

**ИЗВЕСТИЯ
ТОМСКОГО ПОЛИТЕХНИЧЕСКОГО УНИВЕРСИТЕТА
ИНЖИНИРИНГ ГЕОРЕСУРСОВ**

Том 333, № 8, 2022

РЕДАКЦИОННАЯ КОЛЛЕГИЯ

Семилетов И.П., гл. редактор, д-р геогр. наук (Россия)
Остальд Р.В., канд. хим. наук (Россия)
Савичев О.Г., д-р геогр. наук (Россия)
Покровский О.С., канд. геол.-минерал. наук (Франция)
Старостенко В.И., д-р физ.-мат. наук (Украина)
Контарович А.Э., д-р геол.-минерал. наук (Россия)
Белозеров В.Б., д-р геол.-минерал. наук (Россия)
Никитенков Н.Н., д-р физ.-мат. наук (Россия)
Силкин В.М., д-р физ.-мат. наук (Испания)
Коротеев Ю.М., д-р физ.-мат. наук (Россия)
Уленев О.Н., д-р физ.-мат. наук (Россия)
Борисов А.М., д-р физ.-мат. наук (Россия)
Коршунов А.В., д-р хим. наук (Россия)
Пестряков А.Н., д-р хим. наук (Россия)
Тойпель У., Dsc (Германия)
Джин-Чун Ким, Dsc (Южная Корея)
Заворин А.С., д-р техн. наук (Россия)
Ханьялич К., Dsc (Нидерланды)
Маркович Д.М., д-р физ.-мат. наук (Россия)
Алексеев С.В., д-р физ.-мат. наук (Россия)
Воропай Н.И., д-р техн. наук (Россия)
Кочегуров А.И., канд. техн. наук (Россия)
Руи Д., PhD (Португалия)
Зиатдинов Р.А., канд. физ.-мат. наук (Южная Корея)
Спицын В.Г., д-р техн. наук (Россия)
Муравьев С.В., д-р техн. наук (Россия)
Пойлов В.З., д-р техн. наук (Россия)
Лотов В.А., д-р техн. наук (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)
Зюев А.М., д-р техн. 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)
Кириянова Л.Г., канд. филос. наук (Россия)
Строкова Л.А., д-р геол.-минерал. наук (Россия)
Мазуров А.К., д-р геол.-минерал. наук (Россия)
Боярко Г.Ю., д-р экон. наук, канд. геол.-минерал. наук (Россия)
Стрижак П.А., д-р физ.-мат. наук (Россия)
Глазырин А.С., выпуск. редактор, д-р техн. 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, 2022

УВАЖАЕМЫЕ ЧИТАТЕЛИ!

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

Учредителем является Томский политехнический университет.

Журнал зарегистрирован Министерством Российской Федерации по делам печати, телерадиовещания и средств массовых коммуникаций – Свидетельство ПИ № ФС 77-65008 от 04.03.2016 г.

ISSN (print) – 2500-1019
ISSN (on_line) – 2413-1830

«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

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

**BULLETIN
OF THE TOMSK POLYTECHNIC UNIVERSITY
GEO ASSETS ENGINEERING**

Volume 333, № 8, 2022

EDITORIAL BOARD

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

AIMS AND SCOPE

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 RF Ministry of Press, Broadcasting and Mass Communicationss).

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.

СОДЕРЖАНИЕ

CONTENTS

- Исследование теплоотдачи от насыщенного влажного воздуха к вертикальной стенке теплообменника при конденсации водяных паров**
Беспалов В.В., Туболев А.А., Галашов Н.Н.
- Минералогия и геохимия тонштейна из угольного пласта Новый-1А Харанорского месторождения (Забайкальский край)**
Вергунов А.В., Арбузов С.И., Соктоев Б.Р., Ильенок С.С., Чекрыжов И.Ю.
- Validation of semi-empirical temperature model of PEMFC using atom search optimization algorithm**
Amine Abbou, Abdennebi El Hassnaouib
- Определение типов связей кремния с функциональными группами в структурах органических веществ растительного происхождения с помощью метода диффузного отражения инфракрасной спектроскопии**
Иванов В.П., Дмитриенко А.А.
- Геохимия и формирование химического состава природных вод на территории Тутуянской площади (Кемеровская область)**
Домрочева Е.В.
- Структурные, геофизические и геохимические критерии эпitherмального кислотно-сульфатного золотого оруденения на примере рудного поля Светлое (Хабаровский край)**
Лесняк Д.В., Ананьев Ю.С., Гаврилов Р.Ю.
- Моделирование движения жидкостей в процессе эксплуатации скважинного фонда на месторождениях урана, обрабатываемых методом ПСВ**
Бейсекеев Е.Ш., Язиков Е.Г.
- Особенности определения анизотропных параметров по результатам трассерных исследований пласта Ю₁¹ на примере нефтяного месторождения**
Коровин М.О.
- Оптимизация реологических свойств бурового раствора, интенсифицирующих транспорт и очистку горизонтальных скважин от шламов**
Харламов С.Н., Джанхорбани М.
- Повышение эффективности эксплуатации скважин с помощью инструментов интегрированного моделирования**
Жигалов Д.Н., Поплыгин В.В.
- Утилизация бывших в употреблении труб холодной прокаткой**
Томило В.А., Пилипенко С.В., Дудан А.В.
- Оценка состояния приземного атмосферного воздуха в юго-западном Крыму по данным лишеноиндикации**
Каширина Е.С., Медведков А.А., Новиков А.А.
- Геоэкологическая оценка состояния поверхностных вод Авзянского золоторудного района Республики Башкортостан**
Казбулатова Г.М., Мичурин С.В., Карамова А.М.
- Технология переработки отходов целлюлозно-бумажной промышленности в почвогрунты с использованием естественных природных процессов**
Шатрова А.С., Богданов А.В., Шкрабо А.И., Алексеева О.В.
- Нейросетевое прогнозирование реологических параметров бурового раствора**
Третьяк А.Я., Кузнецова А.В., Борисов К.А., Карельская Е.В.
- Исследование температурного поля в скважине переменного диаметра после промывки**
Акчурин Р.З., Рюков Р.И., Вахитова Г.Р., Рамазанов А.Ш.
- 7 Investigation of heat transfer from saturated moist air to the vertical wall of a heat exchanger with water vapor condensation**
Bespalov V.V., Tubolev A.A., Galashov N.N.
- 15 Mineralogy and geochemistry of tonstein from coal seam Novy-1a, Kharanor deposit (Zabaykalsky krai)**
Vergunov A.V., Arbuzov S.I., Soktoev B.R., Ilenok S.S., Chekryzhov I.Yu.
- 27 Проверка полуэмпирической температурной модели ТЭПОМ с использованием алгоритма оптимизации поиска атомов**
Амин Аббу, Абденнеби Эль Хаснауиб
- 36 Determination of the types of silicon bonds with functional groups in the structures of organic substances of plant origin using the diffuse reflection method of infrared spectroscopy**
Ivanov V.P., Dmitrienko A.A.
- 46 Geochemistry and formation of the chemical composition of natural waters on the territory of Tutuyasskaya area (Kemerovo region)**
Domrocheva E.V.
- 60 Structural, geophysical and geochemical criteria for epithermal high-sulfidation gold mineralization on the example of Svetloe ore field (Khabarovskiy Kray)**
Lesnyak D.V., Ananyev Yu.S., Gavrilov R.Yu.
- 73 Simulation of liquid movement while well fund operation in uranium deposits produced by ISL method**
Beisekeyev Y.Sh., Yazikov E.G.
- 85 Features of determining anisotropic parameters from the results of tracer studies of J₁¹ formation on the example of oil field**
Korovin M.O.
- 91 Optimization of rheological properties of drilling mud intensifying transportation and cleaning of horizontal wells from cuttings**
Kharlamov S.N., Janhorbani M.
- 109 Increasing well performance efficiency using integrated simulation tools**
Zhigalov D.N., Poplygin V.V.
- 118 Cold rolling of used pipes**
Tomilo V.A., Pilipenko S.V., Dudan A.V.
- 126 Assessment of the surface atmospheric air state in the southwestern Crimea according to lichenoinfication data**
Kashirina E.S., Medvedkov A.A., Novikov A.A.
- 139 Geoecological assessment of the condition of surface waters of Avzyan gold region in the Republic of Bashkortostan**
Kazbulatova G.M., Michurin S.V., Karamova A.M.
- 153 Technology for processing waste of the pulp and paper industry into soil ground using natural processes**
Shatrova A.S., Bogdanov A.V., Shkrabo A.I., Alekseeva O.V.
- 163 Neural network forecasting of drilling mud rheological parameters**
Tretyak A.Ya., Kuznetsova A.V., Borisov K.A., Karelskaya E.V.
- 174 Investigation of the temperature field in a well with the variable diameter after circulation**
Akchurin R.Z., Ryukov R.I., Vakhitova G.R., Ramazanov A.Sh.

- | | |
|--|---|
| <p>Геостатистический смысл неопределенного множителя лагранжа в методах ординарного и двойного кригинга
 Степанов Д.Ю., Шестаков В.В., Гергет О.М.</p> <p>Возможности и перспективы использования отработанных нефтепродуктов как топлива
 Кожевников В.А., Попов С.К., Строгонов К.В., Федюхин А.В., Валинеева А.А., Мотов Е.В., Малев С.Н.</p> <p>Распределение содержания свинца и формы его соединений в техногенной почве г. Свирска (Южное Прибайкалье)
 Баенгуев Б.А., Белоголова Г.А., Чупарина Е.В., Прошкин С.Н., Долгих П.Г., Пастухов М.В.</p> <p>Анализ сезонной и многолетней динамики химического состава вод осушенного участка васюганского болота
 Харанжевская Ю.А.</p> | <p>182 Geostatistical meaning of the indefinite Lagrange multiplier in the ordinary and double kriging methods
 Stepanov D.Y., Shestakov V.V., Gerget O.M.</p> <p>192 Opportunities and prospects for application of used petroleum products as fuel
 Kozhevnikov V.A., Popov S.K., Strogonov K.V., Fedyukhin A.V., Valineeva A.A., Motov E.V., Malev S.N.</p> <p>205 Lead distribution and forms of lead-containing compounds in the technogenic soil, Svirsk town, South Baikal region
 Baenguev B.A., Belogolova G.A., Chuparina E.V., Prosekin S.N., Dolgikh P.G., Pastukhov M.V.</p> <p>215 Seasonal and long-term dynamics of water chemistry within the drained part of the great Vasyugan mire
 Kharanzhevskaya Yu.A.</p> |
|--|---|

УДК 62-681

ИССЛЕДОВАНИЕ ТЕПЛОТДАЧИ ОТ НАСЫЩЕННОГО ВЛАЖНОГО ВОЗДУХА К ВЕРТИКАЛЬНОЙ СТЕНКЕ ТЕПЛООБМЕННИКА ПРИ КОНДЕНСАЦИИ ВОДЯНЫХ ПАРОВ

Беспалов Виктор Владимирович¹,
vic@tpu.ru

Туболев Александр Анатольевич¹,
tubolev@tpu.ru

Галашов Николай Никитович¹,
gal@tpu.ru

¹ Национальный исследовательский Томский политехнический университет,
Россия, 634050, г. Томск, пр. Ленина, 30.

Актуальность исследования определяется необходимостью применения универсальной методики конструкторского расчета при проектировании установок глубокой утилизации тепла в системах вентиляции или отведения дымовых газов газовых котлов. Использование теплоутилизаторов значительно повышает КПД котла. Наиболее проблемной задачей является определение коэффициента теплоотдачи от парогазовой смеси к поверхности теплообмена при конденсации водяных паров, который влияет на ее площадь. Проведение экспериментальных исследований рассматриваемого процесса необходимо для совершенствования методик расчета в различных диапазонах изменения параметров парогазовой смеси.

Целью настоящего исследования является получение критериального уравнения подобия для вычисления коэффициента теплоотдачи от парогазовой смеси к поверхности теплообмена при конденсации водяных паров в определенном диапазоне изменения параметров смеси.

Объекты: теплообменный аппарат поверхностного типа (конденсатор), парогазовая смесь, парогенератор.

Методы: энергетический баланс, конструкторский расчет теплообменного аппарата, термодинамика, теплопередача, метод подобия, метод анализа размерностей, эксперименты по теплопередаче, анализ погрешности.

Результаты. Проведены экспериментальные исследования процесса теплообмена при конденсации водяных паров из газовой смеси на лабораторной установке, и выполнена обработка результатов с оценкой погрешности измерений и вычислений. На основе теории подобия получено критериальное уравнение для вычисления коэффициента теплоотдачи от паровоздушной смеси к поверхности теплообмена в определенном диапазоне изменения критериев. Отклонение вычисленных коэффициентов теплоотдачи от полученных экспериментально не превысило 13 % при разных направлениях движения потока парогазовой смеси. Критериальное уравнение может быть использовано при проектировании теплообменных аппаратов, предназначенных для утилизации теплоты.

Ключевые слова:

Конденсатор, утилизация теплоты, парогазовая смесь, критериальное уравнение, коэффициент теплоотдачи, конденсация паров.

Введение

Экспериментальное исследование тепло-массообмена при конденсации водяных паров из газовой смеси представляет определенный теоретический и практический интерес [1, 2]. Такой процесс происходит в конденсационных котлах малой мощности [3], а также в контактных [4] и поверхностных теплообменных аппаратах, предназначенных для утилизации теплоты в системах вентиляции или отведения дымовых газов газовых котлов [5]. Актуальность полезного использования теплоты уходящих газов обусловлена тем, что это основная доля потерь тепла и ее снижение напрямую влияет на расход топлива и, как следствие, на уменьшение углеродного следа [6]. Определение коэффициента теплопередачи – одна из задач конструкторского расчета проектируемых теплообменных аппаратов. В научных трудах можно выделить два основных подхода к решению подобных задач. Первый подход основан на построении классической математической модели процесса [7–11] и решении системы дифференциальных уравнений численными методами с применением универсального или специализированного программного обеспечения [12].

Второй подход основан на теории подобия и предполагает использование в расчетах критериальных уравнений [13]. В работе [14] предлагается использовать известные соотношения расчета коэффициента теплоотдачи для сухой паровоздушной смеси без конденсации и поправочный коэффициент, зависящий от объемной доли водяного пара.

Такой подход имеет как преимущества, так и недостатки. Основным преимуществом является простота и универсальность использования соответствующего критериального уравнения для расчета коэффициентов теплоотдачи при конструировании теплообменников. К недостаткам такой методики можно отнести достаточно узкие диапазоны изменения критериев уравнений, определяемые, как правило, по результатам обработки экспериментальных данных.

В лабораторных условиях вместо влажных дымовых газов целесообразно использовать паровоздушную смесь [15]. При переходе к дымовым газам потребуется только пересчет значений их влагосодержания, который может быть вычислен согласно соотношению, полученному в публикации [16]. Подобные

лабораторные исследования проводились для конденсации на вертикальной пластине и горизонтальных трубках [17], однако с другими целями эксперимента. Опубликованы исследования конденсации внутри трубок [18, 19] и на вертикальных решетках [20] контактного конденсационного теплообменного аппарата.

Целью экспериментального исследования является получение критериального уравнения для вычисления коэффициента теплоотдачи в вертикальном канале прямоугольного сечения от парогазовой смеси к поверхности теплообмена при конденсации водяных паров в определенном диапазоне изменения параметров смеси.

Методика экспериментального исследования

Эксперименты проводились на лабораторной установке (рис. 1), состоящей из конденсатора С, электрического парогенератора SG, смесителя М, трубы Вентури Т для измерения скорости потока и электрического нагревателя воздуха Н.

Аналогичные исследования [21] проводились автором статьи в работе [22]. Геометрия канала конденсатора была обусловлена конструкцией предложенного теплоутилизатора. Экспериментальных исследований конденсации водяных паров в вертикальном канале прямоугольного сечения в научных публикациях найдено не было, что явилось причиной проведения экспериментов для уточнения методики расчета коэффициента теплоотдачи. В последующем были выявлены ряд недостатков в методике проведения эксперимента. Основным из них было наличие сухой зоны в конденсаторе в следствии того, что температура паровоздушной смеси в ряде случаев была выше точки росы содержащихся в ней водяных паров, а в ряде случаев смесь была переохлажденной с образованием тумана. В общем случае полученное критериальное уравнение адекватно отражало происходящий процесс, однако требовалось проведение дополнительных экспериментов с соблюдением новых требований.

Для проведения экспериментального исследования были установлены определенные требования.

1. Скорость потока паровоздушной смеси должна меняться в диапазоне 2,5–4 м/с. Меньшая скорость существенно снижает эффективность теплообмена в теплоутилизаторе, а большая может привести к отрыву образовавшейся пленки конденсата в канале при движении смеси снизу вверх.
2. Для каждого значения скорости потока должно меняться влагосодержание смеси в диапазоне 0,02–0,1 кг/кг с.г. (килограмм на килограмм сухих газов). Как отмечалось выше, увлажненным воздухом моделируются дымовые газы от сгорания природного газа, которые имеют аналогичный диапазон влагосодержания.
3. Для каждого измеряемого режима паровоздушная смесь должна на входе в конденсатор иметь температуру точки росы водяных паров (относительная влажность 100 %), но без начала объемной конденсации (образования тумана). Процесс конденсации должен начинаться на стенках канала конденсатора по всей его поверхности. Именно

такой режим работы теплоутилизатора обеспечивает наиболее эффективное использование поверхности теплообмена.

4. Стенка канала должна иметь постоянную температуру по всей поверхности охлаждения, что значительно упрощает обработку результатов и снижает косвенную погрешность вычислений.

С целью обеспечения требования 1 воздух подавался в установку при помощи нескольких последовательно установленных канальных вентиляторов. Включались 1, 2, 3 и в одной из серий опытов 4 вентилятора. Скорость потока рассчитывалась двумя способами: по измеряемому динамическому давлению в суженной части и по разнице статических давлений в широкой и узкой части трубы Вентури. Измерения проводились при помощи дифференциального микроманометра МКВ-250-0,02 (класс точности 0,02). Для измерения динамического давления использовалась вмонтированная трубка Пито. Относительная косвенная погрешность вычисления скорости воздуха при малых ее значениях составила 10 %.

Влагосодержание исходного воздуха d_0 оценивалось по показаниям сухого и мокрого термометра психрометрическим методом согласно ГОСТ 8.524-85. Относительная погрешность измерения температур составила 0,2 % (цена деления термометров 0,2 °С). Относительная косвенная погрешность вычисления влагосодержания исходного воздуха составила 2,8 %.

Для увлажнения воздуха использовался электрический парогенератор SG с подводом пара в смеситель М. Массовый расход пара, подмешанного к воздуху, определялся количеством испаренной воды из соотношения $Gp = U \cdot I \cdot R \cdot \eta$ (кг/с), где U , I – показания вольтметра и амперметра (класс точности 1,5), R – удельная теплота парообразования (Дж/кг), η – КПД. Мощность парогенератора регулировалась с помощью реостата, при этом учитывалось изменение его КПД. Относительная погрешность измерений расхода испаренной воды оценивается в 2,5 %.

Процесс подмеса водяных паров к воздуху имеет важную особенность. Температура воздуха должна быть не ниже определенного значения t_h . При этом после подмеса пара температура смеси будет выше или равной температуре точки росы водяных паров. Вычислить температуру t_h можно из уравнений теплового баланса для смешения потока воздуха и пара. Подробнее этот вопрос рассматривался в публикации [15]. Исходя из вышесказанного перед смесителем воздух нагревался в электрическом воздушнонагревателе Н до необходимой температуры. Измерение температуры смеси при помощи сухого и мокрого термометра (погрешность измерения 0,5 °С) показало их близкие значения к температуре точки росы водяных паров при текущем влагосодержании, что обусловило выполнение третьего требования проведения экспериментов. Относительная косвенная погрешность вычисления начального влагосодержания паровоздушной смеси d_s оценивается в 9 %. Скорость смеси w непосредственно в канале конденсатора вычислялась отношением объемного расхода к площади поперечного сечения канала.

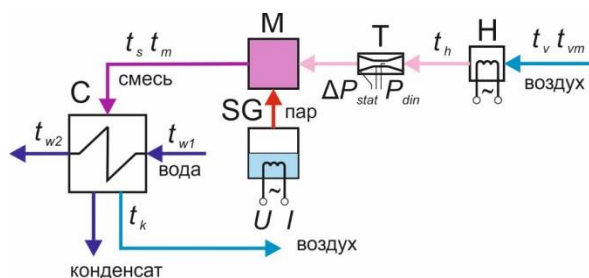


Рис. 1. Схема лабораторной установки

Fig. 1. Scheme of the laboratory setup

Конденсатор выполнен в виде канала длиной 1 м прямоугольного сечения 2 на 10 см. Эквивалентный диаметр канала 0,033 м, площадь теплообмена 0,24 м². Стенки канала, выполненные из стального оцинкованного листа толщиной 0,5 мм, интенсивно охлаждались водой с температурой 10 °С. Расход воды обеспечивал ее турбулентное движение, при этом температура воды на входе t_{w1} и выходе из конденсатора t_{w2} была одинаковой, что позволяет считать стенки канала изотермическими, так как термическое сопротивление стенки пренебрежительно мало. В этом случае коэффициент теплоотдачи от смеси к поверхности стенки канала α можно считать равным общему коэффициенту теплопередачи от смеси к воде. Конденсация водяных паров происходила на всей поверхности теплообмена. Конечное влагосодержание смеси d_k вычислялось по показаниям термометра, установленного на выходе, так как в процессе конденсации водяных паров смесь имеет температуру точки росы t_k . Большая часть конденсата стекала в емкость сбора конденсата, однако оставшаяся его часть уносилась потоком в окружающую среду.

Таким образом были выполнены поставленные условия эксперимента. Все измерения проводились после стабилизации параметров каждого режима. Результаты экспериментов и расчетные величины параметров процесса теплообмена при конденсации водяных паров для одного включенного вентилятора и вертикальном движении смеси снизу вверх приведены в табл. 1. Как видно по результатам расчетов, скорость потока в канале немного увеличивалась при добавлении пара к воздуху.

Таблица 1. Результаты экспериментов при включении одного вентилятора

Table 1. Experimental results with one fan on

Скорость смеси в канале, w , м/с Mixture velocity in the channel, w , m/s	2,6	2,6	2,9	3,1
Входная температура смеси, t_s , °C Mixture inlet temperature t_s , °C	30,3	40,7	47,1	53,7
Входное влагосодержание d_s , кг/кг с.г. Input moisture content d_s , kg/kg d.g.	0,028	0,051	0,073	0,107
Выходная температура смеси t_k , °C Mixture outlet temperature t_k , °C	21,4	28	33	38,5
Выходное влагосодержание d_k , кг/кг с.г. Output moisture content d_k , kg/kg d.g.	0,016	0,024	0,032	0,045
Тепловая мощность конденсатора Q , Вт Condenser thermal power Q , W	206	415	621	886
Коэффициент теплоотдачи от смеси к поверхности теплообмена α , Вт/(м ² ·К) Heat transfer coefficient from the mixture to the heat exchange surface α , W/(m ² ·K)	96	136	184	243

Аналогично были получены результаты при других скоростях смеси включением большего числа вентиляторов. Результаты экспериментов отмечены точками (рис. 2). По анализу результатов видно, что коэффициент теплоотдачи от смеси к стенке зависит как от скорости потока, так и от влагосодержания смеси.

Обработка результатов эксперимента

В инженерных расчетах при проектировании теплообменных аппаратов для определения коэффициентов теплоотдачи принято использовать критериальные уравнения, основанные на теории подобия. Обработка результатов эксперимента проведена с целью получения критериального уравнения в исследуемом диапазоне изменения параметров паровоздушной смеси при конденсации водяных паров.

При таком теплообмене коэффициент теплоотдачи α является функцией нескольких физических величин

$$\alpha = f(w, D, c, \lambda, \rho, \nu, W),$$

где w , м/с – скорость потока смеси в канале; D , м – эквивалентный диаметр канала; $W = G_k/F$, кг/(м²·с) – плотность орошения поверхности теплообмена водяными парами, где G_k , кг/с – расход конденсата; F , м² – площадь теплообмена. Параметры паровоздушной смеси: c , Дж/(кг·К) – теплоемкость; λ , Вт/(м·К) – теплопроводность; ρ , кг/м³ – плотность; ν , м²/с – кинематическая вязкость; μ , Па·с – динамическая вязкость; a , м²/с – температуропроводность.

Критериальное уравнение подобия выглядит следующим образом

$$Nu = A \cdot Re^{m1} \cdot Pr^{m2} \cdot K^{m3}. \quad (1)$$

Безразмерные критерии определяются по методу анализа размерностей.

Критерий Нуссельта $Nu = \alpha \cdot D / \lambda$;

Критерий Рейнольдса $Re = w \cdot D / \nu$;

Критерий Прандтля $Pr = \nu / a$;

Критерий орошения $K = W \cdot D / \mu$.

По результатам экспериментов и табличным данным теплофизических свойств паровоздушной смеси вычислялись значения критериев.

Методика определения показателей степени $m1$, $m2$, $m3$ и коэффициента A описана в [23]. Для нахождения показателя $m1$ уравнение (1) преобразовано логарифмированием к следующему виду

$$\lg(Nu) = \lg(A \cdot Pr^{m2} \cdot K^{m3}) + m1 \cdot \lg(Re)$$

$$\text{или } Y = C1 + m1 \cdot X,$$

где $Y = \lg(Nu)$, $X = \lg(Re)$ и $C1 = \lg(A \cdot Pr^{m2} \cdot K^{m3})$.

По результатам экспериментов (табл. 2) определялось значение показателя $m1$ как тангенс угла наклона прямой $Y = C1 + m1 \cdot X$ к оси абсцисс.

$$m1 = (Y_2 - Y_1) / (X_2 - X_1) = (2,295 - 2,272) / (3,831 - 3,788) = 0,55.$$

Усреднив значения показателя $m1$, вычисленные для других значений критерия орошения K , было принято $m1 = 0,6$.

Для нахождения показателя $m3$ уравнение (1) преобразовано к следующему виду

$$Nu/Re^{m_1} = (A \cdot Pr^{m_2}) \cdot K^{m_3}, \lg(Nu/Re^{m_1}) = \lg(A \cdot Pr^{m_2}) + m_3 \cdot \lg(K),$$

$$J = C_3 + m_3 \cdot I,$$

где $J = \lg(Nu/Re^{m_1})$, $I = \lg(K)$ и $C_3 = \lg(A \cdot Pr^{m_2})$.

Таблица 2. Экспериментальные и расчетные данные для нахождения m_1 при критерии орошения $K=0,8 \pm 0,1$

Table 2. Experimental and calculated data for finding m_1 with irrigation criterion $K=0,8 \pm 0,1$

Скорость паровоздушной смеси w , м/с / Vapor-air mixture velocity w , m/s	2,7	3,5	3,9	5,1
Средняя температура смеси, °C / Average mixture temperature, °C	34	30	29	29
Коэффициент теплоотдачи α , Вт/(м²·К) / Heat transfer coefficient α , W/(m²·K)	136	152	160	167
Re	4580	6143	6778	8866
Nu	165	187	197	206
Pr	0,687	0,695	0,695	0,693
$X, \lg(Re)$	3,661	3,788	3,731	3,948
$Y, \lg(Nu)$	2,218	2,272	2,295	2,314

По результатам экспериментов (табл. 3) определялось значение показателя m_3 как тангенс угла наклона прямой $J = C_3 + m_3 \cdot I$ к оси абсцисс.

Таблица 3. Экспериментальные и расчетные данные для нахождения m_3 при скорости потока паровоздушной смеси $w=3,9 \pm 0,1$ м/с

Table 3. Experimental and calculated data for finding m_3 at the flow rate of the vapor-air mixture $w=3,9 \pm 0,1$ m/s

Плотность орошения W , г/(м²·с) / Irrigation density W , g/(m²·s)	0,276	0,496	0,771	1,191
Средняя температура смеси / Average mixture temperature, °C	24	29	34	41
Коэффициент теплоотдачи α , Вт/(м²·К) / Heat transfer coefficient α , W/(m²·K)	133	160	198	258
Re	6705	6778	6803	6978
Nu	167	197	241	309
Pr	0,7	0,695	0,689	0,683
Критерий орошения K / Irrigation criterion K	0,414	0,750	1,177	1,842
$J, \lg(Nu/Re^{m_1})$	-0,0742	-0,0032	0,0830	0,1837
$I, \lg(K)$	-0,3825	-0,1247	0,0708	0,2653

$$m_3 = (J_2 - J_1) / (I_2 - I_1) = (0,1837 + 0,0032) / (0,2653 + 0,1247) = 0,479.$$

Усреднив значения показателя m_3 , вычисленные для других значений скорости потока, было принято $m_3 = 0,47$.

Показатель степени при слабо меняющемся в исследуемых диапазонах температур критерии Прандтля m_2 принят равным 2/3. Целесообразность выбора такого показателя при этом критерии поясняется в примененной методике [23].

Для определения последнего коэффициента A в уравнение (1) подставлены значения критериев из табл. 2, 3, принятые выше показатели и выражен искомый коэффициент.

$$A = Nu / (Re^{0,6} \cdot Pr^{2/3} \cdot K^{0,47}) = 309 / (6778^{0,6} \cdot 0,7^{2/3} \cdot 1,842^{0,47}) = 1,44.$$

Коэффициент A принимает значения от 1,3 до 1,6 при подстановке разных значений плотности орошения и скорости потока паровоздушной смеси, взятых

за основу расчета показателей степеней критериев. Принято усредненное значение $A=1,47$.

Критериальное уравнение (1) приобрело окончательный вид

$$Nu = 1,47 \cdot Re^{0,6} \cdot Pr^{2/3} \cdot K^{0,47}. \quad (2)$$

Уравнение получено при $4580 \leq Re \leq 9000$; $0,4 \leq K \leq 2,2$; $0,67 \leq Pr \leq 0,71$.

По значению критерия Нуссельта вычисляется коэффициент теплоотдачи $\alpha = Nu \cdot \lambda / D$.

На рис. 2 приведено сравнение значений коэффициента теплоотдачи α , полученных экспериментально (отмечены точками), с зависимостью $\alpha = f(w, d_s)$ на основе полученного критериального уравнения (2).

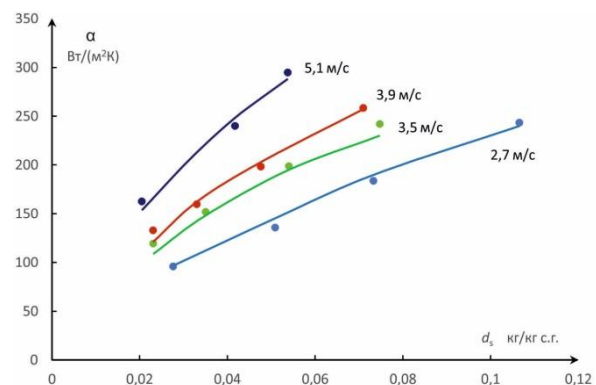


Рис. 2. Сравнение экспериментальных точек с полученной зависимостью при движении смеси снизу вверх

Fig. 2. Comparison of experimental points with the obtained dependence when the mixture moves from bottom to top

Погрешность в исследуемом диапазоне параметров не превышает 10 %.

Далее были проведены аналогичные серии экспериментов при вертикальном движении смеси сверху вниз и проверка соответствия значениям, вычисленным по тому же критериальному уравнению. Результаты сравнения приведены на рис. 3. При смене направления потока полученное критериальное уравнение также применимо. Погрешность не превысила 13 %.

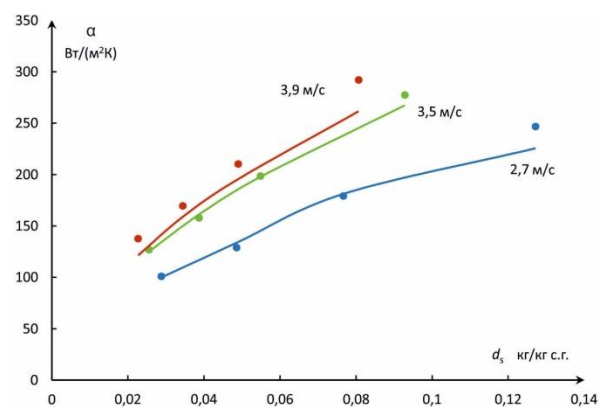


Рис. 3. Сравнение экспериментальных точек с полученной зависимостью при движении смеси сверху вниз

Fig. 3. Comparison of experimental points with the obtained dependence when the mixture moves from top to bottom

Заключение

На основе анализа предыдущих экспериментальных исследований процесса теплообмена при конденсации водяных паров из газовой смеси на лабораторной установке были сформулированы требования для проведения новой серии экспериментов. Проведены эксперименты с соблюдением поставленных требований, и выполнена обработка результатов с оценкой погрешности измерений и вычислений. На основе теории подобия получено критериальное уравнение в определенном диапазоне изменения критериев для вычисления коэффициента теплоотдачи от паровоз-

душной смеси к поверхности теплообмена. Проверка адекватности применения критериального уравнения путем сравнения вычисленных коэффициентов теплоотдачи с полученными экспериментально показала отклонение, не превышающее 13 %, при разных направлениях движения потока парогазовой смеси.

Полученное критериальное уравнение может быть использовано для определения коэффициента теплоотдачи от парогазовой смеси к поверхности теплообмена с конденсацией водяных паров в определенном диапазоне изменения параметров смеси при проектировании теплообменных аппаратов, предназначенных для утилизации теплоты.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Кирюхина Н.В., Сережкин Л.Н. Обзор экспериментальных и теоретических исследований процессов тепло- и массообмена при конденсации пара из парогазовой смеси с неконденсирующимися примесями // Вестник Калужского университета. – 2018. – № 2. – С. 62–67. URL: <https://www.elibrary.ru/item.asp?id=35111172> (дата обращения 15.05.2022).
2. Huang J., Zhang J., Wang L. Review of vapor condensation heat and mass transfer in the presence of non-condensable gas // Applied Thermal Engineering. – 2015. – V. 89. – P. 469–484. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1359431115005943> (дата обращения 15.05.2022).
3. In situ study on the condensate latent heat recovery and its economic impact in the case of a 60 kW condensing boilers system / D.T. Bălănescu, V.M. Homutescu, G. Ianuș, A. Popescu // IOP Conf. Series: Materials Science and Engineering. – 2020. – V. 997 [012139]. URL: <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/1757-899X/997/1/012139> (дата обращения 15.05.2022).
4. Innovative system for heat recovery and combustion gas cleaning / P. Ziembicki, J. Koziol, J. Bernasinski, I. Nowogonski // Energies. – 2019. – V. 12 [4255]. URL: <https://www.mdpi.com/1996-1073/12/22/4255> (дата обращения 15.05.2022).
5. Ziganshina S.K., Kudinov A.A. Preheating boiler blast air with exhaust gases in cooling them below the dew point // Journal of Engineering Physics and Thermophysics. – 2019. – V. 92. – № 5. URL: <https://link.springer.com/article/10.1007/s10891-019-02029-y> (дата обращения 15.05.2022).
6. Беспалов В.В., Беспалов В.И., Мельников Д.В. Исследование и оптимизация глубины утилизации тепла дымовых газов в поверхностных теплообменниках // Теплоэнергетика. – 2017. – № 9. – С. 64–70. URL: <https://www.elibrary.ru/item.asp?doi=10.1134/S0040363617090028> (дата обращения 15.05.2022).
7. Математическое и физическое моделирование пленочной конденсации в пластинчатых теплообменниках / Ф.Г. Ахмадиев, Р.М. Гильфанов, М.И. Фарахов, А.А. Ахмитшин // Математические методы в технике и технологиях – ММТТ. – 2020. – Т. 5. – С. 25–30. URL: <https://www.elibrary.ru/item.asp?id=42820063> (дата обращения 15.05.2022).
8. Цыганков А.В., Алешин А.Е. Моделирование процессов конденсации и испарения в канале регенеративного теплоутилизатора // Современные методы и средства исследований теплофизических свойств веществ. Сборник трудов III Международной научно-технической конференции. – 2015. – С. 168–174. URL: <https://www.elibrary.ru/item.asp?id=29311210> (дата обращения 15.05.2022).
9. Цыганков А.В., Алешин А.Е. Моделирование процессов конденсации и испарения в канале регенеративного теплоутилизатора // Вестник Международной академии холода. – 2016. – № 1. – С. 82–85. URL: <https://www.elibrary.ru/item.asp?id=25941093> (дата обращения 15.05.2022).
10. Артемов В.И., Минко К.Б., Яньков Г.Г. Модель конденсации пара из парогазовой смеси на поверхности горизонтальной трубы при произвольной ориентации набегающего потока // Труды седьмой российской национальной конференции по теплообмену. В 3х т. – 2018. – С. 11–15. URL: <https://www.elibrary.ru/item.asp?id=36830907> (дата обращения 15.05.2022).
11. О тепловом состоянии конденсационного теплообменника / Ю.С. Теплицкий, Е.А. Пищуха, А.Р. Рослик, Э.К. Бучилко // Инженерно-физический журнал. – 2021. – Т. 94. – № 3. – С. 590–598. URL: <https://www.elibrary.ru/item.asp?id=45848276> (дата обращения 15.05.2022).
12. Горпиняк М.С., Солодов А.П. Конденсация парогазовой смеси в трубах // Теплоэнергетика. – 2019. – № 6. – С. 17–26. URL: <https://www.elibrary.ru/item.asp?id=37523645> (дата обращения 15.05.2022).
13. Havlik J., Dlouhý T., Krempaský J. The condensation of water vapour in a mixture containing a high concentration of non-condensable gas in a vertical tube // Acta Polytechnica. – 2020. – V. 60. – № 3. – P. 235–242. URL: <https://ojs.cvut.cz/ojs/index.php/ap/article/view/6223> (дата обращения 15.05.2022).
14. Investigation of the heat transfer coefficient during the condensation of small quantities of water vapour from a mixture with a high proportion of non-condensable gas in a horizontal smooth tube / M. Gundermann, F. Raab, D. Raab, T.W. Botsch // International Journal of Heat and Mass Transfer. – 2021. – V. 170 [121016]. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0017931021001198> (дата обращения 15.05.2022).
15. Беспалов В.В. Моделирование продуктов сгорания природного газа увлажненным воздухом // Современные технологии, экономика и образование: сборник трудов Всероссийской научно-методической конференции. – Томск, 27–29 декабря 2019. – Томск: Изд-во ТПУ, 2019. – С. 34–36. URL: <http://earchive.tpu.ru/handle/11683/58141> (дата обращения 15.05.2022).
16. Flue gas moisture capacity calculation at the outlet of the condensation heat recovery unit / N. Galashov, S. Tsiulski, D. Melnikov, A. Kiselev, A. Gabdullina // MATEC Web of Conferences. – 2017. – V. 110 [01029]. URL: https://www.mateconferences.org/articles/mateconf/abs/2017/24/mateconf_hmt2017_01029/mateconf_hmt2017_01029.html (дата обращения 15.05.2022).
17. Performance of the condensation process for water vapour in the presence of a non-condensable gas on vertical plates and horizontal tubes / P. Poredoš, N. Petelin, T. Žel, B. Vidrih, P. Gataric, A. Kitanovski // Energies. – 2021. – V. 14 [2291]. URL: <https://www.mdpi.com/1996-1073/14/8/2291> (дата обращения 15.05.2022).
18. Combined heat and mass transfer during condensation of vapours mixture and non condensable gas in a vertical tube / A. Charef, M. Feddaoui, A.A. Nait, M. Najim // Journal of Applied Fluid Mechanics. – 2019. – V. 12. – № 2. – P. 515–526. URL: https://www.jafmonline.net/article_771.html (дата обращения 15.05.2022).
19. Camaraza-Medina Y. New perspective for heat transfer evaluation during film condensation inside tubes // International Journal of Heat and Technology. – 2021. – V. 39. – № 2. – P. 390–402. URL: <https://www.iieta.org/journals/ijht/paper/10.18280/ijht.390208> (дата обращения 15.05.2022).
20. Лесухин М.С., Крючков Д.А., Григорян Л.Г. Экспериментальное изучение тепло и массообмена при конденсации водяного пара из паровоздушной смеси в аппарате с вертикальными контактными решетками // Вестник Самарского государственного технического университета. Серия: Технические науки. – 2015. – № 3 (47). – С. 180–187. URL: <https://www.elibrary.ru/item.asp?id=25409424> (дата обращения 15.05.2022).
21. Bespalov V.V., Bespalov V.I., Melnikov D.V. Experimental study of heat transfer from the gas-vapor mixture to the surface in

- rectangular channel with the water vapor condensation // Journal of Physics: Conference Series. – 2016. – V. 754 [042002]. URL: <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/1742-6596/754/4/042002> (дата обращения 15.05.2022).
22. Беспалов В.В. Повышение эффективности глубокой утилизации тепла дымовых газов ТЭС на природном газе: дисс. ... канд. техн. наук. – Томск, 2017. – 119 с. URL: <http://earchive.tpu.ru/handle/11683/43209> (дата обращения 15.05.2022).
23. Кудинов А.А., Зиганшина С.К. Энергосбережение в теплоэнергетике и теплотехнологиях. – М: Машиностроение, 2011. – 374 с. URL: <https://www.elibrary.ru/item.asp?id=20240847> (дата обращения 15.05.2022).

Поступила 04.06.2022 г.

Информация об авторах

Беспалов В.В., кандидат технических наук, доцент научно-образовательного центра им. И.Н. Бутакова Национального исследовательского Томского политехнического университета.

Туболев А.А., старший преподаватель научно-образовательного центра им. И.Н. Бутакова Национального исследовательского Томского политехнического университета.

Галашов Н.Н., кандидат технических наук, доцент научно-образовательного центра им. И.Н. Бутакова Национального исследовательского Томского политехнического университета.

UDC 62-681

INVESTIGATION OF HEAT TRANSFER FROM SATURATED MOIST AIR TO THE VERTICAL WALL OF A HEAT EXCHANGER WITH WATER VAPOR CONDENSATION

Victor V. Bespalov¹,
vic@tpu.ru

Alexandr A. Tubolev¹,
tubolev@tpu.ru

Nikolay N. Galashov¹,
gal@tpu.ru

¹ National Research Tomsk Polytechnic University,
30, Lenin avenue, Tomsk, 634050, Russia.

The relevance of the study is determined by the need to apply a universal method of design calculation for deep heat recovery installations in ventilation systems or flue gas removal systems. The use of heat recovery units significantly increases the boiler efficiency. The most problematic task is the calculation of the heat transfer coefficient from the vapor-gas mixture to the heat exchange surface during the condensation of water vapor. Conducting experimental studies of this process is necessary to improve the calculation methods in various ranges of changes in the gas-vapor mixture parameters.

The purpose of this research is to obtain a criterion similarity equation for calculating the heat transfer coefficient from the vapor-gas mixture to the heat exchange surface during condensation of water vapor in a certain range of mixture parameters.

Objects: surface-type heat exchanger (condenser), vapor-gas mixture, steam generator.

Methods: energy balance, design calculation of the heat exchanger, thermodynamics, heat transfer, similarity method, dimensional analysis method, heat transfer experiments, error analysis.

Results. Experimental studies of the heat transfer process during the water vapor condensation from a gas mixture were carried out on a laboratory installation. The results were processed with an estimate of the measurement and calculation errors. On the basis of the similarity theory, a criterion equation is obtained for calculating the heat transfer coefficient from the vapor-air mixture to the heat exchange surface in a certain range of the criteria variation. The deviation of the calculated heat transfer coefficients and those obtained experimentally did not exceed 13 % for different directions of the vapor-gas mixture flow. The criterion equation can be used in the design of heat exchangers for heat recovery.

Key words:

Condenser, heat recovery, gas-vapor mixture, criterion equation, heat transfer coefficient, vapor condensation.

REFERENCES

1. Kiryukhina N.V., Seryozhkin L.N. The overview of experimental and theoretical research of heat- and mass exchange during steam condensation from steam-gas mixture with noncondensing admixture. *Bulletin of Kaluga University*, 2018, vol. 2, pp. 62–67. In Rus. Available at: <https://www.elibrary.ru/item.asp?id=35111172> (accessed 15 May 2022).
2. Huang J., Zhang J., Wang L. Review of vapor condensation heat and mass transfer in the presence of non-condensable gas. *Applied Thermal Engineering*, 2015, vol. 89, pp. 469–484. Available at: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1359431115005943> (accessed 15 May 2022).
3. Bălănescu D.T., Homutescu V.M., Ianuș G., Popescu A. In situ study on the condensate latent heat recovery and its economic impact in the case of a 60 kW condensing boilers system. *IOP Conf. Series: Materials Science and Engineering*, 2020, vol. 997, 012139. Available at: <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/1757-899X/997/1/012139> (accessed 15 May 2022).
4. Ziembicki P., Koziol J., Bemasinski J., Nowogonski I. Innovative system for heat recovery and combustion gas cleaning. *Energies*, 2019, vol. 12, 4255. Available at: <https://www.mdpi.com/1996-1073/12/22/4255> (accessed 15 May 2022).
5. Ziganshina S.K., Kudinov A.A. Preheating boiler blast air with exhaust gases in cooling them below the dew point. *Journal of Engineering Physics and Thermophysics*, 2019, vol. 92, no. 5. Available at: <https://link.springer.com/article/10.1007/s10891-019-02029-y> (accessed 15 May 2022).
6. Bespalov V.V., Bespalov V.I., Melnikov D.V. Investigation and optimization of the depth of flue gas heat recovery in surface heat exchangers. *Thermal Engineering*, 2017, vol. 64, no. 9, pp. 680–685. Available at: <https://link.springer.com/article/10.1134/S0040601517090026> (accessed 15 May 2022).
7. Akhmadiev F.G., Gilfanov R.M., Farakhov M.I., Akhmitshin A.A. Mathematical and physical modeling of film condensation in plate heat exchangers. *Mathematical methods in engineering and technology – MMTT*, 2020, vol. 5, pp. 25–30. In Rus. Available at: <https://www.elibrary.ru/item.asp?id=42820063> (accessed 15 May 2022).
8. Tsygankov A.V., Aleshin A.E. Modelirovanie protsessov kondensatsii i ispareniiya v kanale regenerativnogo teploutilizatora [Modeling condensation and evaporation in the heat exchanger regenerative channel]. *Sovremennye metody i sredstva issledovaniy teplofizicheskikh svoystv veshchestv. Sbornik trudov III Mezhdunarodnoy nauchno-tehnicheskoy konferentsii* [Modern methods and means of studying the thermophysical properties of substances. Proc. of the III International Scientific and Technical Conference], 2015, pp. 168–174. Available at: <https://www.elibrary.ru/item.asp?id=29311210> (accessed 15 May 2022).
9. Tsygankov A.V., Aleshin A.E. Simulation of evaporation and condensation processes into the channels of regenerative heat exchangers. *Bulletin of the International Academy of Refrigeration*, 2016, no. 1, pp. 82–85. In Rus. Available at: <https://www.elibrary.ru/item.asp?id=25941093> (accessed 15 May 2022).
10. Artemov V.I., Minko K.B., Yankov G.G. Model kondensatsii para iz parogazovoy smesi na poverkhnosti gorizontальной trubyy pri proizvolnoy oriyentatsii nabegayushchego potoka [Steam condensation model from a vapor-gas mixture on a horizontal pipe surface with an arbitrary orientation of the oncoming flow]. *Trudy sedmoy rossiyskoy natsionalnoy konferentsii po teploobmenu* [Proc. of the seventh Russian national conference on heat transfer]. 2018, pp. 11–15. Available at: <https://www.elibrary.ru/item.asp?id=36830907> (accessed 15 May 2022).
11. Teplitskii Y.S., Pitsukha E.A., Roslik A.R., Buchilko É.K. On the thermal state of a condensation heat exchanger. *Journal of Engineering Physics and Thermophysics*, 2021, vol. 94, no. 3, pp. 571–579.

- Available at: <https://link.springer.com/article/10.1007/s10891-021-02330-9> (accessed 15 May 2022).
12. Gorpinyak M.S., Solodov A.P. Vapor–gas mixture condensation in tubes. *Thermal Engineering*, 2019, vol. 66, no 6, pp. 388–396. Available at: <https://link.springer.com/article/10.1134/S004060151906003X> (accessed 15 May 2022).
 13. Havlík J., Dlouhý T., Krempaský J. The condensation of water vapour in a mixture containing a high concentration of non-condensable gas in a vertical tube. *Acta Polytechnica*, 2020, vol. 60, no. 3, pp. 235–242. Available at: <https://ojs.cvut.cz/ojs/index.php/ap/article/view/6223> (accessed 15 May 2022).
 14. Gundermann M., Raab F., Raab D., Botsch T.W. Investigation of the heat transfer coefficient during the condensation of small quantities of water vapour from a mixture with a high proportion of non-condensable gas in a horizontal smooth tube. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 2021, vol. 170, 121016. Available at: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0017931021001198> (accessed 15 May 2022).
 15. Bespalov V.V. Modelirovanie produktov sgoraniya prirodnogo gaza uvlazhnennym vozdukhom [Simulation of natural gas combustion products by humidified air]. *Sovremennye tekhnologii, ekonomika i obrazovanie: sbornik trudov Vserossiyskoy nauchno-metodicheskoy konferentsii* [Modern technologies, economics and education: Proceedings of the All-Russian scientific and methodological conference]. Tomsk, Tomsk Polytechnic University Publ. house, 2019. pp. 34–36. Available at: <http://earchive.tpu.ru/handle/11683/58141> (accessed 15 May 2022).
 16. Galashov N., Tsibulskiy S., Melnikov D., Kiselev A., Gabdullina A. Flue gas moisture capacity calculation at the outlet of the condensation heat recovery unit. *MATEC Web of Conferences*, 2017, vol. 110, 01029. Available at: https://www.matec-conferences.org/articles/mateconf/abs/2017/24/mateconf_hmt2017_01029/mateconf_hmt2017_01029.html (accessed 15 May 2022).
 17. Poredoš P., Petelin N., Žel T., Vidrih B., Gataric P., Kitanovski A. Performance of the condensation process for water vapour in the presence of a non-condensable gas on vertical plates and horizontal tubes. *Energies*, 2021, vol. 14, 2291. Available at: <https://www.mdpi.com/1996-1073/14/8/2291> (accessed 15 May 2022).
 18. Charef A., Feddaoui M., Nait A.A., Najim M. Combined heat and mass transfer during condensation of vapours mixture and non condensable gas in a vertical tube. *Journal of Applied Fluid Mechanics*, 2019, vol. 12, no. 2, pp. 515–526. Available at: https://www.jafmonline.net/article_771.html (accessed 15 May 2022).
 19. Camaraza-Medina Y. New perspective for heat transfer evaluation during film condensation inside tubes. *International Journal of Heat and Technology*, 2021, vol. 39, no. 2, pp. 390–402. Available at: <https://www.iijeta.org/journals/ijht/paper/10.18280/ijht.390208> (accessed 15 May 2022).
 20. Lesukhin M.S., Kriuchkov D.A., Grigoryan L.G. Experimental study of heat and mass-transfer during condensation of steam out of an air-steam mixture in a vessel with vertical contact grids. *Journal of Samara State Technical University, Ser. Technical Sciences*, 2015, no. 3 (47), pp. 180–187. In Rus. Available at: <https://www.elibrary.ru/item.asp?id=25409424> (accessed 15 May 2022).
 21. Bespalov V.V., Bespalov V.I., Melnikov D.V. Experimental study of heat transfer from the gas-vapor mixture to the surface in rectangular channel with the water vapor condensation. *Journal of Physics: Conference Series*, 2016, vol. 754, 042002. Available at: <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/1742-6596/754/4/042002> (accessed 15 May 2022).
 22. Bespalov V.V. *Povyshenie effektivnosti glubokoy utilizatsii tepla dymovykh gazov TES na prirodnom gaze*. Diss. Kand. nauk [Improving the efficiency of flue gas deep heat recovery from TPPs operating on natural gas. Cand. Diss.]. Tomsk, 2017. 119 p. Available at: <http://earchive.tpu.ru/handle/11683/43209> (accessed 15 May 2022).
 23. Kudinov A.A., Ziganshina S.K. *Energoberezhenie v teploenergetike i teplotekhnologiyakh* [Energy saving in thermal power engineering and thermal technologies]. Moscow, Mechanical engineering Publ., 2011. 374 p. Available at: <https://www.elibrary.ru/item.asp?id=20240847> (accessed 15 May 2022).

Received: 4 June 2022.

Information about the authors

Victor V. Bespalov, Cand Sc., associate professor, National Research Tomsk Polytechnic University.

Alexandr A. Tubolev, senior lecturer, National Research Tomsk Polytechnic University.

Nikolay N. Galashov, Cand Sc., associate professor, National Research Tomsk Polytechnic University.

УДК 552.52:550.42

МИНЕРАЛОГИЯ И ГЕОХИМИЯ ТОНШТЕЙНА ИЗ УГОЛЬНОГО ПЛАСТА НОВЫЙ-1А ХАРАНОРСКОГО МЕСТОРОЖДЕНИЯ (ЗАБАЙКАЛЬСКИЙ КРАЙ)

Вергунов Алексей Викторович^{1,2},
alexeivergunov@rambler.ru

Арбузов Сергей Иванович^{1,2},
siarbuzov@mail.ru

Соктоев Булат Ринчинович¹,
bulatsoktoev@tpu.ru

Ильенок Сергей Сергеевич¹,
ilenokss@tpu.ru

Чекрыжов Игорь Юрьевич²,
chekr2004@mail.ru

¹ Национальный исследовательский Томский политехнический университет,
Россия, 634050, г. Томск, пр. Ленина, 30.

² Дальневосточный геологический институт ДВО РАН,
Россия, 690022, г. Владивосток, пр. 100-летия Владивостока, 159.

Актуальность работы обусловлена необходимостью выяснения роли пирокластического материала в формировании угленосных отложений и геохимического фона редких элементов в углях.

Цель: выяснение природы тонштейна из угольного пласта Новый-1а Харанорского бурогоугольного месторождения.

Объекты: угли и тонштейн пласта Новый-1а Харанорского месторождения.

Методы: отбор проб из пласта Новый-1а Харанорского месторождения угля; масс-спектрометрия с индуктивно связанной плазмой (ICP-MS), атомно-эмиссионная спектрометрия с индуктивно связанной плазмой (ICP-AES), инструментальный нейтронно-активационный анализ (ИНАА); минеральный состав изучен методами оптической микроскопии, сканирующей электронной микроскопии, рентгенофазовым анализом.

Результаты. В ходе исследования был изучен тонштейн из угольного пласта Новый-1а Харанорского бурогоугольного месторождения. Минеральный состав, структурно-текстурные и геохимические особенности тонштейна позволили установить его апопелловый генезис. Комплекс критериев позволил определить состав исходной пирокластике, из которой сформировался тонштейн. Установлено, что изученный тонштейн сформировался из пеллов трахидацитового состава. Высокие содержания редких элементов-примесей в угле пласта Новый-1а приурочены к участкам контакта с тонштейном. Наибольшие концентрации в контактовых зонах отмечены для РЗЭ, Zr, Nb, Y, Ta, Hf, Th и U. Набор элементов и их концентрация в тонштейне и в золе угля на контакте с прослоем подтверждают выводы о природе и исходном составе пирокластике, сформировавшей тонштейн.

Ключевые слова:

Уголь, тонштейн, геохимия, вулканизм, Забайкальский край.

Введение

Следы пирокластического материала в углях надежно диагностируются в виде маломощных глинистых прослоев, в геологической литературе известных под термином тонштейны. Эти породы обнаруживаются во многих угольных бассейнах мира, в углях разной степени (стадий) метаморфизма и различного возраста. Общий список находок тонштейнов можно встретить в ряде обобщающих работ [1–3].

В данной работе рассматриваются особенности минерального и химического состава тонштейна и вмещающего его угля из пласта Новый-1а Харанорского бурогоугольного месторождения. Ранее в угленосных отложениях Забайкальского края наличие тонштейнов не отмечалось.

Выяснение исходного состава и условий формирования тонштейна из угольного пласта Новый-1а позволит оценить роль вулканогенного материала в процессе формирования угленосных отложений мелового

возраста Харанорского месторождения и одновозрастных с ним отложений Забайкальского края, а также уточнить временной период, в который произошло отложение в палеоболотной среде пирокластического материала, впоследствии преобразованного в тонштейн.

Выявление фактов накопления синхронного угленосного пирокластического материала в Харанорском месторождении позволит выявить подобные образования и в других месторождениях региона, в частности в угольных пластах месторождений, расположенных в радиусе нескольких десятков километров.

Геологическая характеристика объекта исследования

В данной работе приведены сведения об исследовании угленосных отложений Харанорского бурогоугольного месторождения, расположенного на юге Забайкальского края (рис. 1). Месторождение является крупнейшим в регионе. Оно находится в северной

части Харанорской депрессии и вытянуто в меридиональном направлении на 22 км при ширине около 8 км. Депрессия с востока ограничена Кукульбейским хребтом, с запада – Адун-Челонским. Южной границей впадины служат отроги Алтаганского хребта, а на севере она переходит в Тургинскую депрессию, от которой отделена увалом [4].



Рис. 1. Расположение Харанорского месторождения
Fig. 1. Location of Kharanor ore field

В разрезе Харанорского месторождения выделяется три горизонта: верхний – мощных угольных пластов (380–400 м), соответствующий кутинской свите, средний – частого переслаивания тонких пластов угля и углистых прослоев (240–260 м) и нижний – песчано-алевритовый, безугольный (250–300 м), соответствующие верхней подсвите тургинской свиты. На месторождении выявлено 60 угольных пластов, из них в подсчёт запасов включено 20. Рабочая мощность пластов в среднем от 1,3 до 13,3 м, максимальная – 49,1 м (пласт Новый-1а) [5]. Угли бурые, гумусовые и отнесены к марке 2БВ – второй бурый витринитовый. Месторождение на сегодняшний день разрабатывается открытым способом ОАО «Разрез Харанорский» Сибирской угольной энергетической компанией «СУЭК» [6].

Пласт Новый-1а расположен в кутинской свите и является самым мощным и главным разрабатываемым на Харанорском месторождении. Пласт характеризуется простым строением. В пласте диагностирован породный прослой (рис. 2), контрастно выделяющийся светлой окраской на фоне угля и имеющий значительную протяженность при сравнительно небольшой средней мощности около 10 см. Прослой прослежен на всей вскрытой разрезом части угольного пласта Новый-1а протяженностью более 5 км. Выяснение природы этого тонштейна позволит дополнить историю формирования отложений в данный период времени.



Рис. 2 Фотография тонштейна в угольном пласте
Fig. 2. Photograph of the tonstein within the coal seam

Методы исследования

Опробование

Образцы отбирались в угольных пластах, вскрытых угледобывающим разрезом в 2010 и 2021 гг. Опробование проводилось в вертикальном разрезе угольного пласта бороздовым методом с шириной борозды 5 см. Всего отобрано 45 проб угля и 5 проб тонштейна

При полевых исследованиях 2010 г. угольный пласт Новый-1а был опробован на всю мощность. Длина пробы колебалась от 3 до 200 см. Сам прослой опробовался на всю мощность. Общая мощность, на которую был опробован угольный пласт, составила 26,9 м.

В 2021 г. опробование было произведено с детализацией части пласта с тонштейном. В этом случае интервал отбора проб составил 2–50 см. Тонштейн опробовался детальнее, была опробована верхняя часть тонштейна – 5 см и нижняя часть – 5 см, при собственной мощности породного прослоя в 10 см (рис. 3). Такое детальное опробование позволяет отметить наличие возможных этапов преобразования исходного пеплового материала при изменении в условиях палеоболота.

В обоих случаях тонштейн опробовался в двух точках, на расстоянии 3–5 м, для прослеживания латерального изменения его минералого-геохимических особенностей.

Аналитические методы

При проведении исследований был применен комплекс аналитических методов, включающий в себя инструментальный нейтронно-активационный анализ (ИНАА), метод масс-спектрометрии с индуктивно связанной плазмой (ICP-MS) и метод атомно-эмиссионной спектроскопии с индуктивно связанной плазмой (ICP-AES).

Исследование проб угля, золы угля и пород методом ИНАА выполнено в ядерно-геохимической лаборатории отделения геологии Национального исследовательского Томского политехнического университета (исполнитель – А.Ф. Судыко). При проведении аналитических исследований использовалась навеска

угля 200 мг, для пород – 100 мг. Облучение проб проводилось на исследовательском ядерном реакторе ИРТ-Т Инженерной школы ядерных технологий ТПУ. Определение химических элементов в пробах осуществлялось без предварительного концентрирования для исключения возможных потерь элементов при озолении [7].

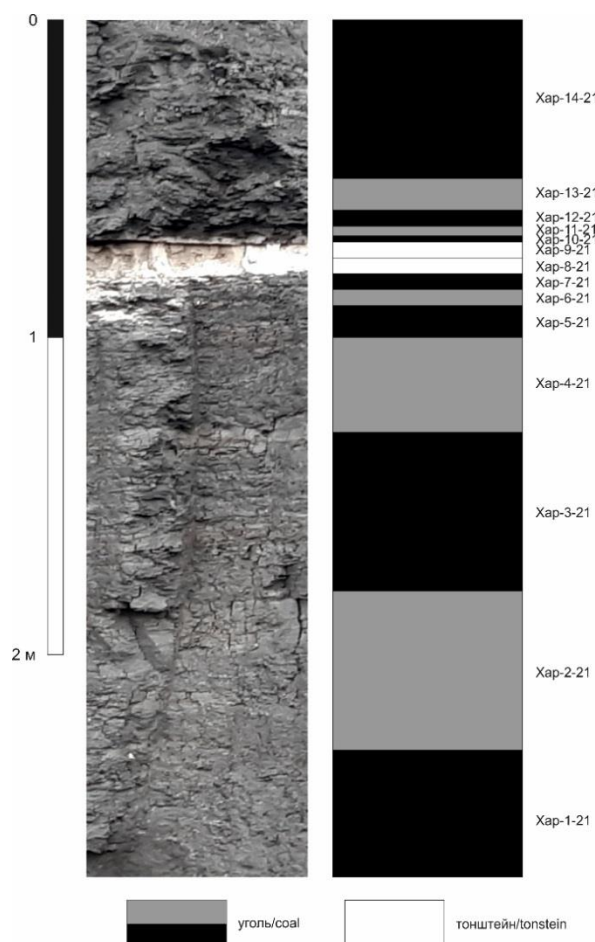


Рис. 3. Схема детального опробования тонштейна и вмещающего его угля

Fig. 3. Scheme of the tonstein and the adjacent coals detailed sampling

Исследование состава методами ICP-MS и ICP-AES выполнено в аналитическом центре Дальневосточного геологического института ДВО РАН (исполнитель Н.В. Зарубина). Оценка содержания малых элементов в углях и внутрипластовых породах выполнена методом вскрытия без предварительного озоления с использованием кислотного разложения ($\text{HClO}_4 + \text{HNO}_3 + \text{HF}$) [8]. Главные породообразующие элементы (Ti, Al, Fe, Mn, Mg, Ca, Na, K, P) определены с помощью ICP-AES.

Метод беспламенной атомной абсорбции применялся при определении концентраций ртути с использованием прибора РА-915+ с пиролитической приставкой ПИРО-915. Массовую долю ртути в образцах можно определять в диапазоне от 10^{-7} до 10^{-3} %.

Структурно-текстурные особенности тонштейнов определялись путем изучения шлифов под оптическим микроскопом.

При использовании метода рентгенофазового анализа (РФА) было проведено исследование минерального состава тонштейнов на дифрактометре Bruker D2 Phaser в МИНОЦ «Урановая геология» в ТПУ (исполнитель Б.Р. Соктоев).

Микроминеральные исследования проводились на двухлучевом сканирующем электронном микроскопе Tescan Lyra 3 XMN + EDS AZtec X-Max 80 Standart в лаборатории микро- и наноисследований аналитического центра ДВГИ ДВО РАН (оператор А.В. Поселюжная), а также на сканирующем электронном микроскопе Hitachi S-3400N с приставкой Bruker в МИНОЦ «Урановая геология» в ТПУ (исполнитель С.С. Ильенок).

Результаты исследования и их обсуждение

Минералогия тонштейна

Детально опробован и исследован тонштейн из угольного пласта Новый-1а Харанорского месторождения. Мощность тонштейна составляет 10 см. Тонштейн имеет светло-серую окраску, что позволяет надежно диагностировать его в угольном пласте (рис. 2). Изучаемый тонштейн имеет четкие границы с вмещающим его углем.

Петрографическое изучение тонштейна в шлифах под микроскопом показало, что породный прослой имеет алевролитовую структуру. Расположение зерен неориентированное, стратификации не наблюдается. Зерна минералов угловатые, без следов окатанности. Основная масса породы глинистая, в ней присутствуют многочисленные порфирикласты кварца. Каолинит прослеживается как в виде основной массы, так и в виде клубков, состоящих из тесно связанных мелких кристаллов каолинита.

Рентгенофазовый анализ показал, что минеральный состав тонштейна представлен преимущественно каолинитом (67,7 %), в меньшей степени кварцем (23,3 %). В составе отмечается наличие КППШ (4,4 %), а также мусковита (4,6 %) (табл. 1). Подобный однообразный минеральный состав характерен практически для всех тонштейнов мира, что позволяет надежно отличать такие прослои от внутрипластовых пород терригенной природы, как правило, имеющих более разнородный минеральный состав.

Таблица 1. Минеральный состав тонштейна из пласта Новый-1а, %

Table 1. Mineral composition of the tonstein from Novy-1a coal seam, %

Минерал Mineral	Верхняя часть Upper part Хар-9-21	Нижняя часть Lower part Хар-8-21	Весь прослой Whole layer Хар-15-21
Каолинит Kaolinite	64,1	65,3	67,7
Кварц/Quartz	24,7	25,5	23,3
КППШ K-feldspar	5,5	3,8	4,4
Мусковит Muscovite	5,7	5,4	4,6
Сумма/Total	100	100	100

При исследовании для выявления зональности минерального состава отдельно изучались верхняя и нижняя части тонштейна. Согласно результатам рентгенофазового анализа, в верхней части тонштейна содержание КППШ и мусковита больше, чем в нижней. В нижней части тонштейна, соответственно, выше содержания каолинита и кварца.

Такие различия в минеральном составе верхней и нижней частей тонштейнов могут быть следствием преобразования пирокластического материала в условиях палеоболотной среды. Так, в процессе преобразования пирокластического материала, представленного преимущественно вулканическим стеклом, происходит растворение и переработка исходного пепла. Это связано с тем, что агрессивная среда торфяного болота богата органическими кислотами, сама среда является кислой и хорошо обводненной. Тип болот,

распространенный на территории Харанорского месторождения, был преимущественно низинный.

Вулканическое стекло в условиях торфяного болота растворяется и осаждается в виде каолинита. Процесс преобразования пеплов в тонштейны подробно рассмотрен в работах Д.А. Спирса, Р. Канариса-Сотиру, Б.Ф. Бохора и Д.М. Триппехорна [2, 9].

При исследовании микроминерального состава тонштейна найдены разнообразные акцессорные минералы, в том числе хорошо ограненные кристаллы циркона (рис. 4). Встречаются характерные кавернозные зерна циркона, что свидетельствует о возможном процессе их растворения в процессе преобразования пирокластического материала.

Находки кавернозных кристаллов циркона со следами коррозии известны также в тонштейнах из угольных пластов черноморской свиты Минусинского бассейна [10].

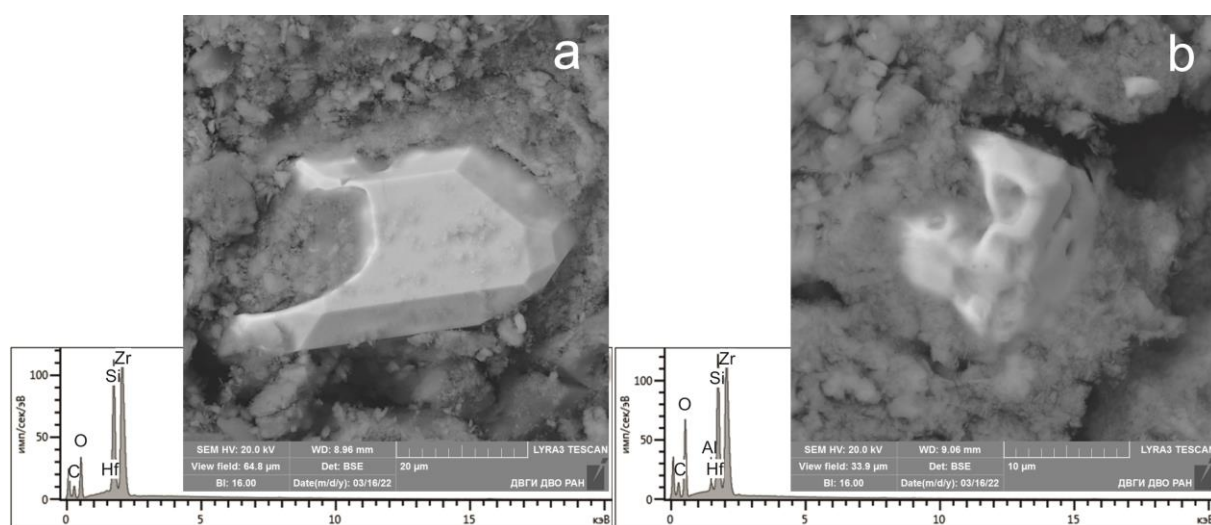


Рис. 4. Кристаллы циркона в тонштейне: а) с четкими гранями; б) со следами коррозии

Fig. 4. Zircon crystals in the tonstein: a) with clean faces; b) with instances of corrosion

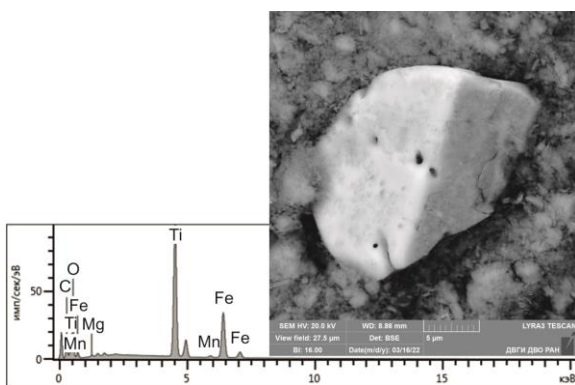


Рис. 5. Зерно ильменита

Fig. 5. Ilmenite grain

Помимо цирконов при электронно-микроскопических исследованиях диагностируются такие минералы, как бадделейт, пирит, халькопирит, сфалерит, редкоземельные фосфаты, барит, КППШ. В составе тонштейна также встречаются зерна титановых минералов, чаще представленные ильменитом. На рис. 5 представлена фотография зерна ильменита с отверстиями, вероятно,

образовавшимися в процессе изменения исходного пеплового материала. В практике изучения минерального состава тонштейнов известны случаи находок измененных кристаллов ильменита. Так, в работе Б.Ф. Бохора и Д.М. Триппехорна приводится фотография измененного кристалла ильменита из тонштейна Фаер Клей (Кентукки). Железо было выщелочено из минерала, в результате чего осталась лишь сетка из TiO_2 (анатаза) [2].

Геохимия и природа тонштейна

Тонштейн из угольного пласта Новый-1а характеризуется высоким содержанием Ga, Nb, Ta, Sn, Hf, Th и U по сравнению со средним составом глинистых сланцев (табл. 2). Набор химических элементов, которыми обогащен тонштейн, вероятно, обусловлен составом исходного вещества, которым мог служить пирокластический материал, поступивший в болотную среду.

Для выяснения природы исходного материала Я.Э. Юдович и М.П. Кетрис предложили использовать отношение TiO_2 к Al_2O_3 (титановый модуль), так как низкие значения отношения этих элементов характерны для пирокластического материала кислого

состава в осадках [12]. Впоследствии Д.А. Спирс и Р. Канарис-Сотириу установили, что для тонштейнов, сформированных из пирокластики кислого состава, характерна величина TiO_2/Al_2O_3 меньше 0,02, а основного состава – выше 0,06 [9]. Промежуточные значения титанового модуля характерны для средней и щелочной пирокластики.

Таблица 2. Содержание микроэлементов в тонштейне, г/т
Table 2. Trace elements content in tonstein, ppm

Элементы Elements	Верхняя часть Upper part Хар-9-21	Нижняя часть Lower part Хар-8-21	Весь прослой Whole layer Хар-15-21	Кларк глинистых сланцев [11] Clarke of clay shales [11]
Li	13,3	12,7	13,5	46,0
Be	0,47	0,53	0,54	2,80
Sc	2,66	2,68	2,57	15,0
V	14,5	14,6	13,7	120
Cr	8,12	7,62	8,12	76,0
Co	0,61	0,92	0,81	19,0
Ni	2,16	2,96	2,41	47,0
Cu	5,35	6,07	5,45	36,0
Zn	16,5	28,2	22,8	52,0
Ga	41,7	40,1	41,0	16,0
Ge	1,94	1,43	1,65	2,00
As	4,85	3,70	4,77	9,30
Se	0,49	0,45	0,48	0,36
Rb	21,1	22,8	22,0	130
Sr	63,1	60,0	56,5	240
Y	8,95	8,89	8,76	31,0
Zr	171	156	142	190
Nb	47,7	46,3	46,4	11,0
Mo	0,71	1,02	0,65	1,60
Ag*	0,47	0,45	0,43	0,20
Cd	0,45	0,56	0,51	1,00
Sn	6,10	5,95	5,18	3,50
Sb	0,54	0,54	0,57	1,00
Te	0,03	0,03	0,03	0,01
Cs	2,55	2,63	2,33	10,0
Ba	115	119	118	460
La	28,1	29,6	29,8	48,0
Ce	53,9	56,2	55,4	75,0
Pr	4,72	4,90	4,88	10,0
Nd	20,3	21,1	21,1	36,0
Sm	3,65	3,87	3,82	8,00
Eu	0,33	0,33	0,33	1,20
Gd	2,62	2,70	2,68	5,80
Tb	0,37	0,37	0,37	0,83
Dy	1,63	1,64	1,62	4,40
Ho	0,30	0,29	0,29	0,70
Er	0,88	0,86	0,87	1,90
Tm	0,12	0,12	0,12	0,60
Yb	0,97	0,97	0,99	2,50
Lu	0,11	0,11	0,11	0,39
Hf	11,6	10,4	10,3	5,00
Ta	10,7	9,0	9,2	1,40
W	2,62	2,59	2,61	2,60
Au	0,0020	0,0016	0,0019	0,0065
Hg, ppb	262	291	286	–
Tl	0,20	0,20	0,18	1,30
Pb	7,45	8,29	8,39	14,0
Bi	0,35	0,40	0,39	0,38
Th	15,4	13,7	13,5	10,0
U	8,78	8,07	7,82	4,50
ΣРЗЭ	118	123	122	195
ΣРЗЭ+Y	127	132	131	226
Th/U	1,75	1,70	1,73	2,22

Примечание/Note: «–» – нет данных/no data.

Величина титанового модуля для тонштейна из угольного пласта Новый-1а составила 0,012–0,013, что свидетельствует о вкладе пирокластики кислого состава при формировании изучаемого прослоя (табл. 3).

Таблица 3. Химический состав (вес. %) тонштейна пласта Новый-1а
Table 3. Major elements concentrations (%) in tonstein from Novy-1a coal seam

Элементы Elements	Верхняя часть Upper part Хар-9-21	Нижняя часть Lower part Хар-8-21	Весь прослой Whole layer Хар-15-21
SiO ₂	46,9	47,6	46,4
TiO ₂	0,43	0,41	0,41
Al ₂ O ₃	34,2	33,7	34,0
Fe ₂ O ₃	0,37	0,39	0,34
MnO	0,003	0,003	0,003
MgO	0,17	0,17	0,15
CaO	0,24	0,22	0,19
Na ₂ O	0,021	0,023	0,015
K ₂ O	0,60	0,66	0,63
P ₂ O ₅	0,028	0,027	0,042
П.п.п/LOI	17,0	16,8	17,8
TiO ₂ /Al ₂ O ₃	0,013	0,012	0,012

Примечание: П.п.п – потери при прокаливании.

Note: LOI – loss on ignition.

Изученный тонштейн по своему химическому составу приближен к каолиниту, однако характеризуется повышенным содержанием кремнезема. Это свидетельствует о повышенной кремнистости тонштейна по сравнению с чистым каолинитом. Переизбыток SiO₂ представлен чаще в виде алевритовых зерен кластогенного кварца.

Для идентификации преобразованной пирокластики обычно применяется комплекс критериев, включающий титановый модуль, классификационную диаграмму Винчестера и Флойда (Nb/Y-Zr/TiO₂), графики распределения РЗЭ, содержание редких и радиоактивных элементов [13–16].

На классификационной диаграмме Винчестера–Флойда изученные образцы тонштейна занимают промежуточное положение между полями, соответствующими трахитам, трахиандезитам и базанитам/нефелинитам (рис. 6). Ранее установлено, что дискриминационная диаграмма имеет свои особенности в применении [14, 17]. Обосновано это тем, что химические элементы, на основании которых построена данная диаграмма, обладают различной миграционной способностью в условиях палеоболота. Следовательно, наблюдается более интенсивный вынос циркония и ниобия из прослоя, чем титана и иттрия. Эта особенность ведет к снижению кислотности и щелочности исходных пород диаграммы. Это необходимо учитывать, при использовании данной диаграммы и подтверждать данные путем применения дополнительных критериев диагностики исходного состава пирокластического материала.

Данные о РЗЭ позволяют делать выводы о генезисе исходного вещества горных пород. Распределение нормализованных по кларку в верхней континентальной коре РЗЭ для проб изучаемого тонштейна характеризует наличие ярко выраженной отрицательной

европиевой аномалии (рис. 7). Также на графиках наблюдаются отрицательная аномалия празеодима и положительная аномалия иттербия. Обе аномалии слабо выражены. Подобные нормированные графики распределения РЗЭ характерны для тонштейнов мира, что позволяет отличать такие прослои от терригенных пород.

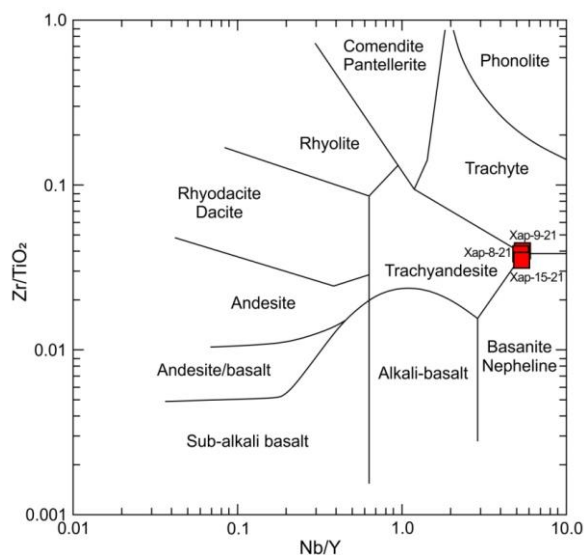


Рис. 6. Положение изученных проб на Zr/TiO_2 – Nb/Y классификационной диаграмме [18]

Fig. 6. Location of the studied samples according to Zr/TiO_2 – Nb/Y classification diagram [18]

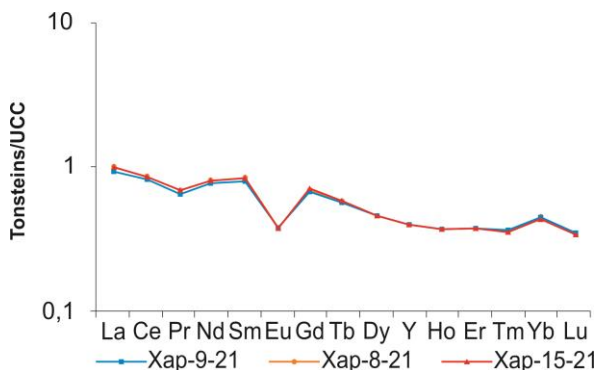


Рис. 7. Распределение РЗЭ в тонштейне. Нормировано на кларк в верхней континентальной земной коре [19]

Fig. 7. Upper continental crust (UCC)-normalized REE patterns in tonstein. UCC data from [19]

Диаграмма РЗЭ, нормализованных по хондриту, помогает восстановить состав исходной пирокластике, сформировавшей тонштейны. Кривые распределения для изученных проб тонштейна характеризуются отчетливой отрицательной европиевой аномалией, а также преобладанием легких лантаноидов над тяжелыми (рис. 8). Такой тип распределения РЗЭ характерен для тонштейнов, сформированных при участии пеплового материала кислого состава.

Радиоактивные элементы могут служить действенным критерием для восстановления исходного состава пирокластического материала тонштейнов.

Для тонштейнов, сформированных из пирокластике кислого и щелочного составов, характерны высокие содержания тория и урана [17]. Низкие содержания этих элементов свидетельствуют о вкладе пеплов среднего и основного составов.

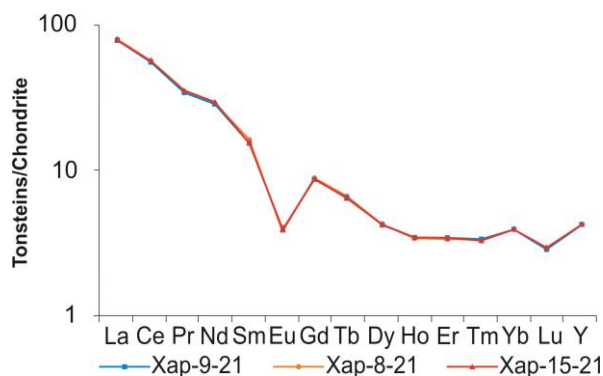


Рис. 8. Распределение РЗЭ в тонштейне. Нормировано на хондрит [20]

Fig. 8. Chondrite-normalized REE patterns in tonstein. Chondrite data from [20]

Содержания тория в пробах изученного тонштейна из угольного пласта Новый-1а варьируют в пределах 13,5–15,4 г/т, урана – 7,8–8,8 г/т. Такие содержания тория и урана свидетельствуют о кислом составе пирокластике, из которого был сформирован изучаемый тонштейн.

Так как на геохимические особенности тонштейнов влияет состав исходного материала, необходимо обсудить и другие элементы, слабо мигрирующие в процессе преобразования пеплового материала и позволяющие восстановить первичный состав измененной пирокластике. К таким элементам можно отнести Nb, Y, Zr, Hf, Ta.

Концентрация Nb в тонштейне достигает 46,4 г/т, Zr – 142 г/т, Hf – 10,3 г/т, Ta – 9,2 г/т. Содержания этих элементов в тонштейне сопоставимы с концентрациями в породах кислого состава. Также накопление данных элементов характерно для тонштейнов мира, сформировавшихся из пирокластике кислого и щелочного составов [14].

При исследованиях встречаются кристаллы цирконов, на поверхности которых расположены землистые агрегаты ксенотима (рис. 9), что свидетельствует об активной миграции вещества в процессе преобразования пирокластического материала, в том числе и таких элементов, как Y.

Затруднения при восстановлении исходного состава преобразованного пирокластического материала вызывает процесс перераспределения вещества в условиях палеоболотной среды [21–25]. Следовательно, в угле, вмещающем тонштейн, диагностируются специфические геохимические ассоциации, связанные с особенностями состава пирокластического материала, из которого сформировался тонштейн.

Во время преобразования вулканического пепла элементы-гидролизаты, даже титан, становятся подвижными. Это приводит к их перераспределению и формированию новообразованных минеральных фаз,

которые диагностируются в тонштейнах как аутигенные минералы. Новообразованные минеральные фазы титана представляют собой оторочки, сформированные вокруг органического вещества, часто на контакте тонштейна с углем [17]. Однако подобных образований не обнаружено при исследовании угля, вмещающего тонштейны, что свидетельствует о минимальном выносе титана за пределы глинистых прослоев.

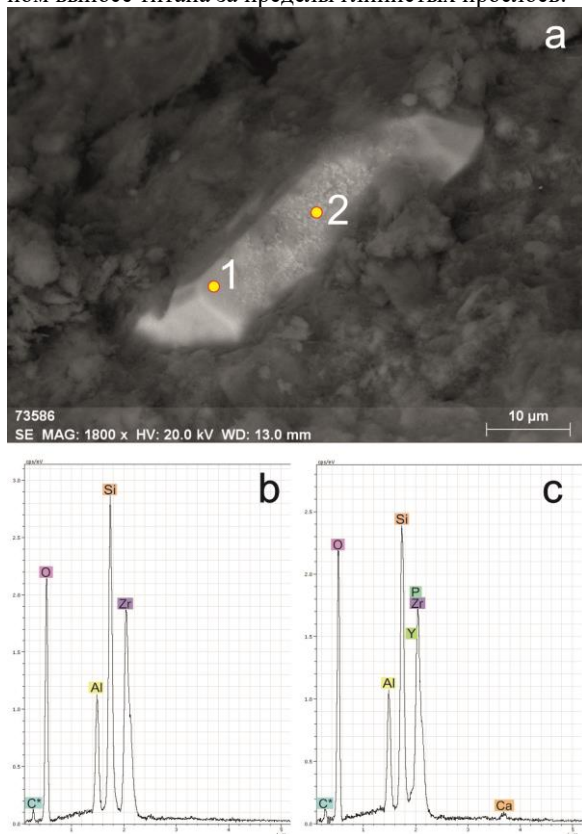


Рис. 9. Землистый агрегат ксенотима на кристалле циркона: а) изображение образца в обратно рассеянных электронах; б) спектр циркона (точка 1; в) спектр ксенотима (точка 2; с)

Fig. 9. Earthy aggregate of xenotime on the zircon grain: а) backscattered image of the sample; б) zircon spectrum (site 1; в) xenotime spectrum (site 2; с)

Периодически в тонштейнах выявляются корродированные кавернозные кристаллы цирконов, что свидетельствует об их разрушении в процессе перераспределения вещества. На этот процесс также указывают аномально высокие концентрации циркония в золе угля, находящегося выше и ниже тонштейнов.

Геохимия угля, вмещающего тонштейн

Повышенное содержание элементов, в том числе Nb, Y, Zr, Hf, Ta, Th, не ограничивается непосредственно самим тонштейном, а прослеживается и в угле на контакте с породным прослоем. Зона обогащения углей, вмещающих тонштейны, диагностируется как непосредственно на контакте с тонштейном, так и на некотором удалении от него. Наиболее высокие концентрации элементов отмечаются в золе притонштейнового угля. Приуроченность зон обогащения непосредственно к тонштейну и высоко контрастные

концентрации элементов в них свидетельствуют об их связи с преобразованным породным прослоем.

Все повышенные содержания элементов-примесей в угле и золе угля в пласте Новый-1а приурочены к тонштейну. Так, концентрация циркония в золе угля, находящегося под тонштейном, достигает 3962 г/т, а над ним – 4028 г/т (рис. 10). Наибольшая концентрация ниобия в золе угля над тонштейном составляет 1042 г/т, под тонштейном – 628 г/т (рис. 10), для иттрия над тонштейном – 116,4 г/т, под ним – 116 г/т. Для ниобия и иттрия отмечается более обширная зона обогащения, чем для циркония, что свидетельствует о большей подвижности ниобия и иттрия в условиях гипергенеза. Этот факт стоит учитывать при использовании данных элементов при реставрации состава измененной пирокластике, например, при использовании классификационной диаграммы Винчестера и Флойда.

Содержание гафния в золе угля над тонштейном составило 81,2 г/т, под тонштейном – 99,4 г/т. Для тантала концентрация в золе угля выше тонштейна составила 17,2 г/т, ниже – 21,1 г/т. Концентрация тория в золе угля над и под тонштейном достигает 167 и 189 г/т, соответственно. Содержание урана над прослоем составило 68,7 г/т, под ним – 55,9 г/т. Накопление РЗЭ в золе угля достигает 498 г/т над тонштейном и 1082 г/т под ним (рис. 10). Наиболее подвижными из этой группы элементов являются РЗЭ. Это подтверждается широкой зоной обогащения РЗЭ золы углей, на которую оказал влияние пирокластический материал.

Для оценки условий накопления лантаноидов в углях были пронормированы содержания РЗЭ в золе угля, а также в самом угле на кларк в земной коре. При анализе кривых распределения РЗЭ мы руководствовались рекомендациями В.В. Середина и Ш. Дая [26].

Графики распределения РЗЭ в угле, находящемся выше тонштейна, отнесены к Н-типу (рис. 11, а), лишь график для пробы угля (Хар-10-21), находящегося непосредственно на контакте с тонштейном, имеет L-тип (рис. 11, б). Все спектры характеризуются отрицательной европиевой аномалией, что свидетельствует о связи накопления РЗЭ с пирокластическим материалом кислого состава. Также отмечается наличие отрицательной аномалии празеодима и положительной иттербия, обе аномалии являются слабовыраженными.

Характер нормированных графиков распределения РЗЭ в угле под тонштейном вблизи контакта с ним (рис. 11, с) аналогичен таковым для угля над тонштейном и схож с самим тонштейном, что свидетельствует о влиянии в обоих случаях пеплового материала на накопление РЗЭ. Для всех указанных спектров характерна отрицательная европиевая аномалия, слабо выраженные Pr- и Yb-аномалии. Ниже лежащий уголь (Хар-3-21) отличается L-М-типом распределения РЗЭ (рис. 11, д), европиевая аномалия становится слабо выраженной, что свидетельствует об уменьшении воздействия пирокластического материала на накопление РЗЭ в угле. В спектре данной пробы угля отмечается положительные аномалии Y и Yb.

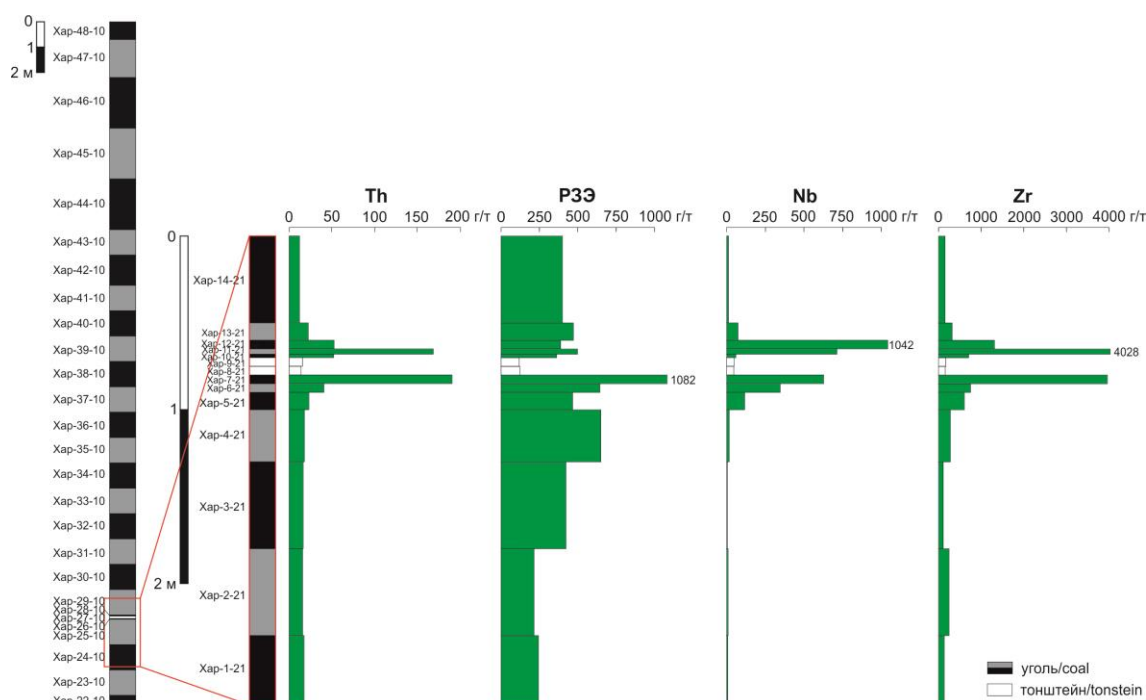


Рис. 10. Распределение Th, P3Э, Nb, Zr в золе угля в вертикальном разрезе пласта Новый-1а

Fig. 10. Distribution of Th, REE, Nb, Zr in coal ash (vertical cross section of Novy-1a coal seam)

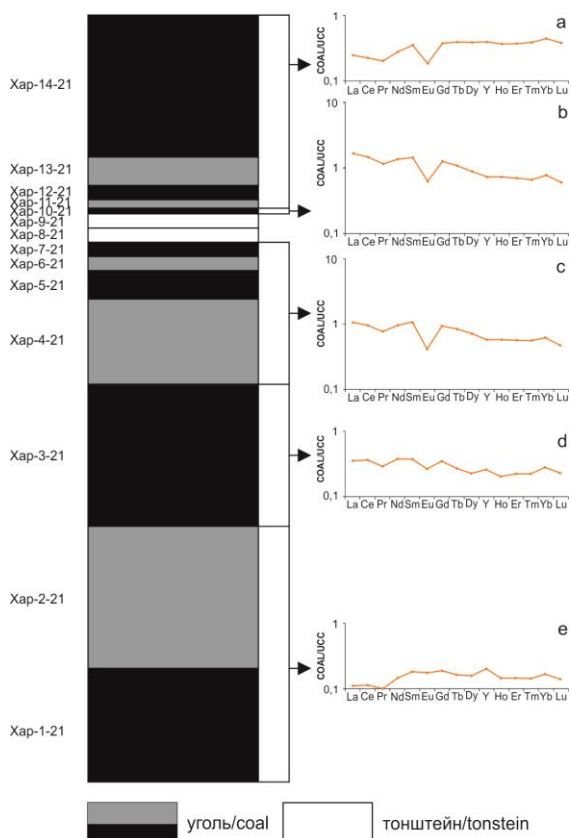


Рис. 11. Распределение P3Э в угле над и под тонштейном: а) H-тип; б, в) L-тип; д) L-M-тип; е) H-M-тип распределения P3Э. Нормировано на кларк в верхней континентальной земной коре [19]

Fig. 11. REE distribution patterns in coals above and under tonstein: а) H-type; б, в) L-type; д) L-M-type; е) H-M-type. Normalized by average REY content of upper continental crust (UCC) [19]

Графики распределения P3Э в угле (Хар-2-21, Хар-1-21), находящемся на удалении от тонштейна, относятся к Н-М-типу (рис. 11, е), указывающему на гидрогенный механизм накопления лантаноидов. Графики характеризуются отсутствием отрицательной аномалии Eu. Однако отмечена отрицательная аномалия Pr, положительные аномалии Y и Yb.

Таким образом, использование комплекса методов, учитывающих минералого-геохимические особенности изучаемых пород, позволило реставрировать состав исходного материала, послужившего источником для формирования тонштейна в угольном пласте Новый-1а, как трахидацитовый.

В связи с поступлением пеплового материала в палеоторфяник и его дальнейшим преобразованием в углях за пределами тонштейна сформировались контрастные геохимические аномалии большой группы элементов (P3Э, Zr, Nb, Y, Ta, Hf, Th и U), определивших геохимическую специализацию угольных пластов и месторождений региона. Из этих данных также следует, что вулканизм этого периода не является источником аномального накопления W, Mo и Ge, характерного для многих угольных месторождений западного и центрального Забайкалья [27].

Заключение

Изучены минералого-геохимические особенности тонштейна из угольного пласта Новый-1а бурогоугольного Харанорского месторождения. Минеральный состав, структурно-текстурные и геохимические особенности тонштейна позволили установить апопепловый генезис данного породного прослоя.

Данные, полученные в результате проведенного исследования, свидетельствуют о том, что изученный

тонштейн сформировался при участии кислой щелочной пирокластики (трахидацит).

Установлено обогащение углей под влиянием преобразования пирокластики широкой группой литофильных редких элементов, характерных для кислой и щелочной пирокластики. Наиболее высокие содержания редких элементов-примесей в угле, а особенно в золе угля пласта Новый-1а приурочены к участкам контакта тонштейна и угля. Наиболее значительное обогащение характерно для РЗЭ, Zr, Nb,

Y, Ta, Hf, Th и U. Набор элементов и их концентрация в тонштейне и в золе угля на контакте с прослоем подтверждают выводы о природе и исходном составе пирокластики, сформировавшей тонштейн, и указывают на важную роль вулканизма в формировании геохимической специализации месторождений угля.

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда № 18-17-00004.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Черновьянц М.Г. Тонштейны и их использование при изучении угленосных формаций. – М.: Недра, 1992. – 144 с.
2. Bohor B.F., Triplehorn D.M. Tonsteins: altered volcanic-ash layers in coal-bearing sequences. – Boulder, Colorado, Geological Society of America Special Paper, 1993. – 285 p.
3. Altered volcanic ashes in coal and coal-bearing sequences: a review of their nature and significance / S. Dai, C.R. Ward, I.T. Graham, D. French, J.C. Hower, L. Zhao, X. Wang // *Earth-Science Reviews*. – 2017. – V. 175. – P. 44–74. URL: <https://doi.org/10.1016/j.earscirev.2017.10.005> (дата обращения 15.05.2022).
4. Угольная база России. Т. IV. Угольные бассейны и месторождения Восточной Сибири. – М.: ЗАО «Геоинформарк», 2002. – 493 с.
5. Государственная геологическая карта Российской Федерации. Масштаб 1:200000. Издание второе. Серия Приаргунская. Лист М50-XV, XXI (Борзя, Даурия). Объяснительная записка. – М.: МФ ВСЕГЕИ, 2015. – 206 с.
6. Усреднение качества бурого угля на Харанорском буровугольном месторождении / Ю.М. Овешников, Ю.В. Субботин, П.Б. Авдеев, А.Г. Самойленко // *Горный информационно-аналитический бюллетень*. – 2016. – № 4. – С. 326–337.
7. Судыко А.Ф. Определение элементного состава углей и зол нейтронно-активационным методом // *Проблемы и перспективы развития материально-сырьевой базы и предприятий ТЭК Сибири: Материалы межрегиональной научно-практической конференции*. – Томск: Изд-во ТПУ, 2007. – С. 293–297.
8. Аналитические подходы к количественному определению содержания химических элементов в углях и углистых породах с использованием методов ИСП-МС и ИНАА / Н.В. Зарубина, М.Г. Блохин, Д.С. Остапенко, И.Ю. Чекрыжов, С.И. Арбузов, А.Ф. Судыко // *Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов*. – 2021. – Т. 332. – № 3. – С. 99–112. URL: <https://doi.org/10.18799/24131830/2021/3/3105> (дата обращения 15.05.2022).
9. Spears D.A., Kanaris-Sotiriou R. A geochemical and mineralogical investigation of some British and other European tonsteins // *Sedimentology*. – 1979. – V. 26. – P. 407–425. URL: <https://doi.org/10.1111/j.1365-3091.1979.tb00917.x> (дата обращения 15.05.2022).
10. Вергунов А.В. Минералогия и геохимия тонштейнов в углях Черногорского месторождения Минусинского бассейна // *Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов*. – 2021. – Т. 332. – № 6. – С. 118–129. URL: <https://doi.org/10.18799/24131830/2021/6/3242> (дата обращения 15.05.2022).
11. Grigorev N.A. Average concentrations of chemical elements in rocks of the upper continental crust // *Geochemistry International*. – 2003. – V. 41. – № 7. – P. 711–718.
12. Юдович Я.Э., Кетрис М.П. Основы литохимии. – СПб: Наука, 2000. – 479 с.
13. Nature of tonsteins in the Azeisk deposit of the Irkutsk Coal Basin (Siberia, Russia) / S.I. Arbuzov, A.M. Mezhibor, D.A. Spears, S.S. Ilenok, M.V. Shal'dybin, E.V. Belaya // *International Journal of Coal Geology*. – 2016. – V. 152. – P. 99–111. URL: <https://doi.org/10.1016/j.coal.2015.12.001> (дата обращения 15.05.2022).
14. Spears D.A., Arbuzov S.I. A geochemical and mineralogical update on two major tonsteins in the UK Carboniferous Coal Measures // *International Journal of Coal Geology*. – 2019. – V. 210. URL: <https://doi.org/10.1016/j.coal.2019.05.006> (дата обращения 15.05.2022).
15. An unusual occurrence of ferroan magnesite in a tonstein from the Minusinsk Basin in Siberia, Russia / L.N. Thompson, R.B. Finkelman, S.I. Arbuzov, D.H. French // *Chemical Geology*. – 2021. – V. 568. URL: <https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2021.120131> (дата обращения 15.05.2022).
16. Geochemical characteristics and the significance of two major coal-bearing strata claststones from the Datong Coalfield (North China) / L. Liu, J. Li, J. Zhang, R. Hao, X. Kang, Q. Liu // *Geological Journal*. – 2022. – P. 1–19. URL: <https://doi.org/10.1002/gj.4389> (дата обращения 15.05.2022).
17. Минералого-геохимическая идентификация продуктов эксплозивного вулканизма в углях Минусинского бассейна / С.И. Арбузов, С.С. Ильенок, А.В. Вергунов, М.В. Шалдыбин, В.М. Соболенко, П.Е. Некрасов // *Петрология магматических и метаморфических комплексов. Вып. 9. Материалы IX Всероссийской петрографической конференции с международным участием*. – Томск: Изд-во Томского ЦНТИ, 2017. – С. 35–37.
18. Winchester J.A., Floyd P.A. Geochemical discrimination of different magma series and their differentiation products using immobile elements // *Chemical Geology*. – 1977. – V. 20. – P. 325–343. URL: [https://doi.org/10.1016/0009-2541\(77\)90057-2](https://doi.org/10.1016/0009-2541(77)90057-2) (дата обращения 15.05.2022).
19. Taylor S.R., McLennan S.M. The continental crust: its composition and evolution. – Oxford: Blackwell Scientific, 1985. – 312 p.
20. McDonough W.F., Sun S. The composition of the Earth // *Chemical Geology*. – 1995. – V. 120. – P. 223–253. URL: [https://doi.org/10.1016/0009-2541\(94\)00140-4](https://doi.org/10.1016/0009-2541(94)00140-4) (дата обращения 15.05.2022).
21. Crowley S.S., Stanton R.W., Ryer T.A. The effects of volcanic ash on the maceral and chemical composition of the c coal bed, emery coal field, Utah // *Organic Geochemistry*. – 1989. – V. 14. – P. 315–331.
22. Hower J.C., Ruppart L.F., Cortland F.E. Lanthanide, yttrium, and zirconium anomalies in the fire clay coal bed, eastern Kentucky // *International Journal of Coal Geology*. – 1999. – V. 39. – P. 141–153. URL: [https://doi.org/10.1016/S0166-5162\(98\)00043-3](https://doi.org/10.1016/S0166-5162(98)00043-3) (дата обращения 15.05.2022).
23. Petrology of the Fire Clay coal, Bear Branch, Perry County, Kentucky / J. C. Hower, C. F. Eble, M. Mastalerz // *International Journal of Coal Geology*. – 2022. – V. 249. URL: <https://doi.org/10.1016/j.coal.2021.103891> (дата обращения 15.05.2022).
24. Mineralogy and geochemistry of the no. 6 coal (Pennsylvanian) in the Junger coalfield, Ordos basin, China / S. Dai, D. Ren, C.-L. Chou, S. Li, Y. Jiang // *International Journal of Coal Geology*. – 2006. – V. 66. – P. 253–270. <https://doi.org/10.1016/j.coal.2005.08.003> (дата обращения 15.05.2022).
25. Mineralogy and geochemistry of boehmite-rich coals: new insights from the Haerwusu surface mine, Jungar coalfield, Inner Mongolia, China / S. Dai, D. Li, C.-L. Chou, L. Zhao, Y. Zhang, D. Ren, Y. Ma, Y. Sun // *International Journal of Coal Geology*. – 2008. – V. 74. – P. 185–202. URL: <https://doi.org/10.1016/j.coal.2008.01.001> (дата обращения 15.05.2022).

26. Seredin V., Dai S. Coal deposits as potential alternative sources for lanthanides and yttrium // International Journal of Coal Geology. – 2012. – V. 94. – P. 67–93. URL: <https://doi.org/10.1016/j.coal.2011.11.001> (дата обращения 15.05.2022).
27. Мейтов Е.С. Металлоносность углей // Угольная база России. Т. IV. Угольные бассейны и месторождения Восточной Сиби-

ри (Тунгусский и Таймырский бассейны, месторождения Забайкалья). – М.: ЗАО «Геоинформмарк», 2001. – С. 293–301.

Поступила 04.06.2022 г.

Информация об авторах

Вергунов А.В., кандидат геолого-минералогических наук, учебный мастер отделения геологии Инженерной школы природных ресурсов Национального исследовательского Томского политехнического университета; старший научный сотрудник Дальневосточного геологического института ДВО РАН.

Арбузов С.И., доктор геолого-минералогических наук, профессор отделения геологии Инженерной школы природных ресурсов Национального исследовательского Томского политехнического университета; заместитель директора по научной работе Дальневосточного геологического института ДВО РАН.

Соктоев Б.Р., кандидат геолого-минералогических наук, доцент отделения геологии Инженерной школы природных ресурсов Национального исследовательского Томского политехнического университета.

Ильенок С.С., кандидат геолого-минералогических наук, старший преподаватель отделения геологии Инженерной школы природных ресурсов Национального исследовательского Томского политехнического университета.

Чекрыжов И.Ю., научный сотрудник лаборатории геохимии Дальневосточного геологического института ДВО РАН.

UDC 552.52:550.42

MINERALOGY AND GEOCHEMISTRY OF TONSTEIN FROM COAL SEAM NOVY-1A, KHARANOR DEPOSIT (ZABAYKALSKY KRAI)

Alexey V. Vergunov^{1,2},
alexeivergunov@rambler.ru

Sergey I. Arbuzov^{1,2},
siarbuzov@mail.ru

Bulat R. Soktoev¹,
bulatsoktoev@tpu.ru

Sergey S. Ilenok¹,
ilenokss@tpu.ru

Igor Yu. Chekryzhov²,
chekr2004@mail.ru

¹ National Research Tomsk Polytechnic University,
30, Lenin avenue, Tomsk, 634050, Russia.

² Far East Geological Institute, Far Eastern Branch of the Russian Academy of Sciences,
159, 100-letiya Vladivostoka avenue, Vladivostok, 690022, Russia.

The relevance of the work is conditioned by the need to clarify the role of pyroclastic material in the formation of coal-bearing deposits and the geochemical background of rare elements in coal.

The main aim is to discover the nature of tonstein from the Novy-1a coal seam of the Kharanor brown coal deposit.

Objects: coal and tonstein of the Novy-1a coal seam from Kharanor coal field.

Methods: sampling of the Novy-1a coal seam at the Kharanor coal deposit; chemical composition was determined by inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS), inductively coupled plasma atomic emission spectrometry (ICP-AES), instrumental neutron activation analysis (INAA); mineral composition was studied by optical microscopy, scanning electron microscopy, X-ray diffractometry.

Results. As a part of the study, tonstein from the Novy-1a coal seam at the Kharanor brown coal deposit was investigated. Mineral composition, structural-textural and geochemical features of tonstein allowed us to establish its altered volcanic genesis. A set of criteria made it possible to determine the composition of the initial pyroclastic material from which tonstein was formed. We established that the studied tonstein was formed from ashes of trachydacite composition. High concentrations of rare trace elements in coal are confined to contact zones with tonstein. The highest concentrations in the contact zones were noted for REE, Zr, Nb, Y, Ta, Hf, Th and U. List of chemical elements and their concentrations in tonstein and in coal ash on contact with the interlayer confirm the conclusions about the nature and initial composition of the pyroclastic material that formed tonstein.

Key words:

Coal, tonstein, geochemistry, volcanism, Zabaykalsky Krai.

The research was carried out under the support of the grant of the Russian Science Foundation (Project no. 18-17-00004).

REFERENCES

- Chernovyants M.G. *Tonshteyny i ikh ispolzovanie pri izuchenii ugliosnykh formatsiy* [Tonsteins and their use in the study of coal-bearing formations]. Moscow, Nedra Publ., 1992. 144 p.
- Bohor B.F., Triplehorn D.M. *Tonsteins: altered volcanic-ash layers in coal-bearing sequences*. Boulder, Colorado, Geological Society of America Special Paper, 1993. 285 p.
- Dai S., Ward C.R., Graham I.T., French D., Hower J.C., Zhao L., Wang X. Altered volcanic ashes in coal and coal-bearing sequences: a review of their nature and significance. *Earth-Science Reviews*, 2017, vol. 175, pp. 44–74. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.earscirev.2017.10.005> (accessed 15 May 2022).
- Ugolnaya baza Rossii. T. 4. *Ugolnye basseyny i mestorozhdeniya Vostochnoy Sibiri* [Coal base of Russia. Vol. IV. Coal basins and deposits of Eastern Siberia]. Moscow, Geoinformark Publ., 2002. 493 p.
- Gosudarstvennaya geologicheskaya karta RF. *Masshtab 1:2000. Izdanie vtoroe. Seriya Priargunskaya. List M50-XV (Borzya, Dauria). Obyasnitelnaya zapiska* [State geological map of the Russian Federation. Scale 1:2000 (second series). Series Priargunskaya. Sheet M50-XV, Borzya, Dauria. Explanatory note]. Moscow, Cartridge factory Russian Geological Research Institute Publ., 2015. 206 p.
- Oveshnikov Y.M., Subbotin Yu.V., Avdeev P.B., Samoilenko A.G. *Usrednenie kachestva burogo uglya na Kharanorskom burougolnom mestorozhdenii* [Averaging the quality of brown coal at the Kharanor brown coal deposit]. *Gornyy informatsionno-analiticheskiy byulleten*, 2016, no. 6, pp. 326–337.
- Sudyko A.F. *Opredeleyeniye elementnogo sostava ugley i zol neytronno-aktivatsionnym metodom* [Determination of the elemental composition of coals and ashes by the neutron activation method]. *Problemy i perspektivy razvitiya materialno-syryevoy bazy i predpriyatiy TEK Sibiri: Materialy mezhtseleynoy nauchno-prakticheskoy konferentsii* [Problems and prospects for the development of the material and raw materials base and enterprises of the fuel and energy complex of Siberia: Proceedings of the interregional scientific and practical conference]. Tomsk: House of TPU Publ., 2007. – pp. 293–297.
- Zarubina N.V., Blokhin M.G., Ostapenko D.S., Chekryzhov I.Yu., Arbuzov S.I., Sudyko A.F. Analytical approaches to the quantitative determination of the chemical elements content in coals and coal rocks using ICP-MS and INAA methods. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2021,

- vol. 332, no. 3, pp. 99–112. In Rus. Available at: <https://doi.org/10.18799/24131830/2021/3/3105> (accessed 15 May 2022).
9. Spears D.A., Kanaris-Sotiriou R. A geochemical and mineralogical investigation of some British and other European tonsteins. *Sedimentology*, 1979, vol. 26, pp. 407–425. Available at: <https://doi.org/10.1111/j.1365-3091.1979.tb00917.x> (accessed 15 May 2022).
 10. Vergunov A.V. Mineralogy and geochemistry of tonsteins in the coals of the Chernogorsk deposit of the Minusinsk Basin. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2021, vol. 332, no. 6, pp. 118–129. In Rus. Available at: <https://doi.org/10.18799/24131830/2021/6/3242> (accessed 15 May 2022).
 11. Grigorev N.A. Average concentrations of chemical elements in rocks of the upper continental crust. *Geochemistry International*, 2003, vol. 41, no. 7, pp. 711–718.
 12. Yudovich Ya.E., Ketris M.P. *Osnovy litokhimii* [Foundations of lithochemistry]. St-Petersburg, Nauka Publ., 2000. 479 p.
 13. Arbuzov S.I., Mezhibor A.M., Spears D.A., Ilenok S.S., Shaldybin M.V., Belaya E.V. Nature of Tonsteins in the Azeisk Deposit of the Irkutsk Coal Basin (Siberia, Russia). *International Journal of Coal Geology*, 2016, vol. 152, pp. 99–111. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.coal.2015.12.001> (accessed 15 May 2022).
 14. Spears D.A., Arbuzov S.I. A geochemical and mineralogical update on two major tonsteins in the UK Carboniferous Coal Measures. *International Journal of Coal Geology*, 2019, vol. 210, article 103199. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.coal.2019.05.006> (accessed 15 May 2022).
 15. Thompson L.N., Finkelman R.B., Arbuzov S.I., French D.H. An unusual occurrence of ferroan magnesite in a tonstein from the Minusinsk Basin in Siberia, Russia. *Chemical Geology*, 2021, vol. 568, article 120131. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2021.120131> (accessed 15 May 2022).
 16. Liu L., Li J., Zhang J., Hao R., Kang X., Liu Q. Geochemical characteristics and the significance of two major coal-bearing strata claystones from the Datong Coalfield (North China). *Geological Journal*, 2022, pp. 1–19. Available at: <https://doi.org/10.1002/gj.4389> (accessed 15 May 2022).
 17. Arbuzov S.I., Ilenok S.S., Vergunov A.V., Shaldybin M.V., Sobolenko V.M., Nekrasov P.E. Mineralogo-geokhimicheskaya identifikatsiya produktov eksplozivnogo vulkanizma v uglyakh Minusinskogo basseyna [Mineralogical and geochemical identification of products of explosive volcanism in the coals of the Minusinsk basin]. *Petrologiya magmaticheskikh i metamorficheskikh kompleksov. Vyp. 9 Materialy IX Vserossiyskoy petrograficheskoy konferentsii s mezhdunarodnym uchastiyem* [Petrology of magmatic and metamorphic complexes. Iss. 9. Materials of the IX All-Russian Petrographic Conference with international participation]. Tomsk, Tomsk scientific and technical information center Publ., 2017. pp. 35–37.
 18. Winchester J.A., Floyd P.A. Geochemical discrimination of different magma series and their differentiation products using immobile elements. *Chemical Geology*, 1977, vol. 20, pp. 325–343. Available at: [https://doi.org/10.1016/0009-2541\(77\)90057-2](https://doi.org/10.1016/0009-2541(77)90057-2) (accessed 15 May 2022).
 19. Taylor S.R., McLennan S.M. *The continental crust: its composition and evolution*. Oxford, Blackwell Scientific, 1985. 312 p.
 20. McDonough W.F., Sun S.-S. The composition of the Earth. *Chemical Geology*, 1995, vol. 120, pp. 223–253. Available at: [https://doi.org/10.1016/0009-2541\(94\)00140-4](https://doi.org/10.1016/0009-2541(94)00140-4) (accessed 15 May 2022).
 21. Crowley S.S., Stanton R.W., Ryer T.A. The effects of volcanic ash on the maceral and chemical composition of the c coal bed, emery coal field, Utah. *Organic Geochemistry*, 1989, vol. 14, pp. 315–331.
 22. Hower J.C., Ruppert L.F., Cortland F.E. Lanthanide, yttrium, and zirconium anomalies in the fire clay coal bed, eastern Kentucky. *International Journal of Coal Geology*, 1999, vol. 39, pp. 141–153. Available at: [https://doi.org/10.1016/S0166-5162\(98\)00043-3](https://doi.org/10.1016/S0166-5162(98)00043-3) (accessed 15 May 2022).
 23. Hower J.C., Eble C. F., Mastalerz M. Petrology of the Fire Clay coal, Bear Branch, Perry County, Kentucky. *International Journal of Coal Geology*, 2022, vol. 249, article 103891. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.coal.2021.103891> (accessed 15 May 2022).
 24. Dai S., Ren D., Chou C.-L., Li S., Jiang Y. Mineralogy and geochemistry of the no. 6 coal (Pennsylvanian) in the Junger coalfield, Ordos basin, China. *International Journal of Coal Geology*, 2006, vol. 66, pp. 253–270. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.coal.2005.08.003> (accessed 15 May 2022).
 25. Dai S., Li D., Chou C.-L., Zhao L., Zhang Y., Ren D., Ma Y., Sun Y. Mineralogy and geochemistry of boehmite-rich coals: new insights from the Haerwusu surface mine, Jungar coalfield, Inner Mongolia, China. *International Journal of Coal Geology*, 2008, vol. 74, pp. 185–202. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.coal.2008.01.001> (accessed 15 May 2022).
 26. Seredin V., Dai S. Coal deposits as potential alternative sources for lanthanides and yttrium. *International Journal of Coal Geology*, 2012, vol. 94, pp. 67–93. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.coal.2011.11.001> (accessed 15 May 2022).
 27. Meytov E.S. Metallonosnost ugley [Metal content of coals]. *Ugolnaya baza Rossii. T. IV. Ugolnye basseyny i mestorozhdeniya Vostochnoy Sibiri* [Russia coal base. Vol. IV. Coal basins and deposits of Eastern Siberia]. Moscow, Geoinformmark Publ., 2001. pp. 293–301.

