite solid solution in sphalerite; c) replacement of pyrite I with galena I; d) occurrence of crumpling structure in galena, curved triangles of spalling along cleavage resulting of deformation; e) reticulate structure, formed by chalcopyrite I replacement with chalcocite, in veins galena II and sphalerite II; f) bornite and chalcocite segregation in a fahlore unit (bornite-chalcocite paragenetic association); g) fragments of zonal buds of later pyrite-marcasite (from an essentially polymetallic ores type); h) veinlets of galena II, between aggregates of sphalerite II (with pronounced oscillatory zoning), and segregation of galena I with rare acanthite inclusions; i) split columnar barite crystals, cemented by quartz, aggregates of sphalerite II in the interstices (barite-polymetallic ores). Notice: Py pyrite, Spl sphalerite, Chp chalcopyrite, Gn galena, Ba barite, Bo bornite, Fh fahlore, Akt akantite, Ms marcasite, Q quartz

Сфалерит I в виде сплошных зернистых масс или отдельных зерен размером 0,05...10 мм слабоокрашенных или практически бесцветных, с хорошо проявленной спайностью. Наибольшим распространением пользуется в колчеданно-полиметаллических и полиметаллических типах руд. Очень часто в сфалерите данной ассоциации отмечается эмульсионная вкрапленность халькопирита (рис. 2, b), образуя структуру распада твердого раствора, при этом при исследовании газово-жидких включений в сфалерите данной ассоциации, которые в свою очередь являются трехфазными (жидкость+газ+твердая фаза), в качестве твердой фазы отмечены тетраэдрические кристаллики халькопирита. В качестве изоморфной примеси сфалерит I обнаруживает примесь железа до 2,2 мас. %.

Халькопирит нередко выполняет пространство между ранее выделившимися зернами и агрегатами пирита, зачастую цементируя их раздробленные фрагменты. Также образует прожилки, линзочки, между обособленными зернами и агрегатами сфалерита. Наибольшим распространением пользуется в колчеданно-полиметаллическом типе, а также в существенно полиметаллическом, редкие единичные зернистые агрегаты отмечены баритв полиметаллическом типе руд. На Стрижковском месторождении слагает гнезда зернистых агрегатов размером 0,5...2 см в существенно свинцовом типе руд (практически мономинеральные галенитовые руды), а также совершенно незначительные по распространению вкрапленные медные руды в палеозойской зеленосланцевой толще (корбалихинская свита O-S<sub>1</sub>kr). Халькопирит довольно часто замещается более поздними минералами, например халькозином, в меньше степени борнитом (рис. 2, e).

Галенит-блекловорудная парагенетическая ассоциация (2 стадия минералообразования).

Галенит формирует прожилки, гнезда и неправильной формы обособления, встречается в полиметаллическом типе руд, а также баритполиметаллическом. Образует неровные, зазубренные и заливообразные границы с ранее выделившимися сульфидами. Как уже было сказано выше, на Стрижковском месторождении образует практически мономинеральные свинцовые руды, преимущественно средне-, реже крупнозернистой структуры, с редкими включениями единичных зерен сфалерита I и халькопирита I. Довольно часто наблюдается замещение галенитом ранее выделившихся сульфидов, например, пирита (рис. 2, с). Также довольно часто на всех изученных месторождениях в зернах и агрегатах галенита отмечаются признаки деформации, в виду хорошей его пластичности, как правило, это искривленные треугольники выкрашивания по спайности минерала (рис. 2, d), что говорит о проявлении син- и пострудной тектоники.

Довольно часто в галените данной ассоциации отмечается примесь селена (особенно на Стрижковском и Зареченском месторождениях), до 1,2 мас. % (табл. 1).

Таблица 1. Средний химический состав сульфидов выделенных парагенетических ассоциаций барит-полиметаллических Змеиногорского, Зареченского, Стрижковского месторождений Змеиногорского рудного района

| Table 1. | Average chemical   | sulfides composi | ion of   | subtracted | paragenetic  | association | of barite- | polymetallic | Zmeino- |
|----------|--------------------|------------------|----------|------------|--------------|-------------|------------|--------------|---------|
|          | gorsk, Zarechensk, | Strigkovsk depos | ts of Zı | neinogorsk | ore district |             |            |              |         |

| Минерал   | Количество определений | Элементы, мас. %/Elements, wt. % |          |          |          |       |     |      |     |       |       |              |
|---|------------------------|----------------------------------|----------|----------|----------|-------|-----|------|-----|-------|-------|--------------|
| Mineral   | Number of points       | S                                | Fe       | Cu       | Zn       | As    | Se  | Ag   | Cd  | Sb    | Pb    | Сумма<br>Sum |
|   | Сульфиды I стад        | ии/Sulf                          | ides of  | the firs | t stage  |       |     |      |     |       |       |              |
| Пирит/Pyrite                                    | 69                     | 52,8                             | 46,8     | -        | -        | I     | Ι   | -    | Ι   | -     | -     | 99,6         |
| X/пирит/Chalcopyrite                            | 81                     | 34,26                            | 29,7     | 35,1     | 1        | ١     | Ι   | -    | Ι   | -     | -     | 99,06        |
| Сфалерит I/Sphalerite I                         | 75                     | 35,02                            | 2,2      | -        | 62,96    | ١     | Ι   | -    | Ι   | -     | -     | 100,18       |
| Сульфиды II стадии/Sulfides of the second stage |                        |                                  |          |          |          |       |     |      |     |       |       |              |
| Сфалерит II/Sphalerite II                       | 87                     | 34,27                            | 0,20     | -        | 64,12    | -     | 1   | -    | 1,5 | -     | -     | 100,09       |
| Галенит I/Galena I                              | 90                     | 13,23                            | 0,72     | _        |          | I     | 1,2 | -    |     | -     | 85,20 | 100,35       |
| Тетраэдрит/Tetrahedrite                         | 93                     | 24,75                            | 1,20     | 38,70    | 7,34     | 4,32  | Ι   | 012  | Ι   | 23,75 | -     | 100,06       |
|   | Сульфиды III стад      | ции/Sul                          | fides of | the thi  | rd stage | •     |     |      |     |       |       |              |
| Борнит/Bornite                                  | 68                     | 25,51                            | 11,36    | 62,86    | 1        | ١     | Ι   | 05   | Ι   | -     | -     | 99,73        |
| Теннантит/Tennantite                            | 70                     | 30,98                            | 0,63     | 40,34    | 7,0      | 15,47 | -   | 02   | -   | 5,96  | -     | 100,38       |
| X/пирит II/Chalcopyrite II                      | 56                     | 35,26                            | 30,34    | 34,37    | 1        | ١     | Ι   | -    | Ι   | -     | -     | 99,7         |
| Халькозин/Chalcosine                            | 64                     | 19,4                             | _        | 78,0     | _        | -     | —   | 2,2  | —   | _     | _     | 99,96        |
| Галенит II/Galena II                            | 52                     | 13,72                            | -        | _        | _        | _     | -   | 1,45 | -   | -     | 84,17 | 99,34        |

Тетраэдрит распространен на всех изученных месторождениях в составе выделенной ассоциации. Отмечен в полиметаллическом типе руд, а также в барит-полиметаллическом. Образует в основном тонкои мелкозернистые агрегаты, реже отдельные зерна в тесном срастании с галенитом I и халькопиритом I. На Зареченском месторождении в некоторых рудных телах отмечаются участки, сложенные тетраэдритом, галенитом, сфалеритом и незначительной частью халькопирита, с ярко выраженными зеркалами скольжения, с абсолютно гладкой поверхностью, причем как минимум в двух-трех направлениях, что также говорит о проявлении интенсивных тектонических напряжений и «подвижек» в процессе рудообразования.

Интересным является тот факт, что в составе тетраздрита на всех изученных месторождениях довольно устойчиво отмечается примесь серебра вплоть до 12 мас. %. При этом наиболее богатым на содержание серебра является тетраэдрит Зареченского месторождения (0...12 мас. %), несколько меньшие значения отмечаются в тетраэдрите Змеиногорского месторождения (1,5...9 мас. %), и самое меньшее количество отмечается в тетраэдрите Стрижковского месторождения (0...5 мас. %).

Для Зареченского и Змеиногорского месторождений наблюдается эволюция от ранних сурьмянистых разностей блеклой руды (тетраэдрит) к более поздней мышьяковистой разности блекловорудной изоморфной серии, вероятно, обусловленная изменением условий минералообразования, прежде всего изменением солености флюида и снижением температуры, что влияет и на степень миграции металлов.

Сфалерит II отмечен как в полиметаллическом типе руд, так и в барит-полиметаллическом, образует мелко- и среднезернистые агрегаты, в тесном срастании с галенитом и тетраэдритом. Участками в зернах сфалерита данной ассоциации отмечается осцилляторная зональность (рис. 2, *h*), связанная с процессами самоорганизации в системе, удаленной от равновесия, и кинетическими факторами роста минералов [22].

Иными словами, осцилляторная зональность обусловлена возникновением градиента концентраций (в данном случае примеси Cd до 1,5 мас. %) на границе минерала и флюида, где имеет место обратная связь между отложением зон, богатых одним компонентом как результирующим фактором градиента диффузии на границе раздела кристалл и флюид и осаждением другого компонента [23]. Стоит отметить, что содержание кадмия в сфалеритах изученных баритполиметаллических месторождений порядком ниже кларковых значений для сфалеритов колчеданных руд, что свидетельствует о кислом характере среды рудообразования.

Также в этой ассоциации впервые был диагностирован (не был выявлен предшественниками) *гринокит* (в барит-полиметаллических рудах Стрижковского месторождения). Зерна размером 10...20 мкм с четкими и ровными контурами, располагающиеся на контакте барита и сфалерита II, а также в межзерновом пространстве агрегатов сфалерита.

В данной ассоциации присутствует и *арсенопирит* преимущественно в виде единичных идиоморфных короткостолбчатых зерен размером не более 30 мкм в тесной ассоциации с тетраэдритом и сфалеритом II.

Борнит-халькозиновая парагенетическая ассоциация (3 стадия минералообразования). Данная ассоциация представляет наибольший интерес ввиду развития в ней минералов благородных металлов, относящихся к группе редких, при этом и основные минералы данного комплекса в качестве изоморфной примеси, в довольно широких диапазонах, нередко содержат примеси серебра. Содержание золота и серебра в таких рудах, по данным атомно-абсорбционного анализа, варьирует в пределах: Au 8...30 г/т, Ag 50...800 г/т. Содержания серебра, как правило, в несколько раз превышают содержания золота, что является характерной чертой вулканогенных гидротермальных месторождений [24].

Борнит в образцах представлен отдельными зернами и зернистыми агрегатами (рис. 2, *f*), выполняющими прожилки, линзочки и гнезда размером 1...8 см в тесном срастании с теннантитом, реже встречаются каемки вокруг ранее выделившихся тетраэдрита и халькопирита I. Наибольшее распространение имеет на Зареченском месторождении, чуть меньшее на Змеиногорском, совсем в ограниченном количестве встречается на Стрижковском.

В свежем сколе имеет медно-красный цвет, на поверхности штуфных образцов борнит повсеместно покрыт пленкой яркой, преимущественно синего цвета, побежалости, благодаря чему довольно легко диагностируется в изучаемых образцах. Участками содержит микроскопические, пластинчатой формы включения халькопирита II. Зачастую содержит примесь серебра от 0...5 мас. %.

Халькозин по времени выделения весьма близок к борниту, образует сплошные тонкозернистые массы или единичные зерна размером до 2...4 мм. Участками наблюдается замещение зерен халькопирита I халькозином. В халькозине также довольно устойчиво отмечается примесь серебра 0,6...3,8 мас. %.

Теннантит в виде стально-серого цвета отдельных зерен размером до 1 см или сплошных тонко- и мелкозернистых масс имеет четкие границы с борнитом, халькозином и халькопиритом II. Содержание примеси серебра до 4 мас. %.

Как было сказано выше, наблюдается тенденция изменения состава блеклых руд от 2 к 3 стадии минералообразования и проявляется обратная корреляция между соотношениями Sb/(Sb+As) и Fe/(Fe+Zn), а также уменьшается массовая доля серебра в качестве изоморфной примеси от тетраэдрита к теннантиту (рис. 3).

При этом стоит отметить, что для блеклых руд изученных месторождений не характерно проявление какой-либо зональности, что обычно свойственно блеклым рудам вулканогенных типов месторождений [25]. Это можно объяснить, по-видимому, условиями формирования, а именно упорядоченностью процесса кристаллизации при постепенном снижении температуры рудообразующих растворов.

Отсутствие же теннантита на Стрижковском месторождении, вероятно, связано с уровнем эрозионного среза, который является максимальным относительно Змеиногорского и тем более Зареченского месторождений.

Пирит II зачастую образует агрегаты пирит-марказит, в виде колломорфных обособлений, с четко проявленным зональным строением. Такие агрегаты пирита II отмечаются в колчеданно-полиметаллических и полиметаллических типах руд и представляют собой фактически мономинеральные почки размером 0,2...60 мм, однако редко отмечаются сложные по строению и составу агрегаты, зональные, состоящие из чередующихся зонок пирита, сфалерита II и галенита II, реже между зонами пирита были отмечены обособления блеклых руд и в некоторых случаях кальцита. Появление пирита такой формы свидетельствует об образовании его в условиях резкого пресыщения рудообразующих растворов, которое происходит при смешении горячего восстановительного металлоносного флюида (с участием сульфатредуцирующих бактерий) с относительно холодной морской водой [26].


Рис. 3. Соотношение: a) Fe/(Fe+Zn) к Sb/(Sb+As), b) Ад к Sb/(Sb+As) в блеклых рудах барит-полиметаллических месторождений Змеиногорского рудного района (Змеиногорского, Зареченского, Стрижковского), 1 – тетраэдрит, 2 – теннантит. Стрелками показана эволюция состава блеклых руд от 2 стадии (более ранней, кристаллизация тетраэдрита) к 3 стадии (более поздней, кристаллизация теннантита)

*Fig. 3.* Corellation of: a) *Fe/(Fe+Zn)* to *Sb/(Sb+As)*, b) *Ag* to *Sb/(Sb+As)* at fahlores of barite-polymetallic deposits of Zmeinogorsk ore district (Zmeinogorsk, Zarechensk, Strizhkovsk deposits), 1 – tetrahedrite, 2 – tennantite. Arrows show the evolution of the composition of fahlores from the 2<sup>nd</sup> stage (earlier stage, crystallization of tetrahedrite) to the 3<sup>rd</sup> stage (later stage, crystallization of tennantite)

Колломорфные формы пирита распространены и на вулканогенно-осадочных колчеданно-полиметаллических объектах Змеиногорского рудного района, например на Корбалихинском, Лазурском, Семеновском месторождениях [27], и нередко содержат примеси Tl, As, Sb и Pb [28].

Также в данной ассоциации отмечаются микроскопические выделения позднего галенита (галенит II), обособляющегося в виде тонких прожилков или изометричных образований размером до 3 мм. Содержание примеси серебра в галените до 2 мас. %.

Редкие минералы. К редким минералам, диагностированным на изученных месторождениях, относятся: алтаит, штромейерит, гессит, ялпаит, акантит, самородное серебро, электрум, амальгамы золота и серебра.