Received: 4 June 2022.

Information about the authors

Alexey V. Vergunov, Cand. Sc., training instructor, National Research Tomsk Polytechnic University; senior researcher, Far East Geological Institute, Far Eastern Branch of the Russian Academy of Sciences.

Sergey I. Arbuzov, Dr. Sc., professor, National Research Tomsk Polytechnic University; deputy director for scientific research, Far East Geological Institute, Far Eastern Branch of the Russian Academy of Sciences.

Bulat R. Soktoev, Cand. Sc., assistant professor, National Research Tomsk Polytechnic University.

Sergey S. Ilenok, Cand. Sc., senior lecturer, National Research Tomsk Polytechnic University.

Igor Yu. Chekryzhov, researcher, Far East Geological Institute, Far Eastern Branch of the Russian Academy of Sciences.

UDC 621.352.3

VALIDATION OF SEMI-EMPIRICAL TEMPERATURE MODEL OF PEMFC USING ATOM SEARCH OPTIMIZATION ALGORITHM

Amine Abbou¹,
abbou.amin@gmail.com

Abdennebi El Hassnaoui²,
elhasnaoui@enim.ac.ma

¹ Mohammadia School of Engineers,
765, Ibn Sina B.P. avenue, Agdal-Rabat, 10090, Morocco.

² National superior school of mines,
753, Hadj Ahmed Cherkaoui B.P. avenue, Agdal-Rabat, 10000, Morocco.

Proton Exchange Membrane Fuel Cell (PEMFC) has unique thermal characteristics. The change in PEMFC temperature directly effects the PEMFC performance. The voltage and temperature of PEMFC at different loading/ambient conditions is not easy to predict. In this work a newly developed semi-empirical model is used and the parameters of the model are optimized for single cell PEMFC (base-case) by using atom search optimization. The semi-empirical model was developed and tested for stack PEMFC system but any model developed for PEMFC cannot be validated unless it is effective for single-cell PEMFC system. The new parameters show promising results and hence the model works is considered as good model. Previously due to unknown base-case parameters the ranges selected for parameters are extremely large. In this model by considering the base-case parameters and previously extracted parameters the new short ranges for parameters are given so that in future the optimization of parameters will take less time and this increases the chances of this model to be used in online prediction of PEMFC temperature.

Key words:

Thermal, modelling, optimization, semi-empirical, PEMFC, algorithm.

Introduction

Proton Exchange Membrane Fuel Cell (PEMFC) is a clean alternate energy source that uses oxygen and hydrogen as fuel. There are two types of PEMFCs: low temperature LT-PEMFC which operates under 373,13 K while high temperature HT-PEMFC operates above 373,13 K. Most commercial PEMFCs are LT-PEMFC for small scale power. HT-PEMFC is also getting popular and in near future both types of PEMFCs will be used for commercial uses [1–3].

LT-PEMFC which is commonly referred as PEMFC has more application now-a-days than HT-PEMFC. The thermal characteristics are of extreme importance for

PEMFC, the heat is produced during exothermic reaction and the portion of this energy is converted into electricity and rest of it is lost as heat energy. Due to this feature the PEMFC temperature increases, this is the main issue with PEMFC that must be operated at certain temperature range which enhances the its efficiency. Very low and very high temperature is not good for PEMFC performance. Ambient temperatures also effect the PEMFC temperature directly that is why most of the thermal/temperature models consider the ambient temperature as well [4–7].

There are various techniques to model the PEMFC temperature. They are listed in Table 1 [8].

Table 1. PEMFC thermal modelling techniques

Таблица 1. Методы термического моделирования ТЭПОМ

Sr no. № Sr	PEMFC thermal/temperature modelling approach Подход к тепловому/температурному моделированию PEMFC	Implementation procedure Процедура внедрения
1	Analytical/mechanistic approach Аналитический/механистический подход	Implemented through numerical/analytical techniques by having deep knowledge of chemical/electrical and mechanical structure of PEMFC Реализовано с помощью численных/аналитических методов благодаря глубоким знаниям химической/электрической и механической структуры ТЭПОМ
2	Semi-empirical approach Полуэмпирический подход	Implemented through less complex linear and non-linear equations which are combination of mechanistic and empirical approach Реализуется с помощью менее сложных линейных и нелинейных уравнений, которые представляют собой комбинацию механистического и эмпирического подхода
3	Empirical approach Эмпирический подход	Implemented through artificial intelligence, statistical analysis and electrochemical impedance spectroscopy (EIS) etc. Реализовано с помощью искусственного интеллекта, статистического анализа, спектроскопии электрохимического импеданса (EIS) и т. д.

The analytical approach of thermal modelling has been done in [9], the model considers one-dimensional flow of gases and PEMFC temperature model, the results are promising but the model is too much complex and cannot be used for online purposes. The numerical model/investigation of PEMFC is given in [10], this model is also very complex. The modern thermal models are moved towards empirical approach, in [11, 12] the empirical thermal models of PEMFC are given, the empirical models are not that reliable as compared to mechanistic/analytical approach. The thermal model of PEMFCs require extensive study and most empirical models use data driven approach which is not adequate for modelling the complex system of PEMFC. Semi-empirical approach is therefore a good option for thermal modelling of PEMFC. A good semi-empirical approach has been used in [6] but more effective and simpler approach was used in [13], this approach is further updated in [14] where Area A and number of cells N in the PEMFC stack are used in the modelling equations.

Good PEMFC models such as [15] model is first tested on single cell PEMFC and then the models are extended towards PEMFC stacks where cells are attached in series to get high voltage. But due to commercial use of PEMFCs most models now-a-days are tested and validated on stack system. The models in [13, 14] are tested on PEMFC stacks. These models are never tested/validated on single PEMFC system. It is necessary to test the models on single PEMFC especially in case of mechanistic/semi-empirical models.

In this research the model of [14] is tested on single cell PEMFC, the parameters of the model are optimized by using Atom Search optimizer (ASO) presented in [16] which is better and modern optimization technique as compared to Lightning Search Algorithm and Quantum Lightning Search Algorithm which were used for optimization in [13, 14]. The results show that the new parameters give good results and the model seems to fit with root mean square error (RMSE) less than 0.5. The parameters varied so much from the previous research work, however there is no bifurcation for low and high currents as explained in [14], single cell PEMFC exhibit different characteristics than stack of PEMFC. The model parameters can be considered as the base ones which were missing in previous research work.

The research work first explains the mechanistic thermal model of PEMFC, then details the semi-empirical model of [14] along with the implementation algorithm, next briefly explains the Atom Search Optimization, after that introduces the results and discussions, and finally the conclusion/future prospects of the research.

Mechanistic (theoretical) thermal model of PEMFC

PEMFC is an electrochemical cell that provides electricity by consuming hydrogen and oxygen as fuel. The hydrogen and oxygen are supplied at a specified pressure and they react in the presence of the platinum catalyst. The reaction produces energy which is converted into electricity and heat. The by-product of reaction is water and no carbon emission occurs during the reaction. The

energy balance (thermodynamic) of PEMFC is given in equation (1) :

$$q_{net} = q_{chem} - q_{elec} - q_{sens+latent} - q_{loss}, \quad (1)$$

where q_{net} is the net energy produced; q_{chem} is the chemical energy produced during reaction; q_{elec} is the electrical energy produced; $q_{sens+latent}$ is the sensible and latent heat of PEMFC; q_{loss} is the heat energy loss. The PEMFC temperature is strongly dependent upon the q_{net} and if PEMFC mass m_{fc} and specific heat capacity C_{fc} of PEMFC are known the PEMFC temperature can be easily extracted [6]. These equations are for air cooled PEMFC system, if special cooling mechanism is adopted then the equations can be modified accordingly. The equation for extracting PEMFC temperature is given in equation (2):

$$T = \int \frac{q_{net}}{M_{fc}C_{fc}} dt. \quad (2)$$

The temperature profile along with heat generation and thermal properties of different parts of PEMFC are given in Fig. 1 [17].

Semi-empirical thermal model of PEMFC

The semi-empirical models of PEMFC simplified the equation (2) and convert it into first order exponential equation. The researchers in [18–20] adopted this first order exponential based equation. The simple exponential equation doesn't fulfil all the requirement hence some other supplement equations are used in [19] along with the detailed algorithm in order to model the PEMFC stack temperature. The equation and algorithm are further simplified in [14]. The equations and algorithm for [14] model are given in equation (3):

$$T_{mod}(k) = L_1 I_{t(k)} + L_2 (I_{t(q)} - I_{t(k)}) e^{-L_3(t_k - t_q)} + T_{amb}(t_k) - L_4$$

$$K = 1, 2, 3 \dots \quad (3)$$

Here $T_{mod}(k)$ in Celsius scale is the initial modelled PEMFC temperature; $I_{t(q)}$ is the load current at a sample which is recorded before the last significant change in current referred as q sample; $I_{t(k)}$ is the current at the running sample k; T_{amb} refers to ambient temperature in Celsius scale.

The following expressions in equations (4), (5) are added to first order exponential equation of PEMFC, this may be due to cooling and other complex thermal effects present in PEMFC system:

$$T_{mod1}(t_k) = T_{mod}(t_k) - L_5 \frac{[T_{mod1}(t_k) - T_{mod}(t_q)]}{(t_k - t_q)}, \quad (4)$$

$$T_{mod2}(t_k) = T_{mod1}(t_k) + L_6 \{T_{mod1}(t_k) - T_{mod}(t_q)\}. \quad (5)$$

Here T_{mod2} is the final modeled temperature, and L_1 to L_6 are optimized using ASO while t_k is the time at sample k. Table 2 shows the range values of parameters L (1 to 6) taken from [13], [14] used in the model equations. Parameters L_1 and L_2 are used to convert the current and its difference into temperature; L_3 controls the decay of exponent; L_4 is an offset from the temperature model; L_5 and L_6 are the constant parameters in the differential equations (4) and (5).

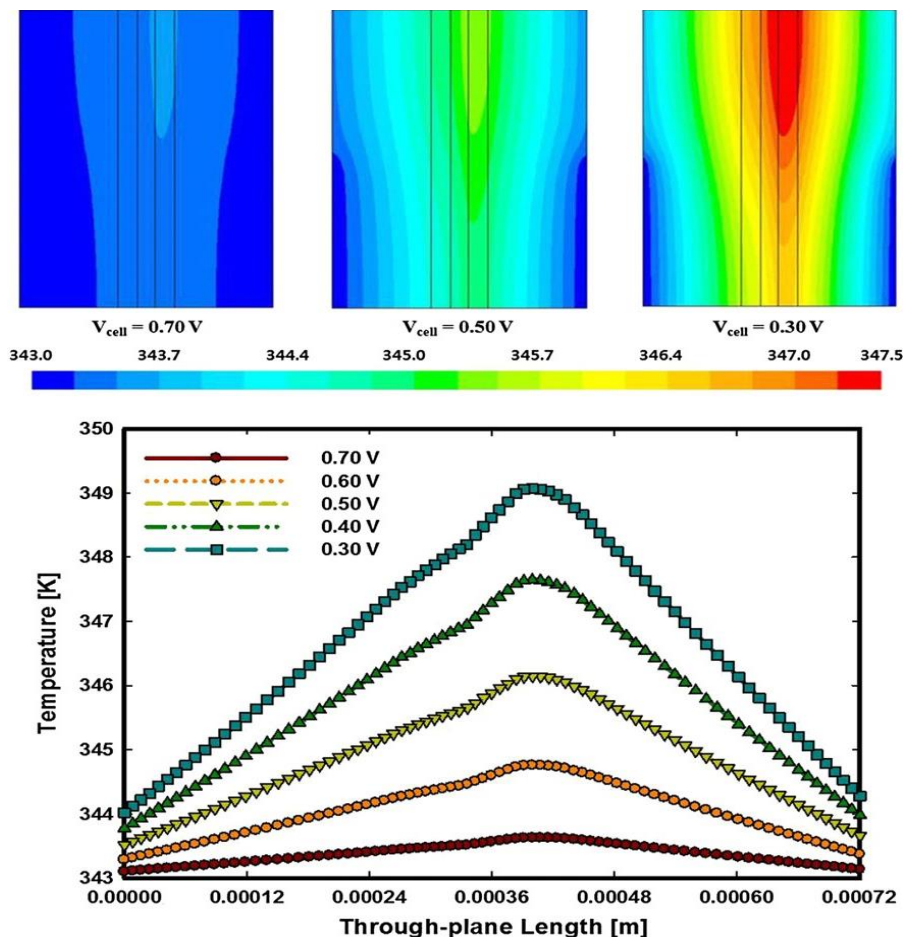


Fig. 1. Thermal profile of PEMFC

Рис. 1. Тепловой профиль ТЭПОМ

Table 2. Parameter ranges for ASO

Таблица 2. Диапазоны параметров для оптимизации поиска атомов (ОПА)

Parameter Параметр	Min	Max	Parameter Параметр	Min	Max
L_1	$1 \cdot 10^{-6}$	5	L_4	-400	400
L_2	$1 \cdot 10^{-6}$	5	L_5	-200	200
L_3	$1 \cdot 10^{-6}$	5	L_6	-200	200

The code for implementing the temperature model is given in Table 3 from [14], here filtering is not required for single PEMFC as small variations must not be neglected. The modelled temperature and ambient temperature will be in Celsius scale.

Atom Search Optimization

Atom Search Optimization (ASO) is also a population-based heuristic algorithm which is inspired by basic molecular dynamics. ASO mimics the atomic motion controlled by interaction and constraint forces to design an effective search mechanism for global optimization problems. The time and accuracy of ASO is better than all well-known optimization algorithms such as Particle Swarm Optimization (PSO), Lightning Search Algorithm (LSA), Gravitational Search Algorithm (GSA) etc. as mentioned in [16]. The atoms join together in a mole-

cule due to force of attraction among them, some atoms have force of repulsion among them as well. Both attraction and repulsion forces are used in this algorithm. The mass of the atom is varied in this algorithm and the heavier atom is close to the main solution. The movement of heavier atoms is slower than that of lighter ones. At first the initial population have been selected randomly where number of atoms, i. e. solutions, have given different values within the range given above. The objective function which is to be minimized is the root mean square error (RMSE) and it is given in equation (6):

$$RMSE = \sqrt{\frac{\sum e_t^2}{n}}. \quad (6)$$

Here e_t is the error between the experimental and modelled values of temperature. At first the repulsion force is dominant in order to scatter the initial population and with the time when some of the atoms are close to the solution the force of attraction dominates. The heavier atoms start to attract the other atoms in order to find the best optimum solution. The formulae for mass calculations, randomizing the initial population, calculating the forces, velocity, acceleration and position can be taken from [16], the Matlab code for ASO is also given on Mathworks (Matlab) website. The pseudocode for ASO is given in Table 4.

Table 3. Code to implement the semi-empirical temperature model

Таблица 3. Код для реализации полужемпирической температурной модели

Data: Experimental measurements of Temperature of PEMFC and current at sample k, set q as unity for initial value Данные: Экспериментальные измерения температуры ТЭПОМ и тока в образце k, q задана как единица для начального значения		
Output: Semi-empirical modelled temperature T_{mod2} (k)/Результат: Полужемпирическая смоделированная температура T_{mod2} (k)		
$T_{mod,1} \rightarrow T_{amb,1}$; Set modelled temperature equal to ambient temperature at start/Установите смоделированную температуру равной температуре окружающей среды при запуске		
$j \rightarrow k$; set value of j equal to present value of sample/установите значение j равным текущему значению выборки		
While $j > 1$ /Когда $j > 1$		
If absolute ($I_t(k) - I_t(j)$) > 1	then/Если абсолютное ($I_t(k) - I_t(j)$) > 1, то	
$I_t(q) \rightarrow I_t(j)$;	Save previous value of load current before sufficient deviation Сохраните предыдущее значение тока нагрузки до достаточного отклонения	
$tq \rightarrow tj$;	Save time value for last significant deviation of current Сохраните значение времени для последнего значительного отклонения тока	
$j \rightarrow 1$;		
end if/завершите, если		
$j \rightarrow j - 5$	instead of one j can be reduced to five samples for reducing runtime as skipping ten samples have negligible effects on results/вместо одного j может быть уменьшено до пяти выборок для сокращения времени выполнения, поскольку пропуск десяти выборок оказывает незначительное влияние на результаты	
end while/завершите, когда		
$I_t(k) < I_t$		
$Li \rightarrow Li$,	low current/малый ток;	low current parameters are to be used должны использоваться параметры низкого тока
Else/Иначе		
$Li \rightarrow Li$,	high current/большой ток;	high current parameters are to be used должны использоваться параметры большого тока
$T_{mod,2} (tk) \rightarrow$	Calculate final value of modelled temperature from equations (3) to (5) Вычислите конечное значение моделируемой температуры $T_{mod,2} (tk)$ из уравнений (3)–(5).	

Table 4. ASO general pseudocode

Таблица 4. Общий псевдокод ОПА

Randomly initialize a set of atoms X (solutions) and their velocity v, and FitBest=Inf. Случайным образом инициализируйте набор атомов X (растворов) и их скорость v, и FitBest=Inf.		
While the stop criterion is not satisfied do/Пока критерий остановки не удовлетворен		
For	each atom Xi do/Для каждого атома Xi	
	Calculate the fitness value Fiti/Рассчитайте значение пригодности Fiti;	
If/Если	Fiti < FitBest	then/to
	FitBest= Fiti;	
	XBest= Xi;	
End if/Закончите, если		
	Calculate the mass using equations/Вычислите массу, используя уравнения	
	Determine the atom neighbors/Определите соседей атома	
	Calculate the forces/Рассчитайте силы	
	Calculate the acceleration and update the velocity and position/Рассчитайте ускорение и обновите скорость и положение	
End for/Закончите		
End while/Закончите, когда		
Find the best solution so far XBest/Найдено лучшее решение на данный момент XBest		

Experiment performed

The experiment is performed on single cell PEMFC (Fischertechnik) of 300 mW power. The pressure of hydrogen remains at 1 atm while pressure of oxygen is 0,9 atm. The maximum limiting current is 0,9 A and the area of PEMFC is 4 cm². The experiment is performed at normal room temperature, i. e. 298,13 K. The load current varies from 0 to 0,7 A, the voltage of PEMFC varies from 1,2 to 0,3 V. Fig. 2 shows the experimental setup and current, voltage and temperature waveform.

Results and discussion

The parameters are already extracted for 1200 and 500 W PEMFC stack in [13, 14]. The parameters are listed in Table 5.

The temperature model extracted from the parameters P-1 and P-2 is shown in Fig. 3. The RMSE is extremely high for these parameters so the new parameters are ex-

tracted by using ASO. The new parameters are the base-line parameters (B-1) for single cell PEMFC.

Table 5. Parameters extracted for 1200 and 500 W PEMFC stack

Таблица 5. Параметры, полученные для ТЭПОМ мощностью 1200 и 500 Вт

Parameter Параметр	Parameter extracted for PEMFC Параметр, полученный для ТЭПОМ	
	1200 W (P-1) мощностью 1200 Вт (P-1)	500 W (P-2) мощностью 500 Вт (P-2)
L ₁	2,6278	0,995
L ₂	2,7825	1,429
L ₃	0,0112	0,031
L ₄	−4,2894	4,461
L ₅	13,0207	0,405
L ₆	−0,36143	0,166

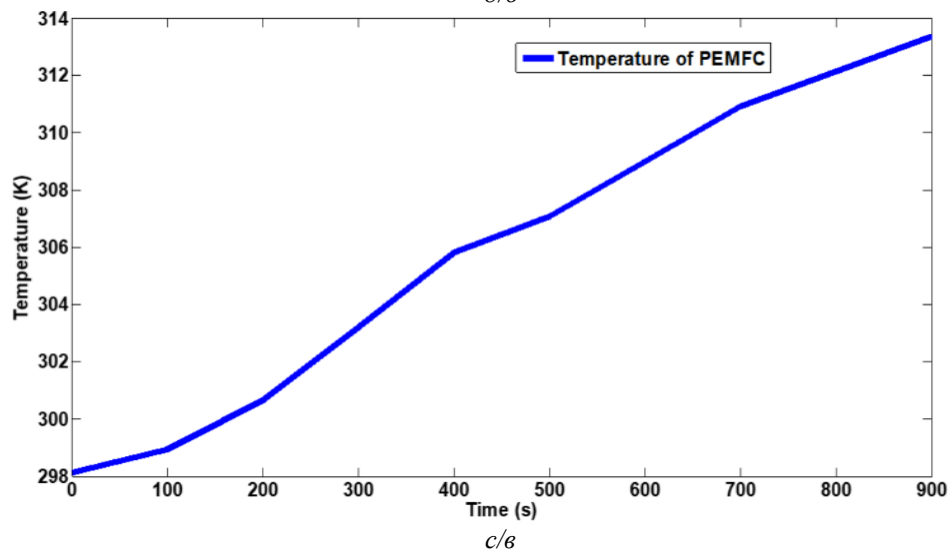
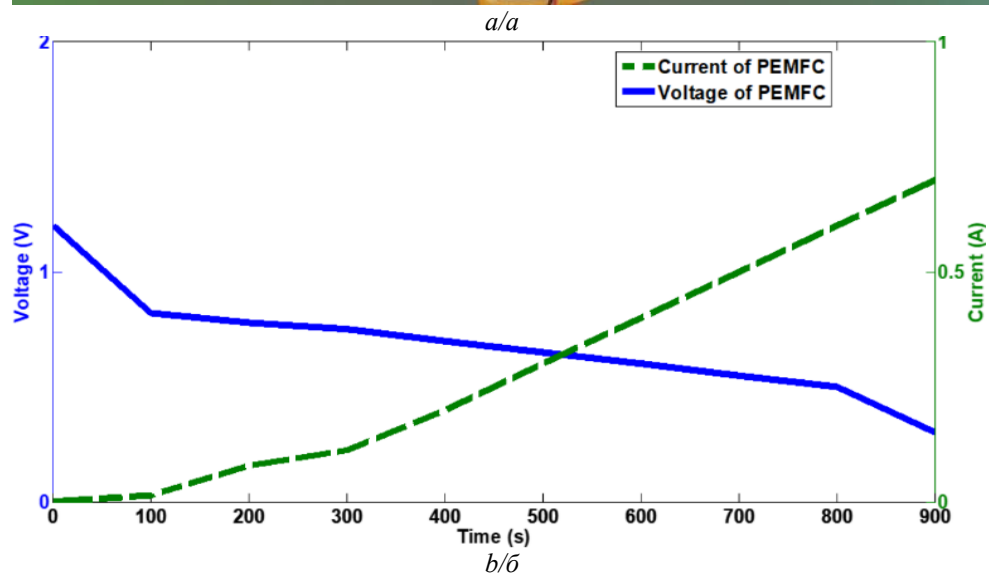
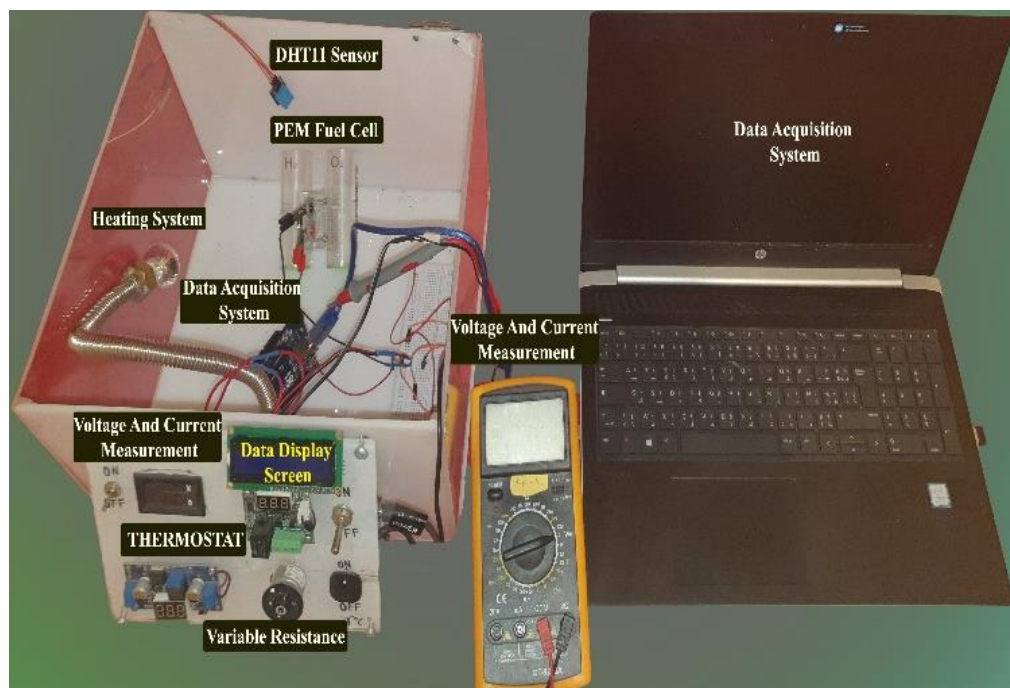


Fig. 2. (a) experimental setup (b); voltage-current curve; (c) temperature curve

Рис. 2. (а) экспериментальная установка; (б) кривая зависимости напряжения от тока; (в) температурная кривая

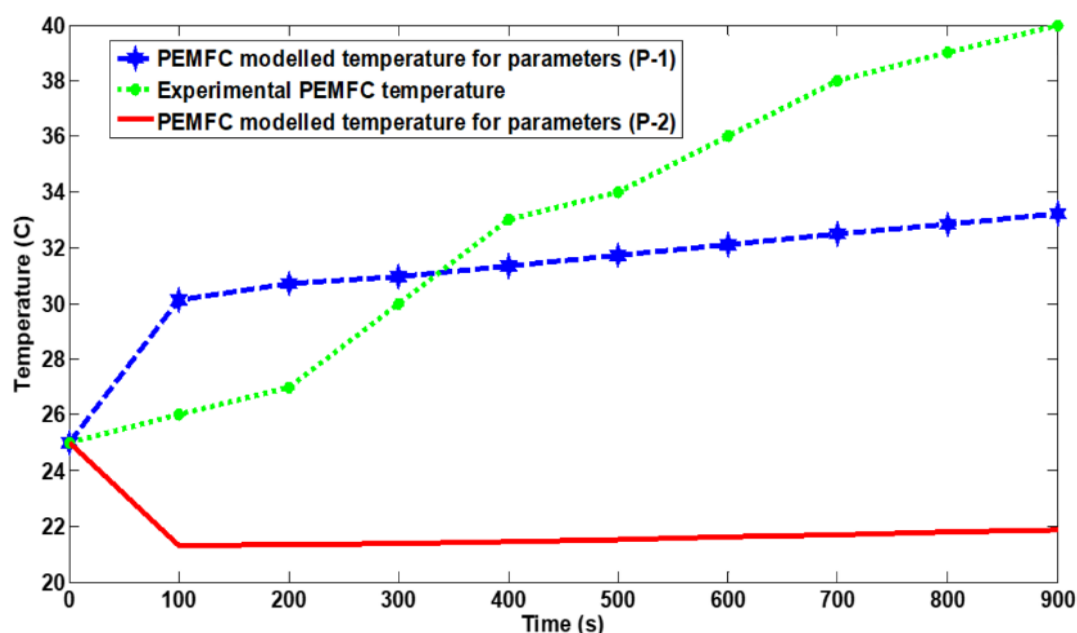


Fig. 3. Temperature model for parameters P-1 and P-2 comparison with experimental temperature

Рис. 3. Температурная модель для сравнения параметров P-1 и P-2 с экспериментальной температурой

Table 6. Parameters extracted for single cell PEMFC using ASO

Таблица 6. Параметры, полученные для одноэлементного ТЭПОМ с использованием ОПА

Parameter Параметр	Parameter extracted for/Параметр, полученный для		
	single cell (B-1) отдельной ячейки (B-1)	1200 W PEMFC (P-1) PEMFC мощностью 1200 Вт (P-1)	500 W PEMFC (P-2) PEMFC мощностью 500 Вт (P-2)
L ₁	1,90680	2,6278	0,995
L ₂	1,94388	2,7825	1,429
L ₃	3,29821	0,0112	0,031
L ₄	-0,62803	-4,2894	4,461
L ₅	93,36161	13,0207	0,405
L ₆	-8,00470	-0,36143	0,166

Table 6 demonstrates that the parameters for single cell PEMFC show lot of variation as compared to the parameters extracted for PEMFC stack system. Fig. 4 gives the comparison of modelled temperature and experimental one. Here RMSE is less than 0,5 which is acceptable in this case.

The parameters change from single cell to 1200 W PEMFC stack in Table 6 are very haphazard. This is due to the cooling system and material choice in various commercial PEMFCs. The thermal characteristics change from one PEMFC to another. 500 W PEMFC stack was manufactured by Horizon while 1200 W – by NEXA. All air cooled PEMFC systems do not exhibit the same behavior, the materials used in PEMFCs are updating day by day [21]. Previously the model in [14] gave equations of the parameters based on the area A and number of fuel cells in the stack as given in Table 7. But these equations are not reliable as in this case the area of PEMFC is 4 cm² and number of fuel cell is 1 so it is not possible to apply the equation on single cell PEMFC. Moreover no such concept of threshold current that differentiate parameters for low and high current is witnessed in this case, parameters (B-1) fit the experimental temperature for all

currents (low and high). Hence it is better to optimize parameters for new type of PEMFC systems again in order to validate the model.

Table 7. Parameters prediction equation for semi-empirical thermal model

Таблица 7. Уравнение прогнозирования параметров для полумпирической тепловой модели

Parameter Параметр	Function (in the low current) Функция (при низком токе)	Function (in the high current) Функция (при сильном токе)
L ₁	0,403+1,071 NA	0,498+1,071 NA
L ₂	2,182–3,08 NA	2,519–3,08 NA
L ₃	0,1821–0,3237 NA	0,1777–0,3237 NA
L ₄	–5,329+21,02 NA	–4,858+21,02 NA
L ₅	3,3937–7,432 NA	3,5953–7,432 NA
L ₆	1,3988–3,054 NA	1,4730–3,054 NA
It (threshold current) It (пороговый ток)	30,34–0,01029 P	

Still this model can fit all types of air-cooled PEMFCs but the parameters will change and these parameters can be tuned by using any good optimization techniques. But since after this research the base parameters are known and other stack parameters were also known, so the range of the parameters can decrease. This will reduce the optimization time and give better results in quick time. The new parameter range is given in the Table 8 based on the parameters variation in Table 6.

Table 8. New parameter ranges for thermal modelling

Таблица 8. Новые диапазоны параметров для теплового моделирования

Parameter Параметр	Min	Max	Parameter Параметр	Min	Max
L ₁	0.1	5	L ₄	–10	10
L ₂	0.5	5	L ₅	1*10 ⁻²	150
L ₃	1*10 ⁻³	5	L ₆	–15	5

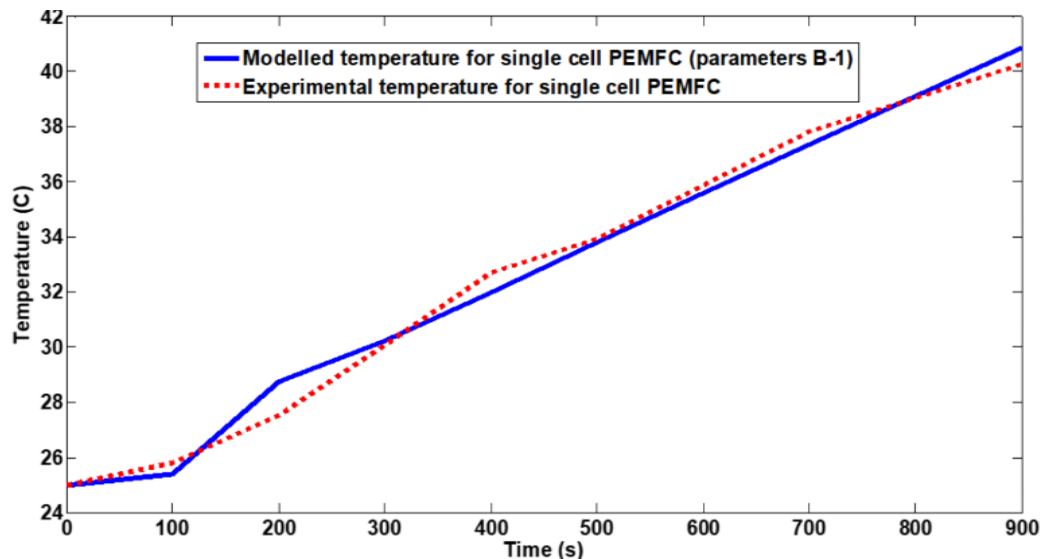


Fig. 4. PEMFC temperature comparison by using parameter (B-1)

Рис. 4. Сравнение температуры ТЭПОМ с использованием параметра (B-1)

Conclusion

In this paper the semi-empirical thermal model is validated for base case, i. e. single cell PEMFC. The model was only validated for large PEMFC stack systems. The model parameters are optimized by using newly developed optimization technique. The new parameters fit the experimental temperature well and can be considered as the base ones for all air-cooled PEMFC systems. Previously all parameters are optimized by using larger range for parameters, which cannot be useful for fast optimization. Now based on the previous and newly optimized pa-

rameters new parameters range is given. The new range of parameters will be extremely helpful for the future researchers in order to optimize the parameters for any air-cooled PEMFC system quickly. Future research is to apply this thermal model on various PEMFC system with different range of power, if large sample size is collected the change in parameters must be studied and this will be extremely helpful in predicting the model parameters for all types of PEMFCs and more reliable generic model can be designed.

REFERENCES

1. Khan S.S., Shareef H., Wahyudie A., Khalid S.N. Novel dynamic semiempirical proton exchange membrane fuel cell model incorporating component voltages. *International Journal of Energy Research*, 2018, vol. 42, no. 8, pp. 2615–2630.
2. Saleem S., Hussain K. Membrane-hydration-state detection in proton exchange membrane fuel cells using improved ambient-condition-based dynamic model. *International Journal of Energy Research*, 2019, vol. 44, no. 2, pp. 869–889.
3. Khan S., Shareef H., Ibrahim A.A. Improved semi-empirical model of proton exchange membrane fuel cell incorporating fault diagnostic feature. *Journal of Modern Power Systems and Clean Energy*, 2021, vol. 9, no. 6, pp. 1566–1573.
4. Nalbant Y., Colpan C.O., Devrim Y. Development of a one-dimensional and semi-empirical model for a high temperature proton exchange membrane fuel cell. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2018, vol. 43, no. 11, pp. 5939–5950.
5. Khan S.S., Shareef H., Wahyudie A., Khalid S., Sirjani R. Influences of ambient conditions on the performance of proton exchange membrane fuel cell using various models. *Energy Environment*, 2018, vol. 30, no. 6, pp. 1087–1110.
6. Salim R., Nabag M., Noura H., Fardoun A. The parameter identification of the Nexa 1.2kW PEMFC's model using particle swarm optimization. *Renewable Energy*, 2015, vol. 82, no. 11, pp. 26–34.
7. Khan S.S., Shareef H., Khan I.A., Bhattacharjee V., Sultan K.W. Effect of ambient conditions on water management and faults in PEMFC systems: a review. *IEEE Canadian Conference of Electrical Computer Engineering*, 2019. pp. 1–5.
8. Asensio F.J., Martín J.I.S., Zamora I., Saldaña G., Oñederra O. Analysis of electrochemical and thermal models and modeling techniques for polymer electrolyte membrane fuel cells. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 2019, vol. 113, pp. 109283.
9. Salva J.A., Iranzo A., Rosa F., Tapia E. Validation of cell voltage and water content in a PEM (polymer electrolyte membrane) fuel cell model using neutron imaging for different operating conditions. *Energy*, 2016, vol. 101, pp. 100–112.
10. Ghasemi M., Ramiar A., Ranjbar A.A., Rahgoshay S.M. A numerical study on thermal analysis and cooling flow fields effect on PEMFC performance. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2017, vol. 8, pp. 1–19.
11. Belmokhtar K., Doumbia M.L., Agboussou K. PEM fuel cell modeling using Artificial Neural Networks (ANN). *International Journal of Renewable Energy Research*, 2014, vol. 4, no. 3, pp. 3–8.
12. Panos C., Kouramas K.I., Georgiadis M.C., Pistikopoulos E.N. Modelling and explicit model predictive control for PEM fuel cell systems. *Chemical Engineering Science*, 2012, vol. 67, no. 1, pp. 15–25.
13. Khan S.S., Shareef H., Mutlag A.H. Dynamic temperature model for proton exchange membrane fuel cell using online variations in load current and ambient temperature. *International Journal of Green Energy*, 2019, vol. 16, no. 5, pp. 361–370.
14. Khan S.S. Simple temperature modeling of proton exchange membrane fuel cell using load current and ambient temperature variations. *International Journal of Green Energy*, 2021, vol. 18, no. 13, pp. 1352–1368.
15. Amphlett J.C. Performance modeling of the ballard mark iv solid polymer electrolyte fuel cell. *Journal of Electrochemical Society*, 1995, vol. 142, no. 1, pp. 9–15.
16. Zhao W., Wang L., Zhang Z. Atom search optimization and its application to solve a hydrogeologic parameter estimation problem. *Knowledge-Based Systems*, 2019, vol. 163, no. 1, pp. 283–304.
17. Jung C., Shim H., Koo S., Lee S., Yi S. Investigations of the temperature distribution in proton exchange membrane fuel cells. *Applied Energy*, 2012, vol. 93, pp. 733–741.

18. Bharath K.V.S., Blaabjerg F., Haque A., Khan M.A. Model-based data driven approach for fault. *Energies*, 2020, vol. 13, no. 12, pp. 3144.
19. Restrepo C. Identification of a proton-exchange membrane fuel cell's model parameters by means of an evolution strategy. *IEEE Transactions on Industrial Informatics*, 2015, vol. 11, no. 2, pp. 548–559.
20. Soltani M., Bathaee S.M.T. A new dynamic model considering effects of temperature, pressure and internal resistance for PEM fuel cell power modules. 3rd International Conference on Electric Utility Deregulation and Restructuring and Power Technologies., 2008. pp. 2757–2762.
21. Muller E.A., Stefanopoulou A.G. Analysis, modeling, and validation for the thermal dynamics of a polymer electrolyte membrane fuel cell system. *Journal of Electrochemical Energy Conversion and Storage*, 2006, vol. 3, no. 2, pp. 99–110.

Received: 18 May 2022.

Information about the authors

Amine Abbou, post graduate, Mohammadia School of Engineers.

Abdennebi El Hassnaouib, head of Electromechanics Department, National superior school of mines.

УДК 621.352.3

ПРОВЕРКА ПОЛУЭМПИРИЧЕСКОЙ ТЕМПЕРАТУРНОЙ МОДЕЛИ ТЭПОМ С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ АЛГОРИТМА ОПТИМИЗАЦИИ ПОИСКА АТОМОВ

Амин Аббу¹,
abbou.amin@gmail.com

Абденнеби Эль Хаснауиб²,
elhasnaoui@enim.ac.ma

¹ Инженерная школа Мохаммадии,
Марокко, 10090, Рабат, пр. Ибн Сина, 765.

² Национальная высшая горная школа,
Марокко, 10000, Рабат, пр. Хаджи Ахмед Черкауи, 753.

Топливный элемент с протонной обменной мембраной обладает уникальными тепловыми характеристиками. Изменение температуры топливного элемента с протонной обменной мембраной напрямую влияет на его характеристики. Напряжение и температуру топливного элемента с протонной обменной мембраной при различных условиях нагрузки/окружающей среды предсказать непросто. В этой работе используется недавно разработанная полуэмпирическая модель, параметры которой оптимизированы для топливного элемента с протонной обменной мембраной с одной ячейкой (базовый случай) с использованием оптимизации поиска атомов. Полуэмпирическая модель была разработана и протестирована для многоэлементной системы топливного элемента с протонной обменной мембраной. Но не каждая модель, разработанная для топливного элемента с протонной обменной мембраной, может быть утверждена, если она эффективна для одноэлементной системы топливного элемента с протонной обменной мембраной. Новые параметры показывают многообещающие результаты, и поэтому модель считается хорошей. Диапазоны, выбранные ранее для параметров базового случая, были чрезвычайно велики. В этой модели с учетом параметров базового случая и ранее извлеченных параметров задаются новые короткие диапазоны параметров, чтобы в будущем их оптимизация занимала меньше времени, что увеличивает шансы использования этой модели в онлайн-прогнозировании температур топливного элемента с протонной обменной мембраной.

Ключевые слова:

Термический, моделирование, оптимизация, полуэмпирический, топливный элемент с протонной обменной мембраной (ТЭПОМ), алгоритм.

Информация об авторах

Амин Аббу, аспирант, кафедра электромеханики, Инженерная школа Мохаммадии.

Абденнеби Эль Хаснауиб, руководитель отдела электромеханики, Национальная высшая горная школа.

Поступила 18.05.2022 г.

УДК 550.4.08

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ТИПОВ СВЯЗЕЙ КРЕМНИЯ С ФУНКЦИОНАЛЬНЫМИ ГРУППАМИ В СТРУКТУРАХ ОРГАНИЧЕСКИХ ВЕЩЕСТВ РАСТИТЕЛЬНОГО ПРОИСХОЖДЕНИЯ С ПОМОЩЬЮ МЕТОДА ДИФфуЗНОГО ОТРАЖЕНИЯ ИНФРАКРАСНОЙ СПЕКТРОСКОПИИ

Иванов Владимир Петрович¹,
ivp2005@mail.ru

Дмитриенко Анастасия Александровна¹,
dmitrienkoanastasiyaa@gmail.com

¹ Национальный исследовательский Томский политехнический университет,
Россия, 634050, г. Томск, пр. Ленина, 30.

Актуальность исследования обусловлена раскрытием возможности определения связей Si с C, H, N, O в структурах газожирных углей и других углефицированных веществ методом инфракрасной спектроскопии диффузного отражения в диапазоне 7500–350 см⁻¹ с последующей обработкой спектров и определением спектральных характеристик, расчетом значений для определения структурно-генетических показателей и выполнения структурно-группового анализа. Использование структурно-генетических показателей: Пм, Пв, ПВт+Л, ПЛ, Пг, позволяет определять влияние генетических факторов на образование разных типов связей кремния и их количества в структурах природных органических веществ.

Цель: на примере инфракрасных спектров углей пластов газожирной стадии углефикации показать приёмы определения типов связей Si с элементами C, H, N, O с помощью справочных спектрометрических характеристик простых химических соединений кремния и анализа парной корреляции значений интенсивности выбранных полос диффузного отражения с содержанием Si в углях; также на примере веществ фоссилизированных (гербарий, фитолейма) и углефицированных (торф, кероген, уголь) показать применение обнаруженных типов связей кремнийорганических соединений в структурах природных органических веществах и характер их изменения в зависимости от углепетрографических и структурно-генетических показателей.

Объекты: угли пластов Жерновского месторождения Кузбасса; образцы гербария хвоща болота Томской области, фитолейм хвоща, папоротника и керогена нефтегазовых отложений Западной Сибири юрского возраста, торфа месторождения Апача на Камчатке, каменных углей марки Д пласта Духаршинного Черногорского месторождения Минусинского бассейна и марки Ж пласта 39 Жерновского месторождения Кузбасса.

Методы: инфракрасная спектроскопия диффузного отражения в диапазоне 7500–350 см⁻¹ с Фурье-преобразованием и приставкой DRS-8010ASC, химический анализ золы углей, углепетрографический анализ мацерального состава углей.

Результаты. Установлено, что с помощью справочных таблиц спектрометрической характеристики кремния и его корреляции с интенсивностью диффузного отражения на частотах с волновыми числами 800, 855, 868, 2070, 3391 см⁻¹ хорошо диагностируются соединения Si–H, SiCH₃, Si(CH₃)₂, Si(C≡CH)₄, Si₂NH соответственно. В частности, они отражают разные виды связей Si с функциональными группами и, как показал эксперимент, с образцами гербария хвоща, фитолеймов хвоща и папоротника, керогена, торфа, каменных углей марок Д и Ж. Их использование со структурно-генетическими показателями – Пм, Пв, ПВт+Л, ПЛ, Пг – позволяет определять влияние генетических факторов на образование разных типов связей кремния и их количества в структурах природных органических веществ.

Ключевые слова:

Углефицированное вещество, структура, функциональные группы, типы связей кремния, инфракрасная спектроскопия.

Введение

Изучение твёрдых горючих ископаемых носит преимущественно прикладной характер исследований, что вполне оправдано целями и задачами углехимической науки, созданной для решения текущих проблем металлургических и угледобывающих производств. Тем не менее в последние два десятилетия стало уделяться больше внимания изучению неорганических веществ, например, золе в углях и особенно кремнию, от содержания которого в значительной мере зависит основность золы.

Содержание кремния в углях определяет качество коксохимических продуктов: коксов или полукоксов, поэтому на стадии разведки исследование минеральных примесей в углях пластов направлено на установление химического состава золы. При проектировании геологоразведочных работ такому аспекту, как металлоносность углей, уделяется меньше внимания и лишь регламентируется оценка содержания попут-

ных и токсичных микроэлементов в углях в виде количественного и полуколичественного анализов, что связано с отсутствием методик для определения форм нахождения металлов и неметаллов в структурах углефицированных веществ (УФВ).

В последние годы для оценки металлоносности углей на минеральные примеси в углях стали обращать внимание исследователи рудной и угольной геологии: отечественные исследователи С.И. Арбузов, Я.Э. Юдович, В.И. Вялов, И.Ю. Чекрызов, В.В. Середин и зарубежные R.B. Finkelman, D.A. Spears, S. Dai, J. Hower, Y. Sun, H. Zhuang, J. Liu. Данные авторы освещают новые аспекты изучения углей, в частности, особое внимание исследователей нацелено на установление биогеохимических условий накопления элементов-металлов и определение их форм нахождения [1–6].

Например, в месторождениях Сибири хорошо изучены Be, Ge, Se, Au, Sc, U, Co, As, Sb, Mo, Nb, Y, Zr и

лантаноиды во многих угольных пластах [7]. Отметим, что в углях отдельных пластов Кузнецкого угольного бассейна выявлены промышленные концентрации германия, однако причины его накопления, как и формы нахождения, авторами трактуются неоднозначно.

Существует точка зрения, что основная масса германия содержится в органической части углей, а его накопление происходит за счёт выщелачивания из горных пород путём перехода германия в коллоидный раствор органического осадка. Авторы [8], воздействуя на коксовые угли щёлочью, пришли к выводу, что Ge не выщелачивается. Они установили, что форма нахождения германия в угле – силикогерманаты, при этом существует близость атомных радиусов германия (0,44 Å) и кремния (0,39 Å), и могут возникать при их участии сложные органические соединения, например, гексаметилгерманосилоксан – $(\text{CH}_3)_3\text{GeOSi}(\text{CH}_3)_3$.

Близость спектральных характеристик металлоорганических соединений Ge и Si хорошо показана в справочных таблицах [9], и автор отмечает, что сходство двух этих элементов хорошо распознаётся инфракрасной спектроскопией на молекулярном уровне в виде простых химических соединений.

При изучении изменения форм нахождения Ge [10] в угле и продуктах его обогащения использовали

диффузный метод отражения (DRIFTS), активно применяемый как в России, так и за рубежом [11–15], совместно с электронной микроскопией и другими физическими методами, и показали, что типы связей металлоорганических соединений германия количественно изменяются после воздействия на угли реагентов экстракции.

Принимая во внимание изложенные наблюдения, для выявления типов связей Si с элементами C, H, N, O в качестве эталонных углей были выбраны газово-жирные угли (ГЖУ) Жерновского месторождения Кузбасса (табл. 1), потому что молекулярная структура углей газовой и жирной стадии углефикации достаточно хорошо изучена инфракрасной спектроскопией [16, 17].

На первом этапе на спектрах углей проведено измерение интенсивности полос 3040, 2920, 2860, 2000, 1600, 1260 см^{-1} , необходимых для расчёта структурно-генетических показателей (СГП) [18], и проведён пересчёт оксидов кремния в золах из концентратов углей пластов на содержание кремния в их органической массе (табл. 1). В угольных концентратах минеральные примеси являются составной частью в виде минерально-органического комплекса угольной массы, которая с точки зрения атомарно-молекулярной и надмолекулярной организации представляется как система «минерал–полимер».

Таблица 1. Измеренные показатели углей

Table 1. Measured values of coals

Пласт Coal seam	Углететрографические показатели Coal petrographic indicators						Структурно-генетические показатели Structural and genetic indicators					Содержание Si на органическую массу Si content per organic mass
	Ro, n	Vt	I	Sv	L	M	Пм Pm	Пв Pr	П _{V+L} P _{V+L}	П _I P _I	П _г Ph	SiO ₂
Выборка № 1 (B1)/Selection no. 1 (S1)												
60	0,82	73	18	2	1	6	0,74	0,48	1,05	0,36	2,89	4,19
59	0,82	72	17	2	2	7	0,73	0,51	1,05	0,34	3,10	5,18
58	0,83	74	17	2	1	6	0,77	0,49	1,09	0,32	3,39	3,91
57	0,83	82	9	2	1	6	0,76	0,53	1,13	0,27	4,16	4,93
56	0,84	77	15	1	1	6	0,79	0,53	1,17	0,25	4,64	3,36
54	0,84	84	8	1	2	5	0,80	0,55	1,10	0,31	3,61	4,28
52a	0,84	81	10	2	1	6	0,82	0,52	1,11	0,33	3,40	3,72
52	0,85	79	13	2	1	5	0,86	0,61	1,07	0,37	2,89	3,58
51	0,85	82	10	2	2	4	0,88	0,51	1,04	0,39	2,65	3,59
50	0,86	81	11	2	1	5	0,86	0,56	1,20	0,26	4,54	3,06
Выборка № 2 (B2)/Selection no. 2 (S2)												
48+45	0,87	77	14	2	2	5	0,95	0,55	1,24	0,26	4,83	3,24
48	0,88	79	10	2	1	8	0,87	0,52	1,27	0,21	6,08	3,82
45	0,88	80	11	1	1	7	0,92	0,54	1,13	0,33	3,47	4,79
44	0,89	80	11	3	1	5	0,98	0,54	1,20	0,28	4,26	3,93
43	0,89	84	8	2	2	4	0,97	0,57	1,28	0,22	5,98	2,69
40	0,91	86	7	1	1	5	0,90	0,61	1,29	0,20	6,44	4,02
39	0,93	85	8	2	1	4	0,96	0,59	1,33	0,18	7,49	3,45
Среднее по B1 Average S1	0,84	79	13	2	1	6	0,80	0,53	1,10	0,32	3,53	3,98
Среднее по B2 Average S2	0,90	82	9	2	1	6	0,93	0,56	1,25	0,24	5,62	3,78

Из справочников спектральных характеристик химических веществ были выбраны волновые числа 3400, 3390, 2070, 2056, 1592, 1500, 1090, 1030, 868, 855, 840, 820, 814, 800, 783, 765, 755, 745, 732, 687, 534, 420 см^{-1} , на которых регистрируются связи Si с элементами C, H, N, O в виде структурных фрагмен-

тов (табл. 2). На спектрах диффузного отражения исследованных образцов по ним проводилась идентификация наличия в структурах углей (табл. 1).

На втором этапе исследований был проведён анализ парной корреляции значений содержания кремния в углях (табл. 1) с величинами интенсивности по-

лос (табл. 2) и содержания кремния в углях с углепетрографическими и СГП, результаты которого приведены в табл. 3, 4. Выявленные типы связей кремния с С, N, O, H были идентифицированы на спектрах фосфоризированных и УФВ: гербария, фитолейм, торфа, керогена и угля.

Таблица 2. Виды соединений Si с C, N, O, H и их волновые числа из справочных таблиц

Table 2. Types of chemical compounds of Si with C, N, O, H and their wave numbers from look-up tables

Волновые числа, см ⁻¹ Wave numbers, cm ⁻¹	Функциональные группы Functional groups		
	O	CH и (and) H	N
1090–1030	Si–O–Si		
1030	Si–OH		
745; 420		SiH ₂	
814, 868		Si–H	
765 или (or) 800, 855		Si–CH ₃	
820–800		Si(CH ₃) ₂	
840, 755 или (or) 765		Si(CH ₃) ₃	
1592, 732 и (and) 583		Si(CH=CH ₂) ₄	
2056, 2070, 708 или (or) 687, 534		Si(C≡CH) ₄	
3400; 3391			Si ₂ NH
1500			Si–NH ₂

Отметим, что по данным исследования [19] перечисленные вещества имеют между собой большое сходство и представляют собой природные геополимеры, по сути, композиты органоминерального или минерально-органического растительного происхождения, подвергшиеся процессам седиментации и метаморфизации. Исходя из этого, они рассматривались как разные формы композиции, а их структуры – как разные системы «полимер–минерал», в которых организация химических связей элементов проходила в разных условиях.

Суть методики идентификации структурных фрагментов в углях, выбранных в качестве эталонных углей, состояла в следующем. Угленосная толща верхней части ленинской свиты сложена пластами 60–39 и представляет собой две группы пластов 60–50 и 48–39, различающихся средними значениями: содержанием кремния, углепетрографическими и структурно-генетическими показателями, указывающими на различие процессов углеобразования (табл. 1). В связи с этим корреляционный анализ проводился отдельно по группам пластов (выборки 1 и 2) и по всей угленосной толще (выборка общая).

Оценка взаимосвязей содержания кремния на микроуровне проведена с количеством мацералов в углях: витринита (Vt), инертинита (I), семивитринита (Sv) или семифюзинита (Sf) и липтинита (L), минеральных примесей (MM), и их степенью метаморфизма – показателем отражения витринита (Ro.r); на молекулярном уровне – со СГП (табл. 1), разработанными авторами [18]: Пв – степенью восстановленности, Пм – степенью метаморфизации, отражающими биогеохимическую обстановку осадкообразования и характер преобразования осадков в процессе углефикации, показателями П_{Vt+L} и П_I, отражающими степень преобразования исходного растительного материала в

мацералы (липтинит, витринит, инертинит), и степенью гелификации Пг, которая определяется отношением П_{Vt+L} к П_I.

Таблица 3. Корреляционные связи генетических показателей с содержанием кремния в углях пластов

Table 3. Correlations of genetic indicators with silicon content in seam coals

Показатели Indicators	Общая General	B1 пласты 60-50 S1 coal seam 60-50	B2 пласты 48-39 S2 coal seam 48-39
Углепетрографические/Coal petrographic			
Ro	–0,37	–0,79	
L		0,37	–0,81
Vt	–0,27	–0,27	
I			
Sv			–0,42
MM*	0,59	0,58	0,63
Vt+L	–0,28		
I+Sv			
ΣOK			
CK			
Спектрометрические/Spectrometric			
Пм (Pm)*	–0,53	–0,75	–0,47
Пв (Pr)	–0,32	–0,31	
П _{Vt+L} (P _{Vt+L})*	–0,46	–0,39	–0,62
П _I (Pi)	0,34		0,52
Пг (Ph)	–0,38		–0,46

*высокие значения корреляции/high correlation values.

По средним значениям показателей (табл. 1) видно, что угли пластов 48–39 (выборка № 2) более метаморфизованные, Ro.r=0,90 %, в них повышенное содержание витринита Vt=82 %, они более гелифицированные Пг=5,62 ед., восстановленные Пв=0,56 ед., и содержание кремния в них повышенное в сравнении с углями пластов 60–50 (выборка № 1). Из этого следует, что условия углеобразования в период формирования пластов 48–39 отличались от таковых при образовании пластов 60–50.

Особенность накопления кремния в углях отмечается в работе [20] в части его аутигенного происхождения и связи с составом растений-углеобразователей и их видовой изменчивости, а также с возрастом угленосных отложений, например, в палеозойских углях содержание кремния значительно меньше, чем в неоген-палеогеновых.

Корреляция содержания кремния в углях с углепетрографическими показателями как в группах пластов, так и в целом угленосной толще пластов 60–39 весьма низкая и неоднозначная, за исключением показателя MM, с которым она на уровне 0,59–0,63 по всем выборкам (табл. 3). Это вполне объяснимо, т. к. исследованные пробы представлены обогащенными углями и минеральными примесями, состоящие из кварца, глины, карбонатов и сульфидов, являются сингенетическими с углефицированной органической массой, а высокие значения корреляции MM с кремнием указывают на его большую распространенность в обогащенных углях пластов, потому что увеличивается доля аутигенного кремния [20].

В то же время содержание кремния хорошо увязывается с Пм и П_{Vt+L} на уровне парной корреляции, со-

ответственно, 0,47–0,75 и 0,39–0,62, что также отражает принадлежность кремния к минеральной части углей в виде обратной связи. То есть кремний не входит в активную (гелифицированную) часть органической массы угля (ОМУ), а в процессе метаморфизма вероятность каких-либо включений кремния в эту часть ОМУ уменьшается, что подтверждается коэффициентом корреляции 0,52 с показателем Π_1 в выборке № 2.

Из табл. 4 видно, что связи кремния с C, N, O, H неплохо определяются в виде простых соединений SiH_2 , Si–H, Si–CH₃, $\text{Si}(\text{CH}_3)_2$, $\text{Si}(\text{CH}_3)_3$, $\text{Si}(\text{CH}=\text{CH}_2)_4$, $\text{Si}(\text{C}\equiv\text{CH})_4$, Si_2NH .

Таблица 4. Корреляционные связи интенсивности диффузного отражения соединений кремния и его содержания в углях пластов

Table 4. Correlations of genetic indicators with silicon content in seam coals

Соединения ремния Silicon compounds	Волновое число, см ⁻¹ Wave number, cm ⁻¹	Общая пласты 60-39 General Coal seam 60-39	Выборка 1 пласты 60-50 Selection 1 Coal seam 60-50	Выборка 2 пласты 48-39 Selection 2 Coal seam 48-39
$\text{Si}(\text{C}\equiv\text{CH})_4$	534	-0,28	0,53	-0,72
	687			
	2056			
	2070			
SiH_2	430, 432, 434	-0,52		-0,50
	745			
Si–H	814	-0,39	-0,30	-0,72
	868			
Si–CH ₃	855	0,51	0,26	0,77
$\text{Si}(\text{CH}_3)_3$	840	0,51	0,26	0,78
SiCH_3	800	0,44		0,77
	765			
$\text{Si}(\text{CH}=\text{CH}_2)_4$	583		0,33	-0,44
	1592			
Si–NH ₂	1540	-0,57	0,32	-0,72
Si_2NH	3391			
Si–O–Si	1090, 1030			-0,54
Si–OH	1030			

Среди них хорошо фиксируются кремнийорганические соединения Si–H, Si–CH₃, $\text{Si}(\text{CH}_3)_3$ в виде дуплета полос 814 и 868 и на отдельных полосах 855, 840 см⁻¹ (выделены жирным шрифтом в табл. 4), что соответственно подтверждается уровнем корреляции 0,30–0,72; 0,26–0,77; 0,26–0,78. Они характеризуются как соединения Si с алканами, алкенами, алкилами в виде структурных фрагментов кремния либо как соединения Si с метильными группами (например, тетраметилсилан – $\text{Si}(\text{CH}_3)_4$), либо как фрагмент Si–H силана (SiCH_4).

Методические особенности второго этапа исследования заключаются в выбранном подходе, опирающемся на общеизвестную парадигму – *источником образования органических осадков природного происхождения в разных условиях являются низшие и высшие растения* [21–23], а сам процесс преобразования – *это переход живой материи в неживое вещество*. Поэтому, как уже отмечалось выше, выбранные

образцы по спектральным характеристикам рассматриваются как УФВ [19].

Структуры УФВ в авторском понимании – это либо система организации «полимер–минерал» в виде включений в органических веществах (торф, уголь, концентрированный кероген в виде слоев, фитолейма), либо «минерал с полимерными фрагментами» в породах (горючий сланец, рассеянный кероген, биоминерализованная порода). Заметим, условия преобразования растительных осадков: углефикация (гумификация и сапропелизация), битумизация, минерализация, принимались во внимание как разные факторы возникновения УФВ.

В итоге УФВ представляют собой два вида композиционной структуры каустобиолитов сингенетических веществ угольного ряда, изначально характеризующихся как дисперсные системы – коллоидные растворы (золи, гели, студни), или как системы минерализации органических веществ, состоящих из высокомолекулярных соединений. И те и другие представляют собой твердые дисперсные среды, в которых находится дисперсная фаза и растворы высокомолекулярных соединений, и обладание теми или иными свойствами определяет различие свойств дисперсных систем. В этом случае мумифицированные вещества (гербарии) можно рассматривать как начальную стадию гумификации, которая в больших масштабах накопления растительной массы представляет собой торфяные образования.

На инфракрасном (ИК) спектре регистрируются типы связей химических элементов в виде связей, которые в структурах УФВ с позиции атомарно-молекулярной архитектуры идентифицируются либо как отдельные группы атомов в молекулах, либо как положение полос локальных фрагментов, позволяющих интерпретировать строение остальной части молекулы, либо как скелетные колебания, характеризующие всю молекулу. В этом случае для идентификации вещества исследуемого спектра используется сравнение со спектром эталона [24], именно поэтому в нашем случае в качестве эталонных спектров углей были выбраны ГЖУ, в которых хорошо идентифицируются указанные особенности.

В системе внутренних координат молекулы [25–27] выделяются валентные (плоскостные) и деформационные (межплоскостные) связи. С позиции надмолекулярной организации [28] пространственное строение представляется как агрегация простых и сложных молекул в кристаллиты, глобулы, сфероиды, фибриллы, углеродные пакеты, фуллерены [29] и металлоорганические комплексы [9]. Однако ИК-спектр даёт двумерное (плоское) изображение, поэтому изометрические агрегаты представляются в виде структурных фрагментов, характеризующихся многими авторами [30–34] как структурные единицы. Интерпретация спектральной характеристики органических веществ и минералов сводится к идентификации структурных элементов – связей химических элементов в виде функциональных групп [25] или простых соединений [26], а также типов связей [27]: ионных, водородных, неорганических и металлических [9, 35, 36].

В веществах растений и продуктов их преобразования интерпретация часто представляется как распознавание функциональных групп, которые увязываются со справочными данными, например, белков, полисахаридов [37, 38] или с комплексными соединениями металлов [9, 10, 39].

В своё время Л. Беллами [35] предложил систематизацию по типам связей в неорганических структурах: (I) углерод–углерод и углерод–водород; (II) углерод–кислород и кислород–водород; (III) углерод–азот и азот–водород; (IV) связи между другими элементами, и справочную таблицу спектральных характеристик химических веществ простого строения. Поэтому для идентификации по спектрам ИК химических связей использовались справочные таблицы авторов [9, 25–27, 35, 36, 40].

Для исследования использовался аппаратно-программный комплекс (АПК «Спектротест») на базе спектрометра фирмы «SHIMADZU» IRAffinity-1 с Фурье преобразованием, который позволяет получать ИК-спектр диффузного отражения в диапазоне 7500–350 см⁻¹ с максимальным разрешением 0,5 см⁻¹ с помощью приставки DRS-8010ASC для порошков (DRIFTS). Они получают измельчением материала образца с последующим просевом через сито 0,2 мм, и навески объёмом 0,5 см³ крупностью <0,2 мм размещаются в семи кюветах, находящихся на металлическом держателе. АПК «Спектротест» стандартизован (ГОСТ 32246–2013), а получаемые спектры сопоставимы со спектрами пропускания в углях [41, 42]. Точность получения спектра обеспечивается съёмкой имитатора со 100 % отражением с постоянным сопровождением съёмки пробы вещества, а точность результата анализа достигается параллельными измерениями аналитических проб образца, поэтому в результате получается 14 спектров, которые усредняются по параллелям, а параллели – в единый спектр.

Таблица 5. Структурно-генетическая характеристика образцов углефицированных веществ

Table 5. Structural and genetic characteristics of samples coalified substance

№ образца Sample no.	Вид углефицированного вещества Type of coalified substance	Пм Pm	Пв Pr	П _{Vt+L} P _{Vt+L}	П _I P _I	П _г Ph
1	Гербарий хвоща Horsetail herbarium	0	0	0,41	0,74	0,06
2	Фитолейма хвоща Horsetail phytolima	0,37	0,95	0,42	0,16	0,26
3	Фитолейма папоротника Fern phytolima	0,12	0,34	0,42	0,45	0,09
4	Торф/Peat	0,37	0,53	0,93	0,26	0,06
5	Каменный уголь марки Д Energy coal	0,33	0,32	0,72	0,53	0,14
6	Кероген/Kerogen	0,97	0,72	1,45	0,06	2,26
7	Каменный уголь марки Ж Coking coal	0,96	0,59	1,33	0,18	0,74

В табл. 5 представлена характеристика СГП образцов УФВ, из которой видно, что нулевые значения Пм и Пв доказывают отсутствие признаков седиментации и литификации, т. к. гербарий – это мумифици-

рованный образец и к УФВ он причисляется условно, потому что ОМУ растения претерпело преобразования в виде фоссиллизации.

В данном случае он характеризует первоначальную стадию осадконакопления растительной массы (опад), предшествующую процессу гумификации.

На этой основе был установлен минимальный уровень значимых значений коэффициентов – 0,34, по которому отобраны для дальнейшего наблюдения функциональные группы SiCH₃, Si(CH₃)₂, Si–H, Si(C≡CH)₄, Si₂NH.

В табл. 6 показаны величины корреляций интенсивности полос 800, 855, 868, 2070, 3391 см⁻¹ со СГП, раскрывающие характер и общую направленность взаимосвязей СГП с видами соединений кремния: SiCH₃, Si(CH₃)₂, Si–H, Si(C≡CH)₄, Si₂NH.

Таблица 6. Характер корреляционных связей структурно-генетических показателей и интенсивности диффузного отражения соединений Si в спектрах эталонных газово-жирных углей и в спектрах углефицированных веществ

Table 6. Nature of the correlations of structural-genetic indicators and the intensity of diffuse reflection of Si compounds in reference coals and coalified substance

Соединения Compounds	Волновое число, см ⁻¹ Wave numbers, cm ⁻¹	Пм Pm	Пв Pr	П _{Vt+L} P _{Vt+L}	П _I P _I	П _г Ph
Газово-жирные угли пластов/Reference coals						
SiCH ₃	800			-0,56	0,67	-0,62
Si(CH ₃) ₂	855			-0,61	0,70	-0,65
Si–H	868		0,40	0,62	-0,68	0,61
Si(C≡CH) ₄	2070	0,41				
Si ₂ NH	3391	0,67		0,70	-0,64	0,68
Углефицированные вещества/Coalified substance						
SiCH ₃	800	-0,72		-0,75		-0,40
Si(CH ₃) ₂	855	-0,44	-0,55			-0,51
Si–H	868					
Si(C≡CH) ₄	2070	-0,55		-0,69		-0,34
Si ₂ NH	3391	-0,72	-0,47	-0,44	0,38	

Выяснилась некая взаимосвязь между исследуемыми соединениями кремния и генетическими факторами, которая указывает на их диагностические особенности. В частности, кремнийорганическое соединение Si(CH₃)₂ может фиксироваться в УФВ показателями Пм, П_{Vt+L}, Пв, тогда как в ГЖУ оно регистрируется только показателем Пв (табл. 7).

Соединение кремния с двойной метильной группой достаточно распространённое в УФВ, и характер его связи с показателями Пм, П_{Vt+L}, Пв был проанализирован. Установлено, что интенсивность полосы 855 см⁻¹ (Si(CH₃)₂) имеет разные значения при неизменности показателя П_{Vt+L}=0,41–0,42 ед. Со значениями показателей Пм и Пв интенсивность полосы 855 см⁻¹ имеет обратную корреляционную связь во всех образцах за исключением торфа и угля марки Д, в них эта связь прямая (рис. 1).

Из этого следует, что мумификация и фоссиллизация растений не влияет на количество связей кремния в виде Si(CH₃)₂, оно зависит от вида растения и от условий преобразования. Иное обстоятельство с

УФВ, характеризующими диагенез (торф), ранний катагенез (уголь марки Д), морские (кероген) и континентальные (уголь марки Ж) условия угленакопления. При диагенезе и раннем катагенезе количество групп $\text{Si}(\text{CH}_3)_2$ увеличивается при условии либо возрастания метаморфизации, либо восстановленности, либо от проявления гелификации или сапропелизации, способствующих большому образованию метильных групп в виде алифатических соединений.

Однако обратная зависимость количества $\text{Si}(\text{CH}_3)_2$ в структуре органических веществ с обозначенными выше показателями указывает на характер образования связей Si и $(\text{CH}_3)_2$ при сапропелизации и гумификации. На образование $\text{Si}(\text{CH}_3)_2$ генетические факторы в виде метаморфизма, восстановленности и гелификации будут мало оказывать влияния, наоборот, в углях жирной стадии углефикации эти факторы будут определяющими, и чем менее будут проявляться факторы, обозначенные показателями Пм, $\text{P}_{\text{Vt+L}}$, Пв, тем больше вероятность образования связей Si и $(\text{CH}_3)_2$ (рисунок).

Общими признаками для структур УФВ и ГЖУ, выступающих в качестве эталонов, являются кремнийорганические соединения SiCH_3 , связанные с показателем P_i , определяющим инертную часть ОМУ.

При этом есть существенные различия между структурами УФВ и ГЖУ. В частности, органическое соединение кремния $\text{Si}(\text{C}\equiv\text{CH})_4$ характерно только для структур УФВ, т. к. связано оно с показателями $\text{P}_{\text{Vt+L}}$ и Пв. В ГЖУ функциональная группа Si_2NH

фиксируется только показателем Пг, и фрагменты силана Si-H – показателями Пг и Пв (табл. 7).

Таблица 7. Генетические факторы и виды образования связей кремния в эталонных (ГЖУ) углях и УФВ

Table 7. Genetic factors and types of silicon bond formation in gas-fat coals and carbonized substances

Структурно-генетические показатели Structural and genetic indicators	Углефицированные вещества Coalified substance	Газово-жирные угли пластов Reference coals
Показатель инертной части органического вещества, P_i Indicator of the inert part of organic matter, P_i	SiCH_3	
Показатель степени метаморфизации органического вещества, Пм Indicator of metamorphism of organic matter, Pm	$\text{Si}(\text{CH}_3)_2$	Si-H
Показатель степени восстановленности органического вещества, Пв Indicator of the inert recovery part of organic matter, Pr		
Показатель активной части органического вещества, $\text{P}_{\text{Vt+L}}$ Indicator of the active part of organic matter, $\text{P}_{\text{Vt+L}}$	$\text{Si}(\text{C}\equiv\text{CH})_4$	Si_2NH
Показатель степени гелификации органического вещества, Пг Indicator of the helification of organic matter, Ph		

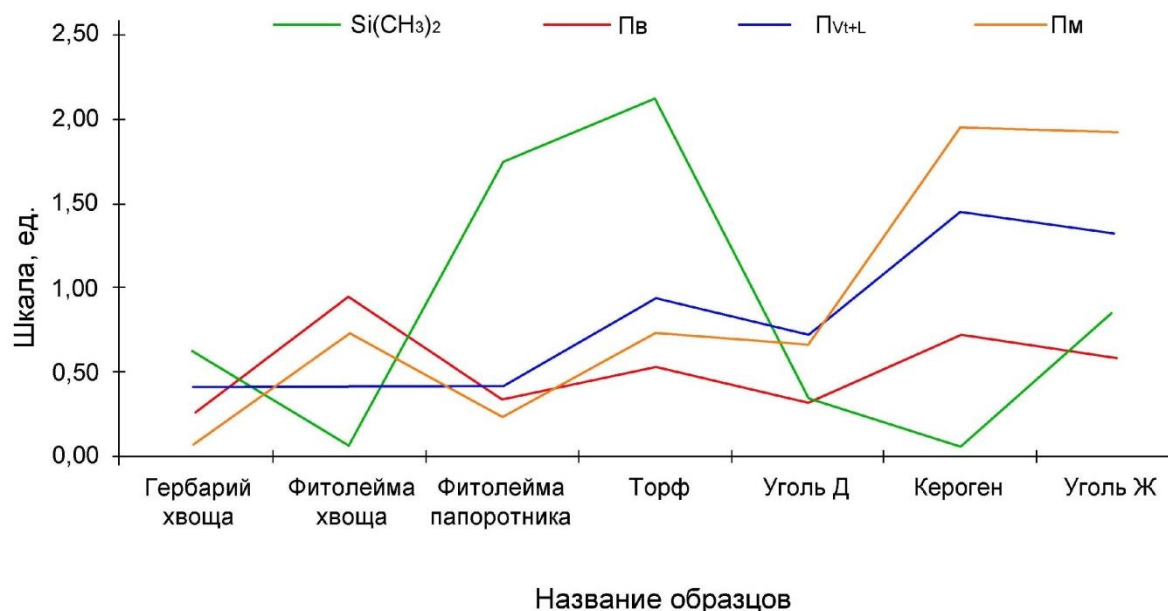


Рисунок. Характер изменения кремнийорганического соединения и структурно-генетических показателей
Figure. Nature of changes in organosilicon compounds and structural and genetic parameters

Из этого следует, что наличие исследованных соединений кремния может быть обусловлено разными генетическими факторами, поэтому их идентификация в конкретных образцах каустобиолитов угольного ряда будет отражать какой-то углеобразующий фактор. То есть связи Si с C, H, N в виде кремнийор-

ганических соединений SiCH_3 , $\text{Si}(\text{CH}_3)_2$, Si-H , $\text{Si}(\text{C}\equiv\text{CH})_4$, Si_2NH могут выступать диагностическими признаками.

Таким образом, идентификация структуры углей и УФВ по ИК спектрам, полученным методом диффузного отражения, как веществ со сложными структу-

рами вполне применима при использовании систематизации по типам связей в неорганических структурах (подход Л. Беллами): (I) углерод–углерод и углерод–водород; (II) углерод–кислород и кислород–водород; (III) углерод–азот и азот–водород; (IV) связи между другими элементами, и справочных таблиц спектральных характеристик химических веществ простого строения, а также метода парной корреляции с содержанием химического элемента в веществе образца (подход А. Смита).

Предложенная методология поиска распознаваемых связей, в частности кремния с функциональными группами CH_3 , $(\text{C}\equiv\text{CH})_4$, NH и водородом в изученных структурах углей, позволяет проводить оценку в других УФВ. В этом случае структуры углей могут выступать эталонными структурами каустобиолитов угольного ряда, так как их спектральная характеристика сопровождается углепетрографическими данными, которые не всегда можно получить в фоссилизованных веществах, торфах и керогенах.

Применение СГП, которые в углях хорошо увязываются с углепетрографическими показателями, позволяет достаточно достоверно определить генетические факторы, обуславливающие образование связей

функциональных групп с неметаллами и металлами, выделяемые в области ИК-спектра металлоорганическими соединениями.

Заключение

Применение справочных таблиц спектральной характеристики и метода корреляции интенсивности диффузного отражения на полосах с волновыми числами 800, 855, 868, 2070, 3391 cm^{-1} с содержанием кремния в эталонных углях газовой-жирной стадии углефикации позволило идентифицировать на инфракрасных спектрах углей соединения Si-H , SiCH_3 , $\text{Si}(\text{CH}_3)_2$, $\text{Si}(\text{C}\equiv\text{CH})_4$, Si_2NH .

Результаты эксперимента с образцами гербария хвоща, филоидов хвоща и папоротника, керогена, торфа, каменных углей марок Д и Ж показали возможность диагностирования вышеуказанных типов связей Si в углефицированных веществах, а характер изменения кремнийорганических соединений и структурно-генетических показателей (Пм, Пв, $\text{P}_{\text{V+L}}$, Пг, Пж) позволил выявить особенности их накопления в структурах в зависимости от условий углеобразования и угленакопления и косвенно подтвердить аутигенность кремния с растениями-углеобразователями.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Strontium isotopes in high- and low-Ge coals from the Shengli Coalfield, Inner Mongolia, northern China: New indicators for Ge source / J. Liu, B.F. Spiro, S. Dai, D. French, I.T. Graham, X. Wang, L. Zhao, J. Zhao, R. Zeng // *International Journal of Coal Geology*. – 2021. – № 233. – P. 2–11.
2. Mineralogy and geochemistry of the Late Triassic coal from the Caotang mine, northeastern Sichuan Basin, China, with emphasis on the enrichment of the critical element lithium / M. Zhou, L. Zhao, X. Wang, V.P. Nechaev, D. French, B.F. Spiro, I.T. Graham, J.C. Hower, Sh. Dai // *Ore Geology Reviews*. – 2021. – № 139. – P. 22–38.
3. In-situ analysis of the lithium occurrence in the No.11 coal from the Antaibao mining district, Ningwu Coalfield, northern China / B. Sun, Y. Liu, L. Tajcmanova, C. Liu, J. Wu // *Ore Geology Reviews*. – 2022. – № 144. – P. 15–30.
4. Significant enrichment of Rb and Cs in the Late Triassic coals from the Coc Sau surface mine, Cam Pha Coalfield, Quang Ninh Province, Vietnam / X. Nguyen, J. Li, X. Zhuang, B. Li, X. Querol, N. Moreno, P. Cordoba // *Ore Geology Reviews*. – 2022. – № 142. – P. 16–32.
5. Jiu B., Huang W., Mu N. Mineralogy and elemental geochemistry of Permo-Carboniferous Li-enriched coal in the southern Ordos Basin, China: Implications for modes of occurrence, controlling factors and sources of Li in coal // *Ore Geology Reviews*. – 2022. – № 141. – P. 20–40.
6. Lithium and redox-sensitive (Ge, U, Mo, V) element mineralization in the Pennsylvanian coals from the Huangtupo coalfield, Shanxi, northern China: with emphasis on the interaction of infiltrating seawater and exfiltrating groundwater / P. Xie, J.C. Hower, V.P. Nechaev, D. Ju, X. Liu // *Fuel*. – 2021. – V. 300. – № 9. – P. 21–42.
7. Нифантов Б.Ф., Заостровский А.Н., Занина О.П. Горно-геологическое и технологическое значение распределения ценных и токсичных элементов в Кузнецких углях // *Уголь*. – 2009. – № 12 (1004). – С. 59–60.
8. Танаев И.В., Шпирт М.Я. Химия германия. – М.: Химия, 1967. – 451 с.
9. Накамото К. ИК-спектры и спектры КР неорганических и координационных соединений. – М.: Мир, 1991. – 536 с.
10. Modes of occurrence of germanium and tungsten in the Spetsugli germanium ore field, Pavlovka brown coal deposit, Russian Far East / S.I. Arbuzov, D.A. Spears, S.S. Ilenok, I.Y. Chekryzhov, V.P. Ivanov // *Ore Geology Reviews*. – 2021. – № 132. – P. 103986.
11. Orrego-Ruiz J.A., Cabanzo R., Mejia-Ospino E. Study of Colombian coals using photoacoustic Fourier transform infrared spectroscopy // *International Journal of Coal Geology*. – 2011. – V. 85. – P. 307–310.
12. Geographic origin identification of coal using near-infrared spectroscopy combined with improved random forest method / M. Lei, X. Yu, M. Li, W. Zhu // *Infrared Physics and Technology*. – 2018. – V. 92. – P. 177–182.
13. Xiao D., Le B.T. Rapid discrimination of coal geographical origin via near-infrared spectroscopy combined with machine learning algorithms // *Microchemical Journal*. – 2020. – V. 157. – P. 103–108.
14. Infrared spectroscopy quantification of functional carbon groups in kerogens and coals: A calibration procedure / V.T.H. Phan, E. Quirico, P. Beck, L. Jovanovic, C. Le Guillou, S. Bernard, L. Bonal, N. Carrasco, T. Gautier, J. Raya // *Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy*. – 2021. – V. 259. – P. 119–127.
15. Coal classification method based on visible-infrared spectroscopy and an improved multilayer extreme learning machine / Y. Mao, B.T. Le, D. Xiao, D. He, C. Liu, L. Jiang, Z. Yu, F. Yang, X. Liu // *Optics and Laser Technology*. – 2019. – V. 114. – P. 10–15.
16. Бутакова В.И., Попов В.К. Полиеновая модель строения углей и их метаморфизм // *Кокс и химия*. – 2017. – № 1. – С. 2–6.
17. Бутакова В.И. Возникновение и развитие фундаментального исследования строения каменных углей в Восточном научно-исследовательском углехимическом институте // *Кокс и химия*. – 2021. – № 3. – С. 34–47.
18. Иванов В.П. Комплексная оценка генетических и технологических свойств углей с применением ИК-спектроскопии // Основные направления геологоразведочных и научно-исследовательских работ на твердые горючие ископаемые в современных экономических условиях. – Ростов-на Дону: ВНИГРИУголь, 2014. – С. 135–138.
19. Дмитриенко А.А., Исаева Е.Р. Структурные признаки углефикации органических веществ // *Кокс и химия*. – 2019. – № 12. – С. 9–13.
20. Юдович Я.Э., Кетрис М.П. Неорганическое вещество углей. – Екатеринбург: Изд-во УрО РАН, 2002. – 423 с.
21. Жемчужников Ю. А. Общая геология каустобиолитов. – М.: ОНТИ, 1935. – 547 с.
22. Криштофович А.Н. Палеоботаника. – Л.: Гостоптехиздат, 1957. – 651 с.

23. Богородская Л.И., Конторович А.Э., Ларичев А.И. Кероген: методы изучения, геохимическая интерпретация. – Новосибирск: Изд-во СО РАН, филиал «ГЕО», 2005. – 254 с.
24. Беккер Ю. Спектроскопия. – М.: Техносфера, 2009. – 528 с.
25. Преч Э., Бюльманн Ф., Аффольтер К. Определение строения органических соединений. Таблицы спектральных данных / Пер. с англ. – М.: Мир, БИНОМ. Лаборатория знаний, 2006. – 438 с.
26. Гордон А., Форд Р. Спутник химика. Физико-химические свойства, методики, библиография. – М.: Мир, 1976. – 541 с.
27. Инфракрасная спектроскопия органических и природных соединений / А.В. Васильев, Е.В. Гриненко, А.О. Щукин, Т.Г. Федулина. – СПб.: СПбГЛТА, 2007. – 54 с.
28. Саранчук В.И., Айруни А.Т., Ковалев К.Е. Надмолекулярная организация, структура и свойства угля. – Киев: Наук. думка, 1988. – 191 с.
29. Марченко Л.Г. Генезис и минеральные ассоциации золота и платиноидов в месторождениях «черносланцевых» типа Казахстана: дис. ... д-ра геол.-минерал. наук. – СПб, 2012. – 294 с.
30. Касаточкин В.И., Ларина Н.К. Строение и свойства природных углей. – М.: Недра, 1975. – 159 с.
31. Hirsch P.B. Structural model of coals // Proc. Res Conf. on Science in Use of Coal. – 1958. – P. 29–35.
32. Krevelen D.W. Coal: typology. Chemistry. Physics. Constitution. – Amsterdam, New York, Elsevier Pub Co, 1961. – 514 p.
33. Guney M. Oxidation and spontaneous combustion of coal: review of individual factors // Colliery Guard. – 1968. – V. 216. – P. 105–110.
34. Chakrabarty S.K., Berkowitz N. Studies on the structure of coals. Pt. 3. Some inferences about skeletal structures // Fuel. – 1974. – V. 53. – Iss. 4. – P. 240–245.
35. Беллами Л. Инфракрасные спектры сложных молекул / Пер. с англ. – М.: Изд-во иностр. лит., 1963. – 590 с.
36. Тарасевич Б.Н. ИК спектры основных классов органических соединений. Справочные материалы. – М.: МГУ, 2012. – 55 с.
37. Лазуркин Ю.С. Основы молекулярной биологии: Физические методы исследования белков и нуклеиновых кислот. – М.: Наука, 1967. – 322 с.
38. Рахимова Г.К., Комилов Х.М. Изучение полисахаридов в сборе «Трибулепил». – М.: Изд-во «МЦНМО», 2019. – № 2 (56). – 40 с.
39. Geochemistry, mineralogy and genesis of rare metal (Nb-Ta-Zr-Hf-Y-REE-Ga) coals of the seam XI in the south of Kuznetsk Basin, Russia / S.I. Arbuzov, D.A. Spears, A.V. Vergunov, V.P. Ivanov, N.A. Zarubina // Ore Geology Reviews. – 2019. – № 113. – P. 1–19.
40. Смит А. Прикладная ИК-спектроскопия / Пер. с англ. – М.: Мир, 1982. – 328 с.
41. Бутакова В.И., Кирилова А.И., Попов В.К. Спектральная классификация бурых углей // Кокс и химия. – 2020. – № 6. – С. 16–20.
42. Использование ИК-спектроскопии диффузного отражения для определения минерального состава углей / В.К. Попов, В.И. Бутакова, Т.А. Кабалина, Ю.М. Посохов, В.Я. Шубодеров, А.Г. Утемов, А.В. Синяков, В.П. Проидина // Кокс и химия. – 2005. – № 2. – С. 3–9.

Поступила 04.06.2022 г.

Информация об авторах

Иванов В.П., доктор геолого-минералогических наук, доцент отделения геологии Инженерной школы природных ресурсов Национального исследовательского Томского политехнического университета.

Дмитриенко А.А., аспирант отделения геологии Инженерной школы природных ресурсов Национального исследовательского Томского политехнического университета.

UDC 550.4.08

DETERMINATION OF THE TYPES OF SILICON BONDS WITH FUNCTIONAL GROUPS IN THE STRUCTURES OF ORGANIC SUBSTANCES OF PLANT ORIGIN USING THE DIFFUSE REFLECTION METHOD OF INFRARED SPECTROSCOPY

Vladimir P. Ivanov¹,
ivp2005@mail.ru

Anastasiya A. Dmitrienko¹,
dmitrienkoanastasiyaa@gmail.com

¹ National Research Tomsk Polytechnic University,
30, Lenin avenue, Tomsk, 634050, Russia.

The relevance of the study is caused by the disclosure of the possibility of determining Si bonds with C, H, N, O in the structures of coal and other carbonified substances by diffuse infrared spectroscopy in the range of 7500–350 cm⁻¹. Then, the spectra are processed and spectral characteristics are determined by calculating values to define structural and genetic indicators and perform structural and group analysis. The use of structural and genetic indicators: Pm, Pv, PVt+L, P I, Pg, allows us to determine the influence of genetic factors on the formation of different types of silicon bonds and their amount in the structures of natural organic substances.

The main aim: on the example of IR spectra of hard coals to show techniques for determining the types of Si bonds with elements C, H, N, O using reference spectrometric characteristics of simple chemical compounds of silicon and analyzing the pair correlation of the intensity values of the selected diffuse reflection bands with the Si content in coals; on the example of fossilized (herbarium, phytolite) and carbonified (peat, kerogen, coal) substances to show the use of the detected types of bonds of organosilicon compounds in the structures of natural organic substances and the nature of their changes depending on carbon-petrographic and structural-genetic indicators.

Objects: herbarium of horsetail swamps of the Tomsk region, phytolite of horsetail, fern and kerogen of oil and gas deposits of Western Siberia of Jurassic age, peat of the Apache deposit in Kamchatka, coal grade D of the Two-arch Chernogorsky deposit of the Minusinsky basin, coal grade Z of the formation 39 of the Zhernovsky field of Kuzbass.

Methods: infrared Fourier spectroscopy of diffuse reflection.

Results. It was established that the using of reference tables of the spectrometric characteristics of Si and its correlation with intensity of diffuse reflection at frequencies with wave numbers of 800, 855, 868, 2070, 3391 cm⁻¹, one can examine the compounds Si-H, SiCH₃, Si(CH₃)₂, Si(C≡CH)₄, Si₂NH respectively. They reflect different types of Si bonds with functional groups and, as the experiment showed, with samples of horsetail herbarium, horsetail and fern phytolite, kerogen, peat, coal. Their use with structural and genetic indicators allows determining the influence of genetic factors on the formation of different types of silicon bonds and their number in the structures of natural organic substances.

Key words:

Coalified substance, structure, functional groups, Si bond forms, infrared spectroscopy.

REFERENCES

- Liu J., Spiro B.F., Dai S., French D., Graham I.T., Wang X., Zhao L., Zhao J., Zeng R. Strontium isotopes in high- and low-Ge coals from the Shengli Coalfield, Inner Mongolia, northern China: New indicators for Ge source. *International Journal of Coal Geology*, 2021, no. 233, pp. 2–11.
- Zhou M., Zhao L., Wang X., Nechaev V.P., French D., Spiro B.F., Graham I.T., Hower J.C., Dai Sh. Mineralogy and geochemistry of the Late Triassic coal from the Caotang mine, northeastern Sichuan Basin, China, with emphasis on the enrichment of the critical element lithium. *Ore Geology Reviews*, 2021, no. 139, pp. 22–38.
- Sun B., Liu Y., Tajmanova L., Liu C., Wu J. In-situ analysis of the lithium occurrence in the No.11 coal from the Antaibao mining district, Ningwu Coalfield, northern China. *Ore Geology Reviews*, 2022, no. 144, pp. 15–30.
- Nguyen X., Li J., Zhuang X., Li B., Querol X., Moreno N., Cordoba P. Significant enrichment of Rb and Cs in the Late Triassic coals from the Coc Sau surface mine, Cam Pha Coalfield, Quang Ninh Province, Vietnam. *Ore Geology Reviews*, 2022, no. 142, pp. 16–32.
- Jiu B., Huang W., Mu N. Mineralogy and elemental geochemistry of Permo-Carboniferous Li-enriched coal in the southern Ordos Basin, China: implications for modes of occurrence, controlling factors and sources of Li in coal. *Ore Geology Reviews*, 2022, no. 141, pp. 20–40.
- Xie P., Hower J.C., Nechaev V.P., Ju D., Liu X. Lithium and redox-sensitive (Ge, U, Mo, V) element mineralization in the Pennsylvanian coals from the Huangtupo coalfield, Shanxi, northern China: With emphasis on the interaction of infiltrating seawater and exfiltrating groundwater. *Fuel*, 2021, vol. 300, no. 9, pp. 21–42.
- Nifantov B.F., Zaostrovsky A.N., Zanina O.P. Mining-geological and technological significance of the distribution of valuable and toxic elements in Kuznetsk coal. *Coal*, 2009, no. 12 (1004), pp. 59–60.
- Tanaev I.V., Shpirt M.Ya. *Khimiya germaniya* [Chemistry of germanium]. Moscow, Khimiya Publ., 1967. 451 p.
- Nakamoto K. *IK-spectry i spectry KR neorganicheskikh i koordinatsionnykh soedineniy* [Infrared and Raman spectra of inorganic and coordination compounds]. Translated from English. Moscow, Mir Publ., 1991. 536 p.
- Arbuzov S.I., Spears, D.A., Ilenok S.S., Chekryzhov I.Yu, Ivanov V.P. Modes of occurrence of germanium and tungsten in the Spetsugli germanium ore field, Pavlovka brown coal deposit, Russian Far East. *Ore Geology Reviews*, 2021, no. 132, pp. 103986.
- Orrego-Ruiz J.A., Cabanzo R., Mejía-Ospino E. Study of Colombian coals using photoacoustic Fourier transform infrared spectroscopy. *International Journal of Coal Geology*, 2011, vol. 85, pp. 307–310.
- Lei M., Yu X., Li M., Zhu W. Geographic origin identification of coal using near-infrared spectroscopy combined with improved random forest method. *Infrared Physics and Technology*, 2018, vol. 92, pp. 177–182.
- Xiao D., Le B.T. Rapid discrimination of coal geographical origin via near-infrared spectroscopy combined with machine learning algorithms. *Microchemical Journal*, 2020, vol. 157, pp. 103–108.
- Phan V.T.H., Quirico E., Beck P., Jovanovic L., Le Guillou C., Bernard S., Bonal L., Carrasco N., Gautier T., Raya J. Infrared spectroscopy quantification of functional carbon groups in kero-

- gens and coals: a calibration procedure. *Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy*, 2021, vol. 259, pp. 119–127.
15. Mao Y., Le B.T., Xiao D., He D., Liu C., Jiang L., Yu Z., Yang F., Liu X. Coal classification method based on visible-infrared spectroscopy and an improved multilayer extreme learning machine. *Optics and Laser Technology*, 2019, vol. 114, pp. 10–15.
 16. Butakova V.I., Popov V.K., Posokhov Y.M. Polyene model of coal structure and metamorphism. *Coke and Chemistry*, 2017, vol. 60, no. 1, pp. 2–6. In Rus.
 17. Butakova V.I. The emergence and development of fundamental research of the structure of coal in the Eastern Research Coal Chemical Institute. *Coke and chemistry*, 2021, no. 3, pp. 34–47. In Rus.
 18. Ivanov V.P. Complex assessment of the genetic and technological properties of coals using IR spectroscopy. *The main directions of geological exploration and research work on solid fuels in modern economic conditions*. Rostov-on-Don, VNIGRIugol Publ., 2014. pp. 135–138.
 19. Dmitrienko A.A., Isaeva E.R. Structural aspects of the coalification of organic materials. *Coke and Chemistry*, 2019, vol. 62, no. 12, pp. 9–13. In Rus.
 20. Yudovich Ya.E., Ketris M.P. *Neorganicheskoe veshchestvo ugley* [Inorganic matter of coal]. Ekaterinburg, Ed. UrO RAS Publ., 2002. 423 p.
 21. Zhemchuzhnikov Yu. A. *Obshchaya geologiya kaustobolitov* [General geology of caustobolites]. Moscow, ONTI Publ., 1935. 547 p.
 22. Kryshchov A.N. *Paleobotanika* [Paleobotanics]. Leningrad, Gostoptehizdat Publ., 1957. 651 p.
 23. Bogorodskaya L.I., Kontorovich A.E., Larichev A.I. *Kerogen: metody izucheniya, geokhimicheskaya interpretatsiya* [Kerogen. Methods for study and geochemical interpretation]. Novosibirsk, Geo Publ., 2005. 254 p.
 24. Becker Yu. *Spektroskopiya* [Spectroscopy]. Moscow, Tekhnosfera Publ., 2009. 528 p.
 25. Prech E., Byullmann F., Affolter K. *Opreделение stroeniya organicheskikh soedineniy. Tablitsy spektralnykh dannykh* [Structure determination of organic compounds. Tables of spectral data]. Translated from English. Moscow, Mir Publ., 2006. 438 p.
 26. Gordon A., Ford R. *Sputnik khimika* [Chemist's companion]. Translated from English. Moscow, Mir Publ., 1976. 541 p.
 27. Vasilev A.V., Grinenko V.E., Schukin A.O., Fedulina T.G. *Infrakrasnaya spektroskopiya organicheskikh i prirodnnykh soedineniy* [Infrared spectroscopy of organic and natural compounds]. St-Petersburg, SPbGLTA Publ., 2007. 54 p.
 28. Saranchuk V.I., Ayruni A.T., Kovalev K.E. *Nadmolekulyarnaya organizatsiya, struktura i svoystva uglya* [Supramolecular organization, structure and properties of coal]. Kiev, Naukova Dumka Publ., 1988. 191 p.
 29. Marchenko L.G. *Genezis i mineralnye assotsiatsii zolota i platinoydov v mestorozhdeniyakh chernoslantsevoogo tipa*. Dokt. Dis. [Genesis and mineral associations of gold and platinumoids in deposits of the «black shale» type of Kazakhstan. Dr. Diss.]. St. Petersburg, 2012. 294 p.
 30. Kasatochkin V.I., Larina N.K. *Stroenie i svoystva prirodnnykh ugley* [Structure and properties of natural coals]. Moscow, Nedra Publ., 1975. 159 p.
 31. Hirsch P.B. Structural model of coals. *Proc. Res Conf. on Science in Use of Coal*, 1958, pp. 29–35.
 32. Krevelen D.W. *Coal: typology. Chemistry. Physics. Constitution*. Amsterdam, New York, Elsevier Pub Co, 1961. 514 p.
 33. Guney M. Oxidation and spontaneous combustion of coal: review of individual factors. *Colliery Guard*, 1968, vol. 216, pp. 105–110.
 34. Chakraborty S.K., Berkowitz N. Studies on the structure of coals. Pt. 3. Some inferences about skeletal structures. *Fuel*, 1974, vol. 53, Iss. 4, pp. 240–245.
 35. Bellamy L.J. *Infrakrasnye spektry sloznykh molekul* [Advances in infrared group frequencies]. Moscow, Izdatelstvo inostrannoy literatury Publ., 1971. 590 p.
 36. Tarasevich B.N. *IK spektry osnovnykh klassov organicheskikh soedineniy. Spravochnye materialy* [Infrared spectra of the main classes of organic compounds. Reference materials]. Moscow, MSU Press, 2012. 55 p.
 37. Lazurkin U.S. *Osnovy molekulyarnoy biologii: fizicheskie metody issledovaniya* [Fundamentals of molecular biology. Physical methods for the study of proteins and nucleic acids]. Moscow, Nauka Publ., 1967. 322 p.
 38. Rakhimova G.K., Komilov H.M. *Izuchenie polisakharidov v sbore «Tribulepil»* [Study of polysaccharides in the collection «Tribulepil»]. Moscow, MTsNMO Publ., 2019. No. 2 (56), 40 p.
 39. Arbutov S.I., Spears D.A., Vergunov A.V., Ivanov V.P., Zarubina N.A. Geochemistry, mineralogy and genesis of rare metal (Nb-Ta-Zr-Hf-Y-REE-Ga) coals of the seam XI in the south of Kuznetsk Basin, Russia. *Ore Geology Reviews*, 2019, no 113, pp. 1–19.
 40. Smith A. *Prikladnaya IK-spektroskopiya* [Applied infrared spectroscopy]. Moscow, John Wiley and Sons, Inc., 1979. 328 p.
 41. Butakova V.I., Kirillova A.I., Popov V.K. Spectral classification of brown coals. *Coke and chemistry*, 2020, no. 6, pp. 16–20. In Rus.
 42. Popov V.K., Butakova V.I., Kabalina T.A., Posokhov U.M., Shuboderov V.Ya., Utemov A.G., Sinyakov A.V., Proydina V.P. The use of diffuse reflection IR spectroscopy to determine the mineral composition of coals. *Coke and chemistry*, 2005, no. 2, pp. 3–9. In Rus.

Received: 4 June 2022.

Information about the authors

Vladimir P. Ivanov, Dr. Sc., professor, National Research Tomsk Polytechnic University.

Anastasiya A. Dmitrienko, graduate student, National Research Tomsk Polytechnic University.

УДК 556.314, 550.42, 550.43

ГЕОХИМИЯ И ФОРМИРОВАНИЕ ХИМИЧЕСКОГО СОСТАВА ПРИРОДНЫХ ВОД НА ТЕРРИТОРИИ ТУТУЯССКОЙ ПЛОЩАДИ (КЕМЕРОВСКАЯ ОБЛАСТЬ)

Домрочева Евгения Витальевна,
DomrochevaYV@ipgg.sbras.ru

Томский филиал Института нефтегазовой геологии и геофизики им. А.А. Трофимука СО РАН,
Россия, 634055, г. Томск, пр. Академический, 4.

Актуальность. Изучение гидрогеохимических условий и формирования состава природных вод Томь-Усинского района Кемеровской области в условиях отсутствия добычи угля и нагрузок на водные системы важная и актуальная тема для этого региона. Полученные данные позволяют расширить представления об общих закономерностях распределения элементов в системе вода–порода в условиях угольных отложений на территории, не нарушенной интенсивной разработкой полезных ископаемых, например, добычей угля или угольного метана, характерных для Кузбасса. Это позволит в дальнейшем использовать имеющуюся информацию при различных экологических и поисковых исследованиях.

Цель: изучить геохимию природных вод, провести расчеты активностей основных ионов с помощью программного комплекса HydroGeo и построить диаграммы равновесия подземных вод с водовмещающими отложениями; выделить геохимические типы природных вод и изучить их изменение в соответствии с зональностью, прослеживающейся на данной территории.

Объекты: подземные воды преимущественно юрских и верхнепермских терригенно-угленосных отложений тайлуганской свиты Ерунаковской подсерии Кольчугинской серии Тутуянской площади Томь-Усинского района Кузнецкого бассейна, а также речные воды территории.

Методы. Химический состав воды определялся стандартными методами в Проблемной научно-исследовательской лаборатории гидрогеохимии Томского политехнического университета. Формы миграции гумусовых кислот рассчитывались с использованием программного комплекса HydroGeo.

Результаты. Авторами выполнены исследования химического состава природных вод на территории Тутуянской площади Томь-Усинского района Кузбасса. В рамках данного исследования отмечено, что имеющиеся изменения в значениях минерализации и pH присущи естественному их распределению. Источником поступления вод являются атмосферные осадки, поступающие в систему из областей питания, поэтому изученные воды инфильтрационного генезиса, прослеживается гидрогеохимическая зональность. В работе показаны результаты проведенного расчета равновесий подземных вод данной площади с карбонатными и алюмосиликатными минералами вмещающих пород. Установлено, что воды имеют равновесно-неравновесный характер: они неравновесны с первичными (эндогенными) минералами, которые они и растворяют, но в то же время равновесны с глинами и карбонатами, т. е. осаждаются из вод.

Ключевые слова:

Поверхностные и подземные воды, формирование состава, равновесно-неравновесное состояние, вода–порода, зональность подземных вод, Кузбасс.

Введение

В последние годы сотрудниками ТФ ИНГГ СО РАН продолжилось изучение поверхностных и подземных вод на территории Кемеровской области. Ранее авторами достаточно детально уже были изучены формирование и гидрогеохимические условия (химический, изотопный и органический состав вод) территорий Нарыкско-Осташкинской и Талдинской площадей Ерунаковского района Кузбасса, о чем неоднократно писалось [1–15]. Обе площади с большими оцененными запасами угольного метана, которые уже начали осваивать [16, 17]. К сожалению, меньше внимания уделялось изучению южных районов Кузбасса [12, 18–21]. Исследования в данной работе сосредоточены как раз на территории одного из них – Тутуянской площади (рис. 1). Она является также перспективным участком в связи с добычей угольного метана с оцененными запасами газа от 1,0 до 1,5 млрд м³/км² и в перспективе также планируется ее освоение [16, 17]. Следует отметить, что при интенсивной разработке полезных ископаемых происходит значительное изменение состояния природной среды. Изменяется ландшафт, что приводит к изменению

гидросети. Это очень характерно для Кузбасса, в частности для площадей соседних с Тутуянской. Сама же площадь до настоящего момента не была подвержена таким изменениям и имеет естественное (природное) состояние. Несмотря на это, стоит отметить, что при разработке полезных ископаемых на соседних площадях большое количество тяжелых металлов с пылью может поступать в воздух, а затем с осадками в поверхностные и подземные воды. При таких условиях происходит формирование вод по составу нехарактерных для региона. После разработки геохимическое состояние природных вод подвергнется еще большему изменению. Все это объясняет необходимость изучения геохимии природных вод, особенно до начала освоения территории.

Анализ гидрогеохимических условий природных вод этого района позволил авторам выявить причины изменения их химического состава и понять условия взаимодействия подземных вод в системе вода–порода с помощью программного комплекса HydroGeo, рассчитав активности основных ионов и построив диаграммы равновесия [22]. Подобные работы выполнялись разными авторами, однако они более популярны среди иностранных, выполненных для зарубежных территорий [23–43].



Рис. 1. Карта района работ с нанесением точек опробования на территории Тутуянской площади. 1 – точка отбора и ее номер, 2 – точка отбора из поверхностного водотока, 3 – точка отбора из подземного водотока

Fig. 1. Map of the work area with the application of test points on the territory of Tutyasskaya area. 1 – sample number, 2 – sampling point from surface watercourse, 3 – sampling point from underground watercourse

Методы исследования

За основу работы взяты результаты анализа проб, отобранных в 2015–2016 гг. сотрудниками ТФ ИНГТ СО РАН в ходе совместных работ с ООО «Газпром добыча Кузнецк», а также имеющиеся данные по этой территории. В полевых условиях измерялись: температура, pH, Eh и быстроизменяющиеся компоненты. Аналитические исследования проводились стандартными методами в Проблемной научно-исследовательской лаборатории гидрогеохимии Томского политехнического университета, зарегистрированной в Системе аналитических лабораторий Госстандарта России. При проведении полного химического анализа вод использовались традиционные методы, а также методы спектрального и атомно-абсорбционного анализа.

Расчет активностей проводился с использованием программного комплекса HydroGeo, разработанного М.Б. Букаты, имеющего сертификацию в Росатомнадзоре [22]. Данный программный комплекс основан на методе констант равновесий. В существующую систему вводятся результаты химического состава воды, а также концентрации органических веществ и некоторые физические параметры. В данном случае по каждой пробе для подземных вод вводились данные по температуре, pH, Eh, содержанию основных ионов (HCO_3^- , CO_3^{2-} (CO_2), Cl^- , SO_4^{2-} , Ca^{2+} , Na^+ , Mg^{2+} , K^+), а также Si. В результате гидрогеохимических расчетов получены концентрации активностей каждого компонента в растворе, включенных в систему моделирования. После обработки введенной гидрогеохимической информации рассчитываются значения параметров насыщения подземных вод относительно основных водовмещающих минералов.

Степень насыщения подземных вод относительно основных породообразующих минералов алюмосиликатных отложений определяется посредством нанесе-

ния данных по составу вод на диаграммы полей устойчивости алюмосиликатов. Методика их построения подробно рассматривается в работах Р.М. Гаррельса [44], Х.К. Хельгессона [45], Дж.М. Андерсона [46]. Для наиболее распространенных породообразующих минералов их поля устойчивости, основанные на уточненных параметрах энергии Гиббса, приводятся в трудах ряда российских и зарубежных исследователей и широко представлены в работе [47]. При построении этих диаграмм рассматриваются условия равновесия подземных вод с минералами по реакциям их взаимодействия, приводящие к превращению первичных алюмосиликатов (например, полевых шпатов) в глинистые минералы, а также и к различным взаимоотношениям между самими вторичными алюмосиликатами. Все выявленные соотношения между минералами представляются на двумерной диаграмме в координатах, соответствующих в реакциях переменным.

Объект исследования

Основным объектом исследования являются поверхностные и подземные воды на территории юга Кемеровской области в верхнем течении р. Томь – Тутуянской площади (рис. 1). Изученная площадь входит в состав Томь-Усинского геолого-промышленного района юго-восточной части Кузбасса. Пробы воды были отобраны сотрудниками Томского филиала ИНГТ СО РАН в 2015–2016 гг. в рамках договорных работ с ООО «Газпром добыча Кузнецк».

Это воды, приуроченные преимущественно к юрским (мощность юрских отложений достигает 500–600 м в центральной части синклинали) и верхнепермским терригенно-угленосным отложениям тайлуганской свиты Ерунаковской подсерии Кольчугинской серии. В работе мы рассматриваем их в целом с при-

родными водами территории, как для сравнения, так и с целью проследить общую эволюцию вод.

Поверхностные воды отбирались из основных водных артерий территории, рек: Абашева, Тутуяс, Ольжерас

и их притоков, а подземные воды – из имеющихся скважин и родников. В общей сложности было отобрано 18 проб воды: 13 из поверхностных водотоков, 1 из родника и 4 из скважин глубиной 30–200 м (рис. 1, табл. 1).

Таблица 1. Результаты полевых наблюдений в природных водах территории Тутуяской площади, мг/л

Table 1. Results of field observations in the natural waters of the territory of Tutuyasskaya area, mg/l

№ пробы Sample no.	Привязка/Locality	$t_{\text{возд}}$ $t_{\text{airs}}, ^\circ\text{C}$	$t_{\text{вод}}$ $t_{\text{water}}, ^\circ\text{C}$	pH	$\text{Fe}_{\text{общ.}}$ $\text{Fe}_{\text{gen.}}$	NO_2	NH_4	Eh, mV	Электропроводность, мС Electrical conductivity, mS
Поверхностные воды/Surface water									
1	р. Глухая/г. Glukhaya	19	14,0	8,0	1,8	0,01	0,1	20	0,05
2	Озеро на слиянии рек Таборная и Сев. Ольжерас Lake at the confluence of rivers Tabornaya and North Olzheras	24	21,3	8,3	1,0	<0,01	<0,1	13	0,03
3	р. Кайзас/г. Kayzas	19	16,0	8,0	1,8	<0,01	<0,1	39	0,10
4	р. Тутуяс/г. Tutuyas	17	18,8	8,4	1,8	<0,01	<0,1	73	0,04
5	р. Баранзас/г. Baranzas	17	17,4	8,1	1,5	<0,01	<0,1	96	0,07
6	р. Верх. Кийзак за пос. Тутуяс г. Top Kiyzak for v. Tutuyas	17	13,1	8,3	0,9	<0,01	0,1	33	0,08
7	р. Ниж. Кийзак/г. Nizhny Kiyzak	24	13,9	7,2	3,0	<0,01	<0,1	–56	0,06
8	руч. Пахомовский в долине р. Абашева Pakhomovsky creek in the valley of the r. Abasheva	24	13,6	8,5	1,5	<0,01	<0,1	60	0,21
9	р. Абашева, устье Пахомовского ключа г. Abasheva, the mouth of the Pakhomovsky spring	24	17,5	8,0	0,7	<0,01	0,1	16	0,23
10	р. Б. Кедровка/г. В. Kedrovka	–7	0,2	7,6	0,7	<0,01	<0,1	–57	0,01
11	р. Б. Тунзассу/г. В. Tunzassu	–12	0,3	8,1	0,8	<0,01	<0,1	–142	0,02
12	р. Тунзас/г. Tunzas	–7	0,0	8,5	1,2	<0,01	<0,1	–84	0,02
13	р. Кайзас/г. Kayzas	–10	0,3	8,3	0,9	<0,01	<0,1	–28	0,01
Подземные воды/Ground water									
14	Скважина за п. Тутуяс/Well behind vil. Tutuyas	26	4,5	7,7	0,8	<0,01	<0,1	–210	0,28
15	Скважина на турбазе/Well at the campsite	24	7,5	8,8	0,4	<0,01	<0,1	–131	0,46
16	Родник на турбазе/Spring at the campsite	24	6,7	8,3	0,5	<0,01	<0,1	61	0,06
17	Скважина в пос. Тутуяс/Well in the vil. Tutuyas	17	6,0	8,0	0,2	<0,01	<0,1	–39	0,25
18	Скважина в долине р. Абашева Well in the valley of the r. Abasheva	24	6,6	8,0	2,0	<0,01	<0,1	–83	0,47

Результаты исследования

Проведенное гидрогеохимическое опробование на данной территории показало, что исследуемые *поверхностные воды* являются умеренно пресными, по величине pH от нейтральных до слабо щелочных. Минерализация этих вод составляет от 37,2 до 370,9 мг/л, значения pH от 7,2 до 8,5. Результаты химического состава вод представлены в табл. 2. Минимальные значения макрокомпонентов установлены в Большом озере на слиянии рек Таборная и Ольжерас (проба 2), максимальные – в р. Абашева (проба 9) и в р. Большая Кедровка (проба 10). По химическому составу воды гидрокарбонатные кальциевые с содержанием HCO_3^- 22–273 мг/л и Ca^{2+} 6–54 мг/л. Поверхностные воды природных озер (проба 2) и опробованных рек имеют небольшие значения общей минерализации, так как основным источником их питания являются осадки, выпадающие из атмосферы и имеющие ультрапресный состав. Выпадая на поверхность, они, прежде всего, контактируют с верхним почвенным слоем земной поверхности и только после этого про-

никают глубже и взаимодействуют с горными породами. В связи с тем, что такое взаимодействие минимально, мы и наблюдаем, что почти все они имеют небольшой разброс значений минерализации и pH и относятся к $\text{HCO}_3^- \text{Ca}$ типу вод (рис. 2).

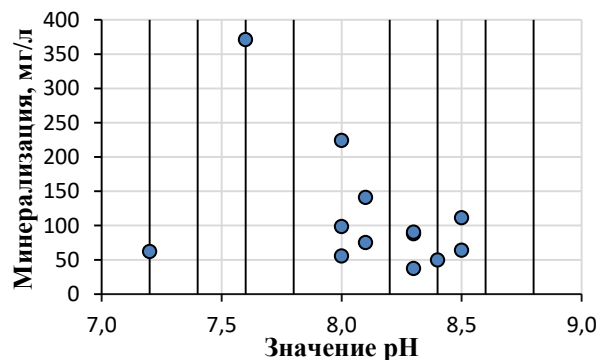


Рис. 2. Зависимость значений общей минерализации от величины pH поверхностных вод

Fig. 2. Dependence of the values of TDS on the pH value of surface waters

Таблица 2. Данные по химическому составу вод на территории Тутуяской площади, мг/л

Table 2. Data on the chemical composition of waters in the territory of Tutuyasskaya area, mg/l

№	HCO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	Cl ⁻	Ca ²⁺	Na ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	CO ₂	CO ₃	Минерализация/TDS	ОЖ, мг-экв/л/ТН, mg-eq/l
1	22,0	3,6	0,8	9	2,8	0,34	1,83	<4	14,6	55,4	0,60
2	23,2	3,0	0,4	6	2,1	0,22	1,83	6,2	<3	37,2	0,45
3	46,4	4,8	1,2	15	4,1	0,45	5,00	<4	21,0	98,3	1,16
4	28,0	2,5	0,6	8	2,5	0,27	3,66	<4	3,66	49,5	0,70
5	39,0	4,1	0,8	13	3,2	0,36	3,05	<4	11,0	74,9	0,90
6	27,0	4,9	0,9	13	4,1	0,46	4,27	<4	33,0	87,8	1,00
7	37,0	7,1	1,0	11	1,8	1,10	2,44	6,2	<3	61,9	0,75
8	113,5	5,4	0,8	27	6,6	0,70	7,93	<4	8,5	170,6	2,00
9	128,0	5,5	1,0	20	33,0	0,70	11,0	<4	24,4	223,9	1,90
10	273,0	9,0	1,0	54	23,0	0,94	10,0	20,9	<3	370,9	3,48
11	102,0	9,0	0,5	22	3,37	0,27	3,90	57,2	<3	141,0	1,52
12	40,0	9,0	0,4	9,1	2,15	0,18	2,47	11,4	<3	62,87	0,59
13	76,0	9,0	1,2	17	3,56	0,36	4,24	9,4	<3	111,2	1,31
14	360,0	0,1	2,6	5	137	1,00	1,83	11,0	<3	508,0	0,40
15	39,0	6,2	0,5	11	3,3	0,37	2,44	6,2	<3	62,9	0,75
16	190	2,0	0,5	33	19,7	0,40	12,2	8,8	<3	257,9	2,65
17	354,0	4,7	1,0	56	49,0	0,88	14,6	18,5	<3	480,9	4,00
18	272,0	0,1	1,2	25	41,1	0,65	12,0	33,5	<3	351,9	2,23

Анализируя распределение минерализации и значений pH, отмечается незначительное увеличение минерализации от водоразделов к реке. Такое распределение макрокомпонентов наблюдается для водосборных бассейнов рек Абашева, Тутуяс и Ольжерас. Вариации возникают в зимнее и летнее время отбора проб. В то же время отмечается небольшое увеличение концентраций макрокомпонентов с уменьшением отметок рельефа. Минерализация и концентрации практически всех макрокомпонентов (HCO₃⁻, Na⁺, Mg²⁺, K⁺) увеличиваются с востока на северо-запад. Поэтому на территории Тутуяского и Ольжерасского бассейнов установлены наименьшие концентрации, резко отличающиеся от концентраций, установленных на территории Абашевского бассейна. Таким образом, чем более длительное время происходит взаимодействие этих вод с горными породами и более длинный путь они совершают, тем значительнее увеличение в них содержания макрокомпонентов и значений pH [47]. В связи с этим наблюдается незначительное увеличение минерализации и значений pH с уменьшением отметок рельефа.

По химическому составу подземные воды Тутуяской площади в основном гидрокарбонатные кальциевые, кальциево-натриевые и натриево-кальциевые, относящиеся к зоне активного водообмена (табл. 2, рис. 3). Только одна проба имеет нехарактерный состав для подземных вод этой зоны – это скважина за п. Тутуяс (проба 14). Химический состав воды в этой скважине гидрокарбонатный натриевый с максимальным значением pH (среди опробованных нами подземных вод) – 8,8 и минерализацией – 508 мг/л. Вполне вероятно, что на химический состав этой воды оказал влияние подток по зонам тектонических нарушений вод более минерализованного состава, относящихся к зоне замедленного водообмена. В общем же содержание HCO₃⁻ изменяется от 39 до 360 мг/л, Ca²⁺ от 5 до 56 мг/л, Na⁺ в среднем составляя 49 мг/л. Что касается концентрации Cl⁻, содержание которого с глубиной увеличивается, то значения его незначительны – от 0,5 до 1,2 мг/л, максимально 2,6 мг/л. В целом же с глубиной минерализация подземных вод закономерно увеличивается от 63 до 508 мг/л (рис. 3, а). По классификации А.М. Овчинникова это воды в основном умеренно пресные.

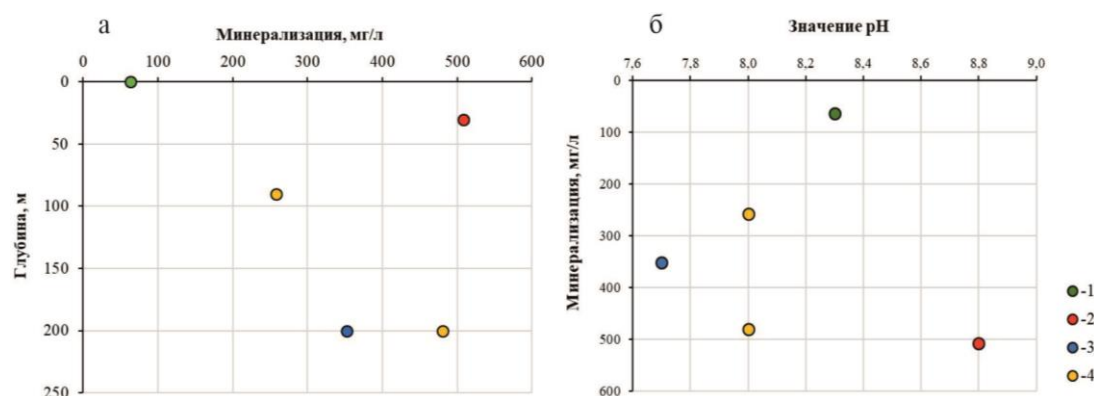


Рис. 3. Изменение минерализации подземных вод с глубиной в зоне активного водообмена (а) и зависимость изменения минерализации от pH с нанесением типов вод по химическому составу: 1 – HCO₃ Ca, 2 – HCO₃ Na, 3 – HCO₃ Ca-Na, 4 – HCO₃ Na-Ca

Fig. 3. Change in TDS of groundwater with depth in the zone of active water exchange (a) and the dependence of the change in TDS on pH (b) with the application of water types by chemical composition: 1 – HCO₃ Ca, 2 – HCO₃ Na, 3 – HCO₃ Ca-Na, 4 – HCO₃ Na-Ca

Одновременно с ростом минерализации растет и значение pH (рис. 3, б). Подземные воды в основном слабощелочные, реже нейтральные и щелочные. На рассматриваемой площади наиболее характерны средние значения pH подземных вод от 8,0 до 8,2.

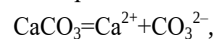
Как уже было отмечено выше, для опробованных подземных вод характерен $\text{HCO}_3^- \text{Ca}$, $\text{HCO}_3^- \text{Na-Ca}$, $\text{HCO}_3^- \text{Ca-Na}$ состав, реже $\text{HCO}_3^- \text{Na}$ (рис. 3). Из рисунка видно, что количество натрия в составе вод увеличивается с глубиной и в основном с порядка 200 м воды становятся гидрокарбонатного кальциево-натриевого и натриево-кальциевого состава. В связи с этим незначительно, но все-таки меняется тип подземных вод с $\text{HCO}_3^- \text{Ca}$ на $\text{HCO}_3^- \text{Na-Ca}$ и $\text{HCO}_3^- \text{Ca-Na}$.

Для понимания механизмов формирования состава подземных вод очень важно выявить характер их равновесия с минералами вмещающих пород, т. к. состав вод определяется разностью между растворяемыми горными породами и образующимися вторичными минералами [4, 6, 20, 48]. При расчетах равновесий между минералами и природными водами в уравнениях используются величины активности. Для расчета активности химических элементов, входящих в состав подземных вод, и построения диаграмм равновесия вод в состав твердой фазы были выбраны минералы, которые наиболее часто встречаются во вмещающих отложениях. Это в основном силикатные и алюмосиликатные (кварц, полевые шпаты, глины и др.), единично

карбонатные (кальцит, магнезит, доломит, сидерит), а также сульфатные и хлоридные минералы.

На основе имеющихся данных по составу вод при помощи программного комплекса HydroGeo автор получил величины активностей ионов с учетом ионной силы раствора, которая зависит от минерализации вод. Для бесконечно разбавленных растворов (пресных вод) ионная сила равна нулю. В случае более минерализованных вод зоны активного водообмена она изменялась в пределах до 0,01 моль/л. В достаточно минерализованных водах замедленного водообмена она выше [6].

Характер равновесия воды, например, с кальцитом может быть определен по произведению растворимости его ионов согласно реакции:



константа которой равна при температуре 5 °C $10^{-8,09}$ и при 25 °C – $10^{-8,34}$ [44]. Поэтому, зная активности Ca^{2+} и CO_3^{2-} , можно рассчитать квотант реакции (Q) – то, что действительно есть в растворе. Если квотант реакции равен или больше константы, значит, воды равновесны или пересыщены относительно кальцита.

Результаты расчетов удобно представить графически с помощью диаграмм степени насыщения (рис. 4, 5). Если фигуративные точки (квотант) располагаются выше линии насыщения (константы), то воды насыщены относительно карбонатов.

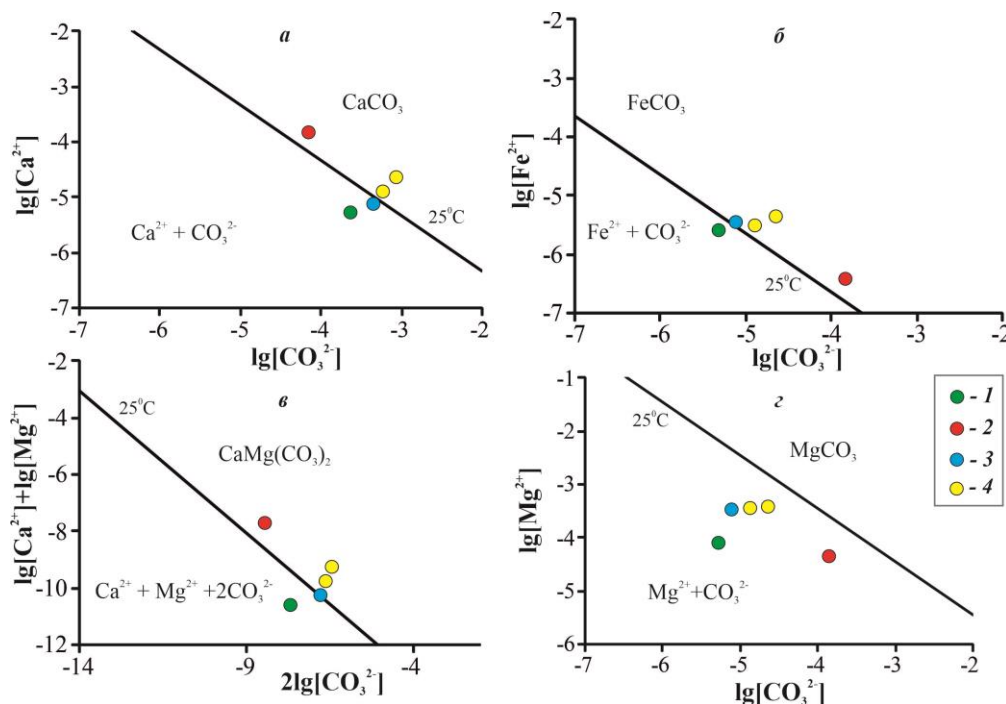


Рис. 4. Равновесие подземных вод с карбонатными минералами с нанесением данных по типу вод. Типы вод по химическому составу: 1 – $\text{HCO}_3^- \text{Ca}$, 2 – $\text{HCO}_3^- \text{Na}$, 3 – $\text{HCO}_3^- \text{Ca-Na}$, 4 – $\text{HCO}_3^- \text{Na-Ca}$

Fig. 4. Equilibrium of groundwater with carbonate minerals with the application of data on the type of water. Types of waters by chemical composition: 1 – $\text{HCO}_3^- \text{Ca}$, 2 – $\text{HCO}_3^- \text{Na}$, 3 – $\text{HCO}_3^- \text{Ca-Na}$, 4 – $\text{HCO}_3^- \text{Na-Ca}$

Анализ диаграмм показал, что пресные подземные воды не насыщены к кальциту, кроме этого, часть точек расположилась близко к границе насыщения или по обе стороны от нее (рис. 4). В целом же более ми-

нерализованные воды гидрокарбонатного натриевого состава (содовые воды), развитые преимущественно в зоне замедленного водообмена, насыщены по отношению к кальциту. Из всех диаграмм видно, что при

переходе из одного состояния в другое меняется и химический тип подземных вод. Пресный тип вод характеризуется меньшей степенью насыщения относительно кальцита благодаря низким минерализации, значениям pH и низкой активностью иона Ca^{2+} .

Как видно на рис. 4, воды пересыщены практически все относительно кальцита и сидерита, большая часть относительно доломита и близки к насыщению относительно магнезита. Например, из диаграммы насыщения доломитом видно, что только подземные воды более пресные, в основном не насыщены к доломиту, в то время как остальные типы вод способны высаживать доломит из раствора при стандартной температуре.

Как уже было описано в литературе, формирование на протяжении всего времени карбонатных минералов носит закономерный характер, который определяется такими параметрами гидрогеологической среды, как pH, температура и минерализация подземных вод. Все эти параметры закономерно изменяются с глубиной. При этом важно отметить, что одним из ведущих факторов непрерывного вторичного карбонатообразования является неравновесное состояние вод с первичными алюмосиликатными минералами [23, 47].

Как показывают полученные данные, все воды неравновесны с первичными минералами водовмещающих пород: полевыми шпатами, кварцем, пиритом, пироксенами и многими другими (роговыми обманками, амфиболами, эпидотом) (рис. 5).

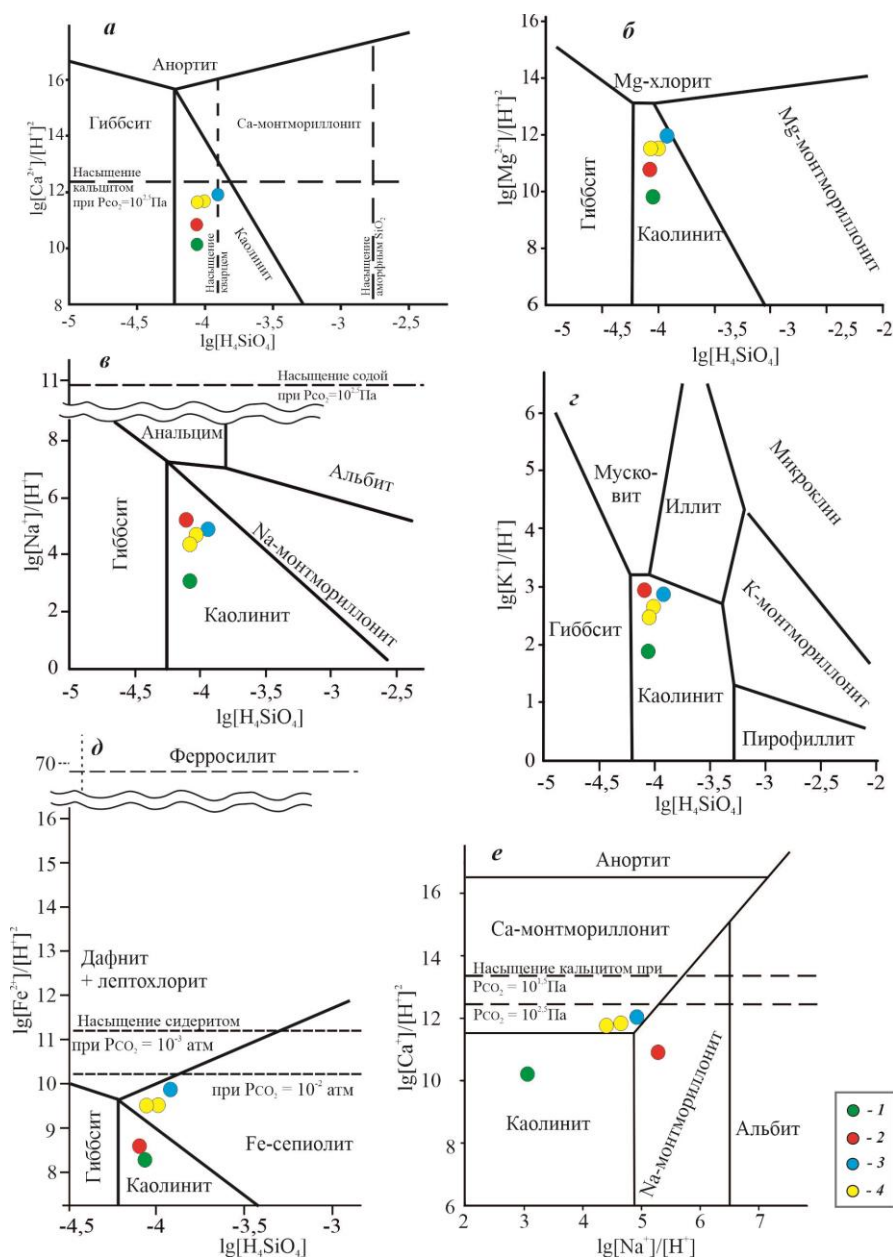


Рис. 5. Равновесие подземных вод с алюмосиликатными минералами. Типы вод по химическому составу: 1 – $\text{HCO}_3 \text{ Ca}$, 2 – $\text{HCO}_3 \text{ Na}$, 3 – $\text{HCO}_3 \text{ Ca-Na}$, 4 – $\text{HCO}_3 \text{ Na-Ca}$

Fig. 5. Equilibrium of groundwater with aluminosilicate minerals. Types of waters by chemical composition: 1 – $\text{HCO}_3 \text{ Ca}$, 2 – $\text{HCO}_3 \text{ Na}$, 3 – $\text{HCO}_3 \text{ Ca-Na}$, 4 – $\text{HCO}_3 \text{ Na-Ca}$

На основе анализа полученных автором данных, воды в системе $\text{HCl-H}_2\text{O-Al}_2\text{O}_3\text{-CaO-CO}_2\text{-SiO}_2$ (рис. 5, а) достаточно однородны по содержанию кальция и кремнекислоты, поэтому область нанесенных данных в виде точек достаточно ограничена. Такое поведение точек объясняется тем, что при невысоких значениях pH (что характерно для вод зоны активного водообмена) растворимость кремнекислоты невысокая, что и способствует их сосредоточению в поле устойчивости каолинита. Если бы опробованные воды имели выраженный содовый состав, то они располагались бы в поле насыщения монтмориллонитом или ближе к нему, так как этот процесс является более затратным при минералообразовании в отношении кремния.

На рис. 5, б приведена диаграмма полей устойчивости минералов в зависимости от активностей в воде ионов магния, кремнекислоты и pH. Все опробованные воды находятся в области устойчивости с каолинитом и не устойчивы по отношению к остальным, так как пресные воды зоны активного водообмена имеют менее высокие активности этих ионов по сравнению, например, с содовыми водами.

Диаграммы соотношения полей устойчивости минералов в системе $\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-Na}_2\text{O-CO}_2\text{-H}_2\text{O}$ приведены на рис. 5, в. Степень насыщения подземных вод относительно натриевых минералов устанавливается по фазовым равновесиям между альбитом, каолинитом, гиббситом и Na-монтмориллонитом. В этой системе также наблюдается, что все точки располагаются в области равновесия с каолинитом и ни одна точка не попадает в области равновесия с другими минералами (Na-монтмориллонитом, альбитом, гиббситом). Надо отметить, что все точки далеки от насыщения содой (рис. 5, в), т. е. воды района будут и дальше эволюционировать в сторону формирования содовых вод, поскольку этому не препятствует ни один геохимический барьер.

Равновесие подземных вод с калиевыми алюмосиликатами в системе $\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-K}_2\text{O-CO}_2\text{-H}_2\text{O}$ (рис. 5, з) свидетельствует о том, что в данных гидрогеохимических условиях воды формируют преимущественно каолинит, формирование же гидрослюд на данном этапе невозможно, так как это характерно для вод хлоридного состава, а это воды уже относящиеся к зоне весьма замедленного водообмена. Гидрослюда устойчива в более щелочных или в более богатых калием растворах. Образованию K-монтмориллонита здесь препятствует низкая активность кремнекислоты, а относительно гиббсита и первичных алюмосиликатов (мусковита и микроклина) воды сильно недонасыщены.

Диаграмма насыщения относительно вторичных железистых алюмосиликатов (рис. 5, д) показывает, что часть вод насыщена относительно Fe-сепиолита, но все они неравновесны с дафнитом и, тем более – ферросилитом, поля которого расположены значительно выше. Следовательно, активно растворяются первичные алюмосиликаты (полевые шпаты, пироксены, роговые обманки), которые неустойчивы в этих условиях и выступают источником Ca, Mg, Na, Fe, K, Si, Al и др.

Результаты взаимодействия подземных вод в системе $\text{HCl-H}_2\text{O-Al}_2\text{O}_3\text{-CaO-Na}_2\text{O-CO}_2\text{-SiO}_2$ при температуре 25 °C представлены на рис. 5, е. На диаграмме прослеживается практически для всех точек прямо пропорциональная зависимость содержаний Ca и Na в подземных водах относительно значений pH. Такая зависимость между катионами объясняется законом действия масс, в соответствии с которым воды, содержащие много натрия, уравновешенного анионом HCO_3^- (или CO_3^{2-}), не могут содержать много кальция.

Результаты расчетов термодинамического равновесия показали, что воды всего геологического разреза неравновесны с первичными алюмосиликатными минералами. Менее минерализованные подземные воды зоны активного водообмена в большей степени недонасыщены относительно исходных алюмосиликатных минералов благодаря низким значениям общей минерализации и pH. Следовательно, в этих условиях данные минералы активно растворяются и переводят в раствор породообразующие элементы: Ca, Mg, Na, Fe, K, Si, Al. Часть элементов, поступивших в раствор, сразу уходит из раствора во вторичные отложения: окислы и гидроокислы Fe, Mn и Al, глины (каолинит и различные монтмориллониты, кроме калиевых), карбонаты (кальцит, доломит, частично сидерит), которые в этих условиях не растворяются, а образуются.

Основной причиной равновесно-неравновесного состояния является то, что взаимодействие воды с первичными алюмосиликатами (с которыми подземные воды не равновесны) формирует вторичные продукты, с которыми в данный момент подземные воды равновесны. Вторая причина равновесно-неравновесного состояния – это обилие в водовмещающих отложениях продуктов разложения органического вещества и постоянное обогащение подземных вод растворенной CO_2 , которая нейтрализует высокие значения щелочности среды, образующейся при реакциях гидролиза.

Обсуждение

Анализируя полученные результаты гидрогеохимического опробования поверхностных вод, очевидно, что на данной территории складываются благоприятные гидрогеологические условия, которые отражаются в повышении их минерализации от истоков к устью. Подобная картина в распределении носит естественный характер.

Следует отметить, что, кроме этого, одним из основных факторов изменения минерализации, значений pH, а следовательно, и типа вод является техногенный фактор (изменение химического состава вод в процессе отработки угольных месторождений), характерный для Кузбасса. Влияние этого фактора отмечалось авторами не только в литературе, но и при проведении площадного опробования на ранее изученных сотрудниками ТФ ИНГТ СО РАН площадях (Талдинская, Нарыкско-Осташкинская) [2, 3, 12–14, 21]. В настоящее время на территории Тутуянской площади не располагаются угледобывающие и перерабатывающие предприятия, а лишь находятся по соседству, поэтому и их воздействие на данный момент минимально или отсутствует [18, 19].

Обобщение ранее известной информации по соседним площадям на территории юга Кузбасса и нового материала, полученного в 2015–2016 гг. по гидрогеологии и гидрогеохимии показывает, что на исследуемой площади также прослеживается прямая вертикальная гидрогеохимическая зональность, в соответствии с которой по интенсивности водообмена выделяются две зоны: активного и замедленного водообмена. Следует отметить, что характеристика подземных вод ниже зоны активного водообмена приводится на основе ранее изученных данных по соседним районам и площадям, так как в настоящий момент на территории Тутуяской площади нет возможности опробования более глубоких скважин (глубже 200 м) в связи с их отсутствием [3, 4–7, 9–11].

Опробованные подземные воды, как уже говорилось выше, относятся к зоне *активного водообмена*. Она занимает верхнюю часть разреза, сложенную рыхлыми мезо-кайнозойскими отложениями, и относится к зоне интенсивной трещиноватости. В этой зоне развиты пресные воды, которые распространяются до глубины ориентировочно 150–200 м, хотя эта

граница условна, т. к. на отдельных участках она поднимается до 30–50 м, на других может опускаться ниже. Это обусловливается интенсивностью водообмена и проницаемостью отложений. Наибольшая мощность этой зоны связана с участками максимального развития экзогенной трещиноватости, а также зависит от структурных особенностей территории. В целом же мощность зоны пресных вод не всегда соответствует гидродинамической зоне активного водообмена и в среднем является более высокой. В пониженных участках рельефа местности мощность этой зоны минимальная, а на водоразделах она достигает максимальных величин [2, 3].

Основным источником химических элементов в подземных водах зоны активного водообмена являются в первую очередь атмосферные осадки и почвенно-растительный слой.

Ниже зоны активного водообмена (пресных вод) распространяется зона *солончатых вод, приуроченная к зоне замедленного водообмена* (табл. 3). Характеристика этой зоны приводится нами по анализу имеющихся и фондовых материалов.

Таблица 3. Средний химический состав подземных вод разных зон водообмена Томь-Усинского района, мг/л [12]

Table 3. Average chemical composition of groundwater in different water exchange zones of Tom-Usinsky districts, mg/l [12]

Водообмен Water exchange	Район District	Глубина нахождения, м Depth of location, m	pH	Na ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Cl ⁻	SO ₄ ²⁻	HCO ₃ ⁻	Минерализация TDS
Активный Top	Томь-Усинский Tom-Usinsky	50–550	6,0–8,0 7,3	11,7–54,7 28,3	0,1–65,3 35,2	8,5–27,9 18,3	2,8–9,1 5,1	6–178 27	43–409 230	76–554 317
Замедленный Middle	Томь-Усинский Tom-Usinsky	550–2000	8,3–9,5 8,8	69,6–3381 1550,3	3,6–42,1 19,5	0,6–29,8 9,6	3–4200 1352	1–2380 203	238–3842 1385	373–9480 4485
Весьма замедленный Quite slow	Абашевское поднятие Abashevskoe uplift	>2000	–	12020	35,0	16,7	10982	1748	10956	35700

Примечание. В числителе – минимальное–максимальное значение, в знаменателе – среднее.

Note. The numerator has the minimum–maximum value, and the average value is in the denominator.

Воды зоны замедленного водообмена отличаются не только более высокой минерализацией, но и составом вод. В этой зоне практически повсеместно развиты содовые воды (HCO₃-Na) с pH от 8,3 до 9,5, которые в верхней части зоны переходят в гидрокарбонатные натриево-кальциевые, кальциево-натриевые.

Развитые на рассмотренных авторами ранее площадях (Талдинская, Нарыкско-Осташкинская) содовые воды в Кузбассе пользуются практически повсеместным распространением, начиная с глубин первых сотен метров [1, 3–7, 10–12, 20, 21, 28, 45, 47]. При этом с глубиной содержание соды в них возрастает, т. к. важнейшим фактором содообразования является водообмен, интенсивность которого уменьшается с глубиной. На территории Тутуяской площади пока таких вод не было опробовано, но на соседних они встречаются. Например, в описанной в литературе группе Абашевских скважин (максимальная глубина 2987 м), Распадской глубокой скважине (глубина 2100 м, рис. 6), скважине на территории Распадского месторождения (254 м) [2, 12, 49].

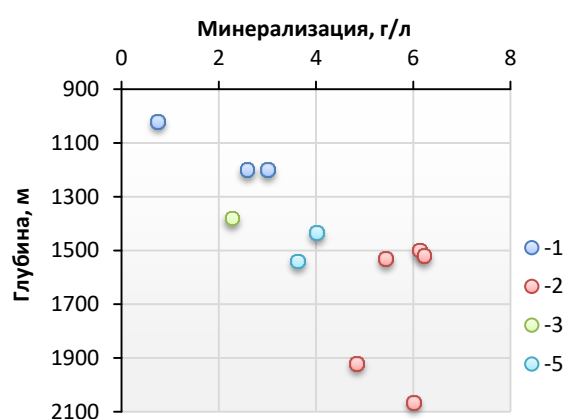


Рис. 6. Изменение типа вод с глубиной в Распадской глубокой скважине (юг Кузбасса) [19]. Типы вод по химическому составу: 1 – HCO₃ Na, 2 – SO₄ Na, 3 – HCO₃-Cl Na, 4 – HCO₃-SO₄ Na

Fig. 6. Changing the type of water with depth in the Raspadskaya deep well (south of Kuzbass) [19]. Types of waters by chemical composition: 1 – HCO₃ Na, 2 – SO₄ Na, 3 – HCO₃-Cl Na, 4 – HCO₃-SO₄ Na

Для этой зоны характерны достаточно сложные гидрогеохимические условия. Химический состав ее вод в первую очередь определяется стадией взаимодействия воды с горными породами, для которого требуется определенное время взаимодействия, определяемое интенсивностью водообмена. Именно поэтому в ней увеличивается содержание HCO_3 от 238 до 3842 мг/л, Na до 3381 мг/л и чаще незначительно увеличивается Cl – до 4200 мг/л, а Ca уменьшается до 3,6 мг/л (табл. 3).

В литературных источниках приводится ряд анализов химического состава вод, относящихся к зоне *весьма замедленного водообмена* с повышенным содержанием хлор-иона. Источником хлор-иона может быть подток более глубоких вод с высоким его содержанием и имеющих отдаленные источники питания. Это воды хлоридного, хлоридно-гидрокарбонатного типа (содержание Cl до 10982 мг/л, HCO_3 до 10956 мг/л) с преобладающим катионом – натрием (до 12020 мг/л) (табл. 3). Именно по переходу гидрокарбонатных натриевых вод в типичные минерализованные хлоридно-натриевые и устанавливается граница между зонами замедленного и *весьма замедленного водообмена*. Зона весьма замедленного водообмена выделяется авторами условно по результатам опробования Абашевской скважины, в которой вскрыты рассолы с минерализацией до 35700 мг/л [49] (табл. 3). Стоит отметить, что подземные воды этой зоны в Кузнецком бассейне почти не изучены.

Высокоминерализованные (слабосоленые) воды обогащены еще и рядом микрокомпонентов, например, Sr, J, Br. Эти и ряд других микрокомпонентов отмечаются для хлоридных натриевых вод зоны весьма замедленного водообмена. Например, концентрация Br, встреченного в Абашевской глубокой скважине, где минерализация подземных вод на разной глубине 32 и 35 г/л, составляет 9,5 и 43,3 мг/л соответственно [49].

Выводы

Анализ гидрогеохимии природных вод, а также расчет активностей основных ионов в подземных водах одной из перспективных площадей юга Кузбасса (Тутуясская) показали следующие результаты.

1. В пределах Тутуянской площади Кузнецкого угольного бассейна по данным химического анализа развиты только инфильтрационные воды с местными и отдаленными областями питания, разной степени солености. В природных водах территории в направлении речные – озерные – подземные активного – подземные замедленного водообмена, т. е. по мере большего времени взаимодействия системы вода–порода, установлено, что возрастает как общая минерализация и содержание основных ионов, так и pH, меняется химический тип вод. Таким образом, для опробованных природных вод характерен чаще всего HCO_3 Ca, HCO_3 Ca-Na, HCO_3 Na-Ca состав, реже HCO_3 Na.
2. Учитывая обобщенную информацию из разных источников по соседним территориям, можно говорить, что данные по Тутуянской площади спо-

собствуют описанной прямой вертикальной зональности подземных вод для соседних территорий [3–5, 12, 23]. В соответствии с ней пресные HCO_3 -Ca воды зоны активного водообмена сменяются более солеными (с минерализацией до 9,5 г/л) HCO_3 -Na состава, зоны замедленного водообмена. Зона весьма замедленного водообмена выделяется условно по результатам опробования Абашевской скважины, в которой вскрыты рассолы с минерализацией до 35 г/л [43].

3. Зона активного водообмена характеризуется более высокой проницаемостью отложений и наличием нейтральных и слабощелочных пресных вод гидрокарбонатного кальциевого состава. На Тутуянской площади в границах этой зоны установлено, что подземные воды становятся более солеными, в их составе доминирующую роль начинает играть натрий. К низам зоны активного водообмена воды постепенно становятся натриевого состава, т. е. количество натрия в составе вод увеличивается с глубиной (с порядка 200 м). В связи с этим незначительно, но все-таки меняется тип подземных вод с HCO_3 Ca на HCO_3 Na-Ca и HCO_3 Ca-Na. Это объясняется тем, что с глубиной активность водообмена, даже в пределах одной зоны, незначительно, но уменьшается, увеличивается время взаимодействия воды с горными породами, происходит накопление в растворе элементов, что влечет за собой изменение их солености и щелочности.
4. Проведенные расчеты активностей ионов с помощью программного комплекса HydroGeo и анализ построенных диаграмм равновесия показали, что изученные подземные воды недонасыщены относительно эндогенных минералов. Однако еще более насыщены воды к вторичным минералам, состав которых расширяется: алюмосиликатами (появляется иллит, все монтмориллониты, хлориты и даже альбит и микроклин) и карбонатами (появляется сидерит и близки к равновесию с магнезитом). Характер такого равновесия является, по терминологии С.Л. Шварцева, равновесно-неравновесным: вода всегда неравновесна относительно первичных алюмосиликатов, но в определенных геохимических условиях равновесна относительно вторичных. При этом состав вод определяется разницей между растворяемыми и осаждаемыми минералами. Таким образом, с глубиной состав вод меняется с HCO_3 -Ca на HCO_3 -Na. Карбонаты связывают Ca, Mg, Fe, C, глинистые минералы Al, Si, Ca, Mg, Fe, частично Na и K, окислы и гидроокислы Fe и т. д. Натрий остается наиболее устойчивым и не входит в кристаллические решетки формирующихся минералов, т. е. менее всех связывается во вторичные отложения, поскольку воды остаются крайне неравновесными к содовым минералам. Таким образом, он продолжает накапливаться в воде, а состав вод становится содовым.
5. Полученные данные позволяют расширить представления об общих закономерностях распределения элементов в системе вода–порода в условиях уголь-

ных отложений на территории, не нарушенной интенсивной разработкой полезных ископаемых, например, добычей угля или угольного метана, характерных для Кузбасса. Это позволит в дальнейшем

использовать имеющуюся информацию при различных экологических и поисковых исследованиях.

Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ № 20-05-00127.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Домрочева Е.В., Лепокурова О.Е., Сизиков Д.А. Геохимическая характеристика подземных вод Нарыкско-Осташкинской площади (Кузбасс) // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2014. – Т. 25. – № 1. – С. 94–101.
2. Гидрогеологические условия Нарыкско-Осташкинской площади Ерунаковского района Кузбасса / Е.В. Домрочева, К.И. Кузеванов, А.Г. Гридасов, Д.А. Сизиков // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2018. – Т. 329. – № 9. – С. 134–142.
3. Гидрогеология Ерунаковского района Кузбасса в связи с проблемой добычи угольного метана / С.Л. Шварцев, В.Т. Хрюкин, Е.В. Домрочева, К.И. Кузеванов, Т.С. Попова, О.Е. Петрова, Е.В. Швачко // Геология и геофизика. – 2006. – Вып. 47. – № 7. – С. 878–889.
4. Шварцев С.Л., Домрочева Е.В., Рассказов Н.М. Геохимия и формирование содовых вод Кузбасса // Известия Томского политехнического университета. – 2011. – Т. 318. – № 1. – С. 128–134.
5. Домрочева Е.В. Гидрогеохимические условия территории Кузбасса на примере Нарыкско-Осташкинской площади // Геологическая эволюция взаимодействия воды с горными породами: Материалы Второй Всероссийской конференции с международным участием. – Владивосток: Изд-во «Дальнаука», 2015. – С. 253–256.
6. Домрочева Е.В., Лепокурова О.Е. Равновесия содовых подземных вод угленосных отложений Нарыкско-Осташкинской площади (Кузбасс) с минералами вмещающих пород // Вестник Томского государственного университета. – 2015. – № 390. – С. 211–217.
7. Lepokurova O.E. Sodium-bicarbonate groundwaters in southeastern West Siberia, Russia: Compositions, types, and formation conditions // Applied Geochemistry. – 2020. – № 116. – 104579.
8. Лепокурова О.Е., Домрочева Е.В. Гуминовые вещества в природных водах Нарыкско-Осташкинской площади (Кузбасс) // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2020. – Т. 331. – № 3. – С. 197–206.
9. Аномальный состав изотопов углерода в подземных щелочных водах Кузбасса / С.Л. Шварцев, О.Е. Лепокурова, Е.В. Домрочева, В.А. Пономарчук, Д.А. Сизиков // Доклады академии наук. – 2016. – Т. 469. – № 6. – С. 724–728.
10. Лепокурова О.Е., Домрочева Е.В. Микрокомпонентный состав природных вод Нарыкско-Осташкинской площади (Кузбасс) // Материалы Всероссийского совещания по подземным водам Востока России (XXII Совещание по подземным водам Сибири и Дальнего Востока с международным участием). – Новосибирск: Изд-во Новосибирский национальный исследовательский государственный университет, 2018. – С. 302–307.
11. Lepokurova O.E. Sodic groundwaters in the Southern Kuznetsk Basin: Isotopic and Chemical Characteristics and Genesis // Geochemistry International. – 2018. – V. 56. – № 9. – P. 934–949.
12. Домрочева Е.В. Гидрогеохимические особенности угольных районов Кузбасса: автореф. дис. ... канд. геол.-минерал. наук. – Томск, 2005. – 22 с.
13. Домрочева Е.В. Экологическое состояние подземных вод на территории Нарыкско-Осташкинской площади (Кузбасс) // Геология, геоэкология и ресурсный потенциал Урала и сопредельных территорий: Всероссийская молодежная конференция. – Уфа: ДизайнПолиграфСервис, 2013. – № 1. – С. 49–55.
14. Домрочева Е.В. Экологическое состояние природных вод Кузбасса на примере Нарыкско-Осташкинской площади // Глубинное строение, геодинамика, тепловое поле Земли, интерпретация геофизических полей: Седьмые научные чтения Ю.П. Булашевича. Материалы конференции. – Екатеринбург: УрО РАН, 2013. – С. 103–105.
15. Shvartsev S.L. Geochemistry of fresh groundwater in the main landscape zones of the Earth // Geochemistry International. – 2008. – V. 46. – № 13. – P. 1285–1398.
16. Нетрадиционные ресурсы метана угленосных толщ / Н.М. Сторонский, В.Т. Хрюкин, Д.В. Митронов, Е.В. Швачко // Российский химический журнал – 2008. – Т. LII. – № 6. – С. 63–72.
17. Кузнецкий бассейн – крупнейшая сырьевая база промышленной добычи метана из угольных пластов / А.М. Карасевич, В.Т. Хрюкин, Б.М. Зимаков, Н.Г. Матвеев, С.С. Золотых, В.Г. Натура, Т.С. Попова. – М.: Изд-во Академии горных наук, 2001. – 64 с.
18. Домрочева Е.В. Геохимия природных вод на территории Тутуяской площади (Кемеровская область) // Геологическая эволюция взаимодействия воды с горными породами: IV Всероссийская научная конференция с международным участием имени профессора С.Л. Шварцева. – Улан-Удэ: Геологический институт СО РАН, 2020. – С. 331–334.
19. Домрочева Е.В. Геохимическое состояние природных вод юга Кузбасса на примере Тутуяской площади. // Международный научный конгресс «Интерэкспо ГЕО-Сибирь». – Новосибирск: СГУГиТ, 2019. – Т. 2. – № 3. – С. 239–245.
20. Рогов Г.М., Попов В.К. Гидрогеология и катагенез пород Кузбасса. – Томск: Изд-во Томского университета, 1985. – 191 с.
21. Рогов Г.М. Гидрогеология и геоэкология Кузбасса. – Томск: Изд-во Томский государственный архитектурно-строительный университет, 2000. – 167 с.
22. Букаты М.Б. Рекламно-техническое описание программного комплекса HydroGeo. Номер гос. регистрации алгоритмов и программ во Всероссийском научно-техническом информационном центре (ВНТИЦ) № 50200500605. – М.: ВНИИЦ, 2005. – 7 с.
23. Геологическая эволюция и самоорганизация системы вода-порода: в 5 т. Т. 2: Система вода-порода в условиях зоны гипергенеза / С.Л. Шварцев, В.А. Алексеев, Е.М. Дутова, И.А. Кондратьева, Ю.Г. Копылова, О.Е. Лепокурова. – Новосибирск: Изд-во СО РАН, 2007. – 389 с.
24. Крайнов С.Р., Рыженко Б.Н., Швеи В.М. Геохимия подземных вод. – М.: Изд-во ЦентрЛифтНефтеГаз, 2012. – 672 с.
25. Изменение интенсивности миграции химических элементов в подземных водах западной Тувы / Ю.Г. Копылова, Н.В. Гусева, К.Д. Аракчаа, А.А. Хвашевская, А.И. Оргильянов, И.Г. Крюкова, О.Д. Аюнова, И.В. Сметанина, З.Р. Акбашева, Е.П. Янкович // Курортная база и природные лечебно-оздоровительные местности Тувы и сопредельных регионов. – 2019. – № 4. – С. 134–142.
26. Савичев О.Г. Исследование взаимосвязей между химическим составом вод и донных отложений рек Сибири // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2019. – Т. 330. – № 5. – С. 178–188.
27. Гусева Н.В., Воробьева Д.А., Евтюгина З.А. Особенности взаимодействия в системе вода-порода на территории водосбора озера Имандра (Кольский полуостров) // Известия Томского политехнического университета. – 2020. – Т. 331. – № 8. – С. 177–188.
28. Аникин А.И., Людвиг В.М., Шварцев С.Л. Геохимия подземных вод давсонитоносных пород Березовоярского участка (Кузбасс) // Обской вестник. – 2001. – № 1. – С. 65–69.
29. Рыженко Б.Н., Крайнов С.Р. Модель «порода-вода» как основа прогноза химического состава природных вод земной коры // Геохимия. – 2003. – № 9. – С. 1002–1024.
30. Modes of occurrence of rare-earth elements (La, Ce, Sm, Eu, Tb, Yb, Lu) in coals of northern Asia (Review) / S.I. Arbutov, S.S. Ilenok, S.G. Maslov, A.M. Mezhibor, R.B. Finkelman, M.G. Blokhin // Solid Fuel Chemistry. – 2019. – V. 53. – № 1. – P. 1–21.
31. Kimura K. Mechanism of the forming of ground water with high content of sodium bicarbonate onto the plains part of the formation

- Kobe (Japan) // Ground Water Hydrogeology. – 1992. – V. 32. – № 1. – P. 5–16.
32. Shvartsev S.L., Rasskazov N.M., Savichev O.G. Contents and migration forms of elements in natural waters of the mid-Tom, basin // Russian geology and geophysics. – 1997. – V. 38. – № 12. – P. 1985–1992.
33. Borzenkoa S.V., Drebot V.V., Fedorova I.A. Main formation conditions of soda-type groundwater: a case study from south-eastern Transbaikal region (Russia) // Applied Geochemistry. – 2020. – V. 123. – 104763.
34. Experimental study and modeling of methane hydrate formation induction time in the presence of ionic liquids / A. Rasoolzadeh, J. Javanmardia, A. Eslamimanesh, A.H. Mohammadi // Journal of Molecular Liquids. – 2016. – V. 221. – P. 149–155.
35. Solid-liquid phase equilibria of the quaternary system $\text{Na}^+\text{-Cl}^-$, NO_3^- , SO_4^{2-} - H_2O at 358.15 K / Li Zhu, Yu Long, Ma Yu, Yu Wang // The Journal of Chemical Thermodynamics. – 2022. – V. 165. – 106658.
36. Varun P., Shannon V., Padmanava A. Evaluating hydrogeochemical characteristics of groundwater and surface water in the Upper Pearl River Watershed, USA // Environmental Monitoring and Assessment. – 2021. – V. 193. – 296.
37. Hydrochemical and biotic control on iron incrustations in groundwater heat pump systems: Case study from a saline, anoxic aquifer in Melhus, Norway / L.A. Stenvik, S. Gjengedal, R.K. Ramstad, B.S. Frengstad // Geothermics. 2022. – V. 100. – 102349.
38. Welcha C., Barbour L., Hendry J. The geochemistry and hydrology of coal waste rock dumps: a systematic global review // Science of The Total Environment. – 2021. – V. 795. – 148798.
39. Isotopic and geochemical interpretation of groundwater under the influences of anthropogenic activities / Z. Li, Q. Yang, Y. Yang, H. Ma, H. Wange, J. Luo, J. Bian, J.D. Martin // Journal of Hydrology. – 2019. – V. 576. – P. 685–697.
40. Geochemistry, mineralogy and genesis of rare metal (Nb-Ta-Zr-Hf-Y-Ree-Ga) coals of the seam XI in the south of Kuznetsk Basin, Russia / S.I. Arbuzov, D.A. Spears, A.V. Vergunov, S.S. Ilenok, A.M. Mezhibor, V.P. Ivanov, N.A. Zarubina // Ore Geology Reviews. – 2019. – № 113. – 103073.
41. Geochemistry of trace elements in Chinese coals: a review of abundances, genetic types, impacts on human health, and industrial utilization / S. Dai, D. Ren, C.L. Chou, R.B. Finkelman, V.V. Seredin, Y. Zhou // International journal of coal geology. – 2012. – V. 94. – P. 3–21.
42. Colloidal organic matter and metal(loid)s in coastal waters (Gulf of Trieste, Northern Adriatic Sea) / K. Klun, I. Fahnoga, D. Mazej, J. Faganeli // Aquatic Geochemistry. – 2019. – V. 25. – P. 179–194.
43. Перельман А.И. Геохимия природных вод. – М.: Наука, 1982. – 152 с.
44. Гаррельс Р.М. Растворы, минералы, равновесия. – М.: Изд-во «Мир», 1968. – 368 с.
45. Helgeson H.C. Kinetics of mass among silicates and aqueous solutions // Geochimica et Cosmochimica Acta. – 1971. – № 5. – P. 421–469.
46. Anderson G.M. Thermodynamics of natural systems. – New York: Cambridge University Press, 2017. – 428 p.
47. Шварцев С.Л. Гидрогеохимия зоны гипергенеза. – М.: Недра, 1998. – 366 с.
48. Лепокурова О.Е. Содовые подземные воды юго-востока Западной Сибири: геохимия и условия формирования: дис. ... д-ра геол.-минерал. наук. – Томск, 2018. – 217 с.
49. Гидрогеология СССР. Т. XVII. Кемеровская область и Алтайский край. – М.: Недра, 1972. – 399 с.

Поступила 04.06.2022 г.

Информация об авторах

Домрочева Е.В., кандидат геолого-минералогических наук, научный сотрудник Томского филиала Института нефтегазовой геологии и геофизики им. А.А. Трофимука СО РАН.

UDC 556.314, 550.42, 550.43

GEOCHEMISTRY AND FORMATION OF THE CHEMICAL COMPOSITION OF NATURAL WATERS ON THE TERRITORY OF TUTUYASSKAYA AREA (KEMEROVO REGION)

Evgeniya V. Domrocheva,
DomrochevaYV@ipgg.sbras.ru

Tomsk Branch of Trofimuk Institute of Petroleum-Gas Geology and Geophysics of SB RAS,
4, Akademicheskoy avenue, Tomsk, 634055, Russia.

The relevance. The study of hydrogeochemical conditions and the formation of the composition of natural waters of the Tom-Usinsky district of the Kemerovo region in the absence of coal mining and loads on water systems is very important. The data obtained make it possible to expand the understanding of the general patterns of the distribution of elements in the water–rock system under conditions of coal deposits. This is especially true in the territory undisturbed by intensive mining, for example, coal mining or coal methane, characteristic of Kuzbass. This will make it possible to use the available information in various environmental and exploratory studies in the future.

The main aim of the research is to study the geochemistry of natural waters, to calculate the activities of basic ions using the HydroGeo software package and to construct diagrams of the equilibrium of groundwater with water-bearing sediments; to identify the geochemical types of natural waters and study their change in accordance with the zonality traced in this area.

Objects: underground waters of mainly Jurassic and Upper Permian terrigenous-coal-bearing deposits of the Taylugan formation of the Erunakov sub-series of the Kolchuginsky series of the Tutuyasskaya area of the Tom-Usinsky district of the Kuznetsk basin, as well as river waters of the territory.

Methods: Chemical composition of water was determined by standard methods in the Problem Research Laboratory of Hydrogeochemistry of Tomsk Polytechnic University. The forms of humic acid migration were calculated using the HydroGeo software package.

Results. The authors carried out studies of the chemical composition of natural waters on the territory of the Tutuyasskaya area of the Tom-Usinsky district of Kuzbass. Within the framework of this study, it was noted that the existing changes in the values of mineralization and pH are inherent in their natural distribution. The source of water intake is atmospheric precipitation entering the system from the feeding areas, therefore, the studied waters of infiltration genesis, hydrogeochemical zonality is traced. The article shows the results of the calculation of the equilibria of groundwater of this area with carbonate and aluminosilicate minerals of the host rocks. It is established that the waters have an equilibrium-nonequilibrium character: they are nonequilibrium with primary (endogenous) minerals, which they dissolve, but at the same time they are equilibrium with clays and carbonates, i. e. they are precipitated from water.

Key words:

Surface and underground waters, formation of composition, equilibrium-nonequilibrium state, water–rock, zonality of groundwater, Kuzbass.

The research was financially supported by the RFBR no. 20-05-00127.

REFERENCES

- Domrocheva E.V., Lepokurova O.E., Sizikov D.A. Geochemical characteristics of underground waters of Naryksko-Ostashkinskaya square (Kuzbass). *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2014, vol. 325, no. 1, pp. 94–101. In Rus.
- Domrocheva E.V., Kuzevanov K.I., Gridasov A.G., Sizikov D.A. Hydrogeological conditions of Naryksko-Ostashkinskaya square of Yerunakovskiy district of Kuzbass. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2014, vol. 329, no. 9, pp. 134–142. In Rus.
- Shvarcev S.L., Khryukin V.T., Domrocheva E.V., Kuzevanov K.I., Rasskazov N.M., Popova T.S., Lepokurova O.E., Shvachko E.V. Hydrogeology of the Erunakovo region of the Kuznetsk basin in the context of coal methane formation and mining. *Russian Geology and Geophysics*, 2006, vol. 47, no. 7, pp. 878–889. In Rus.
- Shvartsev S.L., Domrocheva E.V., Rasskazov N.M. Geochemistry and formation of soda waters of Kuzbass. *Russian Geology and Geophysics*, 2011, vol. 318, no. 1, pp. 128–134. In Rus.
- Domrocheva E.V. Gidrogeokhimicheskie usloviya territorii Kuzbassa na primere Naryksko-Ostashkinskoy ploshchadi [Hydrogeochemical conditions of the territory of Kuzbass on the example of Naryksko-Ostashkinskaya area]. *Materialy Vtoroy Vserossiyskoy konferentsii s mezhdunarodnym uchastiem. Geologicheskaya evolyutsiya vzaimodeystviya vody s gornymi porodami* [Materials of the Second All-Russian Conference with International participation. Geological evolution of water-rock interaction]. Vladivostok, Dalnauka Publ., 2015. pp. 253–256.
- Domrocheva E.V., Lepokurova O.E. Balances of garden groundwater of coal-bearing deposits of Naryksko-Ostashkinskaya square (Kuzbass) with minerals of the host rocks. *Bulletin of Tomsk State University*, 2015. no. 390, pp. 211–217. In Rus.
- Lepokurova O.E. Sodium-bicarbonate groundwaters in southeastern West Siberia, Russia: Compositions, types, and formation conditions. *Applied Geochemistry*, 2020, no. 116, 104579.
- Lepokurova O.E., Domrocheva E.V. Elemental composition of natural waters and host deposits of Kuzbass with assessment of water migration (on the example of Naryksko-Ostashkinskaya square). *Bullet of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2020, vol. 331, no. 3, pp. 197–206. In Rus.
- Shvartsev S.L., Lepokurova O.E., Ponomarchuk V.A., Domrocheva E.V., Sizikov D.A. Abnormal composition of carbon isotopes in underground alkaline waters of Kuzbass. *Doklady Earth Sciences*, 2016, vol. 469, no. 6, pp. 724–728. In Rus.
- Lepokurova O.E., Domrocheva E.V. Mikrokomponentny sostav prirodnkh vod Naryksko-Ostashkinskoy ploshchadi (Kuzbass) [Micro-component composition of natural waters of Naryksko-Ostashkinskaya area (Kuzbass)]. *Materialy Vserossiyskogo soveshchaniya po podzemnym vodam Vostoka Rossii (XXII Soveshchanie po podzemnym vodam Sibiri i Dalnego Vostoka s mezhdunarodnym uchastiem)* [Materials of the All-Russian Meeting on Groundwater of the East of Russia (XXII Meeting on Groundwater of Siberia and the Far East with International participation)]. Novosibirsk, Novosibirsk National Research State University Publ., 2018. pp. 302–307.
- Lepokurova O.E. Sodic groundwaters in the Southern Kuznetsk Basin: Isotopic and Chemical Characteristics and Genesis. *Geochemistry International*, 2018, vol. 56, no. 9, pp. 934–949.
- Domrocheva E.V. *Gidrogeokhimicheskie osobennosti ugolnykh rayonov Kuzbassa*. Avtoreferat Dis. Kand. nauk [Hydrogeochemi-

- cal features of the coal regions of Kuzbass. Cand. Diss. Abstract]. Tomsk, 2005. 22 p.
13. Domrocheva E.V. Ekologicheskoe sostoyanie podzemnykh vod na territorii Naryksko-Ostashkinskoy ploshchadi (Kuzbass) [Ecological condition of underground waters on the territory of Naryksko-Ostashkinskaya area (Kuzbass)]. *Vserossiyskaya molodezhnaya konferentsiya. Geologiya, geoekologiya i resursny potentsial Urala i sopredelnykh territoriy* [All-Russian Youth Conference. Geology, Geoecology and Resource Potential of the Urals and Adjacent Territories]. Ufa, DizaynPoligroafServis Publ., 2013. No. 1, pp. 49–55.
 14. Domrocheva E.V. Ekologicheskoe sostoyanie prirodnikh vod Kuzbassa na primere Naryksko-Ostashkinskoy ploshchadi [Ecological state of natural waters of Kuzbass on the example of Naryksko-Ostashkinskaya area]. *Glubinnoe stroenie, geodinamika, teplovoe pole Zemli, interpretatsiya geofizicheskikh poley. Sedmye nauchnye chteniya Yu.P. Bulashevicha. Materialy konferentsii* [Deep structure, geodynamics, thermal field of the Earth, interpretation of geophysical fields. The seventh scientific readings of Y.P. Bulashevich. Conference materials]. Ekaterinburg, UrO RAN Publ., 2013. pp. 103–105.
 15. Shvartsev S.L. Geochemistry of fresh groundwater in the main landscape zones of the Earth. *Geochemistry International*, 2008, vol. 46, no. 13, pp. 1285–1398.
 16. Storonskiy N.M., Khryukin V.T., Mitronov D.V., Shvachko E.V. Netraditsionnye resursy metana ugleonosnykh tolshch [Unconventional methane resources of coal-bearing strata]. *Russian chemical journal*, 2008, vol. LII, no. 6, pp. 63–72.
 17. Karasevich A.M., Khryukin V.T., Zimakov B.M., Matveenko N.G., Zolotykh S.S., Natura V.G., Popova T.S. *Kuznetskiy basseyn – krupneyshaya syrevaya baza promyslovoy dobychi metana iz ugolnykh plastov* [The Kuznetsk basin is the largest raw material base for commercial extraction of methane from coal seams]. Moscow, Akademiya gornykh nauk Publ., 2001. 64 p.
 18. Domrocheva E.V. Geokhimiya prirodnikh vod na territorii Tutuyasskoy ploshchadi (Kemerovskaya oblast) [Geochemistry of natural waters on the territory of Tutuyasskaya area (Kemerovo region)]. *IV Vserossiyskaya nauchnaya konferentsiya s mezhdunarodnym uchastiem imeni professora S.L. Shvartseva. Geologicheskaya evolyutsiya vzaimodeystviya vody s gornymi porodami* [IV All-Russian Scientific Conference with international participation named after professor S.L. Shvartsev. Geological evolution of the interaction of water with rocks]. Ulan-Ude, Geological Institute SO RAN Publ., 2020. pp. 331–334.
 19. Domrocheva E.V. Geokhimicheskoe sostoyanie prirodnikh vod yuga Kuzbassa na primere Tutuyasskoy ploshchadi [Geochemical state of natural waters of the south of Kuzbass on the example of Tutuyasskaya area]. *Mezhdunarodny nauchnyy kongress. Interexpo GEO-Sibir* [International Scientific Congress. Interexpo GEO-Siberia]. Novosibirsk, SGUGIT Publ., 2019. Vol. 2, no. 3, pp. 239–245.
 20. Rogov G.M., Popov V.K. *Gidrogeologiya i katagenez porod Kuzbassa* [Hydrogeology and catagenesis of Kuzbass rocks]. Tomsk, Tomsk University Publ., 1985. 191 p.
 21. Rogov G.M. *Gidrogeologiya i geoekologiya Kuzbassa* [Hydrogeology and geoecology of Kuzbass]. Tomsk, Tomsk State University of Architecture and Building Publ., 2000. 167 p.
 22. Bukaty M.B. *Reklamno-tehnicheskoe opisanie programmnogo kompleksa HydroGeo* [Advertising and technical description of the Hydrogeological software package]. Nomer registratsii algoritmov i programm vo Vserossiyskom nauchno-tehnicheskoy informatsionnom centre (VNTIC) no. 50200500605 [Advertising and technical description of the HydroGeo software package. State number registration of algorithms and programs in the All-Russian Scientific and Technical Information Center (RSTIC)]. Moscow, VNTITs Publ., 2005. 7 p.
 23. Shvartsev S.L., Alekseev V.A., Dutova E.M., Kondratyeva I.A., Kopylova Yu.G., Lepokurova O.E. *Geologicheskaya evolyutsiya i samoorganizatsiya sistemy voda–poroda. V 5 t. T. 2: Sistema voda–poroda v usloviyakh zony gipergeneza* [Geological evolution and self-organization of the water–rock system. In 5 vol. Vol. 2: The water–rock system in the conditions of the hypergenesis zone]. Novosibirsk, SO RAN Publ., 2007. 389 p.
 24. Krainov S.R., Ryzhenko B.N., Shvets V.M. *Geokhimiya podzemnykh vod* [Geochemistry of groundwater]. Moscow, CentrLifNefteGaz Publ., 2012. 672 p.
 25. Kopylova Yu.G., Guseva N.V., Arakchaa K.D., Khvashchevskaya A.A., Orgilyanov A.I., Kryukova I.G., Ayunova O.D., Smetanina I.V., Akbasheva Z.R., Yankovich E.P. *Izmenenie intensivnosti migratsii khimicheskikh elementov v podzemnykh vodakh zapadnoy Tuvy* [Changes in the intensity of migration of chemical elements in the groundwater of Western Tuva]. *Kurortnaya baza i prirodnye lechebno-ozdorovitelnye mestnosti Tuvy i sopredelnykh regionov*, 2019, no. 4, pp. 134–142.
 26. Savichev O.G. Investigation of interrelations between the chemical composition of waters and bottom sediments of Siberian rivers. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2019, vol. 330, no. 5, pp. 178–188. In Rus.
 27. Guseva N.V., Vorobeva D.A., Evtyugina Z.A. Specifics of interaction in the water-rock system in the catchment area of Lake Imandra (Kola Peninsula). *Bulletin of Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2020, vol. 331, no. 8, pp. 177–188. In Rus.
 28. Anikin A.I., Lyudvig V.M., Shvartsev S.L. Geokhimiya podzemnykh vod davsonitosnykh porod Berezhovoyarskogo uchastka (Kuzbass) [Geochemistry of groundwater of the davsonite-bearing rocks of the Berezhovoyarsk area (Kuzbass)]. *Obsskoy vestnik*, 2001, no. 1, pp. 65–69.
 29. Ryzhenko B.N., Krainov S.R. The rock-water model as the basis for predicting the chemical composition of natural waters of the Earth's surface. *Geochemistry*, 2003, vol. 9, pp. 1002–1024.
 30. Arbutov S.I., Ilenok S.S., Maslov S.G., Mezhibor A.M., Finkelman R.B., Blokhin M.G. Modes of occurrence of rare-earth elements (La, Ce, Sm, Eu, Tb, Yb, Lu) in coals of northern Asia (Review). *Solid Fuel Chemistry*, 2019, vol. 53, no. 1, pp. 1–21.
 31. Kimura K. Mechanism of the forming of ground water with high content of sodium bicarbonate onto the plains part of the formation Kobe (Japan). *Ground Water Hydrogeology*, 1992, vol. 32, no. 1, pp. 5–16.
 32. Shvartsev S.L., Rasskazov N.M., Savichev O.G. Contents and migration forms of elements in natural waters of the mid-Tom' basin. *Russian geology and geophysics*, 1997, vol. 38, no. 12, pp. 1985–1992. In Rus.
 33. Borzenko S.V., Drebot V.V., Fedorova I.A. Main formation conditions of soda-type groundwater: A case study from south-eastern Transbaikalia region (Russia). *Applied Geochemistry*, 2020, vol. 123, 104763.
 34. Rasoolzadeh A., Javanmard J., Eslamianesh A., Mohammadi A.H. Experimental study and modeling of methane hydrate formation induction time in the presence of ionic liquids. *Journal of Molecular Liquids*, 2016, vol. 221, pp. 149–155.
 35. Zhu Li, Long Yu, Wang Ma Yu Yu. Solid-liquid phase equilibria of the quaternary system $\text{Na}^+ - \text{Cl}^-$, NO_3^- , $\text{SO}_4^{2-} - \text{H}_2\text{O}$ at 358.15 K. *The Journal of Chemical Thermodynamics*, 2022, vol. 165, 106658.
 36. Varun P., Shannon V., Padmanava A. Evaluating hydrogeochemical characteristics of groundwater and surface water in the Upper Pearl River Watershed, USA. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2021, vol. 193, 296.
 37. Stenvik L.A., Gjengedal S., Ramstad R.K., Frengstad B.S. Hydrochemical and biotic control on iron incrustations in groundwater heat pump systems: Case study from a saline, anoxic aquifer in Melhus, Norway. *Geothermics*, 2022, vol. 100, 102349.
 38. Welcha C., Barbour L., Hendry J. The geochemistry and hydrology of coal waste rock dumps: A systematic global review. *Science of The Total Environment*, 2021, vol. 795, 148798.
 39. Yang Z. Li, Q., Yang Y., Ma H., Wang H., Luo J., Bian J., Martin J.D. Isotopic and geochemical interpretation of groundwater under the influences of anthropogenic activities. *Journal of Hydrology*, 2019, vol. 576, pp. 685–697.
 40. Arbutov S.I., Spears D.A., Vergunov A.V., Ilenok S.S., Mezhibor A.M., Ivanov V.P., Zarubina N.A. Geochemistry, mineralogy and genesis of rare metal (Nb-Ta-Zr-Hf-Y-Ree-Ga) coals of the seam XI in the south of Kuznetsk Basin, Russia. *Ore Geology Reviews*, 2019, no. 113, 103073.
 41. Dai S., Ren D., Chou C.L., Finkelman R.B., Seredin V.V., Zhou Y. Geochemistry of trace elements in Chinese coals: a review of abundances, genetic types, impacts on human health, and industrial utilization. *International journal of coal geology*, 2012, vol. 94, pp. 3–21.

42. Klun K., Falnoga I., Mazej D., Faganeli J. Colloidal organic matter and metal(loid)s in coastal waters (Gulf of Trieste, Northern Adriatic Sea). *Aquatic Geochemistry*, 2019, vol. 25, pp. 179–194.
43. Perelman A.I. *Geokhimiya prirodnikh vod* [Geochemistry of natural waters]. Moscow, Nauka Publ., 1982. 152 p.
44. Garrels R.M. *Rastvory, mineraly, ravnovesiya* [Solutions, minerals, equilibria]. Moscow, Mir Publ., 1968. 368 p.
45. Helgeson H.C. Kinetics of mass among silicates and aqueous solutions. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1971, no. 5, pp. 421–469.
46. Anderson G.M. *Thermodynamics of natural systems*. New York, Cambridge University Press Publ., 2017. 428 p.
47. Shvarcev S.L. *Gidrogeokhimiya zony gipergeneza* [Hydrogeochemistry of the hypergenesis zone]. Moscow, Nedra Publ., 1998. 366 p.
48. Lepokurova O.E. *Sodovye podzemnye vody yugo-vostoka Zapadnoy Sibiri: geokhimiya i usloviya formirovaniya*. Diss. Dokt. nauk [Soda groundwater of the South-east of Western Siberia: geochemistry and conditions of formation. Dr. Diss.]. Tomsk, 2018. 217 p.
49. *Gidrogeologiya SSSR. T. XVII. Kemerovskaya oblast i Altayskiy kray* [Hydrogeology of the USSR. Vol. XVII. Kemerovo Region and Altai Krai]. Moscow, Nedra Publ., 1972. 399 p.

Received: 4 June 2022.

Information about the authors

Evgeniya V. Domrocheva, Cand. Sc., Tomsk Branch of Trofimuk Institute of Petroleum-Gas Geology and Geophysics of SB RAS.

УДК 553.411.071:550.4

СТРУКТУРНЫЕ, ГЕОФИЗИЧЕСКИЕ И ГЕОХИМИЧЕСКИЕ КРИТЕРИИ ЭПИТЕРМАЛЬНОГО КИСЛОТНО-СУЛЬФАТНОГО ЗОЛОТОГО ОРУДЕНЕНИЯ НА ПРИМЕРЕ РУДНОГО ПОЛЯ СВЕТЛОЕ (ХАБАРОВСКИЙ КРАЙ)

Лесняк Дмитрий Викторович^{1,2},
lesnyakdv@polymetal.ru

Ананьев Юрий Сергеевич¹,
AnanyevYS@tpu.ru

Гаврилов Роман Юрьевич¹,
GavrilovRY@tpu.ru

¹ Национальный исследовательский Томский политехнический университет,
Россия, 634050, г. Томск, пр. Ленина, 30.

² Хабаровский филиал АО «Полиметалл УК»,
Россия, 680000, Хабаровск, ул. Муравьева-Амурского, 18.

Актуальность. Слабая изученность и экономическая привлекательность формируют актуальность проблемы прогнозирования и поисков эпитермальных кислотно-сульфатных золото-серебряных месторождений в пределах вулканогенных поясов Российской Федерации.

Основная цель исследования заключалась в разработке критериев прогноза и поисков эпитермального кислотно-сульфатного золотого оруденения в пределах Ульинского прогиба Охотско-Чукотского вулканического пояса.

Методы: дешифрирование космоматериалов ASTER, Landsat ETM+, Sentinel и цифровой модели рельефа по данным Shuttle radar topographic mission, интерпретация аэрогеофизических данных магнитометрической и гаммаспектроскопической съемок с построением структурно-геологических схем; моделирование геохимических полей с применением методов многомерной статистики по литохимическим данным, включая ранговую корреляцию, факторный и кластерный анализ.

В результате проведенного исследования получены следующие основные выводы. Рудное поле Светлое обладает типичными для эпитермальных месторождений кислотно-сульфатного золотого оруденения характеристиками: расположено в вулканическом поясе, приурочено к вулканическим аппаратам центрального типа, контролируемыми разрывными нарушениями; золотое оруденение сопровождается рудоносными метасоматитами – вторичными кварцитами зонального строения. Характеристики структурного контроля и метасоматической зональности определяются при дешифрировании и интерпретации данных дистанционных съемок, аэромагниторазведки и гаммаспектрометрии. Распределение химических элементов во вторичном поле рассеяния позволило установить концентрически-зональную структуру, характерную для гидротермальных месторождений золота, с пространственно-временной сменой геохимических ассоциаций от центральной зоны рудообразования к периферии на локальном уровне генерализации: Au, Mo→Au, Ag, Pb→K, Na, Al→V, Zn, (Co, Ni, Cr, Mn, P). В пределах минерализованных зон устанавливается следующая последовательность формирования геохимических ассоциаций (от центральной части к периферии): Au-Ag→Ag, Pb, Sb→As, Mo, Ba→Co, Cr, Mn, V, Zn, P.

Ключевые слова:

Золото рудное, эпитермальные месторождения, кислотно-сульфатные, поисковые признаки и критерии, дистанционные методы, аэрогеофизика, литохимическая зональность.

Введение

Эпитермальные Au-Ag месторождения формируются в близповерхностных условиях на глубинах, как правило, до 1 км в гидротермальных системах. Особенности изученных эпитермальных месторождений благородных металлов и современное понимание процессов их формирования, основанные на интерпретациях геохимических характеристик, геологических и структурных факторов и др., позволяют концептуально типизировать обстановки образования, выделяя кислотно-сульфатные (высоко-сульфатные, high-sulfidation (HS), acid-sulfate), субнейтральные (intermediate sulfidation, subneutral) и восстановительные щелочные (низко-сульфатные, адулярового типа, low-sulfidation, adularia type) [1–9].

Большая часть открытых эпитермальных месторождений, равно как и большинство геотермальных

систем, относится к восстановительно-щелочному или низко-сульфатному типу и, как следствие, эти системы являются относительно хорошо изученными. И наоборот, менее изучены системы кислотно-сульфатного или высоко-сульфатного типа в виду их менее частой проявленности.

На территории России месторождения кислотно-сульфатного типа единичны. Это месторождения Малетойваям-Ветроваямской группы [10] и Озерновского рудного поля [11] на Камчатке и рудного поля Светлое в пределах Охотско-Чукотского вулканического пояса (ОЧВП) в Хабаровском крае [12]. Известнейшими зарубежными примерами высоко-сульфатных месторождений являются Саммитвилль (США), Нансацу (Япония), Эль-Индио (Чили), Пуэбло-Вьехо (Доминиканская Республика), Родалькиларе (Испания), Кочбулак (Узбекистан), Лепанто (Филиппины).

Одной из отличительных особенностей месторождений кислотно-сульфатного типа является наличие переотложенного, свободного [13, 14] и легкоизвлекаемого золота в относительно хорошо проницаемых породах, что позволяет экономически эффективно использовать технологию кучного выщелачивания в условиях труднодоступных территорий. Возможность реализации технологии кучного выщелачивания в условиях низких температур Крайнего севера успешно подтверждена на месторождении Светлое (Хабаровский край, компания Полиметалл).

Слабая изученность, подчеркнутая редким нахождением на территории России, в совокупности с экономической привлекательностью технологии разработки и переработки определяет актуальность проблемы прогнозирования и поисков золоторудных месторождений кислотно-сульфатного типа.

Краткий геологический очерк рудного поля Светлое

Рудное поле Светлое размещено в юго-западной части позднемиоценовой Секчинской вулканотектонической депрессии Ульяновского прогиба западного сектора ОЧВП. Строение Ульяновского прогиба и его составляющих осложнено широко проявленной разрывной тектоникой. Юго-восточную границу Секчинской депрессии контролирует региональный, продольный по отношению к ОЧВП, Дюльбакинский разлом, проходящий через рудное поле Светлое. Разнонаправленные разломы среднего и низкого порядков ограничивают и осложняют кольцевые вулканоструктуры, к которым тяготеют субвулканические и интрузивные тела, а также поля вторичных кварцитов и аргиллизитов. Образование элементов Ульяновского прогиба было связано с многостадийным оседанием игнибрито-лавовых полей над периферическими магматическими очагами [12, 13, 15, 16].

Рудное поле Светлое расположено в узле сопряжения Дюльбакинского и Онёмнинского разломов северо-восточного и северо-западного простирания соответственно (рис. 1). В месте сочленения этих разломов проявлены выходы штоков гранит-порфиров, поля метасоматитов и радиально-концентрические разломы, определяющие положение палеовулканических построек и их элементов.

Стратиграфия представлена меловыми вулканитами амкинской, хетанинской, уракской свит и слабо распространёнными рыхлыми четвертичными аллювиальными отложениями. Амкинская свита (K_{1-2am}) картируется локально в юго-восточной части поля в эрозионном окне и сложена лавами, туфами и туффидами риолитов. Хетанинская свита (K_{2ht}) слагает нижние части склонов лавами андезитов и андезибазальтов с редкими прослоями туфов. Уракская свита (K_{2ur}) субгоризонтально и слабонаклонно залегает на вулканитах хетанинской свиты и представлена лавами, туфами и игнибритами дацитов.

Субвулканические тела образованы штоками и дайками гранодиорит-порфиров, дацитов, риолитов уракского и андезибазальтов хакаринского комплексов и распространены в полосе влияния Онёмненско-

го и Алалиндинского разломов, и совпадают с полями распространения метасоматитов.

Гидротермально-метасоматические образования развиваются по вулканогенным породам преимущественно кислого и, реже, средне-основного состава. В метасоматических образованиях поля выделяются: вторичные кварциты (моно-, алунитовые, диккитовые, алуниг-диккитовые, гидрослюдистые), кварц-карбонатные метасоматиты, иллит-хлоритовые и кальцит-лептохлоритовые аргиллизиты. Неизмененные породы обнаруживаются редко.

В пределах рудного поля вторичные кварциты на современной поверхности представляют собой разобщенные поля обширной, фрагментарно эродированной залежи, наследующие первичный структурный план вулканогенных пород, и слагают разобщенные в плане многослойные залежи неправильной вытянутой формы, имеющие наклонное залегание [12, 17]. Метасоматическая зональность золоторудного поля Светлое имеет достаточно универсальную схему, наблюдаемую во многих известных эпitherмальных месторождениях: монокварциты, представленные тремя структурно-текстурными типами (массивные, пористые, брекчированные), обрамляются алуниновыми кварцитами, которые постепенно переходят в диккитовые кварциты, слагающие прикровельную и приподожвенную зоны залежи вторичных кварцитов. Вторичные кварциты подстилаются кварц-гидрослюдистыми аргиллизитами, плавно сменяющимися низкотемпературными пропилитами.

Рудные тела месторождений рудного поля Светлое представлены плащеобразными и линейными залежами килевидного (в разрезе) строения, унаследованного от форм залежей вторичных кварцитов и осложненного рудоподводящими каналами и грибовидными раздувами, согласными с проницаемыми толщами вмещающих вулканических пород. В рудном поле определяются четыре залежи, вмещающие в себя промышленно значимые запасы золота, – это Елена, Тамара, Людмила, Эми. Одна из самых крупных залежей, Елена, имеет протяженность до 650 м, включая 330 м промышленного оруденения, ширину 240 м и среднюю мощность 26 м, увеличивающуюся к центральной части до 110 м, тем самым образуя килевидный профиль, характерный не только для других рудных залежей поля, но и для многих месторождений кислотно-сульфатного типа – например, Саммитвилль в Калифорнии [18], Кимсакоча в Эквадоре [19], Лепанто на Филиппинах [20] и др.

Золотая минерализация на участках Елена, Людмила, Тамара развивалась в рудную стадию образования гидротермальных изменений в составе кварц-пиритового минерального комплекса с единичными полиметаллическими сульфидами и гипергенную стадию с частичным переотложением свободного золота. Для участка Эми золоторудная минерализация развивалась в гидротермальных процессах несколько иначе и принимала участие во второй рудной стадии в теллуридном комплексе с золотом и серебром, но в завершении также частично переотложилась в гипергенной стадии [13].

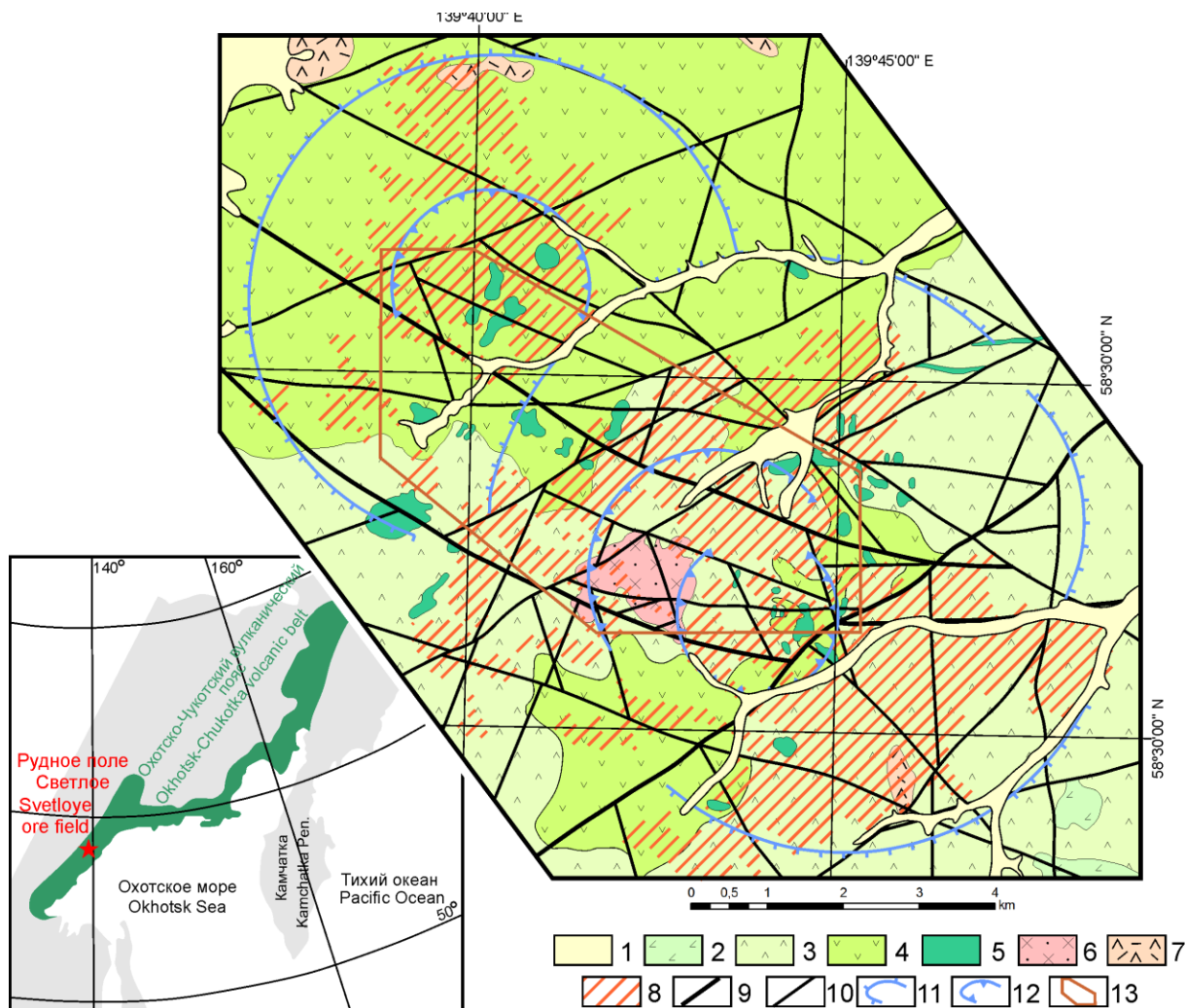


Рис. 1. Положение и схематическая геологическая карта рудного поля Светлое: 1 – аллювиальные отложения (Q_{IV}); 2 – андезибазальты хакаринской свиты (K_2); 3 – лавы, туфы, игнимбриты дацитов уракской свиты (K_2); 4 – лавы андезитов андезибазальтов, туфы андезитов хетанинской свиты (K_2); 5 – штоки и дайки андезибазальтов хакаринского базальтоидного комплекса (K_2); 6, 7 – уракский дацит-риолитовый комплекс (K_2); 6 – гранодиорит-порфиры, 7 – риодациты и дациты; 8 – площади развития вторичных кварцитов и аргиллизитов; 9, 10 – разломы: 9 – региональные, 10 – прочие; 11 – стратовулканы центрального типа; 12 – кальдеры проседания; 13 – контур рудного поля Светлое

Fig. 1. Location and schematic geological map of the Svetloye ore field: 1 – alluvial sediments (Q_{IV}); 2 – basaltic andesite (Khakar suite (K_2)); 3 – lavas, tuffs, ignimbrites dacites (Urak suite (K_2)); 4 – lavas of andesites, basaltic andesites, andesites tuffs (Khetanian suite (K_2)); 5 – stocks and dikes of basaltic andesites (Khakarinsk basalt complex (K_2)); 6, 7 – Urak dacite-rhyolite complex (K_2); 6 – granodioritic porphyry, 7 – rhyodacite and dacite; 8 – areas of residual quartz and clay alteration; 9, 10 – faults: 9 – regional, 10 – others; 11 – volcanic centers; 12 – subsidence zones; 13 – Svetloye ore field location

Описанная выше характеристика свидетельствует, что рудное поле Светлое представляет собой типичное эпитермальное золото-серебряное месторождение кислотно-сульфатного типа – располагается в вулканических поясах, в кальдерах и на склонах отдельных вулканических аппаратов центрального типа, контролируемых разрывными нарушениями. Рудные скопления сопровождаются рудоносными метасоматитами – вторичными кварцитами зонального строения.

Методика исследования

Представленные выше закономерности геологического строения и пространственного положения ору-

аэрогеофизическими методами и дополнены наземными разномасштабными геохимическими данными. Применение этого комплекса анализа геологической информации позволяет разработать разномасштабные критерии прогнозирования и поиска месторождений кислотно-сульфатного типа как в пределах Ульинского прогиба ОЧВП, так и в подобных вулканогенных поясах. В основу проведенного исследования были положены материалы дистанционных, аэрогеофизических и литохимических (по вторичным ореолам рассеяния) съемок.

Обработка и дешифрирование космоматериалов выполнялись для построения структурно-геологических схем уровней рудного района, рудного узла, рудного

поля с целью выявления закономерностей проявления разноранговых вулканоструктур, разрывных нарушений, субвулканических тел, интрузий, метасоматитов в различных элементах дешифрирования. Общая методика дистанционных работ [21] включала в себя:

- подбор исходных космических данных ASTER, Landsat ETM+ и SRTM;
- улучшение, классификацию растровых изображений и их дешифрирование;
- создание спектрозональных изображений из моноканальных растров и их обработку;
- дешифрирование всего комплекса синтезированных изображений с выделением линейных и кольцевых (дуговых) структур и других особенностей геологического строения;
- расчет спектральных индексов по материалам ASTER: каолиновый индекс $CLI = (band4/band5) \times (band8/band6)$, который указывает на участки развития глинистых минералов [22], и мафический индекс $MI^3 = (band12 \times band14 \times band14 \times band14) / (band13 \times band13 \times band13 \times band13)$, значение которого менее 0,87 указывает на возможное наличие вторичных кварцитов [23];
- корреляционный анализ SWIR диапазона ASTER методом главных компонент;
- спектральный анализ SWIR диапазона материалов ASTER;
- интерпретацию полученных материалов с привлечением геологической, геофизической и геохимической информации и составление геолого-структурных схем. Определение уровней заложения разрывных нарушений проведено с учетом данных [24, 25].

Для построения структурно-геологической схемы Среднеульинского рудного района масштаба 1:500000 использованы космические снимки Landsat и цифровая модель рельефа (ЦМР) SRTM.

Для построения структурно-тектонической схемы Уенминского рудного узла и рудного поля Светлое масштабов 1:100000 и 1:25000 использованы космические снимки ASTER и Sentinel, а также ЦМР ASTERGDEM.

Кроме перечисленных космоматериалов, для построения структурно-геологических схем использованы результаты геолого-съёмочных работ масштаба 1:200000 по листам О-54-VIII, О-54-IX, О-54-XIV, О-54-XV, О-54-XVI, О-54-XXI, результаты обработки аэрогеофизических данных по площади исследований, результаты переинтерпретации аэрогеофизических данных и результаты обработки литогеохимических съёмок по вторичным ореолам рассеяния.

Интерпретация геофизических полей и их трансформант проводилась с целью выявления глубинных неоднородностей, установления и подтверждения положения разрывных нарушений, элементов разномасштабных вулканоструктур, секущих интрузивных и субвулканических образований и тел метасоматически измененных пород. В исследованиях использованы результаты аэрогеофизических работ разных лет съёмки (1978–1985 гг.).

Общая методика работы с геофизическими данными заключалась в следующем:

- оценка качества имеющегося материала;
- расчет статистических, дифференциальных, корреляционных и градиентных характеристик по каждому наблюдаемому геофизическому параметру;
- интерпретация наблюдаемых полей и их трансформант с выделением элементов геологического строения, потенциально рудоконтролирующих структур различных порядков;
- сопоставление структурных схем с физическими полями и их трансформантами для обоснования корректности выделения отдельных элементов по геофизическим данным;
- составление геофизической модели масштабов рудного района и рудного узла.

Подтверждение протекания рудных процессов обеспечивается выявлением в геохимическом поле ассоциации элементов, связанных с рудообразованием, и прямых признаков золотого оруденения. Обработка и интерпретация геохимических данных выполнялась с целью создания обобщённой модели аномального геохимического поля Светлого по полученным в ходе анализа данных закономерностям распределения элементов во вторичном ореоле рассеяния. В основу работы легли аналитические данные, полученные по результатам литогеохимических работ по вторичным ореолам рассеяния в масштабе 1:50000 (сеть 500×100 м) и 1:10000 (сеть 100×40 м), проведенных в разные годы на площади золоторудного поля Светлое. Площадь работ составила 67 и 16,1 км² соответственно.

При обработке данных использованы методы многомерной статистики: ранговая корреляция, факторный и кластерный анализы.

Полученные результаты

Дешифрирование спектрозональных снимков Landsat ETM+ и ASTER позволило построить геолого-структурные схемы различных масштабных уровней – рудного района, рудного узла и рудного поля.

Основными элементами структурно-геологических схем являются:

- вулcano-тектонические депрессии как структуры I порядка (проявляются в материалах дистанционных съёмок как кольцевые структуры диаметрами 45...60 км), вулcano-тектонические структуры оседания – структуры II порядка (в материалах дешифрирования космических съёмок ограничиваются совокупностью дуговых и линейных структур и подчеркнуты характерными для кислых вулкаников спектральными характеристиками), остатки палеовулканических построек центрального типа (отражаются в материалах космических съёмок как системы телескопированных кольцевых структур диаметрами от 1 до 14 км), тела секущих изверженных горных пород (проявленные в виде площадных тел со специфическими яркостными характеристиками), разрывные нару-

шения (проявляются в виде линейных структур, проявленных также в аэрогеофизических материалах) – для масштаба Среднеульинского рудного района;

- разрывные нарушения, остатки палеовулканических построек, в том числе с проявленной кальдерой проседания, тела секущих интрузивных, субвулканических и жерловых образований, вторичные кварциты и аргиллизиты без разделения по фациям (выделены на основе рассчитанных спек-

тральных индексов) – для масштаба Уенминского рудного узла (рис. 2);

- палеовулканические постройки с кальдерами проседания, разрывные нарушения, ореолы метасоматически измененных горных пород различного состава (по результатам спектрального анализа материалов ASTER), стратифицированные образования и секущие интрузивные и субвулканические тела – для масштаба рудного поля Светлое (рис. 3).

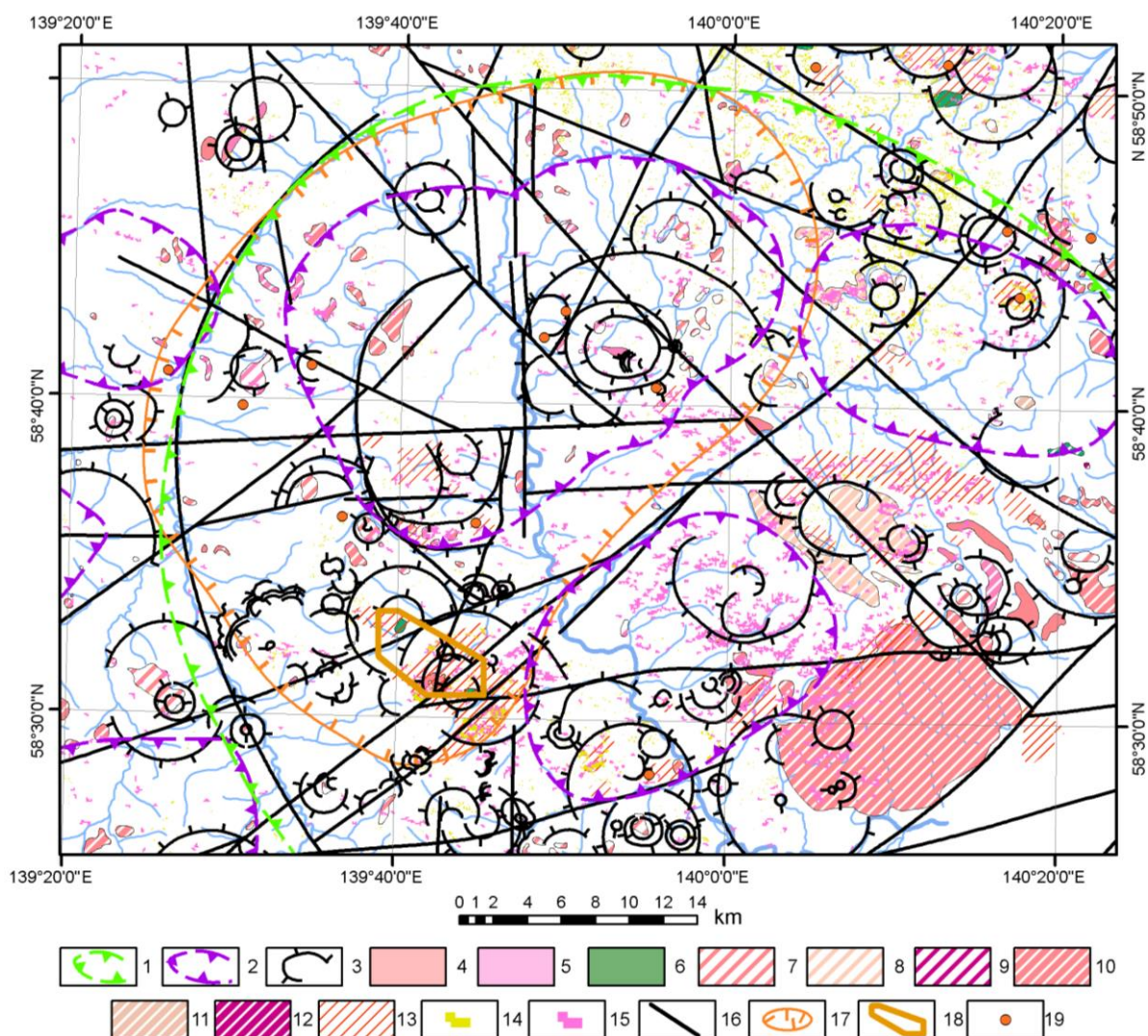


Рис. 2. Фрагмент космоструктурной схемы Уенминского рудного узла: 1 – Секчинская вулканотектоническая депрессия I порядка; 2 – вулканотектонические структуры оседания II порядка; 3 – остатки палеовулканических построек центрального типа; 4–6 – тела интрузивных горных пород различного состава: 4 – кислого, 5 – среднего, 6 – основного; 7–9 – жерловая фация изверженных пород: 7 – дациты, риолиты, 8 – трахириолиты, трахиты, 9 – андезиты, андезибазальты; 10–12 – субвулканические тела изверженных пород: 10 – дациты, риолиты, 11 – трахириолиты, трахиты, 12 – андезиты, андезибазальты; 13 – тела метасоматитов; 14 – значимые величины каолинитового индекса; 15 – значимые величины мафического индекса; 16 – главные разрывные нарушения; 17 – контур Уенминского рудного узла; 18 – контур рудного поля Светлое; 19 – рудопроявления

Fig. 2. Fragment of the cosmostructural scheme of the Uenma ore cluster: 1 – Sekchinskaya volcanotectonic depression of the first order; 2 – volcanotectonic subsidence structures of the second order; 3 – remains of paleovolcanic structures of the central type; 4–6 – bodies of intrusive rocks of various compositions: 4 – acidic, 5 – medium, 6 – basic; 7–9 – vent facies of igneous rocks: 7 – dacites, rhyolites, 8 – trachyrhyolites, trachytes, 9 – andesites, basaltic andesites; 10–12 – subvolcanic bodies of igneous rocks: 10 – dacites, rhyolites, 11 – trachyrhyolites, trachytes, 12 – andesites, basaltic andesites; 13 – bodies of metasomatites; 14 – significant values of the kaolinite index; 15 – significant values of the mafic index; 16 – main faults; 17 – contour of the Uenma ore cluster; 18 – outline of the Svetloe ore field; 19 – ore occurrences

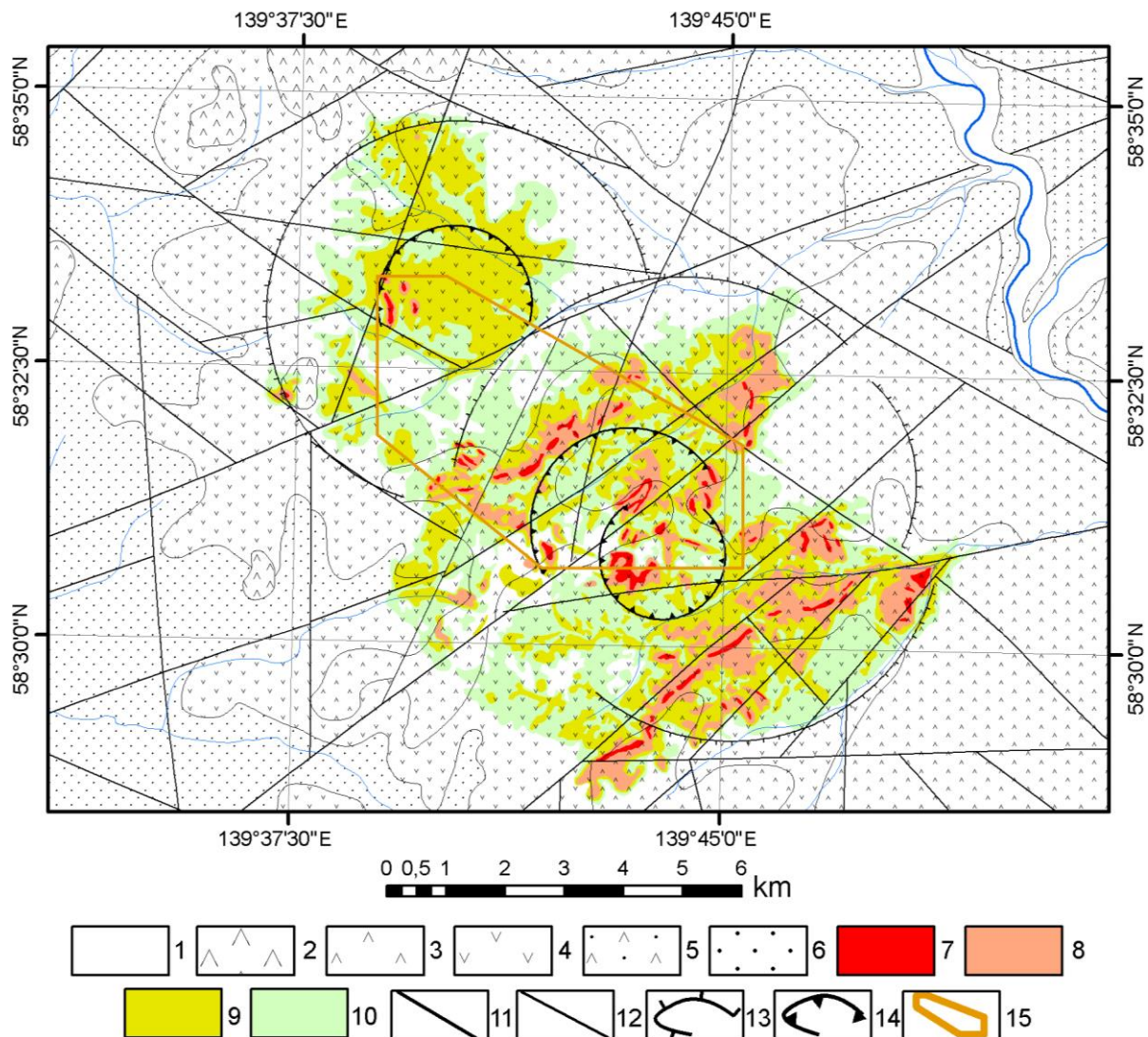


Рис. 3. Космоструктурная схема рудного поля Светлое: 1 – современные аллювиальные отложения; 2 – штоки и дайки уракского дацит-риолитового комплекса; 3 – лавы, туфы, игнимбриты дацитов уракской свиты; 4 – лавы андезитов и андезибазальтов, туфы андезитов хетанинской свиты; 5 – туфопесчаники, туфоалевролиты, туфы дацитов амкинской свиты; 6 – дациты и их туфы, игнимбриты, андезиты и их туфы магейской свиты; 7–9 – вторичные кварциты: 7 – монокварцевые, 8 – кварц-алунитовые, 9 – кварц-гидрослюдистые; 10 – хлоритовые пропилиты; 11, 12 – разрывные нарушения: 11 – главные, 12 – прочие; 13, 14 – палеовулканические аппараты центрального типа: 13 – конус, 14 – кальдеры проседания; 15 – контур рудного поля Светлое

Fig. 3. Cosmostructural scheme of the Svetloe ore field: 1 – modern alluvial deposits; 2 – stocks and dikes of the Urak dacite-rhyolite complex; 3 – lavas, tuffs, ignimbrites of dacites of the Urak Formation; 4 – andesite and basaltic andesite lavas, andesite tuffs of the Khetan Formation; 5 – tuff sandstones, tuff siltstones, dacite tuffs of the Amka Formation; 6 – dacites and their tuffs, ignimbrites, andesites and their tuffs of the Magey Formation; 7–9 – secondary quartzites: 7 – monoquartz, 8 – quartz-alunite, 9 – quartz-hydromicaceous; 10 – chlorite propylites; 11, 12 – discontinuous violations: 11 – main, 12 – other; 13, 14 – paleovolcanic apparatuses of the central type: 13 – cone, 14 – subsidence calderas; 15 – contour of the ore field Svetloe

Проведенные исследования по дешифрированию показывают, что известные золоторудные таксоны (рудные районы, узлы, поля) пространственно сопряжены с различными вулканотектоническими структурами:

- рудные узлы размещаются в пределах дешифрируемых систем кольцевых структур диаметром 45...60 км. Эти структуры интерпретируются как вулканотектонические депрессии, развитые над внутрикоровыми магматическими камерами, вул-

кано-плутоническими комплексами и ареалами их влияния;

- рудные поля тяготеют к краевым частям вулканотектонических депрессий. Дистанционными критериями для выделения потенциальных рудных полей являются системы кольцевых структур диаметром от 1 до 14 км. Такие структуры интерпретируются как частные вулканические постройки. Положение вулканических построек контролируется узлами сопряжения северо-восточных и

северо-западных разрывных нарушений. В потенциально рудоносных с кислотно-сульфатным типом оруденения вулканических постройках должна быть проявлена кальдера проседания и метасоматический ореол значительной площади (в рудном поле Светлое его площадь более 30 км², однако не следует привязываться к этой величине при формировании поисковой модели, потому что существуют крупные месторождения кислотно-сульфатного типа, в рудном поле которых метасоматический ореол проявлен на площади до 10 км² в виду наличия перекрывающих толщ либо более поздних осадочных комплексов, либо экраняющего слоя менее проницаемых вулканических пород [17, 18]). Другими признаками потенциальной рудоносности частных вулканических построек могут служить особенности проявления значимых величин каолинового (KLI) и мафического (MI³) спектральных индексов. На рудоносных площадях каолиновый индекс проявлен в виде локальных площадных аномалий, а мафический индекс (значения менее 0,87) указывает на возможное присутствие монокварцевых тел значительных размеров;

- месторождения кислотно-сульфатного типа размещаются в кальдерах проседания в участках развития монокварцевых, кварц-алунитовых и кварц-гидрослюдистых метасоматитов, которые могут быть закартированы по результатам спектрального анализа снимков ASTER (рис. 3).

В основу исследований и интерпретации аэрогеофизических данных легла модель геологического строения, описанная выше. Кроме того, были использованы результаты исследования ФГУП «Дальгеофизика» [26]. Имеющиеся данные определяют, что типоморфными признаками выделения рудных полей в физических полях является сопряжение в пространстве областей пониженного магнитного поля и повышенных значений Th/K отношения.

Результаты интерпретации геофизических исследований подтверждаются результатами дешифрирования космоснимков. Также выделяются кольцевые структуры, эпицентры которых контролируются разнонаправленными тектоническими нарушениями. Эти структуры и разрывные нарушения отражаются в магнитном поле, кроме нарушений северо-восточного простирания, которые, по-видимому, являются наиболее древними и в значительной мере заретушированы наложенными процессами (рис. 4).

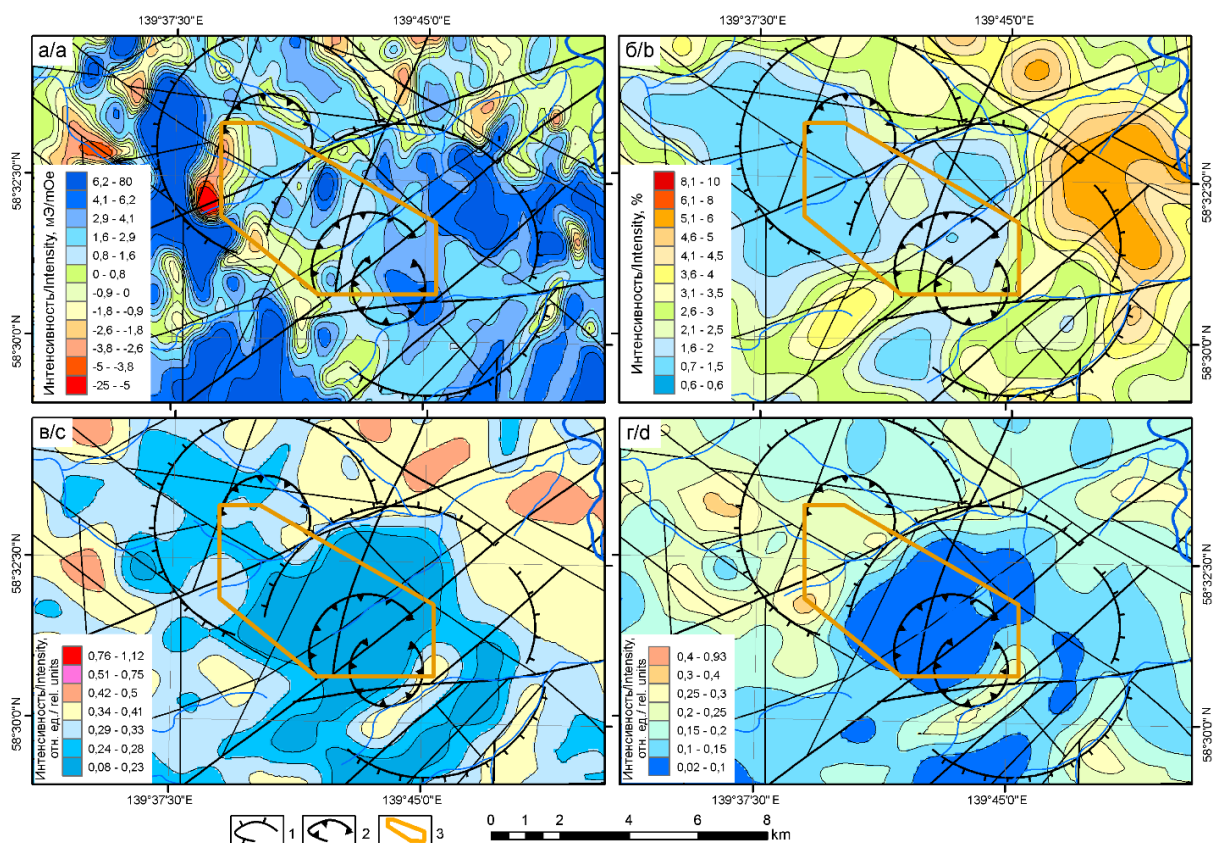


Рис. 4. Положение рудного поля Светлое в физических полях: а) магнитное поле; б) поле K; в) Th/K отношение; г) KU/ThTh отношение; 1, 2 – палеовулканические аппараты центрального типа: 1 – конус, 2 – кальдеры проседания; 3 – контур рудного поля Светлое

Fig. 4. Position of the Svetloe ore field in physical fields: a) magnetic field; b) field K; c) Th/K ratio; d) KU/ThTh ratio; 1, 2 – paleovolcanic apparatuses of the central type: 1 – cone, 2 – calderas subsidence; 3 – contour of the Svetloe ore field

Потенциально рудоносные кольцевые структуры должны быть приурочены к кольцевой структуре среднего порядка, расположенной на периферии более крупной кольцевой структуры. Кольцевые структуры характеризуются однородным магнитным полем. Знак поля значения не имеет, так как зависит от принятого уровня фона. Главным определяющим фактором является пониженная дисперсия. Области резко дифференцированного магнитного поля могут находиться как в эпицентре этих зон (жерловая фация), так и на их периферии.

В полях распределения естественных радиоактивных элементов потенциально рудоносные структуры должны картироваться аномальным поведением К/Th отношения. Если субстрат имел преимущественно натровый состав, то отношение будет смещаться в сторону тория (непосредственно тип Светлого), в противном случае – в сторону калия [26]. Кроме этого, предлагается использовать отношение KU/ThTh. Наш взгляд, этот показатель еще лучше фиксирует площади развития вторичных кварцитов. К и U в суперкислых гидротермальных растворах весьма подвижны, тогда как Th относительно устойчив (рис. 4).

Проведенные исследования по интерпретации аэрогеофизических материалов показывают, что рудные поля вполне закономерно размещаются в магнитном поле и полях распределения естественных радиоактивных элементов. Они приурочены к кольцевым структурам среднего порядка, находящимся на периферии крупных кольцевых структур первого порядка, которые отчетливо проявлены в аэромагнитном поле. Для потенциально рудоносных кольцевых структур характерно спокойное выположенное аэромагнитное поле с невысокой дисперсией. В полях распределения естественных радиоактивных элементов потенциально рудоносные структуры выделяются аномальным поведением К/Th и KU/ThTh отношений.

Выявление прямых признаков золотого оруденения и определение парагенетических геохимических ассоциаций во вторичном поле рассеяния является достоверным индикатором рудного процесса.

В результате обработки данных крупномасштабной (1:50000) (рис. 5) и детальной (1:10000) (рис. 6) литогеохимических съемок обоснованы следующие локальные и детальные геохимические критерии и признаки.

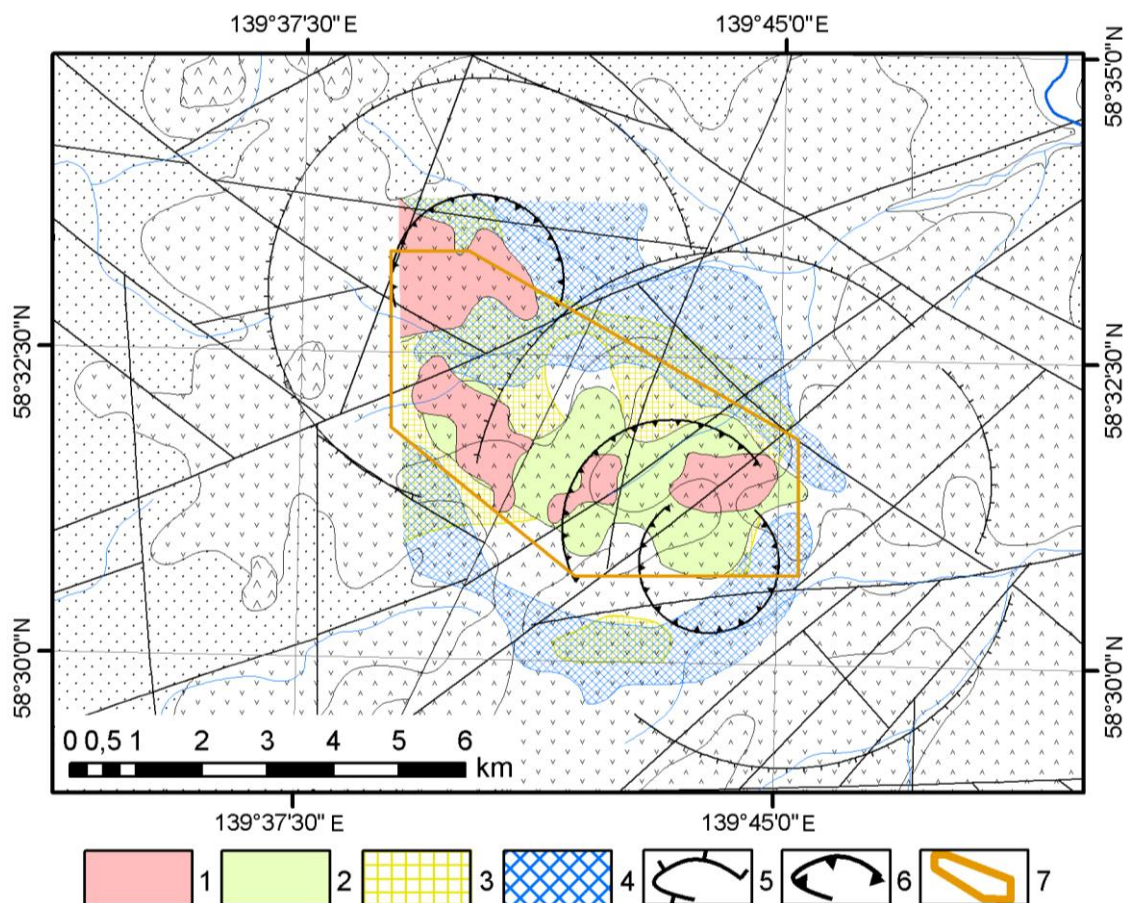


Рис. 5. Структура вторичного аномального геохимического поля рудного поля Светлое: 1–4 – ассоциации химических элементов: 1 – Au+Ag+Pb; 2 – Au+Mo; 3 – K+Al+Na; 4 – Co+Cr+Mn+V+Zn+P; 5, 6 – палеовулканические аппараты центрального типа: 5 – конус, 6 – кальдеры проседания; 7 – контур рудного поля Светлое. Остальные условные обозначения – на рис. 2

Fig. 5. Structure of the secondary anomalous geochemical field of the Svetloe ore field. 1–4 – associations of chemical elements: 1 – Au+Ag+Pb; 2 – Au+Mo; 3 – K+Al+Na; 4 – Co+Cr+Mn+V+Zn+P; 5, 6 – paleovolcanic apparatuses of the central type: 5 – cone, 6 – subsidence calderas; 7 – outline of the Svetloe ore field. Other symbols are in Fig. 2

А) Локальные

1. Прямым признаком золотого оруденения, хорошо проявленным в пределах рудного поля, является наличие концентраций Au и Ag во вторичных ореолах рассеяния, превышающих минимально-аномальные значения.
2. На основе имеющейся аналитической информации элементами-спутниками эпитермального золотого оруденения, кроме Au и Ag, следует считать: Sb, Bi, As, Cu, Pb, Mo.
3. Аномально низкие концентрации K, Al, Na характеризуют зону выноса макроэлементов. В их пределах могут отлагаться рудные минеральные ассоциации.
4. В масштабе рудного поля V, Zn и, вероятно, ряд других (siderофильных) элементов выносятся из центральной зоны рудообразования и накапливаются на ее периферии, что может служить дополнительным критерием выделения перспективных (зоны выноса) и «пустых» (зоны фронтального концентрирования) участков.
5. С использованием кластер-анализа наблюдений возможна геометризация площадей с ярко выраженной неоднородностью геохимического спектра, характеризующих рудное и околорудное про-

странство, а также выделение областей с «породной» составляющей.