Наибольшее распространение минералов этой группы отмечено в борнит-халькозиновой ассоциации, во всех типах изученных руд, и только акантит и самородное серебро отмечаются в галенитблекловорудной ассоциации, в полиметаллическом и барит-полиметаллическом типе руд.

Самородное серебро встречено на всех трех месторождениях (в существенно полиметаллических рудах либо в барит-полиметаллических), найдены обособленные тонкие листочки, дендритовидные выделения, а также выделения, находящиеся в тесном срастании с акантитом, на границе зерен халькопирита I с блеклыми рудами, либо нитевидные просечки в тетраэдрите. Для серебра Зареченского месторождения отмечаются примеси Мо и Те – до 0,3 и 0,4 % соответственно. Акантит встречается довольно часто практически во всех типах руд, участками совместно с галенитом II, тетраэдритом, участками образует своеобразные зонально-кольцевые обособления, также встречается и в виде самостоятельных выделений, а также в виде «корочек» и «налета» на блеклых рудах и халькопирите I либо на границе зерен этих минералов.

Гессит встречается в существенно колчеданных типах руд, реже в полиметаллических, в виде неправильной формы выделений размером до 100 мкм. Часто в тесной ассоциации с гесситом можно встретить выделения самородного теллура размером до 10...15 мкм, выявляются на контакте галенита I и барита, также среди агрегатов халькопирита I (рис. 4, *a*, *b*).

Амальгамы серебра и золота имеют локальное распространение и диагностированы пока только на Зареченском месторождении в борнит-халькозиновой ассоциации. Диагностированы как амальгаммы золота, так и амальгаммы серебра, также реже отмечаются смешанные золото+серебро. Выполняют прожилки, линзочки и гнезда размером до 100 мкм совместно с электрумом, штромейеритом, располагаясь в межзерновом пространстве халькозина, борнита и теннантита.

Электрум в виде округлых (рис. 4, *c*) или неправильной формы обособлений, а также в виде тонких просечек размером 2...15 мкм в виде механической примеси в халькозине или на контактах зерен борнита, халькозина и блеклой руды, реже в межзерновом пространстве барита. Тесная связь золота и блеклых руд, а также халькозина и борнита не раз подчеркивалась многими исследователями на разных золоторудных объектах мира [29].

Штромейерит и ялпаит зачастую выполняют микроскопические прожилки или неправильной формы обособления размером до 50...70 мкм в сфалерите II, теннантите и барите.

К 4 стадии минералообразования относится барит-кальцит-гематитовая ассоциация.

Минералы данной ассоциации формируют жилы, прожилки, гнезда, а также вкрапления.

Барит наиболее распространенный жильный минерал в данной ассоциации, на долю которого, в зависимости от типа руд, отводится вплоть до 80 % (барит-полиметаллический тип). Зачастую образует зернистые агрегаты в виде шлировых обособлений и гнезд, иногда отмечаются идиоморфные столбчатые зерна размером 0,3...10 мм, в интерстициях которых участками обособлены сульфиды.



- Рис. 4. Обособления редких минералов в барит-полиметаллических рудах: а) неправильной формы обособление гессита и галенита II в агрегате халькопирита I (Зареченское месторождение); b) обособления гессита и самородного теллура на контакте зернистого агрегата барит и галенита (Стрижковское месторождение); с) обособление округлой формы электрума (Au – 65 %, Ag – 35 %) в зерне халькозина в общей массе теннантита (Зареченское месторождение)
- Fig. 4. Segregation of rare minerals at barite-polymetalic ores: a) irregular segregation of hessite and galena II in the chalcopyrite I aggregate (Zarechensk deposit); b) segregation of hessite and native tellurium at the contact of the granular aggregate of barite and galena (Strizhkovsk deposit); c) segregation of the rounded shape of electrum (Au – 65 %, Ag – 35 %) in the grain of chalcocite in the total mass of tennantite (Zarechensk deposit)

В качестве примесных элементов составе барита содержатся Со (0,1...0,2 мас. %) и Sr (0,2...1,3 мас. %).

Не исключено и выделение более позднего «чистого» барита, формирующего мономинеральные шапки на Стрижковском и Змеиногорском месторождениях.

Кальцит образует прожилки, разбивая ранее выделившиеся минералы, в основном сульфиды, находится в тесной ассоциации с кварцем, реже с баритом. Размер отдельных зерен не превышает 0,1...5 мм. Отмечается примесь марганца 0,35...0,7 мас. %.

*Гематит* имеет наименьшее распространение, отмечается в виде прожилков между кварцем и ранее кристаллизовавшимися сульфидами, а также в тесной ассоциации с баритом, придавая последнему зачастую розоватую окраску.

# Изучение изотопов серы

Изотопный состав серы сульфидных минералов гидротермальных месторождений зависит от источника серы гидротермальных растворов и физикохимических условий кристаллизации сульфидных минералов [30].

Для изотопных характеристик изучаемых месторождений были отобраны монофракции сульфидов из каждой выделенной парагенетической ассоциации (табл. 2). Стоит отметить, что в целом сульфиды изученных гидротермальных барит-полиметаллических месторождений имеют несколько облегченный изотопный состав, в то время как большинство объектов колчеданной формации Казахстанского и Уральского регионов характеризуются устойчивым утяжеленным составом [31].

Таким образом, сульфиды первой стадии по своим значениям (0...+1,2 ‰) соответствуют мантийным меткам [32, 33], сульфиды второй стадии (-2,3...-3,7 ‰) близки к коровым значениям, сульфиды третьей стадии имеют совсем облегченный состав (до -12,8 ‰) (табл. 2). Полученные данные хорошо соотносятся с данными подобных объектов мира [34], что говорит о том, что руды данных объектов принадлежат к определенному известному формационному типу.

Таблица 2. Вариации средних значений изотопов серы основных сульфидов выделенных парагенезисов

| Минерал<br>Mineral                              | Характерные структуры<br>и текстуры<br>Characteristic structures and<br>textures   | Количество проб | Number of samples | Средние значения | Average values | 834CDT, % |
|---|--|-----------------|-------------------|------------------|----------------|-----------|
| Сульфиды I стадии/Sulfides of the first stage   |  |                 |                   |                  |                |           |
| Пирит<br>Pyrites                                | Прожилковая, вкрапленная,<br>прожилково-вкрапленная,   | 6               |                   | -0,2             |                |           |
| Халькопирит<br>Chalcopyrite                     | брекчиевая; раздробленная, распада твердых растворов, за-  | 5               |                   | 0                |                |           |
| Сфалерит I<br>Sphalerite I                      | мещения<br>Vein texture, impregnated, vein-<br>impregnated, breccia, corrugated,<br>disproportional, replacement           | 5               |                   | +1,2             |                |           |
| Сульфиды II стадии/Sulfides of the second stage |  |                 |                   |                  |                |           |
| Галенит<br>Galena                               | Массивная, гнездовая, прожил-<br>ковая, мелко-, среднезернистая,   | 6               |                   | -                | -3,4           |           |
| Сфалерит II<br>Sphalerite II                    | аллотриоморфно-зернистая, пе-<br>тельчатая   | 5               |                   | -2,3             |                |           |
| Тетраэдрит<br>Tetrahedrite                      | Massive, pockety segregation,<br>vein texture, micro-, mediun grain<br>structure, allotriomorphic-<br>granular, reticulate | 5               |                   | -3,7             |                |           |
| Сульфиды III стадии/Sulfides of the third stage |  |                 |                   |                  |                |           |
| Борнит<br>Bornite                               | Прожилковая, вкрапленная,<br>гнездовая, замещения  | 2               |                   | -                | -8,9           |           |
| Теннантит<br>Tennantite                         | Vein texture, impregnated, pockety segregation, replacement  | 2               |                   | _                | 12,8           | 3         |
|   |  |                 |                   |                  |                |           |

 Table 2.
 Variations of basic sulfide sulfur isotope average values in subtracted paragenetic association

Столь большие отрицательные значения  $\delta^{34}$ S в борните и теннантите могут быть объяснены частичным окислением сульфидной серы рудного раствора или же флюида, происходящем при повышении окислительного потенциала. В результате чего происходит разделение изотопов между окислительными и восстановительными формами серы, при этом восстановительные формы обогащаются легким изотопом S<sup>32</sup>. В таких случаях рудный процесс заканчивается, как правило, отложением гипогенных сульфатов, как и в случае изученных барит-полиметаллических месторождений, а именно отложением барита [35].

# Заключение

Проведенные исследования первичных руд баритполиметаллических месторождений Змеиногрского рудного района позволили сделать основные выводы:

- Изученные месторождения по своему генетическому типу являются средне-, низкотемпературными, относящимися к вулканогенногидротермальному типу, сформировавшимися в условиях умеренных глубин, являющимися продуктами поствулканической гидротермальной деятельности эмсского вулканизма существенно кислой направленности.
- Тектонические зоны месторождений многократно активизировались и сопровождались синхронными дискретными вспышками рудогенеза, поэтому барит-полиметаллическое оруденение района имеет многостадийный характер, подтвержденный не только минераграфическими исследованиями, но и изменяющимися изотопными характеристиками.
- 3. Сложный механизм формирования руд месторождений подчеркивается разнообразием минераль-

# СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Контарь Е.С. Месторождения свинца и цинка в истории формирования земной коры // Литосфера. – 2016. – № 3. – С. 5–26.
- Серавина Т.В., Кузнецов В.В., Конкина А.А. Золотосеребросодержащие полиметаллические месторождения – технология и опыт их прогноза и поисков // Известия Тульского государственного университета. Науки о Земле. – 2020. – № 1. – С. 303–314.
- Дергачев А.Л. Глобальные факторы свинцово-цинкового рудообразования // Вестник Московского государственного университета. – 2019. – Т. 4. – № 4. – С. 3–10.
- Основы прогноза и поисков колчеданно-полиметаллических месторождений Рудного Алтая / В.В. Кузнецов, Н.Г. Кудрявцева, Т.В. Серавина, О.В. Мурзин, Д.А. Корчагина, С.В. Кузнецова, С.А. Миляев. – М.: ЦНИГРИ, 2019. – 208 с.
- Гринев О.М. Историческая ретроспектива и потенциал месторождений Рудного Алтая как источника золота и серебра // Петрология магматических и метаморфических комплексов: Материалы третьей ежегодной научной конференции. – Томск: Томский Государственный Университет, 2002. – Т. II. – С. 44–58.
- Чекалин В.М. К вопросу о зональности и генезисе Зареченского барит-полиметаллического месторождения на Рудном Алтае // Геология и металлогения северо-западной части Рудного Алтая. – Томск: Изд-во Томского политехнического университета, 2016. – С. 245–249.
- Гаськов И.В.Особенности эндогенной металлогении Горного и Рудного Алтая (Россия) // Геология и геофизика. – 2018. – Т. 59. – № 8. – С. 1254–1270.
- Гринев О.М., Бестемьянова К.В., Гринев Р.О. Морфоструктуры и вещественный состав эмс-раннеэйфельских вулканитов Змеиногорского рудного района (Рудный Алтай) // Петроло-

ного состава, в том числе и сочетанием присутствующих минеральных форм, образующихся в эволюционирующих физико-химических и фациальных условиях рудоотложения.

- 4. Околорудные метасоматиты и продукты установленных стадий минерализации последовательно формировались в рудных этапах, зачастую телескопированно накладываясь друг на друга и усложняя минералогический состав рудных тел. Выделены обобщенные для трех изученных месторождений парагенетические ассоциации, соответствующие последовательно сменяющим друг друга стадиям минералообразования, от ранних к поздним: пирит-сфалерит-халькопиритовая — галенит-блекловорудная — борнит-халькозиновая барит-кальцит-гематитовая. При этом наиболее продуктивной стадией, в течение которой отлагалась наибольшая часть благороднометалльной минерализации, является третья с борнитхалькозиновой ассоциацией.
- 5. Для изученных барит-полиметаллических месторождений характерен комбинированный источник серы. Изменение значений δ<sup>34</sup>S от начальных стадий к конечным, от утяжеленных меток к облегченным, демонстрирует заметное фракционирование изотопов серы в рудном процессе и указывает на гетерогенный источник. С этим согласуются и выводы по гетерогенному источнику вулканитов, а именно плюмовому и субдукционному, установленному ранее проведенными исследованиями [8].

Работа выполнена в рамках государственного задания Министерства науки и высшего образования РФ № 0721-2020-0041.

гия магматических и метаморфических комплексов: Материалы IX Всероссийской конференции с международным участием. – Томск: Томский государственный университет, 2017. – С. 118–127.

- Ворошилов В.Г., Понитевский К.Л. Геохимическая зональность колчеданно-полиметаллических месторождений северозападной части Рудного Алтая // Известия Томского политехнического университета. – 2001. – Т. 304. – № 1. – С. 160–169.
- Маслеников В.В. Вулканизм и рудообразование генетические проблемы // Металлогения древних и современных океанов. – 2018. – № 1. – С. 13–18.
- Викентьев И.В. Условия формирования и метаморфизм колчеданных руд. – М.: Изд-во «Научный мир», 2004. – 340 с.
- Зайков В.В. Вулканизм и сульфидные холмы палеоокеанических окраин. – М.: Изд-во «Наука», 2006. – 429 с.
- Серавина Т.В. Положение колчеданно-полиметаллических месторождений Сибири в вулканогенном разрезе (на примере Рудноалтайской, Салаирской, Кызыл-Таштыгской и Приаргунской минерагенических зон // Металлогения древних и современных океанов. – 2018. – № 1. – С. –104–108.
- 14. Серавкин И.Б., Косарев А.М. Южный Урал и Рудный Алтай: сравнительный палеовулканический и металлогенический анализ // Геология рудных месторождений. – 2019. – Т. 61. – № 2. – С. 3–22.
- Бестемьянова К.В., Гринев О.М. Околорудные метасоматиты барит-полиметаллических месторождений Змеиногорского рудного района (Рудный Алтай) // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2017. – Т. 328. – № 9. – С. 114–126.
- 16. Bozkaya G., Banks D.A. Sulfur isotope geochemistry and mineralogy of Bacilar vein type barite-sulphide mineralization,

Biga peninsula, NW Turkey // Pamukale University Muhendislik Bilimerli Dergisi. – 2016. – V. 22 (3). – P. 200–205.

- Sulfur isotope variation in volcanic-associated massive sulfides of the Northern Appennine ophiolites (Italy) / G. Garuti, F. Zaccarini, P. Alfonso, J.A Proenza. // Mafic-ultramafic complexes of folded regions and related deposits: the third international conference. – Kachkanar: Institute of Geology and Geochemistry UB RAS, 2009. – P. 12–16.
- Дергачев А.Л., Еремин Н.И., Сергеева Н.Е. Разномасштабные тенденции в эволюции состава руд вулканогенных колчеданных месторождений // Вестник Московского государственного университета. – 2013. – Т. 4. – № 5. – С. 31–40.
- Дергачев А.Л., Еремин Н.И. Вулканогенные колчеданные месторождения богатых золотом руд // Вестник Московского государственного университета. – 2018. – Т. 4. – № 3. – С. 3–11.
- Reed S.J.B. Electron microprobe analysis and scanning electron microscopy in geology. – N.Y.: Cambridge University Press, 2005. – 189 p.
- Reed M.H., Palandri J. Sulfide mineral precipitation from hydrothermal fluids // Reviews in Mineralogy and Geochemistry. – 2006. – V. 61. – № 1. – P. 609–631.
- Prieto M. Thermodynamics of solid solution-aqueous solution systems // Reviews in Mineralogy and Geochemistry. – 2009. – V. 70. – № 1. – P. 47–85.
- Putnis A. Mineral replacement reactions // Reviews in mineralogy and geochemistry. – 2009. – V. 70. – № 1. – P. 87–124.
- 24. Gold and silver in ores of volcanogenic hydrothermal and hydrothermal-sedimentary pyrite-polymetallic deposits of Siberia / K.R. Kovalev, E.G. Distanov, G.N. Anoshin, I.V. Gas'kov, V.A. Akimtsev, M.V. Baulina // Geology and Geohysics. – 2004. – V. 45. – № 10. – P. 1121–1135.
- 25. Chemical composition and varieties of fahlore-group minerals from Oligocene mineralization in the Rhodope area, Southern Bulgaria and Northern Greece / A. Repstock, P. Voudouris,

M. Zeug, V. Melfos, M. Zhai, H. Li, J. Matuszczak // Mineralogy and Petrology. – 2016. – V. 110. – Nº 1. – P. 103–123.

- 26. Skarpelis N. Settings, sulfur isotope variations, and metamorphism of Jurassic massive Zn-Pb-Ag sulfide mineralization associated with arc-type volcanism (Skra, Vardar zone, Nothern Greece) // Resource Geology. – 2020. – V. 70. – № 4. – P. 311–335.
- 27. Кузнецова С.В. Некоторые вопросы генезиса и минералогические особенности стратиформных руд колчеданнополиметаллических месторождений Рудного Алтая, Алтайский край // Руды и металлы. – 2017. – № 2. – С. 40–50.
- Маслеников В.В. Четверть века развития и достижений теории литогенеза колчеданных месторождений // Металлогения древних и современных океанов. – 2019. – № 1. – С. –5–10.
- Zhou J., Jago B., Martin C. Establishing the process mineralogy of gold ores // SGS Minerals Technical Bull. – 2004. – V. 3. – P. 1–16.
- Seal R.R. Sulfur isotope geochemistry of sulfide minerals // Mineralogy and Geochemistry. – 2006. – V. 61. – P. 633–677.
- Дистанов Э.Г. Изотопные исследования процессов рудообразования. – Новосибирск: Изд-во «Наука», 1991. – 204 с.
- Ohmoto H., Rye R.O. Isotopes of sulfur and carbon // Geochemistry of hydrothermal ore deposits. – N.Y.: John Wiley and Sons, 1979. – P. 509–567.
- Ohmoto H. Stable isotope geochemistry of ore deposits // Review Mineralogy. – 1986. – V. 16. – P. 491–560.
- Hoefs J. Stable isotope geochemistry. Berlin; Heidelberg: Springer-Verlag, 2009. – 281 p.
- Origin of a barite-sulfide ore deposit in the Mykonos intrusion, cyclades: trace element, isotopic, fluid inclusion and raman spectroscopy evidence / S.F. Tombros, K.St. Seymour, A.E. Williams-Jones, D. Zhai, J. Liu // Ore Geology Reviews. – 2015. – V. 67. – P. 139–157.

Поступила 25.08.2021 г.

# Информация об авторах

*Бестемьянова К.В.*, младший научный сотрудник лаборатории геохронологии и геодинамики, ассистент кафедры минералогии и геохимии Геолого-географического факультета Национального исследовательского Томского государственного университета.

*Гринев О.М.*, кандидат геолого-минералогических наук, доцент кафедры палеонтологии и исторической геологии Геолого-географического факультета Национального исследовательского Томского государственного университета.

UDC 549.32/.33:553.412'44

# MINERALOGY OF BARITE-POLYMETALLIC DEPOSITS OF ZMEINOGORSK ORE DISTRICT (RUDNY ALTAI)

# Ksenia V. Bestemianova<sup>1</sup>,

KsenijaVT@mail.ru

# Oleg M. Grinev<sup>1</sup>,

tomskgrom@yandex.ru

 National Research Tomsk State University, 36, Lenin avenue Tomsk, 634050, Russia.

**Relevance** of the research is conditioned by a need to understand the formation model of studied ore deposits; this leads to development of scientifically valid prediction and estimation and, hence, expansion of available mineral resources (first of all, copper, lead and zinc ores) while continuous prospecting and exploration at Rudny Altai including deeper and side zones of known deposits.

**The main aim** is to study ore mineral composition with use of advanced analytical techniques, mineral and geochemical features and formation processes of barite-polymetallic ore deposits of Zmeinogorsk district.

**Research methods** are represented by a complex study of barite-polymetallic ores including polarization microscopy, energy dispersive X-ray microanalysis of ores and separate sulfides, inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS) and atomic absorption spectrometry.

**The results.** Mineralogical composition of barite-polymetallic ores of Zmeinogorsk district deposits has been studied. It includes about 30 minerals, among which are (in descending order) sulfides, sulfosalts, tellurides, oxides, oxyacid salts, native elements and intermetallics. Ore bodies are represented by complex stockworks, band- and lens-shaped bodies with ores belonging to following types (from bottom to top): pyrite-polymetallic, polymetallic and barite-polymetallic ores. Hydrothermal and metasomatic processes preceded ore formation leading to formation of wallrock non-carbonate metasomatites. It was stated that the third stage of mineral formation (bornite-chalcocite association) was the most productive in terms of own mineral phases of precious metals. According to the results of sulfur isotopic composition study in sulfides there was a heterogeneous source of ore material: initial mantle source was later changed by a crustal source. Isotopic composition of first stage sulfides ( $\delta$ 34S) varies from -0.2 to +1.2 ‰; from -2.3 to -3.7 ‰ in second stage sulfides; from -8.9 to -12.8 ‰ in third stage sulfides.

#### Key words:

Zmeinogorsk ore district, barite-polymetalic ores, stages, paragenetic assemblage, sulfur isotopic compositions.

The research was carried out with the support of the Ministry of Science and Higher Education of the Russian Federation within the framework of the state assignment (project no. 0721-2020-0041).

# REFERENCES

- 1. Kontar E.S. Lead and zinc deposits in forming history of the Eart's crust. *Lithosphere*, 2016, no. 3, pp. 5–26. In Rus.
- Seravina T.V., Kuznetsov V.V., Konkina A.A. Gold-silvercontaining polymetallic deposits – technology and experience of their forecasting and prospecting. *Bulletin of the Tula State University*, 2020, no. 1, pp. 303–314. In Rus.
- 3. Dergachev A.L. Global factors of lead-zinc ore formation. *Moscow University Bulletin*, 2019, vol. 4, no. 4. pp. 3–10. In Rus.
- Kuznetsov V.V., Kudravceva N.G., Seravina T.V., Murzin O.V., Korchagina D.A., Kuznetcova S.V., Miliaev S.A. Osnovy prognoza i poiskov kolchedanno-polimetallicheskikh mestorozhdeniy Rudnogo Altaya [The foundation of forecasting and prospecting for pyrite-polymetallic deposits of Rudny Altai]. Moscow, TsNIGRI, 2019. 208 p.
- 5. Grinev O.M. Istoricheskaya retrospektiva i potentsial mestorozhdeniy Rudnogo Altaya kak istochnika zolota i serebra [Historical retrospective and potential of the Rudny Altai deposits as a source of gold and silver]. Materialy tretyey ezhegodnoy nauchnoy konferentsii. Petrologiya magmaticheskikh i metamorficheskikh kompleksov [Materials of the third annual scientific conference. Petrology of magmatic and metamorphic complexes]. Tomsk, Tomsk State University Publ., 2002. pp. 44–58.
- 6. Chekalin V.M. K voprosu o zonalnosti i genezise Zarechenskogo barit-polimetallicheskogo mestorozhdeniya na Rudnom Altaye [On the issue of zoning and genesis of the Zarechensky baritepolymetallic deposit at Rudny Altai]. *Geologiya i metallogeniya* severo-zapadnoy chasti Rudnogo Altaya [Geology and metallogeny of the northwestern part of Rudny Altai]. Tomsk, Tomsk Polytechnic University Publ., 2016. pp. 245–249.

- Gaskov I.V. Features of magmatism-related metallogeny of Gorny Altai and Rudny Altai (Russia). *Geology and geophysics*, 2018, vol. 59, no. 8, pp. 1254–1270. In Rus.
- Grinev O.M., Bestemianova K.V., Grinev R.O. Morfostruktury i veshchestvenny sostav ems-ranneefelskikh vulkanitov Zmeinogorskogo rudnogo rayona (Rudny Altay) [Morphostructures and material composition of the Ems-Early Eifel volcanics of the Zmeinogorsk ore region (Rudny Altai)]. Petrologiya magmaticheskikh i metamorficheskikh kompleksov. Materialy IX Vserossiyskoy konferentsii s mezhdunarodnym uchastiyem [Petrology of magmatic and metamorphic complexes. Materials of the IX All-Russian conference with international participation]. Tomsk, Tomsk State University Publ., 2017. pp. 118–127.
- Voroshilov V.G., Ponitevskii K.L. Geochemical zoning of pyritepolymetallic deposits in the northwestern part of Rudny Altai. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University*, 2001, vol. 304, no. 1, pp. 160–169.
- Maslennikov V.V. Vulkanizm i rudoobrazovanie geneticheskie problemy [Volcanism and ore formation – genetic issues]. *Metal*logeniya drevnikh i sovremennykh okeanov, 2018, no. 1, pp. 13–18.
- Vikentev I.V. Usloviya formirovaniya i metamorfizm kolchedannykh rud [Conditions formation and metamorphism of pyrite ores]. Moscow, Naucnн mir Publ., 2004. 340 p.
- Žaikov V.V. Vulkanizm i sulfidnye kholmy paleookeanicheskikh okrain [Volcanism and sulfide hills of the paleoceanic margins]. Moscow, Nauka Publ., 2004. 340 p.
- Seravina T.V. Polozhenie kolchedanno-polimetallicheskikh mestorozhdeniy Sibiri v vulkanogennom razreze (na primere Rudnoaltayskoy, Salairskoy, Kyzyl-Tashtygskoy i Priargunskoy mineragenicheskikh zon) [The position of the pyrite-polymetallic de-

posits of Siberia in the volcanic section (on the example of the Rudnoaltaiskaya, Salairskaya, Kyzyl-Tashtygskaya and Priargunskaya mineragenic zone)]. *Metallogeniya drevnikh i sovremennykh okeanov*, 2018, no. 1, pp. 104–108.

- 14. Seravkin I.B., Kosarev A.M. South Urals and Rudny Altai: a comparative paleovolcanic and metallogenic analysis. *Geology of Ore deposits*, 2019, vol. 61, no. 2, pp. 3–22. In Rus.
- Bestemianova K.V., Grinev O.M. Wallrock metasomatites of barite-polymetallic deposits of Zmeinogorsk ore district (Rudny Altai). Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering, 2017, vol. 328, no. 9, pp. 114–126. In Rus.
- Bozkaya G., Banks D.A. Sulfur isotope geochemistry and mineralogy of Bacilar vein type barite-sulphide mineralization, Biga peninsula, NW Turkey. *Panukale University Muhendislik Bilimerli Dergisi*, 2016, vol. 22 (3), pp. 200–205.
- Garuti G., Zaccarini F., Alfonso P., Proenza J.A. Sulfur isotope variation in volcanic-associated massive sulfides of the Northern Appennine ophiolites (Italy). *Mafic-ultramafic complexes of folded regions and related deposits: the third international conference*. Kachkanar, Institute of Geology and Geochemistry UB RAS Publ., 2009. pp. 12–16.
- Dergachev A.L. Different scale tendencies of the evolutions of the compositions of volcanogenic pyrite deposits ores. *Moscow University Bulletin*, 2013, vol. 4, no. 5, pp. 31–40. In Rus.
- Dergachev A.L. Volcanogenic massive sulfide deposits enriched in gold. *Moscow University Bulletin*, 2018, vol. 4, no. 3, pp. 3–11. In Rus.
- Reed S.J.B. Electron microprobe analysis and scanning electron microscopy in geology. N.Y., Cambridge University Press, 2005. 189 p.
- Reed M.H., Palandri J. Sulfide mineral precipitation from hydrothermal fluids. *Reviews in Mineralogy and Geochemistry*, 2006, vol. 10, no. 1, pp. 609–631.
- Prieto M. Thermodynamics of solid solution-aqueous solution systems. *Reviews in Mineralogy and Geochemistry*, 2009, vol. 70, no. 1, pp. 47–85.
- 23. Putnis A. Mineral replacement reactions. *Reviews in mineralogy* and geochemistry, 2009, vol. 10, no. 1, pp. 87–124.
- Kovalev K.R., Distanov E.G., Anoshin G.N., Gaskov I.V., Akimtsev V.A., Baulina M.V. Gold and silver in ores of volcanogenic hydrothermal and hydrothermal-sedimentary pyrite-

polymetallic deposits of Siberia. *Geology and Geohysics*, 2004, vol. 45, no. 10, pp. 1121–1135.

- Repstock A., Voudouris P., Zeug M., Melfos V., Zhai M., Li H., Matuszczak J. Chemical composition and varieties of fahloregroup minerals from Oligocene mineralization in the Rhodope area, Southern Bulgaria and Northern Greece. *Mineralogy and Petrolo*gy, 2016, vol. 110, no. 1, pp. 103–123.
- Skarpelis N. Settings, sulfur isotope variations, and metamorphism of Jurassic massive Zn-Pb-Ag sulfide mineralization associated with arc-type volcanism (Skra, Vardar zone, Nothern Greece). *Resource Geology*, 2020, vol. 70, no. 4, pp. 311–335.
- Kuznetsova S.V. Some issues of genesis and mineralogical features of stratiform ores of pyrite polymetallic deposits from Rudny Altai, Altai territory. *Ores and metals*, 2017, no. 2, pp. 40–50. In Rus.
- Maslennikov V.V. Chetvert veka razvitiya i dostizheniy teorii litogeneza kolchedannykh mestorozhdeniy [A quarter of a century of development and achievements of the theory of lithogenesis of pyrite deposits]. *Metallogeniya drevnikh i sovremennykh okeanov*, 2019, no. 1, pp. 5–10.
- Zhou J., Jago B., Martin C. Establishing the process mineralogy of gold ores. *Minerals Technical Bull*, 2004, vol. 3, pp. 1–16.
- Seal R.R. Sulfur isotope geochemistry of sulfide minerals. *Mineralogy and Geochemistry*, 2006, vol. 61, pp. 633–677.
- Distanov E.G. Izotopnye issledovaniya protsessov rudoobrazovaniya [Isotope studies of ore formation processes]. Novosibirsk, Nauka Publ., 1991. 204 p.
- Ohmoto H., Rye R.O. Isotopes of sulfur and carbon. *Geochemistry* of hydrothermal ore deposits. N.Y., John Wiley and Sons, 1979. pp. 509–567.
- Ohmoto H. Stable isotope geochemistry of ore deposits. *Review Mineralogy*, 1986, vol. 16, pp. 491–560.
- Hoefs J. Stable isotope geochemistry. Berlin; Heidelberg, Springer-Verlag, 2009. 281 p.
- Tombros S.F., Seymour K.St., Williams-Jones A.E., Zhai D., Liu J. Origin of a barite-sulfide ore deposit in the Mykonos intrusion, cyclades: trace element, isotopic, fluid inclusion and raman spectroscopy evidence. *Ore Geology Reviews*, 2015, vol. 67, pp. 139–157.