6. Установлено, что во вторичном геохимическом поле ассоциации элементов образуют концентрически-зональную структуру с последовательной пространственно-временной сменой геохимических ассоциаций (от центральной зоны рудообразования к периферии): Au, Mo→Au, Ag, Pb→K, Na, Al→V, Zn, (Co, Ni, Cr, Mn, P).

Б) Детальные

1. Прямым признаком золотого оруденения на стадии детальных работ являются аномальные концентрации Au и Ag во вторичных ореолах рассеяния.
2. Элементами-спутниками эпитермального золотого оруденения, являются: Sb, Bi, Te, Se, As, Mo, Cu.
3. Геохимическая ассоциация V, Zn, Co, Ni, Cr, Mn, P фиксируется во фронтальной зоне концентрирования. При этом она более отчетливо проявлена в метасоматитах, развитых по породам хетанинской свиты.
4. С использованием кластер-анализа (метод К-средних) может быть проведено разделение проб на «породные» и «рудные», а также установление геохимических специализаций выделенных участков с возможностью прогнозирования уровня эрозионного среза оруденения.

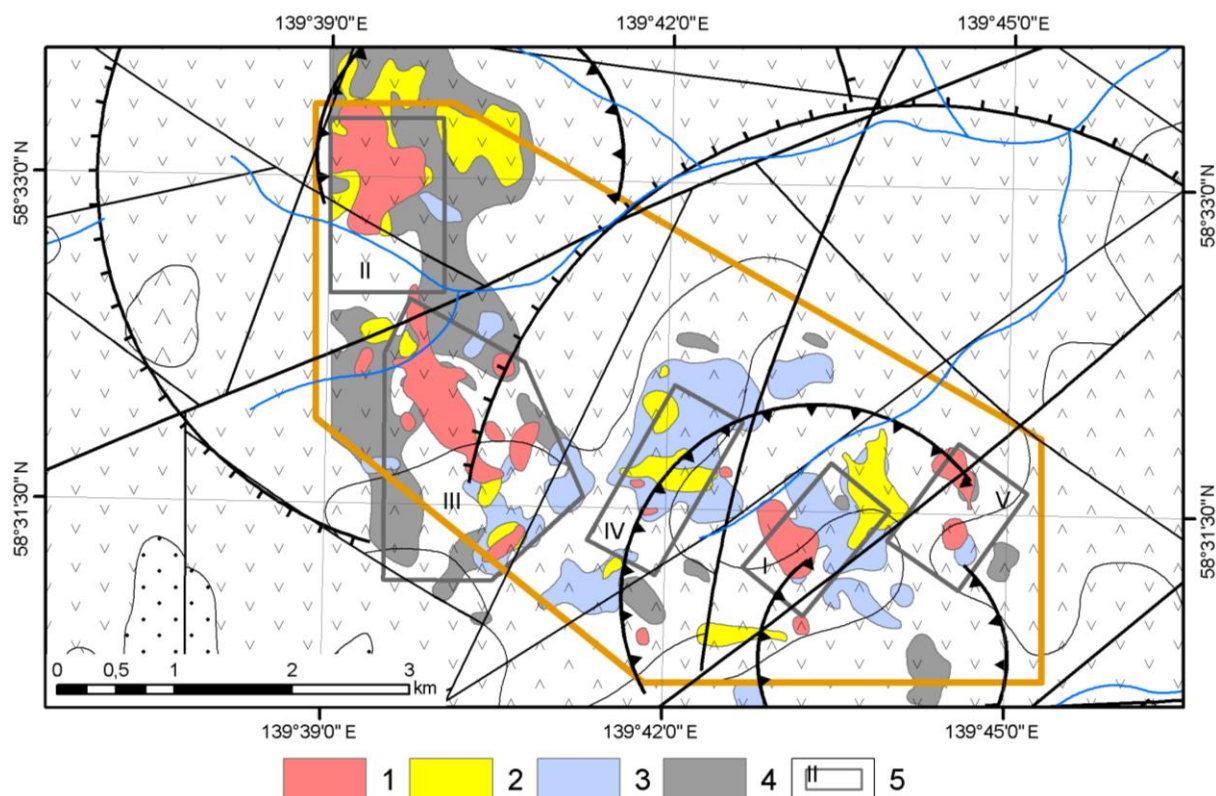


Рис. 6. Структура вторичного аномального геохимического поля месторождений рудного поля Светлое: 1–4 – ассоциации химических элементов: 1 – Au+Ag; 2 – Ag+Pb+Sb; 3 – As+Ba+Mo; 4 – Co+Cr+Mn+V+Zn+P; 5 – рудные участки (месторождения): I – Елена, II – Эми, III – Людмила, IV – Тамара, V – Лариса. Остальные условные обозначения – на рис. 2

Fig. 6. Structure of the secondary anomalous geochemical field of deposits in the Svetloe ore field. 1–4 – associations of chemical elements: 1 – Au+Ag; 2 – Ag+Pb+Sb; 3 – As+Ba+Mo; 4 – Co+Cr+Mn+V+Zn+P; 5 – ore areas (deposits): I – Elena, II – Emi, III – Lyudmila, IV – Tamara, V – Larisa. Other symbols are in Fig. 2

В пределах минерализованных зон (с учетом стадийности рудообразования) устанавливается следующая последовательность формирования геохимических ассоциаций (от центральной части к периферии): Au-Ag→Ag, Pb, Sb→As, Mo, Ba→Co, Cr, Mn, V, Zn, P.

Обобщенная модель аномального геохимического поля Светлое выражена следующими особенностями. Во вторичном геохимическом поле ассоциации элементов образуют концентрически-зональную структуру с последовательной пространственно-временной сменой геохимических ассоциаций (от центральной зоны рудообразования к периферии): Au, Ag, Pb, Sb→Au, As, Mo, Ba→K, Na, Al→Co, Cr, Mn, V, Zn, P.

Наиболее ранняя предрудная Co, Cr, Mn, V, Zn, P геохимическая ассоциация образована на начальной стадии метасоматического преобразования пород. Ассоциация макроэлементов K, Na, Al связана с процессом образования вторичных кварцитов и ее вытеснением на периферию зон рудообразования. С ранней стадией процесса рудообразования связана Au, Ag, Pb, Sb геохимическая ассоциация, контролирующая зоны рудной минерализации. Au, As, Mo, Ba ассоциация приурочена к рудным зонам и характеризуется крупными площадными ореолами, что, очевидно, обусловлено особенностью поведения элементов в зоне гипергенеза.

Выводы

Положение в крупных региональных и локальных тектонических и вулcano-плутонических структурах, геологическое строение, метасоматическая и геохимическая зональность, проявленность в геофизических полях подтверждает принадлежность рудного поля Светлое к эпитермальным золото-серебряным месторождениям кислотно-сульфатного типа.

В результате проведенных исследований и обобщения геолого-геофизических данных были выявлены закономерности проявления рудных таксонов в материалах дешифрирования спектрозональных космических снимков, аэрогеофизических полях, во вторичном геохимическом поле. На основании этих закономерностей сформулированы критерии и признаки золотого эпитермального оруденения:

Региональные

Структурные

(по результатам дешифрирования космических снимков)

Рудные узлы размещаются в пределах дешифрируемых систем кольцевых структур диаметром 45...60 км. Эти структуры интерпретируются нами как вулcano-тектонические депрессии, развитые над внутрикоровыми магматическими камерами, вулcano-плутоническими комплексами и ареалами их влияния. Положение самих вулcano-тектонических депрессий контролируется участками сопряжения продольных и поперечных разрывных нарушений мантийного уровня заложения.

Локальные

Структурно-вещественные

(по результатам дешифрирования космических снимков)

Рудные поля тяготеют к краевым частям вулcano-тектонических депрессий. Структурными критериями

для выделения потенциальных рудных полей являются системы кольцевых структур диаметром от 1 до 14 км, интерпретируемые как частные вулканические постройки. Положение таких построек контролируется узлами сопряжения продольных северо-восточных (мантийного заложения) и поперечных северо-западных (коровых) разрывных нарушений. В потенциально рудоносных с кислотно-сульфатным типом оруденения вулканических постройках должна быть проявлена кальдера проседания и метасоматический ореол значительной площади. На рудоносных площадях должны присутствовать локальные площадные аномалии каолинитового, мафического (значения менее 0,87) спектральных индексов и резко градиентные значения показателя оксидов железа.

Геофизические

Рудные поля приурочены к кольцевым структурам среднего порядка, находящимся на периферии крупных кольцевых структур первого порядка, которые отчетливо проявлены в аэромагнитном поле.

Для потенциально рудоносных кольцевых структур характерно спокойное выположенное или слабо дифференцированное аэромагнитное поле с невысокой дисперсией. Области резко дифференцированного аэромагнитного поля могут находиться как в эпицентре этих структур (жерловая фация), так и на их периферии.

В полях распределения естественных радиоактивных элементов потенциально рудоносные структуры выделяются аномальным поведением K/Th отношения. Если вмещающий субстрат имел преимущественно натровый состав, то отношение будет смещаться в сторону тория (непосредственно тип Светлого), в противном случае – в сторону калия.

Геохимические

Прямым признаком эпитермального кислотно-сульфатного оруденения ранга рудного поля является наличие аномальных концентраций Au и Ag во вторичных ореолах рассеяния. Также элементами-спутниками оруденения, на основании имеющейся аналитической базы, следует считать Sb, As, Bi, Cu.

Рудные поля во вторичном геохимическом поле выделяются концентрически-зональным ореолом комплекса элементов – во фронтальной зоне проявлена ассоциация V-Zn, в тыловой зоне – ассоциации Au-Ag-Pb и Au-Mo.

Детальные

Структурно-вещественные

(по результатам дешифрирования космических снимков)

Месторождения кислотно-сульфатного типа размещаются в кальдерах проседания, тяготеют к узлам сопряжения коровых разрывных нарушений северо-восточного и северо-западного простирания, в участках развития монокварцевых, кварц-алунитовых и кварц-гидрослюдистых метасоматитов, которые могут быть закартированы по результатам специальной обработки снимков ASTER.

Геохимические

Прямым признаком золотого оруденения ранга месторождения являются аномальные концентрации Au и Ag во вторичных ореолах рассеяния, а также их элементы-спутники Sb, Bi, Te, Se, As, Mo, Cu.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Heald P., Foley N.K., Hayba D.O. Comparative anatomy of volcanic-hosted epithermal deposits: acid-sulfate and adularia-sericite types // *Economic Geology*. – 1987. – V. 82. – № 1. – P. 1–26.
2. Stoffregen R. Genesis of acid-sulfate alteration and Au-Cu-Ag mineralization at Summitville, Colorado // *Economic Geology*. – 1987. – V. 82. – P. 1575–1591.
3. Sillitoe R.H. Epithermal models, genetic types, geometrical controls and shallow features // *Mineral Deposits Division, Special Paper*. – Saint John's: Geological Association of Canada, 1993. – P. 403–417.
4. Hedenquist J.W., Arribas A.R. Exploration for epithermal gold deposits // *Reviews in Economic Geology*. – 2000. – V. 13. – P. 245–277.
5. Sillitoe R., Hedenquist J. linkages between volcanotectonic settings, ore-fluid compositions, and epithermal precious metal deposits // *Society of Economic Geologists Special Publication*. – 2003. – V. 10. – P. 315–343.
6. The Poopó polymetallic epithermal deposit, Bolivia: mineralogy, genetic constraints, and distribution of critical elements / B. Torres, J.-C. Melgarejo, L. Torró, A. Camprubí, M. Castillo-Oliver, D. Artiaga, M. Campeny, E. Tauler, A. Jiménez-Franco, P. Alfonso, O.R. Arce-Burgos // *Minerals*. – 2019. – V. 9 (8). – P. 1–18.
7. A review of intermediate sulfidation epithermal deposits and subclassification / L. Wang, K.Z. Qin, G.X. Song, G.M. Li // *Ore Geology Reviews*. – 2019. – V. 107. – P. 434–456.
8. Кигаи И.Н. Условия формирования метасоматитов и оруденение эпitherмальных золото-серебряных месторождений // *Геология рудных месторождений*. – 2020. – Т. 62. – № 5. – С. 475–480.
9. Hedenquist J.W., Arribas A.R. Exploration implications of multiple formation environments of advanced argillic minerals // *Economic Geology*. – 2022. – V. 117. – № 3. – P. 609–643.
10. Mustard gold of the gaching ore deposit (Maletoyvayam ore field, Kamchatka, Russia) / N.D. Tolstykh, G.A. Palyanova, O.V. Bobrova, E.G. Sidorov // *Minerals*. – 2019. – V. 9. – P. 1–18.
11. Наумова О.А., Алышева Э.И. Гидротермально измененные породы Озерновского золото-серебряного месторождения Камчатки // *Отечественная геология*. – 1995. – № 1. – С. 35–43.
12. Мишин Л.Ф. Вторичные кварциты и их связь с золоторудной минерализацией месторождения Светлое (Россия) (Ульянский прогиб, Охотско-Чукотский вулканогенный пояс) // *Тихоокеанская геология*. – 2011. – Т. 30. – № 4. – С. 32–48.
13. Mineralogy of the Svetloye epithermal district, Okhotsk-Chukotkavolcanic belt, and its insights for exploration / T.Yu. Yakich, Y.S. Ananyev, A.S. Ruban, R.Y. Gavrilov, D.V. Lesnyak, D.V. Levochskaya, O.V. Savinova, M.A. Rudmin // *Ore Geology Reviews*. – 2021. – V. 136. – 104257.
14. Taylor B.E. Epithermal gold deposits // *Mineral. Deposits of Canada: a synthesis of major deposit-types, district metallogeny, the evolution of geological provinces, and exploration methods* / Ed. by W.D. Goodfellow. Mineral Deposits Division, Special Publication. – Saint John's, NL, Canada: Geological Association of Canada, 2007. – V. 5. – P. 113–139.
15. К условиям формирования редкометалльного рудопроявления Эмми (Ульянская структурно-металлогеническая зона) / А.Г. Колесников, И.А. Брызгалов, Т.Л. Расказова, Н.Е. Савва //

Информация об авторах

Лесняк Д.В., аспирант отделения геологии Инженерной школы природных ресурсов Национального исследовательского Томского политехнического университета; директор дирекции геологоразведочных проектов Хабаровского филиала АО «Полиметалл УК».

Ананьев Ю.С., доктор геолого-минералогических наук, доцент отделения геологии Инженерной школы природных ресурсов Национального исследовательского Томского политехнического университета.

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

Месторождения во вторичном геохимическом поле, на основании имеющейся аналитической информации, выделяются концентрически-зональным ореолом комплекса элементов – во фронтальной зоне проявлена ассоциация Co-Cr-Mn-V-Zn-P; в тыловой зоне – ассоциации Au-Ag, Ag-Pb-Sb, As-Mo-Ba.

- Чтения памяти К.В. Симакова: Всероссийская научная конференция. Сборник материалов. – Магадан: СВКНИИ, 2007. – С. 90–91.
16. Порфировое золото-теллуридное оруденение high-sulfidation типа Северного Приохотья: минералогия, магматизм и геодинамика / В.В. Иванов, В.Ф. Полин, И.С. Неменман, В.В. Кононов, Л.Г. Колесова, А.А. Лотина // *Геологические процессы в обстановках субдукции, коллизии и скольжения литосферных плит: Материалы Всероссийской конференции с международным участием*. – Владивосток, ДГИ ДВО РАН, 2011. – С. 356–359.
 17. Гидротермально-метасоматическая зональность, флюидный режим и типы золотого оруденения участков Эми и Елена эпitherмального рудного поля Светлое (Хабаровский край) / Д.В. Левочская, Т.Ю. Якич, Д.В. Лесняк, Ю.С. Ананьев. // *Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов*. – 2021. – Т. 333. – № 10. – С. 17–34.
 18. Gray J.E., Coolbaugh M.F. Geology and geochemistry of Summitville, Colorado: An Epithermal Acid Sulfate Deposit in a Volcanic Dome // *Economic Geology*. – 1994. – V. 89. – P. 1906–1923.
 19. Sillitoe R.H. Epithermal paleosurfaces – Mineralium Deposita // *International Journal for Geology, Mineralogy and Geochemistry of Mineral Deposits*. – 2015. – V. 50. – P. 767–793.
 20. Exploration tools for linked porphyry and epithermal deposits: example from the Mankayan intrusion-centered Cu-Au district, Luzon, Philippines / Zh. Chang, J.W. Hedenquist et al. // *Economic Geology*. – 2011. – V. 106. – P. 1365–1398.
 21. Ананьев Ю.С., Житков В.Г., Поцелуев А.А. Дистанционная прогнозно-поисковая модель эпitherмальных Au-Ag месторождений (на примере рудного поля Светлое, Хабаровский край) // *Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов*. – 2019. – Т. 330. – № 5. – С. 84–92.
 22. Seamless geological map generation using ASTER in the Broken Hill-Curnamona province of Australia / R.D. Hewson, T.J. Cudahy, S. Mizuhiko, K. Ueda, A.J. Mauger // *Remote Sensing of Environment*. – 2005. – V. 99 (1–2). – P. 159–172.
 23. Ninomiya Y., Fu B., Cudahy T.J. Detecting lithology with Advanced Spaceborne Thermal Emission and Reflection Radiometer (ASTER) multispectral thermal infrared «radiance-at-sensor» data // *Remote Sensing of Environment*. – 2005. – V. 99. – P. 127–139.
 24. Петрофизические особенности тектонических структур Охотоморской зоны перехода континент-океан / Е.Г. Иволга, В.Г. Гурович, Н.П. Романовский, Ю.Ф. Манилов // *Тихоокеанская геология*. – 2016. – Т. 35. – № 5. – С. 39–53.
 25. Глубинные особенности размещения золоторудной минерализации Ульянской впадины / Е.Г. Иволга, Ю.Ф. Манилов, Н.П. Романовский, В.Г. Гурович // *Тихоокеанская геология*. – 2017. – Т. 17. – № 4. – С. 120–136.
 26. Копылов М.И., Пустовойтова И.В., Скрябин И.Н. Перспективы выявления золоторудных месторождений в алунигах на юге Дальневосточного региона // *Известия Сибирского отделения РАН. Геология, поиски и разведка рудных месторождений*. – 2011. – № 2. – С. 84–98.

Поступила 04.06.2022 г.

UDC 553.411.071:550.4

STRUCTURAL, GEOPHYSICAL AND GEOCHEMICAL CRITERIA FOR EPITHERMAL HIGH-SULFIDATION GOLD MINERALIZATION ON THE EXAMPLE OF SVETLOE ORE FIELD (Khabarovskiy kray)

Dmitry V. Lesnyak^{1,2},
lesnyakdv@polymetal.ru

Yury S. Ananyev¹,
AnanyevYS@tpu.ru

Roman Yu. Gavrilov¹,
GavrilovRY@tpu.ru

¹ National Research Tomsk Polytechnic University,
30, Lenin avenue, Tomsk, 634050, Russia.

² JSC Polymetal Management, Khabarovsk branch,
18, Muravev-Amursky street, Khabarovsk, 680000, Russia.

The relevance of the research. Poor knowledge and economic attractiveness make the problem of forecasting and prospecting for epithermal high-sulfidation gold-silver deposits within the volcanogenic belts of the Russian Federation topical.

The main goal of the work was to develop criteria for forecasting and prospecting for epithermal acid-sulfate gold mineralization within the Ulsinsky trough of the Okhotsk-Chukotka volcanic belt.

Methods: interpretation of space materials ASTER, Landsat ETM+, Sentinel and digital elevation model according to Shuttle radar topographic mission data, interpretation of airborne geophysical data of magnetometric and gamma-ray spectroscopic surveys with the construction of structural geological schemes; modeling of geochemical fields using multivariate statistical methods based on lithochemical data, including rank correlation, factorial and cluster analysis.

The following main conclusions: the Svetloe ore field has characteristics typical of epithermal deposits of acid-sulfate gold mineralization: it is located in a volcanic belt, confined to central-type volcanic apparatuses controlled by faults; gold mineralization is accompanied by advanced argillic and quartz altered rocks: secondary quartzites of zonal structure, were drawn. The characteristics of structural control and metasomatic zoning are well defined in interpretation of data from remote sensing, airborne magnetic surveys, and gamma ray spectrometry. Furthermore, the distribution of chemical elements in the secondary stray field makes it possible to establish a concentric zonal structure characteristic of hydrothermal gold deposits, with a spatiotemporal change in geochemical associations from the central zone of ore formation to the periphery at the local level of generalization: Au, Mo→Au, Ag, Pb→K, Na, Al→V, Zn, (Co, Ni, Cr, Mn, P). Moreover, within the mineralized zones, the following sequence of formation of geochemical associations is established (from the central part to the periphery): Au-Ag→Ag, Pb, Sb→As, Mo, Ba→Co, Cr, Mn, V, Zn, P.

Key words:

Ore gold, epithermal deposits, acid-sulphate, prospecting features and criteria, remote sensing methods, airborne geophysics, lithochemical zoning.

REFERENCES

1. Heald P., Foley N.K., Hayba D.O. Comparative anatomy of volcanic-hosted epithermal deposits: acid-sulfate and adularia-sericite types. *Economic Geology*, 1987, vol. 82, no. 1, pp. 1–26.
2. Stoffregen R. Genesis of acid-sulfate alteration and Au-Cu-Ag mineralization at Summitville, Colorado. *Economic Geology*, 1987, vol. 82, pp. 1575–1591.
3. Sillitoe R.H. Epithermal models, genetic types, geometrical controls and shallow features. Special Paper. Saint John's, *Geological Association of Canada*, 1993, pp. 403–417.
4. Hedenquist J.W., Arribas R.A. Exploration of epithermal gold deposits. *Reviews in Economic Geology*, 2000, vol. 13, pp. 245–277.
5. Sillitoe R., Hedenquist J. Linkages between volcanotectonic settings, ore-fluid compositions, and epithermal precious metal deposits. *Society of Economic Geologists Special Publication*, 2003, vol. 10, pp. 315–343.
6. Torres B., Melgarejo J.-C., Torro L., Camprubí A., Castillo-Oliver M., Artiaga D., Campeny M., Tauler E., Jiménez-Franco A., Alfonso P., Arce-Burgos O.R. The Poopó polymetallic epithermal deposit, Bolivia: mineralogy, genetic constraints, and distribution of critical elements. *Minerals*, 2019, vol. 9 (8), pp. 1–18.
7. Wang L., Qin K.Z., Song G.X., Li G. M. A review of intermediate sulfidation epithermal deposits and subclassification. *Ore Geology Reviews*, 2019, vol. 107, pp. 434–456.
8. Kigay I.N. Conditions for the formation of metasomatites and mineralization of epithermal gold-silver deposits. *Geology of Ore Deposits*, 2020, vol. 62, no. 5, pp. 475–480. In Rus.
9. Hedenquist J.W., Arribas R.A. Exploration Implications of Multiple Formation Environments of Advanced Argillic Minerals. *Economic Geology*, 2022, vol. 117, no. 3, pp. 609–643.
10. Tolstykh N.D., Palyanova G.A., Bobrova O.V., Sidorov E.G. Mustard gold of the gaching ore deposit (Maletoyvayam ore field, Kamchatka, Russia). *Minerals*, 2019, vol. 9, pp. 1–18.
11. Naumova O.A., Alysheva E.I. Hydrothermally altered rocks of the Ozerovsky gold-silver deposit in Kamchatka. *Otechestvennaya geologiya*, 1995, no. 1, pp. 35–43. In Rus.
12. Mishin L.F. Secondary quartzites and their relation to gold ore mineralization of the Svetloye deposit (Ulya trough, Okhotsk-Chukotka volcanogenic belt). *Russian journal of pacific geology*, 2011, vol. 30, pp. 32–48. In Rus.
13. Yakich T.Y., Ananyev Y.S., Ruban A.S., Gavrilov R.Y., Lesnyak D.V., Levochskaya D.V., Savinova O.V., Rudmin M.A. Mineralogy of the Svetloye epithermal district, Okhotsk-Chukotka volcanic belt, and its insights for exploration. *Ore Geol. Rev.*, 2021, vol. 136, 104257.
14. Taylor B.E. Epithermal gold deposits. Mineral. Deposits of Canada: a synthesis of major deposit-types, district metallogeny, the evolution of geological provinces, and exploration methods. Ed. by W.D. Goodfellow. *Mineral Deposits Division, Special Publication*

- tion. Saint John, NL, Canada, Geological Association of Canada, 2007. Vol. 5, pp. 113–139.
15. Kolesnikov A.G., Bryzgalov I.A., Rasskazova T.L., Savva N.E. Kusloviyam formirovaniya redkometalnogo rudoproyavleniya Emmy (Ulinskaya strukturno-metallogenicheskaya zona) [On the formation conditions of the Emmy rare-metal ore occurrence (Ulyinsk structural-metallogenetic zone)]. *Chteniya pamyati K.V. Simakova. Vserossiyskaya nauchnaya konferentsiya. Sbornik materialov* [Readings in memory of K.V. Simakova: All-Russian scientific conference. Collection of materials]. Magadan, SVKNII Publ., 2007. pp. 90–91.
 16. Ivanov V.V., Polin V.F., Nemenman I.S., Kononov V.V., Kolesova L.G., Lotina A.A. Porfirovoe zoloto-telluridnoe orudnenie high-sulfidation tipa Severnogo Priokhotya: mineralogiya, magmatizm i geodinamika [High-sulfidation porphyritic gold-telluride mineralization of the Northern Okhotsk type: mineralogy, magmatism and geodynamics]. *Materialy Vserossiyskoy konferentsii s mezhdunarodnym uchastiyem. Geologicheskie protsessy v obstanovkakh subdukcii, kollizii i skolzheniya litosfernykh plit* [Proc. of the All-Russian Conference with international participation. Geological processes in the environment of subduction, collision and sliding of lithospheric plates]. Vladivostok, DGI FEB RAS, 2011. pp. 356–359.
 17. Levochskaya D.V., Yakich T.Yu., Lesnyak D.V., Ananyev Yu.S. Hydrothermal-metasomatic zoning, fluid regime and types of gold mineralization in the Emi and Elena areas of the Svetloe epithermal ore field (Khabarovsk Territory). *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2021, vol. 333, no. 10, pp. 17–34. In Rus.
 18. Gray J.E., Coolbaugh M.F. Geology and geochemistry of Summitville, Colorado: An Epithermal Acid Sulfate Deposit in a Volcanic Dome. *Economic Geology*, 1994, vol. 89, pp. 1906–1923.
 19. Silitoe R.H. Epithermal paleosurfaces – Mineralium Deposita. *International Journal for Geology, Mineralogy and Geochemistry of Mineral Deposits*, 2015, vol. 50, pp. 767–793.
 20. Chang Z., Hedenquist J.W., White N.C., Cooke D.R., Roach M., Deyell C.L., Garcia J., Jr., Gemmell J.B., McKnight S., Cuisson A.L. Exploration tools for linked porphyry and epithermal deposits: example from the Mankayan intrusion-centered Cu-Au district, Luzon, Philippines. *Economic Geology*, 2011, vol. 106, pp. 1365–1398.
 21. Ananyev Yu.S., Zhitkov V.G., Potseluev A.A. Forecasting and prospecting model of epithermal high sulfidation Au-Ag deposits using modern satellite data (on the example of ore field svetloe, Khabarovskiy kray). *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2019, vol. 330, no. 5, pp. 84–92. In Rus.
 22. Hewson R.D., Cudahy T.J., Mizuhiko S., Ueda K., Mauger A.J. Seamless geological map generation using ASTER in the Broken Hill–Cumamona province of Australia. *Remote Sensing of Environment*, 2005, vol. 99 (1–2), pp. 159–172.
 23. Ninomiya Y., Fu B., Cudahy T.J. Detecting lithology with Advanced Spaceborne Thermal Emission and Reflection Radiometer (ASTER) multispectral thermal infrared «radiance-at-sensor» data. *Remote Sensing of Environment*, 2005, vol. 99, pp. 127–139.
 24. Ivolga E.G., Gurovich V.G., Romanovsky N.P., Manilov Yu.F., Petrophysical Features of Tectonic Structures in the Sea of Okhotsk Continent-Ocean Transition Zone. *Russian journal of pacific geology*, 2016, vol. 35, no. 5, pp. 39–53. In Rus.
 25. Ivolga E.G., Manilov Yu.F., Romanovsky N.P., Gurovich V.G. Deep features of the placement of gold mineralization in the Ulya depression. *Russian journal of pacific geology*, 2017, vol. 17, no. 4, pp. 120–136. In Rus.
 26. Kopylov M.I., Pustovoitova I.V., Skryabin I.N. Prospects for the discovery of gold deposits in alunites in the south of the Far East region. *Proceedings of the Siberian Branch of the Russian Academy of Natural Sciences. Geology, prospecting and exploration of ore deposits*, 2011, no. 2, pp. 84–98. In Rus.

Received: 4 June 2022.

Information about the authors

Dmitry V. Lesnyak, postgraduate student, National Research Tomsk Polytechnic University; director of Geological Exploration Projects Directorate, JSC Polymetal Management, Khabarovsk branch.

Yury S. Ananyev, Dr. Sc., associate professor, National Research Tomsk Polytechnic University.

Roman Yu. Gavrilov, Cand. Sc., associate professor, National Research Tomsk Polytechnic University.

УДК 622.775

МОДЕЛИРОВАНИЕ ДВИЖЕНИЯ ЖИДКОСТЕЙ В ПРОЦЕССЕ ЭКСПЛУАТАЦИИ СКВАЖИННОГО ФОНДА НА МЕСТОРОЖДЕНИЯХ УРАНА, ОТРАБАТЫВАЕМЫХ МЕТОДОМ ПСВ

Бейсекеев Ермак Шортанбаевич^{1,2},
yermek_f81@mail.ru

Язиков Егор Григорьевич¹,
yazikoveg@tpu.ru

¹ Национальный исследовательский Томский политехнический университет,
Россия, 634050, г. Томск, пр. Ленина, 30.

² АО «НАК Казатомпром»,
Республика Казахстан, г. Нур-Султан, ул. Сыганак, 17/12.

Актуальность исследования обусловлена возможностью расширения использования данных индукционного каротажа для пространственного моделирования растекания технологических растворов на гидрогенных месторождениях урана. Регрессионное моделирование опирается на зависимость изменения геоэлектрических свойств пород от изменения их гидрофизических свойств в процессе выщелачивания и может быть использовано для повышения эффективности контроля и прогнозирования процесса выщелачивания.

Цель: обосновать достоверность модели движения технологических растворов на месторождениях пластово-инфильтрационного типа, разработанной на основе метода наименьших квадратов, с использованием в качестве входных данных результатов индукционного каротажа.

Объекты: данные индукционного каротажа по скважинам блока X месторождения Моинкум Чу-Сарысуйской урановорудной провинции.

Методы: индукционное каротажное зондирование, корреляционный и регрессионный анализ с использованием программных сред Excel, Statistica, Curve Editor, Matlab и LibreCad. Аппаратное обеспечение индукционного каротажного зондирования представлено однозондовым трехкатушечным прибором ПИК-50 и ИК-42М.

Результаты. На примере блока месторождения Моинкум Чу-Сарысуйской урановорудной провинции установлена эффективность мониторинга движения технологических растворов посредством данных ИК с использованием регрессионной модели методом наименьших квадратов. Доказана целесообразность применения данных индукционного каротажа для моделирования растекания технологических растворов на примере пластово-инфильтрационного месторождения Моинкум Чу-Сарысуйской урановорудной провинции, и сформирована модель растекания растворов с использованием предложенного алгоритма применения регрессионного моделирования с применением метода наименьших квадратов. Рассчитанные показатели адекватности регрессионной модели, а именно: коэффициент детерминации, дисперсии МНК-оценок, коэффициент Стьюдента, F-критерий, доказывают надежность и достоверность построенной модели изменения эффективной мощности блока в зависимости от изменения электропроводности.

Ключевые слова:

Мониторинг добычи урана, контроль движения растворов при добыче урана, добыча урана на гидрогенных месторождениях, добыча урана методом ПСВ, отработка урановых месторождений пластово-инфильтрационного типа, доразведка урановых месторождений.

Введение

На современном этапе добычи урана преобладают месторождения пластово-инфильтрационного типа, для которых наиболее распространенным и эффективным способом отработки месторождений является подземное скважинное выщелачивание (ПСВ). Данный способ справедливо считается наиболее эффективным с точки зрения извлечения урана и щадящим по отношению к окружающей экосистеме. Но, как и любые другие геотехнические решения, способ подземного скважинного выщелачивания не лишен определенных недостатков. В частности, технологические условия реализации данного метода предполагают отработку урановых руд через систему скважин, по которым происходит подача выщелачивающих растворов и вывод на поверхность продуктивных растворов. Это предполагает ведение мониторинга за растеканием выщелачивающих растворов, который

связан с ограниченностью контроля над движением технологического раствора, сложностью непосредственного наблюдения за ходом и результатами технологического процесса, сложностью забора керна, что обусловлено особенностями подземного скважинного выщелачивания, предполагающего непрерывность технологического цикла подачи и вывода технологических растворов. На современном этапе промышленное освоение рудоносных горизонтов посредством подземного скважинного выщелачивания, как и любое ресурсоемкое производство, в процессе мониторинга опирается, с одной стороны, на передовые геофизические методы исследования скважин, с другой – на совокупность программного и методологического обеспечения аналитической и прогностической работы с полученными данными.

Соответственно, в последнее время возрастает интерес к математическим методам моделирования и

прогнозирования движения растворов, а также возможностям применения данных геофизических исследований скважин для их реализации [1, 2].

Индукционное каротажное зондирование выступает в числе достаточно эффективных методов исследования скважинного пространства, пересекающего рудоносную толщу. В силу разности в кажущейся удельной электропроводности между насыщенным раствором породой и породой, не охваченной выщелачиванием, индукционный метод, на наш взгляд, выступает перспективным с точки зрения мониторинга движения технологических растворов и прогнозирования их растекания. Однако при всей надежности и достоверности метода в условиях отработки урановорудных залежей подземным скважинным выщелачиванием его эффективность в качестве средства мониторинга во многом определена выбором методологических основ дальнейшей аналитической работы с полученными каротажными данными.

При учете активного процесса внедрения информационных геотехнических систем моделирования возрастает потребность в выборе оптимальной исходной математической модели, описывающей базовые физические и химические закономерности, определяющие движение растворов. Кроме того, эффективность моделирования обеспечивается не только выбором математического аппарата, но и выбором исходных данных об особенностях отрабатываемого участка, что обеспечивает достоверность результатов и существенно снижает эксплуатационные затраты в процессе разработки.

В рамках представленного исследования выдвинута гипотеза о целесообразности применения индукционного каротажа как основополагающего источника данных для мониторинга растекания технологических растворов с применением регрессионной модели на основе метода наименьших квадратов в условиях отработки урановых месторождений подземным скважинным выщелачиванием.

В ходе проверки выдвинутой гипотезы были реализованы следующие этапы исследования:

- 1) обоснована целесообразность применения модели на основе метода наименьших квадратов для моделирования движения технологических растворов;
- 2) разработана факторная регрессионная модель, предназначенная для мониторинга и прогнозирования растекания растворов в зависимости от проницаемости пород по данным индукционного каротажа;
- 3) представлены результаты апробации модели на примере месторождения Моинкум Чу-Сарысуйской урановорудной провинции.

Методология исследования

Методы исследования включают математические методы: метод наименьших квадратов (МНК), факторный анализ, и геофизические методы: индукционное каротажное зондирование и другие геофизические методы исследования, использованные для построения модели. МНК реализован как частный метод регрессионного многофакторного линейного моделирования [3].

Данный математический конструкт для моделирования выбран для демонстрации возможностей использования данных по индукционному каротажу и отвечает основным критериям эффективности:

- не требователен к программному обеспечению;
- обладает достаточным уровнем надежности;
- существует возможность проверки адекватности модели;
- позволяет оценить качественные показатели взаимосвязи геофизических, литологических, гидрологических и прочих факторов, оказывающих влияние на ход и результат выщелачивания;
- подходит как для мониторинга, так и для прогнозирования движения технологических растворов;
- позволяет осуществлять оценку и прогнозирование в условиях недостаточности данных по скважинному фонду, что достаточно частое явление, обусловленное спецификой непрерывного цикла добычи в условиях разработки урановорудных месторождений [4, 5].

Для моделирования использовались результаты индукционного каротажа по выбранным скважинам на блоке X месторождения Моинкум. Критерием выбора послужило наличие информации по применению индукционного каротажа на различных временных интервалах, то есть достаточность исходных данных, требуемая для составления массива данных для моделирования. В целом исследованием было охвачено 9 скважин. При исследовании принято допущение, что откачные и закачные скважины равнодебитные, так как в условиях гексагональной схемы расположения скважин данное допущение является классическим.

Инструментальное обеспечение обработки данных составили программные среды Excel, Statistica, Curve Editor, Matlab и LibreCad. Наличие входных данных индукционного каротажного зондирования в рамках исследования обеспечено однозондовым трехкатушечным прибором ИК-42М с размером между приемной и излучающей катушкой 0,5 м и прибором ПИК-50 с рабочей частотой 150 кГц и разрешающей способностью в пределах 0–2000 мСим/м. Каротажные исследования получены с использованием цифровой каротажной станции «Вулкан-3» [6].

Результаты исследования

Объект исследования расположен в пределах Чу-Сарысуйской урановорудной провинции и характеризуется залеганием рудоносных тел в толще кайнозойско-мезозойского осадконакопления (рис. 1).

В то же время само месторождение Моинкум расположено в зоне малоамплитудных поднятий допалеозой-ордовикских геосинклинальных и девонских орогенных комплексных породообразований.

Имеются данные по результатам двух мониторингов по индукционному каротажу в комплексе с другими геофизическими исследованиями скважин, что позволяет сформировать входные данные для построения регрессионной модели на основании изменений в результатах первого и последнего мониторинга [8, 9].

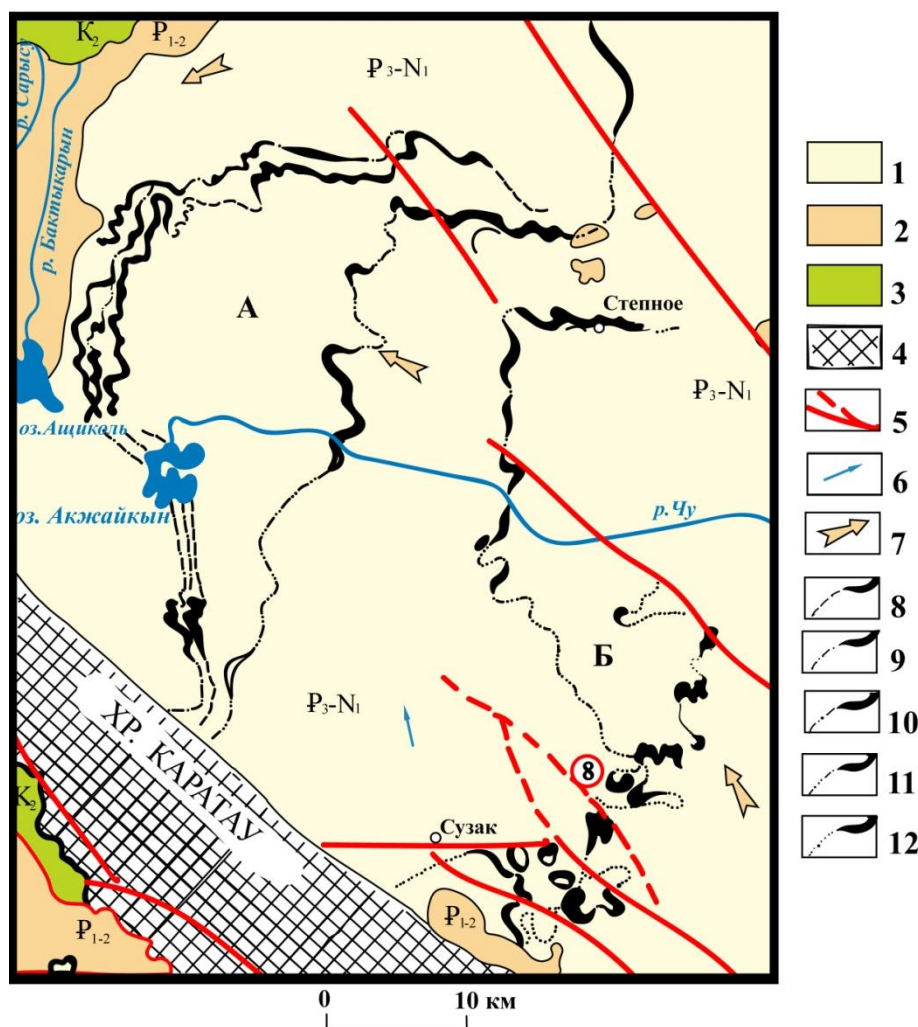


Рис. 1. Геологическая карта Чу-Сарысуйской урановорудной провинции и местоположение месторождения Моинкум [7]. Регионы: А) Инкай-Мынкудукский, Б) Уванас-Канжуганский; отложения: 1) глины, алевролиты пески олигоцен-миоцена, 2) глины, пески палеоцен-эоцена, 3) пески, глины, алевролиты, гравийники верхнего мела; 4) домезозойский фундамент; 5) разрывные нарушения; направления движения пластовых вод в отложениях: 6) эоцена, 7) верхнего мела; границы выклинивания зон пластового окисления: 8) турон (мынкудукский горизонт), 9) нижний сенон (инкудукский горизонт), 10) верхний сенон (жалпакский горизонт), 11) верхний палеоцен, 12) нижний эоцен; @ – Месторождение Моинкум

Fig. 1. Geological map of the Chu-Sarysu uranium ore province and the location of the Moinkum deposit [7]. Regions: A) Inkai-Mynkuduk, B) Uvanas-Kanzhugan; deposits: 1) clays, siltstones, sands of the Oligocene–Miocene; 2) clays, sands of the Paleocene–Eocene; 3) sands, clays, siltstones, Upper Cretaceous gravels; 4) pre-Mesozoic basement; 5) discontinuous violations; directions of formation water movement in sediments: 6) Eocene, 7) Upper Cretaceous; boundaries of outcrop zones of formation oxidation: 8) Turonian (Mynkuduk Horizon), 9) Lower Senon (Inkuduk Horizon), 10) Upper Senon (Zhalpak Horizon), 11) Upper Paleocene, 12) Lower Eocene; @ Moinkum deposit

При выборе параметров моделирования исходили из следующего:

- 1) выбор входных данных для моделирования;
- 2) выбор математического аппарата моделирования;
- 3) проведение сопоставительной оценки и анализа достоверности модели.

Вне зависимости от того, автоматизирована ли система моделирования, входными данными для построения модели и весомым фактором обеспечения ее надежности и достоверности служат данные геофизических исследований скважин. В условиях отработки пластово-инфильтрационных месторождений перечень и частота комплекса геофизических исследований скважин может варьировать в зависимости от ис-

ходных петрофизикохимических, литологических и морфологических особенностей участка.

Так, пластово-инфильтрационные месторождения, рудоносные толщи которых сложены песчаниковыми осадочными отложениями, проявляют существенное разнообразие по своим литолого-фациальным характеристикам в силу поэтапного влияния на осадконакопление гидрологических, климатических факторов, в том числе на стадиях палеогенеза [10].

Однако в числе методов геофизического исследования отмечаются электромагнитные методы, зарекомендовавшие себя как высоко информативные, в частности метод индукционного каротажа. Более того, в отношении данных о строении скважин и движении

технологических растворов индукционный каротаж отличается высокой степенью информативности и достоверности. Соответственно, при обеспечении достаточности данных и их достоверности в отношении строения рудного тела и рудовмещающих толщ существует гипотетическая возможность построения математического алгоритма, облегчающего процесс моделирования и не требующего дополнительного дорогостоящего и сложного компонентного программного обеспечения, кадровых и временных затрат.

Поскольку сущность технологического процесса отработки месторождений подземным скважинным выщелачиванием и движение растворов можно описать с точки зрения факторов, подчиненных логике физических законов и закономерностей, мы полагаем, что факторный анализ проявляет высокую степень достоверности, поскольку наличие непреложных закономерностей обеспечивает и наличие устойчивых корреляционных связей. Это в свою очередь предполагает достаточную универсальность факторной модели [11, 12].

Кроме того, наличие закономерностей и корреляционных взаимосвязей процесса выщелачивания предполагает, что процесс является динамическим и закономерности и их последствия имеют статистические параметры, обусловленные факторами взаимовлияния петрофизических и фильтрационных свойств [13].

В числе математического описания возможных условий и следствий процесса с данными параметрами можно выделить МНК. Данный метод является частным методом реализации регрессионного анализа – весьма недооцененного метода прогнозирования процессов, характеризующихся наличием взаимосвязей известных и неизвестных параметров. Регрессионный анализ в последние десятилетия хорошо зарекомендовал себя как методологическая основа для прогнозирования в рудном деле. В частности, такие методы, как нейросети, DATA-mining, дерево решений, применяемые для анализа и оптимизации в рудном деле, реализуются методом регрессионной статистики с применением МНК [14, 15].

Суть МНК заключается в решении системы линейных уравнений путем нахождения коэффициентов линейной зависимости. Наименьшая сумма квадратов отклонений экспериментальных данных от заданных линейных значений при данных значениях переменных характеризует искомые значения для моделирования [16].

Моделирование процесса выщелачивания и, в частности, движения жидкостей может быть использовано для описания и прогнозирования различных аспектов технологического процесса и его результативности как система взаимосвязанных процессов, описываемых линейными и нелинейными уравнениями регрессии [17]. Наибольший исследовательский интерес представляет возможность аппроксимации моделей линейной зависимости МНК с последующим интерполированием и экстраполированием с целью анализа и оптимизации процесса выщелачивания. Также весьма важно, что регрессионное моделирова-

ние позволяет рассматривать процесс выщелачивания как стационарный и нестационарный, что важно, поскольку ряд рассчитываемых процессов (например, изменения проницаемости пород на границе закисления) протекает, с одной стороны, крайне неравномерно, и с другой – выражается малыми величинами. При этом регрессионное моделирование может быть полезно и в том случае, если имеются разрозненные либо недостаточные данные по керновым пробам, что в целом характерно для процесса отработки урановорудных месторождений. Отсутствие или малая репрезентативности информации по керну может быть компенсирована коррелированием с данными геофизических исследований, а также при помощи выявления закономерностей взаимосвязи между электрофациальной и литологической характеристикой окколескважинного пространства.

В условиях пластово-инфильтрационных месторождений с высокой проницаемостью и с учетом проблематики проведения контроля движения растворов в условиях подземного скважинного выщелачивания сернокислым раствором риск техногенного образования регенерируемых урановых залежей существенно высок [18]. Это обуславливает достаточно перспективный научно-прикладной характер проблемы мониторинга растекания технологических растворов с использованием методов математического моделирования.

Ниже представлен опыт применения аппроксимированной по МНК регрессионной модели миграции технологических (обогащенных) растворов.

Для построения модели растекания растворов решающее значение имеет скорость фильтрации пород, позволяющая выявить область растекания и отследить приблизительный темп вторичного отложения в процессе миграции. В прямой зависимости от данного показателя находится степень насыщения пород технологическим раствором [19]. В то же время диапазон приблизительных значений коэффициента фильтрации определяется петрофизическими свойствами, различными для пород, слагающих отработываемую толщу [20].

На диаграмме иллюстрируется зависимость скорости фильтрации от проницаемости и удельной кажущейся электропроводности по данным технологического блока X месторождения Моинкум (рис. 2).

Рассматриваемая модель демонстрирует, что в условиях инфильтрационного режима урановых месторождений, отработываемых подземным скважинным выщелачиванием, метод индукционного каротажа достаточно достоверен в качестве метода мониторинга, поскольку определяется прямой зависимостью между изменением петрофизических свойств в ходе отработки месторождения и характером растекания растворов [21–23]. Следовательно, эффективна возможность применения данных индукционного каротажа в качестве базы для моделирования движения технологических растворов на урановых месторождениях пластово-инфильтрационного типа, для оптимизации процесса моделирования посредством регрессионного анализа. Основным преимуществом

данных геофизических исследований в качестве исходных для моделирования является учет особенностей движения растворов непосредственно в скважине, в то время как большинство программных про-

дуктов для моделирования опираются на лабораторные данные, которые могут повлечь погрешность применительно к параметрам растекания растворов в условиях среды скважинного пространства [24].

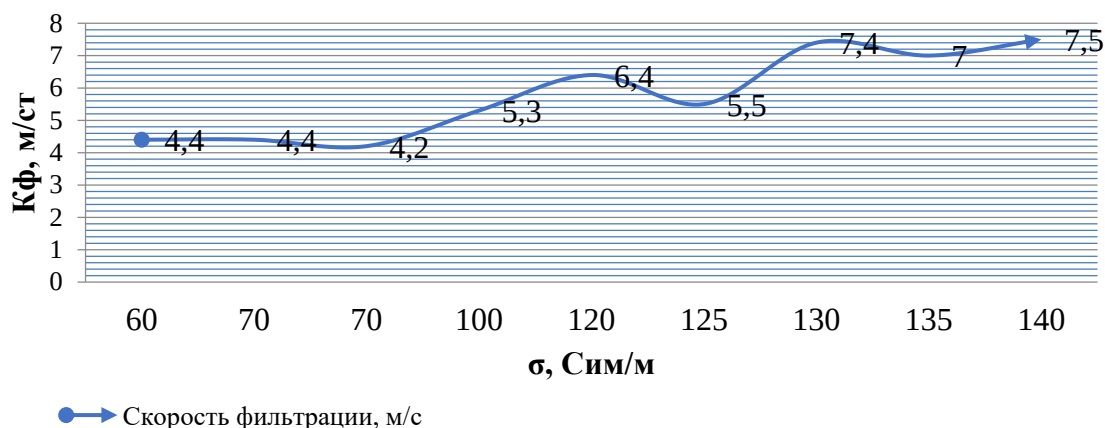


Рис. 2. Кривая зависимости скорости фильтрации, коэффициента фильтрации и кажущейся удельной электропроводности

Fig. 2. Curve of dependence of filtration rate, filtration coefficient and conductivity

В научной литературе описывается возможность реализации регрессионной модели с помощью метода наименьших квадратов, который характеризуется как возможность определения координат объекта по минимальному набору известных параметров [25]. Как уже было отмечено ранее, подбор аппроксимирующих методов и предварительная оценка тесноты зависимости выбранных для моделирования данных позволяет сгладить недостаточность и неполноту данных, а также косвенно определить степень их достоверности по сходимости результатов и соответствию взаимосвязей физическим законам. В нашем случае, с учетом вышеназванных зависимостей, известным параметром выступают изменения данных по индукционному каротажу на интервале закисления, до и после. Причем искомым значением являются параметры растекания, выраженные изменением эффективной мощности блока ($M_{эф}$). Ниже приведены данные для математического прогнозирования растекания раствора по данным блока X [9, 26].

Таблица 1. Данные для моделирования растекания раствора блока X месторождения Моинкум

Table 1. Modeling data of solution spreading for block X of the Moinkum deposit

№ скважины Borehole number	Отклонение средней электропроводности, Сим/м Deviation of median conductivity, Sim/m	Отклонение эффективной мощности блока ($M_{эф}$), м Deviation of unit effective power (P_{ef}), m
1	21,13	6,5
2	21,3	6,6
3	20,61	6,7
4	18,64	6,5
5	17,58	6,7
6	16,57	6,6
7	15,76	6,8
8	15,3	10,1
9	13,64	6,8

Как видно по данным, представленным в табл. 1, отклонения эффективной мощности блока сопровождаются пропорциональным и довольно видимым изменением кажущейся удельной электропроводности пород, охваченных выщелачиванием. Это позволило получить эмпирические данные для проведения моделирования.

Произведенное моделирование характеризуется как эксперимент, направленный на выявление закономерностей и возможностей контроля растекания растворов в пределах рудовмещающей толщи по данным индукционного каротажа.

В общем виде уравнение регрессии, используемое в соответствии с алгоритмом пассивного эксперимента, представлено следующим образом (1):

$$y = \varphi(x_1, x_2, \dots, x_n, b_1, b_2, \dots, b_n). \quad (1)$$

В общем виде уравнение линейной регрессии является оценочным и, соответственно, имеет следующий вид (2):

$$y = bx + a + \varepsilon, \quad (2)$$

где a и b – оценки параметров α и β регрессионной модели; ε – случайная ошибка.

Для оценки параметров α и β использован МНК, позволивший оценить наиболее точно состоятельность выдвинутой гипотезы (наличие линейной связи параметров модели) [27, 28].

Для этого были определены предпосылки относительно случайного члена (ε) и независимой переменной (x) по формуле (3):

$$S = \sum (y_i - y_i^*)^2 \rightarrow \min. \quad (3)$$

Система нормальных уравнений по МНК выглядит следующим образом (4):

$$\begin{aligned} a \cdot n + b \cdot \sum x &= \sum y, \\ a \cdot \sum x + b \cdot \sum x^2 &= \sum xy. \end{aligned} \quad (4)$$

В соответствии с входными данными система имеет вид (5):

$$\begin{aligned} 12a + 160,53 \cdot b &= 63,3, \\ 160,53 \cdot a + 2924,527 \cdot b &= 1118,77. \end{aligned} \quad (5)$$

Решение системы уравнений методом алгебраического сложения позволило обнаружить, что полученные эмпирические оценочные коэффициенты регрессии имеют следующие значения: $a=0,5927$; $b=0,35$.

Таким образом, получено уравнение регрессии вида (6):

$$y = 0,35x + 0,5927. \quad (6)$$

Ниже приведен график зависимости изменения эффективной мощности блока ($M_{эф}$) и удельной электропроводности (σ) по данным индукционного каротажа (рис. 3).

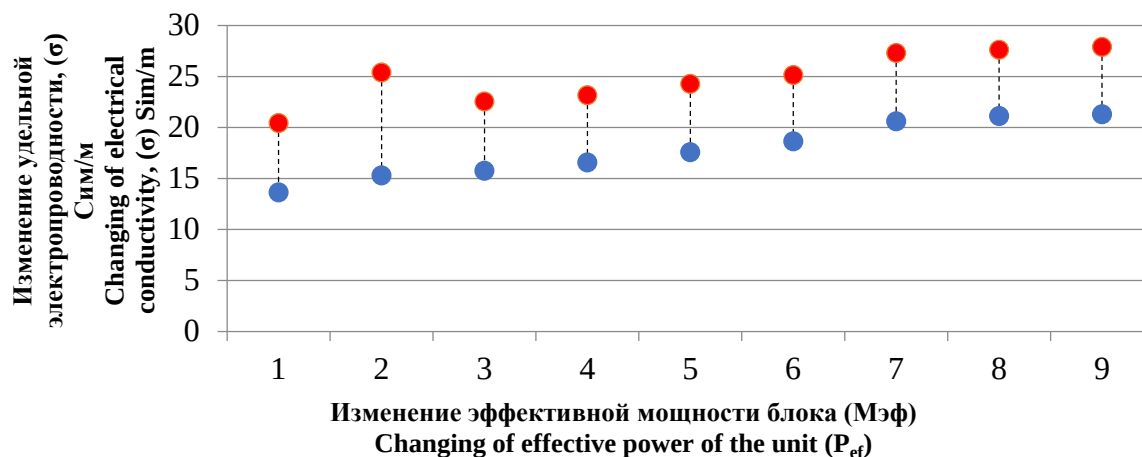


Рис. 3. Визуализация зависимости между изменением эффективной мощности блока и изменением удельной электропроводности

Fig. 3. Visualization of dependence between the change in the unit effective power and the change in electrical conductivity

Таблица 2. Параметры полученного уравнения регрессии

Table 2. Parameters of the resulting regression equation

Наименование параметра Parameter name	Значение параметра Parameter value
Выборочные средние/Sample means	
x	13,378
y	5,275
xy	93,231
Выборочные дисперсии/Sample variances	
S2(x)	64,75
S2(y)	10,17
Среднеквадратические отклонения/Standard deviations	
S(x)	8,047
S(y)	3,188
Ковариация/Covariance	22,66
Коэффициент корреляции Correlation coefficient	0,883
Коэффициент детерминации Determination coefficient	0,8
Стандартная ошибка регрессии Regression standard error	1,6
Критерий Стьюдента Student's criterion	5,96 > 2,634
Доверительные интервалы Confidence intervals	95 %
F-критерий/F-criterion	95,1949 > 4,96

Вышеприведенный график демонстрирует наличие прямой и достаточно сильной взаимосвязи между изменением эффективной мощности блока и изменением удельной электропроводности, что обусловлено изменением, прежде всего, фильтрационных свойств пород под воздействием раствора.

В условиях однородной и хорошо проницаемой рудоносной толщи растекание раствора может способствовать вторичному техногенному вертикально-

му рудогенезу, что снижает эффективность выщелачивания и увеличивает затраты на доразведку [29, 30]. Прогнозирование возможностей растекания породы по данным индукционного каротажа позволяет, сопоставив имеющиеся данные по технологическому блоку, данные по разведочным и наблюдательным скважинам, сформировать прогноз по возможному диапазону глубин растекания раствора.

Для оценки достоверности результатов и надежности модели произведен расчет и анализ параметров уравнения регрессии (табл. 2).

Вышеназванные параметры модели выявляют следующее:

1. Параметры оценки по МНК указывают на статистическую надежность модели.
2. Статистические параметры модели характеризуют полученные данные по модели как статистически значимые.
3. Найденный коэффициент корреляции указывает на наличие прямой и сильной зависимости между изменением данных по кажущейся удельной электропроводности, по индукционному каротажу и изменению эффективной мощности блока ($M_{эф}$).
4. Коэффициент детерминации указывает на то, что в 80 % случаев изменение эффективной мощности блока ($M_{эф}$) может быть описано изменением удельной электропроводности;
5. На основании построенной регрессионной модели можно сделать вывод, что изменение показателя кажущейся удельной электропроводности на 1 Сим/м свидетельствует о пропорциональном увеличении эффективной мощности блока ($M_{эф}$) на 0,35 м.

Исходя из полученных данных о наличии прямой зависимости удельной электропроводности от изменения свойств породы (а именно, проницаемости), была уточнена прогнозная модель растекания технологического раствора на технологическом блоке X месторождения Моинкум.

Ниже представлены исходные данные по технологическому блоку и рассчитанные на их основании параметры растекания раствора по принятому в компании АО «Казатомпром» расчету растекания в пределах двух метров вверх и шести метров вниз (по предельным значениям). Данные, полученные с применением стандартного используемого в АО «НАК Казатомпром» метода прогнозирования растекания раствора, приведены в табл. 3.

Таблица 3. Исходные параметры для расчета растекания технологического раствора

Table 3. Input parameters for calculating the spreading of the technological solution

п/п скважины. Borehole no.	$M_{\text{эф}}$ исходная, м $P_{\text{эф}}$ initial, m	Длина фильтра по текущим данным индукционного каротажа Filter length according to current induction logging data	σ верхней границы σ of top border	σ нижней границы σ of bottom border	Глубина верхней границы Top border depth	Глубина нижней границы Bottom border depth
1	11,222	6,4	25	70	175,4	184,7
2	13,575	7,9	20	100	183,2	196,5
3	11,946	6,8	20	125	185,5	194,1
4	10,86	6,4	20	120	191,2	203,3
5	10,86	6,3	20	70	184,7	196,7
6	12,127	7	30	60	184,4	196,9
7	11,222	6,9	30	140	184,3	196,5
8	10,86	6,3	20	130	192,8	205,1
9	10,86	6,5	30	135	185,9	198,4

Прогнозирование стандартным методом не учитывает различия в фильтрационных свойствах породы, которые оказывают влияние как на электрофациальную картину, так и на динамику изменения нижележащих прослоев под воздействием гидродинамического режима работы скважины [31, 32]. Однако данный метод прост и универсален, так как базируется на усредненных эмпирических данных, чем можно объяснить его широкое распространение.

Однако разработанная методика позволяет учитывать исходные литологические и петрофизические особенности, а при необходимости может быть доработана и для учета других характеристик исходных условий отработки и технологического процесса.

Ниже представлены параметры растекания технологического раствора, рассчитанные на основании данных по индукционному каротажу с использованием полученных в ходе моделирования закономерностей изменения кажущейся удельной электропроводности от изменения проницаемости (табл. 4).

Полученные данные развернутого анализа совпадают с 80 % вероятностью с данными разработанной регрессионной модели и в целом коррелируют с ней,

что свидетельствует о достоверности найденной путем регрессионного анализа взаимосвязи. По сути представленные выше данные являются развернутой демонстрацией представленных в модели взаимосвязей в разрезе скважинного фонда технологического блока X месторождения Моинкум. В условиях других месторождений достоверность может варьироваться, но несущественно, поскольку разработанная модель опирается на физически обоснованные взаимосвязи между свойствами и процессами отработки урановорудной залежи.

Таблица 4. Расчитанные параметры растекания технологического раствора на основании выявленной регрессионной зависимости

Table 4. Regression dependence based output parameters of the spreading of technological solution

п/п скв./Borehole. No	σ после закисления, Сим/м/ σ after leaching, Sim/m		$\Delta\sigma$, Сим/м (Sim/m)		Δ , м (m)		Глубина растекания, м Spreading depth, m		$M_{\text{эф}}$ с уточнением, м $P_{\text{эф}}$ with clarification, m
	верхней границы top border	нижней границы bottom border	верхней границы top border	нижней границы bottom border	верхней границы top border	нижней границы bottom border	вверх up	вниз down	
1	35	85	10	15	3,5	5,25	171,9	189,95	18,05
2	30	110	10	10	3,5	3,5	179,7	200	20,3
3	35	145	15	20	5,25	7	180,25	201,1	20,85
4	30	130	10	10	3,5	3,5	187,7	206,8	19,1
5	30	90	10	20	3,5	7	181,2	203,7	22,5
6	35	70	5	10	1,75	3,5	182,65	200,4	17,75
7	35	150	5	10	1,75	3,5	182,55	200	17,45
8	30	145	10	15	3,5	5,25	189,3	210,35	21,05
9	40	150	10	15	3,5	5,25	182,4	203,65	21,25

На основании полученных в ходе моделирования данных в LibreCad была построена карта прогноза растекания растворов на технологическом блоке X месторождения Моинкум. Как показывает практика, от правильности выбранного математического аппарата, описывающего взаимосвязи между условиями режима выщелачивания, зависит точность оценки масштабов растекания технологического раствора, что, в свою очередь, дает возможность управлять оптимизацией процесса добычи [33]. С учетом однородной высокопроницаемой среды месторождения Моинкум модельные данные позволяют сформировать прогноз по возможным интервалам вторичного оруденения вследствие массопереноса. На схеме видно, что зона растекания технологического раствора вниз достаточно обширна, что дает основания, в купе с данными о высокой проницаемости пород, граничащих с зоной закисления, предположить углубление области растекания вниз (рис. 3).

На рис. 3 пунктирной линией отмечена зона растекания раствора согласно произведенным расчетам регрессионной модели. Данная карта иллюстрирует величину отклонения рассчитанной изначально мощности блока и величину прогнозируемого растекания

раствора в процессе активной эксплуатации. Ниже представлены отклонения по $M_{эф}$, рассчитанной на

основе результатов прогнозной модели, и $M_{эф}$, рассчитанной стандартным способом (табл. 5).

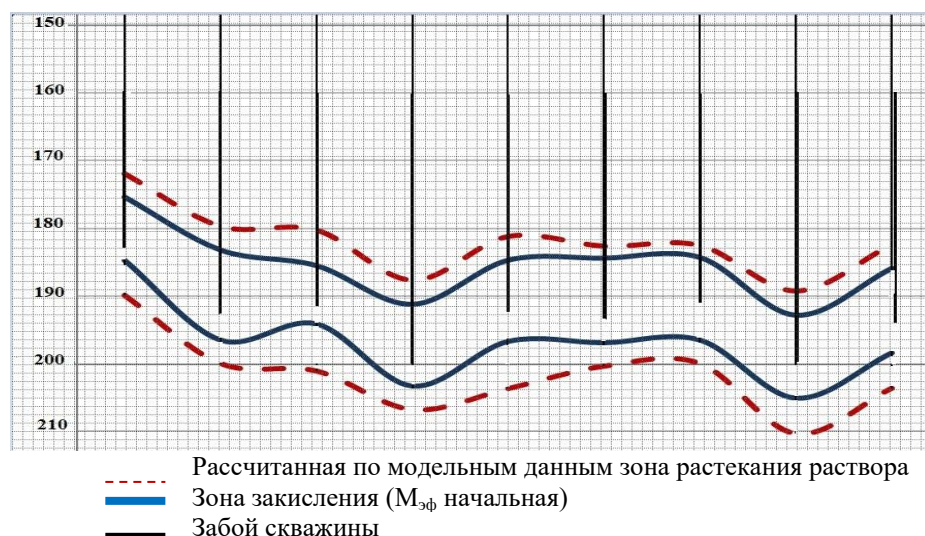


Рис. 3. Схема растекания растворов на технологическом блоке X профиля XX месторождения Моинкум

Fig. 3. Map of technological solutions spreading on technological unit X of the XX profile of the Moinkum uranium deposit

Таблица 5. Сопоставление модельных и фактических отклонений $M_{эф}$

Table 5. Comparison of model and actual deviations of effective power of unit

п/п скв. Borehole no.	$\Delta M_{эф}, м / \Delta P_{эф}, м$	
	по модели according to the model	по данным индукционного каротажа according to induction logging
1	6,828	6,5
2	6,725	6,6
3	8,904	6,7
4	8,24	6,5
5	11,64	6,7
6	5,623	6,6
7	6,228	6,8
8	10,19	10,1
9	10,39	6,8

Данные, выступавшие входными для реализации моделирования по отклонениям $M_{эф}$, получены в ходе индукционного каротажного зондирования до и после закисления. Сопоставление с данными, полученными на основании модельных взаимосвязей, демонстрирует достаточно точные значения модели, что доказывает эффективность предложенного алгоритма прогнозирования растекания растворов в рудовмещающей толще.

Следует отметить, что области с высоким значением кажущейся удельной электропроводности с глубиной интервала свыше 12 м, выявленные в ходе моделирования, являются точками потенциального массопереноса и требуют особо тщательного контроля. В условиях однородного и высокопроницаемого текстурно-структурного типа, как в продемонстрированной выше рудоносной толще месторождения Моинкум, особенный риск представляет залегание рудоносного тела над разнородными увлажненными и обводненными песками и илисто-песчаными отложениями. С одной стороны, такая литографическая осо-

бенность может способствовать вымыванию части пород раствором, что усложняет дальнейшую выработку, но достаточно часто встречается на месторождениях пластово-инфильтрационного типа. С другой стороны, предложенная модель позволяет своевременно обнаружить участки с риском массопереноса и оптимизировать режим выщелачивания для минимизации эксплуатационных потерь и экологических рисков.

Данные отклонения позволят скорректировать как рабочий режим выщелачивания, так и учетные данные по промышленно значимым остаточным мощностям, а также спрогнозировать зоны техногенного рудогенеза.

Таким образом, полученные эмпирические данные свидетельствуют о возможности использования индукционного каротажа как метода мониторинга и прогнозирования растекания растворов в условиях высокопроницаемых сред.

Заключение

Мониторинг движения технологических растворов является достаточно сложной с технической точки зрения задачей в условиях отработки урановорудных месторождений методом подземного скважинного выщелачивания. В то же время технологический процесс отработки ураноносных толщ на пластово-инфильтрационных месторождениях с высокой проницаемостью рудовмещающих и окорудных пород предполагает необходимость контроля изменения эффективной мощности блока вследствие возможности массопереноса под воздействием технологических растворов.

Данные индукционного каротажа в условиях высокопроницаемых сред на месторождениях, отрабатываемых методом подземного скважинного выщелачивания, являются высокоинформативным источни-

ком данных для статистического анализа и моделирования изменений эффективной мощности залежей.

В случае однородности по кажущейся электропроводности и относительной мощности рудовмещающей толщи, в силу изменения проницаемости и, соответственно, удельной электропроводности под воздействием технологического раствора, данные индукционного каротажа достаточно хорошо дифференцируют области, охваченные процессом выщелачивания.

С учетом полученных результатов использование регрессионного моделирования можно рекомендовать в качестве статистического метода прогнозирования увеличения эффективной мощности блока в результате подземного скважинного выщелачивания. Ниже представлен рекомендуемый алгоритм использования регрессионной модели для прогнозирования изменения эффективной мощности блока с использованием данных индукционного каротажа (рис. 4).

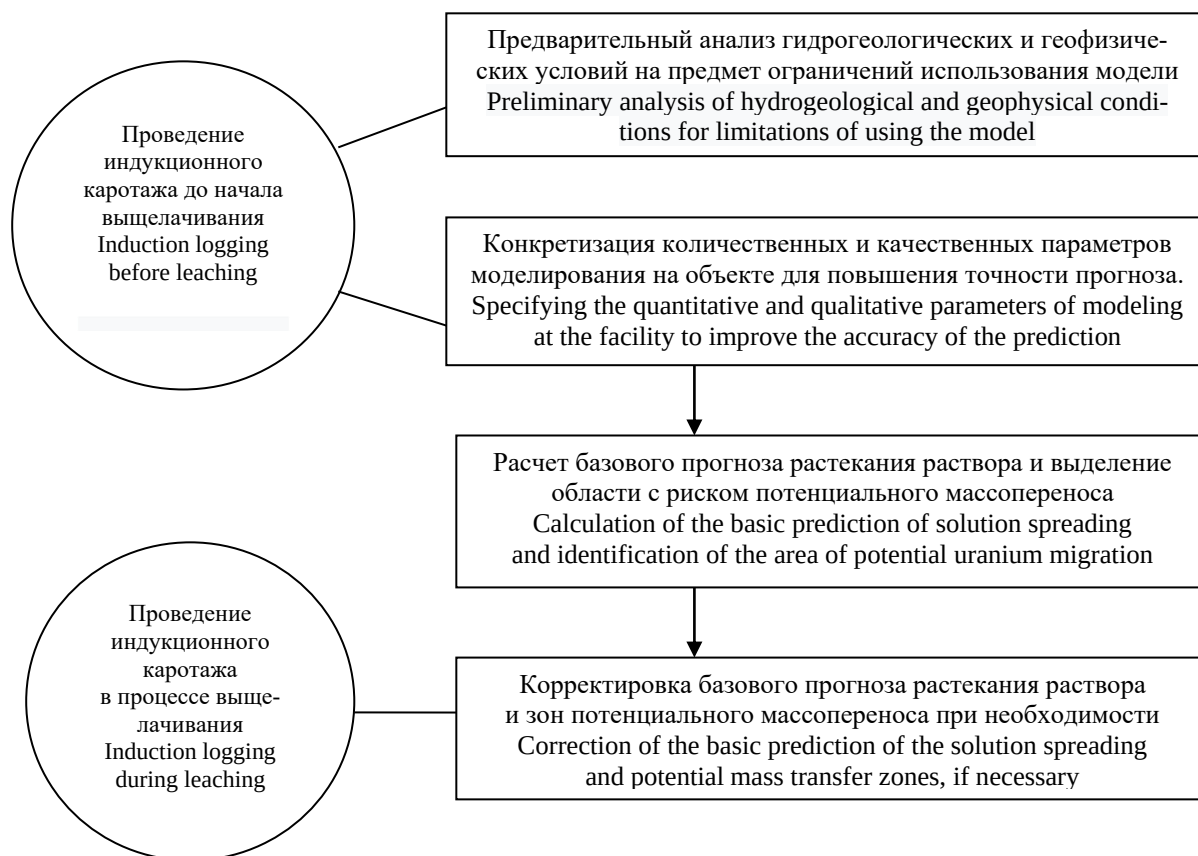


Рис. 4. Рекомендуемый алгоритм применения регрессионной модели пространственного распределения электропроводности для прогнозирования изменения мощности блока в результате выщелачивания

Fig. 4. Recommended algorithm for applying the regression model of spatial distribution of electrical conductivity to predict the changes of unit effective power due to leaching

Ограничением использования входных данных по изменениям электропроводности с использованием регрессионного анализа и оценки методом наименьших квадратов служит необходимость полноты и достаточности входных данных. Данное условие обеспечивается наличием регулярного применения индукционного каротажа, что повышает достоверность и точность контроля, позволяя оценивать динамику изменения эффективной мощности блока. Ограничением предложенного алгоритма прогнозирования растекания раствора выступают условия, препятствующие применению индукционного метода: значения давления, температур и электрического сопротивления пород, запредельные или граничные для используемой в каждом конкретном случае каротажной аппаратуры.

Предложенная модель и алгоритм ее использования не претендуют на всеохватывающий и инновационный характер. Но результаты апробации на месторождении Моинкум доказывают, что предложенная регрессионная модель с применением метода наименьших квадратов учитывает взаимосвязи факторов проницаемости и величины их пространственного изменения под действием технологического раствора, что расширяет возможности прогноза потенциальной зоны растекания в процессе выщелачивания.

Авторы выражают благодарность коллективу Горно-рудного департамента АО «НАК Казатомпром» за содействие в предоставлении материалов по геофизическим и лабораторным исследованиям скважинного фонда месторождения Моинкум.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Геолого-математическая модель пласта-коллектора ПГЗ ЖРО филиала «Северский» ФГУП «НО РАО» / В.В. Данилов, А.Д. Истомин, О.Н. Кокорев, М.Д. Носков, А.А. Чеглоков // Известия высших учебных заведений. Физика. – 2018. – Т. 61. – № 12-2. – С. 19–24.
2. Дутова Е.М., Кузванов К.И., Кузванов К.К. Гидродинамическое обоснование изменений гидрогеохимических условий Стржежского месторождения подземных вод (Томская область) // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2019. – Т. 330. – № 9. – С. 204–220.
3. Bassiouni Z. Geophysics and geosequestration. P. II. C. 11: Well Logging. – Cambridge: Cambridge University Press, 2019. – P. 181–194.
4. Fox Jr. J. Applied regression analysis and generalized linear models. – Thousand Oaks: SAGE Publishing, 2015. – 276 p.
5. Montgomery D.C., Vining G.G., Peck E.A. Introduction to linear regression analysis. – Hoboken: John Wiley & Sons Limited, 2019. – 328 p.
6. Технологический регламент проведения геофизических исследований. – Нур-Султан: АО «НАК Казатомпром», 2021. – 21 с.
7. Машковцев Г.А. Геолого-промышленные типы урановых месторождений стран СНГ – М.: Изд-во ВИМС, 2008. – 72 с.
8. Язиков Е.Г., Манабаева М.Т., Ефремов А.А. Отчет по глубинному геологическому картированию мезозойско-кайнозойского чехла Чу-Сарысуиской депрессии. – Алматы: Волковгеология, 2012. – 160 с.
9. Данные по комплексному геофизическому исследованию скважинного фонда тех. блока X месторождения Моинкум/ под ред. В.О. Курочкина. – Нур-Султан: АО НАК Казатомпром, 2019. – 76 с.
10. Characteristics of sandstone-type uranium mineralization in the Hangjinqi region of the northeastern Ordos Basin: clues from clay mineral studies / Q. Zhu, J. Li, G. Li, S. Wen, R. Yu, C. Tang, X. Feng, X. Liu // Ore Geology Reviews. – 2022. – № 11. – P. 215–277.
11. Ушева Н.В. Математическое моделирование химико-технологических процессов. – Томск: Изд-во Томского политехнического университета, 2014. – 135 с.
12. Прогноз литологического состава баженовской свиты на основе комплексной интерпретации геологических и геофизических материалов / М.А. Фомин., Е.А. Костырева, С.В. Рыжкова, Р.М. Саитов, И.С. Сотнич, В.Г. Эдер // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2022. – Т. 333. – № 1. – С. 154–167.
13. Hajian A., Styles P. Application of soft computing and intelligent methods in geophysics. – New York: Springer, 2018. – 543 p.
14. Chang X.-W., Kang P., Titley-Peloquin D. Error bounds for computed least squares estimators // Linear Algebra and its Applications. – 2020. – № 1. – P. 28–42.
15. Application of geo-statistics in calculation of a uranium deposit / B. Yun, Z.P. Fei, Z. Jing, K.W. Hao, L.X. Cui, C. Ke, S. Lu, L.L. Ying // E3S Web of Conferences № 206. – 2020. URL: <https://doi.org/10.1051/e3sconf/202020601005> (дата обращения 03.02.2022).
16. Темирханова Р., Сыздыкова М. Подсчет стволовых запасов урана по данным гамма-каротажа в программе GIK // Журнал «Промышленность Казахстана». – 2018. – № 6. – С. 79–80.
17. Алибаева К.А. Численное исследование путей повышения выработки месторождения при добыче минералов методом подземного выщелачивания: дис. РНД 6D060300 «Механика». – Алматы, 2013. – 79 с.
18. Sandstone-hosted uranium deposits as a possible source for critical elements: the Eureka mine case, Castell-Estado, Catalonia / M. Castillo-Oliver, J.C. Melgarejo, L. Torro, C. Villanova-de-Benavent, M. Campeny, Y. Diaz-Acha, S. Amores-Casals, J. Xu, J. Proenza, E. Tauler // Minerals. Mineral Geochemistry and Geochronology. Mineral Deposits of Critical Elements. – 2020. – № 1. – P. 2–34.
19. Борхович С.У., Пчелников И.В., Колесова С.Б. Подземная гидромеханика. – Ижевск: Изд-во Удмуртского Университета, 2017. – 176 с.
20. Физика пласта / Т.Б. Кочина, В.Н. Спиридонова, Н.Н. Родионцев, И.А. Круглов. – Нижневартовск: Изд-во Нижневартовского государственного университета, 2017. – 214 с.
21. Носков М.Д. Добыча урана методом скважинного подземного выщелачивания. – Северск: Изд-во СТИ НИЯУ МИФИ, 2010. – 83 с.
22. Анализ параметра пористости с привлечением элементов региональной петрофизики (электрофации) и типа глинистости / И.Б. Ратников, Р.С. Шульга, Е.А. Романов, С.Н. Бастиков // Свойства горных пород. Геомеханика и геофизика. Горные науки и технологии. – 2016. – № 2. – С. 50–62.
23. Подрезов Д.Р. Разработка и идентификация моделей оценки запасов рудника подземного скважинного выщелачивания урана: дис. ... канд. тех. наук. – М., 2021. – 175 с.
24. Alsadik B. Adjustment models in 3D geomatics and computational geophysics: with MATLAB examples. – London: Elsevier, 2019. – 415 p.
25. Дуйсембаев Д.О. Сводный отчет по опробованию и испытанию керновых проб тех. блока X, месторождения Моинкум. – Нур-Султан: Изд-во АО НАК Казатомпром, 2014. – 58 с.
26. Геологические колонки по скважинам в масштабе 1:500. – Нур-Султан: АО НАК Казатомпром, 2018. – 18 с.
27. Кисин Ю.К. О применении алгоритмов на основе метода наименьших квадратов и конечных формул в задачах обработки траекторных измерений // Вестник концерна ВКО Алмаз – Алтай. – 2016. – № 3. – С. 74–80.
28. Математическое моделирование пластовых систем: методическое указание / под ред. П.А. Ефимова. – Тюмень: Изд-во ОАО СургутНИПИнефть, 2016. – 211 с.
29. Fractal kinetic characteristics of hard-rock uranium leaching with sulfuric acid / S. Zeng, J. Li, K. Tan, S. Zhang // Royal Society Publishing. – 2018. – № 5. – P. 2–13. URL: <https://doi.org/10.1098/rsos.180403> (accessed 12.03.2022).
30. Edwards C. Underground milling of high-grade uranium ore // Proceedings of an International Symposium Organized by the International Atomic Energy Agency. – Vienna, 2009. – P. 151–160.
31. Bai H. Geological characteristics and control mechanism of uranium enrichment in coal-bearing strata in the Yili Basin, Northwest China – implications for resource development and environmental protection // American Chemical Society: ACS Omega. – 2022. – № 7. – P. 5453–5479.
32. Increasing of filtration characteristics of ore bodies in borehole uranium mining / B. Rakishev, Zh. Kenzhetayev, A. Shampikova, B. Toktaruly // Materials of II International Conference Essays of Mining Science and Practice. EDP Sciences. – 2020. URL: <https://doi.org/10.1051/e3sconf/202016800014> (дата обращения 13.03.2022).
33. Full-scale pore size distribution features of uranium-bearing sandstone in the northwest of Xinjiang, China / S. Zeng, H. Li, N. Zhang, B. Sun, J. Li, Y. Liu // Royal Society Publishing, 2021. – № 5. – P. 2–14. URL: <https://royalsocietypublishing.org/doi/10.1098/rsos.202036> (дата обращения 14.03.2022).

Поступила 04.06.2022 г.

Информация об авторах

Бейсекеев Е.Ш., аспирант Инженерной школы природных ресурсов Национального исследовательского Томского политехнического университета; АО «НАК Казатомпром».

Язиков Е.Г., доктор геолого-минералогических наук, профессор отделения геологии Инженерной школы природных ресурсов Национального исследовательского Томского политехнического университета.

UDC 622.775

SIMULATION OF LIQUID MOVEMENT WHILE WELL FUND OPERATION IN URANIUM DEPOSITS PRODUCED BY ISL METHOD

Yermek Sh. Beisekeyev^{1,2},
yermek_f-81@mail.ru

Egor G. Yazikov¹,
yazikoveg@tpu.ru

¹ National Research Tomsk Polytechnic University,
30, Lenin avenue, Tomsk, 634050, Russia.

² NAC Kazatomprom JSC,
17/12, Syganak street, Nur-Sultan, 010000, Republic of Kazakhstan.

The relevance of the study is caused by the possibility of expanding the use of induction logging data for spatial modeling of the spreading of technological solutions in hydrogenous uranium deposits. Regression modeling is based on the dependence of changes in the geoelectric properties of rocks on changes in their hydrophysical properties during leaching, and can be used to improve the efficiency of leaching monitoring and predicting.

Purpose: to substantiate the reliability of the model of the movement of process fluids in reservoir-infiltration type deposits, developed on the basis of the least squares method using the results of induction logging as input data.

Objects: induction logging data from wells of block X of the Moinkum deposit, Chu-Sarysu uranium ore province.

Methods: induction logging, correlation and regression analysis using Excel, Statistica, Curve Editor, Matlab and LibreCad software environments. The hardware for induction logging sounding is represented by a single probe three-coil instrument PIK-50 and IK-42M.

Results. The calculated indicators of the adequacy of the regression model for changing the electrical conductivity and effective power of the block, such as the coefficient of determination, the estimate of the variances of the least squares estimates, the Student's coefficient, the F-criterion, revealed its reliability and veracity. On the example of a block of the Moinkum deposit, Chu-Sarysu uranium ore province, the effectiveness of monitoring the movement of process solutions using IR data using a least squares regression model was established. The expediency of using induction logging data for modeling the spreading of technological solutions on the example of the reservoir-infiltration of the Moinkum deposit, Chu-Sarysu uranium ore province is proved and a model of solutions spreading is formed using the proposed algorithm for applying regression modeling using the least squares method.

Key words:

Monitoring of uranium mining, control of the movement of solutions during uranium mining, uranium mining on the hydrogen deposits, uranium mining by the ISR method, development of uranium deposits of the reservoir-infiltration type, additional exploration of uranium deposits.

The authors appreciate the assistance in provision of materials on geophysical and laboratory research of downhole fund of Moinkum deposit by the team of the Ore Mining Department of «NAC Kazatomprom».

REFERENCES

1. Danilov V.V., Istomin A.D., Kokorev O.N., Noskov M.D., Cheglakov A.A. Geological-mathematical model of the reservoir of the SGZ LRW of the branch «Seversky» FSUE «NO RAO». *Russian Physics Journal*, 2018, vol. 61, no. 12-2, pp. 19–24. In Rus.
2. Dutova E.M., Kuzevanov K.I., Kuzevanov K.K. Hydrodynamic substantiation of changes in the hydrogeochemical conditions of the Strezhevsky groundwater deposit (Tomsk region). *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2019, vol. 330, no. 9, pp. 204–220. In Rus.
3. Bassiouni Z. *Geophysics and geosequestration. P. II. C. 11: Well Logging*. Cambridge, Cambridge University Press, 2019. pp. 181–194.
4. Fox Jr. J. *Applied regression analysis and generalized linear models*. Thousand Oaks, SAGE Publishing, 2015. 276 p.
5. Montgomery D.C., Vining G.G., Peck E.A. *Introduction to linear regression analysis*. Hoboken, John Wiley & Sons Limited, 2019, 328 p.
6. *Tekhnologicheskii reglament provedeniya geofizicheskikh issledovaniy* [Technological regulations for geophysical research]. Nur-Sultan, NAC Kazatomprom JSC Publ., 2021. 21 p.
7. Mashkovtsev G.A. *Geologo-promyshlennye tipy uranovykh mestorozhdeniy stran SNG* [Geological and industrial types of uranium deposits of the CIS countries]. Moscow, VIMS Publ., 2008. 72 p.
8. Yazikov E.G., Manabayeva T.A., Efremov A.A. *Otchet po glubinnomu geologicheskomu kartirovaniyu mezozoysko-kaynozoyeskogo chekhla Chu-Sarysuyskoy depressii* [Report on deep geological mapping of the Mesozoic-Cenozoic cover of the Chu-Sarysu depression]. Almaty, Volkovgeology Publ., 2012. 160 p.
9. *Dannye po kompleksnomu geofizicheskomu issledovaniyu skvazhinnogo fonda tekhn. bloka X mestorozhdeniya Moinkum* [Data on a comprehensive geophysical survey of the borehole's stock of block X of the Moinkum field]. Ed. by V.O. Kurockin. Nur-Sultan, JSC NAC Kazatomprom Publ., 2019. 76 p.
10. Zhu Q., Li J., Li G., Wen S., Yu R., Tang C., Feng X., Liu X. Characteristics of sandstone-type uranium mineralization in the Hangjinqi region of the northeastern Ordos Basin: clues from clay mineral studies. *Ore Geology Reviews*, 2022, no. 11, pp. 215–277.
11. Usheva N.V. *Matematicheskoe modelirovaniye khimiko-tekhnologicheskikh protsessov* [Mathematical modeling of chemical-technological processes]. Tomsk, Tomsk Polytechnic University Publ. house, 2014. 135 p.
12. Fomin M.A., Kostyreva E.A., Ryzhkova S.V., Saitov R.M., Sotnich I.S., Eder V.G. Prediction of the lithological composition of the Bazhenov Formation based on the integrated interpretation of geological and geophysical materials. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2022, vol. 333, no. 1, pp. 154–167. In Rus.

13. Hajian A., Styles P. *Application of soft computing and intelligent methods in geophysics*. New York, Springer, 2018. 543 p.
14. Chang X.-W., Kang P., Titley-Peloquin D. Error bounds for computed least squares estimators. *Linear Algebra and its Applications*, 2020, no. 1, pp. 28–42.
15. Yun B., Fei Z.P., Jing Z., Hao K.W., Cui L.X., Ke C., Lu S., Ying L.L. Application of geo-statistics in calculation of a uranium deposit. *E3S Web of Conferences* no. 206. 2020. Available at: <https://doi.org/10.1051/e3sconf/202020601005> (accessed 3 February 2022).
16. Temirkhanova R., Syzdykova M. Calculation of stem uranium reserves according to gamma-ray logging data in the GIK program. *«Industry of Kazakhstan» Journal*, 2018, no. 6, pp. 79–80. In Rus.
17. Alibaeva K.A. *Chislennoe issledovanie putey povysheniya vyrabotki mestorozhdeniya pri dobyche mineralov metodom podzemnogo vyshhelachivaniya*. Dis. PHD [Numerical study of ways to increase the production of a deposit during the extraction of minerals by the method of underground leaching: Dis. PHD]. Almaty, 2013. 79 p.
18. Castillo-Oliver M., Melgarejo J.C., Torró L., Villanova-de-Benavent C., Campeny M., Díaz-Acha Y., Amores-Casals S., Xu J., Proenza J., Tauler E. Sandstone-hosted uranium deposits as a possible source for critical elements: the Eureka mine case, Castell-Estaó, Catalonia. *Minerals. Mineral Geochemistry and Geochronology. Mineral Deposits of Critical Elements*, 2020, no. 1, pp. 2–34.
19. Borkhovich S.U., Pchel'nikov I.V., Kolesova S.B. *Podzemnaya gidromekhanika* [Underground hydromechanics]. Izhevsk, Udmurt University Publ., 2017. 176 p.
20. Kochina T.B., Spiridonova V.N., Rodionov N.N., Kruglov I.A. *Fizika plasta* [Reservoir physics]. Nizhnevartovsk, Nizhnevartovsk State University Publ., 2017. 214 p.
21. Noskov M.D. *Dobycha urana metodom skvazhinnogo podzemnogo vyshhelachivaniya* [Extraction of uranium by the method of borehole underground leaching]. Seversk, National Research Nuclear University MEPhI Publ., 2010. 83 p.
22. Ratnikov I.B., Shulga R.S., Romanov E.A., Batrikov S.N. Analysis of the porosity parameter with the involvement of elements of regional petrophysics (electrofacies) and clay type. *Properties of rocks. Geomechanics and geophysics. Mining sciences and technologies*, 2016, no. 2, pp. 50–62. In Rus.
23. Podrezov D.R. *Razrabotka i identifikatsiya modeley otsenki zapasov rudnika podzemnogo skvazhinnogo vyshhelachivaniya urana*. Dis. Kand. nauk [Development and identification of models for assessing the reserves of a mine of underground borehole leaching of uranium. Kand. Dis.]. Moscow, 2021. 175 p.
24. Alsadik B. *Adjustment models in 3D geomatics and computational geophysics: with MATLAB examples*. London, Elsevier, 2019. 415 p.
25. Duysembayev B.O. *Svodnyy otchet po oprobovaniyu i ispytaniyu kernovykh prob tekh. bloka X, mestorozhdenii Moinkum* [Consolidated report on sampling and testing of core samples of technical block X, Moinkum field]. Nur-Sultan, JSC NAC Kazatomprom Publ., 2014. 58 p.
26. *Geologicheskie kolonki po skvazhinam v masshtabe 1:500* [Geological columns for boreholes on a scale of 1:500]. Nur-Sultan, JSC NAC Kazatomprom Publ., 2018. 18 p.
27. Kisin Yu.K. Application of algorithms based on the method of least squares and finite formulas in the problems of processing trajectory measurements. *Bulletin of the concern VKO Almaz – Altei*, 2016, pp. 74–80. In Rus.
28. *Matematicheskoe modelirovanie plastovykh sistem* [Mathematical modeling of reservoir systems]. Ed. by P.A. Efremov. Tyumen, OJSC SurgutNIPIneft Publ., 2016. 211 p.
29. Zeng S., Li J., Tan K., Zhang S. Fractal kinetic characteristics of hard-rock uranium leaching with sulfuric acid. *Royal Society Publishing*, 2018. No. 5, pp. 2–13. Available at: <https://doi.org/10.1098/rsos.180403> (accessed 12 March 2022).
30. Edwards C. Underground milling of high-grade uranium ore. *Proc. of an International Symposium Organized by the International Atomic Energy Agency*. Vienna, 2009. pp. 151–160.
31. Bai H. Geological characteristics and control mechanism of uranium enrichment in coal-bearing strata in the Yili Basin, Northwest China – implications for resource development and environmental protection. *American Chemical Society, ACS Omega*, 2022, no. 7, pp. 5453–5479.
32. Rakishchev B., Kenzhetayev Zh., Shampikova A., Toktaruly B. Increasing of filtration characteristics of ore bodies in borehole uranium mining. *Materials of II International Conference Essays of Mining Science and Practice. EDP Sciences*, 2020. Available at: <https://doi.org/10.1051/e3sconf/202016800014> (accessed 13 March 2022).
33. Zeng S., Li H., Zhang N., Sun B., Li J., Liu Y. Full-scale pore size distribution features of uranium-bearing sandstone in the northwest of Xinjiang, China. *Royal Society Publishing*, 2021, no 5, pp. 2–14. Available at: <https://royalsocietypublishing.org/doi/10.1098/rsos.202036> (accessed 14 March 2022).

Received: 4 June 2022.

Information about the authors

Yermek Sh. Beisekeyev, postgraduate student, National Research Tomsk Polytechnic University; manager, NAC Kazatomprom JSC.

Egor G. Yazikov, Dr. Sc., professor, National Research Tomsk Polytechnic University.

УДК 550.3

ОСОБЕННОСТИ ОПРЕДЕЛЕНИЯ АНИЗОТРОПНЫХ ПАРАМЕТРОВ ПО РЕЗУЛЬТАТАМ ТРАССЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ ПЛАСТА Ю₁¹ НА ПРИМЕРЕ НЕФТЯНОГО МЕСТОРОЖДЕНИЯ

Коровин Михаил Олегович¹,
korovinmo@hw.tpu.ru

Национальный исследовательский Томский политехнический университет,
Россия, 634050, г. Томск, пр. Ленина, 30.

Актуальность исследования состоит в необходимости поддержания добычи нефти на высоком уровне. Наращивание сырьевой базы является важным фактором финансирования налоговой базы региона. Нефть – невозобновляемый источник энергии, поэтому человечество не может позволить себе нерационально его использовать. У нефти есть немаловажный фактор высокой теплоты сгорания, и этот параметр выгодно отличает ее от остальных источников энергии. Из нефти производится огромный спектр продуктов, не говоря уже об использовании нефтепродуктов в двигателях внутреннего сгорания. И спрос на нефть, несмотря на разработки в области возобновляемых источников энергии, продолжает расти. Для увеличения коэффициента извлечения нефти требуется выбрать наиболее эффективную стратегию разработки месторождения, которая позволит снизить остаточные запасы. Выбор стратегии разработки основывается на результатах расчёта гидродинамических моделей.

Цель данной работы – определение параметров анизотропии проницаемости в пласте Ю₁¹ по результатам анализа трассерных исследований. На нижележащем пласте Ю₁³ аналогичные исследования проведены. Необходимо проверить, возможно ли пользоваться той же методикой анализа трассерных исследований для исследуемого пласта или её нужно изменить.

Объект исследования – верхнеюрские терригенные отложения одного из месторождений на территории Томской области.

Методы. Анализ трассерных исследований приводит к решению важной задачи определения параметров фильтрационной неоднородности и к ответу на вопросы о едином подходе расчёта параметров неоднородности по разным пластам и сопоставимости полученных результатов с распределением характеристик анизотропии по геофизическим исследованиям скважин. Методика подразумевает определение количества индикаторной жидкости, перемещённой от нагнетательных к добывающим скважинам. Дополнительно анализируется проницаемость и создаются розы-диаграммы распределения параметров. Используется ранее опробованный метод пространственного распределения параметров по геофизическим исследованиям скважин. Трассерные исследования применяются для проверки достоверности расчётов по каротажным данным. В результате расчётов и исследований получилось с помощью анализа трассерных исследований подтвердить параметры анизотропии, полученные по результатам ГИС. Получились очень близкие значения параметров. Анализ трассерных исследований показал, что использование технологии определения и учёта анизотропии проницаемости, ранее применявшейся на нижележащем пласте Ю₁³, отражает достоверные результаты для терригенного пласта Ю₁¹. Полученные данные отражают направление неоднородности проницаемости, учитывая распределение индикаторной жидкости от нагнетательных скважин к добывающим. Также величины, полученные с помощью анализа геофизических исследований скважин, подтверждаются данными трассерных исследований.

Ключевые слова:

Анизотропия проницаемости, масштаб анизотропии, трассерные исследования, метод пространственного распределения, неоднородность фильтрационных свойств.

Введение

Изучение фильтрационных потоков ведёт к выявлению особенностей пластов. Меченая вода вводится в одну из скважин, и в режиме нагнетания эта вода попадает в пласт. По соседним работающим скважинам ведётся наблюдение за количественным содержанием в потоке индикаторов меченой жидкости. В некоторых случаях такие исследования проводятся одновременно с контролем процесса вытеснения нефти водой. В качестве дополнительной информации данные о перемещении индикаторных масс используются для определения свойств коллектора и особенностей их распределения в пласте.

Традиционный анализ данных трассерных исследований подразумевает разделение области фильтрации на число элементов, равное количеству скважин, входящих в зону детального изучения, в которых зафиксирована меченая жидкость. В пределах каждого элемента дифференцируются анизотропные зоны изменения фильтрационно-ёмкостных свойств. Во вре-

мя работы нагнетательных скважин жидкость распространяется не по всем направлениям, а преимущественно по высокопроницаемым зонам. Концентрация индикаторной жидкости фиксируется на добывающих скважинах. Зная этот параметр, вычисляется общая масса индикатора, перемещённого от нагнетательной к добывающей скважине.

Объём меченой жидкости и скорость её прохождения показывает неоднородности изучаемого пласта. Напрямую это будет отражаться в отсутствии единого фронта перемещения меченой воды, а также в замедленном и ускоренном проникновении по пластам разной проницаемости. Цикличность поступления индикаторной жидкости характеризует проницаемость отдельных зон неоднородности.

Изучая относительную проницаемость, классифицируют величины проницаемости и группируют в спектры. Группы составляются из соотношений количества индикатора (из определённой группы) к общей массе индикатора, которое извлекается из целевого пласта. Фактическая кривая получения индикатора

тора оценивает количество индикатора и распределяется в диапазоне от 0 до 1. При экстраполяции кривой оценивают теоретическую общую величину индикатора [1–19].

Трассерные исследования на сегодняшний день – самый достоверный источник информации о направлениях перетока флюидов в пласте. Однако они требуют финансовых вложений и времени. Пласт Ю₁³ данного месторождения уже был проанализирован на предмет наличия анизотропии проницаемости и определения её параметров [20], теперь необходимо проанализировать пласт Ю₁¹ для того, чтобы определить целесообразность применения аналогичных методов расчёта, анализа и проверки анизотропных параметров. Фактически трассерные исследования – единственный способ контроля движения флюидов в пласте. Но, так как стоимость проведения трассерных исследований высока, целесообразно использовать другие источники данных для определения анизотропии.

Геологические особенности месторождения

Верхнюю часть горизонта Ю₁ составляет надугольная толща, мощность которой 2–11 м. Морские фации, образовавшиеся при трансгрессии моря, сформировали толщу горизонта. В ней выделяются песчаные пласты, снизу вверх Ю₁² и Ю₁¹, разделённые маломощным аргиллитовым прослоем. Наличие обоих пластов в разрезе горизонта характерно для Двуреченской площади, где пласт Ю₁² встречается примерно в половине скважин. На Западно-Моисеевской площади отсутствует пласт Ю₁¹, а в кровле горизонта Ю₁ развит повсеместно пласт Ю₁². Как коллектор он распространён по всей площади поднятия за исключением юго-восточного склона. От нижележащего пласта Ю₁^М пласт отделяется углито-аргиллитовым прослоем небольшой толщины – 0,5–4,5 м. Перекрывают пласт Ю₁¹ (на Двуреченской площади) и Ю₁² (на Лесмуrowsкой и Западно-Моисеевской площадях) отложения георгиевской свиты.

Предпосылки наличия эффектов анизотропии

Наличие неравномерно азимутально направленных структурных особенностей в текстуре пород влияет на наличие направлений, по которым наблюдаются потоки флюидов с повышенной проницаемостью. Это явление подтверждается фактическими дебитами на разных месторождениях. Вариации дебитов, различия в методах закачки, альтернативные параметры фильтрационных свойств – всё это свидетельствует о наличии и конкретном проявлении зон улучшенной проницаемости, обладающих вполне определённым направлением и величиной. Обстановки осадконакопления предопределяют направление и степень неоднородности. Это обуславливает анизотропию коллектора и оказывает влияние на порядок структурных и текстурных особенностей пород-коллекторов, а также на физические свойства пород и добычу нефти.

Соответственно, для наиболее оптимальной стратегии разработки важно провести учёт и оценку для определения анизотропных характеристик коллектора.

Трассерные исследования изучаемого пласта

Как указывалось ранее, наиболее распространённый, удобный и информативный метод исследования на макроуровне – это трассерные исследования. Методология оценки эксперимента ориентирована на определение таких параметров, как средняя проницаемость, максимальная и средняя скорость индикаторной жидкости в определённом пласте. Эти данные должны быть нанесены на график в виде розы-диаграммы или функции плотности вероятности. Такой подход позволяет определить направление ориентации общей оси проницаемости, показывающей распределение свойств в геологической модели, и ускорения адаптации гидродинамической модели. Анализ розы-диаграммы также будет необходим для оценки значения латеральной анизотропии проницаемости по большой (а) и малой (б) осям после создания эллиптической модели аппроксимации фактических данных. Их соотношение, указанное ранее, поможет определить величину проницаемости. На исследуемом месторождении проведены трассерные исследования (рисунок), с помощью которых будут проверены расчёты по методу пространственного распределения. В этом случае применяется эллиптическая аппроксимация данных скорости фильтрации. Вычисляется угловая характеристика расположения добывающих скважин относительно нагнетательной (в которую закачана меченая жидкость). Расчёты показывают преимущественное направление фильтрации потока индикаторной жидкости и соотношение длин осей эллипсов. Соотношение длин показывает, во сколько раз проницаемость в преимущественном направлении выше, чем в перпендикулярном ему.

Наименьшее количество исследований было выполнено в пределах зоны 2 и зоны 3 (по два исследования в каждом случае), а наибольший объём информации был получен из зоны 1 (четыре эксперимента). Все результаты были разделены на три группы в зависимости от номера зоны расположения скважины. Три скважины, показанные на рисунке, выбраны из разных зон для демонстрации примера распределения проницаемости.

Точки, которые можно увидеть на диаграммах, указывают на данные из разных скважин во время определённого индикаторного исследования. Азимут направления каждой скважины был оценён благодаря расположению нагнетательной скважины в центре роз-диаграмм. Шаг в 10 градусов для диаграмм используется для дополнительной точности.

Все результаты трассерного исследования обобщены в табл. 1 для большего удобства. Следует отметить, что величина боковой анизотропии проницаемости была определена как отношение большой (а) к малой (б) осей эллипса.

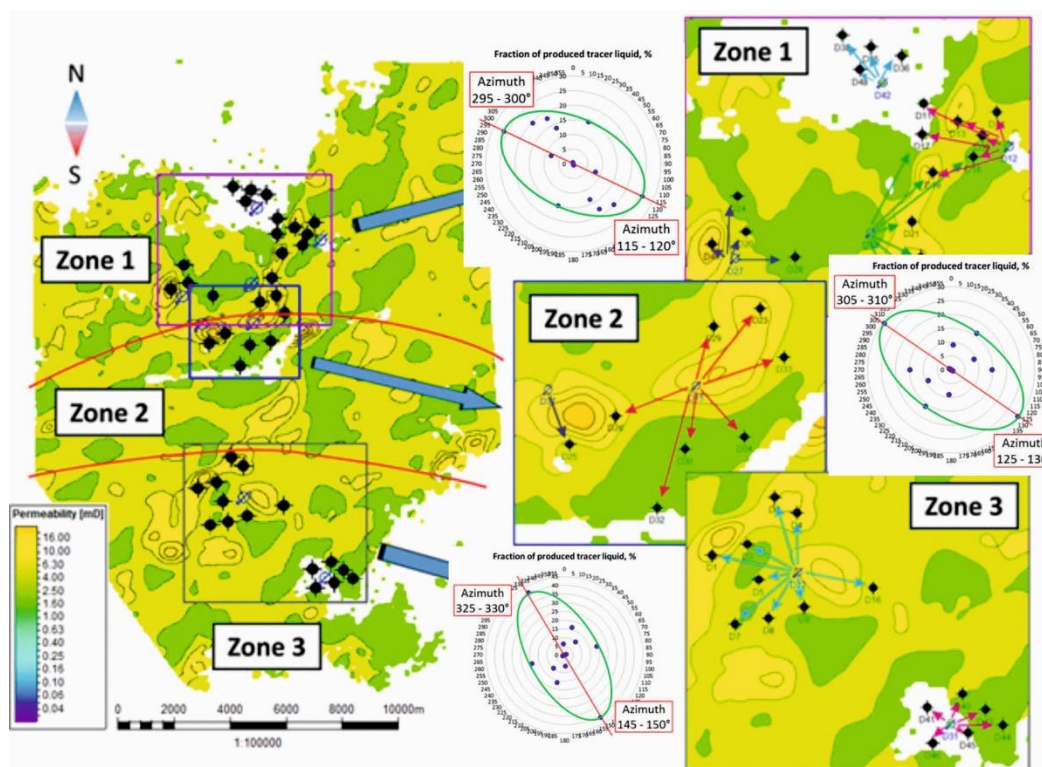


Рисунок. Схема трассерных исследований пласта J_1^1 . Распределение объёмов извлечённого трассера для скважин D12 (зона 1), D15 (зона 2), D31 (зона 3)

Figure. Scheme of tracer studies performed for J_1^1 formation. Tracer liquid distribution for wells D12 (zone 1), D15 (zone 2), D31 (zone 3)

Таблица 1. Значения основной и вспомогательной оси эллипса и оценка анизотропии

Table 1. Anisotropy parameters (main and subsidiary axis values)

Зона/Zone	Номера нагнетательных скважин Injection well name	Азимут Azimuth		Полуось эллипса Ellipse axis		Анизотропия Anisotropy a/b
		Первый максимум First maximum	Второй максимум Second maximum	Большая Major a	Малая Minor b	
1	D10	135–140°	315–320°	16,1	10,5	1,537
	D27	145–150°	325–330°	23,5	15,7	1,493
2	D15	125–130°	305–310°	14,9	8,4	1,774
	D22	135–140°	315–320°	49,2	35,1	1,403

Анализ полученных результатов

Анализ трассерных исследований также демонстрирует наличие анизотропии проницаемости в пласте, как в ранее проведённых расчётах градиентов проницаемости [21]. Пласт J_1^1 характеризуется низкой проницаемостью. Можно заметить, что на величину анизотропии влияет расположение зоны. Таким образом, на основании анализа данных табл. 1 значения анизотропии может варьироваться от 1,403 (для зоны 3) до 1,774 (для зоны 2) для пласта J_1^1 .

Ранжирование средних значений анизотропии проницаемости по трассерным исследованиям полностью соответствует ранжированию, полученному методом пространственного распределения средней

проницаемости. Зона 2 имеет наибольшую величину 1,774, значение анизотропии зоны 1 составляет 1,537, а самая низкая величина у зоны 3 – 1,403.

Таблица 2. Обобщенные данные ориентации анизотропии, полученные с помощью метода пространственного распределения и трассерного исследования [21]

Table 2. Generalized orientation anisotropy data obtained using the method of spatial distribution and tracer study [21]

Зона/Zone	Интервалы азимутов/Azimuths intervals			
	Первый максимум First maximum		Второй максимум Second maximum	
	Метод пространственного распределения Spatial distribution method	Анализ трассерных исследований Tracer study analysis	Метод пространственного распределения Spatial distribution method	Анализ трассерных исследований Tracer study analysis
1	110–120°	115–150°	310–320°	295–330°
2	130–140°	125–145°	320–330°	305–325°
3	100–120°	135–150°	310–320°	315–330°

Также следует подчеркнуть, что по данным трассерных исследований анизотропия имеет азимут, ориентированный с северо-запада на юго-восток. Данные позволяют создать уточнённую геологическую модель месторождения. Достигается это распределением проницаемости по направлениям X и Y. В изотропных моделях без учёта горизонтальной анизотропии проницаемости ($k_x=k_y$) адаптация к истории

ческим данным разработки бывает неудовлетворительной. В анизотропных моделях ($k_y = a \cdot k_x$, где a – соотношение осей эллипса) требуется меньше времени для проведения адаптации фактических и исторических данных.

Величины азимутов для разных зон не имеют преобладающего значения для каждой из них по сравнению с предыдущим методом анализа градиентов и пространственного распределения проницаемости. Сравнение различных методов лучше видно в табл. 2.

По табл. 2 делается вывод о хорошем сопоставлении угловых характеристик анизотропии проницаемости, вычисленных с помощью анализа градиентов проницаемости и трассерных исследований.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Interpreting reservoir permeabilities from wireline formation test data / H. Du, Y. Liu, X. Li, F. Guan, X. Sui // *Petroleum Science and Technology*. – 2013. – V. 31. – P. 1819–1826.
2. Соколовский Э.В., Соловьёв Г.Б., Тренчиков Ю.И. Индикаторные методы изучения нефтегазоносных пластов. – М.: Недра, 1986. – 157 с.
3. Dussan E., Sharma Y. Analysis of the pressure response of a single-probe formation tester // *Society of Petroleum Engineers. Formation evaluation*. – 1992. – V. 7. – P. 151–156.
4. Permeability anisotropy and its relations with porous medium structure / J.B. Clavaud, A. Maineuil, M. Zamora, P. Rasolofosaon, C. Schlitter // *Journal of geophysical research*. – 2008. – V. 113. – P. 1–10.
5. Меркулов В.П., Краснощекова Л.А. Исследование пространственной литолого-петрофизической неоднородности продуктивных коллекторов месторождений нефти и газа // *Известия Томского политехнического университета*. – 2002. – Т. 305. – № 6. – С. 296–303.
6. Tyvand P.A., Storhaug A.R.F. Two-dimensional flow in a porous medium with general anisotropy. – Norway: Department of Mathematical Sciences and Technology (Norwegian University of Life Sciences), 2004. – 20 p.
7. Литолого-петрофизическая анизотропия песчано-глинистых коллекторов нефтяных месторождений / В.П. Меркулов, Д.В. Александров, Л.А. Краснощекова, Ю.Я. Ненахов // *Научно-технический вестник ЮКОС*. – 2004. – № 10. – С. 33–36.
8. Abedi R., Clarke P.L. Modeling of rock inhomogeneity and anisotropy by explicit and implicit representation of microcracks // 52nd U.S. Rock Mechanics/Geomechanics Symposium. – Seattle, Washington, USA, 17–20 June, 2018. – P. 1–11.
9. Zhang Z., Du J. Reservoir characterization using perforation shots: anisotropy and attenuation // *SEG International Exposition and Annual Meeting*. – Anaheim, California, USA, 14–19 October, 2018. – P. 2982–2986.
10. Kolbikov S., Kuznetsova Y., Smirnov A. Method of anisotropy modeling and its application to hydrodynamic simulation // *SPE Russian Petroleum Technology Conference*. – Moscow, Russia, 15–17 October, 2018. – P. 1–9.
11. Makhenko R.Y., Tarokh A. Anisotropy in the undrained pore pressure response of rock // 52nd U.S. Rock Mechanics/Geomechanics Symposium. – Seattle, Washington, USA, 17–20 June, 2018. – P. 40–51.
12. Liu S., King M.J. Improved calculation of effective permeability for pore network models using the diffuse source methodology // 81st EAGE Conference and Exhibition. – London, England, UK, 3–6 June, 2019. – P. 1–19.
13. Gray D.H., Fatt I., Bergamini G. The effect of stress on permeability of sandstone cores // *Society of petroleum engineers' journal*. – 1963. – V. 3. – P. 95–99.
14. Wannell M.J., Colley N.M., Halford F.R. The use of a new technique to determine permeability anisotropy // *Society of Petroleum Engineers*. – 1993. – V. 9. – P. 489–495.
15. Cosan A. Measuring permeability anisotropy: the latest approach // *Oilfield Review*. – 1994. – V. 6. – № 4. – P. 24–35.
16. Carpenter C. Better permeability estimation from wireline formation testing // *Journal of Petroleum Technology*. – 2018, February. – V. 70. – P. 66–68.
17. Pan Y., Medhat M.K., Wayne N. Fieldwide determination of directional permeabilities using transient well testing. *SPE Reservoir Evaluation & Engineering*, May. – 2019. – V. 22. – P. 1–11.
18. Al-Hadrami H.K., Teufel L.W. Influence of permeability anisotropy and reservoir heterogeneity on optimization of infill drilling in naturally fractured tight-gas Mesaverde sandstone reservoirs, San Juan Basin // *SPE Low Permeability Reservoirs Symposium*. – Denver, U.S.A., March 12–15, 2000. – P. 1–12.
19. Geological factors influencing reservoir performance of the Hartzog Draw field / C.L. Hearn, Jr. W.J. Ebanks, R.S. Tye, V. Ranganathan. – San Francisco: SPE annual technical conference, 1983. – P. 1335–1344.
20. Коровин М.О. Методика количественной оценки латеральной анизотропии фильтрационно-ёмкостных свойств терригенных коллекторов на базе комплексного анализа геолого-геофизических данных: дис. ... канд. геол.-минерал. наук. – Томск, 2017. – 108 с.
21. Коровин М.О. Особенности учёта анизотропии проницаемости верхнеюрских терригенных коллекторов на примере нефтяного пласта // *Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов*. – 2022. – Т. 333. – № 4. – С. 151–156.

Поступила 04.06.2022 г.

Информация об авторах

Коровин М.О., кандидат геолого-минералогических наук, доцент отделения нефтегазового дела Инженерной школы природных ресурсов Национального исследовательского Томского политехнического университета.

UDC 550.3

FEATURES OF DETERMINING ANISOTROPIC PARAMETERS FROM THE RESULTS OF TRACER STUDIES OF J_1^1 FORMATION ON THE EXAMPLE OF OIL FIELD

Mikhail O. Korovin,
korovinmo@hw.tpu.ru

National Research Tomsk Polytechnic University,
30, Lenin avenue, Tomsk, 634050, Russia.

The relevance of the research lies in the necessity to maintain production at a high level. Maintaining the resource base is an important factor in financing the region's tax base. Oil is a non-renewable source of energy, so humanity cannot afford to use it irrationally. It has an important factor of high calorific value and this parameter favorably distinguishes oil from other energy sources. A huge range of products is produced from oil, not to mention the use of petroleum products in internal combustion engines. And the demand for oil, despite developments in renewable energy, continues to rise. Therefore, it is necessary to increase the oil recovery factor. This requires choosing the most effective field development strategy that will reduce residual reserves. The choice of development strategy is based on the results of calculation of hydrodynamic models.