Received: 25 August 2021.

#### Information about the authors

*Ksenia V. Bestemianova*, junior researcher, assistant, National Research Tomsk State University. *Oleg M. Grinev*, Cand. Sc., associate professor, National Research Tomsk State University.

УДК 553.98.048-047.58

# ПОСТРОЕНИЕ ТРЕХМЕРНЫХ МОДЕЛЕЙ НЕФТЕНАСЫЩЕННОСТИ. ОСНОВНЫЕ ПРОБЛЕМЫ И ПОДХОДЫ К ИХ РЕШЕНИЮ

#### Белкина Валентина Александровна<sup>1</sup>,

belkinava@tyuiu.ru

# Антипин Ярослав Олегович<sup>1</sup>,

0000-9015@rambler.ru

# Забоева Александра Александровна<sup>1</sup>,

Alexandra.zaboeva@gmail.com

<sup>1</sup> Тюменский индустриальный университет, Россия, 625000, г. Тюмень, ул. Володарского, 38.

**Актуальность** развития методов построения трехмерных моделей начальной нефтенасыщенности обусловлена широким использованием их при решении важнейших задач нефтегазопромысловой геологии: подсчета запасов, проектирования и управления разработкой. Точность решения этих задач, в значительной степени обусловленная адекватностью и детальностью трехмерных моделей начальной нефтенасыщенности, позволяет заметно повысить эффективность извлечения углеводородов.

**Цель:** проанализировать современное состояние алгоритмической и информационной базы трехмерного моделирования начальной нефтенасыщенности, выявить основные проблемы и наиболее перспективные направления их развития, позволяющие повысить их точность.

Методы интерполяции и аппроксимации: детерминированные и стохастические, основанные на двух концепциях теории нефтегазонакопления: антиклинально-гравитационной и относительно недавно появившейся капиллярно-гравитационной. Для различных геологических ситуаций эти методы модифицируются способами использования широкого набора косвенной и априорной информации.

**Результаты.** Выявлены основные возможности повышения точности трехмерных моделей начальной нефтенасыщенности. Во-первых, это создание методов, учитывающих наличие водонефтяных переходных зон, характерных для терригенных полимиктовых пород-коллекторов. Во-вторых, создание дискретно-непрерывных моделей, например, с классификацией по пористости. В этом подходе область моделирования разбивается на отдельные части, в каждой из которых используются свои тренды (одномерные, двумерные и трехмерные). Построение трендов основано на всем комплексе имеющейся эмпирической информации: данных РИГИС, гидродинамических исследований и результатах капиллярометрических исследований. Проклассифицированы способы проверки качества исходных данных и адекватности построенных моделей. Приведены конкретные алгоритмы создания моделей по двум наиболее перспективным направлениям развития алгоритмической базы трехмерного моделирования начальной нефтенасыщенности.

#### Ключевые слова:

Начальная нефтенасыщенность, трехмерная модель, переходная водонефтяная зона, методы моделирования, косвенная информация, капиллярные силы.

#### Введение

Решение большинства геологических задач основано на моделях. В этой ситуации точность решения задач напрямую зависит от адекватности и детальности модели. За последние 15–20 лет трехмерное геологическое моделирование (3D ГМ) стало обязательным при подсчете запасов, проектировании и управлении разработкой. Наиболее сложной, и по этой причине зачастую недостаточно точно решаемой, частью 3D ГМ является трехмерная модель начальной нефтенасыщенности (К<sub>нн</sub>). Изучению закономерностей изменения начальной нефтенасыщенности в объеме пород-коллекторов посвящено большое число исследований [1–8].

При двухфазном насыщении пород-коллекторов «нефтяной пласт представляет собой высокодисперсную систему с большой поверхностью границ раздела фаз и огромным скоплением капиллярных каналов, в которых движутся взаимно нерастворимые жидкости, образующие мениски на границе раздела фаз. Закономерности движения нефти и воды в пласте и их взаимные вытеснения в значительной степени определяются капиллярными и молекулярно-поверхностными явлениями, происходящими на поверхности контакта взаимодействующих фаз» [9. С. 5]. Следовательно, методы построения моделей  $K_{\rm нн}$  должны учитывать закономерности литологического, фильтрационноемкостного строения и фильтрации флюидов в пласте. Отметим, что в процессе разработки залежей значение нефтенасыщенности ( $k_{\rm H}$ ) изменяется. В данной статье речь идет о коэффициенте начальной нефтенасыщенности ( $k_{\rm нн}$ ).

Анализ методов моделирования проведен только для нефтяных залежей с двухфазным характером насыщения, то есть насыщенных только нефтью и водой. Методы моделирования нефтегазовых и газонефтяных объектов еще заметно более сложны, и пока разработки в этом направлении только начинаются.

Важность коэффициента *k*<sub>нн</sub> трудно переоценить. Во-первых, он является подсчетным параметром, вовторых, используется при проектировании и регулировании процессов разработки. Использование его в виде трехмерной модели дает более детальное и адекватное описание геологического объекта, что позволяет поднять решение перечисленных задач на качественно новый уровень. Повышение точности моделей начальной нефтенасыщенности – один из важнейших факторов, обеспечивающих наиболее полное возможное извлечение нефти из продуктивных пластов.

# Геолого-геофизические предпосылки трехмерных моделей начальной нефтенасыщенности

В настоящее время широко распространены две концепции теории нефтегазонакопления: антиклинально-гравитационная (АГК) и относительно недавно появившаяся капиллярно-гравитационная (КГК). Согласно АГК, основными факторами, определяющими изменчивость коэффициента нефтенасыщенности k<sub>нн</sub> вверх по разрезу, является коэффициент открытой пористости (k<sub>п</sub>) и высота над уровнем свободной воды (УСВ) –  $h_{\rm YCB}$ . Модели нефтенасыщенности (К<sub>нн</sub>) сложнопостроенных залежей, созданных на основе АГК, зачастую дают настолько упрощенное (усредненное) представление о геологическом строении, что делают невозможным их использование для решения практических задач (уточним, что k<sub>нн</sub> означает коэффициент нефтенасыщенности, а К<sub>нн</sub>- трехмерную модель коэффициента нефтенасыщенности). Низкие прогнозные свойства моделей, созданных на основе антиклинально-гравитационной концепции нефтегазонакопления, послужили основанием для поисков причин этого обстоятельства. Изучение месторождений с низкими значениями ФЕС, а также с ФЕС со значимыми градиентами показало, что изменчивость в них  $k_{\rm HH}$  не согласуется с закономерностями АГК, так как она не учитывает влияние капиллярных сил (Рк), коэффициента проницаемости (К<sub>пр</sub>), литологических характеристик (гидрофильность, гидрофобность), влияющих значимо на фильтрацию УВ в резервуаре [6].

Создание адекватной 3D модели нефтенасыщенности невозможно без четкого понимания основных физических и геологических закономерностей изменения этого параметра. В первую очередь следует рассмотреть эти свойства с позиции геометрии залежи, то есть наличия зон, в которых коэффициент  $k_{\rm HH}$ характеризуется отличительными особенностями. В плане выделяют две зоны: зону ЧНЗ (чисто нефтяную) и ВНЗ (водонефтяную), а также границы тектонических и литологических ограничений (выклинивания и замещения), в которых свойства  $k_{\rm HH}$  к настоящему времени достаточно хорошо изучены.

Заметно сложнее  $k_{\rm HH}$  изменяется по разрезу. Причем здесь пока нет единого мнения. Множество точек зрения на эту проблему в грубом приближении можно разделить на два класса (видов моделей).

Согласно первому подходу, в разрезе модели выделяют три области: нижняя – зона остаточной нефтенасыщенности, выше переходная водонефтяная зона (ПВНЗ) и зона предельного нефтенасыщения в кровельной части залежи [8]. Особенности строения этих зон будут проанализированы позже, а пока определимся с границами этих зон. При решении задач обоснования проектов разработки и управления разработкой считают, что снизу залежь ограничена поверхностью, получившей название уровня свободной воды (УСВ).

Уровень свободной воды – это поверхность, на которой  $k_{\rm HH}=0$  и  $P_{\rm K}=0$ , а для коэффициента водонасыщенности ( $k_{\rm B}$ ) выполняется равенство:  $k_{\rm B}=1$  [8, 10, 11, 6]. Некоторые исследователи в качестве нижней границы рассматривают поверхность (ВНК<sub>1</sub>), ниже которой нефть хоть и присутствует, но является неподвижной. Граничное значение  $k_{\rm B}$  на этой поверхности обозначим  $k_{\rm B}^{**}$ . Область, в которой  $0 < k_{\rm B} < k_{\rm B}^{**}$ , получила название остаточной нефтенасыщенности. Эта область характеризуется низким значением  $k_{\rm HH}$  (остаточная нефтенасыщенность  $k_{\rm H0}$ ), при котором фильтрация нефти отсутствует, то есть  $k_{\rm HH}=k_{\rm H0}$ , а  $k_{\rm B}$  близок к 1.

Есть два подхода к выбору верхней границы ПВНЗ. В одном подходе верхней границей является водонефтяной контакт (ВНК, будет рассмотрен далее), в другом –граница, выше которой отсутствует фильтрация воды. Постоянное значение  $k_{\rm B}$  на этой границе обозначим  $k_{\rm B}^*$ .

В другом, менее распространенном и более детальном, подходе выше УСВ выделяют четыре области. Зона ограничена снизу УСВ, на которой, как сказано выше,  $k_{\rm B}$ =100 %, а сверху – поверхностью, на которой  $k_{\rm B} = k_{\rm B}$ ,  $k_{\rm B}$  – критическое значение, при котором нефть становится неподвижной Выше по разрезу выделяют область, в которой  $k_{\rm B}$  изменяется от  $k_{\rm B}^{--}$  до  $k_{\rm B}^{\rm rp}$ , в этой области нефть подвижна, но значения  $k_{\rm HH}$ настолько малы, что при вскрытии добывается преимущественно вода. Следующая область характеризуется неравенством  $k_{\rm B}^{\rm rp} < k_{\rm B} < k_{\rm B}^{*}$ . В этом подходе именно эту область называют ПВНЗ. В кровельной части, как и в выше рассмотренной модели, расположена зона предельного нефтенасыщения. Этот подход является частично умозрительным, так как нет методов, позволяющих оценить  $k_{\rm B}^{\rm rp}$ . По этой причине он не используется в трехмерных моделях начальной нефтенасыщенности.

Отметим, что содержание статьи базируется на первом подходе, причем ПВНЗ снизу ограничена УСВ, а сверху – поверхностью, на которой  $k_{\rm B}=k_{\rm B}^*$ , то есть поверхностью, являющейся нижней границей зоны предельной нефтенасыщенности.

Значения коэффициента  $k_{\rm HH}$  обусловлены большим числом факторов, причем значимость их сильно зависит от целого ряда геологических, физических, литологических характеристик пород-коллекторов.

Проблема изучения переходных зон и учета их в трехмерном геологическом моделировании особенно актуальна для гидрофильных пород-коллекторов с невысокими ФЕС или высокой их анизотропией. Как показано в ряде исследований, в этих условиях толщина ПВНЗ может достигать нескольких десятков метров (рис. 1) [3, 7, 12]. В однородных высокопроницаемых и в гидрофобных породах-коллекторах ПВНЗ незначительна по толщине, поэтому учет ее строения в алгоритме геолого-гидродинамического моделирования практически не повышает прогнозные показатели модели [6].



**Puc. 1.** Схема нефтяной залежи в разрезе согласно капиллярно-гравитационной концепции нефтегазонакопления [6] **Fig. 1.** Diagram of an oil deposit in the section according to the capillary-gravity concept of oil and gas accumulation [6]

Как уже было сказано, при создании 3D модели К<sub>нн</sub> важно обосновать выбор нижней границы области моделирования. Ее выбор в значительной степени предопределен целью создаваемой модели. Методы гидродинамического моделирования требуют вычисления значений  $k_{\rm HH}$  от УСВ до кровли пород-коллекторов. В ПВНЗ есть еще одна важная поверхность - ВНК. Наиболее часто под ВНК понимают условную поверхность, разделяющую нефтенасыщенную и водонасыщенную части залежи. Согласно [5]: «ВНК – граничная поверхность в переходной зоне нефтяной залежи, ниже которой фазовая проницаемость для нефти равна нулю, то есть выше которой из пласта получают промышленный приток нефти с водой». Понятие «промышленный приток нефти» не является формализованным по причине существенной зависимости его от целого ряда геологических и экономических факторов, следовательно, и понятие «водонефтяной контакт» тоже не формализованное. В природе нет и не может быть четкой границы, разделяющей области, характеризующиеся  $k_{\rm H}=1$  и  $k_{\rm B}=1$ [6]. Обобщая изложенное о понятии ВНК, можно сказать лишь следующее: ВНК «находится в зоне, расположенной ниже однофазного притока нефти и выше однофазного притока воды» [6]. Методы обоснования ВНК по материалам ГИС приведены в работе [8].

Аналогично понимают газонефтяной и газоводяной контакты. Модели К<sub>нн</sub>, создаваемые с целью подсчета запасов, почти всегда ограничены снизу поверхностью ВНК. Поверхность ВНК может быть горизонтальной, наклонной или выпукло-вогнутой, например, у залежей, у которых в купольной части ведется разработка.

Изучению строения нефтяных залежей с учетом наличия ПВНЗ посвящено большое число исследований: С.И. Билибина, Ю.Я. Большакова, П.А. Боронина, А.Ф. Гималтдинова, Л.Н. Дорогиницкой, Т.Ф. Дьяконовой, К.Е. Закревского, А.Н. Михайлова, С.Д. Пирсона, В.И. Петерсилье, Ф.З. Хафизова, А.М. Дубины, Т.Г. Исакова, Е.А. Юканова, И.С. Закирова, М.А. Грищенко и другие [1, 3, 4, 6–8, 10, 12, 13]. Учет особенностей геологического строения ПВНЗ позволяет повысить адекватность геологических моделей, а значит, и точность решения на их основе ряда важнейших задач: подсчета запасов, составления проектов разработки и обоснования геолого-технических мероприятий с целью повышения нефтеизвлечения.

Нефтяные залежи Западной Сибири большей частью сложены терригенными полимиктовыми породами-коллекторами с существенной неоднородностью по литологическому составу и по проницаемости, как по разрезу, так и по латерали. Толщина ПВНЗ таких залежей значимо изменяется и может достигать нескольких метров.

В зоне предельного нефтенасыщения коэффициент  $k_{\rm HH}$  достигает наибольших значений, а  $k_{\rm BO} = k_{\rm B}^*$ . В этой зоне имеет место равенство:

$$k_{\rm HH} = 1 - k_{\rm BO}.$$
 (1)

ОФП (относительные фазовые проницаемости) по нефти  $(k_{np.}^{H})$  в этой зоне наибольшая, для большинства месторождений ЗС она близка к единице, по воде  $(k_{np.}^{B})$  – равна нулю. Забегая вперед, отметим, что в этой зоне почти никогда не наблюдается зависимости  $k_{B}$  от высоты залежи ( $\Delta$ H), точечные диаграммы в координатах  $(k_{B}, \Delta H)$  характеризуются низкими значениями коэффициента детерминации, в этой зоне коэффициент остаточной водонасыщенности зависит только от пористости.

Общие закономерности изменения ОФП в зависимости от высоты над УСВ и характера насыщения показаны на рис. 2 [14]. Точка пересечения этих графиков  $k_{\rm B.}^{\rm rp}$ , как правило, изменятся в интервале 0,5–0,6 д. ед. Для гидрофобных пород-коллекторов она смещена влево, для гидрофильных – вправо.



**Рис. 2.** Общие закономерности изменения относительных фазовых проницаемостей по зонам с различным характером насыщения

Fig. 2. General patterns of changes in relative phase permeabilities in zones with different saturation patterns

 $\Pi BH3$  – зона двухфазной фильтрации флюидов, в которой ОФП по нефти и воде меньше единицы:  $k_{\rm np}^{\rm H} < 1$  и  $k_{\rm np}^{\rm B} < 1$  (рис. 2). Коэффициент водонасыщенности в ПВНЗ изменяется в пределах:  $k_{\rm B}^{**} > k_{\rm B} > k_{\rm B}^{**}$ , где  $k_{\rm B}^{**}$  – граничное значение  $k_{\rm B}$  на нижней границе переходной зоны,  $k_{\rm B}^{**}$  – граничное значение  $k_{\rm B}$  на верхней границе ПВНЗ (рис. 2).

Зона остаточной нефтенасыщенности характеризуется значениями  $k_{\rm B} > k_{\rm B}^{**}$ . Относительная фазовая проницаемость по воде  $(k_{\rm np.}^{\rm B})$  в этой зоне наибольшая, для большинства месторождений ЗС она близка к единице, а фазовая проницаемость  $k_{\rm np}^{\rm H}$  практически равна нулю. Другими словами, зона остаточного нефтенасыщения – зона однофазного течения (воды), нефтяная фаза в ней неподвижна.

В настоящее время в нефтяной геологии нет единого понимания ПВНЗ. Рядом авторов она понимается как область между УСВ и ВНК. Другими авторами, в том числе авторами статьи, ПВНЗ трактуется как объем нефтенасыщенного пласта, ограниченный снизу УСВ, на которой водонасыщенность ( $k_{\rm B}$ ) составляет 100 %, до поверхности, являющейся подошвой зоны предельной нефтенасыщенности, в которой  $k_{\rm HH}$  и  $k_{\rm B0}$  практически не изменяются при условии постоянства фильтрационно-емкостных свойств.

Ввиду указанной высокой значимости для решения задач нефтегазопромысловой геологии трехмерных моделей нефтенасыщения, с одной стороны, и объективных трудностей создания адекватных моделей К<sub>нн</sub>, с другой, имеется большое число работ, посвященных этой проблеме. Решение проблемы идет в двух направлениях. В работах одного направления обосновываются новые виды привлекаемой информации (априорной и косвенной), в других совершенствуются алгоритмы интерполяции и аппроксимации. Существенный вклад в развитие алгоритмической базы создания адекватных 3D моделей К<sub>нн</sub> внесли отечественные ученые: В.А. Бадьянов, С.И. Билибин, Ю.Я. Большаков, А.М. Волков, А.Ф. Гималтдинова, М.А. Грищенко, И.С. Гутман, Е. Ю. Большакова, А.А. Забоева, К.Е. Закревский, А.К. Кашик, Я.В. Кузнецова, Е.В. Ковалевский, А.В. Юрьев и др. [2–6, 12, 14–16], и иностранные – J. Jennings, S. Buckley, M. Leverett, A. Rassas, Xiang Li и др. [10, 17–25].

Моделирование нефтенасыщенности, как и моделирование любых других параметров, основано, прежде всего, на эмпирических данных. Моделируют не сам коэффициент начальной нефтенасыщенности, а  $k_{\rm B}$ . Обусловлено это тем, что значения  $k_{\rm B}$  точнее определяются по керну. Переход к 3D модели начальной нефтенасыщенности проводят по формуле, вытекающей из (1)

$$K_{HH} = 1 - K_B$$
.

# Анализ качества данных

Погрешности геологических измерений обусловлены большим количеством субъективных и объективных факторов. Их разделяют на систематические, случайные и грубые (промахи) погрешности. Из этого следует, что необходим анализ значений выборок для обоснования того, какая ситуация имеет место. В зависимости от вида погрешностей проводится дальнейший анализ данных. Например, если в результате анализа показано, что отклонение является следствием ошибки замера, то можно исключить замер из выборки или использовать его с меньшим весовым коэффициентом.

Эмпирические оценки  $k_{\rm во}$  и  $k_{\rm но}$  находятся по керновым данным и РИГИС. Точность оценок  $k_{\rm во}$  и  $k_{\rm но}$  по данным керна зависит от целого ряда факторов: характера насыщения интервала разреза, технологии извлечения образцов керна, состава и плотности буровых растворов и так далее. Наиболее точно  $k_{\rm во}$  оценивается по образцам керна из зоны предельного нефтенасыщения на герметизированных образцах сразу после извлечения из скважин, пробуренных на безводных буровых растворах. В зоне двухфазной фильтрации оценки  $k_{\rm во}$  осложнены значимой систематической погрешностью, так как часть свободной воды вытеснена фильтратом безводного бурового раствора. При использовании буровых растворов на водной основе более точно определяются значения  $k_{\rm но}$ .

Наиболее точные оценки  $k_{\rm BO}$  и  $k_{\rm HO}$  получают при бурении на основе нефильтрующейся промывочной жидкости и равновесии. Но в настоящее время в России такое бурение практически не производится.

Косвенные методы определения  $k_{\rm во}$  заключаются в моделировании процесса формирования углеводородной залежи с помощью центрифугирования или капиллярометрии [13]. При определении коэффициента нефтенасыщенности  $k_{\rm HH}$  по данным РИГИС  $k_{\rm HH}^{\rm TRC}$  основными методами являются электрическое сопротивление и/или электромагнитный каротаж. Метод работает только при наличии информации об удельном электрическом сопротивлении пласта  $(p_{\rm n})$  и пластовой воды  $(p_{\rm b})$  и петрофизических связей типа «керн–керн».

Точность определения  $k_{\rm HH}$  зависит и от строения разреза, в частности, от толщины пропластков пород-коллекторов. Если в разрезе в непосредственной бли-

зости от породы-коллектора присутствуют плотные породы, то значения каротажной диаграммы осложнены дополнительными помехами, завышающими значения сопротивлений на стыке с изучаемым пропластком. Влияние зашумления сопротивления особенно значимо при наличии пропластков породколлекторов толщиной менее 0,8 м, следовательно, значения  $k_{\rm HH}^{\rm гис}$  таких пропластков в расчетах лучше не использовать.

Кроме того, необходимо проконтролировать наличие аномально высоких значений  $k_{\rm HH}^{\rm гис}$  вблизи ВНК, что также может быть связано с высокой погрешностью диаграмм ГИС, обусловленной двухфазной насыщенностью этой зоны [14].

Обязательным этапом при формировании базы данных для решения задачи является анализ качества всех используемых данных. При выявлении систематических погрешностей следует оценить среднее значение погрешности и сделать корректировку данных.

Данные, используемые для построения модели насыщения, прежде всего, необходимо проанализировать на согласованность значений  $k_{\rm B}$ , определенных по образцам керна и по данным ГИС:  $k_{\rm B}^{\rm керн}$  и  $k_{\rm B}^{\rm гис}$  соответственно. Точки на диаграмме, построенной по этим данным, при приблизительно одинаковой их точности располагаются вдоль биссектрисы первого квадранта. Смещение прямой линии, аппроксимирующей точки ( $k_{\rm B}^{\rm керн}$ ,  $k_{\rm B}^{\rm гис}$ ) от биссектрисы, говорит о наличии систематических погрешностей, скорее всего в значениях  $K_{\rm B}^{\rm гис}$ . Величина смещения указанных линий и дает оценку систематической погрешности.

Согласованность данных  $k_{\rm B}^{\rm ruc}$  и  $k_{\rm B}^{\rm keph}$  можно провести еще другим способом. На точечную диаграмму с оценками  $k_{\rm n}$  и  $k_{\rm B}^{\rm ruc}$  по всем скважинам продуктивной и водонасыщенной частей разреза наносят зависимости  $k_{\rm Bo}(k_{\rm n})$  и  $k_{\rm B}^{*}(k_{\rm n})$  (рис. 3).



**Рис. 3.** Сопоставление  $k_s^{euc}$  с  $k_n^{euc}$ . Западно-Могутлорское месторождение, пласт  $IO_1$ . Зависимости  $k_{60}(k_n)$  и  $k_s^*(k_n)$  построены по керновым данным [13]

*Fig. 3.* Comparison of  $k_s^{\Gamma HC}$  with  $k_n^{\Gamma HC}$ . Zapadno-Mogutlorskoe depozit, layer  $J_1$ . The  $k_{go(k_n)}$  and  $k_g^*(k_n)$  dependences are constructed according to the core data [13]

Если основной массив точек, соответствующий породам-коллекторам с однофазной фильтрацией нефти (зона предельного нефтенасыщения), лежит в области  $k_{\rm B}*(k_{\rm n})>k_{\rm B}>k_{\rm BO}(k_{\rm n})$ , то оценки коэффициента нефтенасыщенности по РИГИС являются достоверными и подтвержденными керновыми данными [13].

# Обзор методов моделирования нефтенасыщенности

Согласно исходным данным, используемым при построении 3D модели К<sub>нн</sub>, все существующие в настоящее время методы делятся на две группы. Первая группа основана на использовании только результатов интерпретации ГИС – коэффициентов пористости и нефтенасыщенности в явном виде или в виде зависимостей, описывающих их совместную изменчивость. Вторая предполагает построение модели насыщенности по петрофизическим зависимостям, полученным по результатам лабораторных исследований керна. Существует ряд методов, основанных на данных РИГИС и керна. Ниже представлен обзор методов создания моделей К<sub>нн</sub> в порядке увеличения сложности, видов и объема исходной геологогеофизической и геолого-промысловой информации.

- Задание К<sub>нн</sub>=const для всех ячеек породколлекторов в области моделируемого объема. Методика практически не используется ввиду того, что она не позволяет изучать никакие неоднородности. Но на ранних стадиях разведки при очень малых объемах эмпирических данных, особенно керновых, нет другого варианта.
- Дискретная модель, заданная набором констант для каждой из обоснованных зон, например, зоны залежей (ЧНЗ, ВНЗ), фаций или литотипов. Область использования этого подхода аналогична предыдущему.
- Горизонтальная интерполяция значений k<sub>нн</sub> <sup>ГИС</sup> (коэффициент нефтенасыщенности, вычисленный по ГИС) методика также используется редко, поскольку не учитывает зависимость значений ко-эффициента k<sub>нн</sub> от ФЕС резервуара. Область использования аналогична предыдущим.
- 4. Стратиграфическая интерполяция значений k<sub>нн</sub><sup>гис</sup> дает результаты удовлетворительной точности только в случаях практически неизменяющихся значений k<sub>нн</sub> по разрезу пласта. С позиции КГК такие случаи наблюдаются в резервуарах, в которых ПВНЗ практически отсутствует.
- рых ПВНЗ практически отсутствует.
  5. Интерполяция значений k<sub>нн</sub><sup>гис</sup> на основе зависимости:

$$k_{\rm HH} = f(\Delta H_{\rm BHK(YCB)}), \qquad (2)$$

где  $\Delta H_{BHK(VCB)}$  – высота над уровнем ВНК (УСВ). Методика используется для построения К<sub>нн</sub> для залежей с выдержанными ПВНЗ. Так как залежей такого строения в Западной Сибири крайне мало, то и методика используется также нечасто.

6. Расчет значений k<sub>нн</sub> на основе формулы (2). В случае значимых невязок значений k<sub>нн</sub> <sup>ГИС</sup> и значений модели К<sub>нн</sub>, созданной по зависимости (2), выполняется стратиграфическая интерполяция значений k<sub>нн</sub> <sup>ГИС</sup> с использованием модели К<sub>нн</sub> как трендовой.

Этот подход используется, когда качество регрессионной зависимости (2) характеризуется достаточно высокими значениями коэффициентов корреляции и/или детерминации и не удается выявить более тесные зависимости от других геологических параметров.

 Вычисление значений коэффициента k<sub>нн</sub> для ячеек, сложенных породами-коллекторами, по зависимости:

$$k_{\rm HH} = f(k_{\rm H}). \tag{3}$$

Методика используется в случаях отсутствия зависимости (2), это, как правило, залежи предельной нефтенасыщенности.

8. Построение модели К<sub>нн</sub> на основе двумерной зависимости:

$$k_{\rm H_{\rm H}} = f(\Delta H_{\rm BHK(\rm YCB)}, k_{\rm II}). \tag{4}$$

Этот подход, как правило, дает адекватное описание ПВНЗ. Он используется для залежей неоднородного строения, в которых зона предельного нефтенасыщения незначительных размеров. В случае невыдержанности пород-коллекторов значения отметок ВНК значимо варьируют по латерали. В силу этого более адекватной получаются модели К<sub>нн</sub> при использовании зависимости (4) от УСВ.

- 9. Расчет значений k<sub>нн</sub> по зависимости (4) с последующей стратиграфической интерполяцией значений k<sub>нн</sub><sup>ГИС</sup>, которая выполняется в случае неудовлетворительных результатов сопоставления k<sub>нн</sub><sup>ГИС</sup> и значений трехмерной модели К<sub>нн</sub>, созданной на основе зависимости (4). Авторы указывают, что эта методика позволяет смоделировать строение переходной зоны в пластах, характеризующихся существенной анизотропией ФЕС [4, 8, 14].
- Интерполяция значений k<sub>нн</sub> с использованием четырехмерной зависимости k<sub>нн</sub>=f(k<sub>п</sub>, k<sub>пр</sub>, P<sub>κ</sub>, ΔH). Она применима для залежей со значимыми толщинами ПВНЗ. Зависимости ищутся в классах функций Бакли–Леверетта, Брукс–Кори, Томира, Скелт–Харрисона, Лямбда, Тиксье.

Проанализируем более детально ограничения приведенных методов. Первые три метода, из представленных, не учитывающие физические аспекты процесса нефтенасыщения (даже АГК), применяются на стадиях ранней разведки, в условиях недостатка геолого-геофизической информации, в первую очередь – исследований керна.

Остальные методы практически равнозначны с точки зрения применения физических основ, при условии их соответствия критериям применимости, а именно приуроченности объекта моделирования к той или иной зоне насыщения. Как правило, в этом случае выбор стоит между моделью переходной зоны и моделью предельного насыщения и может быть сделан только по результатам анализа представительной выборки результатов испытания скважин. Методы под номерами 4–10 требуют данных РИГИС и керновых данных. Очевидно, что чем больше параметров включено в проектную модель, тем больше данных необходимо для получения их оценок с приемлемой точностью.