Aims: to study tracer research in the J_1^1 formation; determine the parameters of permeability anisotropy from tracer studies; compare the data obtained with the parameters of permeability heterogeneity determined by the method of spatial distribution; assess the feasibility of changing the methodology when changing the stratigraphic horizon.

The object is one of the deposits in the Tomsk region. Previously, it has already been subjected to the study of anisotropic characteristics. Upper Jurassic deposits of terrigenous composition are being studied.

Methods. Analysis of tracer studies leads to the solution of an important problem of determining the parameters of filtration heterogeneity and to the answer for questions about a unified approach to calculating heterogeneity parameters for different reservoirs and the comparability of the results obtained with the distribution of heterogeneity parameters according to well logging. The technique involves determining the amount of indicator fluid transferred from injection to production wells. In addition, permeability is analyzed and rose diagrams of the distribution of parameters are created. The previously tested method of spatial distribution of parameters according to geophysical surveys of wells is used. Tracer studies are used to verify the reliability of calculations based on log data. As a result of calculations and studies, it was possible, using the analysis of tracer studies, to confirm the anisotropy parameters obtained from the results of well logging. Very close parameter values were obtained. The analysis of tracer studies showed that the use of the technology for determining and accounting for the anisotropy of permeability previously used in the underlying J_1^3 reservoir shows reliable results for the J_1^1 terrigenous reservoir. The obtained data reliably show the direction of permeability heterogeneity, taking into account the distribution of indicator fluid from injection wells to production ones. Also, the values obtained using the analysis of well logging are confirmed by tracer data.

Key words:

Permeability anisotropy, anisotropy scale, tracer studies, spatial distribution method, heterogeneity of filtration properties.

REFERENCES

1. Du H., Liu Y., Li X., Guan F., Sui X. Interpreting reservoir permeabilities from wireline formation test data. *Petroleum Science and Technology*, 2013, vol. 31, pp. 1819–1826.
2. Sokolovsky E.V., Solovyov G.B., Trenchikov Yu.I. *Indikatornye metody izucheniya neftegazonosnykh plastov* [Indicator methods for studying oil and gas reservoirs] Moscow, Nedra Publ., 1986. 157 p.
3. Dussan E., Sharma Y. Analysis of the pressure response of a single-probe formation tester. *Society of Petroleum Engineers. Formation evaluation*, 1992, vol. 7, pp. 151–156.
4. Clavaud J.B., Maineult A., Zamora M., Rasolofosaon P., Schlitter C. Permeability anisotropy and its relations with porous medium structure. *Journal of geophysical research*, 2008, vol. 113, pp. 1–10.
5. Merkulov V.P., Krasnoshchekova L.A. Study of spatial lithogenic-petrophysical heterogeneity of productive collectors of oil and gas fields. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University*, 2002, vol. 305, no. 6, pp. 296–303. In Rus.
6. Tyvand P.A., Storhaug A.R.F. *Two-dimensional flow in a porous medium with general anisotropy*. Norway, Department of Mathematical Sciences and Technology (Norwegian University of Life Sciences), 2004. 20 p.
7. Merkulov V.P., Aleksandrov D.V., Krasnoshchekova L.A., Nenakhov Yu.Ya. *Litologo-petrofizicheskaya anizotropiya peschano-glinistyykh kollektorov neftyanykh mestorozhdeniy* [Lithological-petrophysical anisotropy of sandy-argillaceous reservoirs of oil fields]. *Nauchno-tekhnicheskii vestnik YuKOS*, 2004, no. 10, pp. 33–36.
8. Abedi R., Clarke P.L. Modeling of rock inhomogeneity and anisotropy by explicit and implicit representation of microcracks. *52nd U.S. Rock Mechanics/Geomechanics Symposium*. Seattle, Washington, USA, 17–20 June, 2018. pp. 1–11.
9. Zhang Z., Du J. Reservoir characterization using perforation shots: anisotropy and attenuation. *SEG International Exposition and Annual Meeting*. Anaheim, California, USA, 14–19 October, 2018. pp. 2982–2986.
10. Kolbikov S., Kuznetsova Y., Smirnov A. Method of anisotropy modeling and its application to hydrodynamic simulation. *SPE Russian Petroleum Technology Conference*. Moscow, Russia, 15–17 October, 2018. pp. 1–9.
11. Makhenko R.Y., Tarokh A. Anisotropy in the undrained pore pressure response of rock. *52nd U.S. Rock Mechanics/Geomechanics Symposium*. Seattle, Washington, USA, 17–20 June, 2018. pp. 40–51.
12. Liu S., King M.J. Improved calculation of effective permeability for pore network models using the diffuse source methodology. *81st EAGE Conference and Exhibition*. London, England, UK, 3–6 June, 2019. pp. 1–19.
13. Gray D.H., Fatt I., Bergamini G. The effect of stress on permeability of sandstone cores. *Society of petroleum engineers' journal*, 1963, vol. 3, pp. 95–99.
14. Wannell, M. J., Colley, N. M., & Halford, F. R. The use of a new technique to determine permeability anisotropy. *Society of Petroleum Engineers*, 1993, vol. 9, pp. 489–495.
15. Cosan A. Measuring permeability anisotropy: the latest approach. *Oilfield Review*, 1994, vol. 6, no. 4, pp. 24–35.
16. Carpenter C. Better permeability estimation from wireline formation testing. *Journal of Petroleum Technology*, February, 2018, vol. 70, pp. 66–68.

17. Pan Y., Medhat M.K., Wayne N. Fieldwide determination of directional permeabilities using transient well testing. *SPE Reservoir Evaluation & Engineering*, May, 2019, vol. 22, pp. 1–11.
18. Al-Hadrami H.K., Teufel L.W. Influence of permeability anisotropy and reservoir heterogeneity on optimization of infill drilling in naturally fractured tight-gas Mesaverde sandstone reservoirs, San Juan Basin. *SPE Low Permeability Reservoirs Symposium*. Denver, U.S.A., March 12–15, 2000. pp. 1–12.
19. Hearn C.L., Ebanks Jr. W.J., Tye R.S., Ranganathan V. *Geological factors influencing reservoir performance of the Hartzog Draw field*. San Francisco, SPE annual technical conference, 1983. pp. 1335–1344.
20. Korovin M.O. *Metodika kolichestvennoy otsenki lateralnoy anizotropii filtratsionno-emkostnykh svoystv terrigennykh kolektorov na baze kompleksnogo analiza geologo-geofizicheskikh dannykh*. Diss. Kand. nauk [Methodology for quantitative assessment of lateral anisotropy of filtration-capacity properties of terrigenous reservoirs based on a comprehensive analysis of geological and geophysical data. Cand. Diss.]. Tomsk, 2017. 108 p.
21. Korovin M.O. Features of calculation of upper Jurassic terrigenous reservoirs permeability anisotropy on the example of the oil formation. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2022, vol. 333, no. 4, pp. 151–156

Received: 4 June 2022.

Information about the authors

Mikhail O. Korovin, Cand. Sc., associate professor, National Research Tomsk Polytechnic University.

УДК 504.61:532.542: 536.252

ОПТИМИЗАЦИЯ РЕОЛОГИЧЕСКИХ СВОЙСТВ БУРОВОГО РАСТВОРА, ИНТЕНСИФИЦИРУЮЩИХ ТРАНСПОРТ И ОЧИСТКУ ГОРИЗОНТАЛЬНЫХ СКВАЖИН ОТ ШЛАМОВ

Харламов Сергей Николаевич¹,
kharsn@mail.ru

Джанхорбани Мехран¹,
mehrhan.janghorbani@gmail.com

¹ Национальный исследовательский Томский политехнический университет,
Россия, 634050, г. Томск, пр. Ленина, 30.

Актуальность исследования связана с практической необходимостью эффективной очистки скважин в технологиях современного бурения их протяженных горизонтальных участков, в которых важно контролировать динамическое давление, весьма чувствительное к изменениям реологических свойств буровых растворов, описываемых нетривиальными деформационными процессами в вязкопластических системах. В большинстве своем это жидкости типа Гершеля–Балкли с трехкомпонентными параметрами, каждый из которых способен существенно влиять на перепад поля давления, способность раствора выносить шлам через специфическую геометрию эксцентричного межтрубного пространства горизонтальных скважин. Изучение комплексного влияния параметров реологической модели ценно и актуально для оптимизации процесса очистки, предотвращения аварийных режимов функционирования скважин из-за опасности чрезмерного увеличения перепада давления в рабочих узлах оборудования.

Цель: определение степени влияния изменений параметров модели Гершеля–Балкли на перепад поля давления; выяснение гидродинамических особенностей, сопровождающих внутреннее течение реологически сложной среды; выдача практических рекомендаций по интенсификации очистки и выносу шлама из горизонтальных скважин при минимальных значениях перепада давления, используя оптимальную комбинацию диапазона изменений реологических свойств бурового раствора.

Объект исследования представляет собой скважину с десятиметровой горизонтальной эксцентричной секцией, в которой течение осуществляется в условиях, реально близких к фактическим параметрам бурения (*in situ*).

Методы исследования базируются на комплексном физико-математическом и компьютерном моделировании процессов в механике однородных и гетерогенных сплошных сред, широко апробированных на классе внутренних реологически сложных течений, а также успешно прошедшие валидацию и верификацию результатов в соответствующих условиях и близких к режимам течений, тепло- и массопереноса, выполненных другими авторами по анализу технологических процессов бурения и очистки скважин.

Результаты. Выполнено численное моделирование гидродинамики ламинарного дисперсного потока смеси неньютоновской капельной жидкости с твердыми частицами в кольцевой эксцентричной трубе. В рамках реального процесса бурения с характерными условиями вязкостно-инерционно-гравитационного несжимаемого изотермического течения вязкопластической среды с частицами песка сферической формы проведен детальный параметрический анализ пространственных эффектов, определяющих интенсивность массопереноса из-за изменения реофизических, геометрических и гидродинамических свойств течения и размеров скважины. Исследованы процессы, определяющие и повышающие эффективность очистки, посредством анализа факта: увеличения количества частиц, покинувших геометрию за характерное гидродинамическое время процесса; контроля механизмов переноса импульса и массы в смеси, а также управления увеличением перепада давления. Численное моделирование соответствовало сценариям течения смеси с разными параметрами геометрии (размеров длин, диаметров и эксцентricности труб) и бурового раствора (неньютоновской реологии). Установлено, что полная очистка скважины при использовании растворов типа Гершеля–Балкли во режиме бурения (*in situ*) в ламинарном режиме невозможна. В практику прикладных исследований предложены рекомендации путей эффективной очистки за счет коррекции реофизических свойств раствора. Показано, что самым эффективным методом улучшения очистки является метод контроля эксцентricности межтрубного пространства, а также метод управления геометрическим параметром, представляющим собой отношение между диаметрами труб. Практические рекомендации сводятся к необходимости контроля эксцентricности в диапазоне $e < 15\%$. Определено, что из параметров модели Гершеля–Балкли индекс потока является важнейшим с точки зрения управления очисткой скважины. С его помощью создаётся «конвейерная лента» высокой вязкости, которая способна быстро транспортировать частицы шлама через геометрию.

Ключевые слова:

Скважина, бурение, моделирование, гидродинамика, реология, вязкопластическая смесь, жидкость Гершеля–Балкли, кольцевые потоки, транспорт, очистка.

Введение

Хорошо известно (например, [1–7]), что комплексное физико-математическое, численное и экспериментальное моделирование технологического процесса очистки скважин с произвольной ориентацией их ствола представляет одну из ключевых прикладных проблем современного бурения. Применительно

к анализу горизонтальных участков скважин прогноз процессов переноса импульса, массы, тепла при неустановившихся устойчивых и переходных режимах течений вязких сред осложняется необходимостью детального контроля за изменениями гидродинамического давления, поля скорости, диффузионной структуры и фазового состава реологически сложной смеси

в межтрубном пространстве скважины со специальными узлами ее технологического оборудования (бурильной трубы и ее соединений) [7] в рамках подходов, методов и алгоритмов CFD (Computational Fluid Dynamics), способных корректно описывать особенности гидродинамики, массо- и теплопереноса в особых зонах течения в эксцентричных трубах. Следует учитывать, что большинство буровых растворов представляют собой неньютоновские вязкопластические среды с формулировкой модели типа Гершеля–Балкли, где каждый из ее замыкающих параметров способен влиять на специфику течения смеси и изменять локальные и интегральные свойства течения смеси. Эволюция поля скорости по всей длине скважины сопровождается эффектами, определяющими $\text{grad}p$ и эффективность выноса шлама из донной части межтрубного пространства. Их анализ способен установить закономерности транспорта шлама в неустановившемся течении и оптимизировать процесс очистки горизонтальных скважин без дополнительных нагрузок на рабочие органы технологического оборудования из-за возможного повышения перепада давления. Следует учитывать, что последнее может привести к серьезным дополнительным проблемам не только при разработке месторождений, но и при эксплуатации бурового оборудования. Для таких условий *актуально и практически ценно* в рамках вычислительной гидродинамики (CFD) осуществлять мониторинг и оптимизацию процессов бурения путем разработок эффективных математических моделей течения гетерогенных сред в трубах; валидации методов их расчета; верификации численных результатов картин изменений многомерных локальных и интегральных свойств потока, особенностей течения в зонах седиментации частиц в сравнении с соответствующими экспериментальными данными. Поэтому *целью* исследования является в рамках CFD: *определение* степени влияния изменений параметров модели Гершеля–Балкли на перепад поля давления; *выяснение* гидродинамических особенностей, сопровождающих внутреннее течение реологически сложной среды; *выдача* практических рекомендаций по интенсификации очистки и выносу шлама из горизонтальных скважин при минимальных значениях перепада давления, используя оптимальную комбинацию диапазона изменений реологических свойств бурового раствора.

Краткий библиографический анализ проблемы

Изучение гидродинамики гетерогенной вязкой смеси в протяженном межтрубном эксцентричном цилиндрическом пространстве с постоянным поперечным сечением имеет долгую историю. Многие исследователи, начиная с Х. Бильгесу и соавторов [8], ставили перед собой задачу детального анализа гидродинамических особенностей транспорта шлама в рамках континуального метода (эйлеровского подхода) и выяснения влияния возмущений входящего потока, изменений геометрической конфигурации пространства на диффузионную структуру примеси (продукты бурения). Например, С. Хан и соавторы [9]

и С. Сун и соавторы [10] изучали эффект вращения внутренней трубы вдоль своей собственной оси. Р. Руки и соавторы [11] применили подход и идеи [8–10] для промывочных жидкостей на основании пены, Т. Офей и соавторы [12] изучили влияние разных параметров на процесс очистки. М. Камяб и соавторы [13] смоделировали данный процесс в условиях бурения с колонной гибких труб. С. Сайиндла и соавторы [14] сравнили эффективность очистки при использовании буровых растворов на основании воды и углеводорода, а О. Хейдари и соавторы [15], в отличие от других исследователей, использовавших в прогнозе процессов молярного переноса импульса модели турбулентности типа $k-\epsilon$, $k-\omega$, применил более гибкие модели второго порядка для напряжений Рейнольдса [16–18] с целью точного описания изменений неоднородной анизотропной структуры смеси. Б. Панг и соавторы [19] использовали реологическую модель Гершеля–Балкли для учета изменений неньютоновских свойств бурового раствора, способных существенно влиять на развитие течения вязкой смеси по трубам.

Как показывает анализ [3, 4, 7], эйлеровское приближение достаточно апробировано на классе внутренних дисперсных систем в достаточно широких диапазонах изменений динамических условий. При этом в описании процессов переноса твердых частиц распространены модели, основанные на идеях кинетической теории гранулярного течения. Так, в практике прикладных расчетов гидродинамики сдвиговых потоков выделяются модели Гидаспоу [20] и Сиамлал-Обриен [21]. Однако при построении в рамках эйлеровского подхода численного решения задачи о течении континуальной смеси следует учитывать, что в таких допущениях оперативный прогноз гидродинамических и диффузионных эффектов в среде потребует значительных вычислительных затрат. Потребность уяснить особенности седиментации частиц шлама в области межтрубного пространства заставила ряд исследователей обратиться в лагранжевскому подходу, отслеживающему местоположение, траектории и динамику миграции твердых частиц. Стоит иметь в виду, что оба подхода при численной реализации модели требуют большой оперативной памяти и это существенный недостаток на пути внедрения инженерных методик в практику, особенно при моделировании процесса с большим количеством частиц. Вместе с этим лагранжевский метод даёт более полную и детальную картину процесса очистки скважин, и в условиях моделирования течения смеси с ограниченным числом частиц можно быстро получить информацию, полезную для инженерных целей, без обращения к аппарату статистического метода и полупэмпирических кинетических моделей. Отметим, что одним из первых идей лагранжевского подхода и технологию построения численного решения в рамках полных уравнений законов сохранения массы, импульса для реологически сложной гетерогенной смеси применил У. Мме и соавторы [22]. Он также исследовал влияние изменений геометрической формы частиц на эффективность их транспортировки по

стволу скважины. Эти исследования были продолжены Е. Епелл и соавторами [23], которые установили достаточно близкое соответствие эйлерово-эйлерова (ЭЭ) и эйлеро-лагранжева (ЭЛ) подходов в прогнозах локальных и интегральных свойств течения смеси. С. Акшик и соавторы [24] также использовали ЭЭ, ЭЛ подходы в моделировании гидродинамики течения газожидкостной смеси с твердыми частицами и установили, что модели и методы CFD весьма надежны при расчетах нетривиальных эффектов и нелинейных механизмов процессов переноса в смеси. Выполненные сравнения с экспериментальными данными изменений поля скорости показали их удовлетворительное соответствие, например, в пределах 1...12 % по перепаду давления, накопления на стенках концентрации и роста пласта шлама. В целом данные библиографического анализа позволяют утверждать, что аппарат комплексного исследования гидродинамической очистки горизонтальных скважин в рамках подходов CFD весьма надежен при использовании современных статистических моделей турбулентности второго порядка RANS метода [1–5, 7, 15–18, 25].

Математическое моделирование

Физическая модель и конфигурация задачи. Геометрическую конфигурацию области течения буровой смеси схематично удобно представить в виде эксцентричного кольцевого канала протяженной длины, создаваемого двумя цилиндрическими трубами с горизонтальным участком и характерной площадью межтрубного пространства, варьируемого в зависимости от изменения эксцентриситета $e=2b/(D-d)$, где $D=2(R_0+\delta)$ – диаметр внешней трубы с толщиной стенки δ , $d=2R_1$ – диаметр внутренней (бурильной) трубы, $b=O_1-O_0$ – смещение центров труб друг относительно друга. Предполагается, что стенка внутреннего цилиндра (бурильной) трубы неподвижна для формирования строго прямооточного течения смеси. Допускается, что двухфазный поток каплевой реологически сложной вязкой жидкости с частицами шлама входит внутрь кольцевого пространства в области входа в горизонтальный участок с сохранением условий непрерывности движения смеси в области выхода. В данных условиях прямооточного внутреннего течения вязкопластической жидкости в компонентах тензора скоростей деформаций преобладает изменение осевой компоненты вектора скорости, и эта особенность учитывается в формулировке вязких эффектов в смеси. На стенках скважины выполняются условия прилипания для всех динамических осредненных и пульсационных параметров жидкости. Для описания процессов движения частиц твердой фазы при взаимодействии со стенками принимаются условия непротекания и отсутствия пульсаций их скоростей. Предполагается, что течение смеси изотермическое по всей длине скважины. Кроме того, геометрические параметры, реологические постоянные и эксплуатационные характеристики процесса транспорта шлама соответствуют значениям реального режима бурения и функционирования оборудования. Гидродинамика и массообмен смеси при взаимодействии со стенками

скважины описывается системой определяющих уравнений, представляющих собой законы сохранения массы, импульса для стационарных несжимаемых и развивающихся, ламинарных и турбулентных, устойчивых пространственных потоков в поле действия внешних сил (тяжести). Динамика дискретной фазы (частиц песка) описывается уравнениями закона движения Ньютона в рамках эйлерово-эйлерова и эйлерово-лагранжева подходов. Построение численного решения уравнений выполнено в рамках CFD по методологии и при допущениях к физической модели, подробно изложенных, например, в [7], следуя которым отметим, что кольцевое пространство проточной области отличается асимметричностью, существенной «узкостью» под бурильной трубой, препятствующей транспорту частиц песка через кольцевое пространство. Реология бурового раствора отличается вязкопластическими эффектами, описывается моделью эффективной вязкости Гершеля–Балкли. В таких системах переменность физических свойств жидкости существенно влияет на интенсивность очистки скважин. Допускается, что слой осевших частиц имеет толщину много меньшую ширины кольцевой области и в своей верхней части поперечного сечения не оказывает влияния на движение гетерогенной среды. Твердые частицы шлама (песка) химически инертны, имеют сферическую форму диаметра d . Принимается, что доля объема, занимаемого дисперсной твердой фазой, имеет значения $\alpha_p < O(10^1)$. Соударениями частиц пренебрегается. Плотность материала частиц значительно превышает плотность несущей (жидкой каплевой) среды. Также предполагается, что режим изотермического несжимаемого течения смеси вязкостно-инерционный и осуществляется в условиях развития по стволу скважины.

Определяющие уравнения. Анализ течения смеси вязкой несжимаемой жидкости с твердыми частицами сферической формы в скважине в рамках эйлерово-эйлеровского гидродинамического подхода с использованием CFD проводится при допущении, что жидкая и твердая фазы представляют собой взаимодействующие и взаимопроникающие континуумы, для которых определены полные дифференциальные уравнения законов сохранения массы и импульса, описывающих пространственные ламинарные и турбулентные течения двухфазных смесей в поле действия силы тяжести. Причем моделирование турбулентных течений выполнено с привлечением идей RANS-подхода с осреднением определяющих уравнений по Рейнольдсу и их замыканий в рамках современных статистических моделей к-теории турбулентности, а также многопараметрических моделей с транспортными уравнениями второго порядка для одноточечных корреляций пульсаций вектора скорости и изменений локальных свойств вихрей, с учетом переменности реологических свойств смеси при конкретных краевых условиях. Детали моделирования подробно изложены, например, в [1–4, 7, 16–18]. Сама система определяющих уравнений законов сохранения массы (1), импульса (2)–(4) в компактной формулировке, согласно [26–28], имеет вид:

$$\frac{\partial(\alpha_q \rho_q)}{\partial t} + \nabla \cdot (\alpha_q \rho_q \vec{v}_q) = \sum_{p=1}^N (\dot{m}_{pq} - \dot{m}_{qp}), \quad (1)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial(\alpha_q \rho_q \vec{v}_q)}{\partial t} + \nabla \cdot (\alpha_q \rho_q \vec{v}_q \vec{v}_q) = \\ = -\alpha_q \nabla p + \nabla \cdot \vec{\tau}_q + \alpha_q \rho_q \vec{g} + \\ + \sum_{p=1}^N (K_{pq} (\vec{v}_p - \vec{v}_q) + \dot{m}_{pq} \vec{v}_{pq} - \dot{m}_{qp} \vec{v}_{qp}) + \\ + (\vec{F}_q + \vec{F}_{lift,q} + \vec{F}_{VM,q}), \end{aligned} \quad (2)$$

$$\vec{\tau}_q = \alpha_q \mu_q (\nabla \vec{v}_q + \nabla \vec{v}_q^T) + \alpha_q (\zeta_q - \frac{2}{3} \mu_q) \nabla \cdot \vec{v}_q \vec{I}, \quad (3)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} (\alpha_s \rho_s \vec{v}_s) + \nabla \cdot (\alpha_s \rho_s \vec{v}_s \vec{v}_s) = \\ = -\alpha_s \nabla p - \nabla p_s + \nabla \cdot \vec{\tau}_s + \alpha_s \rho_s \vec{g} + \\ + \sum_{l=1}^N (K_{ls} (\vec{v}_l - \vec{v}_s) + \dot{m}_{ls} \vec{v}_{ls} - \dot{m}_{sl} \vec{v}_{sl}) + \\ + (\vec{F}_s + \vec{F}_{lift,s} + \vec{F}_{VM,s}). \end{aligned} \quad (4)$$

В записи уравнений (1)–(4) принято: «индексы» q и s характеризуют параметры жидкой и твердой фаз соответственно; ρ – плотность; $\vec{v}$ – вектор скорости; $\dot{m}_{qp}$ – интенсивность перехода массы из p -ой в q -ю фазу (в нашем случае отсутствует перенос из жидкой в твердую фазу, поэтому $\dot{m}_{pq} = \dot{m}_{qp} = 0$); $\vec{\tau}_q$ – тензор напряжений q -ой фазы; μ_q , ζ_q – коэффициенты динамической (сдвиговой) и объемной вязкостей q -ой фазы; p – давление, K_{pq} – коэффициент межфазного обмена импульсом; $\vec{F}_s$, $\vec{F}_{lift,s}$, $\vec{F}_{VM,s}$ определяют соответственно внешнюю силу, подъемную силу, дополнительную силу переноса массы частиц твердой фазы; p – относится к давлению, используемому всеми фазами; p_s – давление частиц твердой фазы; $K_{ls} = K_{sl}$ – коэффициент обмена импульсом между жидкой и твердой фазами. Заметим, что при моделировании очистки скважин подъемной силой (которая мала по сравнению с силой сопротивления) можно пренебречь. Видно, что определяющее влияние на динамику оказывают: вязкие эффекты, силы градиента давления, тяжести, сопротивления межфазных процессов.

Реология неньютоновской среды. Хорошо известно [29–31], что в отличие от ньютоновских систем деформационные эффекты в реологически сложных средах существенно нелинейны. Так, для описания вязко-пластических систем и замыкания (3) с коэффициентом эффективной вязкости $\mu_{eff} = \mu_q$ общего вида (5)

$$\mu_{eff} = \mu_{eff}(\vec{\tau}, \vec{S}, T, p), \quad (5)$$

привлекают модели:

- бингамовской жидкости (6)

$$\mu_{eff} = \mu_f = (\tau_0 + \kappa \dot{\Gamma}) \dot{\Gamma}^{-1}, \quad \dot{\Gamma} = (0,5 \vec{S} \cdot \vec{S})^{0,5}, \quad (6)$$

- жидкости типа Гершеля–Балкли (7):

$$\vec{\tau} = \tau_0 + \kappa \vec{S}^n, \quad \mu_{eff} = \mu_f = (\tau_0 + \kappa \dot{\Gamma}^n) \dot{\Gamma}^{-1}. \quad (7)$$

Здесь принято: $\vec{\tau}, \vec{S}$ – тензоры напряжений и скоростей деформаций жидкой фазы соответственно, [т], [Па]; $[\vec{S}]$, $[c^{-1}]$; τ_0 – предел текучести, [Па]; k – индекс консистенции, $[Pa \cdot c^n]$; $\dot{\Gamma} = \frac{\partial u}{\partial y}$ – характерное для те-

кущего потока в осевом направлении значение скорости сдвига, $[c^{-1}]$; n – индекс потока, $[-]$. Отметим, что математическая модель, включающая уравнения (1)–(7), используется для прогноза гидродинамических и диффузионных стационарных развивающихся процессов и эффектов, сопровождающих транспорт шлама в изотермических ламинарных и турбулентных течениях по всей длине скважины с горизонтальной секцией.

Сведения о моделировании турбулентности. Проблемы замыканий определяющих уравнений (1)–(4) для описания турбулентности в гомогенных и гетерогенных средах подробно проанализированы, например, в [7, 16–18]. Отмечалось, что весьма надежными в прогнозах взаимосвязанных внутри- и межфазных процессов переносов тепла, массы и импульса в низкорейнольдсовых зонах ньютоновских потоков выступают двухпараметрические модели RANS-метода, которые составляют эффективную опорную базу с локальными свойствами турбулентности для моделей переноса рейнольдсовых напряжений RSS, такими как SST- $k\omega$ [32], $-kL$ [33, 34], $-k\epsilon$ [35], $-k\tau$ [36]. Все это в расчетах сложных сдвиговых дисперсных потоков позволяет обоснованно обратиться к SST- $k\omega$ модели. Однако при исследовании реологически сложных систем все еще требуется кропотливая работа по построению и апробации моделей RANS-метода для данных условий [1–5]. Например, Б. Гуо и Г. Лию [37], Р. Стайнсби [38] предлагают нетривиальный подход определения числа Рейнольдса и его критического значения, а также метод, основанный на использовании значений напряжения сдвига на стенках, которое в общем случае неизвестно. Полезной в практике инженерных расчетов смесей выступает формулировка Re, подобно, К. Медленер и соавторам [39], Р. Акари и Н. Фернандес [40] в виде (8):

$$Re = \frac{\rho U_0 D}{\kappa (U_0 / D)^{n-1}}. \quad (8)$$

Последнее позволяет ввести обобщения в постановку задачи, формулировку замыкающих соотношений при расчетах транспорта шлама при эйлерово-лагранжевском подходе в рамках ПО ANSYS CFD-DEM по уравнениям для частиц вида (9) [3, 4, 7, 41]:

$$\frac{du_p}{dt} = F_D(u_f - u_p) + \frac{g_x(\rho_p - \rho_f)}{\rho_p} + F_x. \quad (9)$$

Здесь индекс « p » относится к частицам; F_D – сила гидродинамического сопротивления и F_x – другие возможные внешние силы, например, подъемная сила Саффмена, вращения частиц Магнуса. Замыкания других параметров можно представить в виде (10), подобно [41]:

$$F_D = \frac{3\mu c_d \text{Re}}{4\rho_p d_p^2}, \quad c_d = a_1 + \frac{a_2}{\text{Re}} + \frac{a_3}{\text{Re}^2},$$

$$\text{Re} = \frac{\rho_f d_p |\vec{v}_p - \vec{v}_f|}{\mu_f}. \quad (10)$$

Таким образом, учитывая реофизические особенности течения, допущения, что объемная концентрация твердой фазы является разбавленной (до 10 %), моделирование параметров турбулентности выполняется лишь для жидкой капальной фазы смеси по двухпараметрическим $k-\omega$, L моделям турбулентности, а также по RSS- ω модели [1–4, 7].

Граничные условия. Физическая область течения определяется заданием формы и границ пространства (линейных размеров внешней и внутренней труб, эксцентриситетности). Для динамической части задачи условия состоят в задании на входе в скважину средней скорости потока. Формулировка *теплофизических свойств* связана с заданием: плотности несущей (капельной, дисперсионной) среды и материала частиц (твердой, дисперсной фазы); объемной доли твердой фазы; динамической вязкости и теплопроводности дисперсионной фазы (жидкости). Процессы межфазного взаимодействия определяются заданием силы сопротивления F_D . Далее, согласно [1–4, 42, 43], принимается, что при малых объемных долях и отсутствии эффекта начального вращения дисперсной фазы силами Магнусена, Саффмена, плавучести пренебрегаем. Начальными и граничными условиями для системы уравнений (1)–(10) выступают следующие соотношения со значениями параметров, отвечающих реальному процессу бурения. Причем в начальный момент времени рабочая смесь описывается параметрами, соответствующими первоначальному (характерному) состоянию ее структуры и условиям входа в скважину. Условия на границах являются типичными для внутренних сложных сдвиговых потоков. В частности, выполняются условия прилипания на стенках межтрубного пространства для всех осредненных и пульсационных динамических величин капальной жидкости. Принимаем, что во входном сечении распределения фаз находятся в равновесии. Причем в режимах ламинарного/турбулентного течения поток жидкой фазы может быть развитым (с продольной составляющей вектора скорости в виде профиля, описываемого законом Пуазейля (ламинарный случай), Прандтля–Кармана (закон « $1/7$ », турбулентный случай)). А также возможно течение с однородным распределением фаз по сечению. На выходе – «мягкие» граничные условия для всех искомых параметров. Численное решение задачи строится с учетом деталей, особенностей, проблем построения неявных устойчивых конечно-разностных схем со вторым порядком точности, применения алгоритмов SIMPLE/PISO для определения поля давления, линеаризации СЛАУ с учетом переменности рео- и теплофизических свойств, с учетом внутри- и межфазных взаимодействий в фазах, выбора модели для корректного описания процессов молярного переноса в узких низкорейнольдсовых зонах межтрубного пространства

скважины. Детали итерационного процесса, замечания по отработке блоков построения численного решения динамической и диффузионной частей задачи можно найти, например, в [1–4, 7, 44].

Режимные параметры и условия технологического процесса

Расчеты проводились в геометрической конфигурации кольцевой трубы, представленной на рис. 1, при следующих значениях основных параметров, описывающих гидродинамическую очистку скважин с горизонтальным участком. При длине 10...12 м внутренняя и внешняя трубы имеют диаметры $d=12$ см и $D=20$ см. Заметим, что указанные размеры соответствуют широко распространенным значениям долот и буровых труб в процессах бурения, как в России, так и за рубежом. Межтрубное пространство скважины эксцентрично с $e=75\%$, что характерно для горизонтальных секций. Данные условия адекватны состоянию, при котором буровая труба лежит на своих муфтах на нижней стенке скважины.

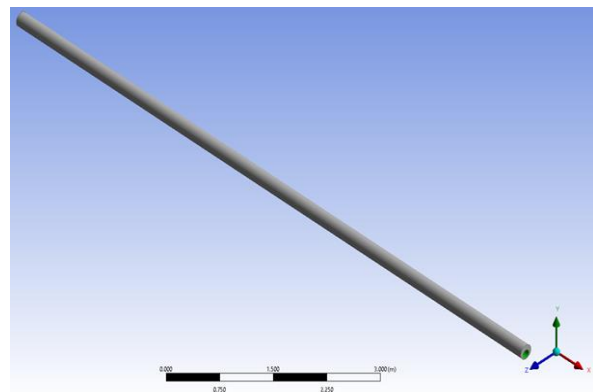


Рис. 1. Схема расчетного участка скважины
Fig. 1. Scheme of well calculated section

При построении численного решения особое внимание уделяется достаточности размера сетки, числа узлов, формы, структуры ячеек для корректного прогноза деталей течений в особых зонах конфигурации. Следует учитывать, что разностная сетка должна быть достаточно «тонкой», чтобы не пропускать важные детали развития течений. Однако чрезмерное увеличение разрешимости сетки ведет к неоправданному росту объема вычислений тонкости. В таких условиях естественным является решение вопроса об оптимальности сетки с точки зрения установления разумного соответствия между данными «цена–качество–точность» конкретного прогноза процесса. В табл. 1 приведены сведения о достаточности узлов, оптимальности сетки в описании деталей очистки скважины в указанных значениях геометрической и гидродинамической конфигурации задачи в оценках изменений перепада поля давления (с точностью до 2 % в узлах сетки) во внутренних стационарных развивающихся изотермических потоках. Расчеты показывают, что приемлемой следует считать сетку H_4 , вид которой представлен на рис. 2.

Таблица 1. Влияние вложенности сеток на точность определения Δp (Па)

Table 1. Influence of mesh resolution on the accuracy of determining Δp (Pa)

Общий размер разностной сетки Total size of mesh elements	Число узлов/Number of nodes			Перепад давления, Δp (Па) Pressure drop Δp (Pa)
	по оси X in X direction	по оси Z in Z direction	по оси Y in Y direction	
$H_1=12900$	100	40	30	11572
$H_2=258000$	200	40	30	11257
$H_3=387000$	300	40	30	11231
$H_4=344000$	200	40	40	12013
$H_5=408000$	200	50	40	11978
$H_6=430000$	200	40	50	12055

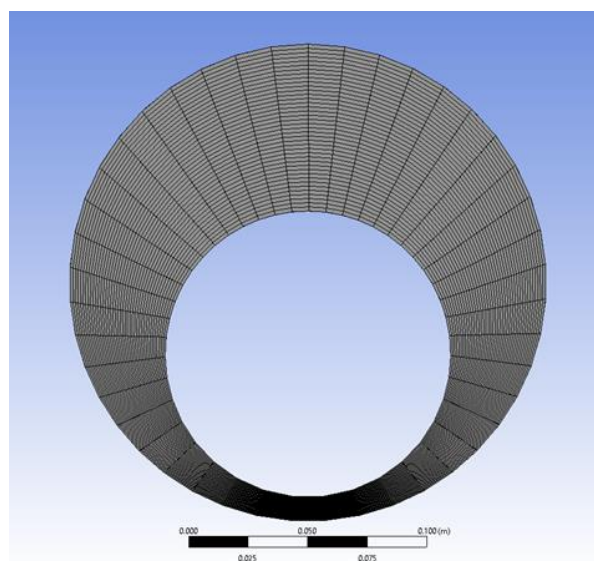


Рис. 2. Структурированная сетка (H_4) и поперечное сечение кольцевой трубы

Fig. 2. Structured grid (H_4) and the cross section of annular tube

В качестве несущей среды выбрана каплевидная жидкость, использованная А. Мохаммедом и С. Мыцка [45] в экспериментах очистки, со следующим реологическими параметрами (табл. 2). Заметим, что раствор с данными значениями наиболее соответствует особенностям и характеру поведения деформационных процессов бурового раствора. Причем в силу отсутствия данных о плотности в работе принимается значение, близкое для пресной воды ($\rho=1000 \text{ кг/м}^3$).

Таблица 2. Реологические свойства жидкости Гершеля–Балкли

Table 2. Rheological characteristics of the Hershel–Bulkley fluid

Предел текучести, τ_0 [Па] Yield strength, τ_0 [Pa]	Индекс консистенции, k [Па·с ⁿ] Consistency index, k [Pa·s ⁿ]	Индекс потока, n [–] Flow index, n [–]
3,7	0,425	0,648

В качестве твёрдой фазы рассматривались монодисперсные сферические частицы песка с плотностью $\rho_p=2650 \text{ кг/м}^3$, диаметром $d_p=6 \text{ мм}$, которые загружаются на входе скважины и увлекаются течением жид-

кости с характерной скоростью U_0 . В расчетах предполагается, что течение смеси организуется при диапазоне изменений весовой доли частиц ($M = \frac{\rho_p^0 \alpha_b}{\rho_{fb}^0}$)

$M=2,654...1,65$ с условием, что из угла каждого элемента сетки, находящегося на входе, одна частица входит в расчетную область. Анализ показывает, что при соответствующем числе частиц песка $N_p=1720$ с параметрами (d_p, ρ_p) имеем общую массу дисперсной фазы транспортируемой жидкостью со значением порядка 0,516 кг, что эквивалентно забуренной долотом с диаметром 20 см размера 0,006 м горной породе. Следует отметить, что здесь пористость породы принята равной нулю, а это с точки зрения режима очистки скважины представляет наихудшую ситуацию.

Сведения по валидации и верификации математической модели

Отметим, что для подобных конфигураций крайне мало лабораторных исследований, позволяющих судить об эволюции динамической структуры фаз. В таких условиях CFD прогноз представляет основной способ контроля неблагоприятных технологических эффектов в широком диапазоне изменений режимов транспорта и очистки скважин. Наш анализ современных библиографических данных [1–4, 7] указывает на то, что самые близкие к режимным параметрам лабораторные исследования были выполнены А. Мохаммедом [45] и получены распределения об изменении отдельных интегральных параметров течения, например, перепада давления в канале с полной эксцентricностью. В нашем случае при $e=70...75\%$ эти данные следует использовать для получения представлений о качественном и количественном соответствии прогнозируемых эффектов очистки, пригодности модели, метода и алгоритма численного решения задачи.

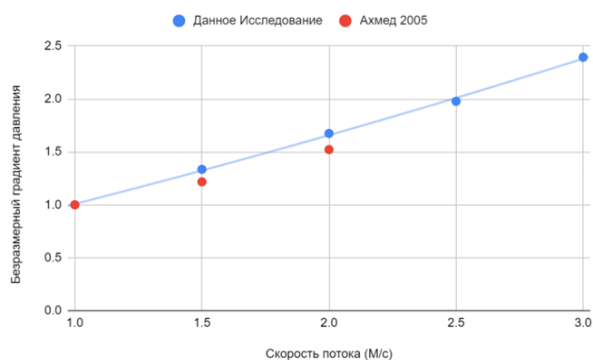


Рис. 3. Распределение безразмерного gradp при течении смеси в скважине в зависимости от скорости потока на входе

Fig. 3. Changes in dimensionless gradp at the mixture flows in the well vs. inlet flow velocity

В частности, на рис. 3 проиллюстрировано распределение безразмерного градиента давления при течении смеси в скважине в зависимости от изменений скорости потока, где линия – настоящий расчет с режимными параметрами реального процесса бурения при $e=75\%$, символы – опыт [45] в условиях, по-

добных расчету при $\epsilon=90\%$. Видно, что предлагаемая методология и ее результаты находятся в удовлетворительном соответствии. Это позволяет утверждать, что особенности, сопровождающие эффекты транспорта и седиментации частиц в донной области скважины также адекватно предсказываются моделью установившегося по времени и развивающегося по межтрубному пространству реологически сложного вязкого течения бурового раствора.

Детали численного метода и алгоритма расчета

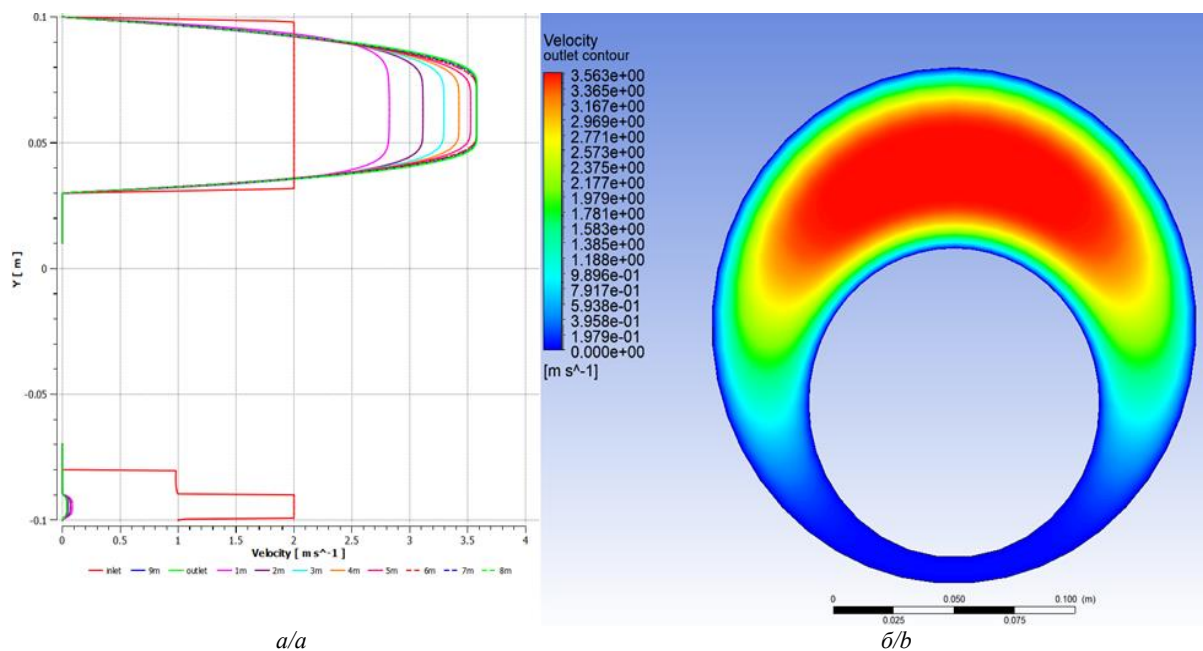
Интегрирование уравнений (1)–(10) выполняется численно на основе операций, отвечающих за: построение разностной сетки расчетной области рассматриваемой задачи; конечно-разностную аппроксимацию дифференциальных уравнений, сводящую уравнения к соответствующему дискретному аналогу; построение системы линейных алгебраических уравнений (СЛАУ) с искомыми величинами для динамической и диффузионной задачи в узловых точках расчетной сетки; решение СЛАУ итерационным методом и определение сходимости решения по удовлетворению критерию малости между решениями, получаемыми на двух последних итерациях с точностью порядка $O(10^{-5})\%$. Подробно эти вопросы изложены, например, в [1–4, 7, 44]. Отметим, что численное решение строится с последовательной отработкой блоков гидродинамической части для описания процессов в жидкой фазе и включением PISO алгоритма и диффузионной части для определения траекторий частиц. Во всех режимах течения результаты были стабильны с общим числом глобальных итераций порядка $2 \cdot 10^4$ на завершающей стадии, погрешности изменений локальных параметров которых были меньше значений по указанному выше критерию устойчивости. Все этапы расчёта (с создания геометрии до обработки результатов) осуществлялись в ПО ANSYS FLUENT 2021 R1. Расчеты показывают, что при шаге установления порядка 10^{-3} с для решения задачи требуется порядка $5 \cdot 10^4$ глобальных итераций, причем время определения отдельной траектории движения частицы по стволу скважины соответствует порядка 500 с. Заметим, что важными в настоящем исследовании эффективности очистки скважины и транспорта раствора выступают интегральные параметры, такие как перепад давления, масса осевших и покинувших горизонтальный участок частиц. Расчетами установлены условия, при которых следует, что чем число частиц ближе к 100 %, тем эффективнее происходит процесс очистки. Кроме того, внесение неопределенностей при моделировании турбулентности неньютоновских жидкостей в рамках RANS-подхода повышает требования к точности их расчета и корректности прогноза переходов вихревой природы в смесях. В настоящее время эти вопросы недостаточно изучены и требуют тщательной настройки на конкретный процесс с уяснением соответствия экспериментальным данным о течении. Отсутствие таких данных приводит к необходимости детального расчета вязкостно-инерционно-гравитационных ламинарных неньютоновских потоков. В настоящей работе этот

класс течений исследован в широком диапазоне изменений чисел Рейнольдса ($Re=200 \dots 2100$).

Результаты и их обсуждение

Представленные ниже результаты объединены в группы, анализ которых позволяет уяснить эффекты, сопровождающие и осложняющие течение в скважине вследствие учета таких факторов, как переменность реофизических свойств раствора, эксцентричность межтрубного пространства, нелинейность конвективно-диффузионных процессов переноса импульса и массы в вязкостно-инерционно-гравитационном течении дисперсной смеси. Отметим, что данные CFD моделирования важны для прикладных и фундаментальных исследований гидродинамической очистки, поскольку указанные факторы как отдельно, так и в комбинации друг с другом представляют собой комплексы параметров для определяющих критериев задачи, в рамках которых формулировка функциональной связи по оптимизации очистки в виде уравнения подобия представляется полезной для проведения успешных операций бурения, определения точного времени и качества бурения, а также момента завершения эксплуатации скважины. Перейдем к анализу результатов.

Влияние эксцентричности бурильной трубы. При бурении протяженных горизонтальных участков бурильная труба под действием силы тяжести лежит на своих муфтах на нижней стенке скважины. В этом случае на величину эксцентричности межтрубного пространства с вероятностью в 70...80 % оказывают влияние такие параметры, как толщина муфты, прочность бурильной трубы, изменение образующей ствола скважины. Исследования течений в таких конфигурациях, выполненные С. Накашима и соавторами [46], Л. Ши и соавторами [47] и В. Дохани и соавторами [48], показали, что вследствие заметного уменьшения перепада давления в системе наблюдается ухудшение выноса шлама. Кроме того, условия течения формируют «мертвые зоны» в донной части скважины, в которой локальные скорости потока значительно ниже в сравнении с верхней областью поперечного сечения. Особенности такого течения иллюстрирует рис. 4, где представлена картина радиальных распределений осевой скорости жидкой фазы в условиях развивающегося течения в отдельных выделенных по длине сечениях скважины (при $x=0$ м (вход), 1–10 м (выход)), а также картина интенсивности изменения осевой скорости жидкости в области выхода ($x=10$ м, рис. 4, справа). Из рис. 4 видно, что по всей длине скважины структура течения сопровождается эффектами развития потока в ядре и пристеночной зоне пограничного слоя в верхней части поперечного сечения (рис. 4, слева). Кроме того, вследствие выраженного влияния сил вязкости в донной части профиль осевой скорости имеет весьма малые абсолютные значения, характерные для «мертвой зоны», и отвечает условиям автомоделльности на длинах порядка $x>1$ м. Все это находится в удовлетворительном соответствии с данными, полученными и Ю. Хашемиан и соавторами [49].



радиальные профили осевой компоненты вектора скорости жидкой фазы в сечениях от входа
radial distributions of axial component of the fluid phase vector velocity at different distances from the entry
Рис. 4. Осевая компонента вектора скорости жидкой фазы
Fig. 4. Axial component of the fluid phase velocity vector

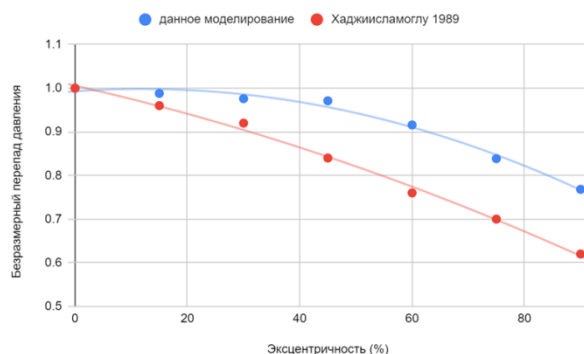


Рис. 5. Изменение величины безразмерного перепада давления ($\Delta p/\Delta p_0$) при течении неньютоновской жидкости в трубе с ростом ее эксцентricности
Fig. 5. Change in dimensionless pressure drop ($\Delta p/\Delta p_0$) of the non-Newtonian fluid in the annular at increasing eccentricity ($e, \%$)

Также интересным представляет вопрос влияния изменений в реологических свойствах диспергированной среды на интегральные параметры течения. В частности, сравнения настоящих расчетов с результатами, полученными М. Хаджиисламоглу [50] об изменении безразмерного перепада давления ($\Delta p/\Delta p_0$, где Δp_0 – значение перепада давления в коаксиальной трубе) в зависимости от эксцентricности буровой трубы ($e, \%$) (рис. 5), позволяют отметить следующее. Как ожидалось, предлагаемая математическая модель качественно верно предсказывает тенденции снижения перепада давления в скважине с ростом e , а также эволюцию динамической структуры неньютоновской смеси по длине скважины. Наблюдаемые количественные различия расчетов с дан-

профиль осевой компоненты вектора скорости жидкой фазы в области выхода
profile of fluid phase axial component of vector velocity at the outlet area

ными [48–53] связаны с тем, что диспергированные жидкости в настоящем расчете (синяя линия) и исследованиях [50] (красная линия) имели близкие, но все же различные реологические параметры и геометрическую конфигурацию межтрубного пространства. Так, В. Дохани [48] анализировал гидродинамику в кольцевом канале при течении жидкости с параметрами: предел текучести $\tau_0=2,394$ Па, индекс консистенции $k=0,25$ Па·сⁿ и индекс потока $n=1$. Кроме того, в отличие от настоящего расчета, отношение между диаметрами труб 0,6, исследование М. Хаджиисламоглу [50] выполнено в геометрии канала при отношении между диаметрами труб 0,5.

Интенсивность внутри- и межфазного массопереноса при течении в скважине смеси со свойствами, представленными в табл. 2, иллюстрируют данные на рис. 6. Здесь приведено изменение числа частиц (об. %) в зависимости от роста эксцентricности ($e, \%$) буровой трубы. Из рисунка видно, что эксцентricность межтрубного пространства существенно влияет на процессы транспорта частиц в скважине. В частности, число частиц, успевших пройти рабочую область с горизонтальным участком скважины (от момента входа до выхода из скважины за характерное гидродинамическое время процесса $\tau_{гд}=500$ с, где $\tau_{гд}=L/(D-d)$) снижается с ростом e . Причем в диапазоне $e=20...50 \%$ влияние геометрических эффектов межтрубного пространства на динамику смеси наиболее выражено. Установлено, что в рамках выбранной гидродинамической конфигурации течения при эксцентricности буровой трубы $e<50 \%$ следует ожидать интенсификации процесса осаждения частиц. И в дальнейшем в условиях стационарного течения смеси с ростом e процесс седиментации приобретает черты устано-

вившегося эффекта при очистке скважины. Более того, данные на рис. 6 показывают, что для анализируемого потока эксцентricность в диапазоне $e=15...30\%$ представляется особой с точки зрения ожиданий существенного засорения шламом скважины и ухудшения ее очистки гидродинамическим способом. Эти значения e следует отнести к геометрическим условиям формирования «мёртвой зоны» течения.

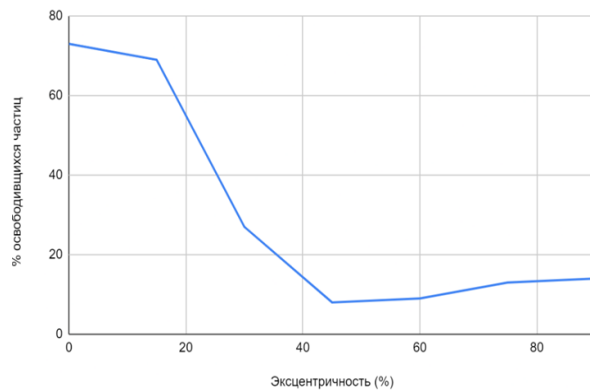


Рис. 6. Изменения объемной концентрации выносимого шлама из скважины в зависимости от эксцентricности

Fig. 6. Changes in the volume concentration of cuttings removed from the well depending on eccentricity

Эффект влияния индекса потока. Вторым по значимости фактором в спектре свойств бурового раствора, изменение которых способно оказать влияние на интенсивность очистки, является индекс потока. Транспорт смеси в неньютоновских средах обеспечивается повышенными затратами энергии для преодоления гидравлического сопротивления из-за роста градиента давления. Данные расчета распределений безразмерного перепада давления ($\Delta p/\Delta p_0$) в зависимости от изменений индекса потока при течении в эксцентricной трубе с $e=75\%$ жидкости Гершеля–Балкли со скоростью входа $U_0=2$ м/с приведены на

рис. 7. Заметим, что нормировка перепада давления осуществляется по соответствующему значению для коаксиальной трубы ($e=0$).

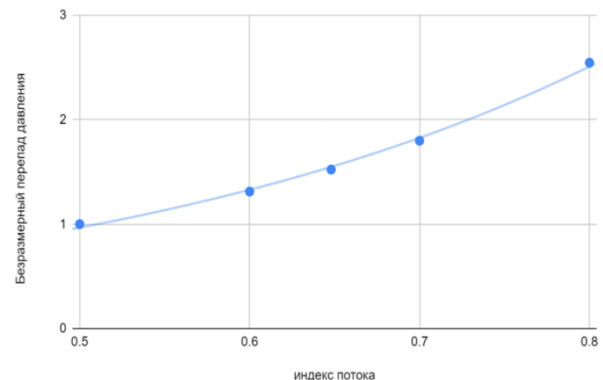


Рис. 7. Распределение безразмерного перепада давления ($\Delta p/\Delta p_0$) в зависимости от изменений индекса потока

Fig. 7. Distribution of dimensionless pressure drop ($\Delta p/\Delta p_0$) depending on changes in the flow index

Анализ эффектов, сопровождающих гидродинамику вязкостно-инерционного внутреннего течения реологически сложной среды, показывает, что в сравнении с ньютоновской жидкостью кажущаяся (эффективная) вязкость в двумерном потоке с преобладающим осевым направлением и соответствующими компонентами скоростей деформаций $\dot{\gamma}_{xy} = \frac{\partial u}{\partial y}$ может быть представлена в виде (11):

$$\mu_{eff} = \frac{\tau_0}{\partial u / \partial y} + \kappa \left(\frac{\partial u}{\partial y} \right)^{n-1}. \quad (11)$$

Из (11) следует, что в зонах, где скорость сдвига $\dot{\gamma}_{xy}$ мала, кажущаяся вязкость будет достигать своих максимальных значений, и наоборот.

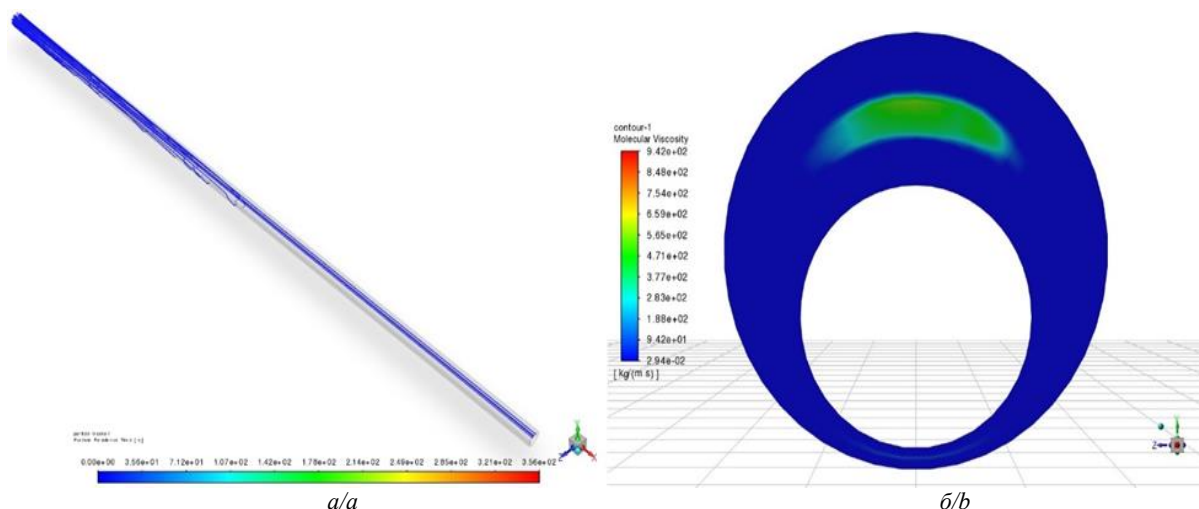


Рис. 8. Влияние зоны высокой вязкости на интенсивность очистки скважины

Fig. 8. Effect of the high viscosity zone on cuttings transport

Отметим, что области с высокими значениями вязкости отличаются эффектами течения, характерными для «конвейерной ленты», захватывающей и транспортирующей частицы шлама через межтрубное пространство смеси. Условная ширина этой зоны зависит от индекса потока, режима течения и геометрии скважины. Гидродинамические процессы «конвейерной ленты» иллюстрируют данные, представленные на рис. 8. На этом рис. расчеты соответствуют: (а) изменению траекторий частиц по стволу скважины; (б) эффективной вязкости в радиальном сечении на выходе из скважины. Условия течения отвечают параметрам $U_0=2$ м/с и свойствам базовой неньютоновской жидкости (табл. 2).

Расчеты показывают, что в неустановившемся течении параметры модели неньютоновской среды оказывают решающее влияние на интенсивность выноса шлама и прогноз этих процессов возможен только при использовании численных процедур, способных корректно определять динамику и перепад поля давления в эксцентричном пространстве (рис. 9).

Установлено, что рост индекса потока снижает роль нелинейных эффектов в диффузионных процессах, уменьшает инерционные механизмы выноса шлама и формирует условия для роста размеров пласта отложений. Также из анализа данных рис. 8, 9 следует, что чем сильнее нелинейность реологических процессов в смеси (течение при малых n), тем больше частиц успевают совершить свой путь за определённое время. Подобно Ю. Хашемиан и соавторам [49], это явление можно интерпретировать так, что с увеличением индекса потока профиль скорости имеет тенденции к параболизации. Поэтому ширина зоны высокой вязкости сокращается

(рис. 10). На этом рисунке приведены радиальные распределения осевой скорости смеси при течении в скважине раствора с индексом потока $n=0,8$, эксцентricностью $e=75\%$ в выделенных по длине поперечных сечениях. Кроме того, данные рис. 10, а отвечают распределениям скорости на разных длинах x ; рис. 10, б – скорости в выходном сечении. В целом из рис. 10, а, б следует, что в верхней части поперечного сечения скважины профили стали более обостренными в ядре течения (данные рис. 10, а). Это привело к тому, что в картине изменений осевой скорости в выходном сечении скважины не наблюдается зоны повышенных значений вязкости (рис. 10, б). Причем в донной части эксцентричного пространства течение почти отсутствует и интенсифицируется накопление шлама (рис. 10, а).

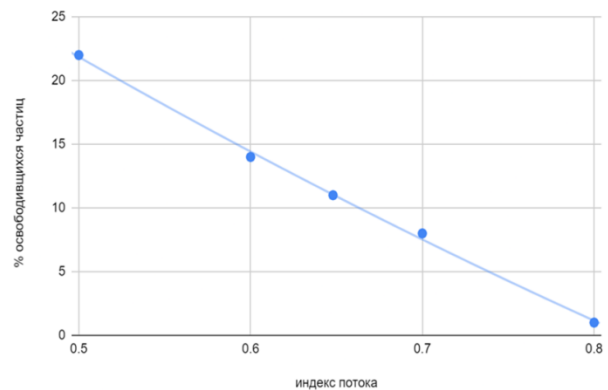


Рис. 9. Распределение объемной концентрации выносимых из скважины частиц в зависимости от изменений индекса потока

Fig. 9. Distribution of volumetric concentration of particles removed from the well depending on changes in flow index

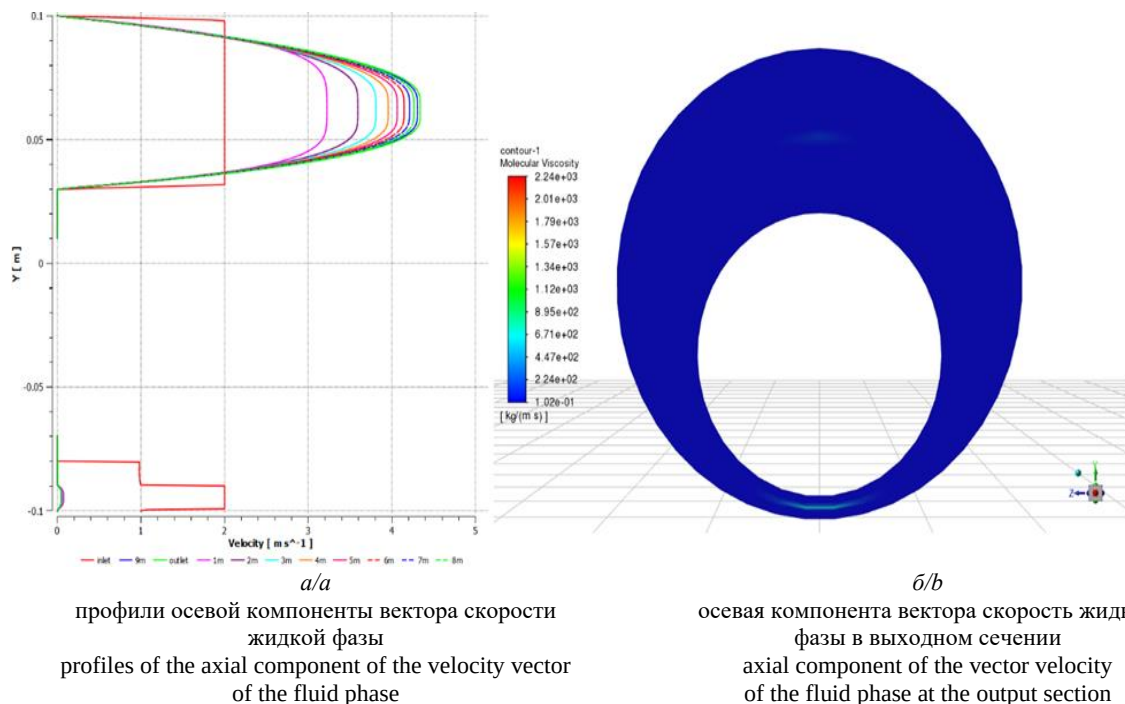


Рис. 10. Радиальные распределения осевой скорости при течении в скважине

Fig. 10. Radial axial velocity distributions during well flow

Влияние предела текучести. Особенности этого эффекта демонстрируют результаты, приведенные на рис. 11. Здесь представлено изменение безразмерного перепада давления ($\Delta p/\Delta p_0$) в зависимости от увеличения предела текучести в реологической модели раствора. Расчеты выполнены в условиях: $U_0=2$ м/с, $e=75$ %. В сравнении с данными рис. 7–10 (по учету влияния индекса потока на поле давления) из рис. 11 следует, что варьирование значений предела текучести оказывает слабое влияние на перепад поля давления. Так, при росте индекса потока на 50 % наблюдается увеличение перепада давления до 100 %. Но здесь рост предела текучести в 15 раз приводит к увеличению перепада давления только на 80 %.

Также расчетами установлено (рис. 12, где течение отвечает условиям: $U_0=2$ м/с; $e=75$ %), что, несмотря на относительно слабое влияние изменений значений предела текучести на перепад давления, имеется возможность интенсификации выноса шлама из скважины. Из рис. 12 видно, что оптимизация значений предела текучести до значений $\tau_0 < 7$ Па ведет к интенсификации процесса выноса частиц из скважины. Однако впоследствии этот процесс стабилизируется, на что указывает изменение объемной концентрации частиц при $\tau_0=7\ldots 11$ Па. Кроме того, из рис. 11 следует, что при этих значениях τ_0 перепад давления увеличивается только на 30 %. Поэтому наряду с уменьшением индекса потока n следует увеличивать значения τ_0 для организации оптимального управления процессом очистки с контролем значений перепада давления.

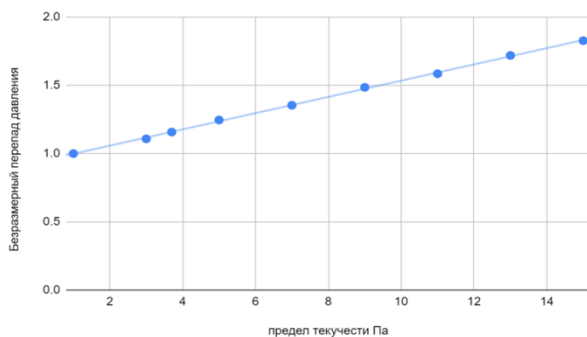


Рис. 11. Изменение безразмерного перепада давления ($\Delta p/\Delta p_0$) в зависимости от увеличения предела текучести

Fig. 11. Changes in dimensionless pressure drop ($\Delta p/\Delta p_0$) with increasing yield strength

Влияние на транспорт и очистку скважины индекса консистенции бурового раствора. Наши исследования показывают, что на перепад поля давления большее влияние оказывает изменение индекса консистенции, затем изменения индекса потока и предела текучести. Согласно рис. 13, где представлено распределение безразмерного перепада давления от индекса консистенции при течении базовой буровой жидкости в скважине, видно, что анализируемая связь линейная с коэффициентом пропорциональности для перепада давления порядка $\sigma=2$. Также на рис. 14 приведены сведения о распределении числа транс-

портируемых частиц раствором в условиях свободного их выноса из горизонтального участка скважины при параметрах течения $U_0=2$ м/с, $e=75$ %. Расчетами установлено, что, как в случае с индексом потока, индекс консистенции тоже формирует обратный эффект на очистку, т. е. чем меньше значение индекса консистенции, тем больше количество выносимых частиц из межтрубного пространства. Но, как и в случае с анализом влияния предела текучести, есть определенный диапазон изменений этого параметра, который сформировался заданной геометрической и гидродинамической конфигурациями задачи, вне которого этот эффект значительно слабеет. В данном случае это значения индекса консистенции порядка $0,5 \text{ Па} \cdot \text{с}^n$.

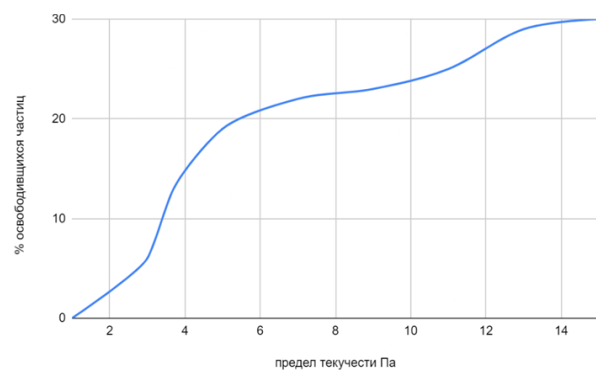


Рис. 12. Влияние изменений предела текучести на количество вынесенных частиц из межтрубного пространства скважины

Fig. 12. Effect of yield strength on the percentage of escaped particles

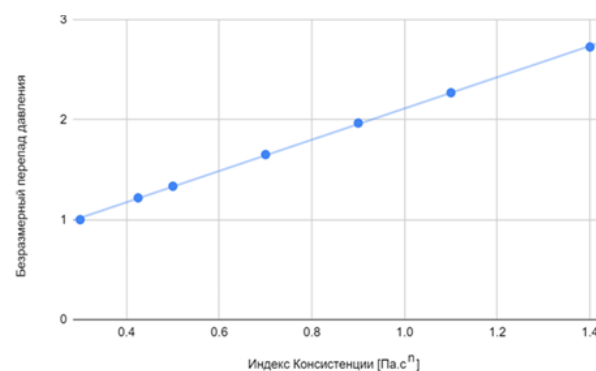


Рис. 13. Распределение безразмерного перепада давления ($\Delta p/\Delta p_0$) от индекса консистенции

Fig. 13. Changes in dimensionless pressure drop ($\Delta p/\Delta p_0$) with increasing consistency index

Эффект отношения диаметров. Также одним из важнейших параметров, влияющих и на перепад давления, и на очистку, является отношение между диаметрами буровой колонны и скважины. Как видно из рис. 15 (расчеты отвечают условиям $U_0=2$ м/с, $e=75$ %), этот геометрический параметр очень сильно влияет на перепад давления и его увеличение на 40 % ведёт к увеличению перепада давления до 90 %. Это весьма предсказуемо, так как с увеличением диаметра буровой колонны по отношению к диаметру скважины свободное пространство между ними уменьша-

ется и, следовательно, перепад давления будет возрастать, при этом увеличение сопровождается экспоненциальным характером. Учитываем, что, когда отношение диаметров приближается к единице, свободное пространство между ними исчезает и возникает сингулярность процесса (перепад давления становится неограниченно большим).

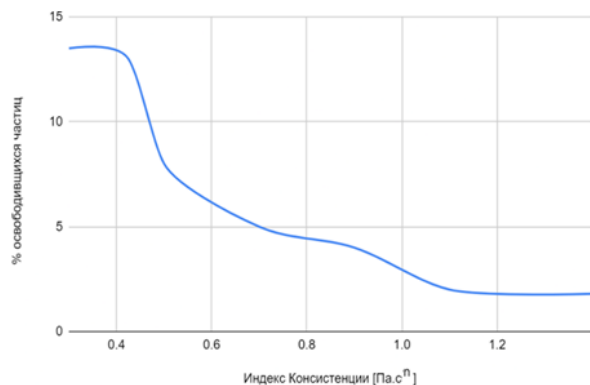


Рис. 14. Распределение объемной концентрации вынесенных потоком свободных частиц в зависимости от индекса консистенции

Fig. 14. Effect of consistency index on the percentage of escaped particles

Анализ результатов расчета показывает, что, как и индекс потока, и индекс консистенции, так и отношение диаметров вызывает обратный эффект на очистку скважины, т. е. чем меньше отношение диаметров, тем больше свободное пространство для выноса шлама и, соответственно, большее количество частиц способно покинуть скважину за характерное гидродинамическое время. Из рис. 16 (расчеты отвечают условиям $U_0=2$ м/с, $e=75\%$) видно, что при отношении диаметров порядка единицы число освобожденных частиц стремится к нулю. Поэтому с целью улучшения очистки и уменьшения перепада давления целесообразно стремиться к малым значениям отношений между диаметрами труб.

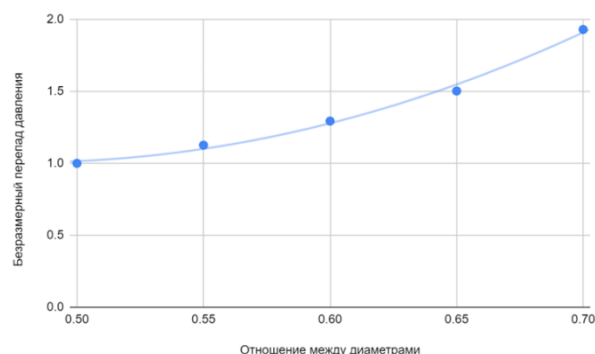


Рис. 15. Распределение безразмерного перепада давления ($\Delta p/\Delta p_0$) в зависимости от изменения величины отношений между диаметрами

Fig. 15. Changes in dimensionless pressure drop ($\Delta p/\Delta p_0$) with increasing diameter ratio

Влияние средней скорости транспортируемого раствора в области входа на интенсивность очист-

ки скважины. Изменение расхода в области входа, как и изменение средней скорости, оказывает влияние на рост перепада давления. Причем это влияние слабее, чем влияние индекса консистенции (здесь коэффициент пропорциональности меньше единицы). Как видно из рис. 17 (расчеты выполнены в условиях $e=75\%$), влияние скорости на очистку скважины сравнительно слабее. Так как при увеличении скорости входа в два раза перепад давления увеличивается до 70 %, при этом число выносимых частиц уменьшается с 13 до 11 %.

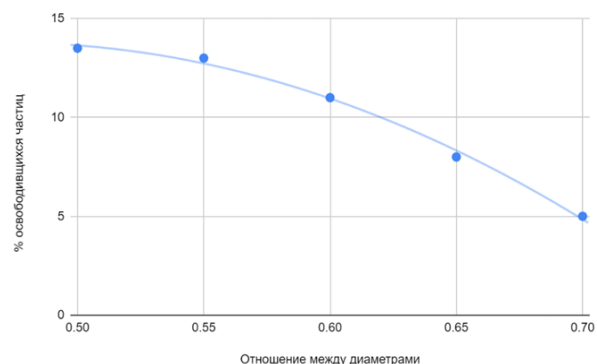


Рис. 16. Распределение объемной концентрация выносимых свободных частиц в зависимости от величины отношения диаметров

Fig. 16. Effect of diameter ratio on the percentage of escaped particles

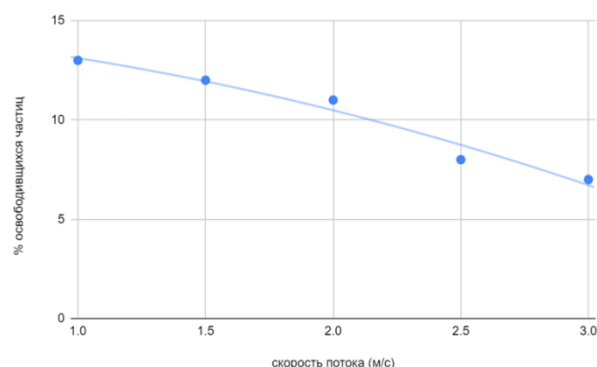


Рис. 17. Распределение объемной концентрация выносимых свободных частиц из скважины в зависимости от изменений скорости входа в скважину

Fig. 17. Distribution of the volumetric concentration of free particles removed from the well depending on changes in the rate of entry into the well

Выводы

В настоящем исследовании выполнено численное моделирование гидродинамики ламинарного дисперсного потока смеси неньютоновской капельной жидкости с твердыми частицами в кольцевой эксцентричной трубе с целью уяснения особенностей течения, выявления закономерностей движения, а также оптимизации процесса транспорта и очистки межтрубного пространства скважины с горизонтальным участком от продуктов буровой выработки. В рамках реального процесса бурения с характерными условиями вязкостно-инерционно-гравитационного

несжимаемого изотермического течения вязкопластической среды с частицами песка сферической формы проведен детальный параметрический анализ пространственных эффектов, определяющих интенсивность массопереноса из-за изменения реофизических, геометрических и гидродинамических свойств течения и размеров скважины. Определение эффективности очистки сводится к фактам: увеличение количества частиц, покинувших геометрию за характерное гидродинамическое время процесса; контроль механизмов переноса импульса и массы в смеси, а также управление увеличением перепада давления в развивающемся течении. Численное моделирование соответствовало сценариям течения смеси с разными параметрами геометрии (размеров длин, диаметров и эксцентricности труб) и бурового раствора (неньютоновской реологии), и его результаты приводят к следующим заключениям.

1. Полная очистка скважины при использовании растворов типа Гершеля–Балкли во время бурения в ламинарном режиме невозможна. И в любом случае необходимо будет останавливать бурение и очищать скважину через установленное время. Однако можно увеличивать промежуток между этими периодами очистки, корректно выбирая (в рамках предложенной вычислительной технологии) значения реофизических свойств растворов и геометрии межтрубного пространства.
2. Самым эффективным методом улучшения очистки является метод контроля эксцентricности межтрубного пространства. Практические рекомендации сводятся к необходимости контроля эксцентricности в диапазоне $e < 15\%$. Отметим, что, к сожалению, в большинстве случаев это невозможно при стандартном бурении. Но возможно только при бурении небольших участков с помощью калибраторов.
3. Эффективным в интенсификации очистки выступает метод управления геометрическим параметром, представляющим собой отношение между диаметрами труб. Этот параметр оказывает заметное влияние на уменьшение перепада давления с условием, что чем меньше диаметр буровой колонны в сравнении с диаметром долота (и, следовательно, скважины), тем меньшего перепада давления следует ожидать в скважине в технологическом процессе бурения.
4. Характерное значение скорости потока в области входа в скважину в рабочем процессе бурения иг-

рает незначительную роль в сравнении с другими параметрами, ответственными за интенсификацию очистки, т. е. на процент пробуренных частиц, освободившихся от геометрии, или, другими словами, на скорость накопления шлама. В качестве практических рекомендаций следует предложить, что, когда с помощью других параметров не удастся интенсификация полной очистки, следует подключить метод оптимизации очистки по управлению изменением скорости на входе. Это позволит ускорить процесс и, таким образом, обеспечит бурение с высокими скоростями.

5. Из параметров модели Гершеля–Балкли индекс потока является важнейшим с точки зрения очистки скважины. Установлено, что при малых значениях этого параметра профиль скорости становится плоским и в этих плоских участках скорость сдвига приближается к нулю, увеличивая кажущуюся вязкость до высоких значений. Таким образом, создается некая «конвейерная лента» высокой вязкости, которая способна быстро транспортировать частицы шлама через геометрию. Более того, при уменьшении индекса потока перепад давления тоже значительно снижается. Поэтому индекс потока следует считать наиважнейшим из всех параметров, подлежащих управлению на предмет интенсификации очистки.
6. Индекс консистенции, как и индекс потока, оказывает обратное влияние на процесс перепада поля давления и эффективность очистки скважины. Хотя эффект влияния индекса консистенции слабее в сравнении с эффектом от изменений индекса потока. Такое заключение характерно для процесса с определенными условиями, сформированными конкретной геометрической и гидродинамической конфигурациями течения и скважины.
7. Установлено, что с увеличением предела текучести перепад давления и эффективность очистки увеличиваются. Но, с одной стороны, влияние этого параметра на перепад давления не так сильно и, с другой стороны, его влияние на очистку заметно выражено только до определённого значения. Поэтому для практики рекомендуется организовать процесс бурения так, чтобы его увеличивали только до порогового значения, соответствующего деталям конфигураций течения и реальным значениям геометрических параметров скважины.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Харламов С.Н., Джангхорбани М., Филиппов К.А. Математическое моделирование и методы исследования гидродинамической очистки горизонтальных скважин // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2021. – Т. 332. – № 8. – С. 53–73.
2. Харламов С.Н., Джангхорбани М. Численное исследование вязкостно-инерционного ламинарного закрученного течения в круглой трубе с эксцентricным круглым ядром // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2021. – Т. 332. – № 11. – С. 7–21.
3. Харламов С.Н., Джангхорбани М. Численное моделирование течений вязких смесей бурового шлама и потока сырой нефти

на горизонтальных участках скважин с эксцентricными буровыми трубами // Новые вызовы фундаментальной и прикладной геологии нефти и газа – XXI век: Материалы Всероссийской научной конференции с участием иностранных ученых, посвященной 150-летию акад. АН СССР И.М. Губкина и 110-летию акад. АН СССР и РАН А.А. Трофимука. Секция 2. Геология нефти и газа. Подсекция 3. Нефтегазопромысловая геология. – Новосибирск: ИПЦ НГУ, 2021. – С. 221–224. DOI: 10.25205/978-5-4437-1248-2-221-224. URL: http://gubkin-trofimuk2021.ipgg.sbras.ru/prepare_materials (дата обращения 15.05.2022).

4. Харламов С.Н., Джангхорбани М. Процедуры и инструментальный мониторинг процессов и механизмов транспорта шлама при гидравлической очистке горизонтальных скважин // Изве-

- ствия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2020. – Т. 331. – № 12. – С. 22–40. URL: <https://doi.org/10.18799/24131830/2020/12/2936> (дата обращения 15.05.2022).
5. Kharlamov S.N., Kim V.Yu., Silvestrov S.I. Numerical modeling of a vortical investigation of heat transfer in fields of centrifugal mass forces in elements of the power equipment with a curvilinear wall // The 5th Proc. of the International Forum on Strategic Technology (IFOST. 2010). – Ulsan, South Korea, October, 13–15, 2010. – P. 105–109.
 6. Kharlamov S.N., Kudelin N.S., Dedeyev P.O. Hydrodynamic, heat and acoustic processes modelling in transport of rheologically complex viscous media technology in pipelines // XVIII International Scientific Symposium in Honour of Academician M.A. Usov: PGON2014 IOP Publishing IOP Conference Series: Earth and Environmental Science 21. – Tomsk, Russia, 2014. – P. 1. – 6 p.
 7. Modeling of dynamic cuttings transportation during drilling of oil and gas wells by combining 2D CFD and 1D discretization approach / F. Zhang, Y. Wang, Y. Wang, S. Miska, M. Yu // SPE Journal. – 2020. – V. 25. – Iss. 3. – № 6. – P. 21–42.
 8. Computational Fluid Dynamics (CFD) as a tool to study cutting transport in wellbores / H.I. Bilgesu, M.W. Ali, K. Aminian, S. Ameri // The Eastern Regional Meeting of the Society of Petroleum Engineers. – Lexington, Kentucky, USA, October 2002. – 27 p.
 9. Solid-liquid hydrodynamics in a slim hole drilling annulus / S.-M. Han, H. Young-Kyu, W. Nam-Sub, K. Young-Ju // Journal of Petroleum Science and Engineering. – 2010. – V. 70. – № 3–4. – P. 308–319.
 10. Effect of drillpipe rotation on cuttings transport using computational fluid dynamics (CFD) in complex structure wells / S. Xiaofeng, K. Wang, T. Yan, S. Shao, J. Jiao // Journal of Petroleum Exploration and Production Technology. – 2014. – V. 4. – № 3. – P. 255–261.
 11. Simulation of cuttings transport with foam in deviated wellbores using computational fluid dynamics / R. Rooki, D.A. Faramarz, A. Moradzadeh, M. Norouzi // Journal of Petroleum Exploration and Production Technology. – 2014. – V. 4. – № 3. – P. 263–273.
 12. Ofei T.N., Irawan S., Pao W. CFD method for predicting annular pressure losses and cuttings concentration in eccentric horizontal wells // Journal of Petroleum Engineering. – 2014. – № 4. – P. 110–120.
 13. Kamyab Mohammadreza, Vamegh Rasouli. Experimental and numerical simulation of cuttings transportation in coiled tubing drilling // Journal of Natural Gas Science and Engineering. – 2016. – V. 29. – P. 284–302.
 14. Hole-cleaning performance comparison of oil-based and water-based drilling fluids / Sayindla Sneha, L. Bjørnar, J.D. Ytrehus, A. Saasen // Journal of Petroleum Science and Engineering. – 2017. – V. 159. – P. 49–57.
 15. Heydari Omid, Eghbal Sahraei, Pål Skalle. Investigating the impact of drillpipe's rotation and eccentricity on cuttings transport phenomenon in various horizontal annuli using computational fluid dynamics (CFD) // Journal of Petroleum Science and Engineering. – 2017. – V. 156. – P. 801–813.
 16. Харламов С.Н., Фатьянов Д.С. Исследование структуры турбулентного потока природного сырья в трубопроводах с секцией переменного по длине поперечного сечения конфузorno-диффузорного типа // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2020. – Т. 331. – № 8. – С. 53–67.
 17. Харламов С.Н., Фатьянов Д.С. Моделирование пространственных течений вязких сред в системе каналов с участками соединений сложной формы // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2021. – Т. 332. – № 5. – С. 70–88.
 18. Kharlamov S.N., Alginov R.A. Engineering approaches' progress in calculation of inhomogeneous turbulence in pipelines // Society of Petroleum Engineers – SPE Russian Oil and Gas Technical Conference and Exhibition. – Moscow, Russia, 2010. – V. 2. – P. 798–805.
 19. Numerical prediction of flow behavior of cuttings carried by Herschel-Bulkley fluids in horizontal well using kinetic theory of granular flow / Pang Boxue, Shuyan Wang, Guodong Liu, Xiaoxue Jiang, Huilin Lu, Zhenjie Li // Powder Technology. – 2018. – V. 329. – P. 386–398.
 20. Gidaspow D. Multiphase flow and fluidization: continuum and kinetic theory descriptions. – Sand Diego: Academic press, 1994. – 467 p.
 21. Syamlal Madhava, O'Brien T.J. The derivation of a drag coefficient formula from velocity-voidage correlations // Technical Note. – Morgantown, WV: US Department of energy, Office of Fossil Energy, NETL, 1987. – P. 1–11.
 22. Mme U., Pål Skalle. CFD calculations of cuttings transport through drilling annuli at various angles // International Journal of Petroleum Science and Technology. – 2012. – V. 6. – № 2. – P. 129–141.
 23. Epelle E.I., Gerogiorgis D.I. CFD modelling and simulation of drill cuttings transport efficiency in annular bends: effect of particle sphericity // Journal of Petroleum Science and Engineering. – 2018. – V. 170. – P. 992–1004.
 24. Akhshik Siamak, Majid Rajabi. CFD-DEM modeling of cuttings transport in underbalanced drilling considering aerated mud effects and downhole conditions // Journal of Petroleum Science and Engineering. – 2018. – V. 160. – P. 229–246.
 25. Movahedi H., Jamshidi S. Experimental and CFD simulation of slurry flow in the annular flow path using two-fluid model // Journal of Petroleum Science and Engineering. – 2021. – V. 198. – № 3 (108224). – P. 1–19.
 26. Нигматулин Р.И. Динамика многофазных сред. – М.: Наука, 1987. – Т. 1. – 464 с.
 27. Yeoh G.H., Tu J. Computational techniques for multi-phase flows. 2nd ed. – Butterworth-Heinemann: Elsevier Ltd, Inc., 2019. – 590 p.
 28. Crowe C.T. Review- numerical models for dilute gas-particle flows // ASME Journal of Fluids Engineering. – 1982. – V. 104 (Sept.). – P. 297–303.
 29. Tanner R.I., Milthorpe J.F. Numerical simulation of the flow of fluids with yield stresses // Proc. of the International Conference on Numerical Methods in Laminar and Turbulent Flow. – Swansea: Pineridge Press, 1983. – P. 680–690.
 30. Mitsoulis E. Flows of viscoplastic materials: models and computations // Rheology. – 2007. – № 135. – P. 66–78.
 31. Taibi H., Messelmi F. Effect of yield stress on the behavior of rigid zones during the laminar flow of Herschel-Bulkley fluid // Alexandria Engineering Journal. – 2018. – V. 57. – № 2. – P. 1109–1115.
 32. Menter F.R. Two-equation eddy-viscosity turbulence models for engineering applications // AIAA Journal. – 1994. – V. 32. – № 8. – P. 1598–1605.
 33. Prospects of RANS models with effects multiparameter at modeling of complex non-isothermal flows of viscous media in devices with any configuration of surface / S.N. Kharlamov, V.Yu. Kim, S.I. Silvestrov, R.A. Alginov, S.A. Pavlov // Proc. of the 6th International Forum on Strategic Technology. – Heilongjiang, Harbin, China, 2011. – V. 2. – P. 787–791. DOI: 10.1109/IFOST.2011.6021139
 34. Глушко Г.С. Дифференциальное уравнение для масштаба турбулентности и расчет турбулентного пограничного слоя на плоской пластине // Турбулентное течение. – М.: Наука, 1970. – С. 34–44.
 35. Launder B.E. On the computation of convective heat transfer in complex turbulent flows // Journal of Heat Transfer. – 1988. – V. 110. – P. 1112–1128.
 36. Chien W.L., Lien F.S., Leschziner M.A. Computational modelling of turbulent flow in turbomachine passage with low-re two-equation models // Computational Fluid Dynamics. – 1994. – V. 1. – P. 517–524.
 37. Boyun Guo, Gefei Liu. Applied drilling circulation systems: hydraulics, calculations and models. – Burlington: Gulf Professional Publishing, 2011. – 272 p.
 38. Chilton R.A., Stainsby R. Pressure loss equations for laminar and turbulent non-Newtonian pipe flow // Journal of Hydraulic Engineering. – 1998. – V. 124. – № 5. – P. 522–539.
 39. Madlener K., Frey B., Ciezki H.K. Generalized Reynolds number for non-Newtonian fluids // Program of Propulsion Physics. – 2009. – № 1. – P. 237–250.
 40. A Well-balanced finite volume-augmented Lagrangian method for an integrated Herschel-Bulkley model / R.C. Acary,

- N.E.D. Fernandez, R.G. Narbona, P. Vigneaux // Journal of Scientific Computing. – 2012. – V. 53. – P. 608–641.
41. Morsi S.A., Alexander A.J. An investigation of particle trajectories in two-phase flow systems // Journal of Fluid Mechanics. – 1972. – V. 55. – № 2. – P. 193–208.
42. Ди Джачинто, Сабетта Р., Пива К. Эффекты двустороннего взаимодействия в газовых потоках с неплотным множеством частиц // Теоретические основы инженерных расчетов. – 1982. – Т. 104. – № 3. – С. 122–131.
43. Miloshevich H. Modelling of two-phased turbulent flows in jets with burning particles and phase transition in them // Proc. of the 4th European CFD conference. – Athens, Greece, 1998. – V. 1. – Pt. 1. – P. 175–179.
44. Бубенчиков А.М., Харламов С.Н. Математические модели неоднородной анизотропной турбулентности во внутренних течениях. – Томск: Томский государственный университет, 2001. – 448 с.
45. Mohammed A.R., Miska S.Z. Experimental study and modeling of yield power-law fluid flow in annuli with drillpipe rotation // IADC/SPE Drilling Conference, OnePetro. – Houston, Texas, USA, 2008. – P. 1–16.
46. Nakashima C.Y., Oliveira S. Jr., Caetano E.F. Calculation of pressure drop in narrow rotating annular clearances // Revista de Engenharia Térmica. – 2008. – V. 7. – № 2. – P. 27–34.
47. Xie L., Chaudhary S., Chen Z. Analysis of the effect of eccentricity on displacement of non-Newtonian fluids with a hybrid method // SPE Annual Technical Conference and Exhibition. OnePetro. – Houston, Texas, USA, 2015. – № 9 (September). – P. 1–13.
48. Effects of drill string eccentricity on frictional pressure losses in annuli / V. Dokhani, Yue Ma, Zili Li, Tie Geng, Mengjiao Yu // Journal of Petroleum Science and Engineering. – 2020. – V. 187. – № 106853. – P. 1–17.
49. Accurate predictions of velocity profiles and frictional pressure losses in annular YPL-fluid flow / Y. Hashemian, M. Yu, S. Miska, S. Shirazi, R. Ahmed // Journal of Canadian Petroleum Technology. – 2014. – V. 53. – № 6. – P. 355–363.
50. Haciislamoglu M. Non-Newtonian fluid flow in eccentric annuli and its application to petroleum engineering problems. PhD thesis. – Louisiana, 1989. – 231 p.
51. Vaziri E., Simjoo M., Chahardowli M. Application of foam as drilling fluid for cuttings transport in horizontal and inclined wells: a numerical study using computational fluid dynamics // Journal of Petroleum Science and Engineering. – 2020. – V. 194. – № 11 (November, 107325). – P. 1–16. URL: <https://doi.org/10.1016/j.petrol.2020.107325> (дата обращения 15.05.2022).
52. CFD modeling of particle settling in drilling fluids: Impact of fluid rheology and particle characteristics / M.A. Abdelrahman, A.H. Ibelwaleed, S.N. Mustafa, K. Hamidreza, A. Ramadan // Journal of Petroleum Science and Engineering. – 2021. – V. 199. – № 4 (April, 108326). – P. 1–13. <https://doi.org/10.1016/j.petrol.2020.108326>
53. Харламов С.Н., Джанхорбани М. Процессы транспорта шлама при очистке скважин с произвольной ориентацией буровых труб, содержащих эксцентрично расположенное круглое ядро с подвижной стенкой: проблемы, результаты, перспективы (обзор) // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2020. – Т. 331. – № 7. – С. 131–149.

Поступила 04.06.2022 г.

Информация об авторах

Харламов С.Н., профессор, доктор физико-математических наук, профессор отделения нефтегазового дела Инженерной школы природных ресурсов Национального исследовательского Томского политехнического университета.

Джанхорбани М., аспирант отделения нефтегазового дела Инженерной школы природных ресурсов Национального исследовательского Томского политехнического университета.

UDC 504.61:532.542: 536.252

OPTIMIZATION OF RHEOLOGICAL PROPERTIES OF DRILLING MUD INTENSIFYING TRANSPORTATION AND CLEANING OF HORIZONTAL WELLS FROM CUTTINGS

Sergey N. Kharlamov¹,
kharsn@mail.ru

Janhorbani Mehran¹,
mehran.janghorbani@gmail.com

¹ National Research Tomsk Polytechnic University,
30, Lenin avenue, Tomsk, 634050, Russia.

The relevance of this article is associated with the practical need for effective well cleaning in modern drilling especially in the case of extended horizontal sections, in which it is important to control dynamic pressure, which is very sensitive to changes in the rheological properties of drilling fluids described by complex deformation processes in viscous-plastic systems. For the most part, these are Herschel–Bulkley type fluids with three-constant parameters, each of which can significantly affect the pressure field drop and the ability of the solution to carry cuttings through the specific geometry of the eccentric annular space of horizontal wells. The study of the complex influence of the parameters of the rheological model is valuable and relevant for optimizing the cleaning process and preventing well control situations due to the danger of an excessive increase in pressure drop in the working units of the equipment.

The purpose of the work is to determine the degree of influence of changes in the parameters of the Herschel–Bulkley model on the pressure field drop; to clarify the hydrodynamic features accompanying the internal flow of a rheologically complex medium; to issue practical recommendations for the improvement of cleaning and removal of cuttings from horizontal wells at minimum values of pressure drop, using the optimal combination of the range of changes in the rheological properties of the drilling fluid.

The object of study is a well with a ten-meter horizontal eccentric section, in which the flow is carried out in conditions that are really close to the actual drilling parameters (in situ).

Methodology is based on complex physical-mathematical and computer modeling of processes in the mechanics of homogeneous and heterogeneous continua, widely tested on internal rheologically complex flows, as well as successfully validated and verified results under appropriate conditions and close to flow regimes, heat and mass transfer performed by other authors on the analysis of technological processes of drilling and cleaning wells.

Results. Numerical modeling of the hydrodynamics of a laminar dispersed flow of a mixture of a non-Newtonian liquid with solid particles in an annular eccentric pipe has been performed. Within the framework of a real drilling process with characteristic conditions of a viscous-inertial-gravitational incompressible isothermal flow of a viscous-plastic medium with spherical sand particles the authors carried out a detailed parametric analysis of the spatial effects that determine the intensity of mass transfer due to changes in the rheophysical, geometric and hydrodynamic properties of the flow and well sizes. The processes that determine and increase the efficiency of cleaning are studied by analyzing the fact: increase in the number of particles that left the geometry during the characteristic hydrodynamic time of the process; controlling the mechanisms of momentum and mass transfer in the mixture, as well as controlling the increase in pressure drop. Numerical modeling corresponded to scenarios of mixture flow with different parameters of geometry (lengths, diameters and eccentricity of pipes) and drilling fluid (non-Newtonian rheology). It was established that complete cleaning of the well when using solutions of the Herschel–Bulkley type in the drilling mode (in situ) in the laminar mode is impossible. In practice of applied research, recommendations are proposed for effective cleaning by correcting the rheophysical properties of the solution. It is shown that the most effective method for improving cleaning is the method of controlling the eccentricity of the annular space, as well as the method of controlling the geometric parameter, which is the ratio between the pipe diameters. Practical recommendations boil down to the need to control the eccentricity in the range of $e < 15\%$. It was determined that from the parameters of the Herschel–Bulkley model, the flow index is the most important in terms of well cleanout management. It creates a high viscosity «conveyor belt» that is able to quickly transport cuttings particles through the geometry.

Key words:

Well, drilling, modeling, hydrodynamics, rheology, viscous-plastic mixture, Herschel–Bulkley fluid, annular flows, transport, cleaning.

REFERENCES

1. Kharlamov S.N., Janghorbani M., Filippov K.A. Mathematical modeling and research methods of horizontal wells hydrodynamic cleaning. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2021, vol. 332, no. 8, pp. 53–73. In Rus.
2. Kharlamov S.N., Janghorbani M. Numerical simulation of viscous – inertial laminar swirling flow in a circular tube with an eccentric round core. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2021, vol. 332, no. 11, pp. 7–21. In Rus.
3. Kharlamov S.N., Janghorbani M. Chtislennoe modelirovanie techeniy vyazkikh smesey boorovogo schlama i potoka syroy nefi na gorizontalnykh uchastkakh skvazhin s ekstsentrichnymi burilnymi trubami [Numerical modeling of the currents of viscous mixtures of drilling sludge and the flow of crude oil on horizontal sections of wells with eccentric drilling pipes]. *Novye vyzovy fundamentalnoy i prikladnoy geologii nefi i gaza-XXI vek. Materialy Vserossiyskoy nauchnoy konferentsii s uchastiem inostrannykh uchenykh, posvyashchennoy 150-letiyu akademika AN SSSR I.M. Gubkina i 110-letiyu akademika AN SSSR i RAN A.A. Trofimuka/ Section 2. Geologiya nefi i gaza. Podsection 3. Neftpromyslovaya geologiya* [New challenges of fundamental and applied geology of oil and gas-XXI century. Materials of the All-Russian Scientific Conference with the participation of foreign scientists, dedicated to the 150th anniversary I.M. Gubkin, the Academy of Sciences of the USSR and the 110th anniversary acad. A.A. Trofimuk, the Academy of Sciences of the USSR and the Russian Academy of Sciences. Section 2. Geology of oil and gas. Subsection 3. Oil and gas geology]. Novosibirsk, CPI NSU, 2021. pp. 221–224. DOI: 10.25205/978-5-4437-1248-2-221-224. Available at: http://gubkin-trofimuk2021.ipgg.sbras.ru/prepare_materials (accessed 15 May 2022).
4. Kharlamov S.N., Janghorbani M. Procedures and instruments for monitoring processes and mechanisms of cutting transport in

- hydraulic cleaning of horizontal wells. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2020, vol. 331, no. 12, pp. 22–40.
5. Kharlamov S.N., Kim V.Yu., Silvestrov S.I. Numerical modelling of a vortical investigation of heat transfer in fields of centrifugal mass forces in elements of the power equipment with a curvilinear wall. *The 5th Proc. of the International Forum on Strategic Technology (IFOST)*. Ulsan, South Korea, University of Ulsan, October, 13–15, 2010. pp. 105–109.
 6. Kharlamov S.N., Kudelin N.S., Dedeyev P.O. Hydrodynamic, heat and acoustic processes modelling in transport of rheologically complex viscous media technology in pipelines. *XVIII International Scientific Symposium in Honour of Academician M.A. Usov: PGON2014 IOP Publishing IOP Conference Series: Earth and Environmental Science* 21. Tomsk, Russia, 2014. pp. 1–6.
 7. Zhang F., Wang Y., Wang Y., Miska S., Yu M. Modeling of dynamic cuttings transportation during drilling of oil and gas wells by combining 2D CFD and 1D discretization approach. *SPE Journal*, 2020, vol. 25, Iss. 3, no. 6, pp. 21–42.
 8. Bilgesu H.I., Ali M.W., Aminian K., Ameri S. Computational Fluid Dynamics (CFD) as a tool to study cutting transport in wellbores. *SPE Eastern Regional Meeting. Society of Petroleum Engineers*. Lexington, Kentucky, USA, October, 2002. 27 p.
 9. Han Sang-Mok, Young-Kyu Hwang, Nam-Sub Woo, Young-Ju Kim. Solid-liquid hydrodynamics in a slim hole drilling annulus. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2010, vol. 70, no. 3–4, pp. 308–319.
 10. Sun Xiaofeng, Kelin Wang, Tie Yan, Shuai Shao, Jianjun Jiao. Effect of drillpipe rotation on cuttings transport using computational fluid dynamics (CFD) in complex structure wells. *Journal of Petroleum Exploration and Production Technology*, 2014, vol. 4, no. 3, pp. 255–261.
 11. Rooki Reza, Faramarz Doulati Ardejani, Moradzadeh A., Norouzi M. Simulation of cuttings transport with foam in deviated wellbores using computational fluid dynamics. *Journal of Petroleum Exploration and Production Technology*, 2014, vol. 4, no. 3, pp. 263–273.
 12. Ofei Titus N., Irawan S., Pao W. CFD method for predicting annular pressure losses and cuttings concentration in eccentric horizontal wells. *Journal of Petroleum Engineering*, 2014, no. 4, pp. 110–120.
 13. Kamyab Mohammadreza, Vamegh Rasouli. Experimental and numerical simulation of cuttings transportation in coiled tubing drilling. *Journal of Natural Gas Science and Engineering*, 2016, vol. 29, pp. 284–302.
 14. Sayindla Sneha, Lund B., Ytrehus J.D., Saasen A. Hole-cleaning performance comparison of oil-based and water-based drilling fluids. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2017, vol. 159, pp. 49–57.
 15. Heydari Omid, Eghbal Sahraei, Pål Skalle. Investigating the impact of drillpipe's rotation and eccentricity on cuttings transport phenomenon in various horizontal annuli using computational fluid dynamics (CFD). *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2017, vol. 156, pp. 801–813.
 16. Kharlamov S.N., Fatyanov D.S. Investigation of natural raw materials turbulent flow structure in pipelines at confuser-diffuser section. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2020, vol. 331, no. 8, pp. 53–67. In Rus.
 17. Kharlamov S.N., Fatyanov D.S. Simulation of viscous media spatial flows in the system of channels with sections of complex form junctions. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2021, vol. 332, no. 5, pp. 70–88. In Rus.
 18. Kharlamov S.N., Alginov R.A. Engineering approaches' progress in calculation of inhomogeneous turbulence in pipelines. *Society of Petroleum Engineers – SPE Russian Oil and Gas Technical Conference and Exhibition*. Moscow, Russia, 2010. Vol. 2, pp. 798–805.
 19. Pang, Boxue, Shuyan Wang, Guodong Liu, Xiaoxue Jiang, Huilin Lu, Zhenjie Li. Numerical prediction of flow behavior of cuttings carried by Herschel–Bulkley fluids in horizontal well using kinetic theory of granular flow. *Powder Technology*, 2018, vol. 329, pp. 386–398.
 20. Gidaspow D. *Multiphase flow and fluidization: continuum and kinetic theory descriptions*. Sand Diego, Academic press, 1994. 467 p.
 21. Syamlal Madhava, O'Brien T.J. The derivation of a drag coefficient formula from velocity-voidage correlations. *Technical Note*. Morgantown, WV, US Department of energy, Office of Fossil Energy, NETL, 1987. pp. 1–11.
 22. Mme Uduak, Pål Skalle. CFD calculations of cuttings transport through drilling annuli at various angles. *International Journal of Petroleum Science and Technology*, 2012, vol. 6, no. 2, pp. 129–141.
 23. Epelle E.I., Gerogiorgis D.I. CFD modelling and simulation of drill cuttings transport efficiency in annular bends: effect of particle sphericity. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2018, vol. 170, pp. 992–1004.
 24. Akhshik Siamak, Rajabi M. CFD-DEM modeling of cuttings transport in underbalanced drilling considering aerated mud effects and downhole conditions. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2018, vol. 160, pp. 229–246.
 25. Movahedi H., Jamshidi S. Experimental and CFD simulation of slurry flow in the annular flow path using two-fluid model. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2021, vol. 198, no. 3 (108224), pp. 1–19.
 26. Nigmatulin R.I. *Dinamika mnogofaznykh sred* [Dynamics of multiphase media]. Moscow, Nauka Publ., 1987. Vol. 1, 464 p.
 27. Yeoh G.H., Tu J. Computational techniques for multi-phase flows. 2nd edition. Butterworth-Heinemann, Elsevier Ltd, Inc., 2019. 590 p.
 28. Crowe C.T. Review – numerical models for dilute gas-particle flows. *ASME Journal of Fluids Engineering*, 1982, vol. 104 (Sept.), pp. 297–303.
 29. Tanner R.I., Milthorpe J.F. Numerical simulation of the flow of fluids with yield stresses. *Proceeding of the International Conference on Numerical Methods in Laminar and Turbulent Flow* (Pineridge Press, Swansea), 1983, pp. 680–690.
 30. Mitsoulis E. Flows of viscoplastic materials: models and computations. *Rheology*, 2007, no. 135, pp. 66–78.
 31. Taibi H., Messelmi F. Effect of yield stress on the behavior of rigid zones during the laminar flow of Herschel–Bulkley fluid. *Alexandria Engineering Journal*, 2018, vol. 57, no. 2, pp. 1109–1115.
 32. Menter F.R. Two-equation eddy-viscosity turbulence models for engineering applications. *AIAA Journal*, 1994, vol. 32, no. 8, pp. 1598–1605.
 33. Kharlamov S.N., Kim V.Yu., Silvestrov S.I., Alginov R.A., Pavlov S.A. Prospects of RANS models with multi-parameter effects at simulation of complex non-isothermal flows of viscous media in devices with any configuration of surface. *The 6th Proc. of the International Forum on Strategic Technology (IFOST-2010)*. Harbin, China, August 22–24, 2011. Vol. 2, pp. 787–791.
 34. Glushko G.S. *Differentsialnoe uravnenie dlya masshtaba turbulentnosti i raschet turbulentnogo pogrannichnogo sloya na ploskoy plastine* [Differential equation for turbulence scale and calculation of turbulent boundary layer on flat plate]. *Turbulentnye techeniya* [Turbulent flows]. Moscow, Nauka Publ., 1970. pp. 34–44.
 35. Launder B.E. On the computation of convective heat transfer in complex turbulent flows. *Journal of Heat Transfer*, 1988, vol. 110, pp. 1112–1128.
 36. Chien W.L., Lien F.S., Leschziner M.A. Computational modelling of turbulent flow in turbomachine passage with low-Re two-equation models. *Computational Fluid Dynamics*, 1994, vol. 1, pp. 517–524.
 37. Boyun Guo, Gefei Liu. *Applied drilling circulation systems: hydraulics, calculations and models*. Burlington, Gulf Professional Publ., 2011. 272 p.
 38. Chilton R.A., Stainsby R. Pressure loss equations for laminar and turbulent non-Newtonian pipe flow. *Journal of Hydraulic Engineering*, 1998, vol. 124, no. 5, pp. 522–539.
 39. Madlener K., Frey B., Ciezki H.K. Generalized Reynolds number for non-Newtonian fluids. *Program of Propulsion Physics*, 2009, no. 1, pp. 237–250.
 40. Acary R.C., Fernandez N.E.D., Narbona R.G., Vigneaux P. A Well-balanced finite volume-augmented Lagrangian method for an integrated Herschel–Bulkley model. *Journal of Scientific Computing*, 2012, vol. 53, pp. 608–641.
 41. Morsi S.A., Alexander A.J. An investigation of particle trajectories in two-phase flow systems. *Journal of Fluid Mechanics*, 1972, vol. 55, no. 2, pp. 193–208.
 42. Di Giacinto, Sabetta R., Piva K. Effects of two-way interaction in gas flows with a loose set of particles. *Theoretical foundations of*

- engineering calculations, 1982, vol. 104, no. 3, pp. 122–131. In Rus.
43. Miloshevich H. Modelling of two-phased turbulent flows in jets with burning particles and phase transition in them. *Proceedings of the 4th European CFD conference*. Athens, Greece, 1998. Vol. 1, Pt. 1, pp. 175–179.
 44. Bubenchikov A.M., Kharlamov S.N. *Matematicheskie modeli neodnorodnoy anizotropnoy turbulentnostivo vnutrennikh sistemakh* [Mathematical models of inhomogeneous anisotropic turbulence at the internal flows]. Tomsk, Tomsk State University of Publ. house, 2001. 448 p.
 45. Mohammed A.R., Miska S.Z. Experimental study and modeling of yield power-law fluid flow in annuli with drillpipe rotation. *IADC/SPE Drilling Conference. OnePetro*. Houston, Texas, USA, 2008, pp. 1–16.
 46. Nakashima C.Y., Oliveira S. Jr., Caetano E.F. Calculation of pressure drop in narrow rotating annular clearances. *Revista de Engenharia Térmica*, 2008, vol. 7, no. 2, pp. 27–34.
 47. Xie L., Chaudhary S., Chen Z., Analysis of the effect of eccentricity on displacement of non-Newtonian fluids with a hybrid method. *SPE Annual Technical Conference and Exhibition. OnePetro*. Houston, Texas, USA, 2015. No. 9 (September), pp. 1–13.
 48. Dokhani V., Yue Ma, Zili Li, Tie Geng, Mengjiao Yu. Effects of drill string eccentricity on frictional pressure losses in annuli. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2020, vol. 187, no. 106853, pp. 1–17.
 49. Hashemian Y., Yu M., Miska S., Shirazi S., Ahmed R. Accurate predictions of velocity profiles and frictional pressure losses in annular YPL-fluid flow. *Journal of Canadian Petroleum Technology*, 2014, vol. 53, no. 6, pp. 355–363.
 50. Haciislamoglu M. *Non-Newtonian fluid flow in eccentric annuli and its application to petroleum engineering problems*. PhD thesis. Louisiana, 1989. 231 p.
 51. Vaziri E., Simjoo M., Chahardowli M. Application of foam as drilling fluid for cuttings transport in horizontal and inclined wells: a numerical study using computational fluid dynamics. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2020, vol. 194, no. 11 (November, 107325), pp. 1–16. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.petrol.2020.107325> (accessed 15 May 2022).
 52. Abdelrahman M.A., Ibmelwaleed A.H., Mustafa S.N., Hamidreza K., Ramadan A. CFD modeling of particle settling in drilling fluids: Impact of fluid rheology and particle characteristics. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2021, vol. 199, no. 4 (April, 108326), pp. 1–13. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.petrol.2020.108326> (accessed 15 May 2022).
 53. Kharlamov S.N., Janghorbani M. Cuttings transport in hole cleaning considering well orientation, pipe eccentricity and pipe rotation: Problems, results, prospects (survey)]. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2020, vol. 331, no. 7, pp. 131–149. In Rus.

Received: 4 June 2022.

Information about the authors

Sergey N. Kharlamov, Dr. Sc., professor, National Research Tomsk Polytechnic University.

Janhorbani Mehran, post-graduate student, National Research Tomsk Polytechnic University.

УДК 622.276

ПОВЫШЕНИЕ ЭФФЕКТИВНОСТИ ЭКСПЛУАТАЦИИ СКВАЖИН С ПОМОЩЬЮ ИНСТРУМЕНТОВ ИНТЕГРИРОВАННОГО МОДЕЛИРОВАНИЯ

Жигалов Денис Николаевич¹,
zhigalov_1995@inbox.ru

Поплыгин Владимир Валерьевич¹,
poplygin@bk.ru

¹ Пермский национальный исследовательский политехнический университет,
Россия, 616990, г. Пермь, Комсомольский пр., 29.

Актуальность работы заключается в необходимости комплексного анализа нефтяного актива как в текущем состоянии, так и на прогнозном горизонте. Это позволит наиболее эффективно производить эксплуатацию фонда скважин на месторождении с учетом изменения технологических параметров пласта.

Цель: определить сроки окончания фонтанирования скважин и по возможности предложить мероприятия для продления их работы на естественном режиме эксплуатации; подобрать необходимое глубинно-насосное оборудование для дальнейшей механизированной эксплуатации скважин добывающего фонда; произвести анализ чувствительности для выбранного оборудования.

Объекты: нефтяное месторождение, находящееся на первой стадии разработки; цифровые модели системы сбора, системы поддержания пластового давления, добывающих и нагнетательных скважин, пласта, построенного методом материального баланса. Объединяя данные модели, авторы получили интегрированную модель месторождения, которая используется для операционных и стратегических расчетов.

Методы: инструменты интегрированного моделирования, позволяющие комплексно оценить проводимые расчеты. Данная методика расчетов позволяет учесть ограничения как со стороны наземной инфраструктуры месторождения, так и со стороны пласта. Также проводятся оптимизационные расчеты, позволяющие продлить срок эксплуатации скважин на естественном режиме. Разработан подход подбора глубинно-насосного оборудования, учитывающий динамику изменения технологических показателей. Описана методика проведения анализа чувствительности для выбранного глубинно-насосного оборудования.

Результаты. Выполнен прогнозный расчет, выявлены скважины, которые в ближайшей перспективе прекратят работу на естественном режиме эксплуатации. С помощью многовариантных оптимизационных расчетов предложены мероприятия, позволяющие продлить срок фонтанирования скважин. Также подобрано глубинно-насосное оборудование для таких скважин. Для предложенных мероприятий выполнен технико-экономический анализ.

Ключевые слова:

Интегрированная модель, фонтанирование скважин, глубинно-насосное оборудование, анализ чувствительности, технико-экономический анализ, оптимизационный расчет.

Введение

Одним из актуальных направлений решения существующей проблемы нефтегазодобывающей отрасли, заключающейся в недостаточности данных и их кондиционности, является применение интегрированных систем идентификации с учетом накопленного опыта и знаний в промышленном производстве.

Описанная концепция состоит из комплекса решений (организационные, информационные, технологические) для регулирования работ на месторождениях и промысле, полученных в результате операционной и интегрированной моделей предприятия, а также формализованных моделей бизнес-процессов, которые обеспечивают наиболее рациональное управление им при выполнении ключевых показателей и действующих условий. В основу заложен алгоритм совокупного исследования и принятия решений, суть которого состоит в объединении промысловых данных, техники, технологий и персонала. Неотъемлемой частью проекта является интегрированная модель (ИМ) нефтяного месторождения, которая включает в себя следующие компоненты: модель пласта, модель скважины, модель системы сбора и транспорта (ССиТ), модель системы поддержания пластового давления (ППД).

Для решения проблемы низкой дискретности замеров забойного давления на скважинах, эксплуатируемых с использованием газлифта, Оренбургского нефтегазоконденсатного месторождения коллектив авторов предлагает создание прокси-интегрированной модели. Данная модель позволяет получать данные по забойным давлениям с необходимой частотой, а также проводить оптимизационные расчеты по определению распределения газлифтного газа между скважинами, соответствующего максимальной суммарной суточной добыче месторождения при заданном ограничении его суммарного расхода [1]. Однако авторы не описывают особенности построения и работы интегрированной модели со скважинами, работающими не газлифтным способом эксплуатации.

Следующий коллектив авторов в своей работе использует интегрированную модель как инструмент для концептуального проектирования газоконденсатных залежей. Главной причиной использования ИМ авторы определяют ее способность оценивать систему «пласт – скважина – наземная инфраструктура» в совокупности. Данный расчет позволяет учесть взаимодействие по всему активу и, как следствие, уйти от итерационных расчетов гидродинамической модели пласта и гидравлических наземной части [2].

Учитывая накопленный опыт, в данной работе описывается методология определения окончания фонтанирования скважин с дальнейшим переводом под механизированный способ эксплуатации с использованием инструментов ИМ.

ИМ месторождения построена с помощью программного комплекса Petroleum Experts (Mbal – модель материального баланса, Prosper – модель скважин, GAP – модель ССнТ и ППД). Данная модель используется на постоянной основе, для чего происходит ежемесячная актуализация на промысловые данные.

Краткое описание месторождения

Месторождение разрабатывается одним объектом разработки с 2012 г. Идет активное разбурирование фонда. Эксплуатация скважин происходит механизированным и фонтанным способами. С 2015 г. на месторождении реализована система ППД. Актив находится на первой стадии разработки.

Данные исследований глубинных проб нефти и газа месторождения показывают:

- высокое содержание сероводорода в газе – до 11,92 % об.;
- высокое содержание углекислого газа – до 1,50 % об.;
- высокое давление насыщения – до 22,35 МПа;
- высокое газосодержание – до 201,7 м³/т;
- нефть парафинистая (до 4,42 %), содержание смол до 3,73 % и асфальтенов до 0,65 %.

По состоянию на 01.10.2020 г. фонд скважин эксплуатируется 14 фонтанными скважинами и 15 скважинами, оборудованными установками электроцентробежных насосов.

Осложняющими факторами при эксплуатации скважин на месторождении являются:

- интенсивное снижение пластового давления;
- коррозия, обусловленная высоким содержанием сероводорода (до 11,92 %) и высоким содержанием диоксида углерода (до 1,50 %);
- асфальтосмолопарафиновые отложения – содержание парафина (до 6,57 %), осложнение возможно при снижении дебитов менее 100 м³/сут;
- высокий газовый фактор – 193,1 м³/т;
- солеотложения при увеличении обводненности (содержание хлорид-ионов – 230 мг/дм³, ионов кальция – 25 мг/дм³).

Определение сроков окончания фонтанирования скважин

Для проведения расчетов ИМ должна быть настроена с заданной точностью прогнозирования. Чем ближе дата настроенной модели и дата выполняемых расчетов, тем точнее результат вычислений.

При проведении расчетов, представленных в работе, использовалась интегрированная модель, настроенная на 1 октября 2020 г. При анализе промысловых данных на представленную дату выявлено 29 добывающих скважин, 9 из которых находились в простое. 15 скважин эксплуатируются механизированным способом эксплуатации (ЭЦН) и 14 скважин – фонтанным способом. Также собраны и проанализированы

данные по дебитам жидкости, обводненности, буферного, линейного, затрубного давлений и т. д. Все данные подвергаются проверкам на кондиционность при помощи математических алгоритмов, реализованных в Visual Basic for Applications, что позволяет ускорить процесс и исключить человеческий фактор при работе с большим массивом данных.

Расчет проводился с использованием интегрированной модели (модель пласта, построенного методом материального баланса, модели добывающих и нагнетательных скважин, модель системы сбора и транспорта, модель системы поддержания пластового давления) с момента актуализации модели (1 октября 2020 г.) до 1 января 2025 г. Дальнейшее увеличение прогнозного горизонта возможно, однако с его увеличением будет уменьшаться точность расчетов в длительной перспективе из-за меняющейся и уточняющейся информации в действительности. Прогноз же на среднесрочную перспективу будет иметь, по опыту моделирования в различных компаниях, достаточно достоверную информацию [1–22].

При проведении прогнозных расчетов необходимо понимание того, как будут изменяться такие параметры, как обводненность и газовый фактор. Для прогнозирования технологических показателей разработки в данной работе применялись характеристики вытеснения. Выполнен анализ исторических замеров обводненности и газового фактора по каждой скважине. В ходе данного анализа проведена верификация замеров на кондиционность с помощью применения статистики (среднеквадратичное отклонение относительно математического ожидания). Получены тренды обводненности и газового фактора на текущий момент с использованием характеристики вытеснения, основанной на функции Баклея–Левверетта [23].

Для недопущения ухода фонтанирующих скважин в периодический режим эксплуатации заданы ограничения по минимальному дебиту нефти в скважинах. Данное ограничение отключает скважину в модели при достижении ее дебита по нефти ниже 0,1 м³/сут. Это позволит избежать флуктуаций дебитов при проведении расчетов.

По результатам расчета можно сделать выводы:

- Скважина № 27 перестанет фонтанировать на 01.06.2022 г. с дебитом нефти 68,7 м³/сут;
- Скважина № 56 перестанет фонтанировать на 01.08.2022 г. с дебитом нефти 282,9 м³/сут;
- Скважина № 2 перестанет фонтанировать на 01.07.2024 г. с дебитом нефти 36 м³/сут;

Также ИМ позволяет проводить оптимизационные расчеты. Оптимизатор позволяет удерживать на скважине заданный дебит жидкости путем подбора диаметра штуцера. По сути, оптимизатор со временем будет «разжимать» скважину для того, чтобы она осталась на заданном дебите, снижая забойное давление в скважине. Это позволит продлить срок фонтанирования. Для трех скважин, которые перестают фонтанировать, включен оптимизатор штуцера.

Анализируя результаты расчета с применением функции оптимизатора, можно сделать вывод, что

работа со штуцером позволит значительно продлить срок фонтанирования скважин. Для скважины № 56 продление срока работы фонтанным способом составило 16 месяцев (остановка 01.12.2023). Для скважин №№ 2 и 27 расчет с применением оптимизатора показал возможность продолжения эксплуатации на фонтанном способе эксплуатации после 1 января 2025 г., перевод на механизированный способ не потребуется на рассматриваемом горизонте расчета.

Подводя итоги расчетов, можно сделать вывод, что ИМ позволяет определить срок окончания фонтанирования скважин, учитывая при этом ограничения как системы сбора, так и пласта. Также, проводя оптимизацию устьевого оборудования, можно добиться значительного увеличения срока эксплуатации скважины на естественном режиме работы.

Подбор глубинно-насосного оборудования для скважин после фонтанирования

В предыдущей части работы определена скважина, которая в ближайшей перспективе перестанет фонтанировать. Для дальнейшей эксплуатации данной скважины требуется ее перевод на механизированный способ эксплуатации.

Ключевое назначение такого способа добычи – это добыча нефти там, где пластовое давление снижено настолько, что уже не может обеспечивать отбор нефти из скважины за счёт природной энергии.

В настоящий момент в мире не более четверти всех добывающих нефтяных скважин находится в фонтанной эксплуатации [7], с использованием естественной энергии пласта. Если энергия снижена сверх меры, либо режим пласта не позволяет использовать экономически обоснованный темп отбора, или же пласт не обеспечивает приток пластовых флюидов к скважине, применяются механизированные методы добычи. Инженерные решения позволяют выбрать один из многих способов, в зависимости от каждой конкретной скважины. Механизированная добыча также способствует увеличению отдачи пласта за счёт снижения предельного уровня забойного давления, при котором эксплуатация скважины становится нерентабельной и её приходится ликвидировать.

Сейчас механизированная добыча часто ассоциируется с поздними стадиями разработки нефтяных месторождений, которые характеризуются пониженным пластовым давлением и повышенной добычей пластовой воды. Однако это совсем не так: механизированная добыча применяется и на ранних стадиях разработки месторождений. На первой и второй стадиях эксплуатации пластов механизированные системы добычи нефти позволяют значительно ускорить и оптимизировать извлечение нефти с наименьшими затратами [3, 4].

Для выбора способа механизированной добычи проанализирован накопленный опыт по месторождению. На данном активе на всех скважинах, которые эксплуатируются не фонтанным способом, установлены электроцентробежные насосы (ЭЦН).

Для подбора насоса на скважину № 56 использовались следующие исходные данные:

- глубина подвески насоса 2630 м;
- частота 50 Гц;
- диаметр ЭЦН 103 мм;
- дебит жидкости 350 м³/сут;
- обводненность 5 %;
- газовый фактор 108 м³/м³;
- буферное давление 24 атм.

В результате расчета подобран насос компании «Борец». Рабочая точка на напорной характеристике представлена на рис. 1.

Для оценки влияния изменения обводненности, коэффициента износа насоса и пластового давления на работу в программном продукте Prospekt проводился анализ чувствительности по данным параметрам (рис. 2–4). Данный анализ позволяет понять, как будет вести себя подобранное оборудование при изменении параметров пласта, и запланировать смену оборудования при выходе рабочей точки из рабочей зоны насоса.

При повышении обводненности продукции выше 30 % рабочая точка выходит за левую границу рабочей зоны насоса, что приведет к уменьшению коэффициента полезного действия (КПД) оборудования. Рекомендуется запланировать смену ЭЦН при достижении обводненности выше 28 %.

Анализируя полученные результаты, можно сделать вывод, что с повышением коэффициента деградации насоса до 50 % (половина периода средней наработки на отказ) требуется произвести увеличение частоты работы погружного электродвигателя на 10 Гц.

При снижении пластового давления ниже 258 атмосфер рабочая точка выходит за левую границу рабочей зоны насоса, что приведет к уменьшению КПД оборудования. Рекомендуется запланировать смену ЭЦН при достижении пластового давления 260 атмосфер.

После подбора оборудования на скважину № 56, был проведен прогнозный расчет с учетом перевода скважины на механизированный способ эксплуатации.

Программный продукт GAP позволяет задавать в каждом элементе свое расписание, благодаря которому можно прописывать пуски/остановки скважин, изменять коэффициент простоя, задавать новую частоту вращения ЭЦН и т. д.

На следующий месяц после прекращения фонтанирования скважины подключена модель скважины с подобранным электроцентробежным насосом. Разница в месяц между остановкой и пуском предполагает ремонтные работы для смены глубинно-насосного оборудования в скважине.

Технико-экономическое обоснование рекомендуемых мероприятий

Задача обоснования экономической рентабельности представляет собой оценку эффективности анализа продуктивности реализации денежных и иных вложений в проект. Основная цель анализа финансовой эффективности проекта – определение ключевых показателей, на основе которых будут приняты первоочередные решения.

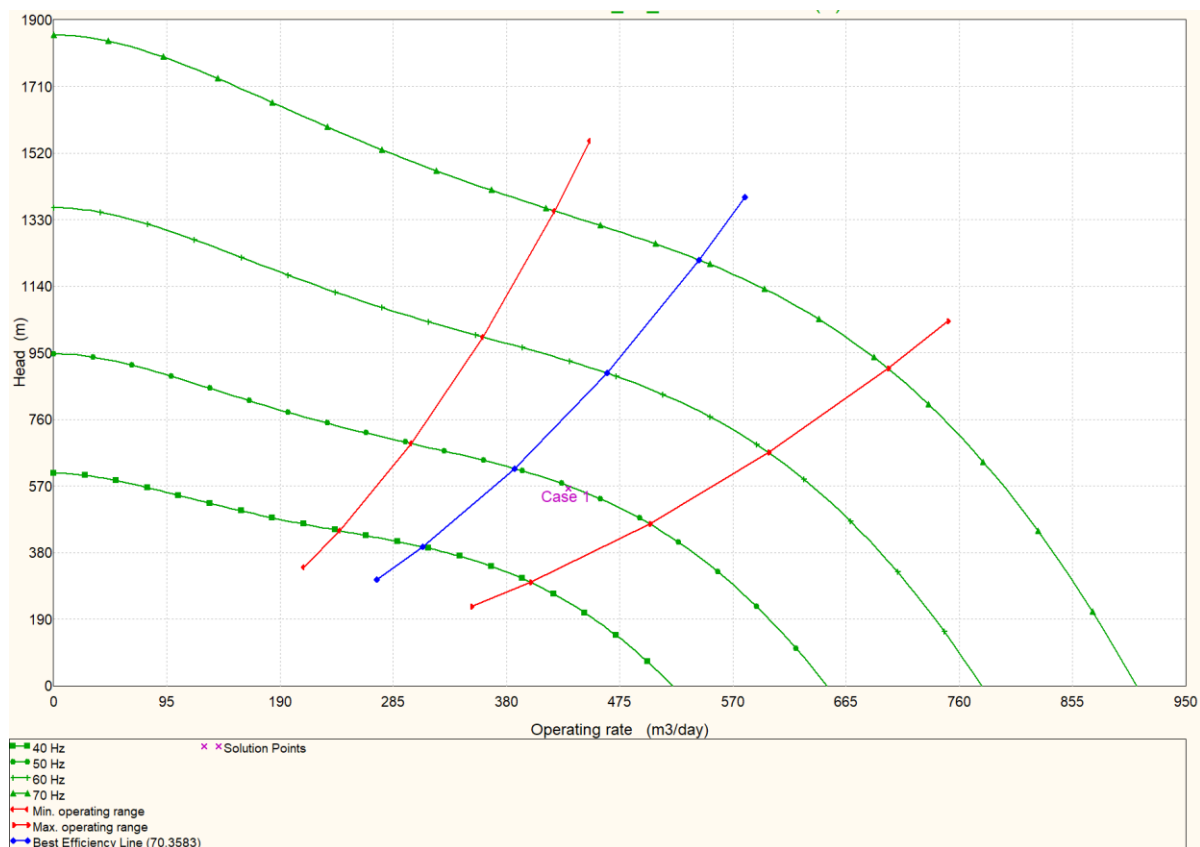


Рис. 1. Расчетная рабочая точка на графике напорной характеристики насоса

Fig. 1. Calculated duty point on the pump head curve

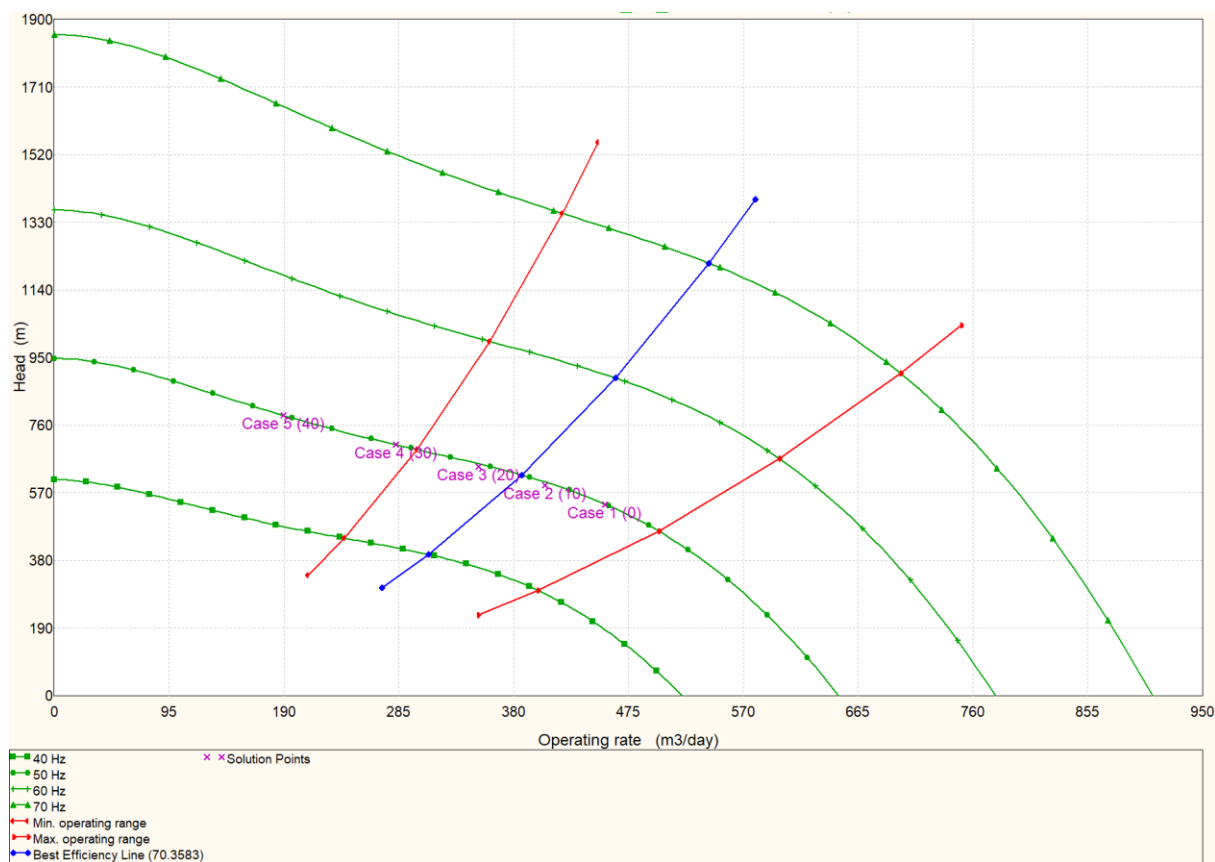


Рис. 2. Расчетная рабочая точка на графике напорной характеристики насоса (обводненность)

Fig. 2. Calculated duty point on the pump head curve (water cut)

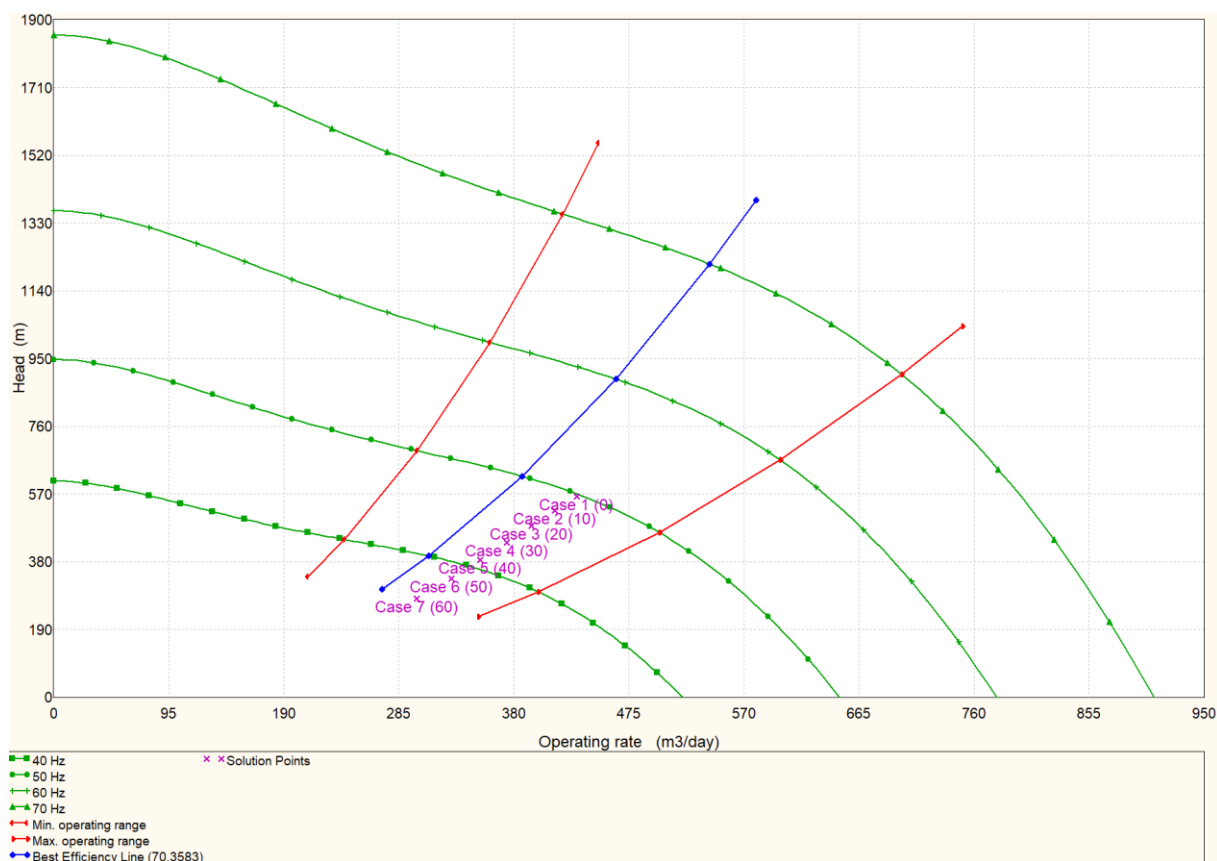


Рис. 3. Расчетная рабочая точка на графике напорной характеристики насоса (коэффициент износа насоса)

Fig. 3. Calculated duty point on the pump head curve (pump wear factor)

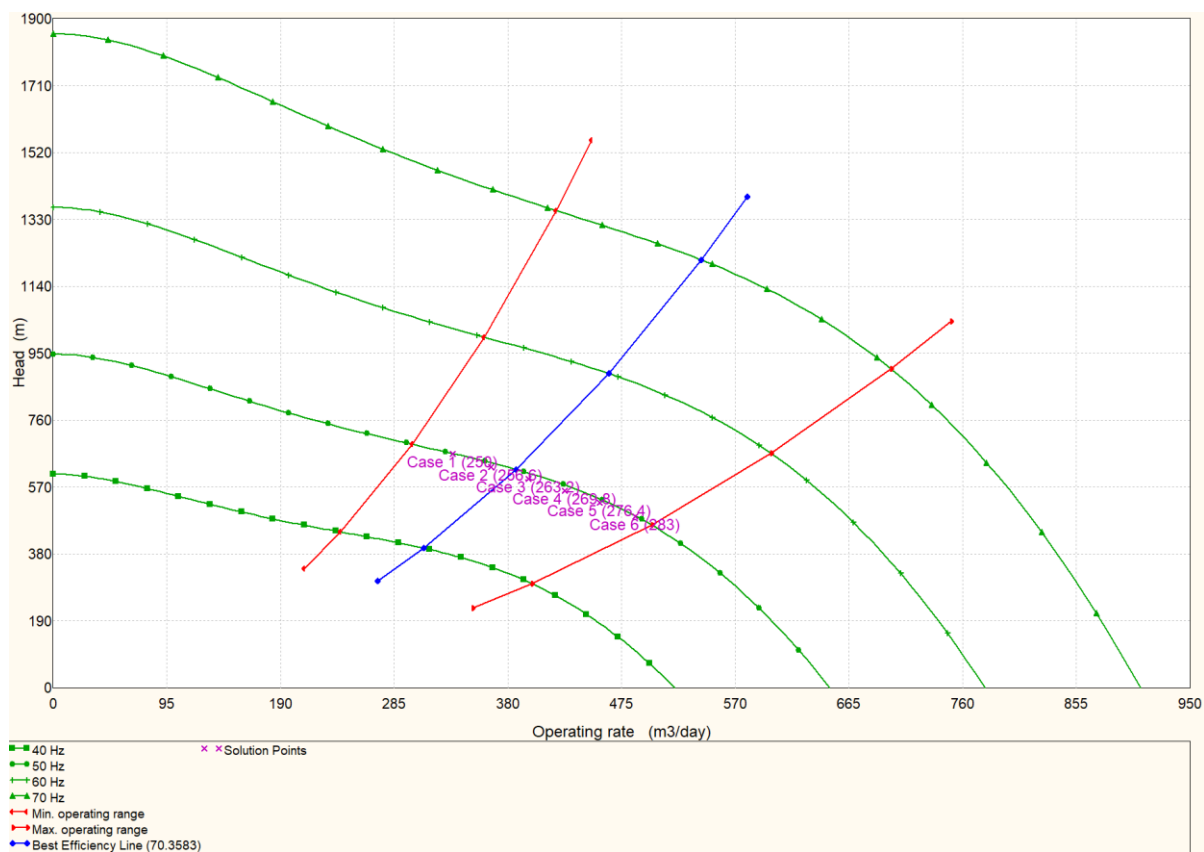


Рис. 4. Расчетная рабочая точка на графике напорной характеристики насоса (пластовое давление)

Fig. 4. Calculated duty point on the pump head curve (reservoir pressure)

Сравниваться будут варианты расчета перевода скважин на механизированный способ эксплуатации без оптимизации системы сбора и транспорта и со сменой способа эксплуатации с оптимизацией.

Данное сравнение позволит в денежном эквиваленте рассчитать эффективность проведения оптимизационных работ на выделенном фонде скважин, а также срок окупаемости от перевода скважина на механизированный способ эксплуатации.

Экономические расчеты выполнены на основании технологических показателей и обоснованных нормативов затрат на планируемые работы (табл. 1).

Спрогнозированный технологический эффект дополнительной добычи нефти (тыс. м³) после проведе-

ния оптимизации системы сбора на трех скважинах представлен в табл. 2.

Расчеты экономических показателей проведены в постоянных ценах за шестилетний период. Единовременные затраты представлены капитальными вложениями и равны стоимости заказа расчетов в подрядной организации – 20 млн р.

Таким образом, чистый дисконтированный доход ЧДД за 6 лет составит 747,4 млн р.

Спрогнозированный технологический эффект дополнительной добычи нефти (тыс. м³) после перевода скважины № 56 с фонтанного способа эксплуатации на механизированный способ эксплуатации представлен в табл. 3.

Таблица 1. Исходные данные для экономического расчета

Table 1. Initial data for economic calculation

Показатели Indicators		Ед. измер. Units of measurement	Значение Value
Срок действия мероприятия, увеличивающего объем добычи нефти (горизонт расчета) Validity period of an event that increases the volume of oil production (calculation horizon)		Год/Year	6
Цена реализации нефти на внутреннем рынке Price of oil sales in the domestic market		р./т (rub/t)	23000
Налоги Taxes	НДС/VAT	%	20
	На прибыль/For profit	%	15,5
Себестоимость 1 т нефти/Cost of a ton of oil		р./т (rub/t)	16000
Норма дисконта (квартальная)/Discount rate (quarterly)		%	5

Таблица 2. Технологический эффект

Table 2. Technological effect

Номер скважины Well no.	Год/Year						Сумма Sum
	2020	2021	2022	2023	2024	2025	
2	2,61	8,905	18,17	31,842	47,238	74,742	183,507
27	3,348	13,553	30,316	60,683	94,376	121,258	323,534
56	7,709	18,467	24,619	51,074	–	–	101,869
Сумма/Sum	13,667	41,229	73,105	143,599	141,614	196	

Таблица 3. Технологический эффект

Table 3. Technological effect

Номер скважины Well no.	Год/Year						Сумма Sum
	2020	2021	2022	2023	2024	2025	
56	–	–	–	–	119,267	113,739	233,006

Расчеты экономических показателей проведены в постоянных ценах за шестилетний период. Единовременные затраты представлены капитальными вложениями и средней закупочной стоимостью комплекта ЭЦН в сероводородостойком исполнении – 3860000 р., а также средней стоимостью работ по смене глубинно-насосного оборудования – 3128000 р.

Так как два этих мероприятия являются продолжением друг друга, ЧДД и срок окупаемости для них будет общий. Срок окупаемости данного варианта (проведение оптимизации путем подбора диаметра штуцера и спуск ЭЦН в скважины после окончания фонтанирования) и базового варианта (эксплуатация месторождения без предложенных мероприятий – прекращение работы скважин) представлен на рис. 5. Для проведения оптимизационных работ на трех скважинах и замены глубинно-насосного оборудования на одной скважине срок окупаемости составляет 4 месяца.

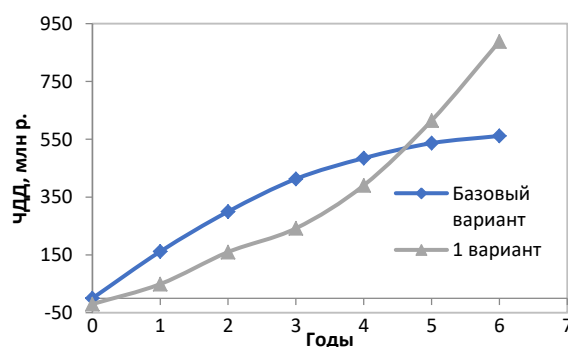


Рис. 5. Экономическая эффективность мероприятий

Fig. 5. Economic efficiency of measures

Выводы

Рассмотрены вопросы определения даты окончания фонтанирования скважин, подбора глубинно-насосного оборудования после окончания фонтанирования скважин, его анализа чувствительности, а

также проведения экономических расчетов для предложенных мероприятий.

С использованием встроенного оптимизатора GAP рассчитаны мероприятия для продления срока фонтанирования скважин. Для скважины № 56 продление срока работы фонтанным способом составляет 16 месяцев (остановка 01.12.2023). Для скважин №№ 2 и 27 расчет с применением оптимизатора показал возможность продолжения эксплуатации на фонтанном способе эксплуатации после 1 января 2025 г., перевод на механизированный способ не потребует на рассматриваемом горизонте расчета.

После окончания фонтанирования скважины № 56 проведен подбор оборудования и анализ чувствительности для подобранного насоса в программном

продукте Prosper. Для скважины подобран ЭЦН компании «Борец».

Данное исследование позволит запланировать своевременный перевод выделенных скважин на механизированный способ эксплуатации и заложить в инвестиционную программу будущих периодов закуп необходимого глубинно-насосного оборудования (установок ЭЦН, наземного электрооборудования) для осуществления данного перевода.

После расчетных мероприятий по оптимизации диаметра штуцера на скважинах и перевода на механизированный способ эксплуатации проведен экономический расчет, который показал, что срок окупаемости равен 4 месяцам.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Создание прокси-интегрированной модели Восточного участка Оренбургского месторождения в условиях недостаточности объема исходных данных / Е.В. Юдин, Р.А. Хабибуллин, И.М. Галютдинов, Н.А. Смирнов, В.М. Бабин, Г.А. Чигарев // Нефтяное хозяйство. – 2019. – № 12. – С. 47–51.
2. Интегрированная модель как инструмент решения практических задач при разработке газоконденсатных месторождений / А.Г. Храмов, С.В. Ромашкин, В.В. Булейко, А.Ю. Ломухин, А.В. Слободянок // Нефтяное хозяйство. – 2020. – № 3. – С. 84–88.
3. Liao T.T., Stein M.H. Evaluating operation strategies via integrated asset modeling // Society of Petroleum Engineers. – 2002. – № 75525. – P. 1–10.
4. Noguera C. Lessons learned from production history matching in single cell numerical models in an integrated asset model // Society of Petroleum Engineers. – 2002. – № 169912. – P. 1–14.
5. Memon S., Zammer A. To develop the optimum field development plan for condensate wells using Integrated Production Modeling (IPM) // Society of Petroleum Engineers. – 2002. – № 160924. – P. 1–12.
6. Using real-time data and integrated models to diagnose scale problems and improve pump performance / B.S. Al-shammari, N. Rane, S.M. Ali, A.A. Sultan, S.H. Al Sabea, M.A. Pandey, F.L. Solaeche // Society of Petroleum Engineers. – 2019. – № 194847. – P. 1–11.
7. Using data analytics and manage by exception methodology to analyze, confirm and predict well behavior using integrated modeling approach / R.C. Cornwall, S.M. Al Nuimi Nuimi, D.T. Tripathi, M.H. Hidalgo, S.S. Soni, J.I. Isambert // International Petroleum Technology Conference. – 2020. – № 19980. – P. 1–11.
8. Material balance analysis in complex mature reservoirs – experience in Samarang field, Malaysia / T. Bui, M.S. Bandal, N. Hutamin, A. Gajraj // Society of Petroleum Engineers. – 2002. – № 101138. – P. 1–16.
9. El Ela Aly M.A. Reservoir characterization from material balance results analysis // Society of Petroleum Engineers. – 2002. – № 108648. – P. 1–12.
10. Integrated modeling of the complex multilayer oil, gas and condensate field development as a method of the project value increasing / E. Bogdanov, I. Chameev, S. Nekhaev, R. Badgutdinov, A. Tkachuk, A. Shorokhov // Society of Petroleum Engineers. – 2019. – № 196913. – P. 1–24.
11. Uncertainty Analysis and integrated modeling application during field development / V.V. Dmitruk, E.P. Mironov, A.A. Mulkamanov, A. Kharkovskiy, R. Bayguzov, M. Komin, O. Timakova, V. Chernyak, D. Shakhov, M. Krivokorytova // Society of Petroleum Engineers. – 2019. – № 196888. – P. 1–21.
12. Integrated modeling as an instrument for unique gas condensate field development concept choice / T.I. Gataullin, A.V. Poushev, A.V. Prokopenko, A.V. Sullagaev // Society of Petroleum Engineers. – 2017. – № 187794. – P. 1–14.
13. Kyrmaev D.V. RITEK starts to develop an intelligent field approach // Oil.Gas.Innovations. – 2015. – № 1. – P. 62–63.
14. Crompton J., Gilman H. The future of integrated operations // Society of Petroleum Engineers. – 2011. – № 127715. – P. 1–7.
15. Guyaguler B., Ghorayeb K. Integrated optimization of field development, planning, and operation // Society of Petroleum Engineers. – 2006. – № 102557. – P. 1–13.
16. Howell A., Torrens R., Szatny M. From reservoir through process, from today to tomorrow – the integrated asset model // Society of Petroleum Engineers. – 2006. – № 99469. – P. 1–20.
17. Coupling of a surface network with reservoir simulation / A. Kosmala, S.I. Aanonsen, A. Gajraj, V. Biran, K. Brusdal, A. Stokkenes, R. Torrens // Society of Petroleum Engineers. – 2003. – № 84220. – P. 1–11.
18. Povyishev K., Vershinin S., Vernikovskaya O. Specifics of development, infrastructure construction and production of oil-gascondensate fields. Integrated model application experience // Society of Petroleum Engineers. – 2017. – № 187857. – P. 1–11.
19. Toby S. Making the best of integrated asset modeling // Society of Petroleum Engineers. – 2014. – № 171161. – P. 1–11.
20. Ahmed T., McKinney P.D. Advanced reservoir engineering. – Burlington: Elsevier, 2005. – P. 187–286.
21. Dake L.P. Fundamentals of reservoir engineering. – Burlington: Elsevier, 1998. – P. 1–42.
22. Зипир В.Г., Чернова О.С. Повышение эффективности проектирования разработки нового газоконденсатного актива методами интегрированного моделирования // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2020. – Т. 331. – № 1. – С. 54–63.
23. Уточнение геолого-гидродинамических модели сложнопостроенной залежи путем комплексного анализа данных / Н.Д. Козырев, А.А. Кочнев, А.Г. Менгалиев, И.С. Путилов, С.Н. Кривошеков // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2020. – Т. 331. – № 10. – С. 164–177.

Поступила 29.06.2022 г.

Информация об авторах

Жигалов Д.Н., аспирант, Пермский национальный исследовательский политехнический университет.

Поплыгин В.В., кандидат технических наук, доцент кафедры нефтегазовых технологий, Пермский национальный исследовательский политехнический университет.

UDC 622.276

INCREASING WELL PERFORMANCE EFFICIENCY USING INTEGRATED SIMULATION TOOLS

Denis N. Zhigalov¹,
zhigalov_1995@inbox.ru

Vladimir V. Poplygin¹,
poplygin@bk.ru

¹ Perm National Research Polytechnic University,
29, Komsomolsky avenue, Perm, 614990, Russia.

The relevance of the work is in the need for a comprehensive analysis of the oil asset, both of its current and the long run status. This will allow more efficient well stock operation with consideration for the changes of the formation performance indicators.

Objective: determining the date of wells' natural flowing completion, and where possible, proposing measures to extend their work at the depletion drive; select the necessary downhole pumping equipment for further artificial lifting; perform sensitivity analysis of the selected equipment.

Objects: oil field at the first development phase; digital models of the gathering system, reservoir pressure support system, production and injection wells, reservoir developed using the material balance method. Through combination of these models, an integrated field model used for operational calculations was obtained.

Methods. Integrated modeling tools have been used for comprehensive assessment of calculations. This technique makes it possible to consider the constraints imposed by both surface infrastructure and reservoir. Optimization calculations was also made to extend the life of wells at the depletion drive. An approach was developed for selection of downhole pumping equipment, taking into account the performance indicators. The sensitivity analysis technique for the selected downhole pumping equipment was described.

Results. The authors carried out the forecast calculation, identified wells, which will stop naturally flowing in the near future. With the help of multivariant optimization calculations, the measures to extend the well flowing period were proposed. Downhole pumping equipment was also selected for such wells. A feasibility study of the proposed activities was performed.

Key words:

Integrated model, well flowing, downhole pumping equipment, sensitivity analysis, feasibility study, optimization calculation.

REFERENCES

- Yudin E.V., Khabibullin R.A., Galyautdinov I.M., Smirnov N.A., Babin V.M., Chigarev G.A. Creation of a proxy-integrated model of the eastern section of the Orenburgskoe oil-gas-condensate field under the conditions of lack of initial date. *Neftyanoe khozyastvo – Oil Industry*, 2019, no. 12, pp. 47–51. In Rus.
- Khramov A.G., Romashkin S.V., Buleiko V.V., Lomukhin A.Yu., Slobodyanyuk A.V. Integrated model as a tool for solving practical problems during development of gas-condensate fields. *Neftyanoe khozyastvo – Oil Industry*, 2020, no. 3, pp. 84–88. In Rus.
- Liao T.T., Stein M.H. Evaluating operation strategies via integrated asset modeling. *Society of Petroleum Engineers*, 2002, no. 75525, pp. 1–10.
- Noguera C. Lessons learned from production history matching in single cell numerical models in an integrated asset model. *Society of Petroleum Engineers*, 2002, no. 169912, pp. 1–14.
- Memon S., Zammer A. To develop the optimum field development plan for condensate wells using Integrated Production Modeling (IPM). *Society of Petroleum Engineers*, 2002, no. 160924, pp. 1–12.
- Al-shammari B.S., Rane N., Ali S.M., Sultan A.A., Al Sabea S.H., Pandey M.A., Solache F.L. Using Real-Time Data and Integrated Models to Diagnose Scale Problems and Improve Pump Performance. *Society of Petroleum Engineers*, 2020, no. 194847, pp. 1–11.
- Comwall R.C., Al Nuimi Nuimi S.M., Tripathi D.T., Hidalgo M.H., Soni S.S., Isambert J.I. Using data analytics and manage by exception methodology to analyze, confirm and predict well behavior using integrated modeling approach. *International Petroleum Technology Conference*, 2020, no. 19980, pp. 1–11.
- Bui T., Bandal M.S., Hutamin N., Gajraj A. Material balance analysis in complex mature reservoirs – experience in Samarang field, Malaysia. *Society of Petroleum Engineers*, 2002, no. 101138, pp. 1–16.
- El Ela Aly M. A. Reservoir characterization from material balance results analysis. *Society of Petroleum Engineers*, 2002, no. 108648, pp. 1–12.
- Bogdanov E., Chameev I., Nekhaev S., Badgutdinov R., Tkachuk A., Shorokhov A. Integrated modeling of the complex multilayer oil, gas and condensate field development as a method of the project value increasing. *Society of Petroleum Engineers*, 2019, no. 196913, pp. 1–24.
- Dmitruk V.V., Mironov E.P., Mulkamanov A.A., Kharkovskiy A., Bayguzov R., Komin M., Timakova O., Chernyak V., Shakhov D., Krivokorytova M. uncertainty analysis and integrated modeling application during field development. *Society of Petroleum Engineers*, 2019, no. 196888, pp. 1–21.
- Gataullin T.I., Poushev A.V., Prokopenko A.V., Sullagaev A.V. Integrated modeling as an instrument for unique gas condensate field development concept choice. *Society of Petroleum Engineers*, 2017, no. 187794, pp. 1–14.
- Kyrmaev D.V. RITEK starts to develop an intelligent field approach. *Oil.Gas.Innovations*, 2015, no. 1, pp. 62–63.
- Crompton J., Gilman H. The future of integrated operations. *Society of Petroleum Engineers*, 2011, no. 127715, pp. 1–7.
- Guyaguler B., Ghorayeb K. Integrated optimization of field development, planning, and operation. *Society of Petroleum Engineers*, 2006, no. 102557, pp. 1–13.
- Howell A., Torrens R., Szatny M. From reservoir through process, from today to tomorrow – the integrated asset model. *Society of Petroleum Engineers*, 2006, no. 99469, pp. 1–20.
- Kosmala A., Aanonsen S.I., Gajraj A., Biran V., Brusdal K., Stokkenes A., Torrens R. Coupling of a Surface Network with Reservoir Simulation. *Society of Petroleum Engineers*, 2003, no. 84220, pp. 1–11.
- Povyishev K., Vershinin S., Vernikovskaya O. Specifics of development, infrastructure construction and production of oil-gascondensate fields. Integrated model application experience. *Society of Petroleum Engineers*, 2017, no. 187857, pp. 1–11.
- Toby S. Making the best of integrated asset modeling. *Society of Petroleum Engineers*, 2014, no. 171161, pp. 1–11.
- Ahmed T., McKinney P.D. *Advanced Reservoir Engineering*. Burlington, Elsevier Publ., 2005. pp. 187–286.

21. Dake L.P. *Fundamentals of reservoir engineering*. Burlington, Elsevier Publ., 1998. pp. 1–42.
22. Zipir V.G., Chernov O.S. Improving the designing efficiency of the development of a new gas condensate asset using integrated modeling methods. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2020, vol. 331, no. 1, pp. 54–63. In Rus.
23. Kozyrev N. D., Kochnev A.A., Mengaliev A.A., Putilov I.S., Krivoshchekov S.N. Refinement of the geological and hydrodynamic model of a complex oil reservoir by means of a comprehensive data analysis. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2020, vol. 331, no. 10, pp. 164–177. In Rus.

Received: 29 June 2022.

Information about the authors

Denis N. Zhigalov, postgraduate student, Perm National Research Polytechnic University.

Vladimir V. Poplygin, Cand. Sc., associate professor, Perm National Research Polytechnic University.

УДК 621.774.35

УТИЛИЗАЦИЯ БЫВШИХ В УПОТРЕБЛЕНИИ ТРУБ ХОЛОДНОЙ ПРОКАТКОЙ

Томило Вячеслав Анатольевич¹,
stamila@rambler.ru

Пилипенко Станислав Владимирович²,
44-08@mail.ru

Дудан Александр Витальевич²,
a.dudan@psu.by

¹ Белорусский государственный технический университет,
Беларусь, 220013, г. Минск, пр. Независимости, 65.

² Полоцкий государственный университет,
Беларусь, 211440, г. Новополоцк, ул. П. Блохина, 29.

Актуальность исследования обусловлена необходимостью разработки технологии холодной прокатки труб с использованием бывшей в употреблении горячекатаной трубы. Технология разрабатывается с целью экономии георесурсов, повышения экономической эффективности производства труб с использованием холодной пильгерной прокатки.

Цель: разработка экономически эффективной технологии переработки бывших в употреблении труб в трубную продукцию другого сортамента. При этом полученные таким способом готовые трубы должны иметь достаточные для их безаварийной эксплуатации параметры качества, такие как точность геометрических размеров поперечного сечения, механические характеристики металла трубы и пр.

Методы: теоретические исследования технологических процессов холодной прокатки труб на станах валковой и холодной пильгерной роликовой прокатки труб, разработка режимов деформации и технологии холодной прокатки бывших в употреблении труб, годной для реализации на действующем производстве при минимальных затратах на внедрение такой технологии.

Результаты. Разработана и предложена к использованию эффективная (как с экологической, так и с экономической точек зрения) технология холодной прокатки промышленных партий труб с использованием заготовки из бывших в употреблении труб. Разработанная технология не требует значительных капиталовложений. Все оборудование, необходимое для ее реализации, есть в цехах холодной прокатки труб. Сама технология прокатки практически не отличается от стандартной. Изменения вводятся только в те операции технологического процесса, которые касаются подготовки исходной заготовки к первому проходу. Поскольку до 70–80 % стоимости холоднодеформированной трубы составляет стоимость горячекатаной или горячепрессованной заготовки, использование бывших в употреблении труб позволяет не только уменьшить антропогенную нагрузку на окружающую среду, но и повысить коммерческую эффективность производства холоднокатаных труб. Полученные разработанным способом готовые трубы будут иметь достаточные для их безаварийной эксплуатации параметры качества. Технология проверена в действующем цехе холодной прокатки труб.

Ключевые слова:

Холодная прокатка труб, бывшие в употреблении трубы, заготовка, технология, переработка, окружающая среда, снижение антропогенного влияния на окружающую среду.

Введение

Трубопроводы для подачи воды и газа в зданиях и сооружениях, в том числе, выполняются из стальных бесшовных углеродистых труб [1]. Эффективный срок использования газовых трубопроводов такого класса – 20 лет [2–4]. Нормативный крайний срок эксплуатации бытовых газопроводов, обеспечивающий их безопасную эксплуатацию, – около 30 лет [2, 4]. Системы водоснабжения имеют более длительный срок эксплуатации (до 40 лет) [5], однако в настоящее время такие системы (даже с менее длительным сроком эксплуатации) заменяются на трубопроводы из пластиковых труб [6–9]. Часто такую реконструкцию производят организованно, сразу для нескольких зданий. Заменяется значительное количество стальных труб с той или иной степенью поврежденности. И если коррозионная поврежденность труб систем водоснабжения порой является значительной (если срок их эксплуатации более 15–20 лет), то поврежденность труб систем газоснабжения не вы-

водит их геометрические размеры за допуски по толщине стенки и диаметру. Периодической замене подвергаются трубопроводы различного назначения, из углеродистых и легированных марок сталей и сплавов на многих промышленных предприятиях. В то же время на производство трубной продукции расходуется большое количество георесурсов. Например, только при выплавке чугуна, на 1 т продукции расходуется около 3 т железистой руды, 1 т кокса, 20 т воды, около 1500 м³ воздуха, 4,5 т свежей воды (с учетом оборотной – 60 т) и др. На производство электроэнергии для выплавки 1 т чугуна тратится до 0,5 т условного топлива.

Чугун является основным компонентом шихты при производстве стали [10, 11]. Передельный чугун (в основном в конвертерах) переплавляется в сталь. Тут на 1 т стали расходуется около 3,5 т свежей воды (с учетом оборотной – 52 т), до 50 м³ кислорода (подогретого до 1580–1650 °С), 4,5 м³ природного газа, на производство электроэнергии тратится до 50 км

условного топлива, тратятся и другие ресурсы. Выплавленная сталь либо сразу разливается в непрерывнолитую заготовку на машинах непрерывного литья заготовки, либо в слитки массой 15–20 т.

Непрерывнолитая заготовка поступает на сортопрокатный стан (иногда прямо на трубопрокатный [12–15]), а из слитков (с предварительным подогревом) на блюмингах прокатываются блюмы, которые тоже являются заготовкой для сортопрокатных станов. На этих этапах тоже расходуются георесурсы, только при прокате тонны стали одной свежей воды расходуется до 3,5 т (с учетом оборотной – 50 т). Расходуется также воздух, природный газ, электроэнергия и др.

Катанный профиль круглого сечения, а также непрерывнолитая заготовка являются основными видами заготовки для трубопрокатных и трубопрессовых станов [16–18]. Именно на этом этапе металлургического процесса после множества затрат получают готовую трубу. Точный расход всех ресурсов на производство 1 т трубы требует отдельного исследования. Но из выше перечисленного можно сделать вывод, что переработка бывших в эксплуатации труб в готовую трубную продукцию позволяет сберечь большое количество затрачиваемых на это ресурсов планеты и разработка такой технологии являются актуальной.

Выделение нерешенного

По личным наблюдениям авторов, при замене труб газоснабжения в одном пятиэтажном доме скопилось около 120 м обрезков труб диаметром 20–25 мм с толщиной стенки до 3 мм и до 55 м труб диаметром 40 мм с толщиной стенки 3,5 мм. Большая часть отрезков труб имели длину от 1,5 м и более. При этом как на внутренней, так и на наружной поверхностях труб отсутствовали признаки значительного износа, вызванные коррозией раковины, свищи, риски, царапины, выводящие толщину стенки за значения допуска, расслоения, места с утонением стенки (вызванным коррозией) и др. Ультразвуковая диагностика случайно выбранных отрезков труб показала, что толщина стенки этих труб не выходит за допуски по толщине стенки и диаметру. Диагностика химсостава показывает, что доли серы (менее 0,02 %) и фосфора (менее 0,0045 %) ниже допусков ГОСТа [19]. Несмотря на данные факты, такие трубы идут на металлолом, тогда как их можно переработать в трубную продукцию другого сортамента, например, методами холодной пильгерной валковой и роликовой прокатки. При этом полученные таким способом готовые трубы будут иметь достаточные для их безаварийной эксплуатации параметры качества, такие как разностенность, овальность, механические характеристики металла готовой трубы и др. Необходимым является разработка технологии холодной прокатки труб из заготовок такого класса.

Объект и предмет исследования

Объектом исследования выступают процессы холодной прокатки бывших в эксплуатации труб с целью их повторного использования. Предметы иссле-

дования – технология холодной пильгерной валковой и роликовой прокатки труб.

Основная часть

Станы холодной пильгерной прокатки отличаются от других станов тем, что в них не обрабатываемая заготовка движется относительно клетки, а клеть движется относительно неподвижно зажатой заготовки [20, 21] (рис. 1). Горячедеформированная труба является основным типом заготовки для этих станов. Известны случаи использования в качестве заготовки сварных труб. Сама технология прокатки является многоциклической, где операции холодной прокатки чередуются с повторяющимися операциями промежуточной отделки (отбраковка и ремонт труб, химическая обработка, отжиг, нанесение подмазочного слоя, нанесение смазки, прокатка и т. д.). Заготовка может проходить до 5 и более циклов обработки давлением. Чем меньше диаметр готовой трубы и чем больше диаметр заготовки, тем больше циклов обработки она проходит [22, 23]. Операции холодной пильгерной прокатки могут чередоваться с операциями волочения (в большей части безоправочного).

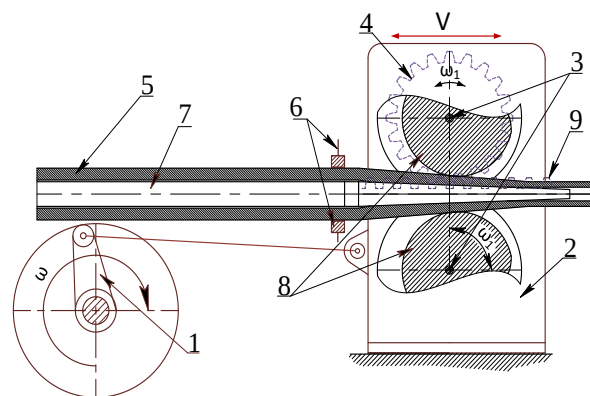


Рис. 1. Схема стана холодной пильгерной прокатки труб: 1 – привод движения рабочей клетки прокатного стана; 2 – рабочая клеть прокатного стана; 3 – оси рабочих валков; 4 – ведущие шестерни; 5 – труба; 6 – механизм зажатия трубы; 7 – стержень с оправкой; 8 – калибры рабочих валков; 9 – шестеренная клеть

Fig. 1. Scheme of a cold pilger pipe rolling mill: 1 – drive of the working stand of the rolling mill; 2 – working stand of the rolling mill; 3 – axes of work rolls; 4 – driving gears; 5 – pipe; 6 – pipe clamping mechanism; 7 – rod with a mandrel; 8 – calibers of work rolls; 9 – gear stand

Различают холодную пильгерную валковую прокатку (станы типа ХПТ – «Холодная прокатка труб») и холодную пильгерную роликовую прокатку (станы типа ХПТР – «Холодная роликовая прокатка труб»). Станы ХПТР в большей мере используются для обжатия трубы по толщине стенки и позволяют получить особотонкостенные, особоточные трубы. В качестве рабочего инструмента в станях ХПТ используются калибры с ручьями переменного сечения и конусные оправки. В станях ХПТР рабочим инструментом являются ролики, диаметр которых равен диа-

метру готовой трубы, цилиндрические оправки и калиброванные опорные планки. В табл. 1 показаны основные характеристики станов ХПТ-32 и ХПТ-55. Следует заметить, что без дополнительной реконструкции стана длину заготовок станов ХПТ и ХПТР можно уменьшить до 1,15–1,25 м. Это важно, так как при разбраковке бывших в эксплуатации труб, при вырезке их дефектных участков получается значительное количество отрезков такой длины.

Технология переделки бывших в употреблении труб начинается уже с процесса реконструкции старой трубопроводной системы. Ее следует демонтировать таким образом, чтобы отрезки труб были как можно более длинными. Резку, по возможности, производить по местам сварки, дабы упростить удаление сварных швов. Возможна первичная отбраковка отрезков с длиной менее одного метра и отрезков со свищами, раковинами, вмятинами, рисками, утонением стенки более 15 % от средней стенки поперечного сечения трубы.

Для примера рассмотрим двухпроходный маршрут прокатки таких труб. На рис. 2 показана схема основных операций технологического процесса холодной

прокатки труб с использованием заготовки в виде бывших в употреблении бесшовных труб.

Таблица 1. Техническая характеристика станов ХПТ-32 и ХПТ-55

Table 1. Technical characteristics of the KhPT-32 and KhPT-55 mills

Параметр Parameter	Тип стана/Mill type	
	ХПТ-32 KhPT-32	ХПТ-55 KhPT-55
Диаметр заготовки, мм Workpiece diameter, mm	22–46	38–73
Толщина стенки заготовки, мм/Workpiece wall thickness, mm	1,35–6	1,75–12
Длина заготовки (макс.), мм Workpiece length (max.), mm	5000; 8000	5000; 8000
Длина заготовки (мин.), мм Workpiece length (min.), mm	1500	1500
Диаметр готовой трубы, мм Finished pipe diameter, mm	16–32	25–55
Толщина стенки готовой трубы, мм Finished pipe wall thickness, mm	0,4–5	0,5–10
Уменьшение площади поперечного сечения (макс), %: Reduction of cross-sectional area (max), %:		
углеродистые стали/carbon steel	88	88
нержавеющие стали/stainless steels	70	70

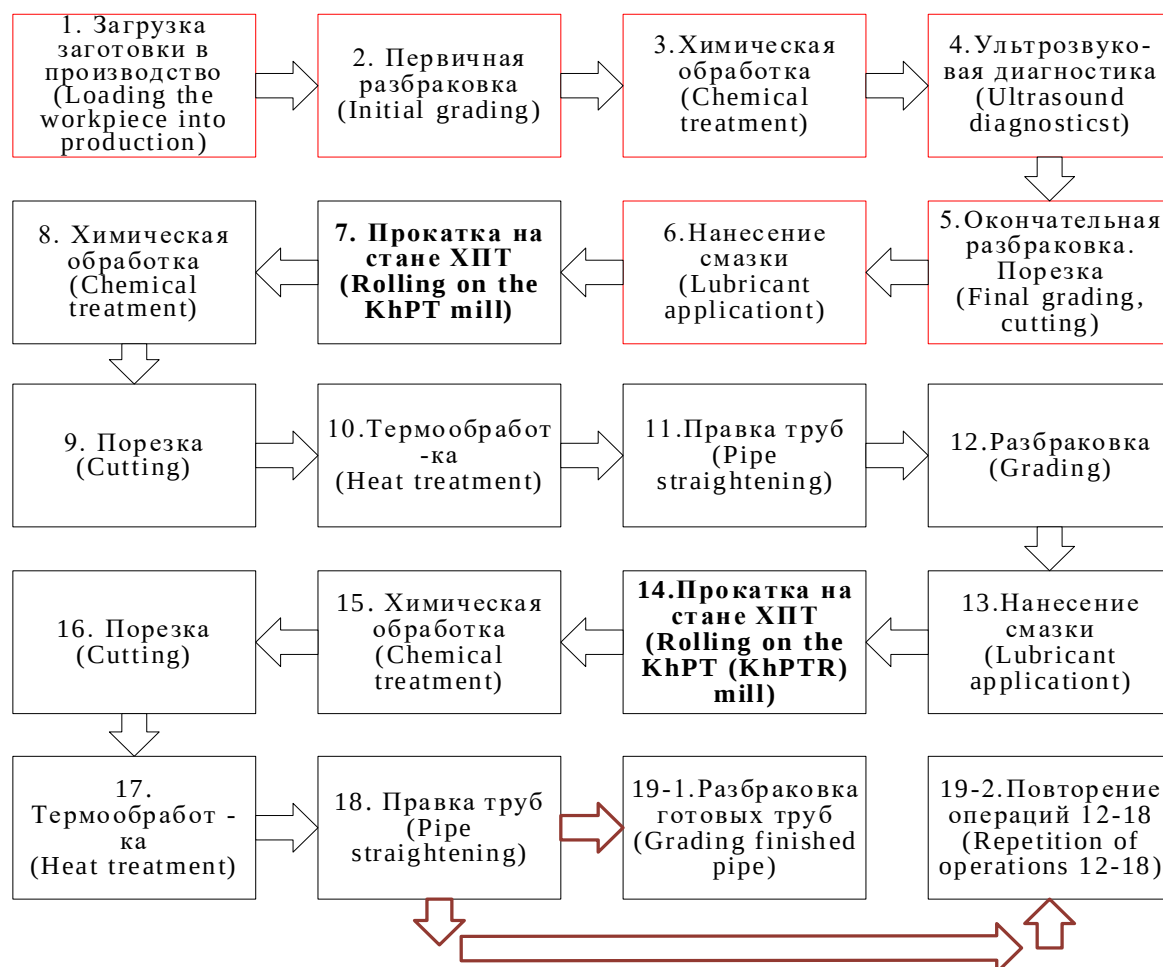


Рис. 2. Предлагаемая схема холодной прокатки бывших в употреблении труб: красной рамкой выделены операции с исходной заготовкой, жирным выделены операции холодной прокатки

Fig. 2. Proposed scheme for cold rolling of used pipes: red frame distinguishes the operations with the original product, bold are the operations of cold rolling

Перед загрузкой заготовки в производство (рис. 2, поз. 1) ее наружную поверхность следует подвергнуть опескоструиванию с целью удаления с наружной поверхности слоёв краски. Для водопроводных труб предполагается опескоструивание и внутренней поверхности. Данная операция необходима для удаления отложений и зарастаний. Далее трубы передаются на сортировку и первичную разбраковку (рис. 2, поз. 2). На данном этапе отбраковываются отрезки длинной прямолинейных участков менее 1,15 м и отрезки с видимыми невооруженным глазом дефектами в виде трещин, раковин, расслоений, вмятин и пр. Отрезки труб сортируются по длине на отдельные пакеты, удобные для транспортировки по технологической линии. Сортировку производят на столах с хорошим освещением (500 Лк). Столы должны быть оборудованы удобными загрузочными решетками и карманами для разбраковки заготовки. Для осмотра внутренней поверхности столы должны быть оборудованы перископическими микроскопами либо видеоскопами (например, серии VideoProbe XL-PRO, или им подобными).

Отсортированные пакеты труб подвергаются химической обработке (травлению) с целью удаления окалины и ржавчины (рис. 2, поз. 3). Трубы из углеродистых и малолегированных сталей можно подвергать травлению в водных растворах хлористого натрия (около 8 %) и серной кислоты (около 22 %). В данные растворы также вводят специальные присадки-замедлители (ингибиторы). Возможен вариант травления в соляной кислоте. В этом случае уменьшается время травления, из-за уменьшения выделения свободного водорода улучшается качество поверхностей труб, уменьшаются потери металла на травление. Возможна и организация регенерации травильных растворов. Таким образом уменьшается нагрузка на окружающую среду при переделке труб. Трубы из углеродистых и малолегированных марок сталей травят в 15–20 %-ном растворе соляной кислоты, из нержавеющей сталей – 20–25 %.

Протравленные отрезки труб после промывки подают на ультразвуковую диагностику и окончательную отбраковку (рис. 2, поз. 4, 5). На этом этапе регистрируют наличие раковин, плен, волосовин, рисок и пр. При возможности данные дефекты либо ремонтируются полой зачисткой на круглошлифовальных станках, либо вырезаются. В противном случае, отрезки бракуются. Замеряются толщина стенки и диаметр. При этом следует придерживаться следующих отклонений по геометрии поперечного сечения:

- допуск по внешнему диаметру $\pm 1,5$ %;
- допуск по толщине стенки $\pm 12,5$ –15 % (в зависимости от толщины стенки).

На этой же стадии осуществляется окончательная порезка заготовки на мерные длины и дополнительная сортировка заготовок по пакетам, в зависимости от длины, крайних значений толщины стенки.

Перед холодной прокаткой труб из углеродистых и легированных сталей на их поверхность наносят подмазочный слой (рис. 2 поз. 6). В зависимости от

марки стали это могут быть фосфатные соединения железа, медь, пленка химических соединений, образуемая при пассивировании труб в растворе азотной и плавиковой кислот, и др.

Далее идет операция холодной прокатки труб на станах ХПТ (рис. 2, поз. 7). Операция осуществляется с подачей смазочно-охлаждающей эмульсии в очаг деформации (в виде смеси диспергированного растительного масла и воды с добавлением эмульгатора). Перед прокаткой внутрь каждой трубы закладывают густую смазку (различные смеси растительного масла с наполнителями в виде талька, цинковых белил, гидроксида кальция). Поскольку стоимость самой операции холодной прокатки составляет 15–25 % стоимости всего передела, то стараются осуществлять как можно более высокую степень обжатия для уменьшения цикличности производства.

Сразу после прокатки трубы подвергаются обезжириванию (рис. 2, поз. 8) и порезке (рис. 2, поз. 9). Обезжиривают трубы водным раствором каустической соды (до 5 %) и тринатрийфосфата (до 3 %). Обработка производится при температуре раствора не менее 60 °С. Операцию порезки можно производить и перед обезжириванием, прямо на стане, если длина прокатанных труб является значительной. Обезжиривают трубы для того, чтобы при последующей термообработке остатки смазки не взаимодействовали с металлом трубы.

Наклепанные после холодной прокатки трубы отжигают в печах с защитной атмосферой для предотвращения образования окалины (рис. 2, поз. 10). Таким образом с технологического процесса убираются операции травления труб перед последующей холодной прокаткой с целью удаления окалины. После правки и промежуточной разбраковки (в ходе которой, в том числе, трубы подвергаются порезке на мерные длины) пакеты труб подают на нанесение смазки (рис. 2, поз. 11–13).

Вторую прокатку можно производить как на стане ХПТ (если предполагается значительная деформации по диаметру), так и на станах ХПТР (на этих станах основная доля обжатия поперечного сечения – по толщине стенки). Далее снова предполагается операция обезжиривания и порезки (рис. 2, поз. 15–18), окончательная термообработка (или промежуточная, если предполагается более 3-х проходов). После позиции 18 (рис. 2) готовые трубы по пакетно передаются на окончательную разбраковку и отделку (рис. 2, поз. 19-1), а трубы промежуточных размеров подвергаются дальнейшей обработке (рис. 2, поз. 19-2). Трубы диаметром менее 8–12 мм могут проходить операции волочения.

В отделку готовых труб входят такие операции, как порезка и торцовка, ультразвуковая диагностика, электрополировка, нанесение покрытий, высадка концов, нарезка резьбы, намертка муфт, разрушающие испытания отобранных образцов, смазка, упаковка и пр. Наличие той или иной операции отделки готовых труб зависит от ГОСТа и ТУ, по которым реализуются эти трубы. Важны также пожелания заказчика.

В табл. 2 показаны геометрические характеристики возможного маршрута прокатки трубы-заготовки 40×3,5 мм из марки стали 20 в готовую трубу 16,6×0,35 по ГОСТ 8734-75. Такая труба используется в бытовых водо- и газопроводах, она производится горячей прокаткой. В настоящее время такие трубы часто подвергаются замене.

Таблица 2. Маршрут прокатки трубы из марки стали 20 (40×3,5→16,6×0,35 мм, ГОСТ 8734-75 Трубы стальные бесшовные холоднодеформированные)

Table 2. Route of rolling of steel pipe 20 (40×3,5→16,6×0,35 mm, SS 8734-75 Seamless steel tubes cold deformed)

Диаметр, мм Diameter, mm Ø	Толщина стенки, мм Wall thickness, mm S	Обжатие/Reduction, %			ε _s /ε ₀	Прокатный стан Rolling mill
		по диаметру of diameter ε ₀	по толщине стенки of wall thickness ε _s	по площади поперечного сечения of cross-sectional area, ε _z		
40	3,5	—				
30	1,2	25,0	65,7	72,9	2,63	ХПТ-55
20	0,6	33,3	50,0	66,3	1,50	ХПТ-32
16,6	0,35	17,0	41,7	51,1	2,45	KPW-18
Суммарные обжатия Total reduction		58,5	90,0	95,5	1,54	—

Исходя из маршрута, после первого прохода заготовка в 1,5 м вытянется в трубу промежуточного размера (30×1,2) длиной в 4,79 м. После обрезки концов и холодной прокатки в стане ХПТ 32 ее длина составит уже 15,3 м. Такую трубу для дальнейшей прокатки разрезают на две равные прямо на прокатном стане. После KPW-18, с учетом обрезки концов и разрезки трубы на две части, имеется уже 4 трубы 16,6×0,35 мм длиной в 7,66 м каждая. Таким образом, имея даже такие малые исходные обжатия труб, можно получить холоднодеформированные трубы с достаточной для их реализации длиной.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. СН 4.03.01-2019. Газораспределение и газопотребление. Строительные нормы. – Минск: Стройтехнорм, 2020. – 106 с.
2. Романова Т.Н. Обеспечение безопасности при эксплуатации бытового газового оборудования // Строительство и техногенная безопасность – 2018. – № 13 (65) – С. 113–120.
3. Вишнякова П.В., Ефремова Т.В. Разработка критериев для определения типа реконструкции существующих пунктов редуцирования газа // Инженерно-строительный вестник Прикаспия – 2020. – № 1 (31) – С. 16–22.
4. Удовиченко З.В., Смирнова Я.В. Безопасная эксплуатация внутридомовых систем газоснабжения // Вестник ДонНУАС. Здания и сооружения с применением новых материалов и технологий. – 2020. – № 3 (143). – С. 72–76.
5. Соколовский Д.В., Ушакова И.Г. Анализ безопасности при проектировании системы водоснабжения // VI Международная научно-практическая конференция Безопасность городской среды. – Омск: Омский государственный технический университет, 2020. – С. 257–262.
6. Полиэтиленовые трубы для газопроводов – особенности и преимущества // Docslide. 2018. URL: <https://plastdv.ru/stati/polietilenovyyetruby-dlya-gazoprovoda-osobennosti-i-preimushchestva> (дата обращения: 06.08.2021).

Заключение

До 70–80 % стоимости холоднодеформированной трубы составляет стоимость горячекатаной или горячепрессованной заготовки. На производство такой заготовки тратится много ресурсов, таких как вода, воздух, ископаемые материалы (руда, коксующиеся угли и пр.). С другой стороны, имеются в наличии бывшие в употреблении трубы, которые подвергаются замене, в том числе на металлопластиковые трубы. Такие трубы сдаются на лом и имеют соответствующую цену. После разбора конструкции, порезки разбраковки стальных, бывших в употреблении труб они пригодны к использованию в качестве заготовки для холодной прокатки. В противном случае, они используются в качестве шихты для производства стали. И прежде чем снова стать холоднокатанной трубой такой металл пройдет стадии выплавки стали, непрерывной разливки, прокатки сплошной заготовки, горячей прокатки и отделки трубы. На каждом этапе процесса расходуются георесурсы и загрязняется окружающая среда. В статье показано, что даже из отрезка трубы 1,5 м диаметром 40 мм и толщиной стенки 3,5 мм можно получить 4 трубы 16,6×0,35 мм длиной 7,66 м каждая. Использование бывших в употреблении труб позволяет не только уменьшить антропогенную нагрузку на окружающую среду, но и повысить коммерческую эффективность производства холоднокатаных труб. Разработанная технология не требует значительных капиталовложений. Все оборудование, необходимое для ее реализации, есть в цехах холодной прокатки труб. Сама технология прокатки практически не отличается от стандартной. Изменения вводятся только в те операции технологического процесса, которые касаются подготовки исходной заготовки к первой прокатке на стане ХПТ. Полученные разработанным способом готовые трубы будут иметь достаточные для их безаварийной эксплуатации параметры качества. Технология проверена в действующем цехе холодной прокатки труб.

7. Khademi-Zahedi R. Application of the finite element method for evaluating the stress distribution in buried damaged polyethylene gas pipes // Underground Space. – 2019. – № 4. – P. 59–71.
8. Fracture mechanics lifetime prediction of polyethylene pipes / A. Frank, F.J. Arbeiter, I.J. Berger, P. Hutař // Journal of Pipeline Systems Engineering and Practice. – 2019. – № 10. – P. 91–96.
9. Laloui L., Loria A.R. Analysis and design of energy geostructures. – London: Academic press, 2019. – 1062 p.
10. Пилипенко С.В., Фруцкий А.В., Дудан В.А. Использование вторичных материалов при восстановлении работоспособности втулок подшипников скольжения // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2021. – Т. 332. – № 5. – С. 130–137.
11. Разработка научно-методического подхода к выбору состава брикетизируемой шихты и ее свойств / С.В. Ващенко, А.Ю. Худяков, К.В. Баюл, Ю.С. Семенов // Сталь. – 2018. – № 8. – С. 2–6.
12. Development of radial-shear rolling mill special stands for continuous cast billets deformation / R.V. Iskhakov, Yu.V. Gamin, M.V. Kadach, A.S. Budnikov // IOP Conference Series: Materials Science and Engineering. 15th International Conference on Industrial Manufacturing and Metallurgy. – Nizhny Tagil: Nizhny Tagil technological Institute, 2020. – P. 12074. DOI: 10.1088/1757-899x/966/1/012074

13. Producing structural-steel bar from continuous-cast billet / A.N. Smirnov, E.N. Smirnov, V.A. Sklyar, V.A. Belevitin, R.E. Pivovarov // *Steel in Translation*. – 2018. – № 48. – P. 233–239.
14. Разработка и освоение инновационной технологии производства стальных бесшовных труб большого диаметра (до 550 мм) из непрерывнолитой заготовки / А.И. Комаров, К.Н. Никитин, А.В. Сафьянов, В.Я. Осадчий, А.П. Коликов // *Черные металлы*. – 2018. – № 8. – С. 71–74.
15. Красиков А.В. Технология подготовки непрерывно-литой заготовки из нержавеющей марки стали к прокатке на ТПА с непрерывным станом с контролируемо-перемещаемой оправкой // *Вестник южно-уральского государственного университета. серия: Metallurgy*. – 2021. – Т. 21 – № 3. – С. 66–96.
16. Production of seamless steel pipe for oil and gas extraction in challenging conditions / A.G. Shiryayev, S.G. Chetverikov, S.G. Chikalov, I.Yu. Pyshmintsev, P.V. Krylov // *Steel in Translation*. – 2018. – № 45. – P. 704–711.
17. Effect of Preliminary Deformation of Continuously Cast Billets by Radial-Shear Rolling on the Structure and Properties of Hot-Rolled Chromium-Containing Steel Pipes / S.P. Galkin, A.S. Aleschenko, B.A. Romantsev, Yu.V. Gamin, R.V. Iskhakov // *Metallurgist*. – 2021. – № 65. – P. 185–195.
18. Zhakupova A.T., Bogomolov A.V., Zhakupov A.N. The Influence of the Initial Billet on the Mechanical Properties of Pipes // *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering*. 15th International Conference on Industrial Manufacturing and Metallurgy. – Nizhny Tagil: Nizhny Tagil technological Institute, 2020. – P. 12033. DOI: 10.1088/1757-899x/966/1/012033/
19. Электронный фонд правовых и нормативно-технических документов. ГОСТ 1050-2013 // Docslide. 2020. URL: <https://docs.cntd.ru/document/1200114294> (дата обращения: 06.08.2021).
20. Grigorenko V.U., Pilipenko S.V. Variation in wall thickness of cold-rolled pipe // *Steel in Translation*. – 2008. – № 38 (9). – P. 775–776. DOI: 10.3103/S0967091208090209.
21. A deformation mode in a cold rolling condition to provide the necessary texture of the Ti-3Al-2.5V alloy / S.V. Pilipenko, V.U. Grigorenko, V.A. Kozechko, O.O. Bohdanov // *Naukovyi Visnyk Natsionalnoho Hirnychoho Universytetu*. – 2021. – № 1. – P. 078–083.
22. Мищенко А.В. Состояние и тенденции развития производства холоднокатаных труб из сплавов на основе титана // *Металл и литье Украины*. – 2019. – № 3–4 (310–311). – С. 58–68.
23. Повреждения труб из сплавов системы Zr-Nb в процессе их холодной прокатки / М.И. Сергачева, А.В. Никулина, К.В. Ожмегов, А.А. Кабанов // *Вопросы атомной науки и техники. серия: Материаловедение и новые материалы*. – 2019. – № 4 (100). – С. 102–117.

Поступила 04.06.2022 г.

Информация об авторах

Томило В.А., доктор технических наук, профессор, заведующий кафедрой машин и технологии обработки металлов давлением им. С.И. Губкина Белорусского государственного технического университета.

Пилипенко С.В., кандидат технических наук, доцент кафедры автомобильного транспорта Полоцкого государственного университета.

Дудан А.В., кандидат технических наук, декан Технологического факультета Полоцкого государственного университета.

COLD ROLLING OF USED PIPES

Vyacheslav A. Tomilo¹,
stamila@rambler.ru

Stanislav V. Pilipenko²,
44-08@mail.ru

Alexander V. Dudan²,
a.dudan@psu.by

¹ Belarusian State Technical University,
65, Nezavisimosti avenue, Minsk, 220013, Belarus.

² Polotsk State University,
29, Blokhin avenue, Novopolotsk, 211440, Belarus.

The relevance of the work is caused by the need to develop a technology for cold rolling of pipes applying the used hot-rolled pipe. The technology is being developed with the aim of saving geo-resources and increasing the economic efficiency of pipe production using cold pilger rolling.

The aim of the work is to develop a cost-effective technology for converting the used pipes into a different type of pipe product. The finished pipes obtained in this way must have sufficient quality parameters for safe operation.

Methods: theoretical studies of the technological processes of cold rolling of pipes on roll and cold pilger rolling mills, development of deformation modes and technology for cold rolling of used pipes, suitable for implementation at existing production, with minimal costs for the implementation of such technology.

Results. The authors developed and proposed for use the efficient (from both environmental and economic points of view) technology of cold rolling of industrial batches of pipes using billets from used pipes. The developed technology does not require significant investment. All the equipment required for its implementation is available in the cold-rolling pipe shops. The rolling technology itself practically does not differ from the standard one. Changes are introduced only in those operations of the technological process that relate to the preparation of the original workpiece for the first pass. Since up to 70–80 % of the cost of cold-worked pipes is the cost of a hot-rolled or hot-pressed billet, the use of the used pipes allows not only reducing the anthropogenic load on the environment, but increasing as well the commercial efficiency of the production of cold-rolled pipes. The finished pipes obtained by the developed method will have sufficient quality parameters for their trouble-free operation. The technology was tested in the existing cold-rolling tube shop.

Key words:

Cold rolling of pipes, used pipes, billet, technology, processing, environment, reduction of anthropogenic impact.

REFERENCES

1. SN 4.03.01-2019. *Gazoraspredelenie i gazopotreblenie. Stroitelnye normy* [Building codes 4.03.01-2019. Gas distribution and gas consumption. Building codes]. Minsk, Stroytekhnorm Publ., 2020. 106 p.
2. Romanova T.N. Obespechenie bezopasnosti pri ekspluatatsii bytovogo gazovogo oborudovaniya [Ensuring safety during the operation of household gas equipment] *Construction and industrial safety*, 2018, no. 13 (65), pp. 113–120.
3. Vishnyakova P.V., Efremova T.V. Razrabotka kriteriev dlya opredeleniya tipa rekonstruktsii sushchestvuyushchikh punktov redutsirovaniya gaza [Development of criteria for determining the type of reconstruction of existing gas reduction points]. *Engineering and construction bulletin of the Caspian region*, 2020, no. 1 (31), pp. 16–22.
4. Udovichenko Z.V., Smirnova Ya.V. Bezopasnaya ekspluatatsiya vnutridomovykh sistem gazosnabzheniya [Safe operation of in-house gas supply systems]. *Bulletin of DonNASA. Buildings and structures using new materials and technologies*, 2020, no. 3 (143), pp. 72–76.
5. Sokolovsky D.V., Ushakova I.G. Analiz bezopasnosti pri proektirovanii sistemy vodosnabzheniya [Safety analysis in the design of a water supply system]. VI *Mezhdunarodnaya nauchno-prakticheskaya konferentsiya. Bezopasnost gorodskoy sredy* [VI International Scientific and Practical Conference. Safety of the Urban Environment]. Omsk, Omsk State Technical University Publ., 2020. pp. 257–262.
6. *Polietilenovye truby dlya gazoprovodov – osobennosti i preimushchestva* [Polyethylene pipes for gas pipelines – features and benefits]. 2018. Available at: <https://plastdv.ru/stati/polietilenovyyetruby-dlya-gazoprovoda-osobennosti-i-preimushchestva> (accessed 06 August 2021).
7. Khademi-Zahedi R. Application of the finite element method for evaluating the stress distribution in buried damaged polyethylene gas pipes. *Underground Space*, 2019, no. 4, pp. 59–71.
8. Frank A., Arbeiter F.J., Berger I.J., Hutař P., Fracture mechanics lifetime prediction of polyethylene pipes. *Journal of Pipeline Systems Engineering and Practice*, 2019, no. 10, pp. 91–96.
9. Laloui L., Loria A.R. *Analysis and design of energy geostructures*. London, Academic press, 2019. 1062 p.
10. Pilipenko S.V., Frutsky A.V., Dudan V.A. Use of secondary materials in restoring the working capacity of bushings of slip bearings. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2021, vol. 332, no. 5, pp. 130–137. In Rus.
11. Vashenko S.V., Khudyakov A.Y., Baul K.V., Semenov Y.S. Razrabotka nauchno-metodicheskogo podkhoda k vyboru sostava briketiruemykh shikhty i ee svoystv [Development of a scientific and methodological approach to selection of the composition of the briquetted charge and its properties]. *Steel*, 2018, no. 8, pp. 2–6.
12. Iskhakov R.V., Gamin Yu.V., Kadach M.V., Budnikov A.S. Development of radial-shear rolling mill special stands for continuous cast billets deformation. *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering. 15th International Conference on Industrial Manufacturing and Metallurgy*. Nizhny Tagil, Nizhny Tagil technological Institute, 2020. pp. 12074. DOI: 10.1088/1757-899x/966/1/012074
13. Smirnov A.N., Smirnov E.N., Sklyar V.A., Belevitin V.A., Pivovarov R.E. Producing Structural-Steel Bar from Continuous-Cast Billet. *Steel in Translation*, 2018, no. 48, pp. 233–239.

14. Komarov A.I., Nikitin K.N., Safyanov A.V., Osadchy V.Y., Kolikov A.P. Razrabotka i osvoenie innovatsionnoy tekhnologii proizvodstva stalnykh besshovnykh trub bolshogo diametra (do 550 mm) iz nepreryvnoy razlivki [Development and mastering of innovative technology of manufacture of large diameter (up to 550 mm) steel seamless pipes from continuous casting]. *Black metals*, 2018, no. 8, pp. 71–74.
15. Dykokov A.V. Tekhnologiya podgotovki nepreryvno-litoy zagotovki iz nerzhavayushchikh marok stali k prokatke na TPA s nepreryvnym stanom s kontroliruemoy-peremeshchaemoy opravkoy [Technology of preparation of continuous casting of stainless steel grades for rolling on a pipe-rolling unit with a continuous mill with a controlled-moveable mandrel]. *Herald of the Southern Ural State University. Series: Metallurgy*, 2021, vol. 21, no. 3, pp. 66–96.
16. Shiryayev A.G., Chetverikov S.G., Chikalov S.G., Pyshmintsev I.Yu., Krylov P.V. Production of Seamless Steel Pipe for Oil and Gas Extraction in Challenging Conditions. *Steel in Translation*, 2018, no. 45, pp. 704–711.
17. Galkin S.P., Aleschenko A.S., Romantsev B.A., Gamin Yu.V., Iskhakov R.V. Effect of preliminary deformation of continuously cast billets by radial-shear rolling on the structure and properties of hot-rolled chromium-containing steel pipes. *Metallurgist*, 2021, no. 65, pp. 185–195.
18. Zhakupova A.T., Bogomolov A.V., Zhakupov A.N. The Influence of the Initial Billet on the Mechanical Properties of Pipes. *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering. 15th International Conference on Industrial Manufacturing and Metallurgy*, Nizhny Tagil, Nizhny Tagil technological Institute, 2020, pp. 12033. DOI: 10.1088/1757-899x/966/1/012033
19. Elektronnyy fond pravovykh i normativno-tekhnicheskikh dokumentov. GOST 1050-2013 [Electronic fund of legal and normative-technical documents. SS 1050-2013]. *Docslide*. 2020. Available at: <https://docs.cntd.ru/document/1200114294> (accessed: 06.08.2021).
20. Grigorenko V.U., Pilipenko S.V. Variation in wall thickness of cold-rolled pipe. *Steel in Translation*, 2008, no. 38 (9), pp. 775–776. DOI: 10.3103/S0967091208090209.
21. Pilipenko S.V., Grigorenko V.U., Kozechko V.A., Bohdanov O.O. A deformation mode in a cold rolling condition to provide the necessary texture of the Ti-3Al-2.5V alloy. *Naukovyi Visnyk Natsionalnoho Hirnychoho Universytetu*, 2021, no. 1, pp. 078–083.
22. Mishchenko A.V. Sostoyaniye i tendentsii razvitiya proizvodstva kholodnokatanykh trub iz splavov na osnove titana [Status and trends of development of the production of cold-rolled tubes from titanium alloys]. *Metal and casting of Ukraine*, 2019, no. 3–4 (310–311), pp. 58–68.
23. Sergacheva M.I., Nikulina A.V., Ogmegov K.V., Kabanov A.A. Povrezhdeniya trub iz splavov sistemy Zr-Nb v protsesse ikh kholodnoy prokatki [Damage of pipes from alloys of Zr-Nb system during their cold rolling]. *Questions of atomic science and technology. Series: Materials Science and New Materials*, 2019, no. 4 (100), pp. 102–117.

Received: 4 June 2022.

Information about the authors

Vyacheslav A. Tomilo, Dr. Sc., professor, head of the department, Belarusian State Technical University.

Stanislav V. Pilipenko, Cand. Sc., associate professor, Polotsk State University.

Alexander V. Dudan, Cand. Sc., dean of technological faculty, Polotsk State University.

УДК 502.4 (911.9)

ОЦЕНКА СОСТОЯНИЯ ПРИЗЕМНОГО АТМОСФЕРНОГО ВОЗДУХА В ЮГО-ЗАПАДНОМ КРЫМУ ПО ДАННЫМ ЛИХЕНОИНДИКАЦИИ

Каширина Екатерина Сергеевна^{1,2},
e_katerina.05@mail.ru

Медведков Алексей Анатольевич³,
a-medvedkov@bk.ru

Новиков Антон Алексеевич^{1,4},
a_novik@bk.ru

¹ Филиал Московского государственного университета имени М.В. Ломоносова в г. Севастополе, Россия, 299001, г. Севастополь, ул. Героев Севастополя, 7.

² Севастопольский государственный университет, Россия, 299001, г. Севастополь, наб. Корнилова, 1.

³ Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова, Россия, 199991, г. Москва, ГСП-1, Ленинские горы, 1.

⁴ Институт природно-технических систем, Россия, 299011, г. Севастополь, ул. Ленина, 28.

Актуальность. Лихеноиндикация широко применяется для оценки качества атмосферного воздуха. Для юго-западного Крыма оценка состояния атмосферного воздуха по данным лихеноиндикации проводится впервые.

Цель: проведение оценки качества атмосферного воздуха в юго-западном Крыму по данным лихеноиндикации.

Объекты: эпифитные лишайники, эверния сливовая (*Evernia prunastri*), рамалина мучнистая (*Ramalina farinacea*), фисция (*Physcia* Sp.), пармелия бороздчатая (*Parmelia sulcata*).

Методы. Для анализа в период с февраля по май 2018 г. отобрано 17 проб эпифитных кустистых лишайников в разных природно-ландшафтных условиях (предгорье, межгорные котловины, вершины гор) с учетом разного уровня антропогенной нагрузки. В пробах определено содержание семи элементов: Cu, Zn, Pb, Cd, Ni, Cr, Sr. Элементный состав лишайников определен методом атомно-абсорбционного спектрометрии.

Результаты. Выявлено, что к наиболее активно накапливаемым элементам в лишайниках юго-западного Крыма относятся Zn, Sr и Pb; менее активно накапливаются Cu, Cd, Ni и Cr. Анализ показал, что антропогенные источники загрязнения в большей степени индуцируются по содержанию в лишайниках Cu, Zn, Pb. Высокое содержание Sr индицирует аэрозольное влияние моря (как современной морской акватории через поступающие атмосферные осадки, так и палеоморского бассейна, что обусловлено денудацией морских отложений, микрочастицы которых присутствуют в атмосферном воздухе). Отмеченный относительно высокий уровень загрязнения атмосферного воздуха в г. Инкерман (входит в состав Большого Севастополя) обусловлен выбросами Севастопольской теплоэлектроцентрали (ТЭЦ), возле автозаправочной станции на трассе «Ялта–Севастополь» – выбросами автотранспорта, в сельских населенных пунктах Байдарской долины – выбросами от сжигания угля при печном отоплении. Выявлено, что данные по содержанию тяжелых металлов в лишайниках, отобранных в Чернореченском каньоне, могут считаться эталонными для определения фоновых параметров и уровня загрязнения приземной атмосферы в других районах юго-западного Крыма. Лишайники могут быть использованы для дополнения системы мониторинга состояния приземного воздуха в юго-западном Крыму.

Ключевые слова:

Лихеноиндикация, загрязнение воздуха, тяжелые металлы, экологический мониторинг, Крым, Севастополь.

Введение

Загрязнение атмосферного воздуха является одной из ключевых экологических проблем, которая типична для урбанизированных территорий с высокой степенью техногенно-преобразованных ландшафтов. По данным государственного мониторинга в 46 российских городах уровень загрязнения атмосферного воздуха в 2018 г. оценивался как высокий и очень высокий (индекс загрязнения атмосферы (ИЗА) более 7). В этих городах проживают 13,4 млн человек, что составляет 12 % городского населения России. К городам с максимально высоким ИЗА относятся 15 населенных пунктов, среди которых крупные промышленные центры: Братск, Красноярск, Норильск, Чита, Новокузнецк и др. [1].

Крымский полуостров относится к староосвоенным густонаселенным районам нашей страны со средней плотностью населения более 100 чел./км². В 2019 г. суммарные выбросы загрязняющих веществ от стационарных источников в атмосферный воздух на территории крупнейшего по численности населения города полуострова Севастополя составили 5,511 тыс. т, 98 % из которых приходится на газообразные и жидкие вещества. Ведущая роль в формировании выбросов принадлежит углеводородам (без учета летучих органических веществ), оксиду углерода и оксиду азота. В воздухе г. Севастополя за 2019 г. максимально-разовые концентрации достигали по взвешенным веществам 4,2 ПДК (февраль); по диок-

сиду серы 0,13 ПДК (июль); оксиду углерода 0,9 ПДК (июль); диоксиду азота 0,23 ПДК (июль); по формальдегиду 0,3 ПДК (июнь, июль) [2]. Как видно, регион характеризуется относительно низким уровнем загрязнения атмосферного воздуха.

Атмосферный воздух представляет собой один из самых мобильных компонентов окружающей среды, что затрудняет оценку уровня его загрязнения. Однако наиболее широкое распространение получили методы индикации с использованием биологических объектов – растений, мхов, лишайников. Лишайники чувствительны к загрязнению атмосферного воздуха и способны накапливать загрязняющие вещества в талломе [3, 4]. Применение методов биоиндикации с использованием лишайников позволяет оценить уровень накопленного загрязнения, что демонстрирует его эффективность по сравнению с другими подходами, особенно в условиях длительного, но неинтенсивного загрязнения [5]. Также изучение элементного состава лишайников даёт возможность проанализировать интенсивность выпадения аэрозольных частиц из приземного воздуха за несколько лет [6].

Методы лишеноиндикации для определения качества атмосферного воздуха получили широкое распространение как в России, так и других странах мира [7].

Наличие эпифитных кустистых и листовых лишайников, их количественные и качественные характеристики являются индикаторами качества атмосферного воздуха [8, 9]. Видовая структура сообществ лишайников отражает распространение наиболее и наименее чувствительных к тому или иному загрязняющему веществу видов. Например, для г. Элиста определено, что наиболее чувствительными к загрязнению являются калоплака зеленоватая (*Caloplaca chlorinea*), пармелия бороздчатая (*Parmelia sulcata*), ксантория обманчивая (*Xanthoria fallax*) [10]. Для лесных экосистем степной зоны Ростовской области лучше адаптированы к загрязненным районам феофисция округлая (*Pheophyscia orbicularis*) и фисция щетинистая (*Physcia hispida*), которые используются для индикации условий среды [11].

Общее видовое разнообразие эпифитных лишайников рассматривается как индикационный признак антропогенного воздействия: при увеличении антропогенной нагрузки видовое разнообразие лишайников снижается. Для оценки также используются такие показатели, как встречаемость, проективное покрытие, размер таллома [12, 13]. На примере городов Краснодарского края показано, что видовое разнообразие лишенобиоты снижается по градиенту антропогенной нагрузки: от 89 видов из 13 семейств в г. Кропоткин, 84 видов из 10 семейств на территории транспортного узла – г. Усть-Лабинск; до 51 вида из 12 семейств – в промышленном г. Тимашевске [14]. На примерах г. Кемерово и г. Новосибирска при антропогенных нагрузках показано сокращение видового разнообразия лишенобиоты и общего проективного покрытия отдельных видов лишайников. При сохранении видового разнообразия лишенобиоты в городских парках г. Кемерово на 70–90 % сокращается их общее проективное покрытие и встречаемость [15, 16].

Элементный анализ талломов позволяет количественно оценить загрязнение атмосферного воздуха различными поллютантами. Подобные оценки выполнены для многих городов России (Краснодара, Кемерово, Усть-Лабинска, Казани и др.) [17, 18].

Для урбоэкосистемы г. Краснодара показано снижение содержания тяжёлых металлов (Cu, Pb, Cd, Zn) по градиенту городской застройки в центральной, периферийной, парковой, пригородной и фоновой зонах. Необходимо отметить, что фиксируется снижение содержания Cu в парковой зоне до уровня ниже, чем на фоновых участках [19]. Схожая картина убывания содержания тяжёлых металлов от центра города к периферии и фоновым участкам наблюдается в пределах других урбанизированных территорий России (Саратова [20], Уфы [21]) и стран мира (Литвы [22], Польши [23, 24], Новой Зеландии [25], Индии [26, 27], Чили [28], Турции [29]) и др.

В промышленных зонах в лишайниках увеличивается содержание тяжелых металлов. Например, в районе угледобывающего производства «Каражыра» (Казахстан) средняя концентрация Zn в лишайнике составляла 80,0 мг/кг, что в 2,0 раза превышает фоновый показатель; средняя концентрация Cu – 37,8 мг/кг, что выше фона в 3,0 раза; Pb – 2,9 мг/кг, что соответствует 2,8 фоновым уровням [30]. В районах деятельности нефтедобывающего комплекса Томской области в лишайниках выявляются повышенные концентрации, относительно фоновых районов, таких элементов, как Sc, Fe, Cr, Zn, As, Br, Rb, Ba, Au, тогда как в зоне влияния Томск-Северской промышленной агломерации рассматриваемые биоиндикаторы характеризуется повышенным накоплением Ca, Sr, Sb, Th, U и лантаноидов [31]. К локальным источникам тяжёлых металлов прибавляются принесенные атмосферой из других районов. На примере содержания Pb в лишайниках, собранных в канадских нефтеносных песках Атабаски (Альберта), показан вклад в загрязнение региональных (46 %), местных (32 %) и глобальных (22 %) источников [32].

Лишеноиндикация также используется для определения фоновых параметров состояния атмосферного воздуха. Для целей фонового мониторинга анализируется содержание элементного состава тяжёлых металлов в лишайниках, отобранных на особо охраняемых природных территориях (ООПТ) и отдаленных от источников загрязнения территориях.

Для ООПТ г. Твери анализируется элементный состав тяжёлых металлов. Так, во всех пробах, отобранных на ООПТ г. Твери, присутствуют Al, Cd, Cr, Cu, Fe, Mn, Ni, Pb, Zn, единично отмечено наличие Co, Mo, Sb [33].

Для Крымского полуострова фоновые значения содержания тяжёлых металлов в лишайниках приведены для следующих ООПТ: заповедника «Кара-Даг» и заказника «Аю-Даг». Приводятся данные о содержании 25 элементов в лишайниках трех видов: кладония оленевидная (*Cladonia rangiferensis*), кладония свернутая (*Cladonia convoluta*) и зверния сливовая (*Evernia prunastri*) [34]. Для разных районов Республики Крым определено содержание ртути в эпифитных лишайниках [35].

Для юго-западного Крыма оценка состояния атмосферного воздуха по данным лишеноиндикации проводится впервые.

Материалы и методы исследования

В период с февраля по май 2018 г. отобрано 17 проб эпифитных кустистых и листовых лишайников в юго-

западной части Крымского полуострова (рис. 2). Пробоотбор осуществлялся в сообществах, сложенных, преимущественно, следующими видами лишайников: эверния сливовая (*Evernia prunastri*), рамалина мучнистая (*Ramalina farinacea*), фисция (*Physcia* Sp.), пармелия бороздчатая (*Parmelia sulcata*) (рис. 1).



Рис. 1. Анализируемые виды лишайников: а) эверния сливовая (*Evernia prunastri*); б) рамалина мучнистая (*Ramalina farinacea*); в) фисция *Physcia* Sp.; д) пармелия бороздчатая (*Parmelia sulcata*) (фото Е.С. Кашириной)

Fig. 1. Analyzed lichen species: а) *Evernia prunastri*; б) *Ramalina farinacea*; в) *Physcia* Sp.; д) *Parmelia sulcata* (photo by E.S. Kashirina)

Все пробы смешанные, но со значительным преобладанием эвернии сливовой (*Evernia prunastri*). Эпифитные лишайники отобраны на следующих видах деревьев: можжевельник высокий (*Juniperus excelsa*), граб восточный (*Carpinus orientalis*), бук европейский (*Fagus sylvatica*), ясень высокий (*Fraxinus excelsior*), а также кустарников терна (*Prunus spinosa*) и др.

Пробы отбирались с учетом природно-ландшафтной структуры и мозаики современного природопользования, особенностей расположения источников загрязнения: вдоль автотрасс, в зоне аэротехногенного воздействия промышленных предприятий, в сельских населенных пунктах и на удаленных от источников загрязнения площадках (рис. 2). В данной статье рассмотрены пробы, отобранные: а) в предгорной зоне разнотравных степей, шибляковых зарослей, лесостепи и дубовых лесов и б) в зоне широколиственных и сосновых лесов северного макро-

склона гор (согласно ландшафтной схеме Е.А. Позаченюк [36]).

Пробы лишайников отобраны в районе Внутренней гряды Крымских гор, в западной части Южного берега Крыма и на вершине горных отрогов Ай-Петринской яйлы (рис. 2). Относительно административных границ большая часть проб (14 шт.) отбирались в г. Севастополе, остальные (3 шт.) – на территории Республики Крым.

Пробы №№ 1–5 отобраны в западной части Чернореченского каньона на участках можжевельниковых редколесий. Точка № 5 расположена на дне каньона в полидоминантном пойменном лесу. Пробные площади удалены от источников загрязнения, входят в зону строгой охраны ландшафтного заказника «Байдарский». Пробы отобраны с ветвей граба восточного (грабинника) (*Carpinus orientalis*), сосны крымской (Палласа) (*Pinus nigra* subsp. *pallasiana*), можжевельника высокого (*Juniperus excelsa*).

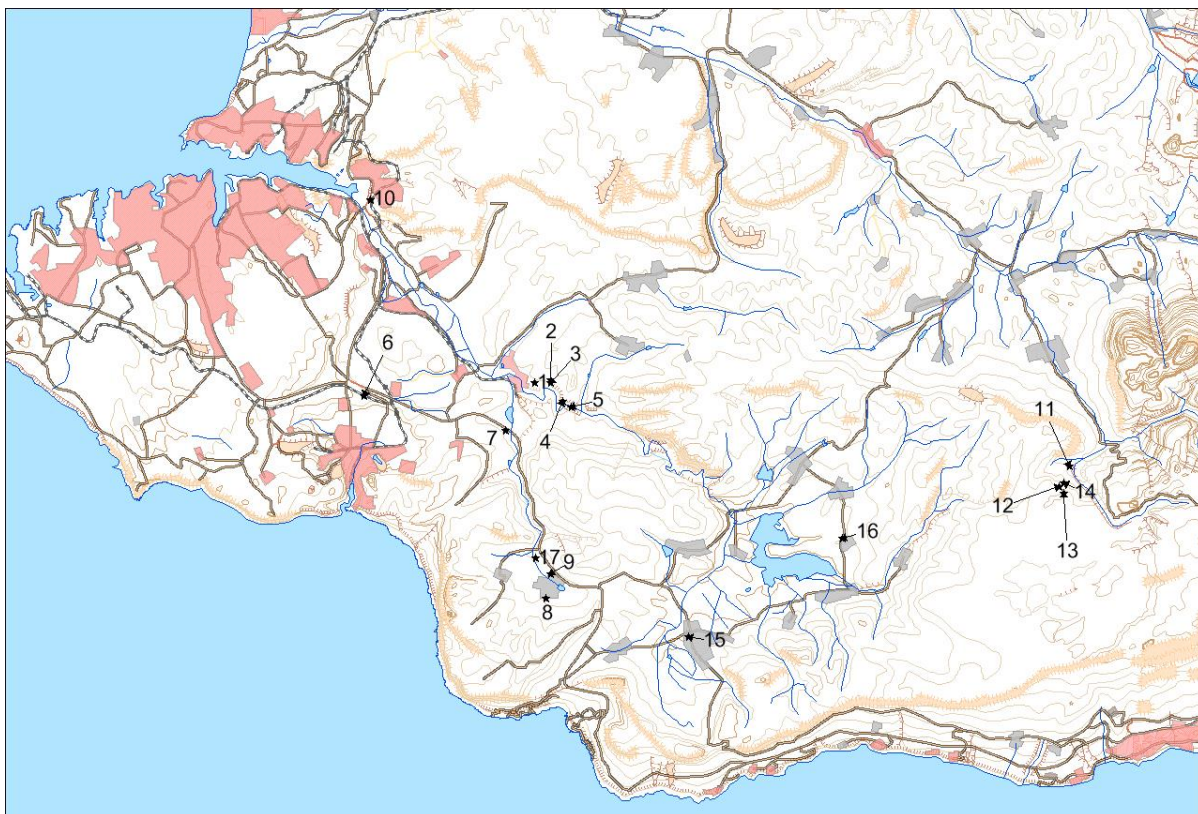


Рис. 2. Схема расположения точек отбора проб лишайников в юго-западном Крыму
Fig. 2. Layout of sampling points for lichens in the southwestern Crimea

Проба № 6 отобрана возле АЗС «ТЭС», в 10–15 м от автомобильной трассы «Севастополь–Ялта». Эпифитные лишайники отобраны с деревьев посаженного вдоль дороги ясеня (*Fraxinus* Sp.) на высоте 0,5–2 м. Пробная площадь расположена на выровненном склоне Балаклавской долины с основным источником выбросов – автомобильным транспортом.

Проба № 7 отобрана в долине р. Сухая, в нижней части котловины в районе г. Гасфорта и Гасфортского пруда (217 м над у.м.), возле автодороги «Севастополь–Ялта». Расстояние от дороги составило около 20 м. Необходимо отметить, что ближе к автотрассе в данном районе лишайников не обнаружено. Эпифитные лишайники были отобраны с кустарников терна (*Prunus spinosa*), деревьев дуба скального (*Quercus petraea*) и груши лохолистной (*Pyrus elaeagnifolia*) на высоте 0,5–1,5 м.

Пробы № 8 и 9 отобраны в Варнутской долине в районе с. Гончарное: № 8 – на южной окраине села, у реки, ближе к лесным массивам, № 9 – возле автотрассы «Севастополь–Ялта», в районе поворота на немецкое кладбище, на расстоянии 5 м от дороги. Все эпифитные лишайники отобраны с кустарников терна (*Prunus spinosa*). В районе сельской застройки кустистых и листовых лишайников не обнаружено. Основные источники загрязнения в Варнутской долине – автотранспорт и выбросы от дымовых труб сельских домов, которые отапливаются углем и дровами.

Проба № 10 отобрана около г. Инкермана в роще фисташки туполистной (*Pistacia mutica*). Необходимо отметить очень малое количество лишайников в роще.

Инкерман – один из самых экологически «грязных» микрорайонов Севастополя: здесь расположена Севастопольская ТЭЦ, автотрасса «Севастополь–Симферополь», предприятия по производству строительных материалов, крупное винодельческое предприятие «Инкерманский завод марочных вин» и другие производства.

Пробы эпифитных лишайников №№ 11–14 отобраны в районе Большого каньона Крыма, расположенного на северном макросклоне Главной гряды Крымских гор. Проба № 11 отобрана в низовье, в районе русла р. Сары-Узень (572 м над у.м.), № 12 – на склоне северной экспозиции г. Сары-Кая на высоте около 700 м, № 13 – на вершине г. Аю-Тешик (1031 м) и № 14 – на склоне г. Аю-Тешик. Это отдаленный от источников выбросов район Крыма. Пробы отобраны с ветвей бука европейского (*Fagus sylvatica*) и осины (*Populus* Sp.).

Пробы №№ 15–17 отобраны в Байдарской и Варнутской долинах. Проба № 15 отобрана в с. Орлиное возле автотрассы «Гончарное–Ялта», № 16 и 17 – вдоль автотрассы между селами Россошанка и Новобобровское, где основной источник загрязнения – автотранспорт. Кроме того, дома в селах отапливаются углем и дровами.

Необходимо отметить, что большая часть проб отобрана в границах ООПТ – ландшафтного заказника регионального значения «Байдарский». В черте городской застройки г. Севастополя кустистые лишайники практически не встречаются, что, возможно, связано с засушливым климатом и исходными степными экосистемами.

В растениях юго-западного Крыма (лишайниках) определено содержание семи элементов: Cu, Zn, Pb, Cd, Ni, Cr, Sr. Пробы растений озолены «сухим» методом при температуре 400–450 °С в течение 5 часов (т. е. процент золы посчитали при озолении пробы до 450°, на полученную навеску и производился пересчет). Зола растворена в 1М HNO₃. Элементный анализ проводился на атомно-абсорбционном спектрометре фирмы «Hitachi» с эффектом Зимана в пламени ацетилен-воздух при температуре 1800 °С. Проведенные методом атомно-абсорбционной спектрометрии измерения массовых долей элементов осуществлялись в соответствии со всеми методическими рекомендациями руководящего документа РД 52.18.191-2018.

Наряду с указанными методическими подходами проведен статистический анализ влияния разных факторов (азрации, абсолютной влажности воздуха, положения на склоне, экспозиции, уклона и абсолютной высоты дневной поверхности) на особенности накопления загрязняющих веществ в лишайниках. Это произведено в форме покомпонентного расчета линейного коэффициента корреляции Пирсона, принимающего значения в диапазоне от –1 (обратная зависимость) до 1 (прямая зависимость), а значения коэффициента в диапазоне от –0,3 до 0,3 свидетельствуют о слабой взаимосвязи или о ее отсутствии.

Результаты исследования и их обсуждение

Территория юго-западного Крыма представлена ландшафтами разнотравных степей, шибляковых зарослей, лесостепи равнинных территорий Гераклейского полуострова и северной части Севастополя, а также биоценозами дубовых лесов Предгорья. Широколиственные и сосновые леса покрывают склоны Крымских гор; горные луга и горная лесостепь представлены на закарстованных плато Байдарской и Ай-Петринской яйл, а также в межгорных котловинах. Южный берег Крыма – это ландшафты субсубтропических лесов и редколесий [36].

Основными источниками загрязнения атмосферного воздуха рассматриваемой территории является автотранспорт, объекты тепловой энергетики, горнодобывающие и другие промышленные предприятия. Необходимо отметить, что промышленный комплекс юго-западного Крыма представлен предприятиями пищевой промышленности, электротехники, судоремонт, функционирование которых не сопровождается значительными выбросами загрязняющих веществ в приземную атмосферу. Среди стационарных источников наибольший вклад в загрязнение атмосферного воздуха оказывают такие предприятия, как Севастопольская теплоэлектроцентраль (ТЭЦ) (работает на природном газе, угле и мазуте) и Балаклавское рудоуправление им. А.М. Горького, добывающее флюсовый известняк. В целом в городе расположено 116 котельных [2]. Ежегодно объем выбросов Севастопольской ТЭЦ достигает 2 тыс. т. Максимальная интенсивность автотранспортного потока в городской черте Севастополя достигает 2 тыс. автомобилей в час (по данным учетов на остановке Памятник Матросу Кошке, ул. Пожарова, перекрестке 5-го км Бала-

клавского шоссе). Вне урбанизированных зон на прилегающих автотрассах интенсивность транспортного потока составляет около 500 автомобилей в час (20-й км шоссе «Севастополь–Ялта»), повышается до 1000 автомобилей в час в районе Инкермана и снижается до 150 автомобилей в час в горной сельской местности (с. Орлиное). Более того, в Байдарской и Варнутской долинах расположено более 2000 частных домов, которые долгое время отапливались донецким углем, отличающимся высоким содержанием углерода, водорода, азота, серы, тяжелых металлов (свинец, цинк, хром, мышьяк и др.). Особенно отчетливо сжигание угля маркируется по накоплению свинца в растениях-биоиндикаторах [6].

С другой стороны, приморское положение юго-западного Крыма и частая повторяемость ветров (94,8 % дней в году) способствуют рассеиванию загрязнения. Накоплению же загрязняющих веществ способствуют овражно-балочный рельеф Гераклейского плато и котловинные условия в горных районах.

Содержание элементов в лишайниках юго-западного Крыма показано в табл. 1.

Таблица 1. Содержание элементов в лишайниках юго-западного Крыма, мг/кг абс. сухого вещества

Table 1. Element content in lichens of the southwestern Crimea, mg/kg abs. dry matter

№ пробы Sample no.	Cu	Zn	Pb	Cd	Ni	Cr	Sr
1	1,5*	20,8	2,7	0,08	<0,08	1,2	10,8
2	1,7	25,7	4,9	0,10	<0,08	1,2	15,2
3	1,8	18,4	4,9	<0,04	1,6	1,2	4,7
4	1,4	16,9	2,4	<0,04	0,9	1,0	3,9
5	2,7	27,8	7,1	0,12	1,0	2,1	3,2
6	4,9	56,0	7,3	<0,04	1,6	2,1	4,3
7	1,8	19,7	3,1	0,04	<0,08	0,6	11,3
8	1,5	15,4	2,0	<0,04	0,6	0,7	6,7
9	1,9	26,6	3,6	0,05	0,5	0,4	7,8
10	11,7	43,5	23,0	0,20	1,8	2,1	17,2
11	1,3	32,5	5,9	0,31	0,3	0,3	10,8
12	2,0	32,4	5,2	0,32	1,0	0,5	8,8
13	2,1	24,8	4,2	0,15	0,7	0,5	7,0
14	2,7	23,2	3,4	0,12	0,5	0,5	9,0
15	4,4	41,0	7,3	0,22	1,1	0,6	7,2
16	3,1	34,0	6,2	0,22	1,6	1,0	13,1
17	1,8	20,7	3,2	0,14	0,3	0,4	4,5

* Красным выделены три максимальных показателя для каждого элемента, зеленым – три минимальных/Three maximum indicators for each element are highlighted in red, three minimum indicators – in green.

Для каждого элемента рассмотрены концентрации на разных пробных площадях (рис. 3, 4).

Как видно, наиболее высокая концентрация Cu отмечена в пробах, отобранных в г. Инкерман, – более 11 мг/кг, что в 2 раза выше следующего показателя для АЗС «ТЭС». На повышенное содержание Cu возле АЗС «ТЭС» могут оказывать влияние прилегающие виноградники, которые обрабатываются медным купоросом. Также относительно высокие концентрации Cu отмечены в Байдарской долине, в с. Орлиное. Минимальные показатели содержания Cu зафиксированы в Чернореченском каньоне и в Боль-

шом каньоне Крыма, что обусловлено их отдаленным положением от основных источников загрязнения в регионе. В целом содержание Cu не превышает дан-

ные по придорожным районам Лагонакского нагорья (Северный Кавказ), где показатель находится в диапазоне 3,4–10,5 мг/кг [37].

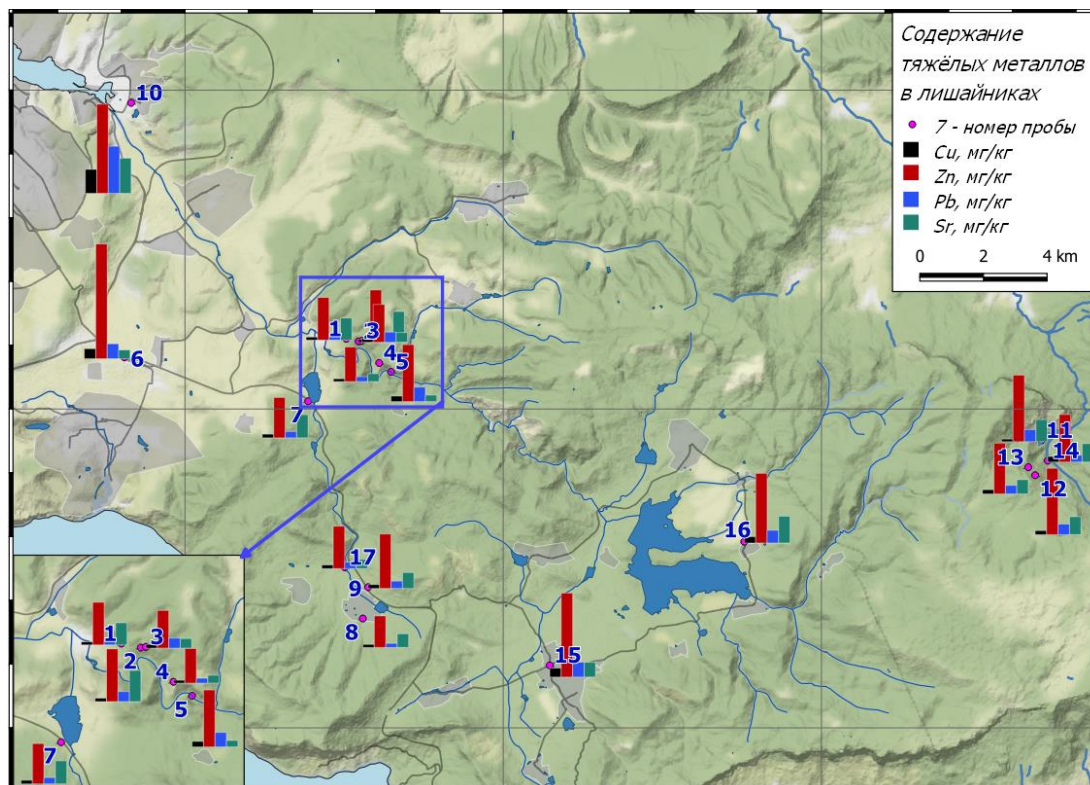


Рис. 3. Содержание тяжёлых металлов в лишайниках (макроэлементы)

Fig. 3. Content of heavy metals in lichens (macronutrients)

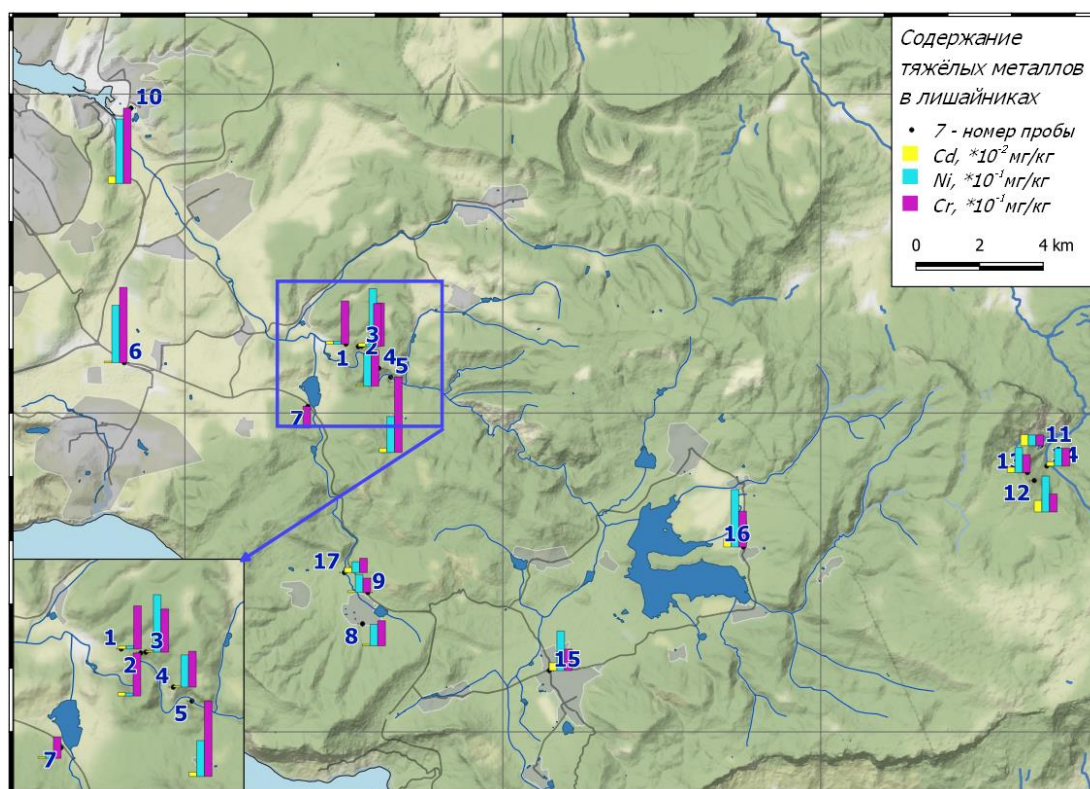


Рис. 4. Содержание тяжёлых металлов в лишайниках (микроэлементы)

Fig. 4. Content of heavy metals in lichens (trace elements)

Максимальная концентрация Zn отмечена в районе АЗС «ТЭС» на шоссе регионального значения «Севастополь–Ялта». Также относительно высокие концентрации Zn зафиксированы на площадках в г. Инкерман и в Байдарской долине, в с. Орлиное. Минимальные концентрации Zn отмечены возле с. Гончарное в Варнутской долине.