Достаточность и качество исходных данных в этом случае можно оценить путем сопоставления между собой результатов моделирования, полученных с применением разных методик, с результатами испытания и работы скважин. В условиях представительности исходных данных должна наблюдаться хорошая сходимость, в случае если ее нет, необходимо выявить причины расхождения. Среди них могут быть:

- неопределённость в значениях минерализации пластовой воды, что приводит к существенной погрешности определения значений k<sub>нн</sub><sup>ГИС</sup>;
- вторичные изменения горных пород, слагающих объект исследования, которые могут привести к искажениям значений УЭС пластового флюида, и, как результат, – к погрешностям при определении k<sub>нн</sub><sup>ГИС</sup>;
- непредставительность выборки керновых данных, приводящая к тому, что интервал изменения ФЕС, определенных по результатам исследования керна, существенно меньше, чем по данным РИГИС. В этом случае экстраполяционные значения, определенные по зависимостям «КЕРН–ГИС», осложнены существенной погрешностью, особенно в областях минимальных и максимальных значений ФЕС;
- неопределенность положения УСВ оказывает существенное влияние на точность коэффициента нефтенасыщенности при его расчете по зависимости от капиллярного давления. Как правило, этот параметр подбирается итерационно;
- 5) некондиционные испытания скважин.

Все вышеперечисленные факторы приводят к высокой неопределенности при прогнозе значений коэффициента нефтенасыщенности в межскважинном пространстве.

Как показано во многих работах, на изменчивость  $k_{\rm HH}$  для многих месторождений Западно-Сибирского нефтегазоносного комплекса с позиции капиллярно-гравитационной концепции нефтегазонакопления существенное влияние оказывают следующие факторы: пористость, проницаемость, капиллярные силы и высота над УСВ. Вычисление аппроксимирующей функции от четырех переменных вида:

$$k_{\rm HH} = f(K_{\rm II}, K_{\rm IID}, P_{\rm K}, \Delta H) \tag{5}$$

связано с рядом вычислительных и информационных трудностей объективного характера, поэтому в практике геологического моделирования напрямую не применяется. Что касается информационных причин, они обусловлены отсутствием выборок нужного объема, а также их непредставительностью. Вычислительные сложности построения аппроксимирующей функции от четырех переменных, характеризующейся хотя бы средними значениями коэффициента детерминации (R<sup>2</sup>), связаны с отсутствием простых и достаточно быстрых алгоритмов решения такой задачи. Задачи такого рода решаются, как правило, методом полного перебора. Но, что еще важнее, методы аппроксимации требуют задания класса функции, из которого ищется аппроксимирующая зависимость, а для функции вида (5) они неизвестны.

В настоящее время по результатам анализа экспериментальных данных предложены семь классов функций. Наиболее широко пока используется J-функция Бакли–Леверетта [23, 24]. По мнению К.Е. Закревского и А.Ф. Гималтдиновой эффективный метод прогноза насыщенности в залежах, исходя из важной роли капиллярных сил в установлении КГР и движении пластовых жидкостей в пористых средах, основан на использовании ряда других зависимостей: Брукса–Кори [25, 26], Томира, Лямбда, и Скелт– Харрисона. Ниже приведены некоторые из этих функций, имеющие в настоящее время наиболее широкое распространение.

*J-функция Бакли–Леверетта* (1941) обобщает значения капиллярного давления по пробам с различными значениями пористости и проницаемости:

$$J = \frac{3,183P_{\rm k}\sqrt{\frac{K_{\rm np}}{K_{\rm n}}}}{\gamma\cos(\theta)},\tag{6}$$

где  $J - функция Бакли–Леверетта, д. ед.; <math>P_{\kappa}$  – капиллярное давление,  $10^5$  Па;  $k_{np}$  – коэффициент проницаемости,  $n \cdot 10^{-3}$  мкм<sup>2</sup>;  $k_n$  – коэффициент пористости, д. ед.;  $\gamma$  – поверхностное натяжение на поверхности углеводороды/пластовая вода, кг/см<sup>2</sup>;  $\theta$  – угол смачиваемости, град.

По вычисленным значениям функции (6) и по экспериментальным данным для каждой залежи находят одномерную регрессионную зависимость вида (3):  $k_{\rm B}(J)$ .

Несмотря на широкое распространение и использование *J*-функции Бакли–Леверетта для моделирования ПВНЗ, она имеет ограничения: в условиях изменчивой литологии часто наблюдается значимый разброс графиков  $k_{\rm B}(J)$  вокруг осредняющей линии, следствием чего являются дополнительные существенные погрешности, осложняющие значения  $k_{\rm B}$ . Это сужает область использования *J*-функции Бакли– Леверетта. В такой ситуации применяют более сложные, но в то же время более гибкие эмпирические модели, такие как Лямбда, Брукс–Кори и Томира.

Функция Брукс-Кори (1964) имеет вид:

$$k_{\rm B} = k_{\rm BO} + (1 - k_{\rm BO}) \left(\frac{P_{\rm K}^{\rm Hau}}{P_{\rm K}}\right)^{\frac{-1}{r}},$$
 (7)

где  $k_{\rm B0}$  – остаточная водонасыщенность (д. ед.) – верхняя точка по оси ординат капиллярного графика;  $P_{\rm K}$  – капиллярное давление;  $P_{\rm K}^{\rm Hav}$  – начальное капиллярное давление; г – радиус кривизны капиллярного графика.

В процессе настройки модели вычисляется ряд графиков вида (7) для каждого образца керна. Каждый график описывается функцией Брукс–Кори со своими значениями параметров  $k_{\rm BO}$ ,  $P_{\rm k}^{\rm Hau}$  и r (радиус кривизны капиллярного графика). Затем производится усреднение полученного набора графиков, чаще всего методом наименьших квадратов. Если разброс графиков большой, необходим анализ на выяснение причины этого обстоятельства. Значимый разброс может быть обусловлен двумя основными причинами: во-первых, низкой точностью замеров, во-вторых, высокой изменчивостью пород-коллекторов по параметрам, входящим в формулу (7).

Высота над УСВ по каждому графику вычисляется из выражения:

$$h = \frac{P_{\kappa}}{\Delta pg}, \qquad (8)$$

где h – высота над УСВ, м;  $\Delta p$  – разность плотностей воды и нефти, кг/м<sup>3</sup>; g – ускорение свободного падения ( $\approx 10 \text{ м/c}^2$ ).

Функция Томира имеет вид:

$$k_{\rm B} = k_{\rm B0} + (1 - k_{\rm B0})(1 - e^{\left(g/\ln\left(\frac{P_{\rm BBT}}{P_{\rm R}}\right)\right)}), \tag{9}$$

где  $P_{\rm выт}$  – давление вытеснения – это капиллярное давление, возникающее в момент, когда несмачивающий флюид соединяется через самые большие поры породы-коллектора и становится связным (до этого был рассеянным), это давление на уровне ВНК или ГНК.

В настоящее время пока нет строгих ограничений и более или менее обоснованных рекомендаций на использование той или иной капиллярной модели в конкретной геологической ситуации. Поэтому для получения наиболее точной модели следует проводить многовариантные расчеты с целью оценки погрешности каждого из существующих методов и обоснования наиболее точного. Как уже было отмечено ранее, единственный критерий, которым при этом можно руководствоваться, - это сходимость результатов, полученных разными методами. В противном случае, необходим анализ причин неадекватности моделей. Во-первых, это может быть обусловлено недостаточным объемом прямых замеров либо осложненностью их систематическими и/или грубыми помехами. Во-вторых, точность метода можно повысить привлечением дополнительной косвенной информации. Ну, и наконец, создание адекватной модели невозможно без пополнения набора алгоритмов новыми методами, эффективными в условиях уникальности как геологического строения изучаемых объектов, так и имеющихся наборов данных.

Для примера рассмотрим результаты, полученные Н.Н. Боженюк при изучении отложений верхней подсвиты викуловской свиты месторождения, расположенного в северной части Красноленинского нефтегазоносного района [27]. В верхней подсвите выделено два пласта – ВК<sub>1</sub> и ВК<sub>2</sub>, породы-коллекторы которых по литологическому составу классифицируются как отложения аллювиального генезиса. Породы представлены разнопорядко-ритмичным переслаиванием песчаников, алевролитов и глинистых разностей. По керновым данным выделяется большое число песчано-алевролитовых прослоев небольшой толщины, изменяющейся в диапазоне от 1–2 до 5 см. Доля глинистых и алевритоглинистых разностей довольно большая, она составляет 60–65 %. Высокая литологическая неоднородность и мелкозернистость породколлекторов обуславливает низкие ФЕС. Даже незначительное увеличение коэффициента глинистости приводит к заметному уменьшению  $k_n$  и  $k_{np}$ . По классификации А.А. Ханина пласты ВК<sub>1</sub> и ВК<sub>2</sub> сложены в подавляющем большинстве породами-коллекторами IV класса, доля пород-коллекторов III класса составляет менее 5 %.

В процессе создания трехмерной модели нефтенасыщенности капиллярные модели находились по следующим функциям:

- Бакли–Леверетта;
- Лямбда;
- Томира;
- Брукса-Кори;
- Скелт-Харрисона.

Расчет УСВ проведен на основе зависимости  $k_{\rm B}(P_{\rm K})$ для пород-коллекторов со всеми приведенными капиллярными моделями при различных значениях проницаемости. Анализ качества аппроксимации *k*<sub>в</sub>(*P*<sub>к</sub>) показал, что для рассматриваемых породколлекторов более точные оценки УСВ получены по зависимости Томира. Абсолютная погрешность по модели Томира (9) почти на 26 % меньше погрешности, которую дает функция Бакли-Леверетта. Построение 3D модели К<sub>нн</sub> проведено в два этапа. Вначале по капиллярной модели Томира с учетом 3D моделей пористости, проницаемости и К<sub>в</sub> вычислена трендовая 3D модель нефтенасыщенности К<sub>нн</sub><sup>тр</sup>. На втором шаге по данным РИГИС, оцененным методом «Арчи-Дахнова», с использованием тренда К<sub>нн</sub><sup>тр</sup> вычислена итоговая 3D модель нефтенасыщенности [27].

В заключение рассмотрим два алгоритма построения 3D моделей нефтенасыщенности.

I. Алгоритм построения 3D модели нефтенасыщенности с использованием классификации породколлекторов по пористости (дискретно-непрерывная модель).

Этот алгоритм основан на приближении двухмерной зависимости вида  $k_{\rm HH}=f(k_{\rm n}, \Delta H)$  рядом одномерных вида  $k_{\text{нн}}=f(\Delta H)$ . Этот подход позволяет создавать адекватные модели К<sub>нн</sub> для залежей с существенно изменяющимися ФЕС с гидрофильными породамиколлекторами, которые имеют незначительную по размерам зону предельной нефтенасыщенности. Создание двухмерной зависимости приемлемого качества указанного вида часто затруднено по объективным причинам: недостаточный объем выборки (особенно при значимых вариациях параметров  $k_{\rm HH}$  и  $k_{\rm n}$ ) и невозможность обосновать класс функций, в котором методами аппроксимации находится эта зависимость. Один из наиболее перспективных выходов из этой ситуации, по нашему мнению, состоит в создании нескольких более простых зависимостей  $k_{\rm HH} = f(\Delta H)$  для разных интервалов пористости. Разбиение размаха варьирования  $k_{\rm n}$  на несколько непересекающихся подинтервалов (отрезков) дает возможность работы с одномерными функциями меньшей изменчивости. При работе с одномерными функциями обоснованию выбора класса для функции  $k_{\rm HH}=f(k_{\rm II})$  помогают точечные диаграммы. Схема алгоритма имеет вид:

- создание дискретного параметра характера насыщенности – 3D модели, в которой каждая ячейка выше BHK имеет значение 1 (нефть), ниже – 0 (вода);
- 2) анализ изменчивости параметра k<sub>п</sub>. При большом размахе варьирования следует обосновать необ-ходимость деления его на несколько подинтервалов (классов). Например, при построении модели насыщенности для одного из месторождений ЗСНГБ интервал изменения пористости разбит на три класса (рис. 4): 12,0...14,0; 14,0...15,5; 15,5...17,0 %.
- 3) разбиение массива эмпирических значений (скважинных данных) k<sub>п</sub> на подмассивы проводится в соответствии с классификацией, принятой в пункте 2. Цвет точек нефтенасыщенности на диаграмме соответствует классу пористости (рис. 4). Из характера расположения точек видно, что точки разбиваются на три отдельных подмножества, правда, с некоторым перекрытием. Затем методом наименьших квадратов находятся зависимости

вида  $k_{\rm HH}=f(\Delta H)$  по исходным скважинным данным для каждого класса. Далее эти уравнения используются как одномерные тренды (косвенная информация).

- 4) создание модели нефтенасыщенности по регрессионным зависимостям, вычисленным в пункте 3, выполняется следующим образом: для каждой ячейки 3D модели К<sub>нн</sub> по модели К<sub>п</sub> находится соответствующее ей значение. По найденному значению k<sub>п</sub> определяется класс (в соответствии с классификацией пункта 2), и значение К<sub>нн</sub> вычисляется по соответствующему уравнению. На этом шаге надо обязательно использовать граничные значения К<sub>нн</sub> на гипсометрических уровнях поверхности ВНК и зоны предельной нефтенасыщенности. Это позволяет избежать больших погрешностей в зонах экстраполяции.
- создание итоговой модели К<sub>нн</sub>. При ее создании кроме прямых замеров в качестве трехмерного тренда следует использовать модель нефтенасыщенности, вычисленную на шаге 4.
- 6) оценка качества модели насыщенности.



**Рис. 4.** Эмпирические зависимости  $k_{\text{нн}}(\Delta H)$  при различных значениях пористости **Fig. 4.** Empirical dependences of  $k_{\text{нн}}(\Delta H)$  at different porosity values

II. Почти все алгоритмы построения 3D модели  $K_{во}$  с учетом переходной зоны предполагают горизонтальное строение УСВ. Ниже изложен алгоритм построения 3D модели  $K_{вo}$  с учетом переходной зоны, причем допускающий криволинейную форму УСВ. Алгоритм приведен на примере построения 3D модели нефтенасыщенности для пород-коллекторов пласта  $\text{ЮB}_1^{-1}$  месторождения «А» с использованием значений капиллярного давления. Косвенными данными по этой методике являются 3D модели  $K_n$  и  $K_{np}$ , данные  $P_{\kappa}$  и зависимости (6) [28]. *J*-функция, построенная по данным шестнадцати проб керна в восьми скважинах, приведена на рис. 5 [1].