Содержание Pb отчётливо свидетельствует о его повышенной концентрации в промышленном районе – г. Инкерман. В г. Инкерман отмечена наиболее высокая концентрация Pb, в 3 раза превышающая другие пробы. На остальных пробных площадках содержание Pb находится в диапазоне 2,4–7,3 мг/кг абс. сухого вещества. Необходимо отметить, что не все пробы лишайников, отобранные у автодорог, характеризуются сравнительно высоким содержанием Pb. Для сравнения отметим, что для тех же видов лишайников Лагонакского плато (Кавказ) содержание Pb варьирует от 4,6 до 16,6 мг/кг абс. сухого вещества, причем в придорожной полосе содержание Pb также не всегда показывает пик [37].

Содержание Cd в лишайниках находится в диапазоне от <0,04 до 0,32 мг/кг абс. сухого вещества. Относительно высокие концентрации Cd отмечены в пробах, отобранных в районе Большого каньона Крыма, а также в г. Инкерман и с. Орлиное. Относительно высокое содержание Cd в пробах внутреннего горного района Крыма может быть связано с природными геохимическими аномалиями или трансграничным переносом загрязняющих веществ. Повышенное содержание данного элемента в г. Инкерман и с. Орлиное позволяет судить о его антропогенной природе (аэротехногенном привносе). По данным фонового мониторинга Южного берега Крыма [34] содержание Cd в лишайниках находится в диапазоне 0,09–0,31 мг/кг абс. сухого вещества, т. е. полученные результаты по юго-западному Крыму не превышают фоновых значений. Данные по Лагонакскому нагорью Кавказа показывают более высокое содержание Cd – не менее 0,4 мг/кг абс. сухого вещества [37]. Для склонов Маркхотского хребта максимальное содержание Cd в лишайниках эверния сливовая (*Evernia prunastri*) достигает 0,3 мг/кг абс. сухого вещества [38].

Содержание никеля в большей степени отражает антропогенное влияние с максимумом в промышлен-

ном районе – г. Инкерман, и возле АЗС «ТЭС» на автотрассе. Вместе с тем отмечается относительно высокая концентрация Ni в Чернореченском каньоне и в с. Орлиное Байдарской долины. На трех пробных площадках концентрация Ni ниже чувствительности прибора.

Содержание Cr в лишайниках варьирует от 0,4 до 2,1 мг/кг абс. сухого вещества. Содержание Cr в лишайниках не отражает расположение антропогенных источников загрязнения. Так, относительно высокое содержание Cr отмечено в промышленном районе г. Инкерман и возле АЗС «ТЭС», и одновременно в Чернореченском каньоне, в зоне строгой охраны ООПТ.

Содержание Sr в лишайниках варьируется от 3,2 до 17,2 мг/кг абс. сухого вещества. Содержание Sr не позволяет дифференцировать его источники на естественные и антропогенные. Максимальное содержание стронция среди отобранных проб отмечено в г. Инкерман. Однако второй по величине показатель отмечен в Чернореченском каньоне – районе, отдаленном от промышленных источников загрязнения.

В разрезе отдельных пробных площадей можно отметить абсолютное преобладание Zn во всех пробах. Zn отличается высокой биофильностью, особенно по отношению к лишайникам. Необходимо отметить, что Sr также обладает высокой биофильностью. Применительно к литолого-генетическим особенностям территории Крыма отметим, что карбонатные породы – один из главных резервуаров Sr, что объясняет высокое содержание элементов в большинстве проб.

В целом высокие концентрации тяжелых металлов отмечены в пробах лишайников, отобранных в промышленном районе г. Инкерман, возле АЗС «ТЭС» на трассе «Севастополь–Ялта» и в с. Орлиное в Байдарской межгорной котловине. Минимальный уровень содержания тяжелых металлов отмечен в пробах лишайников, отобранных в Чернореченском каньоне и в Варнутской долине возле с. Гончарное.

Факторный анализ влияния аэрации, положения на склоне, абсолютной влажности воздуха, экспозиции склона, уклона и высоты местности на содержание тяжелых металлов в лишайниках выявил слабую корреляцию по большинству параметров (табл. 2).

Таблица 2. Влияние некоторых абиотических факторов на содержание тяжелых металлов в лишайниках

Table 2. Influence of some abiotic factors on the content of heavy metals in lichens

Фактор/Factor	Cu	Zn	Pb	Cd	Ni	Cr	Sr
Аэрация/Aeration	–0,0003*	0,2606	–0,0934	0,3601	0,3158	–0,1910	–0,4348
Положение на склоне Slope position	0,0459	0,4381	–0,0068	0,3620	0,4418	0,0816	–0,3731
Влажность /Humidity	0,1994	0,0434	0,1476	–0,0989	0,0874	–0,0828	0,1164
Экспозиция/Exposition	0,1719	–0,0549	0,2475	0,0962	–0,1581	0,0232	0,2722
Уклон/Slope	–0,3307	–0,3074	–0,2190	0,1236	–0,0961	–0,1326	0,0351
Высота/Height	–0,2301	0,0640	–0,1973	0,6799	–0,0254	–0,6023	–0,1165

*Оттенками красного выделена положительная связь, синего – обратная, яркие цвета – значения выше, бледные – ниже.

*Shades of red indicate a positive relationship, blue – the reverse, bright colors – values higher, pale – lower.

Хорошо заметно, что морфометрические особенности дневной поверхности и данные о количестве влаги, содержащейся в одном кубическом метре воздуха, слабо коррелируют с концентрацией тяжелых металлов в лишайниках, поскольку значительная часть коэффициентов имеет значения по модулю меньше 0,3 (связь слабая). Выявлено, что наиболее

значимые факторы – абсолютная высота, положение на склоне и интенсивность обмена/перемешивания воздуха (аэрация), оказывают влияние на концентрацию Zn, Cd, Cr и Ni. При этом слабая аэрация вблизи антропогенных источников выбросов приводит к повышенной концентрации тяжелых металлов в лишайниках (рис. 5).

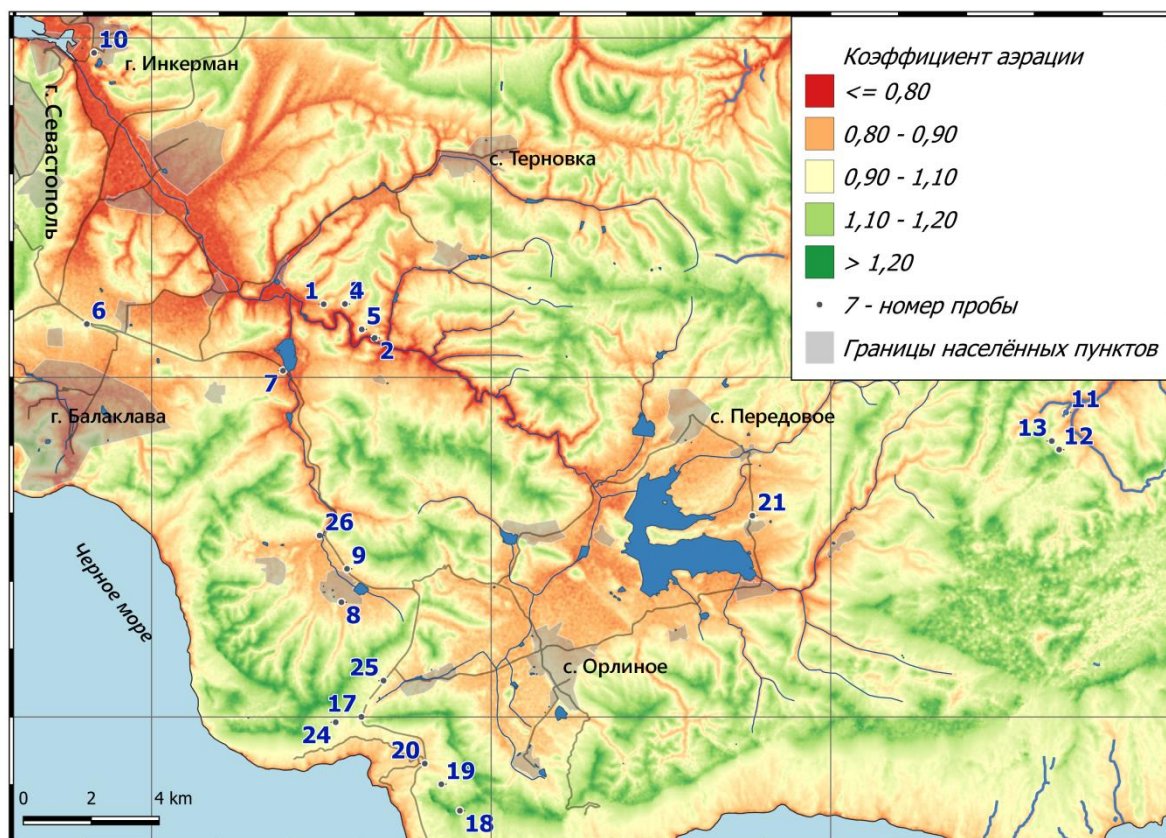


Рис. 5. Расположение точек отбора относительно аэрационных условий территории

Fig. 5. Location of sampling points in different aeration conditions of the territory

Индекс аэрации позволяет оценивать интенсивность рассеивания загрязняющих веществ. Значения индекса ниже 1 указывают на области с пониженными скоростями ветра, тогда как значения выше 1 указывают на зоны, где ветровой поток характеризуется его наибольшими скоростями. Для расчета индекса использовались следующие данные: цифровая модель рельефа, карта скоростей и направлений ветра с его осредненными значениями, и учитывалось расстояние, на котором просчитывается эффект затухания ветра.

На рис. 5 отчетливо заметно, что точка 10 с максимальными концентрациями оцениваемых элементов расположена ближе всего к Севастопольской бухте и урбанизированной части г. Инкерман. Для этого же района характерна слабая аэрация, что приводит к относительно высокой концентрации тяжелых металлов в лишайниках.

Заключение

Элементный анализ содержания тяжелых металлов в лишайниках юго-западного Крыма позволил сделать следующие выводы:

1. К наиболее активно накапливаемым металлам в лишайниках юго-западного Крыма можно отнести Zn, Sr и Pb. Менее активно накапливаются Cu, Cd, Ni, Cr.
2. Проведенный анализ показал, что антропогенные источники загрязнения в большей степени фиксируются по содержанию в лишайниках Cu, Zn, Pb.
3. Отмеченный относительно высокий уровень загрязнения атмосферного воздуха в г. Инкерман обусловлен выбросами Севастопольской ТЭЦ, возле АЗС на трассе «Ялта–Севастополь» – выбросами автотранспорта, в сельских населенных пунктах Байдарский долины – выбросами от сжигания угля при печном отоплении.
4. Данные по содержанию тяжелых металлов в лишайниках, отобранных в Чернореченском каньоне, могут считаться эталонными для определения фоновых параметров и уровня загрязнения атмосферы в других районах юго-западного Крыма.
5. Высокое содержание Sr обусловлено литологическими особенностями территории (широким развитием морских отложений) и влиянием акватории Чёрного моря.

Таким образом, эпифитные кустистые и листовые лишайники могут быть использованы для дополнения существующей системы мониторинга состояния атмосферного воздуха в юго-западном Крыму. Полученные результаты представляют основу для создания специализированной базы данных, необходимой для прогнозирования атмосферно-

экологической ситуации в меняющихся условиях внешней среды (изменение циркуляционных процессов, появление новых источников экологической опасности и т. д.).

Работа выполнена при поддержке проекта РНФ № 20-47-01001.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Государственный доклад «О состоянии и об охране окружающей среды Российской Федерации в 2018 году». URL: http://www.mnr.gov.ru/docs/gosudarstvennye_doklady/ (дата обращения: 18.03.2020).
2. Ежегодный доклад о состоянии и об охране окружающей среды города Севастополя за 2019 год. URL: <https://spn.sev.gov.ru/ekologicheskoe-sostoyanie-sevastopolya/doklad-o-sostoyanii-i-ob-okhrane-okruzhayushchey-sredy-goroda-sevastopolya/> (дата обращения: 26.06.2022).
3. Rola K. Insight into the pattern of heavy-metal accumulation in lichen thalli // *Journal of Trace Elements in Medicine and Biology*. – 2020. – V. 61. – 126512 URL: <https://doi.org/10.1016/j.jtemb.2020.126512> (дата обращения 15.05.2022).
4. Heavy-metal tolerance of photobiont in pioneer lichens inhabiting heavily polluted sites / K. Rola, E. Latkowska, B. Myśliwa-Kurczel, P. Osyczka // *Science of The Total Environment*. – 2019. – V. 679. – P. 260–269.
5. Comparison of the heavy metal bioaccumulation capacity of an epiphytic moss and an epiphytic lichen / A. Basile, S. Sorbo, G. Aprile, B. Conte, R. Castaldo Cobianchi // *Environmental Pollution*. – 2008. – V. 151. – Iss. 2. – P. 401–407. URL: <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2007.07.004> (дата обращения 15.05.2022).
6. Особенности накопления тяжелых металлов кустистыми эпифитными лишайниками в республиках Алтай и Хакасия / В.П. Шевченко, Д.П. Стародымова, А.А. Афанасьева, А.Ю. Бычков, Я.В. Бычкова, В.В. Конева, А.С. Саввичев // *Фундаментальные исследования*. – 2014. – № 12. – С. 2373–2377.
7. Spatial distribution of mercury and other potentially toxic elements using epiphytic lichens in Nova Scotia / S.J. Klapstein, A.K. Walker, C.H. Saunders, R.P. Cameron, J.D. Murimboh, N.J. O'Driscoll // *Chemosphere*. – 2020. – V. 241. – 125064 URL: <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2019.125064> (дата обращения 15.05.2022).
8. Зеленская Т.Г., Еременко Р.С., Степаненко Е.Е. Изучение состояния атмосферного воздуха заказника «Русский лес» г. Ставрополя методом лишайноиндикации // *Вестник Красноярского государственного аграрного университета*. – 2012. – № 9. – С. 94–97.
9. Biodiversity of epiphytic lichens and heavy metal contents of Flavoparmelia caperata thalli as indicators of temporal variations of air pollution in the town of Montecatini Terme (central Italy) / S. Loppi, L. Frati, L. Paoli, V. Bigagli, C. Rossetti, C. Bruscoli, A. Corsini // *Science of The Total Environment*. – 2004. – V. 326. – Iss. 1–3. – P. 113–122. URL: <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2003.12.003> (дата обращения 15.05.2022).
10. Стаселько Е.А., Сангаджиев М.М., Берикова Б.В. Лишайники как индикаторы экологического зонирования урбанизированных территорий // *Геология, география и глобальная энергия*. – 2013. – № 3 (50). – С. 178–186.
11. Засоба В.В., Меденец Е.Ю. Видовое разнообразие эпифитных лишайников как индикаторный признак антропогенного влияния на лесные экосистемы степной зоны // *Юг России: экология, развитие*. – 2008. – № 4. – С. 46–52.
12. Инсаров Г.Э., Мучник Е.Э., Инсарова И.Д. Эпифитные лишайники в условиях загрязнения атмосферы Москвы: методология долговременного мониторинга // *Проблемы экологического мониторинга и моделирования экосистем*. – 2010. – Т. 23. – С. 276–295.
13. Edge and land-use effects on epiphytic lichen diversity in the forest-steppe ecotone of the Mongolian Altai / M. Hauck, S. Javkhlan, D. Lkhagvadorj, B. Bayartogtokh, C. Dulamsuren, C. Leuschner // *Flora – Morphology, Distribution, Functional Ecology of Plants*. – 2012. – V. 207. – Iss. 6. – P. 450–458. URL: <https://doi.org/10.1016/j.flora.2012.03.008> (дата обращения 15.05.2022).
14. Криворотов С.Б., Манилова О.Ю. К изучению лишайнобиоты некоторых урбоэкосистем Северо-Западного Кавказа // *Грани познания*. – 2019. – № 6 (65). – С. 84–87.
15. Романова Е.В. Лишайники биоиндикаторы атмосферного загрязнения г. Кемерово // *Вестник Томского государственного университета. Биология*. – 2012. – № 4 (20). – С. 203–214.
16. Романова Е.В., Седельникова Н.В. Лишайники – биоиндикаторы атмосферного загрязнения Новосибирской городской агломерации. – Новосибирск: Гео, 2010. – 98 с.
17. Анищенко Л.Н., Сафранкова Е.А. Лишайнофлора малых городов и поселков городского типа Брянской области: биоразнообразие и использование в биоиндикации // *Вестник Оренбургского государственного университета*. – 2013. – № 6 (155). – С. 28–32.
18. Тарханов С.Н. Состояние эпифитного лишайникового покрова в условиях загрязнения атмосферы Зимнебережно-Архангельского района // *Лесной вестник*. – 2002. – № 5. – С. 45–53.
19. Сионова Н.А., Криворотов С.Б. Использование эпифитных лишайников как биоиндикаторов загрязнения атмосферного воздуха урбоэкосистемы г. Краснодара // *Известия высших учебных заведений. Северо-Кавказский регион. Естественные науки*. – 2007. – № 1. – С. 83–85.
20. Ерофеева И.А. Анализ содержания тяжелых металлов в эпифитных лишайниках в условиях городской среды // *Вестник Саратовского госагроуниверситета им. Н.И. Вавилова*. – 2013. – № 3. – С. 20–23.
21. Анализ содержания тяжелых металлов и соединений серы в лишайниках *Parmelia sulcata* в условиях городской среды / Н.Н. Красногорская, Е.А. Клеттер, Р.Р. Сулейманова, С.Е. Журавлева // *Современные проблемы науки и образования*. – 2012. – № 2. – С. 338–347.
22. Similarities and differences in geochemical distribution patterns in epiphytic lichens and topsoils from kindergarten grounds in Vilnius / R. Taraškevičius, J. Motiejūnaitė, R. Zinkutė, A. Eigminienė, L. Gedminienė, Ž. Stankevičius // *Journal of Geochemical Exploration*. – 2017. – V. 183. – Pt. B. – P. 152–165. URL: <https://doi.org/10.1016/j.gexplo.2017.08.013> (дата обращения 15.05.2022).
23. Parzych A., Zdunczyk A., Astel A. Epiphytic lichens as bioindicators of air pollution by heavy metals in an urban area (northern Poland) // *Journal of Elementology*. – 2016. – V. 21. – № 3. – P. 781–795.
24. Zakrzewska M., Klimek B. Trace element concentrations in tree leaves and lichen collected along a metal pollution gradient near Olkusz (Southern Poland) // *Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology*. – 2018. – V. 100. – P. 245–249. URL: <https://doi.org/10.1007/s00128-017-2219-y> (дата обращения 15.05.2022).
25. Kularatne K.I.A., de Freitas C.R. Epiphytic lichens as biomonitors of airborne heavy metal pollution // *Environmental and Experimental Botany*. – 2013. – V. 88. – P. 24–32.
26. Recent advances in lichenology: modern methods and approaches in biomonitoring and bioprospection / Eds. D.K. Upreti, P.K. Divakar, V. Shukla, R. Bajpai. – India, New Delhi: Springer, 2015. – P. 87–118.
27. Lichen as quantitative biomonitors of atmospheric heavy metals deposition in Central India / R. Bajpai, D.K. Upreti, S.K. Dwivedi, S. Nayaka // *Journal of Atmospheric Chemistry*. – 2009. – V. 63. – P. 235–246.
28. Changes in epiphytic lichen diversity are associated with air particulate matter levels: the case study of urban areas in Chile / Z. Varela, G. López-Sánchez, M. Yáñez, C. Pérea, J.A. Fernández,

- P. Matos, C. Branquinho, J.R. Aboal // *Ecological Indicators*. – 2018. – V. 91. – P. 307–314. URL: <https://doi.org/10.1016/j.ecolind.2018.04.023> (дата обращения 15.05.2022).
29. Koz B., Celik N., Cevik U. Biomonitoring of heavy metals by epiphytic lichen species in Black Sea region of Turkey // *Ecological Indicators*. – 2010. – V. 10. – Iss. 3. – P. 762–765. URL: <https://doi.org/10.1016/j.ecolind.2009.11.006> (дата обращения 15.05.2022).
30. Евлампиева Е.П., Панин М.С. Накопление цинка, меди и свинца лишайником в районе угледобывающего месторождения «Каражыра» // *Вестник томского государственного университета*. – 2008. – № 314. – С. 196–200.
31. Большунова Т.С., Рихванов Л.П., Барановская Н.В. Элементный состав лишайников как индикатор загрязнения атмосферы // *Экология и промышленность России*. – 2014. – № 11. – С. 26–31.
32. Graney J.R., Edgerton E.S., Landis M.S. Using Pb isotope ratios of particulate matter and epiphytic lichens from the Athabasca Oil Sands Region in Alberta, Canada to quantify local, regional, and global Pb source contributions // *Science of The Total Environment*. – 2019. – V. 654. – P. 1293–1304. URL: <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2018.11.047> (дата обращения 15.05.2022).
33. Кутикова А.О., Мейсурова А.Ф. Содержание металлов в лишайниках из особо охраняемых природных территорий города Твери // *Вестник Тверского государственного университета. Серия: химия*. – 2016. – № 1. – С. 152–158.
34. Фоновые уровни накопления тяжелых металлов, макро- и микроэлементов некоторыми видами лишайников на особо охраняемых природных территориях южного и юго-восточного побережья Крыма / Н.А. Голубкина, В.А. Лапченко, Е.В. Лапченко, Т.С. Науменко, Е.С. Крайнюк, Н.А. Багрикова // *Бюллетень Государственного Никитского ботанического сада*. – 2019. – № 130. – С. 26–35.
35. Содержание ртути в эпифитных лишайниках на территории Республики Крым / Е.В. Евстафьева, А.М. Богданова, Т.С. Большунова, Н.В., Барановская Н.А. Осипова // *Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов*. – 2019. – Т. 330. – № 7. – С. 93–103.
36. Современные ландшафты Крыма и сопредельных акваторий: монография // науч. ред. Е.А. Позаченюк. – Симферополь: Бизнес-Информ, 2009. – 672 с.
37. Криворотов С.Б., Рагульская Е.А. Эпифитные лишайники как биоиндикаторы загрязнения тяжелыми металлами горных лесных фитоценозов Лагонакского нагорья (северо-западный Кавказ) // *Экология: рациональное природопользование и безопасность жизнедеятельности: Сборник материалов Всероссийской научно-практической конференции, с международным участием*. – Майкоп: Адыгейский государственный университет, 2017. – С. 41–43.
38. Криворотов С.Б., Микаелян Л.А., Рагульская Е.А. Лишайники как индикаторы состояния лесных экосистем южного склона Маркотхского хребта (северо-западный Кавказ) // *Бисосфера и человек: Материалы международной научной конференции*. – Майкоп: ООО «Электронные издательские технологии», 2019. – С. 67–69.

Поступила 27.06.2022 г.

Информация об авторах

Каширина Е.С., кандидат географических наук, старший преподаватель кафедры геоэкологии и природопользования Филиала Московского государственного университета им. М.В. Ломоносова в г. Севастополе; доцент Института развития города Севастопольского государственного университета.

Медведков А.А., кандидат географических наук, доцент кафедры физической географии мира и геоэкологии географического факультета Московского государственного университета им. М.В. Ломоносова.

Новиков А.А., старший преподаватель кафедры геоэкологии и природопользования Филиала Московского государственного университета им. М.В. Ломоносова в г. Севастополе; младший научный сотрудник Института природно-технических систем.

UDC 502.4 (911.9)

ASSESSMENT OF THE SURFACE ATMOSPHERIC AIR STATE IN THE SOUTHWESTERN CRIMEA ACCORDING TO LICHENOIDIFICATION DATA

Ekaterina S. Kashirina^{1,2},
e_katerina.05@mail.ru

Aleksey A. Medvedkov³,
a-medvedkov@bk.ru

Anton A. Novikov^{1,4},
a_novik@bk.ru

¹ Branch of Lomonosov Moscow State University in the city of Sevastopol,
7, Heroes of Sevastopol street, Sevastopol, 299001, Russia.

² Institute of urban development, Sevastopol state University,
1, Kornilov embankment, Sevastopol, 299001, Russia.

³ Lomonosov Moscow State University,
1, Leninskie gory, Moscow, 199991, Russia.

⁴ Institute of Natural and Technical Systems,
28, Lenin street, Sevastopol, 299011, Russia.

Relevance. Lichenoidification is widely used to assess the quality of atmospheric air. For southwestern Crimea, the assessment of the state of atmospheric air based on lichenoidification data is carried out for the first time.

The aim of the research is to assess the quality of atmospheric air in southwestern Crimea according to lichen detection data.

The objects of the study are epiphytic lichens, *Evernia prunastri*, *Ramalina farinacea*, *Physcia*, *Parmelia sulcata*.

Methods. For analysis in the period from February to May 2018, 17 samples of epiphytic fruticose lichens were taken in different landscape conditions (foothills, intermontane basins, mountain tops), taking into account different levels of anthropogenic load. The samples contain seven elements: Cu, Zn, Pb, Cd, Ni, Cr, Sr. The elemental composition of lichens was determined using an atomic absorption spectrometer.

Results. It was revealed that the most actively accumulated metals in the lichens of southwestern Crimea are Zn, Sr and Pb; less active accumulation of Cu, Cd, Ni and Cr. The analysis showed that anthropogenic sources of pollution are to a greater extent induced by the content of Cu, Zn, Pb in lichens. The high Sr content is due to its ability to replace calcium in potassium-containing minerals in carbonate rocks, which are widespread in the region. The noted relatively high level of air pollution in the city of Inkerman is due to emissions from the Sevastopol combined heat and power plant, near the gas station on the Yalta–Sevastopol highway – emissions from vehicles, in rural settlements of the Baydarsky valley – emissions from coal burning with stove heating. It was revealed that the data on the content of heavy metals in lichens sampled in the Chernorechensky canyon can be considered a reference for determining the background parameters and the level of pollution of the surface atmosphere in other regions of southwestern Crimea. Lichens can be used to supplement the monitoring system for surface air pollution in southwestern Crimea during atmospheric transport.

Key words:

Lichenoidification, air pollution, heavy metals, ecological monitoring, Crimea, Sevastopol.

The research was supported by the RSF project no. 20-47-01001.

REFERENCES

1. Gosudarstvenny doklad «O sostoyanii i ob okhrane okruzhayushchey sredy Rossiyskoy Federatsii v 2018 godu» [State report «On the state and environmental protection of the Russian Federation in 2018»]. Available at: http://www.mnr.gov.ru/docs/gosudarstvennye_doklady/ (accessed 18 March 2020).
2. Ezhegodny doklad o sostoyanii okruzhayushchey prirodnoy sredy v g. Sevastopole v 2019 g. [Annual report on the state of the natural environment in Sevastopol in 2019]. Available at: <https://spn.sev.gov.ru/ekologicheskoe-sostoyanie-sevastopolya/doklad-o-sostoyanii-i-ob-okhrane-okruzhayushchey-sredy-goroda-sevastopolya/> (accessed 26 June 2022).
3. Rola K. Insight into the pattern of heavy-metal accumulation in lichen thalli. *Journal of Trace Elements in Medicine and Biology*, 2020, vol. 61, 126512. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.jtemb.2020.126512> (accessed 15 May 2022).
4. Rola K., Latkowska E., Myśliwa-Kurdiel B., Osyczka P. Heavy-metal tolerance of photobiont in pioneer lichens inhabiting heavily polluted sites. *Science of The Total Environment*, 2019, vol. 679, pp. 260–269.
5. Basile A., Sorbo, S. Aprile G., Conte B., Castaldo Cobianni R. Comparison of the heavy metal bioaccumulation capacity of an epiphytic moss and an epiphytic lichen. *Environmental Pollution*, 2008, vol. 151, Iss. 2, pp. 401–407. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2007.07.004> (accessed 15 May 2022).
6. Shevchenko V.P., Starodymova D.P., Afanaseva A.A., Bychkov A.Yu., Bychkova Ya.V., Koneva V.V., Savvichev A.S. Features of heavy metal accumulation by bushy epiphytic lichens in the Altai and Khakassia republics. *Fundamentalnye issledovaniya*, 2014, no. 12, pp. 2373–2377. In Rus.
7. Klapstein S.J., Walker A.K., Saunders C.H., Cameron R.P., Murimboh J.D., O'Driscoll N.J. Spatial distribution of mercury and other potentially toxic elements using epiphytic lichens in Nova Scotia. *Chemosphere*, 2020, vol. 241, 125064. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2019.125064> (accessed 15 May 2022).

8. Zelenskaya T.G., Eremenko R.S., Stepanenko E.E. Study of the atmospheric air condition of the reserve «Russian forest» in Stavropol by the method of lichenoidication. *Vestnik Krasnoyarskogo gosudarstvennogo agrarnogo universiteta*, 2012, no. 9, pp. 94–97. In Rus.
9. Loppi S., Frati L., Paoli L., Bigagli V., Rossetti C., Bruscoli C., Corsini A. Biodiversity of epiphytic lichens and heavy metal contents of *Flavoparmelia caperata* thalli as indicators of temporal variations of air pollution in the town of Montecatini Terme (central Italy). *Science of The Total Environment*, 2004, vol. 326, Iss. 1–3, pp. 113–122. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2003.12.003> (accessed 15 May 2022).
10. Staselko E.A., Sangadzhiev M.M., Berikova B.V. Lichens as indicators of ecological zoning of urbanized territories. *Geologiya, geografiya i global'naya energiya*, 2013, no. 3 (50), pp. 178–186. In Rus.
11. Zasoba V.V., Medenets E.Yu. Species diversity of epiphytic lichens as an indicative sign of anthropogenic influence on forest ecosystems of the steppe zone. *Yug Rossii: ekologiya, razvitie*, 2008, no. 4, pp. 46–52. In Rus.
12. Insarov G.E., Muchnik E.E., Insarova I.D. Epiphytic lichens in the conditions of Moscow atmosphere pollution: methodology of long-term monitoring. *Problemy ekologicheskogo monitoringa i modelirovaniya ekosistem*, 2010, vol. 23, pp. 276–295. In Rus.
13. Hauck M., Javkhlan S., Lkhagvadorj D., Bayartogtokh B., Dulamsuren C., Leuschner C. Edge and land-use effects on epiphytic lichen diversity in the forest-steppe ecotone of the Mongolian Altai. *Flora – Morphology, Distribution, Functional Ecology of Plants*, 2012, vol. 207, Iss. 6, pp. 450–458. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.flora.2012.03.008> (accessed 15 May 2022).
14. Krivorotov S.B., Manilova O.Yu. To the study of the lichen biota of some of the urban ecosystems of the Northwest Caucasus. *Grani poznaniya*, 2019, no. 6 (65), pp. 84–87. In Rus.
15. Romanova E.V. The Lichens are the bioindicators of air pollution in Kemerovo. *Vestnik Tomskogo gosudarstvennogo universiteta. Biologiya*, 2012, no. 4 (20), pp. 203–214. In Rus.
16. Romanova E.V., Sedelnikova N.V. *Lishainiki – bioindikatory atmosferno zagryazneniya Novosibirskoy gorodskoy aglomeratsii* [Lichens-bioindicators of atmospheric pollution in the Novosibirsk city agglomeration]. Novosibirsk, Geo Publ., 2010. 98 p.
17. Anishchenko L.N., Safrankova E.A. Lichenoflora of small towns and urban-type settlements of the Bryansk region: biodiversity and use in bioindication. *Vestnik Orenburgskogo gosudarstvennogo universiteta*, 2013, no. 6 (155), pp. 28–32. In Rus.
18. Tarkhanov S.N. State of epiphytic lichen cover in the conditions of atmospheric pollution in the Zimniberezhno-Arkhangelsk region. *Lesnoy vestnik*, 2002, no. 5, pp. 45–53. In Rus.
19. Sionova N.A., Krivorotov S.B. Use of epiphytic lichens as bioindicators of atmospheric air pollution in the urban ecosystem of Krasnodar. *Izvestiya vysshikh uchebnykh zavedenii. Severo-Kavkazskii region. Estestvennye nauki*, 2007, no. 1, pp. 83–85. In Rus.
20. Erofeeva I.A. Analysis of the content of heavy metals in epiphytic lichens in the urban environment. *Vestnik Saratovskogo gosagrouniversiteta im. N.I. Vavilova*, 2013, no. 3, pp. 20–23. In Rus.
21. Krasnogorskaya N.N., Kletter E.A., Suleimanova R.R., Zhuravleva S.E. Analysis of the content of heavy metals and sulfur compounds in lichens of *Parmelia sulcata* in the urban environment. *Sovremennye problemy nauki i obrazovaniya*, 2012, no. 2, pp. 338–347. In Rus.
22. Taraškevičius R., Motiejūnaitė J., Zinkutė R., Eigminienė A., Gedminienė L., Stankevičius Ž. Similarities and differences in geochemical distribution patterns in epiphytic lichens and topsoils from kindergarten grounds in Vilnius. *Journal of Geochemical Exploration*, 2017, vol. 183, Pt. B, pp. 152–165. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.gexplo.2017.08.013> (accessed 15 May 2022).
23. Kularatne K.I.A., de Freitas C.R. Epiphytic lichens as biomonitors of airborne heavy metal pollution. *Environmental and Experimental Botany*, 2013, vol. 88, pp. 24–32.
24. Parzych A., Zdunczyk A., Astel A. Epiphytic lichens as bioindicators of air pollution by heavy metals in an urban area (northern Poland). *Journal of Elementology*, 2016, vol. 21, no. 3, pp. 781–795.
25. Zakrzewska M., Klimek B. Trace element concentrations in tree leaves and lichen collected along a metal pollution gradient near Olkusz (Southern Poland). *Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology*, 2018, vol. 100, pp. 245–249. Available at: <https://doi.org/10.1007/s00128-017-2219-y> (accessed 15 May 2022).
26. *Recent advances in lichenology: modern methods and approaches in biomonitoring and bioprospection*. Eds. D.K. Upreti, P.K. Divakar, V. Shukla, R. Bajpai. India, New Delhi, Springer, 2015. pp. 87–118.
27. Bajpai R., Upreti D.K., Dwivedi S.K., Nayaka S. Lichen as quantitative biomonitors of atmospheric heavy metals deposition in Central India. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 2009, vol. 63, pp. 235–246.
28. Varela Z., López-Sánchez G., Yáñez M., Pérea C., Fernández J.A., Matos P., Branquinho C., Aboal J.R. Changes in epiphytic lichen diversity are associated with air particulate matter levels: the case study of urban areas in Chile. *Ecological Indicators*, 2018, vol. 91, pp. 307–314. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.ecolind.2018.04.023> (accessed 15 May 2022).
29. Koz B., Celik N., Cevik U. Biomonitoring of heavy metals by epiphytic lichen species in Black Sea region of Turkey. *Ecological Indicators*, 2010, vol. 10, Iss. 3, pp. 762–765. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.ecolind.2009.11.006> (accessed 15 May 2022).
30. Evlampieva E.P., Panin M.S. Nakoplenie tsinka, medi i svintsa lishaynikom v rayone ugledobyvayushchego mestorozhdeniya «Karazhyra» [Accumulation of zinc, copper and lead by lichen in the area of the Karazhyra coal Deposit]. *Vestnik Tomskogo gosudarstvennogo universiteta*, 2008, no. 314, pp. 196–200.
31. Bolshunova T.S., Rikhvanov L.P., Baranovskaya N.V. Ultimate composition of lichens as indicator of aerial contamination. *Ecology and Industry of Russia*, 2014, no. 11, pp. 26–31. In Rus.
32. Graney J.R., Edgerton E.S., Landis M.S. Using Pb isotope ratios of particulate matter and epiphytic lichens from the Athabasca Oil Sands Region in Alberta, Canada to quantify local, regional, and global Pb source contributions. *Science of The Total Environment*, 2019, vol. 654, pp. 1293–1304. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2018.11.047> (accessed 15 May 2022).
33. Kutikova A.O., Meisurova A.F. The metal content of the lichens of the specially protected natural territories of the city of Tver. *Vestnik Tverskogo gosudarstvennogo universiteta. Seriya: khimiya*, 2016, no. 1, p. 152–158. In Rus.
34. Golubkina N.A., Lapchenko V.A., Lapchenko E.V., Naumenko T.S., Krainyuk E.S., Bagrikova N.A. Background levels of accumulation of heavy metals, macro- and microelements by some types of lichens on specially protected natural territories of the southern and South-Eastern coast of Crimea. *Byulleten Gosudarstvennogo Nikitskogo botanicheskogo sada*, 2019, no. 130, pp. 26–35. In Rus.
35. Evstafeva E.V., Bogdanova A.M., Bolshunova T.S., Baranovskaya N.V., Osipova N.A. Elemental composition of lichens as an indicator of atmospheric pollution. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2019, vol. 330, no. 7, pp. 93–103. In Rus.
36. *Sovremennye landshafty Kryma i sopredelnykh akvatoriy*. Monografiya [Modern landscapes of the Crimea and adjacent water areas: monograph]. Scientific editor E.A. Pozachenyuk. Simferopol, Business-Inform Publ., 2009. 672 p.
37. Krivorotov S.B., Ragulskaya E.A. Epifitnye lishayniki kak bioindikatory zagryazneniya tyazhelymi metallami gornyykh-lesnykh fitotsenozov Lagonakskogo nagorya (severo-zapadnyy Kavkaz). *Ekologiya: ratsionalnoe prirodopolzovanie i bezopasnost zhiznedeyatelnosti. Sbornik materialov Vserossiyskoy nauchno-prakticheskoy konferentsii s mezhdunarodnym uchastiem* [Epiphytic lichens as bioindicators of heavy metal pollution from mining and forest phytocenoses of the Lagonaki plateau (Northwest Caucasus)]. Maykop, Adyghe State University Publ., 2017. pp. 41–43.
38. Krivorotov S.B., Mikaelyan L.A., Ragulskaya E.A. Lishainiki kak indikatory sostoyaniya lesnykh ekosistem yuzhnogo sklona Markotkhskego khrebt (severo-zapadnyy Kavkaz). *Materialy mezhdunarodnoy nauchnoy konferentsii. Bisosfera i chelovek* [Lichens as indicators of the state of forest ecosystems of the southern slope of the Markotkh ridge (North-West Caucasus)]. Maikop, Electronic Publishing technologies LLC Publ., 2019. pp. 67–69.

Received 27 June 2022.

Information about the authors

Ekaterina S. Kashirina, Cand. Sc., senior teacher, Branch of Lomonosov Moscow State University in the city of Sevastopol; associate professor, Institute of urban development.

Aleksey A. Medvedkov, Cand. Sc., associate professor, Lomonosov Moscow State University.

Anton A. Novikov, senior teacher, Branch of Lomonosov Moscow State University in the city of Sevastopol; junior researcher, Institute of Natural and Technical Systems.

УДК 504.064.36:550.4; 504.064.36:574

ГЕОЭКОЛОГИЧЕСКАЯ ОЦЕНКА СОСТОЯНИЯ ПОВЕРХНОСТНЫХ ВОД АВЗЯНСКОГО ЗОЛОТОРУДНОГО РАЙОНА РЕСПУБЛИКИ БАШКОРТОСТАН

Казбулатова Гульфия Мавлетовна¹,
kazbulatova@mail.ru

Мичурин Сергей Васильевич¹,
s_michurin@mail.ru

Карамова Алсу Мусаевна¹,
alsu.2013@bk.ru

¹ Уфимский Федеральный исследовательский центр РАН,
Россия, 450077, г. Уфа, ул. Карла Маркса, 16/2.

Актуальность. Мониторинг уровней химических веществ в поверхностных водах горнорудных районов и экологическая оценка их состояния являются важнейшими мерами по обеспечению качества питьевой воды и снижению рисков для здоровья населения. Вместе с тем на сегодняшний день сведения о концентрациях тяжелых металлов и металлоидов в поверхностных водах Авзянского золоторудного района отсутствуют.

Цель: определение содержаний микроэлементов, в том числе тяжелых металлов и металлоидов, выявление причин, которые приводят к их увеличению в поверхностных водах Авзянского золоторудного района, и оценка экологического риска здоровью населения.

Объекты: поверхностные воды в среднем течении рек Большой Авзян и Большой Инзер и их притоков, дренирующих как известные месторождения коренного и россыпного золота Авзянского золоторудного района, так и предполагаемые золоторудные участки.

Методы: атомно-эмиссионный метод с индуктивно-связанной плазмой.

Результаты. Поверхностные воды Авзянского золоторудного района характеризуются неблагоприятным экологическим состоянием. Основным загрязняющим элементом является сурьма, превышающая предельно допустимую концентрацию в 1,2...7,6 раз во всех отобранных пробах. Уровень загрязненности вод этим элементом в большинстве проб является высоким и экстремально высоким. По результатам исследований построена карта степени загрязненности поверхностных вод сурьмой. Во многих случаях отмечается в среднем 1,6...5,0-кратное превышение предельно допустимой концентрации по железу, марганцу, вольфраму, меди, алюминию, ванадию, в единичных пробах – по мышьяку и молибдену. Локально установлены участки экстремально высокой загрязненности по алюминию, молибдену, высокого уровня загрязненности – по вольфраму. По значениям коэффициентов комплексности загрязненности (8,7...30,4 %) и показателям коэффициентов комплексности высокого и экстремально высокого уровней загрязнения (до 4,3 %) поверхностные воды Авзянского золоторудного района являются умеренно токсичными и относятся к I–II категории загрязненности. На основе значений суммарных коэффициентов опасности определен неканцерогенный риск для здоровья населения, который заключается в возможных неблагоприятных последствиях и связан в основном с высокими концентрациями сурьмы в воде. Увеличение концентраций загрязняющих элементов в поверхностных водах обусловлено природными (геогенными) факторами – геохимическими и минералогическими особенностями горных пород, участвующих в геологическом строении месторождений и рудопроявлений Авзянского золоторудного района. Концентрации мышьяка закономерно повышаются в притоках реки Большой Авзян, образуя вблизи золоторудных месторождений локальные потоки рассеяния. Миграционная способность сурьмы по сравнению с мышьяком проявлена в большей степени. Преобладающими растворенными формами мышьяка являются оксианионы HAsO_4^{2-} и H_2AsO_4^- , сурьмы – $\text{Sb}(\text{OH})_6^-$. Увеличение концентраций этих металлоидов в реке Большой Авзян и ее притоках связано с растворением силикатных минералов и гидроксидов железа, а также с растворением пиритсодержащих карбонатных пород суранской свиты. Ведущие в настоящее время разработки месторождений коренного и россыпного золота не оказывают большого влияния на увеличение содержаний этих элементов в поверхностных водах.

Ключевые слова:

Авзянский рудный район, золото, поверхностные воды, Большой Авзян, Большой Инзер, сурьма, мышьяк.

Введение

Загрязнение природных вод тяжелыми металлами (Pb, Hg, Cd, Zn, Cu, Ni, Co, Fe, Mn и др.) и металлоидами (As, Sb, Te и др.) – элементами-спутниками Au в месторождениях золота – является экологической проблемой. Многие исследования [1–4] посвященные качеству воды в золоторудных районах, свидетельствуют о высоких концентрациях в ней Fe, Zn, As, Sb и некоторых других элементов, что определяет высокий риск для здоровья населения и серьезно ограничивает доступ человека к чистой питьевой воде. Из-

вестно [5–8], что длительное воздействие тяжелых металлов и металлоидов может вызывать поражение нервной, пищеварительной, дыхательной, сердечно-сосудистой, костной, репродуктивной и эндокринной систем. Некоторые из них обладают канцерогенным действием, приводящим к онкозаболеваниям. Например, As в высоких концентрациях является сильнейшим ядом и вызывает рак кожи, мочевого пузыря и легких, имеет влияние на развитие диабета и сердечно-сосудистых заболеваний, а Sb способна накапливаться в организме и оказывать раздражающее действие, снижать активность многих ферментов, участ-

вующих в жировом, белковом и углеводном обмене [8, 9]. Вместе с тем металлоиды As и Sb являются биологически значимыми элементами, и суточная потребность человека в них составляет порядка 50 мкг.

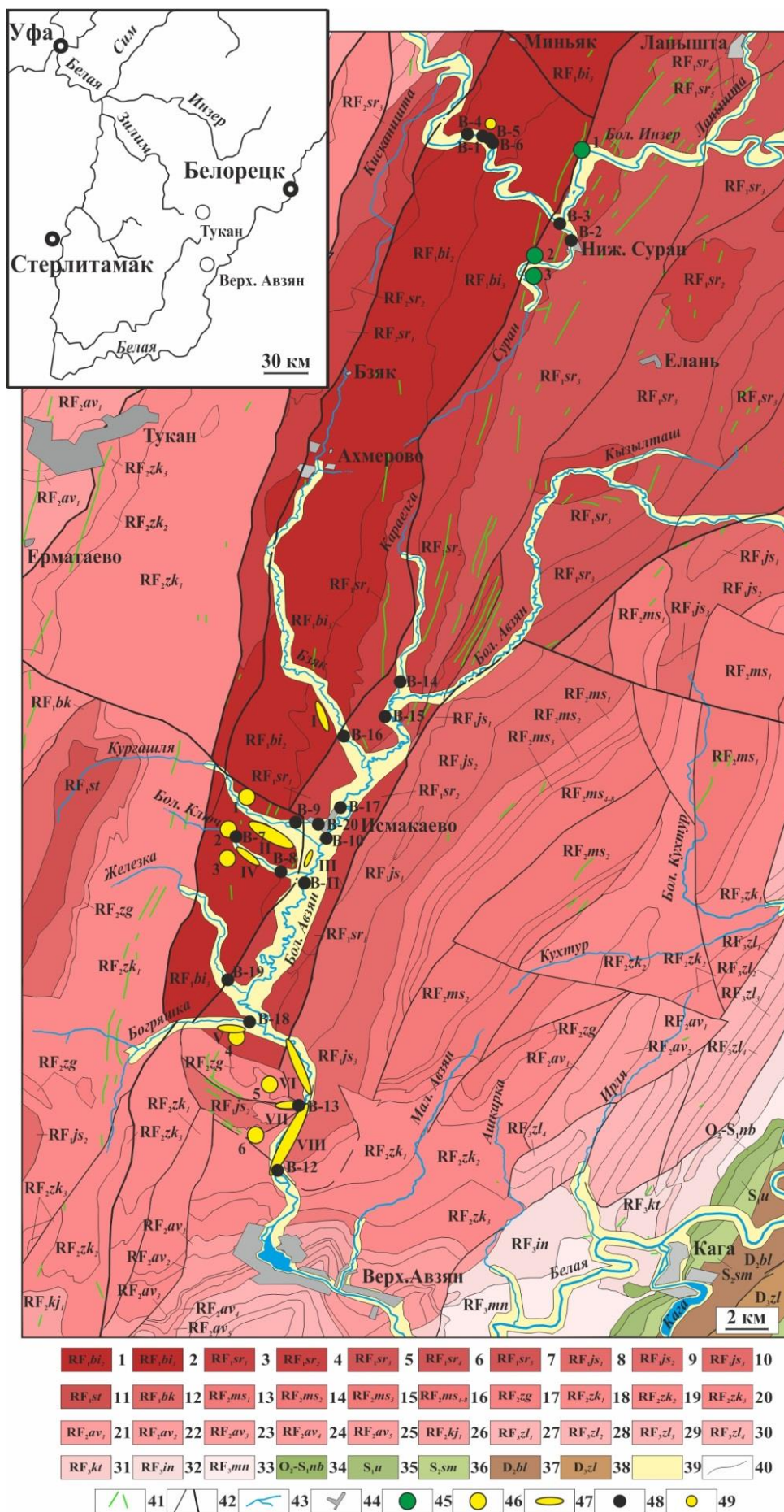
Загрязнение рек тяжелыми металлами и металлоидами может иметь как природный, так и антропогенный характер. Природные (геогенные) факторы обусловлены присутствием в горных породах повышенных количеств тех или иных токсичных элементов. При антропогенном влиянии главными источниками загрязнения выступают горнодобывающая и обрабатывающая отрасли промышленности, а также сельскохозяйственная деятельность. Часто значительное превышение ПДК экологически опасных элементов устанавливается вблизи действующих или заброшенных рудников [2]. В зонах окисления золоторудных месторождений в результате их промышленной разработки или в процессе физического и химического

выветривания горных пород тяжелые металлы и металлоиды могут попадать в почвы, подземные и поверхностные воды и оказывать токсическое и канцерогенное влияние на здоровье населения. Поэтому проблема загрязнения окружающей среды в золоторудных районах является актуальной, и в последнее время ей уделяется пристальное внимание [9–16].

Объектами нашего исследования являлись воды рек Большой Авзян и Большой Инзер и их притоков, дренирующих месторождения и проявления золота и флюорита в Авзянском золоторудном районе (АЗР) (рис. 1). Целью исследования являлось определение содержания микроэлементов в поверхностных водах АЗР, в том числе тяжелых металлов и металлоидов, и в случае их высоких концентраций, выявление причин, которые приводят к их увеличению, а также оценка экологического риска здоровью населения близлежащих сел – Исмакаево и Верхний Авзян.

Рис. 1. Геологическая карта южной части Ямантауского антиклинория (по [17] с небольшими изменениями и дополнениями), положение месторождений и рудопроявлений золота и флюорита, а также точки отбора проб из рек Большой Авзян, Большой Инзер и их притоков: 1–12 – отложения нижнего рифея, свиты: 1–2 – болшеинзерская, подсвиты: 1 – средняя, 2 – верхняя; 3–7 – суранская, подсвиты: 3 – миньянская, 4 – бердагуловская, 5 – ангастакская, 6 – сердаукская, 7 – лапыштинская; 8–10 – юшинская, подсвиты: 8 – вязовская, 9 – багарыштинская, 10 – сухинская; 11 – саткинская; 12 – бакальская; 13–26 – отложения среднего рифея, свиты: 13–16 – машакская, подсвиты: 13 – кузьелгинская, 14 – казавдинская, 15 – быковская, 16 – малошатакская (верхняя); 17 – зигальгинская; 18–20 – зигазино-комаровская, подсвиты: 18 – серегинская, 19 – амбарская, 20 – туканская; 21–25 – авзянская, подсвиты: 21 – катаскинская, 22 – малоинзерская, 23 – ушаковская, 24 – куткурская, 25 – реветская; 26 – кужинская, нижняя подсвита; 27–33 – отложения верхнего рифея, свиты: 27–30 – зильмердакская, подсвиты: 27 – бирьянская, 28 – нугушская, 29 – лемезинская, 30 – бедерыштинская; 31 – катавская; 32 – инзерская; 33 – миньярская; 34–38 – отложения палеозоя, свиты: 34 – набиуллинская; 35 – узьянская; 36 – серменевская; 37 – бельская; 38 – зилаирская; 39 – четвертичные отложения; 40 – границы свит; 41 – дайки магматических пород; 42 – тектонические нарушения разного порядка; 43 – реки и ручьи; 44 – населенные пункты; 45 – месторождения и проявления флюоритов (1 – Суранское, 2 – Суран-2, 3 – Болшеинзерское); 46 – месторождения и рудопроявления коренного золота (1 – Кургашилинское, 2 – Улюк-Бар, 3 – Рамеева жила, 4 – Богряшка; 5 – Калашиникова жила; 6 – Горный Прииск); 47 – месторождения россыпного золота (I – Карасмаякское, II – Кургашилинское, III – Надеждинское, IV – Большой Ключ, V – Богряшка, VI – Рыжова Поляна, VII – Каменный ключ, VIII – Авзянское); 48 – точки отбора проб поверхностных вод АЗР; 49 – предполагаемый золоторудный участок [18]

Fig. 1. Geological map of the southern part of the Yamantau anticlinorium (according to [17] with minor changes and additions), the position of deposits and ore occurrences of gold and fluorite, as well as sampling points from the Bolshoy Avzyan, Bolshoy Inzer rivers and their tributaries: 1–12 – deposits of the Lower Riphean, formations: 1–2 – Bolsheinzher, subformations: 1 – middle, 2 – upper; 3–7 – Suran, subformations: 3 – Minyak, 4 – Berdagul, 5 – Angastak, 6 – Serdauk, 7 – Lapyshita; 8–10 – Yusha, subformations: 8 – Vyazov, 9 – Bagaryshta, 10 – Sukhin; 11 – Satka; 12 – Bakal; 13–26 – deposits of the Middle Riphean, formations: 13–16 – Mashak, subformations: 13 – Kuzelga, 14 – Kazavda, 15 – Bykov, 16 – Maloshatak (upper); 17 – Zigalga; 18–20 – Zigazino-Komarovo, subformations: 18 – Seregin, 19 – Ambar, 20 – Tukan; 21–25 – Avzyan, subformations: 21 – Kataskin, 22 – Maloinzer, 23 – Ushak, 24 – Kutkur, 25 – Revet; 26 – Kuzhin, lower subformation; 27–33 – deposits of the Upper Riphean, formations: 27–30 – Zilmerdak, subformations: 27 – Biryannaya, 28 – Nugush, 29 – Lemezina, 30 – Bederyshina; 31 – Katav; 32 – Inzer; 33 – Minyar; 34–38 – Paleozoic deposits, formations: 34 – Nabiullin; 35 – Uzyan; 36 – Sermen; 37 – Belsk; 38 – Zilair; 39 – quaternary deposits; 40 – boundaries of formations; 41 – dikes of igneous rocks; 42 – different order tectonic disturbances; 43 – rivers and streams; 44 – settlements; 45 – deposits and occurrence of fluorites (1 – Suran, 2 – Suran-2, 3 – Bolsheinzher); 46 – deposits and ore occurrences of indigenous gold (1 – Kurgashlya, 2 – Uluk-Bar, 3 – Rameev Vein, 4 – Bogryashka; 5 – Kalashnikov Vein; 6 – Gorny Priisk); 47 – placer gold deposits (I – Karasmayak, II – Kurgashlya, III – Nadezhdinsk, IV – Bolshoy Klyuch, V – Bogryashka, VI – Ryzhova Polyana, VII – Kamenny Klyuch, VIII – Avzyan); 48 – sampling points for surface water of the AGR; 49 – proposed gold ore area [18]



В административном плане АЗР располагается в Белорецком районе Республики Башкортостан. Реки Большой Авзян и Большой Инзер питают реку Белая, основную водную артерию республики (рис. 1). В ее верхнем течении, севернее и южнее г. Белорецка, поверхностные воды из-за промышленного стока имеют высокое содержание Mn, Fe, Cu, Zn, превышающих ПДК в 4–15 раз, определяющих ее умеренную токсичность и имеющих межгодовую тенденцию к возрастанию концентраций [19, 20]. По данным госстата Республики Башкортостан [21] по демографическим показателям Белорецкий район с 2010 по 2020 гг. характеризуется одним из наиболее высоких коэффициентов смертности (15,6...18,0). Вместе с тем на сегодняшний день сведения о концентрациях опасных для здоровья и жизни человека тяжелых металлов и металлоидов в поверхностных водах АЗР и их влиянии на заболеваемость населения отсутствуют.

Материалы и методы исследования

АЗР располагается в 70–80 км юго-западнее г. Белорецка. Нами изучено распределение микроэлементов в правых притоках и в среднем течении реки Большой Авзян, дренирующих рудопоявления и месторождения коренного (Горный Прииск, Калашникова жила, Богряшка, Рамеева жила, Улюк-Бар, Кургашлинское) и россыпного (Карасмаякское, Кургашлинское, Надеждинское, Большой Ключ, Богряшка, Рыжова Поляна, Каменный ключ, Авзянское) золота (рис. 1). Кроме того, для сравнительного анализа изучено распределение микроэлементов в среднем течении реки Большой Инзер и ее притоках, дренирующих Суранское селлаит-флюоритовое месторождение, месторождение флюорита Суран-2 и проявление флюорита Большееинзерское, а также предполагаемый [18] золоторудный участок, в котором ранее описаны находки золота [22]. В настоящее время недропользователями открытым способом разрабатываются месторождения коренного и россыпного золота (Улюк-Бар – ООО «СтройТехИнвест», Надеждинское – ООО «БашСпецРесурс»), а также флюорита (Суранское месторождение – ООО «УГК»). На других золоторудных объектах (Горный Прииск, Рамеева жила, Кургашлинское) ведутся поисково-оценочные работы.

В геолого-структурном плане месторождения и рудопоявления АЗР расположены в Ямантауском антиклинории. Они приурочены к единой структурно-формационной зоне сочленения региональных субмеридиональных Караташского и Восточно-Суранского разломов, в которой обнажаются песчаники, низкоуглеродистые глинистые сланцы, известняки и доломиты преимущественно большеинзерской (средняя и верхняя подсвиты) и суранской (миньякская и бердагуловская подсвиты) свит нижнего рифея (рис. 1).

Руды коренных золоторудных объектов АЗР относятся главным образом к малосульфидному золото-кварцевому (месторождение Улюк-Бар, рудопоявления Кургашлинское, Рамеева жила, Калашникова жила), а также к золото-сульфидно-кварцевому (месторождение Горный Прииск) и золото-сульфидному

(рудопоявление Богряшка) типам [18, 23, 24]. Минералогический состав руд представлен кварцем, железистыми карбонатами, сульфидами (пиритом, пирротинном, халькопиритом, галенитом и др.) и сульфосарсенидами (арсенопиритом, герсдорфитом).

Пробы воды из рек Большой Авзян и Большой Инзер, а также их притоков и из колодца в селе Исмаково отобраны в июле–августе 2021 г. Положение точек отбора показано на рис. 1. Отбор проведен согласно ГОСТу [25]. В воде измерялись кислотность рН-метром РН-009 и окислительно-восстановительный потенциал ОВП-метром ОРР-2069 (Kelilong Electron, Китай), общая минерализация – TDS-3 (KeUnion, Китай). Отфильтрованные пробы консервировали путем добавления концентрированной азотной кислоты (3 мл HNO_3 на 1000 мл воды).

В поверхностных водах АЗР ($n=20$) определяли содержания 23 элементов (тяжелые металлы: Mo, Ba, W, U, Ti, Fe, Sr, Ni, V, Cu, Cr, Mn, Zn; металлоиды: As, Sb; другие металлы и неметаллы: Li, B, Na, Mg, Al, Si, P, Ca). Измерения проводили в ЦКД КМТНХ Института нефтехимпереработки (г. Уфа) спектральным атомно-эмиссионным методом с индуктивно-связанной плазмой (метод ИСП-АЭС) на спектрометре ICPE-9000 (Shimadzu, Япония), аналитик А.М. Карамова. Предел обнаружения для Li, B, Mg, Sr, Mo, Ba, W, Fe, Ca, V, Cr, Mn, Ni, Ti, Cu, Zn составлял 1 мкг/л, для Na, Al, Si, P, As, Sb, U – 5 мкг/л. Контроль измерений осуществляли с использованием многоэлементного раствора с концентрациями 5, 50, 100, 250, 500 мкг/л, приготовленного из четырех сертифицированных многоэлементных и одноэлементных стандартных растворов (High-Purity Standards, США). В пробах воды также определяли Pb, Sc, Co, Sn, Cd, Zr, Th, Be, Y, Se, Hf, Ta и редкоземельные элементы, однако их содержания оказались ниже предела обнаружения и в статье они не рассматриваются.

В случае использования водных объектов или их участков одновременно для разных целей, согласно [26], к воде предъявляются наиболее жесткие нормативы. Воды реки Большой Авзян население использует для хозяйственно-бытовых нужд, купания и ловли рыбы, ее пьет домашний скот. В период с 1998 по 2007 гг. реки Большой Авзян, Большой Инзер и Суран относились к водным объектам, имеющим ценное рыбохозяйственное значение [27]. Из ценных видов рыб в реке Большой Авзян водится хариус, в реке Большой Инзер – хариус и таймень, а в реке Суран – форель. Исходя из этого нами использовались ПДК химических веществ в воде хозяйственно-питьевых и культурно-бытовых водных объектов по гигиеническим нормативам [28] и рыбохозяйственных водных объектов по рыбохозяйственным нормативам [29].

Для оценки состояния поверхностных вод АЗР рассчитывались коэффициенты комплексности загрязненности (K_k), кратность превышения ПДК (β), коэффициент комплексности высокого уровня загрязненности воды ($K_{ВЗ}$) и коэффициент комплексности экстремально высокого уровня загрязненности воды ($K_{ЭВЗ}$). По этим параметрам проводилась оценка

загрязнённости поверхностных вод АЗР согласно методическим указаниям [30]. При расчете показателей загрязнённости учитывался перечень определяемых элементов.

Оценка неканцерогенного риска здоровью населения проводилась путем расчета коэффициента опасности (HQ_{ing}) при приеме внутрь по уравнению [31]:

$$HQ_{ing} = \frac{D_{ing}}{RfD_{ing}},$$

где D_{ing} – средняя суточная доза, или поступление при приеме внутрь (мкг/кг/сут), рассчитанная по [32] с учетом измеренной концентрации металла или металлоида в воде, скорости приема внутрь для взрослых и для детей в единицу времени, частоты, продолжительности и среднего времени воздействия, средней массы тела взрослых и детей; RfD_{ing} – референтная (безопасная) доза, равная для As – 0,3; Sb – 0,4; Cu – 5; Cr – 1500; Mn – 140; Zn – 300; Mo – 5; Ni – 20 мкг/кг/сут по [1].

Расчет проводился по каждому элементу из группы тяжелых металлов и металлоидов, установленные концентрации которых были выше предела обнаружения. Значение коэффициента опасности $HQ_{ing} \leq 1$ указывает на то, что неблагоприятные последствия для здоровья маловероятны; $HQ_{ing} > 1$ – на возможные неблагоприятные последствия для здоровья; $HQ_{ing} > 10$ – на высокий хронический риск.

Суммарный неканцерогенный риск, учитывающий воздействие всех веществ, рассчитывался по уравнению:

$$HI_{ing} = \sum_{i=1}^n HQ_{ing},$$

где HI_{ing} – индекс опасности при приеме внутрь; n – общее количество рассматриваемых химических элементов.

Результаты исследования и их обсуждение

Воды рек Большой Авзян, Большой Инзер и их притоков в целом имеют среду близкую к нейтральной – значения pH варьируют от 6,85 до 7,18. Величина Eh колеблется от 212 до 286 mV. По химическому составу они являются гидрокарбонатно-кальциевыми и обладают минерализацией от 90 до 270 мг/л.

Содержания элементов в поверхностных водах АЗР приводятся в таблице. Большинство элементов (Li, B, Na, Mg, Si, P, Ca, Ti, Cr, Ni, Zn, Sr, Ba, U) имеют низкие содержания в воде, значительно меньше ПДК. Превышение ПДК установлено для Al ($\beta_{cp}=5,1$; $n=6$), V ($\beta_{cp}=1,7$; $n=5$), Mn ($\beta_{cp}=2,6$; $n=14$), Fe ($\beta_{cp}=2,5$; $n=15$), Cu ($\beta_{cp}=1,6$; $n=7$), As ($\beta_{cp}=1,6$; $n=3$), Mo ($\beta_{cp}=3,5$; $n=2$), Sb ($\beta_{cp}=3,5$; $n=20$), W ($\beta_{cp}=4,7$; $n=12$). Наиболее часто превышают ПДК Sb, Fe, Mn, W.

В притоках реки Большой Инзер ($n=3$) содержания Sb и As составляют соответственно 5–19 и ≤ 5 –11 мкг/л, в реке Большой Инзер ($n=3$) – 17–28 и ≤ 5 мкг/л. В притоках реки Большой Авзян ($n=8$) концентрации Sb и As равны соответственно 5–38 и ≤ 5 –19, в реке Большой Авзян ($n=5$) – 6–31 и ≤ 5 , в колодце села Исмакаево – 14 и ≤ 5 .

Сравнение полученных данных по содержанию химических элементов в поверхностных водах АЗР с нормативными ПДК в водах хозяйственно-питьевого,

культурно-бытового и рыбохозяйственного значения выявило, что во всех точках отбора наблюдается их превышение (таблица). Уровень загрязнённости вод по Sb (превышение ПДК в 1,2...7,6 раз во всех отобранных пробах) в большинстве случаев является высоким и экстремально высоким. В воде из колодца в с. Исмакаево содержание Sb превышает ПДК в 2,8 раза. Кроме того, экстремально высокие загрязнённости отмечаются локально: по Al ($\beta=12,7$) в ручье Большой Ключ вблизи месторождения Улюк-Бар и по Mo ($\beta=5$) в безымянном ручье рядом с предполагаемым золоторудным участком (пробы В-7 и В-1 соответственно, таблица). В последнем случае здесь же установлен высокий уровень загрязнённости по W ($\beta=15$). В целом из проанализированных элементов Al, W и Mo имеют наиболее высокие средние значения кратности превышения ПДК.

Помимо Sb в более половине проб отмечается превышение ПДК по Fe, Mn, W. Примерно треть проанализированных проб характеризуется более высоким по сравнению с ПДК содержанием Cu, Al, V, а в единичных пробах – As и Mo. Вместе с тем по кратности превышения ПДК по этим элементам поверхностные воды АЗР нельзя отнести к высоко и экстремально высоко загрязненным. По показателю Кк они являются умеренно токсичными и относятся к I–II категории загрязнённости [30].

В целом коэффициенты комплексности высокого ($K_{вз}$) и экстремально высокого ($K_{эвз}$) уровней загрязнённости в поверхностных водах АЗР достигают 4,3 % (таблица) и являются незначительными. Вода по этим показателям обладает сравнительно невысокой степенью загрязнения и может быть отнесена к I категории загрязнённости [30].

Наиболее сильно загрязняющим элементом поверхностных вод АЗР является Sb. Экстремально высокие уровни загрязнённости по Sb имеют пробы воды, отобранные: из реки Большой Инзер вблизи устья ручья Суран; из реки Большой Авзян, вблизи устья ручья Большой Ключ; из ручьев Караелга и Железка (рис. 2). Наиболее высоким коэффициентом комплексности загрязнённости ($K_k=26,1...30,4$ %, таблица) обладают воды ручья Большой Ключ вблизи месторождения Улюк-Бар и воды безымянного ручья, впадающего в реку Большой Инзер рядом с предполагаемым золоторудным участком. Следовательно, они обладают худшим качеством по сравнению с остальными.

Потребление загрязненной токсичными элементами воды реки Большой Авзян может подвергать риску заболеваний население близлежащих сел Исмакаево и Верхний Авзян, общее количество жителей которых превышает 2300 человек. Для достижения эффективной оценки воздействия качества воды на здоровье недостаточно сравнительного анализа концентраций загрязняющих веществ с их ПДК. Она должна проводиться с использованием методов, позволяющих оценивать риски на основе токсичности тяжелых металлов и металлоидов в воде. Нами для оценки использовались данные по питьевой воде из колодца в с. Исмакаево, а также данные по воде из реки Большой Авзян.

Неканцерогенный риск для здоровья населения был определен на основе значений суммарных коэффициентов опасности H_{Iing} , которые для взрослых оказались равными 1,1...1,3, для детей – 4,0...4,9. Это указывает на возможные неблагоприятные последствия для здоровья населения, связанные главным образом с высо-

кими концентрациями Sb в воде. Причем для детей неканцерогенный риск выше, поскольку они потребляют больше воды на единицу массы тела и более уязвимы к последствиям от потребления загрязненной воды, чем взрослые. Взрослое население мало подвержено риску неканцерогенных воздействий.

Таблица. Содержания химических элементов в поверхностных водах Авзянского золоторудного района и коэффициенты, характеризующие уровень их загрязненности

Table. Content of chemical elements in the surface waters of the Avzyan gold region and the coefficients characterizing the level of their pollution

Показатель Indicator	ПДК, мкг/л MAC, µg/l	Концентрация элемента в точке отбора, мкг/л/Element concentration at the sampling point, µg/l																			
		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20
1 класс опасности/1 hazard class																					
As	10	11*	<5	<5	5	<5	<5	19*	6	<5	<5	<5	<5	10	<5	<5	<5	<5	<5	19*	<5
2 класс опасности/2 hazard class																					
B	500	3	3	3	3	5	4	5	6	5	4	5	5	4	4	4	5	5	5	6	5
Li	30	4	5	5	5	4	5	6	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5
Mo	1	5*	2*	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1
Sb	5	5	19*	28*	11*	17*	17*	13*	20*	5	12*	31*	21*	15*	31*	6*	12*	14*	14*	38*	14*
Si**	10	3	3	2	2	3	2	4	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3
Ba	700	6	7	9	6	13	8	27	14	11	8	10	8	8	11	10	9	8	10	12	13
U	100	<5	5	6	<5	<5	10	5	6	<5	13	5	<5	5	7	8	11	5	10	11	14
3 класс опасности/3 hazard class																					
Cr ³⁺	500	1	<1	<1	1	<1	<1	<1	<1	2	<1	2	1	<1	<1	<1	<1	<1	1	<1	
Cr ⁶⁺	50																				
Cu	1	<1	<1	1	<1	1	2*	1	<1	<1	<1	2*	<1	<1	1	1	<1	<1	1	<1	2*
Ni	10	<1	<1	<1	<1	<1	<1	2	<1	<1	<1	<1	<1	<1	1	<1	<1	<1	<1	1	<1
Sr	400	83	125	136	116	131	153	160	147	129	123	165	139	99	129	153	134	137	133	166	127
V	1	2*	<1	1	<1	<1	<1	2*	<1	<1	<1	<1	<1	<1	1	1	<1	<1	<1	<1	2*
W	0,8	12*	6*	<1	1*	3*	<1	6*	1*	4*	3*	<1	<1	<1	<1	2*	1*	4*	2*	<1	<1
Zn	10	<1	<1	<1	<1	<1	4	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1
4 класс опасности/4 hazard class																					
Al	40	201*	7	150*	<5	199*	<5	509*	<5	<5	<5	<5	<5	23	88*	88*	32	7	<5	9	<5
Ca**	180	30	58	47	44	34	51	41	39	42	44	51	46	16	53	52	45	48	38	52	41
Fe	100	210*	138*	265*	55	156*	69	538*	29	100	135*	143*	83	161*	439*	325*	335*	223*	157*	414*	126*
Mg**	40	2	5	3	3	3	4	6	3	3	4	4	4	2	4	4	4	4	4	6	3
Mn	10	8	15*	28*	5	4	8	37*	6	11*	12*	15*	14*	11*	60*	36*	36*	15*	10	70*	2
Na**	120	1	2	2	2	2	2	3	2	2	2	2	2	1	1	2	2	2	2	2	2
P	50	24	9	13	10	18	11	16	12	5	10	12	<5	15	33	14	8	6	9	8	13
Ti	60	<1	<1	<1	<1	<1	<1	1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	1	<1	<1	<1	2	<1	<1
Kк, % Cс, %		26,1	21,7	17,4	8,7	17,4	8,7	30,4	8,7	8,7	17,4	17,4	8,7	13,0	17,4	21,7	17,4	17,4	13,0	17,4	17,4
Kвз, % Cнр, %		4,3	4,3	4,3	–	4,3	4,3	4,3	4,3	–	–	–	4,3	4,3	–	–	–	–	–	–	–
Kэвз, % Cенр, %		4,3	–	–	–	–	–	–	–	–	–	4,3	–	–	4,3	–	–	–	–	4,3	–
β(Sb)		–	3,8	5,7	2,3	3,5	3,4	2,6	4,0	–	2,4	6,2	4,2	3	6,2	1,2	2,4	2,8	2,8	7,6	2,8
Уровень загрязненности воды: 1 – высокий; 2 – экстремально высокий/Water pollution level: 1 – high, 2 – extremely high																					
по β(Sb) for β(Sb)		–	1	2	–	1	1	–	1	–	–	2	1	1	2	–	–	–	–	2	–

Примечание. ПДК и класс опасности для Mo, Cu, Ni, Sr, V, W, Zn, Al, Fe, Mg, Mn, Na, P, Ti приводится по [29], для остальных элементов – в соответствии с гигиеническими нормативами [28]; * – значения, превышающие ПДК; ** – элементы, концентрации которых приведены в мг/л; Kк – коэффициент комплексности загрязненности воды; Kвз – коэффициент комплексности высокого уровня загрязненности воды; Kэвз – коэффициент комплексности экстремально высокого уровня загрязненности воды; β – кратность превышения ПДК.

Note. MAC and hazard class for Mo, Cu, Ni, Sr, V, W, Zn, Al, Fe, Mg, Mn, Na, P, Ti are given according to [29], for other elements – in accordance with hygienic standards [28]; * – values exceeding MAC; Cс – coefficient of complexity of water pollution; ** – elements which concentrations are given in mg/l; Cнр – coefficient of complexity of a high level of water pollution; Cенр – coefficient of complexity of extremely high level of water pollution; β – multiplicity exceeding MAC.

As и Sb в природе находятся в различных степенях окисления: –3, 0, +3 и +5. Одной из их характерных особенностей, отличающих их от катионогенных токсикантов, является сравнительно высокая при обыч-

ных pH для природных вод (6,5–8,5) подвижность, которая проявляется и в окислительных, и в восстановительных условиях [10, 33–35]. По данным указанных исследователей в поверхностных водах ос-

новными формами мышьяка являются неорганические соединения (арсениды (As^{+3}) и арсенаты (As^{+5})) и в существенно меньших концентрациях органические соединения. Сурьма в поверхностных водах находится также главным образом в трехвалентной (III) и пентавалентной (V) формах [4]. Так, например, согласно исследованиям [10], мышьяк и сурьма во всех образцах поверхностных вод сурьмяно-золоторудных месторождений Кантишна Хилз на Аляске присутствуют как в виде As (III), Sb (III), так и в виде As (V), Sb (V). Причем вблизи этих месторождений As и Sb находятся преимущественно в трехвалентных формах, а ниже по течению – в пентавалентных.

Токсичность этих элементов зависит от степени окисления. Как правило, неорганические соединения мышьяка и сурьмы более токсичны, чем органические, при этом в неорганических соединениях токсичность As (III) в 60 раз превышает токсичность As (V) [36].

Известно [37], что растворенные формы различных элементов контролируются окислительно-восстановительным потенциалом (Eh) и pH. В окислительных водных средах из растворенных форм As при pH от 2,2 до 11,5 доминируют арсенаты (соли мышьяковой кислоты) [38, 39], а Sb при Eh 170–750 mV и pH 6,5–8,5 находится в виде антимонатов [37]. Следовательно, в соответствии с полученными данными (pH=6,85–7,18; Eh=212–286 mV) в поверхностных водах АЗР мышьяк и сурьма присутствуют в пентавалентном состоянии и, согласно диаграммам Eh–pH, приводимым в указанных работах, их преобладающими формами для As являются оксианионы HAsO_4^{2-} (около 75 %) и H_2AsO_4^- (около 25 %), а для Sb – Sb(OH)_6^- .

В реке Большой Авзян степень загрязненности по Sb увеличивается на участке вдоль Ирмакаевской и Горноприисковой золоторудных зон, т. е. именно на том участке, где сконцентрированы все известные месторождения и рудопроявления коренного и россыпного золота АЗР (рис. 2). Здесь от с. Ирмакаево и до с. Верхний Авзян среднее содержание Sb в реке и притоках равно 24,8 мкг/л (вариации 15–38 мкг/л, n=5), что в 2,5 раза превышает среднюю концентрацию этого элемента в реке выше с. Ирмакаево, равную 10,6 мкг/л (вариации 6–14 мкг/л, n=3). Это доказывает, что на формирование качества воды АЗР оказывает влияние близость золоторудных месторождений.

Среднее содержание Sb в реке Большой Авзян и ее притоках вблизи месторождений золота АЗР сравнимо со средним содержанием этого элемента в поверхностных водах Саралинского золоторудного поля (Кузнецкий Алатау), которое составляет 23 мкг/л [33]. Следует отметить, что потоки рассеяния сурьмы в этом золоторудном поле достигают 1,5 км, а в реке Большой Авзян – примерно 1,5...5,0 км.

Вместе с тем в реке Большой Инзер и ее притоках среднее содержание Sb равно 16,2 мкг/л, что явно ниже, чем в реке Большой Авзян рядом с золоторудными месторождениями. Вариации концентраций Sb в водах бассейна реки Большой Инзер 5–28 мкг/л сравнимы с содержаниями этого элемента в реках Сибири (Иртыш, Обь, Томь, Амур), в которых они составляют, по данным [8], 7–20 мкг/л.

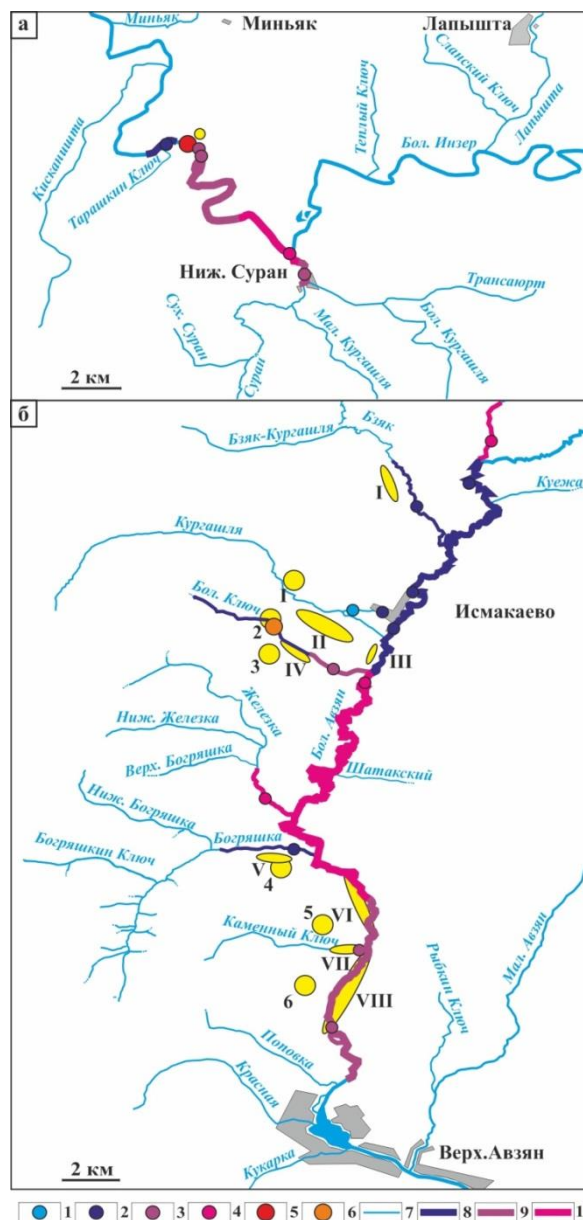


Рис. 2. Оценка загрязнённости поверхностных вод АЗР по содержанию в них Sb, Mo, Al, W: 1 – незагрязнённые участки; 2–4 – уровни загрязнённости по Sb: 2 – низкий, 3 – высокий, 4 – экстремально высокий; 5, 6 – уровни загрязнённости по W, Mo, Al: 5 – высокий по W и экстремально высокий по Mo, 6 – экстремально высокий по Al; 7–10 – водные потоки по уровням загрязнённости: 7 – незагрязнённый, 8 – низкий, 9 – высокий, 10 – экстремально высокий. Остальные условные обозначения такие же, как на рис. 1

Fig. 2. Assessment of contamination of surface waters of the AGR by the content of Sb, Mo, Al, W in them: 1 – uncontaminated areas; 2–4 – pollution levels for Sb: 2 – low, 3 – high, 4 – extremely high; 5, 6 – pollution levels for W, Mo, Al: 5 – high according to W and extremely high according to Mo, 6 – extremely high according to Al; 7–10 – water flows by pollution levels: 7 – uncontaminated, 8 – low, 9 – high, 10 – extremely high. The other symbols are the same as in Fig. 1

Ведущиеся в АЗР в настоящее время разработки месторождений золота Улюк-Бар и Надеждинское осуществляются открытым способом. Для извлечения золота из горных пород применяется «мокрое» гравитационное обогащение с использованием механических сепараторов, для работы которых необходимы небольшие объемы воды. Гравитационное обогащение является наиболее безопасным с экологической точки зрения, поскольку не требует применения вредных химических веществ (кислот и др.). «Отработанные» руды (хвосты) складываются на значительном расстоянии от реки Большой Авзян и ручья Большой Ключ. Золотодобывающие предприятия сброса сточных вод в них не производят. Согласно нашим исследованиям, в правых притоках реки Большой Авзян (ручьи Железка и Каменный Ключ), которые пространственно никак не могут быть связаны с возможным техногенным загрязнением, содержания Sb, As, Fe, Mn, Mo сходны с таковыми в ручье Большой Ключ и реке Большой Авзян вблизи золотодобывающих предприятий. Из этого следует, что в настоящее время разработки месторождений золота не могут оказывать существенного влияния на загрязнение поверхностных вод АЗР.

В ручьях Большой Ключ и Каменный Ключ (пробы В-1 и В-7, таблица) непосредственно вблизи месторождений Улюк-Бар, Горный Прииск и Калашникова жила сильно увеличиваются содержания целого ряда элементов: As, Fe, Mn, W, Al, V. Вода безымянного ручья, впадающего в реку Большой Инзер в месте рядом с предполагаемым золоторудным участком, характеризуется максимальными содержаниями Mo, W и относительно высоким содержанием As, Fe, Al, V. Это является еще одним доказательством того, что на формирование микроэлементного состава поверхностных вод АЗР оказывает влияние близость золоторудных объектов, поскольку наряду со Sb большинство из перечисленных элементов во вмещающих породах и рудах месторождений золота АЗР положительно коррелируют с содержаниями Au [23]. Отметим, что в месторождениях Улюк-Бар, Горный Прииск и рудопроявлении Богряшка золото в рудах обнаруживает наибольшую положительную геохимическую связь и максимальные коэффициенты корреляции с мышьяком ($K_{\text{корр}}=0,99$, месторождение Улюк-Бар) и сурьмой ($K_{\text{корр}}=0,90$, рудопроявление Богряшка) [18, 24].

Согласно полученным данным, в ручьях Большой Ключ и Каменный ключ только в непосредственной близости от месторождений золота выявлено увеличение содержания As, которое в целом является не очень высоким (19 и 10 мкг/л соответственно, пробы В-7 и В-13, таблица). Вниз по течению по мере удаления от месторождений концентрация мышьяка в водах становится меньше примерно в 2–4 раза. В устье ручья Большой Ключ содержание As равно уже 10 мкг/л, а напротив его устья в реке Большой Авзян еще меньше – <5 мкг/л (пробы В-8 и В-11, соответственно, таблица). В реке Большой Авзян на ~2,5 км ниже по течению от устья ручья Каменный ключ концентрация мышьяка составляет <5 мкг/л

(проба, В-12, таблица). Следовательно, потоки рассеяния мышьяка в реке Большой Авзян и ее притоках не превышают 2,0...2,5 км. Концентрации As менее 5 мкг/л в реках и ручьях АЗР в таком случае можно рассматривать как фоновые.

Хорошо известно, что Sb и As обладают близкими геохимическими свойствами. В золоторудных месторождениях эти элементы обычно вместе встречаются в сульфидах и сульфоарсенидах. Содержания As в горных породах чаще преобладают над концентрациями Sb. Однако при миграции из горных пород и почв в подземные и поверхностные воды эти элементы могут вести себя по-разному и в водах начинают накапливаться преимущественно Sb. Анализ полученных нами результатов показывает, что в поверхностных водах АЗР происходит именно так. На это указывают данные по содержанию сурьмы и мышьяка. Как видно из таблицы, концентрации Sb в среднем в 2,1 раза выше содержаний As, что отмечается почти во всех проанализированных пробах.

Такое поведение этих металлоидов в поверхностных водах АЗР сходно с таковым во многих горнодобывающих районах. Так, например, в рудничных и поверхностных водах золоторудного района Пезинок в Словакии [11] концентрации сурьмы в 2,0...7,5 раз превышают содержания мышьяка. Подобное распределение этих металлоидов обнаружено в карстовой речной системе на юго-западе Китая [40] и в поверхностных водах вблизи сурьмяно-золоторудных месторождений Кантишна Хилз на Аляске [10]. Причем в последней из указанных работ установлено, что потоки рассеяния Sb достигали 8 км, в то время как As – не превышали 1,5 км.

В водах реки Большой Авзян и ее притоках Sb и As обнаруживают разные геохимические связи. Sb имеет низкие прямые коэффициенты корреляции только с Mn ($K_{\text{корр}}=0,53$), Mg (0,45), Sr (0,41) Ca (0,35), т. е. с элементами, входящими преимущественно в состав карбонатных минералов (доломит). Вероятно, это не случайно, поскольку воды реки Большой Авзян в среднем течении дренируют породы миньякской подбиты суранской свиты (рис. 1), которые представлены именно карбонатами – в основном доломитами и в меньшей степени известняками. В миньякских доломитах и известняках часто отмечается вкрапленность сульфидов, представленных главным образом пиритом, содержание которого в породах составляет 0,13...0,58 мас. % [18]. С учетом всех этих особенностей логично предположить, что увеличение концентраций Sb в реке Большой Авзян, по крайней мере, частично может быть связано с растворением пиритсодержащих карбонатных пород миньякской подбиты.

В то же время As в реке Большой Авзян и ее притоках значимо прямо коррелирует с Ni (0,71), Si (0,70), Ba (0,66), Li (0,62) и слабо – с Fe (0,49), Mg (0,47), Na (0,46), Mn (0,40), B (0,39), Sr (0,33), V (0,31). Перечисленные элементы преимущественно входят в силикатные минералы (кварц, слюды) и гидроксиды железа. Как отмечено выше, увеличение концентраций As в бассейне реки Большой Авзян фиксируется

только в ее притоках – ручьях Большой Ключ и Каменный ключ, которые дренируют вмещающие породы месторождений золота Улюк-Бар и Горный прииск. В литологическом составе пород здесь преобладают песчаники, в которых отмечаются маломощные прослои алевролитов и сланцев, а также значительное количество кварцевых жил. Песчаники, алевролиты и кварцевые жилы часто содержат As-содержащие минералы: арсенопирит, герсдорфит, мышьяковистый пирит [23]. Таким образом, увеличение концентраций As в притоках реки Большой Авзян, вероятно, обусловлено растворением As-содержащих минералов, присутствующих в породах и рудах месторождений золота.

Эти данные показывают, что концентрации Sb и As в поверхностных водах АЗР в разной степени зависят от состава дренируемых горных пород и минералов. На поведение этих металлоидов в подземных и речных водах могут влиять различные природные (геогенные) факторы. В исследовании [41] установлено разное распределение этих элементов в речной воде вблизи сурьмяного рудника в провинции Хунань в Китае для областей с преобладанием в горных породах карбонатных и силикатных минералов. Указанными авторами доказывается, что основными причинами, от которых зависят концентрации As и Sb в воде, являются растворение карбонатных минералов, ионный обмен и адсорбция.

В исследуемых нами водах содержания As и Sb часто обнаруживают слабую обратную связь со значениями pH. В реках Большой Инзер и Большой Авзян коэффициенты корреляции между As и pH равны соответственно –0,57 и –0,32, между Sb и pH – 0,13 и –0,50. Таким образом, при слабом увеличении щелочности поверхностных вод АЗР в них незначительно уменьшаются содержания мышьяка и сурьмы. Вместе с тем имеются сведения, что гидрокарбонатно-кальциевые слабощелочные (pH 8,0...8,5) воды благоприятны для миграции анионогенных (As и Sb) элементов [42]. В щелочных условиях Sb способна мигрировать в виде взвесей, тонких суспензий и коллоидов в соединениях типа щелочных солей сурьмяной кислоты, а в кислых растворах – в полисульфидных соединениях [33]. Известно также [43], что в природных водах соединения Sb могут находиться во взвешенном состоянии в виде сурьманоорганических комплексов. При этом в процессах обогащения природных вод сурьмой может участвовать органическое вещество типа гумуса.

По представлениям [44, 45] контрастная мобильность As и Sb в водных потоках зависит от периодически повторяющихся окислительно-восстановительных реакций (динамического цикла) с Fe, протекающих в воде на границе с горными породами, в которых может также присутствовать органическое вещество. Экспериментальные исследования, проведенные с водой из рудника Йеллоунайф в Канаде [35], показали, что в абиотических аэрированных условиях мышьяк и сурьма окислялись примерно с одинаковой скоростью, однако в присутствии микроорганизмов, которые выступали в качестве мощнейшего катализатора, скорость окисления As (III) многократно – в

300–2600 раз – превышала скорость окисления Sb (III). Мы предполагаем, что одной из главных причин разного поведения этих элементов в АЗР является их различная скорость окисления.

В качестве примера можно также указать на поведение As и Sb в процессе гипергенного преобразования отходов золото-арсенопирит-кварцевых руд Комсомольского месторождения, где в водах и растворах мышьяк на 83 % связывается гидроксидами железа и содержание его в растворе падает до 10 мкг/л, а сурьма на 99 % остается в растворе и беспрепятственно мигрирует в реку Воскресенка, где ее концентрация достигает 35 мкг/л [46]. Отметим, что в поверхностных водах АЗР нами установлены очень близкие концентрации As и Sb.

Приведенные материалы показывают, что увеличение концентраций в первую очередь Sb и As, а также Fe, Mn, Al, W, Mo в поверхностных водах АЗР хорошо объясняется с точки зрения природных (геогенных) факторов – минералогических и геохимических особенностей вмещающих горных пород и руд месторождений золота этого района.

Выводы

1. Поверхностные воды Авзянского золоторудного района характеризуются неблагоприятным экологическим состоянием. Основным загрязняющим элементом является сурьма, содержания которой в воде в 1,2...7,6 раз превышают допустимые нормативы. Вода по этому элементу характеризуется высокой и экстремально высокой степенью загрязнённости. По результатам исследований построена карта степени загрязнённости поверхностных вод сурьмой.
2. В большинстве проб воды отмечается в среднем 1,6...5,0-кратное превышение предельно допустимой концентрации по железу, марганцу, вольфраму, во многих случаях аналогичное превышение предельно допустимой концентрации по меди, алюминию, ванадию, в единичных пробах – по мышьяку и молибдену. По значениям коэффициентов комплексности загрязнённости (8,7...30,4 %) поверхностные воды являются умеренно токсичными и относятся к I–II категории загрязнённости.
3. Локально установлены участки экстремально высокого загрязнения по алюминию, молибдену, высокого уровня загрязнения – по вольфраму. В целом по показателям комплексности высокого и экстремально высокого уровней загрязнённости (до 4,3 %) и экстремально высокого уровней загрязнённости (0...4,3 %) поверхностные воды Авзянского золоторудного района обладают сравнительно невысокой степенью загрязнённости и могут быть отнесены к I категории загрязнённости.
4. На основе значений суммарных коэффициентов опасности (HI_{ing}) определен неканцерогенный риск для здоровья населения, который заключается в возможных неблагоприятных последствиях. Для детей неканцерогенный риск, связанный главным образом с большими концентрациями сурьмы в воде, выше ($HI_{ing} = 4,0...4,9$), чем для взрослых ($HI_{ing} = 1,1...1,3$).

5. Увеличение концентраций загрязняющих элементов в поверхностных водах обусловлено природными (геогенными) факторами – геохимическими и минералогическими особенностями горных пород, участвующих в геологическом строении месторождений и рудопроявлений Авзянского золоторудного района. Концентрации мышьяка закономерно повышаются в притоках реки Большой Авзян, образуя вблизи золоторудных месторождений локальные потоки рассеяния. Миграционная способность сурьмы по сравнению с мышьяком проявлена в большей степени. Преобладающими растворенными формами мышьяка являются оксианионы HAsO_4^{2-} и H_2AsO_4^- , сурьмы – $\text{Sb}(\text{OH})_6^-$. Увеличение концентраций этих металлоидов в ре-

ке Большой Авзян и ее притоках связано с растворением силикатных минералов и гидроксидов железа, а также с растворением пиритсодержащих карбонатных пород суранской свиты. Ведущиеся в настоящее время разработки месторождений коренного и россыпного золота не оказывают большого влияния на увеличение содержаний этих элементов в поверхностных водах.

Исследования выполнены по теме № FMRS-2022-0015 госзадания ИГ УФИЦ РАН.

Авторы признательны рецензенту за критические замечания, позволившие улучшить представленные в статье материалы.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Human risk from exposure to heavy metals and arsenic in water from rivers with mining influence in the Central Andes of Peru / M. Custodio, W. Cuadrado, R. Peñaloza, R. Montalvo, S. Ochoa, J. Quispe // *Water*. – 2020. – V. 12 (7). – P. 1946–1966.
2. Geogenic and anthropogenic interactions at a former Sb mine: environmental impacts of As and Sb / L. Mbadugha, D. Cowper, S. Dossanov, G.I. Paton // *Environmental Geochemistry and Health*. – 2020. – V. 42. – P. 3911–3924.
3. In situ arsenic immobilization for coastal aquifers using stimulated iron cycling: lab-based viability assessment / A. Barron, J. Sun, S. Passaretti, C. Sbarbati, M. Barbieri, N. Colombani, J. Jamieson, B.C. Bostick, Y. Zheng, M. Mastrocicco, M. Petitta, H. Prommer // *Applied Geochemistry*. – 2022. – V. 136. – 105155.
4. Antimony contamination and its risk management in complex environmental settings: a review / N. Bolan, M. Kumar, E. Singh, A. Kumar, L. Singh, S. Kumar, S. Keerthanan, S.A. Hoang, A. El-Naggar, M. Vithanage, B. Sarkar, H. Wijesekara, S. Diyabalanage, P. Sooriyakumar, A. Vinu, H. Wang, M.B. Kirkham, S.M. Shaheen, J. Rinklebe, K.H.M. Siddique // *Environment International*. – 2022. – V. 158. – 106908.
5. Emmanuel E., Pierre M.G., Perrodin Y. Groundwater contamination by microbiological and chemical substances released from hospital wastewater: health risk assessment for drinking water consumers // *Environment International*. – 2009. – V. 35 (4). – P. 718–726.
6. Human health risk assessment for ingestion exposure to groundwater contaminated by naturally occurring mixtures of toxic heavy metals in the Lao PDR / P. Chanpiwat, B.T. Lee, K.W. Kim, S. Sthiannopkao // *Environmental Monitoring and Assessment*. – 2014. – V. 186 (8). – P. 4905–4923.
7. Медведев И.Ф., Деревягин С.С. Тяжелые металлы в экосистемах. – Саратов: Ракурс, 2017. – 178 с.
8. Турбинский В.В., Бортникова С.Б. О соотношении мышьяка и сурьмы в биогеохимических провинциях как факторов риска здоровью // *Анализ риска здоровью*. – 2018. – № 3. – С. 136–143.
9. Ngole-Jeme V.M., Fantke P. Ecological and human health risks associated with abandoned gold mine tailings contaminated soil // *PLoS ONE*. – 2017. – V. 12 (2). – 0172517.
10. Mobility and chemical fate of antimony and arsenic in historic mining environments of the Kantishna Hills district, Denali National Park and Preserve, Alaska / V.J. Ritchie, A.G. Ilgen, S.H. Mueller, T.P. Trainor, R.J. Goldfarb // *Chemical Geology*. – 2013. – V. 335. – P. 172–188.
11. Occurrence of arsenic and antimony in water, soil and vegetation near tailing impoundments in Pezinok, Slovakia / S. Čerňanský, V. Falt'án, M. Koli, A. Samelova, M. Rusnak, R. Hamada, V. Zahumenský // *Acta Universitatis Comenianae (Bratislava)*. – 2014. – V. 22 (2). – P. 17–25.
12. Ляпунов М.Ю. Эколого-геохимическая характеристика поверхностных вод золоторудного месторождения «Пионер» Амурской области // *Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов*. – 2015. – Т. 326. – № 7. – С. 44–50.
13. Mass balance of arsenic fluxes in rivers impacted by gold mining activities in Paracatu (Minas Gerais State, Brazil) / E. Bidone, R. Cesar, M.C. Santos, R. Sierpe, E.V. Silva-Filho, V. Kutter, L.I. Dias da Silva // *Environmental Science and Pollution Research*. – 2018. – V. 25 (3). – P. 9085–9100.
14. Гидрогеохимические аспекты разработок Албынского золоторудного месторождения (Приамурье) / В.И. Радомская, С.М. Радомский, Л.М. Павлова, Л.П. Шумилова // *Водные ресурсы*. – 2019. – Т. 46. – № 2. – С. 191–206.
15. Arsenic pollution in Quaternary sediments and water near a former gold mine / Ł. Stachnik, B. Korabiewski, J. Raczek, M. Łopuch, I. Wiczorek // *Scientific Reports*. – 2020. – V. 10 (1). – P. 1–16.
16. Эколого-гигиеническая оценка состояния техногенного водоема золотодобывающего предприятия (Зауралье Республики Башкортостан) / З.Б. Бактыбаева, А.А. Кулагин, Г.Ф. Габидулина, Т.К. Ларионова // *Гигиена и санитария*. – 2020. – Т. 99. – № 9. – С. 911–917.
17. Ларионов Н.Н., Цветкова А.А. Государственная геологическая карта Российской Федерации. 1:200000. Южно-Уральская серия. N-40-XXII (Тукан). – СПб.: МПР РФ, 2003.
18. Мичурин С.В., Ковалев С.Г., Горожанин В.М. Генезис сульфидов и сульфатов в нижнерифейских отложениях Камско-Бельского авлакогена и Башкирского мегантиклинория. – Уфа: ДизайнПолиграф-Сервис, 2009. – 192 с.
19. Эколого-гигиеническая оценка загрязнения поверхностных и подземных вод горнорудных территорий Республики Башкортостан / З.Б. Бактыбаева, Р.А. Сулейманов, Т.К. Валеев, Н.Р. Рахматуллин, Р.А. Даукаев, Г.Р. Аллярова // *Безопасность здоровья человека*. – 2017. – № 1. – С. 6–18.
20. Серегина Ю.Ю. Тяжелые металлы в аллювиальных почвах и сопредельных средах прибрежно-водных экосистем верхнего течения реки Белая (Южный Урал): автореф. дис. ... канд. биол. наук. – Уфа, 2019. – 20 с.
21. Демографические показатели по городам и районам Республики Башкортостан за 2010–2020 год // Территориальный орган Федеральной службы государственной статистики по Республике Башкортостан. URL: <https://bashstat.gks.ru/folder/25491> (дата обращения 09.02.2022).
22. Сергеева Н.Д. Сопоставление айской и большеинзерской свит нижнего рифея Башкирского мегантиклинория Южного Урала по аксессуарным минералам // *Верхний докембрий и палеозой Южного Урала (стратиграфия и литология)*. – Уфа: БФАН СССР, 1982. – С. 20–26.
23. Сульфидная минерализация, самородное золото и его геохимические связи в рифейских отложениях Авзянского рудного района (Южный Урал) / С.В. Мичурин, А.А. Шарипова, М.Т. Крупенин, Д.А. Замятин, А.М. Мусина, В.А. Попов // *Литосфера*. – 2018. – Т. 18. – № 1. – С. 61–81.
24. Шарипова А.А. Минералогия и геохимия месторождений и рудопроявлений золота Авзянского рудного района (Южный Урал): автореф. дис. ... канд. геол.-минерал. наук. – Уфа, 2021. – 17 с.
25. ГОСТ 31861-2012. Вода. Общие требования к отбору проб. – М.: Стандартинформ, 2019. – 36 р.

26. Правила охраны поверхностных вод. Типовые положения. – М.: Госкомприроды СССР, 1991. – 34 с.
27. Постановление Кабинета Министров Республики Башкортостан от 7 сентября 1998 года N 187 (Приложение №5) // Ведомости государственного Собрания, Президента и Кабинета Министров Республики Башкортостан. – 1999. – № 1 (85). – ст. 87.
28. ГН 2.1.5.1315-03. Предельно допустимые концентрации (ПДК) химических веществ в воде водных объектов хозяйственно-питьевого и культурно-бытового водопользования: Гигиенические нормативы. – М.: Российский регистр потенциально опасных химических и биологических веществ Министерства здравоохранения Российской Федерации, 2003. – 152 с.
29. Перечень рыбохозяйственных нормативов: предельно-допустимых концентраций (ПДК) и ориентировочно безопасных уровней воздействий (ОБУВ) вредных веществ для воды водных объектов, имеющих рыбохозяйственное значение. – М.: ВНИРО, 1999. – 304 с.
30. РД 52.24.643-2002. Методические указания. Метод комплексной оценки степени загрязненности поверхностных вод по гидрохимическим показателям. – Ростов-на-Дону: Росгидромет, 2003. – 49 с.
31. Степанова Н.В., Валеева Э.Р., Фомина С.Ф. Оценка неканцерогенного риска для здоровья населения при воздействии химических веществ, загрязняющих окружающую среду. – Казань: К(П)ФУ, ИФМиБ, 2015. – 112 с.
32. Методические рекомендации. Расчет доз при оценке риска многократного воздействия химических веществ. – М.: Санэпидмедиа, ГУ НИИ ЭЧ и ГОС имени А.Н. Сысина РАМН, ММА имени И.М. Сеченова, Консультационный Центр по оценке риска, Центр госсанэпиднадзора в г. Москве, 2003. – 28 с.
33. Шварцева Н.М. Распространение сурьмы в подземных водах // Известия Томского политехнического института им. С.М. Кирова. – 1971. – Т. 217. – С. 238–242.
34. Чарыкова М.В., Кривовичев В.Г., Демасейр В. Физико-химические условия образования минералов мышьяка в приповерхностных обстановках // Вестник Санкт-Петербургского университета. – 2008. – Сер. 7. – Вып. 4. – С. 62–81.
35. Asta M.P., Nordstrom D.K., McCleskey R.B. Simultaneous oxidation of arsenic and antimony at low and circumneutral pH, with and without microbial catalysis // Applied Geochemistry. – 2012. – V. 27 (1). – P. 281–291.
36. Багрянцева О.В., Хотимченко С.А. Токсичность неорганических и органических форм мышьяка // Вопросы питания. – 2021. – Т. 90. – № 6. – С. 6–17.
37. Takeno N. Atlas of Eh-pH diagrams intercomparison of thermodynamic databases Geological Survey of Japan. – Japan: National Institute of Advanced Industrial Science and Technology Research Center for Deep Geological Environments Naoto TAKENO, 2005. – 285 p.
38. Smedley P.L., Kinniburgh D.G. A review of the source, behaviour and distribution of arsenic in natural waters // Appl. Geochemistry. – 2002. – V. 17 (5). – P. 517–568.
39. Путилина В.С., Галицкая И.В., Юганова Т.И. Поведение мышьяка в почвах, горных породах и подземных водах. Трансформация, адсорбция/десорбция, миграция: аналит. обзор. – Новосибирск: ГПНТБ СО РАН, ИГЭ РАН, 2011. – 249 с.
40. Li L., Liu H., Li H. Distribution and migration of antimony and other trace elements in a Karstic river system, Southwest China // Environmental Science and Pollution Research. – 2018. – V. 25. – P. 28061–28074.
41. Contrasting water-rock interaction behaviors of antimony and arsenic in contaminated rivers around an antimony mine, Hunan Province, China / C. Hao, H. Gui, L. Sheng, J. Miao, H. Lian // Geochemistry. – 2021. – V. 81 (2). – 125748.
42. Mok W.M., Wai C.M. Distribution and mobilization of arsenic and antimony species in the Coeur D'Alene River, Idaho // Environmental Science & Technology. – 1990. – V. 24. – P. 102–108.
43. О связи сурьмы с органическим веществом типа гумуса в природных водах и водных растворах / П.А. Удодов, Р.С. Солодовникова, Н.М. Шварцева, Э.С. Рычкова // Известия Томского политехнического института им. С. М. Кирова. Серия: Геология. – 1975. – Т. 297. – С. 68–73.
44. Antimony and arsenic speciation, redox-cycling and contrasting mobility in a mining-impacted river system / S.G. Johnston, W.W. Bennett, N. Doriean, K. Hockmann, N. Karimian, E.D. Burton // Medicine, Chemistry. The Science of the total environment. – 2020. – V. 710. – 136354.
45. Study on antimony and arsenic cycling, transformation and contrasting mobility in river-type reservoir / C. Zhang, T. Liu, Z. Yang, P. Wu, K. Zhang, S. Chen // Applied Geochemistry. – 2022. – V. 136. – 105132.
46. Лазарева Е.В. Поведение мышьяка и сурьмы в процессе гипергенного преобразования отходов цианирования золото-арсенопирит-кварцевых руд: автореф. дис. ... канд. геол.-минерал. наук. – Новосибирск, 2003. – 20 с.

Поступила 29.06.2022 г.

Информация об авторах

Казбулатова Г.М., младший научный сотрудник института геологии Уфимского Федерального исследовательского центра РАН.

Мичурин С.В., кандидат геолого-минералогических наук, ведущий научный сотрудник института геологии Уфимского Федерального исследовательского центра РАН.

Карамова А.М., кандидат технических наук, старший научный сотрудник института геологии Уфимского Федерального исследовательского центра РАН.

UDC 504.064.36:550.4; 504.064.36:574

GEOECOLOGICAL ASSESSMENT OF THE CONDITION OF SURFACE WATERS OF AVZYAN GOLD REGION IN THE REPUBLIC OF BASHKORTOSTAN

Gulfiya M. Kazbulatova¹,
kazbulatova@mail.ru

Sergey V. Michurin¹,
s_michurin@mail.ru

Alsu M. Karamova¹,
alsu.2013@bk.ru

¹ Ufa Federal Research Centre of the Russian Academy of Sciences,
16/2, Karl Marx street, Ufa, 450077, Russia.

The relevance. Monitoring the levels of chemicals in the surface waters of mining areas and environmental assessment of their condition are the most important measures to ensure the quality of drinking water and reduce risks to public health. At the same time, to date, there is no information on the concentrations of heavy metals and metalloids in the surface waters of the Avzyan gold region.

The main aim is to determine the content of trace elements, including heavy metals and metalloids, to identify the reasons for their increase in the surface waters of Avzyan gold region, and to assess the environmental risk to public health.

Objects: surface waters in the middle reaches of the Bolshoy Avzyan and Bolshoy Inzer rivers and their tributaries, draining both known deposits of indigenous and placer gold in the Avzyan gold region, and the proposed gold mining sites.

Methods: inductively coupled plasma-atomic emission spectrometry.

Results. The surface waters of the Avzyan gold region are characterized by an unfavorable ecological condition. The main contaminant element is antimony, exceeding the maximum allowable concentration by 1,2...7,6 times in all selected samples. The level of water contamination with this element in most samples is high and extremely high. Based on the results of the research, a map of the degree of contamination of surface waters with antimony was built. In many cases, there is an average of 1,6...5,0-fold excess of the maximum allowable concentration for iron, manganese, tungsten, copper, aluminum, vanadium, in single samples – for arsenic and molybdenum. Areas of extremely high contamination for aluminum, molybdenum, and a high level of contamination for tungsten were locally established. According to the values of the coefficients of complexity of pollution (8,7...30,4 %) and the values of the coefficients of complexity of high and extremely high levels of pollution (up to 4,3 %), the surface waters of Avzyan gold region are moderately toxic and belong to the I-II category of pollution. Based on the values of the total hazard coefficients, a non-carcinogenic risk to public health was determined, which consists in possible adverse consequences and is mainly associated with high concentrations of antimony in water. The increase in the concentrations of polluting elements in surface waters is due to natural (geogenic) factors – geochemical and mineralogical features of rocks involved in the geological structure of deposits and ore occurrences of the Avzyan gold region. Arsenic concentrations naturally increase in the tributaries of the Bolshoy Avzyan river, forming local scattering streams near gold deposits. The migration ability of antimony in comparison with arsenic is manifested to a greater extent. The predominant dissolved forms of arsenic are the oxyanions HAsO_4^{2-} and H_2AsO_4^- , antimony – $\text{Sb}(\text{OH})_6^-$. An increase in the concentrations of these metalloids in the Bolshoy Avzyan river and its tributaries is associated with the dissolution of silicate minerals and iron hydroxides, as well as with the dissolution of pyrite-containing carbonate rocks of the Suran formation. The ongoing development of deposits of indigenous and placer gold currently does not have a great impact on the increase in the content of these elements in surface waters.

Key words:

Avzyan gold region, gold, surface waters, Bolshoy Avzyan, Bolshoy Inzer, antimony, arsenic.

The research was carried out on the subject no. FMRS-2022-0015 of the state task to the Institute of Geology UFRS RAS.

The authors appreciate critical feedback of the reviewer, which allowed improving the materials of the paper.

REFERENCES

1. Custodio M., Cuadrado W., Peñaloza R., Montalvo R., Ochoa S., Quispe J. Human risk from exposure to heavy metals and arsenic in water from rivers with mining influence in the Central Andes of Peru. *Water*, 2020, vol. 12 (7), pp. 1946–1966.
2. Mbadugha L., Cowper D., Dossanov S., Paton G.I. Geogenic and anthropogenic interactions at a former Sb mine: environmental impacts of As and Sb. *Environmental Geochemistry and Health*, 2020, vol. 42, pp. 3911–3924.
3. Barron A., Sun J., Passaretti S., Sbarbati C., Barbieri M., Colombani N., Jamieson J., Bostick B.C., Zheng Y., Mastrocicco M., Petitta M., Prommer H. In situ arsenic immobilization for coastal aquifers using stimulated iron cycling: lab-based viability assessment. *Applied Geochemistry*, 2022, vol. 136, 105155.
4. Bolan N., Kumar M., Singh E., Kumar A., Singh L., Kumar S., Keerthanam S., Hoang S.A., El-Naggar A., Vithanage M., Sarkar B., Wijesekara H., Diyabalanage S., Sooriyakumar P., Vinu A., Wang H., Kirkham M.B., Shaheen S.M., Rinklebe J., Siddique K.H.M. Antimony contamination and its risk management in complex environmental settings: a review. *Environment International*, 2022, vol. 158, 106908.
5. Emmanuel E., Pierre M.G., Perrodin Y. Groundwater contamination by microbiological and chemical substances released from hospital wastewater: health risk assessment for drinking water consumers. *Environment International*, 2009, vol. 35 (4), pp. 718–726.
6. Chanpiwat P., Lee B.T., Kim K.W., Sthiannopkao S. Human health risk assessment for ingestion exposure to groundwater contaminated by naturally occurring mixtures of toxic heavy metals in the Lao PDR. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2014, vol. 186 (8), pp. 4905–4923.
7. Medvedev I.F., Derevyagin S.S. *Tyazhelye metally v ekosistemakh* [Heavy metals in ecosystems]. Saratov, Rakurs Publ., 2017. 178 p.