**Рис. 5.** *J*-функция для пород-коллекторов пласта ЮВ<sub>1</sub><sup>1</sup> месторождения «А»

Терригенные полимиктовые породы-коллекторы пласта  $\text{IOB}_1^{\ 1}$  характеризуются высокой литологической неоднородностью и слабой согласованностью изменения значений  $k_{n}$  и  $k_{np}$ . Высокие значения  $k_{rn}$  и низкие  $k_{np}$  пород-коллекторов пласта  $\text{IOB}_1^{\ 1}$  предопределяют наличие существенной по размерам и достаточно сложной по геологическому строению, как по разрезу, так и по латерали, ПВНЗ [1, 4, 12]. Алгоритм построения модели нефтенасыщенности в приведенном примере с учетом геологического строения ПВНЗ имеет вид [1]:

- по капиллярометрическим керновым данным находят значения k<sub>во</sub> и P<sub>к</sub>, которые позволяют вычислить значения J-функции;
- 2) подстановкой значения  $k_{\rm B}^{\rm rp}$  на ВНК в формулу (6) рассчитывается значение *J*-функции, соответствующее уровню ВНК. По выражению для  $P_{\rm K}$  из формулы (6) строится 3D модель параметра  $P_{\rm K}$  от ВНК до УСВ. Положение УСВ соответствует значению  $P_{\rm K}$ =0;
- по формуле (8) рассчитываются расстояния от ВНК до УСВ и строится карта толщин этой зоны;
- после определения поверхности УСВ (подошвы ПВНЗ) рассчитывается 3D модель капиллярных давлений P<sub>к</sub> всей системы нефть-вода от УСВ до верхней границы залежи;
- по значениям капиллярного давления P<sub>к</sub> всей системы нефть-вода и ФЕС пород-коллекторов рассчитывается значения J-функции по формуле (6) для всех ячеек моделируемого пространства;
- б) по зависимости, обратной к *J=f*(K<sub>B</sub>), вычисляются значения трендового куба K<sub>B</sub><sup>тр</sup>;
- итоговая модель К<sub>в</sub> залежи пласта ЮВ<sub>1</sub><sup>1</sup> вычислена интерполированием замеренных значений водонасыщенности с использованием двух трендов: 3D модели К<sub>в</sub><sup>тр</sup> и Ј-функции Бакли–Леверетта (одномерный тренд).

Затем вычисляется итоговая трехмерная модель нефтенасыщенности по формуле:

Трехмерные модели К<sub>нн</sub> позволяют строить карты толщин ПВЗП и зон предельной нефтенасыщенности.

Карта толщин переходной зоны  $(h_{n_3})$  залежи пласта  $\text{IOB}_1^{-1}$  месторождения «А» характеризуется сложным геометрическим строением, она существенно неоднородна, на ней наблюдается тренд увеличения толщин от контура нефтеносности к зоне глинизации (рис. 6).

Карты пористости и толщин  $h_{\rm n3}$  залежи характеризуются обратной корреляционной зависимостью, что хорошо согласуется с геологическими закономерностями строения залежей с литологическими ограничениями и капиллярно-гравитационной концепцией нефтегазонакопления.

Детальное описание геологического строения залежи, получаемое по методам с учетом ПВНЗ, позволяет более достоверно оценить запасы по выявленным зонам: ПВНЗ и зоне предельной нефтенасыщенности. Это, несомненно, является важной информацией для обоснования стратегии нефтеизвлечения и, следовательно, повышения КИН.



**Рис. 6.** Карта толщин переходной водонефтяной зоны залежи пласта ЮВ<sub>1</sub><sup>1</sup> месторождения «А»

Fig. 6. Map of the thickness of the transition water-oil zone of the  $UV_1^{\ 1}$  formation of the «A» field

В случае наличия в объекте зон с существенно различными ФЕС и смачиваемостью породколлекторов имеет смысл строить модели К<sub>нн</sub> для каждой из зон, другими словами, построить ДНМ. Если зоны не связаны ни с литологическими замещениями, ни с гидродинамически непроницаемыми тектоническими нарушениями (в таких случаях моделируемые функции разрываются на границах), параметры ФЕС и капиллярное давление непрерывны. Модель же, построенная по отдельным зонам, как правило, не будет удовлетворять требованию непрерывности. С целью достижения этого условия необходимо создать модель по всему трехмерному геологическому объекту с использованием моделей по отдельным зонам как трендовых.

# Методы оценки качества трехмерных моделей

Оценка качества модели насыщения, как и любого другого этапа создания 3D ГМ, проводится по двум видам проверки – внутренней и внешней. Критерии оценки качества зависят от конечных целей моделирования, которые в грубом приближении можно разделить на три задачи: оценка начальных геологических запасов УВ, контроль и повышение эффективности разработки, проектирование и мониторинг бурения скважин.

Внутренняя проверка ГМ представляет собой анализ согласованности всех возможных составляющих компонент базы исходных данных, а также анализ отклонений модели от этих данных. В зависимости от целей создания ГМ он может включать такие виды анализа:

- сравнение средневзвешенных значений и оценок дисперсии нефтенасыщенности по скважинным данным и по 3D модели;
- построение точечной диаграммы значений k<sub>нн</sub> по скважинным данным и по 3D модели;
- сравнение гистограмм частот значений k<sub>нн</sub><sup>ГИС</sup> и 3D модели К<sub>нн</sub>;
- построение карты коэффициента нефтенасыщенности по 3D модели и сравнение ее с картой, вычисленной по значениям k<sub>нн</sub> в скважинах.

В зависимости от выбранной методики моделирования и количества скважинных данных допустимое расхождение по каждому из перечисленных выше критериев может существенно варьировать. Так, например, если реализована модель предельного насыщения, для объекта вскрытого плотной сеткой скважин расхождение по всем четырем критериям не должно превышать  $\pm 5$  %. В случае если реализована модель с переходной зоной на основе данных капиллярометрических исследований керна, а объект моделирования слабо охарактеризован скважинными данными, допустимо варьирование средневзвешенных значений в более широком диапазоне.

Внешняя оценка качества геологической модели основана, во-первых, на анализе согласия построенной модели с информацией, не используемой в вычислительном процессе. В первую очередь внешняя проверка основана на оценке сходимости результатов моделирования, которые в качестве исходных данных используют разные источники геолого-геофизической информации – керн и ГИС. Так, для модели переходной зоны с учетом капиллярометрических исследований керна оценивают сходимость значений k<sub>нн</sub> по модели и по данным РИГИС по формуле Арчи–Дахнова. Оценка проводится по первым трем критериям, описанным во внутренней оценке качества.

Сравнение средневзвешенных значений  $k_{\rm HH}$  по скважинам и по модели корректно проводить только в случае, если моделируемый объект характеризуется существенной выдержанностью по разрезу, средней толщиной пропластков коллектора более 1 м, низким коэффициентом расчлененности. Если объект моделирования удовлетворяет описанным выше критериям, то также проводят сопоставление значений  $k_{\rm HH}$  в интервале отдельных пропластков породколлекторов. В противном случае оценка проводится только путем сопоставления гистограмм частот параметра нефтенасыщенности и их статистических характеристик по скважинным данным и по 3D модели. Если наблюдается существенное расхождение между скважинными данными и моделью, необходимо провести оценку достоверности исходных данных, используемых для расчета  $k_{\rm HH}$  в обоих случаях. Основными источниками неопределенности при оценке  $k_{\rm HH}$ по данным ГИС по формуле Арчи-Дахнова являются величина минерализации пластовой воды и замеренные значения УЭС. При расчете  $k_{\rm HH}$  по данным капиллярометрических исследований керна наименее достоверно определяемым параметром является положение УСВ, однако такие факторы, как методика проведения лабораторных экспериментов и качество выборки образцов керна, также оказывают существенное влияние на конечный результат моделирования. Совокупная оценка качества всех перечисленных факторов позволит выбрать приоритетный подход к оценке  $k_{\text{нн}}$ . Для наименее достоверного подхода допустимо итерационное варьирование значений параметров, характеризующихся наибольшей неопределенностью, до достижения наилучшей сходимости расчётных значений  $k_{\rm HH}$  по двум методикам. В случае если для обоих подходов в оценке  $k_{\rm HH}$  большинство параметров, участвующих в расчётах, характеризуются примерно одинаковой степенью неопределенности, выбор проводится на основе сравнения с фактическими показателями разработки (четвертый критерий внешней проверки).

Во-вторых, внешняя проверка может быть осуществлена по вновь полученным фактическим данным, например, данным дебитов вновь пробуренных скважин. Несущественные отклонения новых данных от модели указывают на адекватность и хорошие прогностические свойства модели. Наиболее надежные выводы получаются в случае, когда вновь пробуренная скважина располагается на значительном удалении от скважин, по данным которых построена модель. В этом случае модель обладает надежными прогностическими свойствами не только в зоне интерполяции, но, что еще более важно, и в области экстраполяции.

В-третьих, если имеются результаты гидродинамического каротажа (ГДК) высокоточных глубинных манометров, следует сопоставить оценки УСВ по ГДК и по 3D модели. В случае несогласия этих значений предпочтение отдается инструментальным замерам. Трехмерная модель начальной нефтенасыщенности в этом случае нуждается в корректировке.

В-четвертых, для разрабатываемых месторождений модель должна находиться в согласии с технологическими параметрами. Как правило, это соответствие оценивается на этапе адаптации гидродинамической модели.

# Заключение

Рассмотрены методы описания начальной нефтенасыщенности в объеме трехмерного геологического объекта. Моделирование осуществляется как по наблюденным данным, полученным в ходе геологоразведочного процесса, так и по различным видам априорной и косвенной информации.

Намечены перспективы совместного использования геолого-геофизических, гидродинамических данных и результатов капиллярометрических исследований при решении таких задач, как выделение переходных зон и зон предельной нефтенасыщенности, связанных с представляющим интерес геологическими объектами (залежь, резервуар в случае его замещения или выклинивания, отложения клиноформенного комплекса и др.).

Дальнейшее развитие методов моделирования нефтенасыщенности (начальной, текущей) в ближайшее время, по нашему мнению, пойдет в трех направлениях:

- использование более широко методов дискретнонепрерывного моделирования [29];
- разработка новых видов априорной и косвенной информации;
- совершенствование методов интерполяции и аппроксимации [30];
- оценка неопределенности модели.

Как представляется на данном этапе, со временем станет возможным комплексирование методик каж-

дого из подходов в едином графе обработки, что заметно повысит ооавтоматизацию процесса создания трехмерных моделей и, следовательно, заметно расширит возможности многовариантных расчетов.

Изложенный в работе алгоритм моделирования с классификацией по пористости является, по сути, методом создания ДНМ. Область модели разбивается в этом конкретном примере на три части, далее в каждой из областей используются свои тренды.

Так как в зонах, сформировавшихся в разных фациальных обстановках или являющихся разными литотипами, вполне вероятно, значения нефтенасыщенности изменяются по разным зависимостям от геологических параметров, то и тренды, вычисленные по разным фациям или литотипам, будут более тесные по сравнению с трендом по всей области моделирования, что означает их более высокую информативность.

Что касается второго направления, в настоящее время заметно увеличивается точность инструментальных замеров, и, что еще более важно, растет и число замеряемых физических параметров. Наиболее показательными в этом плане являются методы высокоточной трехмерной сейсморазведки и сейсмическо-

# СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Антипин Я.О., Белкина В.А. Моделирование нефтенасыщенности залежей с учётом переходной водонефтяной зоны на примере месторождения А // Территория нефтегаз. – 2016. – № 5. – С. 22–29.
- Билибин С.И. Технология создания и сопровождения трехмерных цифровых геологических моделей нефтегазовых месторождений: автореф. дис. ... д-ра техн. наук. – М., 2010. – 45 с.
- Большаков Ю.Я. Нетрадиционные капиллярно-экранированные залежи нефти и газа в терригенных коллекторах, условия их формирования и возможности поисков: автореф. дис. ... д-ра геол.-минерал. наук. – Новосибирск, 1987. – 32 с.
- Грищенко М.А. Современные подходы к моделированию нефтенасыщенности сложнопостроенных залежей с целью создания гидродинамических моделей // Геология нефти и газа. – 2008. – № 5. – С. 75–80.
- Новые технологии при построении цифровых геологических моделей месторождений углеводородов / А.С. Кашик, С.И. Билибин, Г.Н. Гогоненков, С.А. Кирилов // Технологии ТЭК. – 2003. – № 3. – С. 12–17.
- Кузнецова Я.В. Моделирование нефтенасыщенности пластов, залегающих под нефтематеринскими породами (на примере верхнеюрских отложений Западной Сибири): дис. ... канд. геол.-минерал. наук. – Тюмень, 2016. – 163 с.
- Михайлов А.Н. Основные представления о переходных зонах и водяных контактах в неоднородных пластах// Георесурсы. Геоэнергетика. Геополитика. – 2012. – № 1 (5). – С. 150–160.
- Проблемы обоснования водонефтяного контакта по материалам геофизических исследований скважин при построении детальных геологических моделей / Т.Ф. Дьяконова, С.И. Билибин, А.М. Дубина и др. // Каротажник. – 2004. – № 3–4. – С. 83–97.
- Ахметова З.Р. Структуризация остаточной нефтенасыщенности для обоснования технологии доизвлечения нефти: автореф. дис. ... канд. техн. наук. – М., 2016. – 24 с.
- Jennings J.B. Capillary pressure techniques application to exploration and development geology // The American Association of Petroleum Geologist Bulletin. – 1987. – V. 71. – P. 1196–1209.
- Пестов В.В., Москаленко И.В., Александров Б.Л. Определение начальной нефтенасыщенности терригенных коллекторов миоцен-олигоцена Западного Предкавказья на основе капилляриметрических исследований керна // Нефтяное хозяйство. – 2014. – № 11. – С. 28–30.

го зондирования. В последние 3–5 лет активно ведутся работы по созданию трехмерных цифровых моделей керна. Это позволит обосновать новые виды косвенной информации (тренды), а также строить тренды с более высокими прогностическими свойствами.

Третье направление развития методов моделирования связано с совершенствованием методов интерполяции и аппроксимации. В настоящее время с нашей точки зрения наиболее перспективными алгоритмами являются методы нейронных сетей и геостатистики.

В связи с уникальностью каждого геологического объекта и используемых наборов данных решение задачи моделирования с достаточной точностью невозможно без широкого круга различных методов, алгоритмов и подходов. Множество рассмотренных в работе геологических ситуаций разнообразно, но оно не охватывает все проблемы моделирования насыщенности в целом. Остался незатронутым целый ряд проблем моделирования важнейшего геологического параметра – коэффициента нефтенасыщенности, который нельзя свести к решению одной из рассмотренных задач. Это не значит, что не существует приближенных методов их решения, но пока они не найдены.

- Большакова Е.Ю. Моделирование нефтяных и газовых залежей на основе капиллярно-гравитационной концепции нефтегазонакопления с целью повышения эффективности их разведки и разработки (на примере месторождений Западной Сибири): дис. ... канд. геол.-минерал. наук. Тюмень, 2006. 200 с.
- К вопросу оценки параметров переходной зоны с использованием кривых капиллярного давления: совершенствование методики разведки нефтяных и газовых месторождений / В.И. Петерсилье, Ю.Я. Белов, М.Ф. Веселов и др. // Труды ВНИГНИ. М.: Недра, 1982. Вып. 242. С. 63–70.
- Закревский К.Е. Геологическое 3D моделирование. М.: ООО «ИПЦ Маска», 2009. – 376 с.
- Забоева А.А. Разработка методик трехмерного геомоделирования в условиях неоднородности и неравномерности геолого-геофизической информации (на примере месторождений Западной Сибири): дис. ... канд. геол.-минерал. наук. – Тюмень, 2012. – 167 с.
- 16. Юрьев А.В. Совершенствование методов определения фильтрационно-емкостных свойств пород-коллекторов с применением полноразмерного керна (на примере ряда месторождений севера Тимано-Печорской нефтегазоносной провинции): дис. ... канд. техн. наук. – Пермь, 2019. – 122 с.
- Application of 3D reservoir geological model on Es1 formation, Block Nv32, Shenvsi Oilfield, China / A. Rassas, S. Ren, R. Sun, A. Zafar, S. Moharam, Z. Guan, A. Ahmed, M. Alomaisi // Open Journal of Yangtze Oil and Gas. – 2020. – V. 5. – № 2. – P. 54–72.
- Xiang Li. Three-dimensional geological modeling methods and applications – a Gold Belt Oilfield // 3rd International Conference on Management, Education, Information and Control (MEICI). – Jinan, China, 2015. – P. 3–10.
- Дойч К.В. Геостатистическое моделирование коллекторов. М.; Ижевск: Институт компьютерных исследований, 2011. – 400 с.
- Gao Xingjun. Applied research of NMR movable fluid saturation in development of low permeability oilfield // E3S Web of Conferences Innovative Technologies in Science and Education. – 2020. – V 210. – P. 1–7.
- Kuiqian Ma. Techniques for improving the water-flooding of oil fields during the high water-cut stage // Oil & Gas Science and Technology – Rev. IFP Energies Nouvelles. – 2019. – V. 74. – P. 1–12.
- 22. An improved method for quantifying liquid saturation using transparent soil / Juan Wang, Wei Liu, Wenwu Chen, Xuebin Ran,

Yanfang Zhang, Gaochao Lin // Advances in civil engineering. – 2019.-V. 1. – P. 1–11.

- Buckley S.E., Leverett M.C. Mechanism of fluid displacement in sands // Transactions of the American Institute of Mining, Metallurgical and Petroleum Engineers. - 1942. - V. 146. -P. 107-116.
- 24. Leverett M.C. Capillary behavior in porous solids // Transactions of the American Institute of Mining, Metallurgical and Petroleum Engineers. 1941. V. 142. P. 148-152.
- Li Kewen. Theoretical development of the brooks-corey capillary pressure model from fractal modeling of porous media // Symposium on Improved Oil Recovery. – Tulsa, Oklahoma, 17–21 April, 2004. – P. 3–9.
- Akhmetov R.T., Kuleshova L.S., Mukhametshin V.V. Application of the Brooks–Corey model in the conditions of lower cretaceous deposits in terrigenous reservoirs of Western Siberia // IOP Conference Series: Materials Science and Engineering. – 2018. – V. 560. – P. 4–12.
- Боженюк Н.Н. Методы адаптации и снижения и неопределенностей при геолого-гидродинамическом моделировании терригенных коллекторов на примере ряда месторождений Западной Сибири: дис.... канд. геол.-минерал. наук. Тюмень, 2018. 172 с.
- Elshahawi H., Fathy K., Hiekal S. Capillary pressure and rock wettability effects on wireline formation tester measurements // IEOC 567121999 SPE Annual Technical Conference and Exhibition. – Houston, Texas, 1999. – P. 1–16.
- 29. Санькова Н.В., Дорошенко А.А., Белкина В.А. Дискретнонепрерывные модели в задаче прогноза флюидодинамических характеристик коллекторов // Наука и ТЭК. – 2012. – № 3. – С. 44–47.
- Tikhomirova E.A., Sagirova L.R., Khaibullina K.Sh. A review on methods of oil saturation modelling using IRAP RMS // IOP Conf. Series: Earth and Environmental Science. – 2019. – V. 378. – P. 1–6.

Поступила 25.08.2021 г.

# Информация об авторах

*Белкина В.А.*, кандидат физико-математических наук, доцент кафедры геологии месторождений нефти и газа Института геологии и нефтегазодобычи Тюменского индустриального университета.

*Антипин Я.О.*, соискатель ученой степени кандидата геолого-минералогических наук Института геологии и нефтегазодобычи Тюменского индустриального университета.

Забоева А.А., кандидат геолого-минералогических наук, доцент кафедры геологии месторождений нефти и газа Института геологии и нефтегазодобычи Тюменского индустриального университета.

UDC 553.98.048-047.58

# BUILDING THREE-DIMENSIONAL MODELS OF OIL SATURATION. MAIN PROBLEMS AND APPROACHES TO THEIR SOLUTION

Valentina A. Belkina<sup>1</sup>,

belkinava@tyuiu.ru

# Yaroslav O. Antipin<sup>1</sup>,

0000-9015@rambler.ru

# Alexandra A. Zaboeva<sup>1</sup>,

Alexandra.zaboeva@gmail.com

<sup>1</sup> Tyumen Industrial University,

38, Volodarsky street, Tyumen, 625000, Russia.

**The relevance** of the analysis of methods for constructing three-dimensional models of initial oil saturation is caused by their wide use in solving the most important problems of oil and gas field geology: calculating reserves, designing and managing development, etc. The accuracy of solving these problems directly determines the efficiency of hydrocarbon extraction.

The goal is to analyze the current state of the algorithmic base of three-dimensional modeling of oil saturation, to identify the main problems and the most promising areas of development.

Interpolation methods: deterministic and stochastic. For different geological situation, these methods can be modified by using indirect and apriori information. Possible types and methods of using indirect information for various geological situations.

**Results.** The main possibilities of improving the accuracy of three-dimensional models of oil saturation are identified. The methods of checking the quality of the initial data and the adequacy of the constructed models are classified. Specific algorithms for creating models for two most promising areas of development of the algorithmic base for three-dimensional oil saturation modeling are presented.

#### Key words:

Initial oil saturation, three-dimensional model, transition oil-water zone, modeling methods, indirect information, capillary forces.

#### REFERENCES

- Antipin Ya.O., Belkina V.A. Modeling of oil saturation of deposits taking into account the transition water-oil zone on the example of A field. *Territoriya neftegaz*, 2016, no. 5, pp. 22–29. In Rus.
- Bilibin S.I. Tekhnologiya sozdaniya i soprovozhdeniya trexmernykh tsifrovykh geologicheskikh modeley neftegazovykh mestorozhdeniy. Avtoreferat Dis. Dokt. nauk [Technology for creating and maintaining three-dimensional digital geological models of oil and gas fields. Dr. Diss. Abstract]. Moscow, 2010. 45 p.
- Bolshakov Yu.Ya. Netraditsionnye kapillyarno-ekranirovannye zalezhi nefti i gaza v terrigennykh kollektorakh, usloviya ikh formirovaniya i vozmozhnosti poiskov. Avtoreferat Dis. Dokt. nauk [Non-traditional capillary-shielded deposits of oil and gas in sandstone reservoirs, the conditions of their formation and the possibility of seeking. Dr. Diss. Abstract]. Novosibirsk, 1987. 32 p.
- 4. Grishhenko M.A. Modern approaches to modeling the oil saturation of complex deposits in order to create hydrodynamic models. *Geologiya nefti i gaza*, 2008, no. 5, pp. 75–80. In Rus.
- Kashik A. S., Bilibin S. I., Gogonenkov G. N., Kirilov S. A. Novye tekhnologii pri postroenii tsifrovykh geologicheskikh modeley mestorozhdeniy uglevodorodov [New technologies in the construction of digital geological models of hydrocarbon deposits]. *Tekhnologii TEK*, 2003, no. 3, pp. 12–17.
- Kuzneczova Ya.V. Modelirovanie neftenasyshchennosti plastov, zalegayushchikh pod neftematerinskimi porodami (na primere verkhneyurskikh otlozheniy Zapadnoy Sibiri). Dis. Kand. nauk [Modeling of oil saturation of the layers lying under the oil source rocks (on the example of the Upper Jurassic deposits of Western Siberia). Cand. Diss.]. Tyumen, 2016. 163 p.
- Mikhaylov A.N. Basic concepts of transition zones and water contacts in heterogeneous formations. *Georesursy. Geoenergetika*. *Geopolitika*, 2012, no. 1 (5), pp. 150–160.In Rus.
- Dyakonova T.F., Bilibin S.I., Dubina A.M. Problemy obosnovaniya vodoneftyanogo kontakta po materialam geofizicheskikh issledovaniy skvazhin pri postroenii detalnykh geologicheskikh modeley [Problems of substantiation of water-oil contact based on the materials of geophysical studies of wells in the construction of detailed geological models]. *Karotazhnik*, 2004, no. 3–4, pp. 83–97.

- Akhmetova Z.R. Strukturizatsiya ostatochnoy neftenasyshchennosti dlya obosnovaniya tekhnologii doizvlecheniya nefti. Avtoreferat Dis. Kand. nauk [Structuring of residual oil saturation to justify the technology of oil recovery. Cand. Diss. Abstract]. Moscow, 2016. 24 p.
- Jennings J.B. Capillary pressure techniques application to exploration and development geology. *The American Association of Petroleum Geologist Bulletin*, 1987, vol. 71, pp. 1196–1209.
- Pestov V.V., Moskalenko I.V., Aleksandrov B.L. Determination of the initial oil saturation of terrigenous reservoirs of the Miocene-Oligocene of the Western Ciscaucasia on the basis of capillarimetric core studies. *Neftyanoe khozyaystvo*, 2014, no. 11, pp. 28–30. In Rus.
- 12. Bolshakova E.Yu. Modelirovanie neftyanykh i gazovykh zalezhey na osnove kapillyarno-gravitatsionnoy kontseptsii neftegazonakopleniya s tselyu povysheniya effektivnosti ikh razvedki i razrabotki (na primere mestorozhdeniy Zapadnoy Sibiri). Dis. Kand. nauk [Modeling of oil and gas deposits based on the capillary-gravity concept of oil and gas accumulation in order to increase the efficiency of their exploration and development (on the example of fields in Western Siberia). Cand. Diss.]. Tyumen, 2006. 200 p.
- 13. Petersile V.I. K voprosu otsenki parametrov perekhodnoy zony s ispolzovaniem krivykh kapillyarnogo davleniya: sovershenstvovanie metodiki razvedki neftyanykh i gazovykh mestorozhdeniy [On the issue of estimating the parameters of the transition zone using capillary pressure curves: improving the methodology of oil and gas field exploration]. *Trudy VNIGNI*, 1982, no. 242, pp. 63–70.
- Zakrevskiy K.E. *Geologicheskoe 3D modelirovanie* [Geological 3D modeling]. Moscow, OOO «IPCz Maska», 2009. 376 p.
- 15. Zaboeva A.A. Razrabotka metodik trekhmernogo geomodelirovaniya v usloviyakh neodnorodnosti i neravnomernosti geologogeofizicheskoy informatsii (na primere mestorozhdeniy Zapadnoy Sibiri). Dis. Kand. nauk [Development of methods for three-dimensional geomodeling in conditions of heterogeneity and non-uniformity of geological and geophysical information (on the example of deposits in Western Siberia). Cand. Diss.]. Tyumen, 2012. 167 p.
- Yurev A.V. Sovershenstvovanie metodov opredeleniya filtratsionno-emkostnykh svoystv porod-kollektorov s primeneniem polnorazmernogo kerna (na primere ryada mestorozhdeniy severa Tima-

*no-Pechorskoy neftegazonosnoy provintsii)*. Dis. Kand. nauk [Improvement of methods for determining the filtration and reservoir properties of reservoir rocks using a full-size core (on the example of a number of fields in the north of the Timan-Pechora oil and gas province). Cand. Diss.]. Perm, 2019. 122 p.

- Rassas A., Ren S., Sun R., Zafar A., Moharam S., Guan Z., Ahmed A., Alomaisi M. Application of 3D reservoir geological model on Es1 formation, Block Nv32, Shenvsi Oilfield, China. *Open Journal of Yangtze Oil and Gas*, 2020, vol. 5, no. 2, pp. 54–72.
- Xiang Li. Three-dimensional geological modeling methods and applications – a gold belt oilfield. 3<sup>rd</sup> International Conference on Management, Education, Information and Control (MEICI). Jinan, China, 2015. pp. 3–10.
- Doych K.V. Geostatisticheskoe modelirovanie kollektorov [Geostatistical modeling of reservoirs]. Moscow, Izhevsk, Computer research Institute Publ., 2011. 400 p.
- Gao Xingjun. Applied research of NMR movable fluid saturation in development of low permeability oilfield. E3S Web of Conferences 165, 01001, 2020, pp. 1–7.
- Kuiqian Ma. Techniques for improving the water-flooding of oil fields during the high water-cut stage. Oil & Gas Science and Technology – Rev. IFP Energies Nouvelles, 2019, vol. 74, pp. 1–12.
- Juan Wang, Wei Liu, Wenwu Chen, Xuebin Ran, Yanfang Zhang, Gaochao Lin. An improved method for quantifying liquid saturation using transparent soil. *Advances in civil engineering*, 2019, vol. 1, pp. 1–11.
- Buckley S.E., Leverett M.C. Mechanism of fluid displacement in sands. *Transactions of The American Institute of Mining, Metallurgical and Petroleum Engineers*, 1942, vol. 146, pp. 107–116.
- Leverett M.C. Capillary behavior in porous solids. *Transactions of the American Institute of Mining, Metallurgical and Petroleum Engineers*, 1941, vol. 142, pp. 148–152.

- Li Kewen. Theoretical development of the brooks-corey capillary pressure model from fractal modeling of porous media. *Symposium on Improved Oil Recovery*, Tulsa, Oklahoma, 17–21 April, 2004. pp. 3–9.
- Akhmetov R.T., Kuleshova L.S., Mukhametshin V.V. Application of the Brooks–Corey model in the conditions of lower cretaceous deposits in terrigenous reservoirs of Western Siberia. *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering*, 2018, vol. 560, pp. 4–12.
- 27. Bozhenyuk N.N. Metody adaptatsii i snizheniya i neopredelennostey pri geologo-gidrodinamicheskom modelirovanii terrigennykh kollektorov na primere ryada mestorozhdeniy Zapadnoy Sibiri. Dis. Kand. nauk [Methods of adaptation and reduction of uncertainties in geological and hydrodynamic modeling of terrigenous reservoirs on the example of a number of fields in Western Siberia. Cand. Diss.]. Tyumen, 2018. 172 p.
- Elshahawi H., Fathy K., Hiekal S. Capillary pressure and rock wettability effects on wireline formation tester measurements. *IEOC 567121999 SPE Annual Technical Conference and Exhibition*. Houston, Texas, 1999. pp. 1–16.
- Sankova N.V., Doroshenko A.A., Belkina V.A. Discretecontinuous models in the problem of forecasting fluid-dynamic characteristics of reservoirs. *Nauka i TEK*, 2012, no. 3, pp. 44–47. In Rus.
- Tikhomirova E.A., SagirovaL.R., Khaibullina K.Sh. A review on methods of oil saturation modelling using IRAP RMS. *IOP Conf. Series: Earth and Environmental Science*, 2019, vol. 378, pp. 1–6.

Received: 25 August 2021.

#### Inaormation about the authors

Valentina A. Belkina, Cand. Sc., associate professor, Tyumen Industrial University.

Yaroslav O. Antipin, applicant Cand. Sc., Tyumen Industrial University.

Alexandra A. Zaboeva, Cand. Sc., associate professor, Tyumen Industrial University.

Компьютерная верстка О.Ю. Аршинова Корректура и перевод на английский язык С.В. Жаркова Дизайн обложки Т.В. Буланова

Фотографии на обложке взяты из личного архива Валерия Касаткина

Руководство для авторов и образец оформления статьи: izvestiya.tpu.ru

Дата выхода 30.09.2021. Формат 60х84/8. Бумага «Снегурочка». Печать XEROX. Усл. печ. л. 27,68. Уч.-изд. л. 25,04. Заказ 180-21. Тираж 500 экз. Цена 1020 руб.



Адрес учредителя, редакции, издателя, типографии: 634050, г. Томск, пр. Ленина, 30.