8. Turbinsky V.V., Bortnikova S.B. Proportions of arsenic and antimony in biogeochemical provinces as health risk factors. *Health Risk Analysis*, 2018, no. 3, pp. 136–143. In Rus.
9. Ngole-Jeme V.M., Fantke P. Ecological and human health risks associated with abandoned gold mine tailings contaminated soil. *PLoS ONE*, 2017, vol. 12 (2), 0172517.
10. Ritchie V.J., Ilgen A.G., Mueller S.H., Trainor T.P., Goldfarb R.J. Mobility and chemical fate of antimony and arsenic in historic mining environments of the Kantishna Hills district, Denali National Park and Preserve, Alaska. *Chemical Geology*, 2013, vol. 335, pp. 172–188.
11. Čerňanský S., Falt'án V., Koli M., Samelova A., Rusnak M., Hamada R., Zahumenský V. Occurrence of arsenic and antimony in water, soil and vegetation near tailing impoundments in Pezínok, Slovakia. *Acta Environmentalica Universitatis Comenianae (Bratislava)*, 2014, vol. 22 (2), pp. 17–25.
12. Lyapunov M.Yu. Ecological and geochemical characteristics of surface waters of the Pioneer gold deposit in the Amur region. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2015, vol. 326, no. 7, pp. 44–50. In Rus.
13. Bidone E., Cesar R., Santos M.C., Sierpe R., Silva-Filho E.V., Kutter V., Dias da Silva L.I. Mass balance of arsenic fluxes in rivers impacted by gold mining activities in Paracatu (Minas Gerais State, Brazil). *Environmental Science and Pollution Research*, 2018, vol. 25 (3), pp. 9085–9100.
14. Radomska V.I., Radomskii S.M., Pavlova L.M., Shumilova L.P. Hydrogeochemical aspects elements behavior under development of the Albynskoe gold field, Amur Basin. *Water Resources*, 2019, vol. 46, no. 2, pp. 191–206. In Rus.
15. Stachnik L., Korabiewski B., Raczyk J., Łopuch M., Wiczeorek I. Arsenic pollution in Quaternary sediments and water near a former gold mine. *Scientific Reports*, 2020, vol. 10 (1), pp. 1–16.
16. Baktybaeva Z.B., Kulagin A.A., Gabidullina G.F., Larionova T.K. Ecological and hygienic assessment of the technogenic reservoir state of the gold extraction enterprise (Zauralye of the Republic of Bashkortostan). *Hygiene & Sanitation*, 2020, vol. 99, no. 9, pp. 911–917. In Rus.
17. Larionov N.N., Cvetkova A.A. *Gosudarstvennaya geologicheskaya karta Rossiyskoy Federatsii. 1:200 000. Yuzhno-Uralskaya seriya. N-40-XXII (Tukan)* [State Geological Map of the Russian Federation. 1:200000. South Ural series. N-40-XXII (Toucan)]. St-Petersburg, MNR RF Publ., 2003.
18. Michurin S.V., Kovalev S.G., Gorozhanin V.M. *Genezis sulfidov i sulfatov v nizhnereifeykskikh otlozheniyakh Kamsko-Belskogo avlakogena i Bashkirskogo megantiklinoriya* [Genesis of sulfides and sulfates in the Lower Riphean deposits of the Kamsko-Belsky Avlakogen and Bashkir meganticlinorium]. Ufa, Designpoligrafservice Publ., 2009. 192 p.
19. Baktybaeva Z.B., Suleymanov R.A., Valeev T.K., Rahmatullin N.R., Daukaev R.A., Allayarova G.R. Ecological and hygienic assessment of pollution of the surface and groundwater of mining territories of the Republic of Bashkortostan. *Security of human health*, 2017, no. 1, pp. 6–18. In Rus.
20. Seregina Yu.Yu. *Yazhelye metally v alluvialnykh pochvakh i sopredelnykh sredakh pribrezhno-vodnykh ekosistem verkhnego techeniya reki Belaya (Yuzhny Ural)*. Avtoreferat Dis. Kand. nauk [Heavy metals in alluvial soils and adjacent environments of coastal-aquatic ecosystems of the upper reaches of the Belaya River (Southern Urals). Cand. Diss. Abstract]. Ufa, 2019. 20 p.
21. *Demograficheskie pokazateli po gorodam i rayonam Respubliki Bashkortostan za 2010–2020 god* [Demographic indicators by cities and districts of the Republic of Bashkortostan for 2010–2020]. Available at: <https://bashstat.gks.ru/folder/25491> (accessed 9 February 2022).
22. Sergeeva N.D. Sopotavlenie ayskoy i bolsheinzerskoy svit nizhnego rifeya Bashkirskogo megantiklinoriya Yuzhnogo Urala po aktsessornym mineralam [Comparison of the Aisk and Bolsheinzher formations of the Lower Riphean Bashkir meganticlinory of the Southern Urals by accessory minerals]. *Verkhny dokembry i paleozoy Yuzhnogo Urala (stratigrafiya i litologiya)* [Upper Precambrian and Paleozoic of the Southern Urals (stratigraphy and lithology)]. Ufa, BBAS USSR Publ., 1982. pp. 20–26.
23. Michurin S.V., Sharipova A.A., Krupenin M.T., Zamyatin D.A., Musina A.M., Popov V.A. Sulfide mineralization, native gold and its geochemical connections in the Riphean deposits of the Avzyan ore-bearing region (the Southern Urals). *Lithosphere (Russia)*, 2018, vol. 18, no 1, pp. 61–81. In Rus.
24. Sharipova A.A. *Mineralogiya i geokhimiya mestorozhdeniy i rudoproyavleniy zolota Avzyanskogo rudnogo rayona (Yuzhny Ural)*. Avtoreferat Dis. Kand. nauk [Mineralogy and geochemistry of gold deposits and ore occurrences of the Avzyan ore region (Southern Urals). Cand. Diss. Abstract]. Ufa, 2021. 17 p.
25. GOST 31861-2012. *Voda. Obshchie trebovaniya k otboru prob* [State Standard 31861-2012. Water. General requirements for sampling]. Moscow, StandardInform Publ., 2019. 36 p.
26. *Pravila okhrany poverkhnostnykh vod. Tipovye polozheniya* [Rules for the protection of surface waters. Model provisions]. Moscow, State Committee of the USSR, 1991. 34 p.
27. *Postanovlenie Kabineta Ministrov Respubliki Bashkortostan ot 7 sentyabrya 1998 goda N 187 (Prilozhenie № 5)* [Resolution of the Cabinet of Ministers of the Republic of Bashkortostan No. 187 of September 7 1998 (Appendix No. 5)]. Bulletin of the State Assembly, the President and the Cabinet of Ministers of the Republic of Bashkortostan Publ., 1999. No. 1 (85), article 87.
28. GN 2.1.5.1315-03. *Predelno dopustimye kontsentratsii (PDK) khimicheskikh veshchestv v vode vodnykh obektovk hozyaystvenno-pityevogo i kulturno-bytovogo vodopolzovaniya: gigienicheskie normativy* [Hygienic standards 2.1.5.1315-03. Maximum allowable concentrations (MACs) of chemicals in the water of water bodies of economic and drinking and cultural and household water use: Hygienic standards]. Moscow, Russian Register of Potentially Hazardous Chemical and Biological Substances of the Ministry of Health of the Russian Federation Publ., 2003. 152 p.
29. *Perechen rybkhozyaystvennykh normativov: predelno-dopustimyykh kontsentratsiy (PDK) i orientirovochno bezopasnykh urovney vozdeystviy (OBUV) vrednykh veshchestv dlya vody vodnykh obektov, imeyushchikh rybkhozyaystvennoe znachenie* [The list of fishery standards, maximum allowable concentrations (MACs) and tentatively safe exposure levels of harmful substances to water of water bodies of fishery importance]. Moscow, VNIRO Publ., 1999. 304 p.
30. RD 52.24.643-2002. *Metodicheskie ukazaniya. Metod kompleksnoy otsenki stepeni zagryaznenosti poverkhnostnykh vod po gidrokhimicheskim pokazatelyam* [Guidance documents 52.24.643-2002. Methodical instructions. Method of complex estimation of pollution level of surface waters according to hydrochemical indicators]. Rostov-on-Don, Roshydromet Publ., 2003. 49 p.
31. Stepanova N.V., Valeeva E.R., Fomina S.F. *Otsenka nekantserogennogo riska dlya zdorovya naseleniya pri vozdeystvii khimicheskikh veshchestv, zagryaznyayushchikh okruzhayushchuyu sredu* [Assessment of non-carcinogenic risk to public health when exposed to chemicals that pollute the environment]. Kazan, IFM&B, K(P)FU Publ., 2015. 112 p.
32. *Metodicheskie rekomendatsii. Raschet doz pri otsenke riska mnogosredovogo vozdeystviya khimicheskikh veshchestv* [Guidelines. Calculation of doses in assessing the risk of multi-environment exposure to chemicals]. Moscow, Sanepidmedia, State Research Institute named after A.N. Sytin RAMS, MSMU named after I.M. Sechenov, Consulting Center for Risk Assessment, Center for State Sanitary and Epidemiological Surveillance in Moscow Publ., 2003. 28 p.
33. Shvartseva N.M. Rasprostraneniye surmy v podzemnykh vodakh [The spread of antimony in groundwater]. *Izvestiya Tomskogo politekhnicheskogo instituta im. S.M. Kirova*, 1971, vol. 217, pp. 238–242.
34. Charykova M.V., Krivovichev V.G., Depmayr V. Physico-chemical conditions of the formation of arsenic minerals in near-surface environments. *Bulletin of St. Petersburg University*, 2008, ser. 7, Iss. 4, pp. 62–81. In Rus.
35. Asta M.P., Nordstrom D.K., McCleskey R.B. Simultaneous oxidation of arsenic and antimony at low and circumneutral pH, with and without microbial catalysis. *Applied Geochemistry*, 2012, vol. 27 (1), pp. 281–291.
36. Bagryantseva O.V., Khotimchenko S.A. Toxicity of inorganic and organic forms of arsenic. *Nutrition issues*, 2021, vol. 90, no. 6, pp. 6–17.
37. Takeno N. *Atlas of Eh-pH diagrams Intercomparison of thermodynamic databases Geological Survey of Japan*. Japan,

- National Institute of Advanced Industrial Science and Technology Research Center for Deep Geological Environments, 2005. 285 p.
38. Smedley P.L., Kinniburgh D.G. A review of the source, behaviour and distribution of arsenic in natural waters. *Appl. Geochemistry*, 2002, vol. 17 (5), pp. 517–568.
 39. Putilina V.S., Galitskaya I.V., Yuganova T.I. *Povedenie myshyaka v pochvakh, gornykh porodakh i podzemnykh vodakh. Transformatsiya, adsorbtsiya/desorbtsiya, migratsiya: analitichesky obzor* [The behavior of arsenic in soils, rocks and groundwater. Transformation, adsorption/desorption, migration: analytical review]. Novosibirsk, State Public Scientific and Technical Library of the Siberian Branch of the Russian Academy of Sciences, IGE RAS, 2011. 249 p.
 40. Li L., Liu H., Li H. Distribution and migration of antimony and other trace elements in a Karstic river system, Southwest China. *Environmental Science and Pollution Research*, 2018, vol. 25, pp. 28061–28074.
 41. Hao C., Gui H., Sheng L., Miao J., Lian H. Contrasting water–rock interaction behaviors of antimony and arsenic in contaminated rivers around an antimony mine, Hunan Province, China. *Geochemistry*, 2021, vol. 81 (2), 125748.
 42. Mok W.M., Wai C.M. Distribution and mobilization of arsenic and antimony species in the Coeur D’Alene River, Idaho. *Environmental Science & Technology*, 1990, vol. 24, pp. 102–108.
 43. Udodov P.A., Solodovnikova R.S., Shvartseva N.M., Rychkova E.S. O svyazi surmy s organicheskim veshchestvom tipa gumusa v prirodnykh vodakh i vodnykh rastvorakh [On the relationship of antimony with organic matter such as humus in natural waters and aqueous solutions]. *Izvestiya Tomskogo politekhnicheskogo instituta im. S.M. Kirova. Seriya: Geologiya*, 1975, vol. 297, pp. 68–73.
 44. Johnston S.G., Bennett W.W., Dorian N., Hockmann K., Karimian N., Burton E.D. Antimony and arsenic speciation, redox-cycling and contrasting mobility in a mining-impacted river system. *Medicine, Chemistry. The Science of the total environment*, 2020, vol. 710, 136354.
 45. Zhang C., Liu T., Yang Z., Wu P., Zhang K., Chen S. Study on antimony and arsenic cycling, transformation and contrasting mobility in river-type reservoir. *Applied Geochemistry*, 2022, vol. 136, 105132.
 46. Lazareva E.V. *Povedenie myshyaka i surmy v protsesse gipergennogo preobrazovaniya otkhodov tsianirovaniya zoloto-arsenopirit-kvarcevykh rud*. Avtoreferat Dis. Kand. nauk [Behavior of arsenic and antimony in the process of hypergenic transformation of cyanidation wastes of gold-arsenopyrite-quartz ores. Cand. Diss. Abstract]. Novosibirsk, 2003. 20 p.

Received: 29 June 2022.

Information about the authors

Gulfiya M. Kazbulatova, research fellow, Ufa Federal Research Centre of the Russian Academy of Sciences.

Sergey V. Michurin, Cand. Sc., leading researcher, Ufa Federal Research Centre of the Russian Academy of Sciences.

Alsu M. Karamova, Cand. Sc., senior researcher, Ufa Federal Research Centre of the Russian Academy of Sciences.

УДК 676.08

ТЕХНОЛОГИЯ ПЕРЕРАБОТКИ ОТХОДОВ ЦЕЛЛЮЛОЗНО-БУМАЖНОЙ ПРОМЫШЛЕННОСТИ В ПОЧВОГРУНТЫ С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ ЕСТЕСТВЕННЫХ ПРИРОДНЫХ ПРОЦЕССОВ

Шатрова Анастасия Сергеевна¹,
shatrova.irk@gmail.com

Богданов Андрей Викторович¹,
bogdanovav@istu.edu

Шкрабо Анна Ивановна¹,
bogdanov.lab@istu.edu

Алексеева Ольга Викторовна²,
aleksvalia@yandex.ru

¹ Иркутский национальный исследовательский технический университет,
Россия, 664074, г. Иркутск, ул. Лермонтова, 83.

² Муниципальное унитарное предприятие
«Канализационные очистные сооружения Байкальского муниципального образования»,
Россия, 665932, г. Байкальск, тер. Промплощадка, 16.

Актуальность. Отходы ОАО «Байкальский ЦБК» несут реальную угрозу возникновения социально-экологической катастрофы озера Байкал и всего Южного Прибайкалья, поэтому особенно остро стоит проблема разработки комплексных решений по ликвидации накопленных лигнинсодержащих отходов. Одним из перспективных направлений переработки такого типа отходов можно считать использование естественных природных процессов, например вымораживание в зимний период времени года вследствие отрицательных температур или самозаращение вследствие естественных процессов сукцессии.

Цель: разработать экологически безопасную технологию переработки коллоидных лигнинсодержащих отходов целлюлозно-бумажной промышленности.

Методы: опытно-промышленные испытания на Солзанской промплощадке ОАО «Байкальский ЦБК» по вымораживанию лигнинсодержащих отходов и получению из них почвогрунтов путем смешивания с добавками; выполнение количественного химического анализа с использованием методов атомно-абсорбционной и атомно-эмиссионной спектроскопии, высокоэффективной жидкостной хроматографии, токсикологического анализа.

Результаты. Опытно-промышленные испытания показали, что после вымораживания происходит разрушение коллоидной структуры лигнинсодержащих осадков с уменьшением объема до 40 %, влажности до 60 %, а также со снижением токсичности с третьего (умеренно опасные) в четвертый (малоопасные) и пятый класс (практически неопасные) опасности отходов в зависимости от его состава. После вымораживания полученный осадок при внесении различных добавок (зола ТЭЦ, осадок канализационных очистных сооружений) можно применять как почвогрунты и удобрения для рекультивации нарушенных земель и выращивания сельскохозяйственных культур. Таким образом, разработана экологически безопасная технология переработки отходов целлюлозно-бумажной промышленности с получением почвогрунтов, которая является малозатратной и не содержит дорогостоящего импортного оборудования.

Ключевые слова:

Почвогрунт, переработка отходов, вымораживание, целлюлозно-бумажная промышленность, ОАО «Байкальский ЦБК», шлам-лигнин.

Введение

Динамика образования отходов в Российской Федерации из года в год показывает стабильный рост их объемов. С 2010 по 2019 гг. совокупная масса отходов, образованных в РФ, удвоилась с 3,7 до 7,8 млрд т, а в 2020 г. в России был установлен рекорд по их образованию – порядка 8 млрд т, из которых всего 3,2 млрд т планируется переработать, при этом остальная масса отходов должна быть захоронена на полигонах [1]. Для достижения целей Стратегии экологической безопасности Российской Федерации на период до 2025 г. [2] должны быть решены такие проблемы, как осуществление рационального природопользования с высоким уровнем переработки образующихся отходов производства и потребления, а также ликвидация уже ранее накопленного ущерба окружающей природной и антропогенной среде.

Также о необходимости ликвидации уже нанесенного вреда с использованием мероприятий, связанных с переработкой накопленных отходов сказано в ФЗ-7 «Об охране окружающей среды» [3].

К настоящему времени в общую массу многотоннажных накопленных отходов, которые не удалось утилизировать, огромный вклад вносит целлюлозно-бумажная промышленность. Только на территории Иркутской области и Республики Бурятия располагается огромное количество (более 50 млн куб. м) накопленных лигнинсодержащих отходов таких предприятий, как ОАО «Байкальский ЦБК» (БЦБК), город Байкальск; группы «ИЛИМ», города Братск и Усть-Илимск Иркутской области и ОАО «Селенгинский ЦБК», город Селенгинск, Республика Бурятия. Накопленные отходы прошлых лет занимают огромные земельные площади, например, только на берегу

Байкала более 150 га занято промплощадкой БЦБК и более 120 га – ОАО «Селенгинский ЦКК» [4].

Наиболее опасными для социально-экологического благополучия региона являются накопленные отходы прошлых лет БЦБК, размещенные на южном берегу озера Байкал (расстояние до озера 200 м) и прилегающие к населенным пунктам, например, к поселку Солзан (расстояние до поселка 50 м) с численностью около 800 человек. Ситуация осложнена тем, что район расположения лигнинсодержащих отходов, хранящихся в картах-накопителях (рис. 1), относится к территории, на которой очень высокий риск возникновения селей и землетрясений, что периодически и происходит.



Рис. 1. Космический снимок Солзанской промплощадки БЦБК, на которой расположены карты-накопители № 1–10

Fig. 1. Satellite image of the Solzanskaya industrial site of the BPPM, on which storage cards No. 1–10 are assigned

Таким образом, в случае возникновения опасной ситуации антропогенного (неверный выбор технологии утилизации отходов) или природного (сели, землетрясения) характера может возникнуть угроза целостности дамб карт-накопителей, вследствие чего произойдет крупномасштабная социально-экологическая катастрофа, в результате которой в озеро Байкал необратимо поступит огромное количество токсичных веществ, которое поступило бы в озеро за 700 лет [4, 5], что крайне недопустимо.

Таким образом, проблема решения вопросов утилизации лигнинсодержащих отходов предприятий ЦБП и рекультивации нарушенных земель имеет острую социально-экологическую значимость.

Использование естественных природных процессов для переработки коллоидных лигнинсодержащих осадков

Анализ мировой литературы, посвящённой решению данной проблемы, показал, что в настоящее время практически отсутствует опыт рекультивации площадей, занятых лигнинсодержащими отходами, подобными осадку шлам-лигнина БЦБК. Отсутствие реальных и эффективных предложений по решению проблем утилизации таких отходов связано с их

сложным физико-химическим составом и свойствами, которые затрудняют технологический процесс их переработки (высокая степень гидрофильности и влажности, низкая степень влагоотдачи, инертность по отношению к различным химическим, физическим и бактериологическим воздействиям).

Ранее предлагаемые методы переработки лигнинсодержащих коллоидных осадков, например омоноличивание с использованием известкового связующего [6], утилизация в плазменно-каталитическом реакторе [7], вермикомпостирование калифорнийскими червями [8], фильтрация через геотрубы или их захоронение с использованием зол ТЭЦ [9], в настоящее время не были применены на практике [4, 10].

Поэтому в настоящее время для всего Байкальского региона очень остро стоит вопрос выбора такой технологии, которая была бы экологически безопасной, а также позволила в полной мере утилизировать накопленные лигнинсодержащие отходы с ликвидацией экологического ущерба, нанесенного БЦБК объектам окружающей среды в период своей прошлой деятельности. При этом необходимо учитывать принципы наилучших доступных технологий (НДТ) при утилизации отходов прошлых лет и ориентироваться на отечественные технологии.

Как было описано выше, наиболее сложной проблемой, которая служит препятствием для переработки таких многотоннажных лигнинсодержащих отходов целлюлозно-бумажной промышленности, как осадки шлам-лигнина, является их сложный химический состав и коллоидная структура, которая содержит в себе до 70 % коллоидно-связанной влаги. Для ее удаления требуются энергоёмкие и затратные методы, такие как механическая деструкция коллоидной структуры осадков с использованием химических реагентов или сжигания, сопровождающиеся вторичным загрязнением объектов окружающей среды.

Для решения этой проблемы необходимы альтернативные варианты, которые бы позволили переработать большие объёмы отходов с использованием экономически малозатратных технологий. На наш взгляд одним из направлений является использование естественных природных процессов, которые происходят вне зависимости от антропогенного воздействия, например вымораживание в зимний период времени года вследствие отрицательных температур или самозаращение вследствие естественных процессов сукцессии.

Стоит отметить, что одним из наиболее перспективных методов снижения объёмов, влажности и токсичности такого рода отходов, как коллоидные осадки шлам-лигнина карт-накопителей БЦБК, является их вымораживание, которое имеет ряд преимуществ:

- низкие затраты на эксплуатацию и потребление энергии, которые идут на обслуживание оборудования и закупку реагентов по сравнению с другими физико-химическими методами переработки коллоидных осадков;
- возможность переработки осадков шлам-лигнина непосредственно в картах-накопителях;

- отсутствие применения различных веществ, необходимых для обезвоживания (коагулянты, флокулянты), и больших объемов воды, которая необходима для их разведения;
- отсутствие вторичного загрязнения объектов окружающей среды веществами, входящими в состав реагентов;
- полный технологический цикл предполагаемой технологии – 2–3 года.

Сама технология естественного вымораживания основана на кристаллизации воды из гидрофильного коллоидного осадка и золя при их замораживании с коагуляцией лигнинных веществ, образующих крупные устойчивые мицеллы [11]. При этом немаловажным фактом является то, что процесс необратим, так как при замораживании разрушается гидратная оболочка лигнинных веществ с переходом влаги из химически связанного в свободное состояние, в результате чего образуются крупные частицы льда и гидрофобный твердый осадок [12]. При таянии свободная влага легко отделяется от осадка, а сам осадок становится фильтрующим слоем, благодаря чему мелкодисперсные частицы удерживаются внутри его слоя [13]. Важно до полного оттаивания и естественного подсыхания не подвергать осадок механическому воздействию и своевременно отводить образующуюся воду, в противном случае в нее будут переходить мелкодисперсные частицы, которые придется дополнительно отделять от воды [14].

Опытно-промышленные испытания предлагаемой технологии

В 2019–2020 гг. проведены успешные промышленные испытания технологии на Солзанской промплощадке ОАО «Байкальский ЦБК», организованные ФГБОУ ВО «ИРНИТУ» совместно с МУП «КОС БМО» (г. Байкальск), на осадке карты № 2, который представляет из себя органическую составляющую – шлам-лигнин. В холодный период времени года (февраль 2019 г.) при помощи экскаватора НМК140W-3 был извлечен лигнинсодержащий осадок (объемом более 60 м³) и размещен на площади около 100 м² вблизи карты № 2. Далее проводилось вымораживание извлеченного осадка в естественных условиях [15], при этом средняя температура окружающего воздуха в феврале 2019 г. составила –17 °С. В 2021 г. проведены успешные опытно-промышленные испытания, организованные ФГУП «ФЭО» (Росатом), на осадке карты № 4, который представляет из себя органично-минеральную составляющую – смесь шлам-лигнина и зол ТЭЦ в соотношении 1:1. Отобранные пробы объемом 0,6 куб м были выморожены в морозильном ларе DEXP CF-D150MA/W при температуре –18 °С, что соответствует природным условиям Южного Прибайкалья в зимнем периоде времени года.

Отбор образцов лигнинсодержащих отходов БЦБК был выполнен в соответствии с ПНД Ф 12.1:2.2.2.3.2-03 «Методические рекомендации. Отбор проб почв, грунтов, донных отложений, илов, осадков сточных вод, шламов промышленных сточных вод, отходов производства и потребления». Для проведения коли-

чественного химического, агрохимического и токсикологического анализа отобранных проб их транспортировали в аккредитованную лабораторию экологического мониторинга природных и техногенных сред ФГБОУ ВО «ИРНИТУ» РОСС RU.0001.518897. Для определения концентраций металлов в образцах использовали метод атомно-абсорбционной спектроскопии на спектрофотометре AA-7000 (SHIMADZU, Япония) и метод атомно-эмиссионной спектроскопии с индуктивно связанной плазмой на приборе ICPE-9000 (SHIMADZU, Япония) по аттестованным методикам ПНД Ф 16.1:2.2:2.3.36-02 «Методика выполнения измерений валового содержания меди, кадмия, цинка, свинца, никеля и марганца в почвах, донных отложениях и осадках сточных вод методом пламенной атомно-абсорбционной спектроскопии» и ПНД Ф 16.1:2.3:3.11-98 «Количественный химический анализ почв. Методика выполнения измерений содержания металлов в твердых объектах методом спектроскопии с индуктивно-связанной плазмой». Для определения концентраций бенз(а)пирена использовался метод высокоэффективной жидкостной хроматографии на приборе Флюорат-02-Панорама и жидкостном хроматографе Люмахром (Люмэкс, Россия) по методике ПНД Ф 16.1:2.2:2.3.3.62-09 «Количественный химический анализ почв. Методика выполнения измерений массовых долей полициклических ароматических углеводородов в почвах, донных отложениях, осадках сточных вод и отходах производства и потребления методом высокоэффективной жидкостной хроматографии». Класс опасности образцов определялся в аккредитованной лаборатории экологического мониторинга природных и техногенных сред ФГБОУ ВО «ИРНИТУ» согласно [16]. В качестве критерия отношения отходов к I–V классам опасности по степени негативного воздействия на окружающую среду была выбрана кратность разведения водной вытяжки из отхода, при которой вредное воздействие на гидробионты отсутствует. В качестве тест-объектов были выбраны дафнии (*Daphnia magna Straus*) и водоросли хлорелла (*Chlorella vulgaris Beijer*). Тестирования проводились по методикам ПНД Ф Т 14.1:2.4.12-06 «Токсикологические методы анализа. Методика определения токсичности питьевых, пресных природных и сточных вод, водных вытяжек из почв, осадков сточных вод и отходов по смертности дафний (*daphnia magna straus*)» и ПНД Ф Т 14.1:2.3:4.10-2004 «Токсикологические методы анализа. Методика определения токсичности питьевых, природных и сточных вод, водных вытяжек из почв, осадков сточных вод и отходов производства и потребления по изменению оптической плотности культуры водоросли хлорелла (*chlorella vulgaris beijer*)». В ходе испытаний анализировалась смертность рачков *Daphnia magna Straus* методом прямого счета их количества в водной вытяжке и фиксировалось снижение численности клеток водорослей *Chlorella vulgaris beijer*, которое зависит от оптической плотности. За окончательный результат принимался класс опасности, выявленный на тест-объекте, проявившем более высокую чувствительность к исследуемому образцу.

Влажность образцов определялась гравиметрическим методом по методике ПНД Ф 16.1:2.2:2.3:3.58-08 «Количественный химический анализ почв. Методика выполнения измерений массовой доли влаги в твердых и жидких отходах производства и потребления, почвах, осадках, шламах, активном иле, донных отложениях гравиметрическим методом».

В ходе опытно-промышленных испытаний было установлено, что вымораживание коллоидных лигнинсодержащих осадков сопровождается деструкцией их коллоидной структуры, вследствие чего фиксируется разделение осадка на три составляющие: пресная деминерализованная вода – до 25 %; минерализованная вода, содержащая растворенные органические и

неорганические вещества, – до 15 % и вымороженный осадок – до 60 %, который из-за разрушения своей коллоидной структуры переходит из пластичной массы в гранулированное состояние. При этом вымораживание с последующим оттаиванием осадка сопровождается уменьшением его объема на 30–40 %, влажности на 20–60 %, снижением токсичности с третьего (умеренно опасные) в четвертый (малоопасные) и пятый класс (практически неопасные) опасности отходов в зависимости от его состава. Несмотря на то, что вымораживание осадка, состоящего из одного шлам-лигнина, протекает значительно эффективней, предлагаемая технология подходит и для осадка, в состав которого входят золы ТЭЦ.

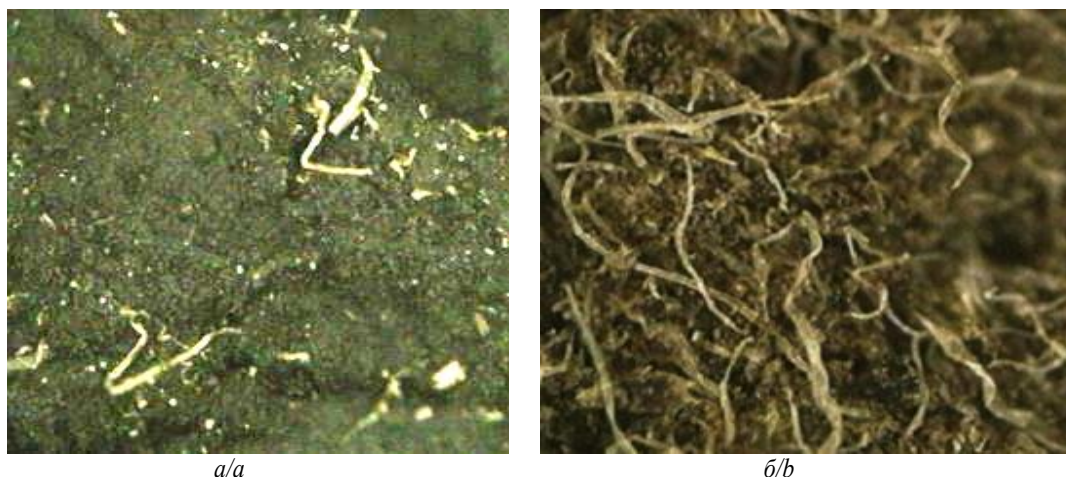


Рис. 2. Лигнинсодержащий осадок до вымораживания (а), после вымораживания и оттаивания (б)

Fig. 2. Sludge-lignin sediment before freezing (a), after freezing and thawing (b)

Как видно из рис. 2, поверхность осадка после вымораживания в значительной степени представлена целлюлозным волокном.

Руководствуясь ГОСТ 54534-2011 «Ресурсосбережение. Осадки сточных вод. Требования при использовании для рекультивации нарушенных земель» и ГОСТ Р 54651-2011 «Удобрения органические на основе осадков сточных вод. Технические условия» лигнинсодержащие осадки после вымораживания можно использовать для рекультивации нарушенных земель или выращивания сельскохозяйственной продукции в качестве почвогрунтов или удобрений. Для улучшения агрохимических свойств вымороженных осадков в качестве добавок были выбраны осадки канализационных очистных сооружений (КОС) и золы ТЭЦ г. Байкальска.

Возможность использования отработанного активного ила КОС в качестве добавки определяется его химическим составом, так как он богат питательными для растений веществами – азот, фосфор, калий и различными микроэлементами, такими как медь, цинк, молибден, бор, кальций, железо, магний и марганец [17]. Содержание большого количества органического вещества в отработанном активном иле можно использовать для увеличения емкости катионного обмена. Внесение осадка сточных вод в почву также улучшает ее водоудерживающую способность, пористость и объемную плотность почвы [18].

В состав зол ТЭЦ также входит большое количество полезных для растений микро- и макрокомпонентов, что делает возможным их применение для улучшения агрохимических свойств почв и почвогрунтов в сельском и лесном хозяйстве, а также для рекультивации земель [19, 20]. Характеристики зольного остатка могут регулировать pH в почве для улучшения качества почвы [21].

В таблице приведено сравнение исходных и вымороженных лигнинсодержащих осадков карты-накопителя № 2, 4 и основных предполагаемых добавок (ил КОС, золы ТЭЦ г. Байкальск) с ГОСТ 54534-2011 и ГОСТ Р 54651-2011.

Как видно из таблицы, после вымораживания лигнинсодержащего осадка карт № 2 и 4 снижается и достигает нормативных значений концентрация бенз(а)пирена (в 40 и 13 раз соответственно) – одного из наиболее токсичных его компонентов, а также наблюдается снижение массовой доли влаги на 60 и 23 % соответственно. Все концентрации валовых форм тяжелых металлов в исследуемых образцах, представленных в таблице, соответствуют гигиеническим нормативам, кроме содержаний меди в золе ТЭЦ – превышение по ОДК для суглинистых и глинистых почв с pH_{KCl} более 5,5 в 2,3 раза. По отношению к фоновым значениям средних содержаний тяжелых металлов в Прибайкалье (Байкальский гео-

экологический полигон) [22] в вымороженных лигнинсодержащих осадках наблюдается превышение меди, цинка и ртути в 1,7, 1,8 и 5,2 раз соответственно. При этом вымороженный осадок карт № 2 и 4 соответствует требованиям ГОСТ 54534-2011

«Ресурсосбережение. Осадки сточных вод. Требования при использовании для рекультивации нарушенных земель» и ГОСТ Р 54651-2011 «Удобрения органические на основе осадков сточных вод. Технические условия».

Таблица. Сравнение исходного и вымороженного осадка карты-накопителя № 4 (смесь золы и шлам-лигнина), № 2 (шлам-лигнин) и добавок с ГОСТ 54534-2011 и ГОСТ Р 54651-2011 по основным токсичным веществам

Table. Comparison of the initial and frozen sediment of storage card no. 4 (ash and lignin sludge mixture), no. 2 (lignin sludge) and additives with SS 54534-2011 and SS R 54651-2011 for the main toxic substances

Показатель, мг/кг Indicator, mg/kg	Осадок/Sediment				Осадок КОС Sludge from sewage treatment plants	Золы ТЭЦ Ash from CHP	Требования/Requirements	
	Исходный Initial	Вымороженный Frozen		ГОСТ 54534-2011 SS 54534-2011			ГОСТ Р 54651-2011 SS R 54651-2011	
		Карта/Storage card						
	№ 2	№ 4	№ 2	№ 4				
Бенз(а)пирен Benz(a)pyrene	0,08	0,107	0,002	0,008	0,003	0,07	не нормируется not standardized	0,02
Кадмий Cadmium	0,1	0,3	менее 0,05 less than 0,05	0,4	менее 0,05 less than 0,05	0,12	30	2,0
Медь Copper	62,3	85	54,1	82	72	307	750	132
Никель Nickel	57,1	21,6	35,2	37,0	28	72	400	80
Свинец Lead	8,4	10,4	5,2	8,3	4	28	500	130
Хром Chromium	44,3	53,0	24,4	50,0	16	178	1000	90
Цинк Zinc	66,9	133	61,0	150	112	124	3500	220
Ртуть Mercury	2,4	0,22	1,7	0,59	0,45	0,17	15	2,1
Массовая доля влаги, % Moisture content, %	93,2	81,9	32,6	59,4	72	42	не нормируется not standardized	не более 70 no more than 70
Класс опасности Hazard class	III	IV	V	IV	IV	IV	IV, V	IV

Также были выполнены исследования на физико-механические, ветеринарно-санитарные и гигиенические показатели вымороженных лигнинсодержащих осадков карт № 2 и 4 в лаборатории экологического мониторинга природных и техногенных сред ФГБОУ ВО «ИРНИТУ» с привлечением ФГБУ «Иркутская межобластная ветеринарная лаборатория» № РОСС RU.0001.21ПО9. Все показатели соответствовали ГОСТ Р 54651-2011 «Удобрения органические на основе осадков сточных вод. Технические условия» кроме наличия единичной личинки синантропной мухи третьей стадии развития в вымороженном осадке карты № 2. Это может быть связано с естественным внесением личинки в осадок, который не был изолирован от объектов окружающей среды в течение нескольких лет (анализировался лигнинсодержащий осадок карты № 2, вымороженный в 2019 г. и сгуртованный возле карт). В лигнинсодержащем осадке карты № 4 личинки синантропной мухи не были обнаружены, так как проводился его анализ непосредственно после вымораживания и оттаивания.

В случае, если полученный почвогрунт не будет востребован как товарная продукция, возможно его использование при рекультивации промплощадки БЦБК в качестве инертного материала для заполнения карт-накопителей с их дальнейшим самозаращением. Проведенные ранее опытно-промышленные испытания по изучению эффективности применения полученного почвогрунта для интенсификации про-

цессов рекультивационной сукцессии показали, что вымороженный шлам-лигнин подвержен самозаращению в естественных условиях, а при добавлении в состав ила КОС происходит увеличение роста и биомассы растений с увеличением их способности к размножению [23].

Технология получения почвогрунтов из лигнинсодержащих отходов с использованием естественных природных процессов

Можно с уверенностью говорить, что технология интенсификации протекания природных процессов: осушение–вымораживание–самозаращение, является эффективным и рациональным способом для утилизации накопленных коллоидных лигнинсодержащих осадков ОАО «Байкальский ЦБК» различного состава.

На рис. 3 приведена укрупненная блок-схема предлагаемого технологического процесса интенсификации естественных природных процессов для получения ценной товарной продукции – почвогрунта.

Для начала проведения работ по вымораживанию необходимо удалить с поверхности карт надшламовую (дождевую и талую) воду. В случае наличия льда более 10 см необходимо проведение работ по его удалению с поверхности карт. Технология вымораживания не применима к осадку, находящемуся в карте № 1, занимающему примерно 1/3 объема различными твердыми промышленными отходами, и карты № 12 с ТКО.



Рис. 3. Укрупненная блок-схема предлагаемого технологического процесса

Fig. 3. Enlarged block diagram of the proposed technological process

Таким образом, процесс вымораживания проводится в зимний период времени при наступлении устойчивых отрицательных температур, ориентировочно в середине ноября. При наличии льда над осадком более 10 см его необходимо удалять ледорубной машиной типа ЛУ-900 и дожидаться промерзания осадка на глубину 10–20 см. После этого проводится механическая уборка снега с поверхности карт вездеходом-амфибией типа Пелец. При промерзании поверхности осадка на глубину 20–30 см для уборки снега может быть использован вездеход типа АРГО. За зимний период времени в районе Южного Прибайкалья в среднем происходит 7–8 сильных снегопадов, с образованием снежного покрова 50 см и более, который необходимо также циклично удалять с поверхности карт.

После наступления положительных температур экскаватор-погрузчик начинает выкапывать траншеи: ширина траншеи 1,5 м, глубина до 2 м, расстояние между траншеями 3 м. В случае низких температур в апреле для ускорения прокладки траншей используется ледорубная машина типа ЛУ-900. Траншеи прокладываются по всей длине карты, с западной стороны прокладывается одна замыкающая траншея с небольшим приямком посередине для откачивания выделившей воды. На этом первый технологический этап заканчивается.

На втором технологическом этапе в течение всего летнего периода времени образующаяся талая вода и атмосферные осадки отводятся на локальные очистные сооружения, имеющиеся на объекте.

На рис. 4 приведена принципиальная блок-схема выборки и размещения осадка на площадках между траншеями.

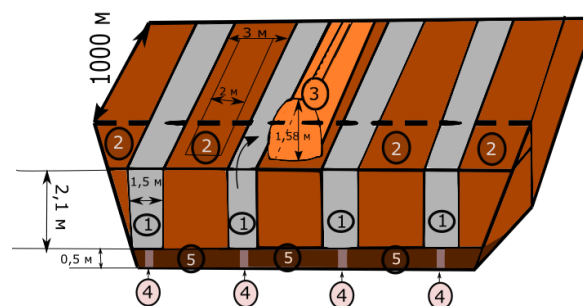


Рис. 4. Принципиальная блок-схема выборки и размещения осадка на площадках между траншеями: ① – траншеи; ② – сектора для складирования осадка, извлеченного из траншей влажностью 95–80 %, ③ – складированный извлеченный из траншей осадок; ④ – перфорация уплотненного слоя осадка влажностью ~80 %; ⑤ – уплотненный осадок, влажностью ~80 %

Fig. 4. Principal block diagram of the sampling and placement of sediment on the sites between trenches: ① – trenches; ② – sectors for storing sludge extracted from trenches with a moisture content of 95–80 %, ③ – stored sludge removed from trenches; ④ – perforation of compacted sludge layer with ~80 % humidity; ⑤ – compacted sediment, moisture content ~80 %

Стоит отметить, что все компоненты для получения почвогрунтов находятся в непосредственной близости от места расположения Солзанской промплощадки ОАО «Байкальский ЦБК» (0,5–3 км), что делает возможным их транспортировку на место получения почвогрунтов без высоких материальных затрат. При этом возможно использование рекультивированной территории промплощадки БЦБК в хозяйственной деятельности, разрешенной в центральной экологической зоне Байкальской природной территории.

Для защиты грунтовых вод от загрязнения компонентами почвогрунтов их хранят на площадках, имеющих монолитные бетонные покрытия либо имеющих в основании глиняную подушку толщиной не менее 20–25 см. Возможно хранение почвогрунтов в мягких резервуарах временного хранения (5–10 м куб). Транспортирование почвогрунтов будет осуществляться всеми видами транспорта в соответствии с правилами перевозки грузов, действующими на данном виде транспорта, обеспечивающими сохранность продукции и тары.

Стоит отметить, что для получения дополнительной прибыли от предлагаемой технологии ликвидации накопленных лигнинсодержащих отходов БЦБК можно использовать рекультивированную и освобожденную от отходов территорию для создания спортивно-рекреационных объектов или тепличного хозяйства с реализацией сельскохозяйственной продукции, выращенной на полученном почвогрунте.

При этом предполагается, что стоимость почвогрунтов, получаемых по предлагаемой технологии, будет значительно ниже – 2,5 тыс. р./т, тогда как стоимость удобрения из гидролизного лигнина (Центр по сапропелю) – 4 тыс. р./т, органических удобрений на основе осадков сточных вод (ООО «РУСЛЕС») – 10 тыс. р./т. Технология не содержит дорогостоящего

импортного оборудования, не является энергозатратной, проста в эксплуатации и безотходна.

Заключение

Масштабные опытно-промышленные испытания, проведенные в период с 2019 по 2021 гг., позволили доказать эффективность использования естественных природных процессов для переработки лигнинсодержащих осадков целлюлозно-бумажной промышленности в ценный товарный продукт – почвогрунт. Вымораживание в холодное время года и последующее оттаивание коллоидных лигнинсодержащих осадков в теплое время года приводит к деструкции их коллоидной структуры, что сопровождается уменьшением их объема на 30–40 %, влажности на 20–60 %, а также снижением токсичности с третьего (умеренно опасные) до пятого класса (практически неопасные) опасности отходов в зависимости от их состава. При этом вымороженный осадок соответствует ГОСТ 54534-2011 и ГОСТ Р 54651-2011 и может быть использован в качестве почвогрунта. Таким образом, разработана и прошла опытно-промышленные испытания экологически-безопасная технология утилизации коллоидных лигнинсодержащих осадков целлюлозно-бумажной промышленности, которая основана на использовании таких естественных природных процессов, как осушение, вымораживание и самозаращение, и позволяет не только утилизировать накопленные отходы прошлых лет, но и получить востребованный товарный продукт – почвогрунт, используемый для рекультивации нарушенных земель или выращивания сельскохозяйственной продукции.

Работа выполнена при финансовой поддержке гранта Президента РФ № МК-2667.2021.1.5.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Государственный доклад «О состоянии и об охране окружающей среды Российской Федерации в 2019 году». – М.: Минприроды России; МГУ им. М.В. Ломоносова, 2020. – 1846 с.
2. Российская Федерация. Указы. О Стратегии экологической безопасности Российской Федерации на период до 2025 года [указ утвержден президентом РФ 19 апр. 2017 г. № 176]. – М.: Собрание законодательства Российской Федерации. 2017. – № 17. – ст. 2546.
3. Российская Федерация. Законы. Об охране окружающей среды: [федер. закон принят Гос. Думой 10 янв. 2002 г.: по состоянию на 31 дек. 2017 г. № 7]. – М.: Собрание законодательства Российской Федерации, 2002. – № 2. – ст. 133.
4. Шатрова А.С. Разработка экологически безопасной технологии переработки накопленных коллоидных осадков шлам-лигнина ОАО «Байкальский ЦБК»: дис. ... канд. техн. наук. – Красноярск, 2018. – 150 с.
5. Шламовые отходы БЦБК могут попасть в Байкал из-за схода селевых потоков с Хамар-Дабана 2012 // Информационное агентство Байкал Инфо. URL: <http://baikal-info.ru/shlamovye-othody-bcbk-mogut-popast-v-baykal-iz-za-shoda-selevyhpotokov-s-hamar-dabana> (дата обращения: 07.08.2019).
6. Технология обезвреживания и рекультивации шлам-лигнина ОАО «Байкальский целлюлозно-бумажный комбинат» / Б.И. Зельберг, Г.Т. Хорошилов, Л.В. Шеметов, А.Б. Зельберг, А.Л. Астанин, А.В. Верхозин, О.Н. Русак // Вестник МАНЭБ. – 2018. – Т. 23. – № 2. – С. 82–85.
7. Пиунова К.Г., Каренин А.Г. Плазменное получение тепловой энергии из сульфатного лигнина // Перспективы развития фундаментальных наук: Сборник научных трудов XII Между-
- народной конференции студентов и молодых ученых. – Томск, 21–24 апреля 2015. – Томск: Национальный исследовательский Томский политехнический университет, 2015. – С. 212–214.
8. Тимофеева С.С. Вермикомпостирование технических отходов и их биологическая активность // Экологическая безопасность Восточно-Сибирского региона: материалы доклада всероссийской научно-практической конференции. – Иркутск, 2003. – С. 17–21.
9. Способ рекультивации карт-шламонакопителей предприятий по производству беленой сульфатной целлюлозы: пат. Рос. Федерация, № 2012148449/05, заявл. 14.11.2012, опубл. 27.08.2014.
10. Bekker Y.L., Orlova I.I. RAS expertise for assurance of consistency of solutions to applied problems and results of fundamental researches // IOP Conference Series: Earth and Environmental Science. – Irkutsk, 8–10 September 2020. – P. 012051. DOI: 10.1088/1755-1315/629/1/012051.
11. Tanaka K., Kimura Y. Theoretical analysis of crystallization by homogeneous nucleation of water droplets // Physical Chemistry Chemical Physics. – 2019. – V. 21. – P. 2410–2418. DOI: 10.1039/c8cp06650g.
12. Parandi E., Pero M., Kiani H. Phase change and crystallization behavior of water in biological systems and innovative freezing processes and methods for evaluating crystallization // Discover Food. – 2022. – № 2. – 6 art. URL: <https://doi.org/10.1007/s44187-021-00004-2> (дата обращения 15.05.2022).
13. Dirksen J., Ring T. Fundamentals of crystallization: kinetic effects on particle size distributions and morphology // Chemical Engineering Science. – 1991. – V. 46 (10). – P. 2389–2427.
14. Zachariassen K.E., Kristiansen E. Ice nucleation and antinucleation in nature // Cryobiology. – 2000. – V. 41 (4). – P. 257–279.

15. Богданов А.В., Федотов К.В., Шатрова А.С. Разработка научно-технических основ для экологически безопасной утилизации накопленных отходов целлюлозно-бумажной промышленности Байкальского региона: монография. – Иркутск: Изд-во: ООО «Глазковская типография», 2020. – 187 с.
16. Российская Федерация. Приказы. Об утверждении порядка подтверждения отнесения отходов I–V классов опасности к конкретному классу опасности [приказ утвержден Министерством природных ресурсов и экологии РФ 08 дек. 2020 г. № 1027]. Официальный интернет-портал правовой информации. 28.12.2020, N 0001202012280022/ URL: www.pravo.gov.ru (дата обращения 15.05.2022).
17. Taylor R., Jones C., Laubscher R. Agricultural fertiliser from brewery effluent – the recovery of nutrients from the biomass of activated sludge and high rate algal pond treatment systems // *Water Supply*. – 2021. – V. 21 (5). – P. 1939–1952.
18. Review paper on beverage agro-industrial wastewater treatment plant bio-sludge for fertilizer potential in Ethiopia / T. Engida, A. Mekonnen, J. Wu, D. Xu, Z. Wu // *Applied Ecology and Environmental Research*. – 2020. – V. 18. – P. 33–57.
19. Potential fly-ash utilization in agriculture: a global review / M. Basu, M. Pande, P.B.S. Bhadoria, S.C. Mahapatra // *Progress in Natural Science*. – 2009. – V. 19. – P. 1173–1186. DOI: 10.1016/j.pnsc.2008.12.006.
20. Feasibility analysis of coal combustion residues as fertilizer for agricultural use / R. Kumar, K. Ajit, S. Muniyan, S. Sharma, C. Arora // *Research journal of chemistry and environment*. – 2021. – V. 24 (4). – P. 35–41.
21. Utilization of bottom ash for degraded soil improvement for sustainable technology / T.P. Nghia, S. Thidphavanh, T. Pimsiri, M. Kreangkrai // *IOP Conference Series: Earth and Environmental Science*. – 2019. – V. 268. – 012043.
22. Геохимия окружающей среды Прибайкалья, Байкальский гео-экологический полигон / В.И. Гребенщикова, Э.Е. Лустенберг, Н.А. Китаев, И.С. Ломоносов. – Новосибирск: Академическое изд-во «ГЕО», 2008. – 234 с.
23. Применение почвогрунта из отходов целлюлозно-бумажной промышленности для интенсификации рекультивационной сукцессии нарушенных земель / А.В. Богданов, А.С. Шатрова, Л.Б. Цырендилькова, А.И. Шкрабо // *Экология и промышленность России*. – 2021. – Т. 25. – № 12. – С. 24–29. DOI: 10.18412/1816-0395-2021-12-24-29.

Поступила 13.07.2022 г.

Информация об авторах

Шатрова А.С., кандидат технических наук, докторант кафедры обогащения полезных ископаемых и инженерной экологии, научный сотрудник лаборатории экологического мониторинга природных и техногенных сред Иркутского национального исследовательского технического университета.

Богданов А.В., доктор технических наук, профессор кафедры обогащения полезных ископаемых и инженерной экологии Иркутского национального исследовательского технического университета.

Шкрабо А.И., научный сотрудник лаборатории экологического мониторинга природных и техногенных сред Иркутского национального исследовательского технического университета.

Алексеева О.В., инженер муниципального унитарного предприятия «Канализационные очистные сооружения Байкальского муниципального образования».

UDC 676.08

TECHNOLOGY FOR PROCESSING WASTE OF THE PULP AND PAPER INDUSTRY INTO SOIL GROUND USING NATURAL PROCESSES

Anastasia S. Shatrova¹,
shatrova.irk@gmail.com

Andrey V. Bogdanov¹,
bogdanovav@istu.edu

Anna I. Shkrabo¹,
bogdanov.lab@istu.edu

Olga V. Alekseeva²,
aleksvalia@yandex.ru

¹ Irkutsk National Research Technical University,
83, Lermontov street, Irkutsk, 664074, Russia.

² Sewer treatment facilities of the Baikal municipality,
16, ter. Industrial site, Baikalsk, 665932, Russia.

The relevance. The waste of Baikal Pulp and Paper Mill causes a real danger of a social and environmental disaster for Lake Baikal and the entire Southern Baikal region, therefore, the problem of developing integrated solutions for dumping the accumulation of lignin-containing waste is especially acute. One of the promising areas for processing this type of waste is the use of natural processes, for example, freezing in winter, temperature detection or self-overgrowth of the occurrence of natural succession.

The main aim of the research is to develop an environmentally friendly technology for processing colloidal lignin-containing waste from the pulp and paper industry.

Methods: pilot tests at the Solzan industrial site of Baikal Pulp and Paper Mill for freezing lignin-containing wastes and obtaining soils from them by mixing with additives; performing quantitative chemical analysis using the methods of atomic absorption and atomic emission spectrometry, high performance liquid chromatography, toxicological analysis.

Results. Pilot tests have shown that after freezing, the colloidal structure of lignin-containing sediments is destroyed with a decrease in volume up to 40 %, humidity up to 60 %, and also with a decrease in toxicity – from the third (moderately hazardous) to the fourth (low hazardous) and fifth class (practically non-hazardous) of hazard of the waste depending on its composition. After freezing, the resulting sludge with the introduction of various additives (CHP ash, sewage treatment plant sludge) can be used as soil ground and fertilizers for reclamation of disturbed lands and crops. Thus, an environmentally friendly technology was developed for processing waste from the pulp and paper industry to obtain soil ground, which is low-energy and does not contain expensive imported equipment.

Key words:

Soil ground, waste processing, freezing, pulp and paper industry, Baikal Pulp and Paper Mill, lignin sludge.

This work was supported by the President of the Russian Federation grant No. MK-2667.2021.1.5.

REFERENCES

- Gosudarstvenny doklad «O sostoyanii i ob okhrane okruzhayushchey sredy Rossiyskoy Federatsii v 2019 godu» [On the state and protection of the environment of the Russian Federation in 2019]. Moscow, Ministry of Natural Resources of Russia, Moscow State University named after M.V. Lomonosov, 2020. 1846 p.
- Rossiyskaya Federatsiya. Ukazy. O Strategii ekologicheskoy bezopasnosti Rossiyskoy Federatsii na period do 2025 goda [Russian Federation. Decrees. On the Strategy for Environmental Security of the Russian Federation for the period up to 2025. Decree approved by the President of the Russian Federation on April 19. 2017 N 176]. Moscow, Collection of legislation of the Russian Federation, 2017. No. 17, 2546 art.
- Rossiyskaya Federatsiya. Zakony. Ob okhrane okruzhayushchey sredy [Russian Federation. Laws. On environmental protection. Federal law: adopted by the State. Duma 10 Jan. 2002: as of 31 Dec. 2017 N 7]. Moscow, Collection of legislation of the Russian Federation, 2002. No. 2, 133 art.
- Shatrova A.S. Razrabotka ekologicheskoy bezopasnoy tekhnologii pererabotki nakoplenykh kolloidnykh osadkov shlam-lignina OAO «Baykalskiy CBK». Dis. Kand. nauk [Development of an environmentally safe technology for the processing of accumulated colloidal sediments of sludge-lignin «Baikal Pulp and Paper Mill». Cand. Diss.]. Krasnoyarsk, 2018. 150 p.
- Shlamovye otkhody BCBK mogut popast v Baykal iz-za skhoda selevykh potokov s Khamar-Dabana [Sludge waste from BPPM may enter Baikal due to mudflows from Khamar-Daban]. 2012. *Baikal Info News Agency*. Available at: <http://baikal-info.ru/shlamovye-othody-bcbk-mogut-popast-v-baykal-iz-zashoda-selevykh-potokov-s-hamar-dabana> (accessed 8 July 2019).
- Zelberg B.I., Khoroshilov G.T., Shemetov L.V., Zelberg A.B., Astanin A.L., Verhozin A.V., Rusak O.N. Tekhnologiya obezvrezhivaniya i rekultivatsii shlam-lignina OAO «Baykalskiy tsellyulozno-bumazhny kombinat» [Technology of neutralization and reclamation of sludge-lignin JSC «Baikal Pulp and Paper Mill»]. *Vestnik MANE*, 2018, vol. 23, no. 2, pp. 82–85.
- Pionova K.G., Karengin A.G. Plazmennoe poluchenie teplovooy energii iz sulfatnogo lignina [Plasma production of thermal energy from sulfate lignin]. *Perspektivy razvitiya fundamentalnykh nauk. Sbornik nauchnykh trudov XII Mezhdunarodnoy konferentsii studentov i molodykh uchenykh* [Prospects for the development of fundamental sciences. Collection of scientific papers of the XII International Conference of Students and Young Scientists]. Tomsk, April 21–24, 2015. Tomsk, National Research Tomsk Polytechnic University Publ., 2015. pp. 212–214.

8. Timofeeva S.S. Vermikompostirovanie tekhnicheskikh otkhodov i ikh biologicheskaya aktivnost [Vermicomposting of technical waste and their biological activity]. *Ekologicheskaya bezopasnost Vostochno-Sibirskogo regiona. Materialy doklada vserossiyskoy nauchno-prakticheskoy konferentsii* [Ecological safety of the East Siberian region. Materials of reports all-Russian scientific-practical conference]. Irkutsk, 2003. pp. 17–21.
9. Suturin A.N., Goncharov A.I., Minaev V.V., Kulikova N.N., Dambinov Y.A. *Sposob rekultivatsii kart-shlamonakopiteley predpriyatiy po proizvodstvu belenoy sulfatnoy tsellyulozy* [Method for reclamation of sludge accumulators of enterprises for the production of bleached sulphate pulp]. Patent RF, no. 2012148449/05, 2014.
10. Bekker Y.L., Orlova I.I. RAS expertise for assurance of consistency of solutions to applied problems and results of fundamental researches. *IOP Conference Series: Earth and Environmental Science*. Irkutsk, 8–10 September 2020. Irkutsk, 2021. pp. 012051. DOI: 10.1088/1755-1315/629/1/012051.
11. Tanaka K., Kimura, Y. Theoretical analysis of crystallization by homogeneous nucleation of water droplets. *Physical Chemistry Chemical Physics*, 2019, vol. 21, pp. 2410–2418. DOI: 10.1039/c8cp06650g.
12. Parandi E., Pero M., Kiani H. Phase change and crystallization behavior of water in biological systems and innovative freezing processes and methods for evaluating crystallization. *Discover Food*, 2022, no. 2, 6 art. Available at: <https://doi.org/10.1007/s44187-021-00004-2> (accessed 15 May 2022).
13. Dirksen J., Ring T. Fundamentals of crystallization: kinetic effects on particle size distributions and morphology. *Chemical Engineering Science*, 1991, vol. 46 (10), pp. 2389–2427.
14. Zachariassen K.E., Kristiansen E. Ice nucleation and antinucleation in nature. *Cryobiology*, 2000, vol. 41 (4), pp. 257–279.
15. Bogdanov A.V., Fedotov K.V., Shatrova A.S. *Razrabotka nauchno-tekhnicheskikh osnov dlya ekologicheskoi bezopasnoy utilizatsii nakoplenykh otkhodov tsellyulozno-bumazhnoy promyshlennosti Baykalskogo regiona*. Monografiya [Development of scientific and technical foundations for environmentally safe disposal of accumulated waste from the pulp and paper industry of the Baikal region. Monograph]. Irkutsk, Glazkov Printing House LLC, 2020. 187 p.
16. Rossiyskaya Federatsiya. Prikazy. Ob utverzhdenii poryadka podtverzheniya otneseniya otkhodov I–V klassov opasnosti k konkretnomu klassu opasnosti [Russian Federation. Orders. On approval of the procedure for confirming the classification of wastes of hazard classes I–V to a specific hazard class. Order approved by the Ministry of Natural Resources and Ecology of the Russian Federation on 08 Dec. 2020 N 1027]. 12.28.2020, N 0001202012280022. *Official Internet portal of legal information*. Available at: www.pravo.gov.ru (accessed 15 May 2022).
17. Taylor R., Jones S., Laubscher R. Agricultural fertiliser from brewery effluent – the recovery of nutrients from the biomass of activated sludge and high rate algal pond treatment systems. *Water Supply*, 2021, vol. 21 (5), pp. 1939–1952.
18. Engida T., Mekonnen A., Wu J., Xu D., Wu Z. Review paper on beverage agro-industrial wastewater treatment plant bio-sludge for fertilizer potential in Ethiopia. *Applied Ecology and Environmental Research*, 2020, vol. 18, pp. 33–57.
19. Basu M., Pande M., Bhadoria P.B.S., Mahapatra S.C. Potential fly-ash utilization in agriculture: a global review. *Progress in Natural Science*, 2009, vol. 19, pp. 1173–1186. DOI: 10.1016/j.pnsc.2008.12.006.
20. Kumar R., Ajit K., Muniyan S., Sharma S., Arora C. Feasibility analysis of coal combustion residues as fertilizer for agricultural use. *Research journal of chemistry and environment*, 2021, vol. 24 (4), pp. 35–41.
21. Nghia T.P., Thidphavan S., Pimsiri T., Kreangkrai M. Utilization of bottom ash for degraded soil improvement for sustainable technology. *IOP Conference Series: Earth and Environmental Science*, 2019, vol. 268, 012043.
22. Grebenshchikova V.I., Lustenberg E.E., Kitaev N.A., Lomonosov I.S. *Geokhimiya okruzhayushchey sredy Pribaykalya, Baykalskiy geokologicheskii poligon* [Geochemistry of the environment of the Baikal region, Baikal geoeological polygon]. Novosibirsk, GEO Academic Publ. house, 2008. 234 p.
23. Bogdanov A.V., Shatrova A.S., Tsyrendylykova L.B., Shkrabo A.I. Use of soil from the waste of the pulp and paper industry for the intensification of reclamation succession of disturbed lands. *Ecology and Industry of Russia*, 2021, vol. 25, no. 1, pp. 24–29. In Rus. DOI: 10.18412/1816-0395-2021-12-24-29.

Received: 13 July 2022.

Information about the authors

Anastasia S. Shatrova, Cand. Sc., research assistant, Irkutsk National Research Technical University.

Andrey V. Bogdanov, Dr. Sc., professor, Irkutsk National Research Technical University.

Anna I. Shkrabo, research assistant, Irkutsk National Research Technical University.

Olga V. Alekseeva, engineer, Sewer treatment facilities of the Baikal municipality.

УДК 004.8.622.24

НЕЙРОСЕТЕВОЕ ПРОГНОЗИРОВАНИЕ РЕОЛОГИЧЕСКИХ ПАРАМЕТРОВ БУРОВОГО РАСТВОРА

Третьяк Александр Яковлевич¹,
13050465@mail.ru

Кузнецова Алла Витальевна¹,
alvitkuz@yandex.ru

Борисов Константин Андреевич¹,
13020165@mail.ru

Карельская Екатерина Витальевна¹,
karelskaya_1992@mail.ru

¹ Южно-Российский государственный политехнический университет (НПИ) им. М.И. Платова,
Россия, 346428, г. Новочеркасск, ул. Просвещения, 132.

Актуальность исследования обусловлена тем, что дифференциальные прихваты являются одной из самых сложных аварий во всей технологической цепочке строительства нефтяных и газовых скважин. Качественный и правильно подобранный буровой раствор с оптимальной для конкретных условий бурения реологией является одним из определяющих факторов предупреждения дифференциальных прихватов.

Цель: разработка нейросетевой реологической модели бурового раствора на основе его компонентного состава и результатов периодических замеров выходных параметров промывочной жидкости. С помощью нейронной сети можно достаточно точно и быстро прогнозировать значения реологических свойств раствора, которые оказывают существенное влияние на возникновение и предотвращение дифференциальных прихватов.

Объектом исследования являются нейросетевые реологические модели бурового раствора, буровые растворы, состав которых оказывает влияние на реологические свойства и на возможность предотвращения дифференциальных прихватов буровой колонны в процессе сооружения скважины.

Методы: нейросетевая модель различающихся по числу и составу входных параметров буровых растворов.

Результаты. Дано описание процесса обучения трех нейронных сетей на основе оперативных данных, получаемых на буровых для замера параметров бурового раствора. Предложено шесть типов буровых растворов, которые являются оптимальными для конкретных геологических условий. Введение в состав бурового раствора с высокой смазывающей способностью нанодисперсной меди и алюмината калия способствует уменьшению коэффициента трения, повышению ингибирующей способности раствора, уменьшению водоотдачи и, как результат, резкому уменьшению дифференциальных прихватов в процессе сооружения скважин на углеводородное сырье.

Ключевые слова:

Дифференциальный прихват колонны буровых труб, прогноз прихватов, буровой наноструктурированный раствор, искусственные нейронные сети, нейросетевая модель бурового раствора.

Введение

Сооружение скважины – трудоемкий инженерно-технологический процесс, нередко осложняющийся различного рода авариями, которые снижают производительность труда и повышают себестоимость буровых работ. Известно, что порядка 30 % всех осложнений приходится на дифференциальные прихваты. Дифференциальный прихват происходит в интервалах проницаемых пластов – песчаников, алевроитов, мела – при значительном проникновении компонентов бурового раствора в поровые пространства стенок скважины. Одной из предпосылок возникновения дифференциального прихвата является использование глинистого раствора с повышенной фильтрацией и образованием толстой корки с плохими смазывающими свойствами. Находящаяся в неподвижном состоянии буровая колонна прижимается к стенке скважины и вдавливаются в глинистую корку. Трение между колонной и породой пласта возрастает настолько, что сдвинуть её с места, не прилагая специальных действий, становится невозможно. При

этом зачастую имеет место непрекращающаяся циркуляция бурового раствора, если прихвату не предшествовало поглощение.

При исследовании факторов, влияющих на величину силы дифференциального прихвата бурового инструмента, установлено, что существенную роль в его предотвращении играет грамотный выбор компонентного состава бурового раствора в соответствующих геологических условиях. Реология бурового раствора является определяющим фактором для повышения эффективности очистки скважины и оптимизации производительности бурения [1, 2]. Реологические параметры бурового раствора оказывают непосредственное влияние на период образования, толщину, проницаемость и другие характеристики глинистой корки, а значит, на скорость возникновения прихвата, площадь контакта и силу сцепления бурового инструмента с фильтрационной коркой.

Идеальной может считаться тонкая, твердая фильтрационная корка, образовавшаяся только из твердой фазы бурового раствора. И чем быстрее корка станет

непроницаемой, тем меньший объем фильтрата попадет в пласт. Эффективная фильтровальная корка становится непроницаемой из-за тонких отложений твердых частиц и останавливает дальнейшее поступление фильтрата в глинистую породу, несмотря на превышение баланса (рис. 1, а). Если в буровом растворе накапливаются крупные твердые частицы, такие как песок, фильтрующие свойства бурового раствора ухудшаются.

При этом накапливается более толстый осадок твердых частиц, и корка никогда не может стать полностью непроницаемой. В этом случае гидростатическое давление заставит фильтрат течь в поровые пространства породы, и проницаемому пласту будет оказываться мало поддержки с точки зрения укрепления стенок скважины. Крупные твердые частицы увеличивают толщину фильтрационной корки (рис. 1, б).

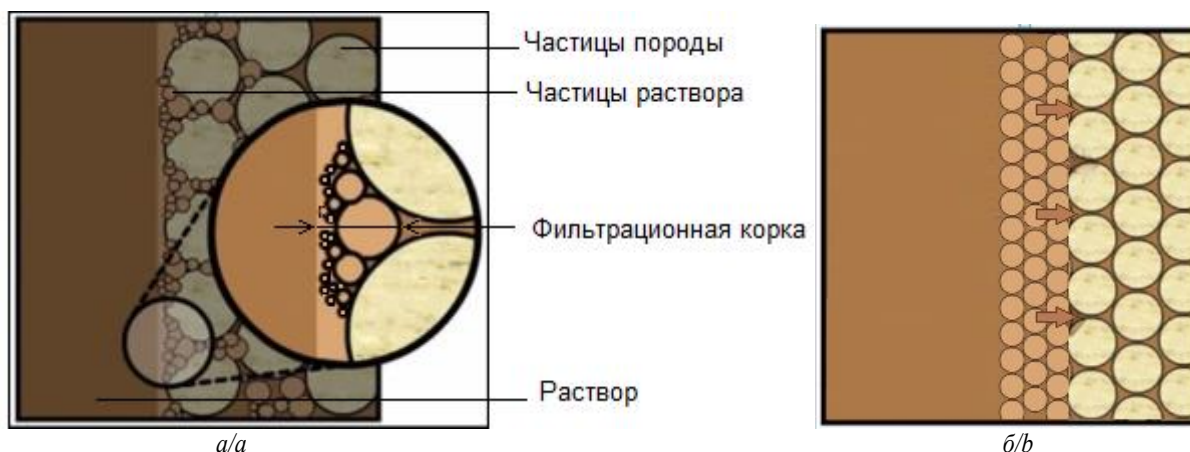


Рис. 1. Образование тонкой (а) и толстой (б) фильтрационной корки
Fig. 1. Thin (a) and thick (b) filter cake formation

Мониторинг состава бурового раствора в процессе проводки скважины

Уменьшение контактной площади, снижение коэффициента трения между колонной и образующейся коркой, повышение её качества можно достичь за счет подбора свойств промывочной жидкости. Поэтому разработка рационального состава бурового раствора при проводке скважин в глинистых отложениях с геологического разреза скважин является актуальной научно-технической задачей, требующей эффективного решения.

Непрерывный и качественный мониторинг реологических свойств бурового раствора в период проведения буровых работ оказывает существенное влияние на эффективность бурения. Для повышения показателей производительности необходимы непрерывные измерения свойств бурового раствора, которые выполняются на буровой, оснащенной необходимыми лабораторными инструментами. Обычная полевая практика включает только измерение плотности и вязкости бурового раствора с периодичностью 15–20 минут. Полное же исследование бурового раствора для оценки его реологии проводится два раза в день, требуя соответствующего оборудования, значительного времени и необходимых реагентов. И, к тому же, подвержено человеческим ошибкам. Поэтому автоматизация этого процесса с использованием алгоритмов прогнозирования необходима буровой промышленности для преодоления проблем измерения реологии с более высокой частотой.

В последнее десятилетие прогнозирование свойств бурового раствора всё больше основывается на методах и технологиях искусственного интеллекта в про-

тивовес использованию стандартных моделей бурового раствора, таких как модель Бингама, модель степенного закона О. де Ваэля, Гершеля–Бакли, Чеушнера [3], применяющихся в статистических лабораторных тестах. Существенное место в новых исследованиях занимают искусственные нейронные сети (ИНС) [4–11]. Обученная на качественных наборах исторических данных нейронная сеть способна предсказывать трудно определяемые реологические параметры в считанные секунды и с приемлемой точностью.

Предлагаемые нейросетевые модели различаются по числу и составу входных и выходных параметров, по типам буровых растворов – на водной или нефтяной основе, по типам и архитектурам используемых нейронных сетей. Но в качестве исходных характеристик в подавляющем большинстве работ [4–6, 11–13] используются: плотность бурового раствора (Mud Density, MD), вязкость по воронке (Marsh Funnels Viscosity, FV), содержание твёрдой фазы, температура бурового раствора, которые представляют собой легкодоступные полевые данные. А выходными, искомыми параметрами моделей чаще всего выступают: пластическая вязкость (Plastic Viscosity, PV), предел текучести (Yield Point, YP) и эффективная, или кажущаяся, вязкость (Apparent Viscosity, AV). Пластическая вязкость указывает на количество твёрдых частиц, присутствующих в буровом растворе. Их неконтролируемое увеличение может привести ко многим критическим проблемам при бурении. Предел текучести характеризует силу притяжения между коллоидными частицами в буровом растворе. Соотношение YP/PV и последующая оптимизация YP существенно влияет на эффективность очистки скважины и предотвращение возникающих проблем [14]. Чем выше значения AV,

тем лучше вымывается шлам. Однако существенный рост кажущейся вязкости чреват увеличением гидравлических сопротивлений при течении бурового раствора в кольцевом пространстве, а значит, и увеличением дифференциального давления.

В работе [6] описан процесс обучения трёх нейронных сетей для определения PV, YP и AV на основе оперативных данных о балансе и вязкости бурового раствора, измеряемых каждые 15–20 минут с помощью воронки Марша. При этом авторы предлагают после обучения воспользоваться не самой нейронной сетью с одним скрытым слоем, а эмпирическими уравнениями, в состав которых входят значения весовых коэффициентов и смещений нейронов обученной сети. Похожие работы [5, 11] описывают процесс нейросетевого прогнозирования расширенного набора реологических параметров, включающего индекс консистенции бурового раствора и индекс несущей способности. Прогноз осуществляется на основе MD, FV и проценте твёрдого вещества, выходящего из скважины бурового раствора. В [4] авторы рекомендуют определять пластическую вязкость, предел текучести, индекс поведения потока и кажущуюся вязкость на основе массы бурового раствора и вязкости на воронке Марша, но предлагают исключить из входных данных четырёх нейросетевых моделей процентное содержание твёрдого вещества, поскольку, по их мнению, его влияние на искомые реологические параметры несущественно, а время определения достаточно затратное. В [13] показано, что именно нейросетевая модель наилучшим образом осуществляет прогнозирование пластической вязкости, статического напряжения сдвига СНС 1 и СНС 10 по сравнению с другими методами машинного обучения, такими как многомерный линейный регрессионный анализ, дерево решений, метод опорных векторов и др.

Подводя итоги обзора в области нейросетевого моделирования реологии буровых растворов, можно сделать вывод о том, что развитие этого направления может идти по пути усложнения модели и учета в качестве входных параметров не только данных полевых измерений, но и компонентного состава промысловой жидкости. Формализовать влияние того или иного компонента на искомые реологические характеристики стандартными статистическими методами не представляется возможным. А ИНС могут улучшить качество прогноза реологии буровых растворов в силу своей природной способности улавливать и учитывать нелинейные взаимосвязи между входными и выходными параметрами.

Многокомпонентные высоко ингибирующие буровые растворы

Проведенные кафедрой нефтегазовых техники и технологий ЮРГПУ (НПИ) лабораторные испытания позволили оценить реологические свойства шести разновидностей бурового раствора, отличающихся составом и исходным объемом входящих в него компонентов (табл. 1). Каждый из шести предлагаемых буровых растворов разработан для условий юга Крас-

нодарского края, где разрез представлен вязкими, неустойчивыми, пучащими глинами. Наиболее эффективным оказался высокатионно-ингибированный буровой раствор [15].

При достаточно широком процентом диапазоне варьирования химреагентами мы попытались, используя нейросетевое моделирование, прогнозировать оптимальные реологические параметры бурового раствора с целью существенного уменьшения частоты дифференциальных прихватов, имеющих место в этом районе и достигающих 30 % от общего времени на сооружение скважин.

Химический состав и объемы базовых компонентов представленных растворов имеют ряд различий, но основные свойства растворов говорят об их высоком качестве и способности формировать тонкую и прочную корку.

Таблица 1. Входные и выходные данные нейросетевой модели

Table 1. Neural network model input and output data

Название раствора, номер патента Drilling mud name, patent number	Параметры/Data	
	Входные Input	Выходные Output
Высокоингибированный, инвертный буровой раствор Highly inhibited, invert drilling mud [16]	Массовое содержание компонентов бурового раствора Drilling mud components weight content	Плотность Density
Высокоингибированный буровой раствор Highly inhibited drilling mud [17]		Вязкость/Viscosity
Буровой раствор Drilling mud [18]		Водоотдача Filtration
Наноструктурированный, высокоингибированный буровой раствор Nanostructured, highly inhibited drilling mud [19]		СНС 1 минута Gel strength 1 min
Высококатионно-ингибированный буровой раствор Highly cation-inhibited drilling mud [15]		СНС 10 минут Gel strength 10 min
Эмульсионно-ингибированный, реверсивно-инвертный буровой раствор Emulsion-inhibited, reversible-invert drilling mud [20]		pH
		Липкость/Stickability
		Толщина корки Filter cake thickness
		Содержание песка Mud sand content

Минимальное количество дифференциальных прихватов было зарегистрировано при бурении на высокоингибированном наноструктурированном буровом растворе с высокой степенью щелочности в осложненных условиях залегания глинистых почв месторождений Краснодарского края [19].

Нейросетевая модель структурированного бурового раствора

Для эффективного расхода дорогостоящих ингредиентов необходимо сформировать совокупную модель, способную оценивать влияние состава и процентного соотношения компонентов промысловой жидкости. Применение результатов моделирования напрямую связано с прогнозированием возникновения осложнений при бурении и, в частности, с прогнозированием дифференциальных прихватов.

Отсутствие априорного формального описания природы и характера зависимостей искомых реологических свойств от качества и количества исходных ингредиентов обуславливает выбор нейросетевых технологий для прогнозирования параметров бурового раствора, т. е. решения задачи множественной регрессии. Нейросетевая реализация регрессионной модели имеет преимущество перед классической множественной регрессией в способности воссоздания регрессионной функции с большим количеством входных переменных («проклятия размерности») и лучшей аппроксимацией существенно нелинейных зависимостей между выходным значением и входными параметрами.

ИНС со сложной многослойной архитектурой (рис. 2) способна вычислять сразу несколько выходных значений по одному и тому же набору исходных данных:

$$p_{reol_k} = F_k(c_1, \dots, c_i, \dots, c_N, p_{mes_1}, \dots, p_{mes_j}, \dots, p_{mes_M}),$$

где p_{reol_k} – k -й выходной реологический параметр, $k=1..K$; k – количество искомых выходных параметров раствора; c_i – процентное содержание i -го компонента, $i=1..N$, N – количество используемых компонентов раствора; p_{mes_j} – измеренная характеристика бурового раствора, $j=1..M$, M – число измеренных характеристик раствора.

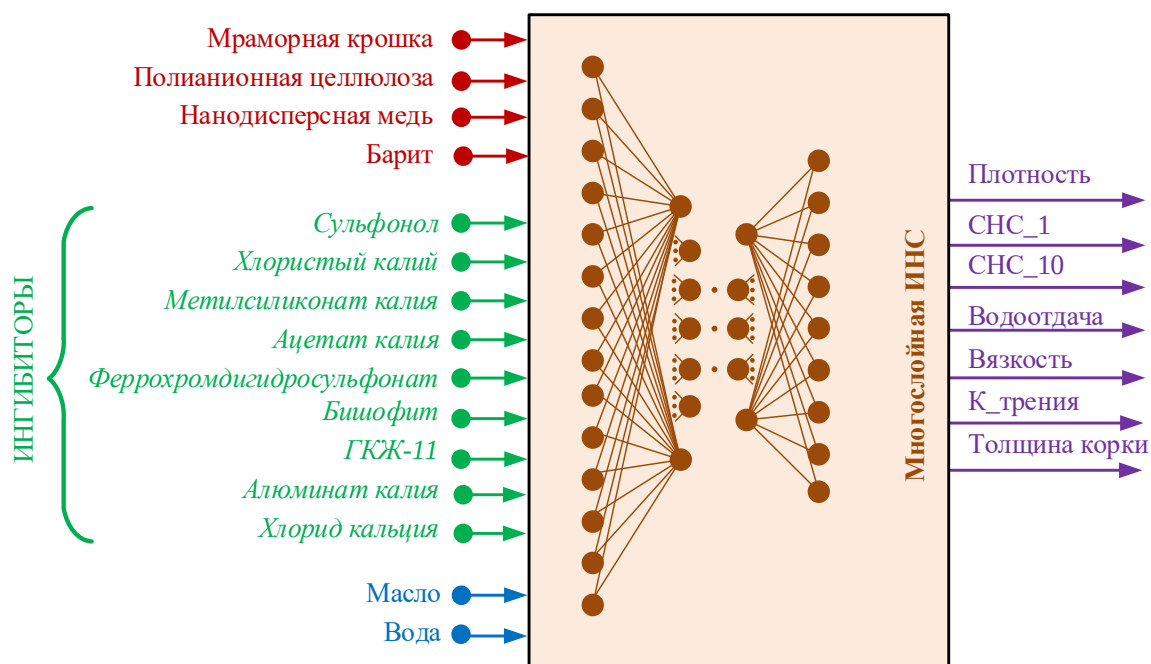


Рис. 2. Многослойная искусственная нейронная сеть для вычисления совокупности реологических параметров
Fig. 2. Multilayer artificial neural network for rheological parameters complex calculation

Однако разделение одной, но достаточно сложной, ИНС на совокупность из K более простых по архитектуре сетей, объединенных в общую систему (ансамбль), позволяет решать задачу вычисления значения функции многих переменных на более качественном уровне. Отдельная ИНС, входящая в ансамбль, теоретически обладает более высокой прогнозирующей способностью, и для её обучения достаточно небольшого объёма данных по сравнению с объёмами данных, требующимися для одной универсальной сети со сложной структурой [21, 22].

Учитывая вышесказанное и высокую сложность синергетического взаимодействия компонентов бурового раствора, выбор типа модели был сделан в пользу ансамбля многослойных нейронных сетей типа перцептрон (Many Layers Perceptron, MLP). Применение универсальных многослойных сетей прямого распространения сигнала для решения слабо формализуемых задач в области отечественной и зарубежной нефте- и газодобычи хорошо зарекомендовало себя не только в области диагностирования реологии буровых растворов, но и в части прогнозирования

различных аварийных и предаварийных ситуаций [23–25].

На рис. 3, 4 представлены ансамбль и соответствующие архитектуры ИНС перцептронного комплекса, отображающие выявленные зависимости между компонентным составом и свойствами бурового раствора.

Входные параметры модели представляют собой нормированные к диапазону $[-1..1]$ процентные соотношения компонентов бурового раствора (№ 4, табл. 1) на водно-масляной основе. Выходные параметры модели – это вышеописанные свойства бурового раствора, оказывающие наибольшее влияние на процесс возникновения дифференциальных прихватов. В состав ансамбля входит шесть нейронных сетей с одним или двумя скрытыми слоями, нейроны которых имеют нелинейную функцию активации – гиперболический тангенс (tansig); выходным слоем из 1, 2 или 3-х нейронов с линейной функцией активации (purelin). Используемый алгоритм обучения сети – быстро сходящийся алгоритм Левенберга–Маркварта (trainlm). Реализация и исследование моделей проведено в среде Neural Networks Toolbox системы MatLab [26].

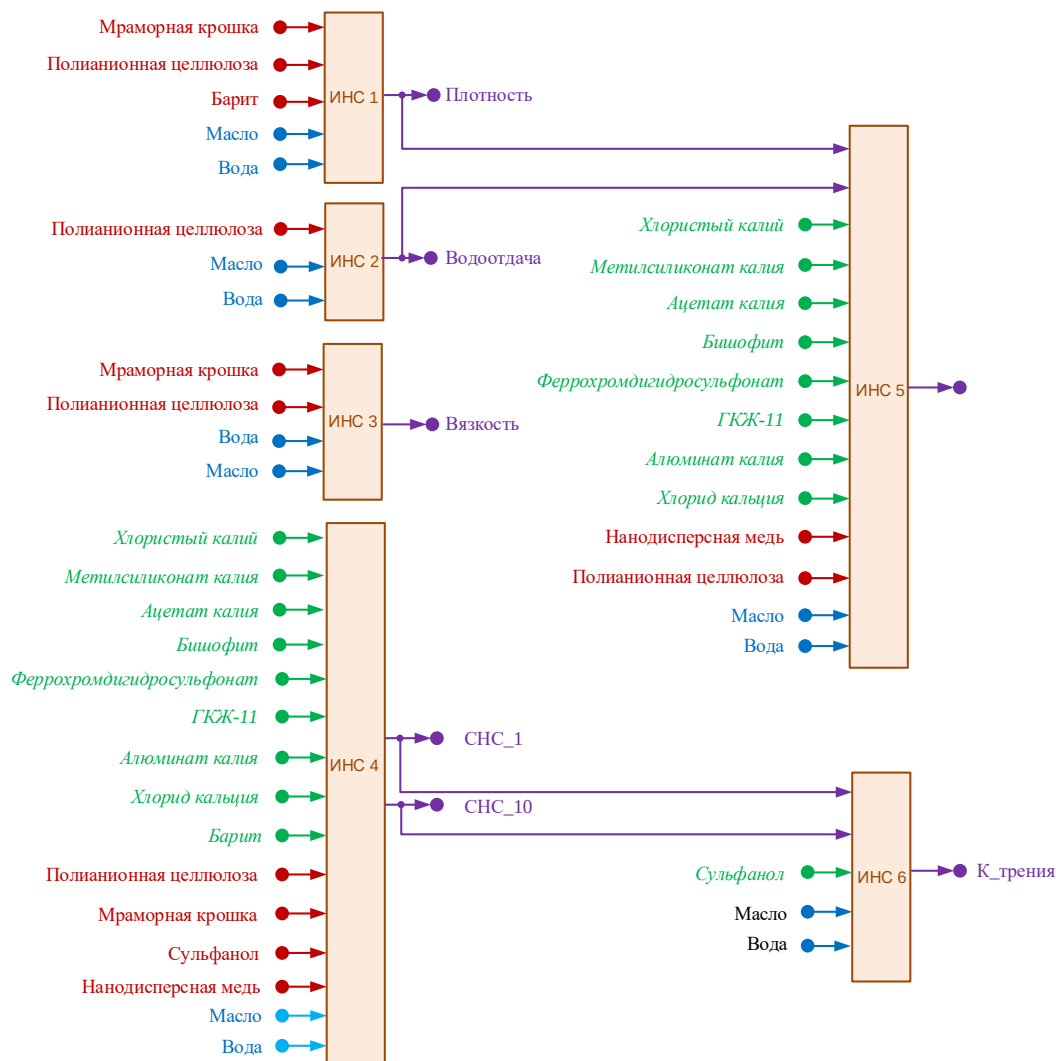
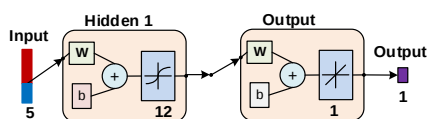


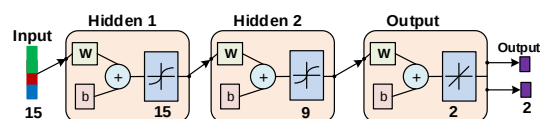
Рис. 3. Нейросетевая ансамблевая модель реологии бурового раствора

Fig. 3. Neural network ensemble model of drilling mud rheology

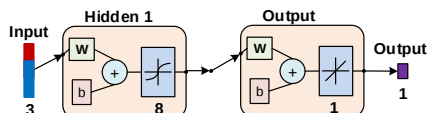
ИНС_1 для вычисления плотности



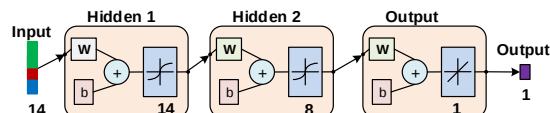
ИНС_4 для вычисления CHC_1, CHC_10



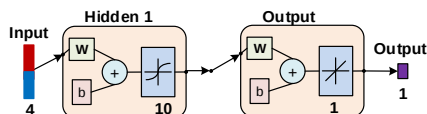
ИНС_2 для вычисления водоотдачи



ИНС_5 для вычисления толщины корки



ИНС_3 для вычисления вязкости



ИНС_6 для вычисления коэффициента трения

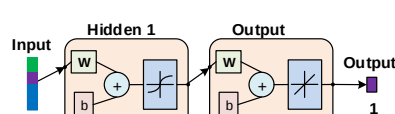


Рис. 4. Архитектуры перцептронов нейросетевого ансамбля

Fig. 4. Neural network ensemble perceptron's architectures

Экспериментальным путём по итогам обучения, а также на основе анализа характера процесса обучения было выбрано по 6 предположительно наиболее эффективных сетей различных структур для каждого из шести выходных параметров.

Формирование обучающего множества

Для построения нелинейной модели бурового раствора на основе методов машинного обучения потребовался достаточно большой объём исходных данных – так называемая обучающая выборка, или обучающее множество. Под термином «достаточно большой» следует понимать, что уже для создания простой (линейной) регрессионной модели, включающей 10 факторов, может потребоваться от одной до двух сотен примеров [27]. В случае построения нелинейных моделей машинного обучения на базе ИНС часто используется эмпирическое «правило 2–5», согласно которому число экземпляров обучающей выборки должно в 2–5 раз превышать количество межнейронных связей MLP для эффективного формирования её моделирующих способностей. Если это соотношение будет близко к единице, то нейронная сеть в основном просто запомнит обучающую выборку и не сможет извлечь из неё закономерности. Например, для нейронной сети с пятью входами, двумя выходами и одним скрытым слоем из десяти нейронов (архитектура «5–10–2») количество межнейронных связей будет равно $10 \cdot 5 + 2 \cdot 10 = 70$, а рекомендуемый объём обучающей выборки будет варьироваться в диапазоне [140...350] элементов.

Такими объемами экспериментальных данных для построения модели бурового раствора авторы не располагают. Недостаток обучающих примеров вида «вектор компонентов – вектор свойств» был компенсирован с помощью так называемого метода приращения данных, для которого имеющиеся данные лабораторных испытаний десяти базовых растворов могут выступать в качестве основы для создания синтетического обучающего множества. Сравнительно небольшой объём экспериментальных данных был расширен за счёт применения процедуры искусственной генерации обучающих данных под названием SMOTE (Synthetic Minority Oversampling TEchnique) [28]. Изначально алгоритм был предназначен для увеличения объемов слабо представленных (миноритарных) классов в несбалансированной выборке при решении задач бинарной классификации. В основе алгоритма лежит идея искусственного воссоздания некоторого количества объектов $\tilde{x}$, которые были бы «похожи» на объекты x , представленные в обучающей выборке X . Вновь синтезируемые объекты не дублируют уже имеющиеся объекты, а расширяют набор данных на основе принципа «геометрической близости» в многомерном пространстве. Эта процедура направлена на повышение качества модели машинного обучения.

Предлагаемый алгоритм был адаптирован к имеющимся экспериментальным данным по десяти буровым растворам для решения задачи увеличения репрезентативности обучающей выборки. Весь набор

данных интерпретировался как миноритарный класс с элементами, упорядоченными по возрастанию общего количества присадок в водно-масляной основе. В качестве опорных экземпляров x_i использовались восемь растворов с номерами №№ 2–9. А в качестве двух ближайших соседей x_{i+1} и x_{i-1} выступала пара выше- и нижеследующих элементов, векторные расстояния $d_1 = |x_i - x_{i-1}|$ и $d_2 = |x_{i+1} - x_i|$ до которых изначально являются минимальными. Для создания каждого синтетического объекта, расположенного рядом с опорным вектором, согласно [2, 28], каждый элемент вектора разности d , умноженный на случайное число из диапазона $[0...q]$, суммировался с соответствующим элементом опорного образца x_a . Значение параметра q определяется как $\frac{1}{4}$ от соответствующего элемента вектора d . Таким образом генерируется синтетический вектор $\tilde{x}_a$, входящий в состав обучающего множества. Каждый искусственно сгенерированный образец при этом оказывается размещенным внутри многомерного пространства между двумя реальными образцами – базовым и его ближайшим соседом. По утверждению авторов, применение алгоритма позволяет получить лучшие результаты по сравнению с традиционной выборкой с повторениями или случайными значениями из диапазона изменения каждого элемента вектора x . Схема, иллюстрирующая процесс генерации синтетического вектора на примере базовых векторов № 1 и № 2 и случайного числа 0,25, представлена в табл. 2.

Объём генерируемого набора данных определялся из соотношения:

$$|X| = 2 \cdot (N - 2) \cdot M,$$

где $|X|$ – мощность (объём) обучающего множества; N – число опорных векторов; M – число генерируемых векторов в обе стороны от опорного вектора. Так, если число искусственно генерируемых образцов от опорного вектора до каждого соседнего вектора равно десяти, то на базе исходного множества из элементов будет сформировано множество из $2 \cdot (10 - 2) \cdot 10 = 160$ экземпляров. Варьируя величину M , можно получать обучающие множества разной мощности, соответствующей вышеописанному «правилу 2–5». Сами же исходные данные по десяти базовым растворам в состав обучающего множества при этом не войдут, а будут использоваться в качестве идеального/окончательного тестового множества для оценки и интерпретации создаваемой модели.

Для оценки и сравнения прогнозирующих способностей полученных моделей была использована выборка из 10 реальных растворов, которые не участвовали в обучении. Исходя из того, что разброс измерений реологических свойств раствора в лабораторных исследованиях находится в пределах 5 %, ансамбль нейронных сетей обучался на тестовом наборе из 160 синтетических элементов до достижения точности 95 % на тестовом множестве. Создание высокоточной модели в данных условиях не имеет смысла, а основные усилия были направлены на минимизацию сложности нейронных сетей, входящих в ансамбль, и на достаточно плавный характер обучения – монотонно убы-

вающая экспонента. На рис. 5 продемонстрирован характер процесса обучения нейросетевого ансамбля – обобщенные графики изменения среднеквадратических ошибок на обучающем (128 экземпляров), контрольном (32 экземпляра) и тестовом (10 экземпляров) множествах. Достаточно плавное уменьшение оши-

бок на каждом множестве свидетельствует об отсутствии эффекта переобучения нейронных сетей.

Сравнительный анализ относительных ошибок выходных значений на тестовом и обучающем множествах (табл. 3) позволяет судить о том, что нейросетевая модель приобрела высокую обобщающую способность.

Таблица 2. Пример формирования синтетического вектора

Table 2. Example of the synthetic-vector preparation

Элементы вектора Vector elements	Вектор/Vector			
	Базовый № 1 Base no. 1	Базовый № 2 Base no. 2	Расстояния Distance	Синтетический Synthetic
Компоненты бурового раствора/Drilling mud components				
Мраморная крошка/Marble chips	3,5	4,0	0,5	3,63
Полианионная целлюлоза Polyanionic cellulose	3,5	4,0	0,5	3,63
Сульфано́л/Sulfanol	1,0	1,5	0,5	1,13
Хлористый калий/Potassium chloride	1,0	1,5	0,5	1,13
Метилсиликат калия Potassium metasilicate	0,5	1,0	0,5	0,63
Ацетат калия/Potassium acetate	0,5	1,0	0,5	0,63
Бишофит/Bischofite	1,0	1,5	0,5	1,13
Феррохромлигносульфонат Ferrochromolignosulfonate	0,5	1,0	0,5	0,63
Гидрофобизатор/Oil wetting agent	0,5	1,0	0,5	0,63
Аллюминат калия/Potassium aluminate	3,5	4,0	0,5	3,63
Реагент СМАД/SMAD reagent	0,5	1,0	0,5	0,63
Нанодисперсная медь Nanodisperse copper	0,5	1,0	0,5	0,63
Свойства бурового раствора/Drilling mud properties				
Плотность/Density	1,25	1,26	0,0	1,25
Вязкость/Viscosity	28,0	29,0	1,0	28,25
Водоотдача/Filtration	3,0	2,5	-0,5	2,88
СНС 1 минута/Gel strength 1 min	48,0	50,0	2,0	48,50
СНС 10 минут/Gel strength 10 min	68,0	70,0	2,0	68,50
pH	10,0	10,0	0,0	10,00
Липкость/Stickability	0,1	0,1	0,0	0,10
Толщина корки/Filter cake thickness	1,5	1,5	0,0	1,50
Содержание песка/Mud sand content	1,0	1,0	0,0	1,00

Таблица 3. Выходные значения и относительные ошибки нейросетевой модели на тестовом и обучающем множествах

Table 3. Output values and percentage errors of the neural network model using the test set and the learning set

№ образца/Sample no.		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	$\delta_{cp}/\delta_{avg}, \%$
Свойство/Characteristic												
Плотность Density	y	1,25	1,26	1,27	1,28	1,27	1,28	1,29	1,30	1,31	1,32	5,03
	d	1,19	1,33	1,21	1,21	1,20	1,35	1,36	1,23	1,25	1,25	
	δ	4,89	5,32	4,56	5,20	5,40	5,14	5,04	5,31	4,47	4,97	
Вязкость Viscosity	y	28,0	29,0	31,0	31,0	30,0	31,0	32,0	33,0	34,0	35,0	5,42
	d	26,44	30,55	29,39	29,28	28,45	32,71	33,74	31,17	32,15	33,13	
	δ	5,56	5,36	5,20	5,55	5,17	5,51	5,45	5,56	5,45	5,35	
Водоотдача Filtration	y	3,0	2,5	1,5	1,0	1,1	1,0	0,8	0,7	0,6	0,5	5,13
	d	2,84	2,62	1,42	0,95	1,04	1,05	0,84	0,66	0,57	0,48	
	δ	5,36	4,86	5,42	5,04	5,90	5,46	4,88	5,24	4,50	4,68	
Статическое напряжение сдвига 1 мин Gel strength 1 min	y	48,0	50,0	52,0	54,0	52,0	54,0	56,0	58,0	60,0	69,0	5,66
	d	45,10	53,02	49,06	50,77	49,28	57,15	58,90	54,74	57,08	64,80	
	δ	6,05	6,04	5,65	5,99	5,24	5,84	5,17	5,62	4,87	6,09	
Статическое напряжение сдвига 10 мин Gel strength 10 min	y	68,0	70,0	78,0	80,0	78,0	80,0	86,0	88,0	90,0	93,0	5,39
	d	63,95	73,66	74,12	75,20	74,18	84,47	90,45	83,61	85,00	87,86	
	δ	5,96	5,23	4,98	6,00	4,90	5,59	5,18	4,99	5,56	5,53	
Коэффициент трения Friction coefficient	y	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1	4,95
	d	0,10	0,11	0,09	0,10	0,10	0,11	0,10	0,10	0,10	0,09	
	δ	4,92	5,12	5,04	4,79	4,86	5,06	4,90	4,85	4,76	5,15	
Толщина корки Filter cake thickness	y	1,5	1,5	1,5	1,5	1,4	1,3	1,2	1,3	1,4	1,5	5,24
	d	1,43	1,58	1,42	1,41	1,33	1,36	1,26	1,23	1,32	1,42	
	δ	4,90	5,16	5,22	5,67	5,33	4,93	5,28	5,08	5,54	5,31	

y – реальное значение свойства/real value of the characteristic;
d – значение, выдаваемое нейросетевой моделью/value given by the neural network model;
 δ – относительная ошибка нейросетевой модели/relative error of the neural network model.

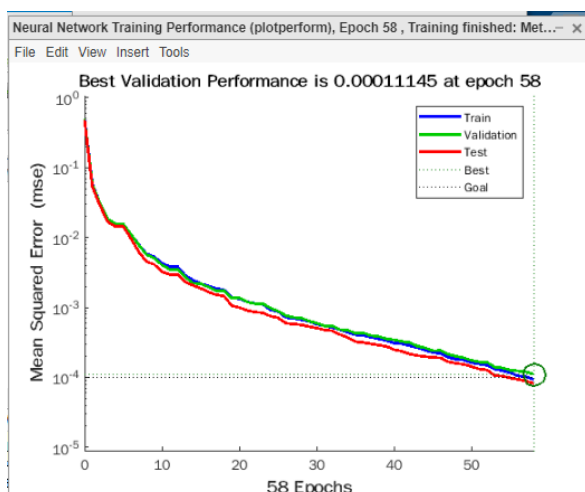


Рис. 5. Графики изменения ошибок при обучении нейросетевой модели высокатионно-ингибированного бурового раствора [15]

Fig. 5. Graphs of errors changing during the high-cation-inhibited drilling mud neural network model training [15]

Относительные выходные ошибки на обучающем и тестовом множествах находятся в диапазоне 4,7–5,6 %. Приобретённые обобщающие свойства нейросетевой модели позволяют предсказывать значения свойств новых наноструктурированных буровых растворов с заданной точностью для последующего прогнозирования возникновения дифференциального прихвата.

Выводы

1. Прогноз и предотвращение дифференциальных прихватов колонны буровых труб является пер-

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Barnes H.A., Hutton J.F., Walters K. An introduction to rheology. – Amsterdam, The Netherlands: Elsevier, 1989. – 199 p.
2. Hole-cleaning performance comparison of oil-based and water-based drilling fluids / S. Sayindla, B. Lund, J.D. Ytrehus, A. Saasen // Journal of Petroleum Science and Engineering. – 2017. – V. 159. – P. 49–57.
3. A critical review of drilling mud rheological models / O.E. Agwu, J.U. Akpabio, M.E. Ekenyong, U.G. Inyang, D.E. Asuquo, I.J. Eyoh, O.S. Adeoye // Journal of Petroleum Science and Engineering. – 2021. – V. 203. DOI: 10.1016/j.petrol.2021.108659.
4. Alsabaa A., Elkatatny S. Improved tracking of the rheological properties of max-bridge oil-based mud using artificial neural networks // ACS OMEGA. – 2021. – V. 6 (24). – P. 15816–15826. DOI: 10.1021/acsomega.1c01230.
5. Prediction of the rheological properties of invert emulsion mud using an artificial neural network / A. Gowida, S. Khaled, S. Goma, A. Attia // ACS OMEGA. – 2021. – V. 6 (48). – P. 32948–32959. DOI: 10.1021/acsomega.1c04937.
6. Newly developed correlations to predict the rheological parameters of high-bentonite drilling fluid using neural networks / A. Gowida, S. Elkatatny, K. Abdelgawad, R. Gajbiye // Sensors. – 2020. – V. 20 (10). DOI: 10.3390/s20102787.
7. Real-time determination of rheological properties of spud drilling fluids using a hybrid artificial intelligence technique / K. Abdelgawad, S. Elkatatny, T. Moussa, M. Mahmoud, S. Patil // Journal of Energy Resources Technology. – 2019. – V. 141. DOI: 10.1115/1.4042233.

спективной и актуальной задачей, для эффективного решения которой необходимо использовать предложенный авторами высокоингибированный наноструктурированный буровой раствор.

2. Частично варьируемый состав нового раствора обладает высочайшей ингибирующей способностью, что обеспечивает замедление процесса гидратации и набухания глинистых отложений и ведет к существенному уменьшению вероятности возникновения дифференциального прихвата.
3. Применение разработанного раствора позволяет успешно сооружать разведочные скважины на нефть и газ глубиной более 3000 м с горизонтальным окончанием на участках, представленных неустойчивыми высокопластичными глинами.
4. В работе оценено реологическое поведение предлагаемого раствора с улучшенными структурно-реологическими, фильтрационными и фрикционными свойствами на базе двухуровневой нейросетевой ансамблевой модели.
5. Модель, построенная на базе многослойных перцептронов, отражает существенно нелинейные взаимосвязи между компонентным составом и основными свойствами бурового раствора.
6. Прогнозируемые реологические параметры могут использоваться как для оперативного внесения изменений в процесс бурения, так и для последующего прогноза и определения вероятности возникновения дифференциального прихвата.
7. Развитие и совершенствование предложенной нейросетевой реологической модели может идти по пути учета конкретных геологических условий и технологических параметров бурения, применяющихся в качестве входных данных модели.
8. Elkatatny S.M. Determination the rheological properties of invert emulsion based mud on real time using artificial neural network // Proceedings of the SPE Kingdom of Saudi Arabia Annual Technical Symposium and Exhibition/ – Dammam, Saudi Arabia, 25–28 April 2016. – Paper No. SPE-182801-MS. DOI: 10.2118/182801-MS.
9. Elkatatny S.M. Real-time prediction of rheological parameters of KCl water-based drilling fluid using artificial neural networks // Arabian Journal of Science and Engineering. – 2017. – V. 42. – P. 1655–1665. DOI: 10.1007/s13369-016-2409-7.
10. Data-driven framework to predict the rheological properties of CaCl₂ brine-based drill-in fluid using artificial neural network / A. Gowida, S.M. Elkatatny, E. Ramadan, A. Abdulraheem // Energies. – 2019. – V. 12. – № 10:1880. DOI: 10.3390/en12101880.
11. Elkatatny S. Real-time prediction of the rheological properties of water-based drill-in fluid using artificial neural networks // Sustainability. – 2019. – V. 11. – № 18:5008. DOI: 10.3390/su11185008.
12. Elahifar B., Hosseini E. Machine learning algorithm for prediction of stuck pipe incidents using statistical data: case study in middle east oil fields // Journal of Petroleum Exploration and Production Technology. – 2022. – V. 12. – P. 2019–2045. DOI: 10.1007/s13202-021-01436-3.
13. Characterization based machine learning modeling for the prediction of the rheological properties of water-based drilling mud: an experimental study on grass as an environmental friendly additive / A. Ismail, H.M.A. Rashid, R. Gholami, A. Raza // Journal of Petroleum Exploration and Production Technology. – 2022. – V. 12. – P. 1677–1695. DOI: 10.1007/s13202-021-01425-6.

14. Adams N.J., Charrier T. Drilling engineering: a complete well planning approach. – Tulsa, OK, USA: Penn Well Publishing Company, 1985. – 960 p.
15. Высококативно-ингибированный буровой раствор: пат. Рос. Федерация, № 2768340, заявл. 24.05.2021; опубл. 23.03.2022, Бюл. № 9.
16. Высокоингибированный инвертный буровой раствор: пат. Рос. Федерация, № 2710654, заявл. 03.04.2019; опубл. 30.12.2019, Бюл. № 36.
17. Высокоингибированный буровой раствор: пат. Рос. Федерация, № 2303047, заявл. 10.05.2006; опубл. 20.07.2007, Бюл. № 19.
18. Буровой раствор: патент Рос. Федерация, № 2582197C1, заявл. 25.03.2015 опубл. 20.04.2020, Бюл. № 13.
19. Наноструктурированный высокоингибированный буровой раствор: пат. Рос. Федерация, № 2708849C1, заявл. 24.01.2019; опубл. 12.12.2007, Бюл. № 35.
20. Эмульсионно-ингибированный реверсивно-инвертный буровой раствор пат. Рос. Федерация, № 2768357C1, заявл. 24.05.2021 опубл. 23.03.2022, Бюл. № 9.
21. Hartono P., Hashimoto S. Learning with ensemble of linear perceptrons // International Conference on Artificial Neural Networks: Formal Models and Their Applications – ICANN 2005. – Berlin, Heidelberg: Springer, 2005. – V. 3697. – P. 115–120. DOI: 10.1007/11550907_19.
22. Андронов Ю.В., Стрекалов А.В. Исследование применения ансамблей нейронных сетей для повышения качества решения задач регрессии // Нефтегазовое дело. – 2015. – № 1. – С. 50–55.
23. Третьяк А.Я., Кузнецова А.В., Борисов К.А. Определение параметров резцов с помощью регрессивного и нейросетевого моделирования. // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2019. – Т. 330. – № 5. – С. 169–177.
24. Опыт применения искусственных нейронных сетей для прогнозирования оптимальных параметров режима бурения скважин / Г.В. Буслаев, М.М. Павлов, А.А. Куншин, В.В. Стариков, Г.М. Сергеев // Научный журнал Российского газового общества. – 2019. – № 2 (21). – С. 51–55.
25. Кодиров Ш.Ш., Шестаков А.Л. Разработка искусственной нейронной сети для прогнозирования прихватов колонн буровых труб // Вестник ЮУрГУ. Серия «Компьютерные технологии, управление, радиоэлектроника». – 2019. – Т. 19. – № 3. – С. 20–32. DOI: 10.14529/ctcr190302.
26. Медведев В.С., Потемкин В.Г. Нейронные сети. MATLAB 6. – М.: ДИАЛОГ-МИФИ, 2001. – 630 с.
27. Harrell F.E. Regression modeling strategies: with applications to linear models, logistic regression, and survival analysis. – New York: Springer-Verlag, 2001. DOI: 10.1007/978-1-4757-3462-1.
28. Chawla N.V., Bowyer K.W., Hall L.O. SMOTE: Synthetic Minority Oversampling Technique // J. Artificial Intelligence Research. – 2002. – V. 16. – P. 321–357. DOI: 10.1613/jair.953.

Поступила 06.07.2022 г.

Информация об авторах

Третьяк А.Я., доктор технических наук, профессор, заведующий кафедрой нефтегазовых техники и технологий Южно-Российского государственного политехнического университета (НПИ) им. М.И. Платова.

Кузнецова А.В., кандидат технических наук, доцент кафедры программного обеспечения вычислительной техники Южно-Российского государственного политехнического университета (НПИ) им. М.И. Платова.

Борисов К.А., кандидат технических наук, доцент кафедры нефтегазовых техники и технологий Южно-Российского государственного политехнического университета (НПИ) им. М.И. Платова.

Карельская Е.В., ассистент кафедры нефтегазовых техники и технологий Южно-Российского государственного политехнического университета (НПИ) им. М.И. Платова.

UDC 004.8.622.24

NEURAL NETWORK FORECASTING OF DRILLING MUD RHEOLOGICAL PARAMETERS

Alexander Ya. Tretyak¹,
13050465@mail.ru

Alla V. Kuznetsova¹,
alvitkuz@yandex.ru

Konstantin A. Borisov¹,
13020165@mail.ru

Ekaterina V. Karelskaya¹,
karelskaya_1992@mail.ru

¹ M.I. Platov South-Russian State Polytechnic University (NPI),
132, Prosveshcheniya street, Novocherkassk, 346428, Russia.

The relevance of the study is caused by the fact that differential tacks are one of the most difficult accidents in the entire technological chain of construction of oil and gas wells. A high quality and correctly selected drilling mud with optimal rheology for specific drilling conditions is one of the determining factors in preventing differential tacks.

Goal: development of a neural network rheological model of drilling mud based on its component composition and the results of periodic measurements of the output parameters of the flushing fluid. With the help of a neural network, it is possible to accurately and quickly predict the values of the rheological properties of the solution, which have a significant impact on the occurrence and prevention of differential seizures.

Object: neural network rheological models of drilling mud, drilling muds, which composition affects the rheological properties and the possibility of preventing differential sticking of the drill string during well construction.

Methods: neural network model of drilling mud differing in the number and composition of input parameters is proposed.

Results. The paper describes the learning process of three neural networks based on operational data obtained on instruments for measuring drilling mud parameters. The authors proposed six types of drilling muds that are optimal for specific geological conditions. Introduction of nanodispersed copper and potassium aluminate into the composition of a drilling mud with a high lubricity helps to reduce the friction coefficient, increase the inhibitory ability of the solution, reduce water loss and, as a result, decrease sharply the differential tack during the construction of wells on hydrocarbon raw materials.

Key words:

Differential tack of a drill pipe column, forecast of tacks, drilling nanostructured mud, artificial neural networks, neural network model of drilling mud.

REFERENCES

1. Barnes H.A., Hutton J.F., Walters K. *An introduction to rheology*. Amsterdam, The Netherlands, Elsevier, 1989. 199 p.
2. Sayindla S., Lund B., Ytrehus J.D., Saasen A. Hole-cleaning performance comparison of oil-based and water-based drilling fluids. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2017, vol. 159, pp. 49–57.
3. Agwu O.E., Akpabio J.U., Ekpenyong M.E., Inyang U.G., Asuquo D.E., Eyoh I.J., Adeoye O.S. A critical review of drilling mud rheological models. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2021, vol. 203. DOI: 10.1016/j.petrol.2021.108659.
4. Alsabaa A., Elkatatny S. Improved tracking of the rheological properties of max-bridge oil-based mud using artificial neural networks. *ACS OMEGA*, 2021, vol. 6 (24), pp. 15816–15826. DOI: 10.1021/acsomega.1c01230.
5. Gowida A., Khaled S., Gomaa S., Attia A. Prediction of the rheological properties of invert emulsion mud using an artificial neural network. *ACS OMEGA*, 2021, vol. 6 (48), pp. 32948–32959. DOI: 10.1021/acsomega.1c04937.
6. Gowida A., Elkatatny S., Abdelgawad K., Gajbhiye R. Newly developed correlations to predict the rheological parameters of high-bentonite drilling fluid using neural networks. *Sensors*, 2020, vol. 20 (10). DOI: 10.3390/s20102787.
7. Abdelgawad K., Elkatatny S., Moussa T., Mahmoud M., Patil S. Real-time determination of rheological properties of spud drilling fluids using a hybrid artificial intelligence technique. *Journal of Energy Resources Technology*, 2019, vol. 141. DOI: 10.1115/1.4042233.
8. Elkatatny S.M. Determination the rheological properties of invert emulsion based mud on real time using artificial neural network. *Proceedings of the SPE Kingdom of Saudi Arabia Annual Technical Symposium and Exhibition*. Dammam, Saudi Arabia, 25–28 April 2016. DOI: 10.2118/182801-MS.
9. Elkatatny S.M. Real-time prediction of rheological parameters of KCl water-based drilling fluid using artificial neural networks. *Arabian Journal of Science and Engineering*, 2017, vol. 42, pp. 1655–1665. DOI: 10.1007/s13369-016-2409-7.
10. Gowida A., Elkatatny S.M., Ramadan E., Abdulraheem A. Data-driven framework to predict the rheological properties of CaCl₂ brine-based drill-in fluid using artificial neural network. *Energies*, 2019, vol. 12, no. 10:1880. DOI: 10.3390/en12101880.
11. Elkatatny S. Real-time prediction of the rheological properties of water-based drill-in fluid using artificial neural networks. *Sustainability*, 2019, vol. 11, no. 18:5008. DOI: 10.3390/su11185008.
12. Elahifar B., Hosseini E. Machine learning algorithm for prediction of stuck pipe incidents using statistical data: case study in middle east oil fields. *Journal of Petroleum Exploration and Production Technology*, 2022, vol. 12, pp. 2019–2045. DOI: 10.1007/s13202-021-01436-3.
13. Ismail A., Rashid, H.M.A., Gholami R., Raza A. Characterization based machine learning modeling for the prediction of the rheological properties of water-based drilling mud: an experimental study on grass as an environmental friendly additive. *Journal of Petroleum Exploration and Production Technology*, 2022, vol. 12, pp. 1677–1695. DOI: 10.1007/s13202-021-01425-6.
14. Adams N.J., Charrier T. *Drilling engineering: a complete well planning approach*. Tulsa, OK, USA, Penn Well Publishing Company, 1985. 960 p.
15. Tretyak A.Ya., Karelskaya E.V., Krymov A.V., Onofrienko S.A. *Vysokokationno-ingibirovanny burovoy rastvor* [Highly cationic inhibited drilling mud]. Patent RF, no. 2768340, 2022.

16. Tretyak A.A., Onofrienko S.A. *Vysokoingibirovanny invertny burovoy rastvor* [Highly inhibited invert drilling mud]. Patent RF, no. 2710654, 2019.
17. Tretyak A.Ya., Zaretsky V.S., Mnatsakanov V.A., Rybalchenko Yu.M., Frolov P.A., Chikhotkin V.F., Shamanov S.A. *Vysokoingibirovanny burovoy rastvor* [Highly inhibited drilling mud]. Patent RF, no. 2303047, 2007.
18. Tretyak A.A., Rybalchenko Yu.M., Shvets V.V., S.I. Lubyanova, Turuntaev Yu.Yu., Borisov K.A. *Burovoy rastvor* [Drilling mud]. Patent RF, no. 2582197, 2020.
19. Tretyak A.A., Onofrienko S.A. *Nanostrukturirovanny vysokoingibirovanny burovoy rastvor* [Nanostructured highly inhibited drilling mud]. Patent RF, no. 2708849C1, 2007.
20. Tretyak A.A., Karelskaya E.V., Lizogub A.A., Sidorova E.V. *Emulsionno-ingibirovanny reversivno-invertny burovoy rastvor* [Emulsion-inhibited reverse-invert drilling mud]. Patent RF, no. 2768357C1, 2022.
21. Hartono P., Hashimoto S. Learning with Ensemble of Linear Perceptrons. *International Conference on Artificial Neural Networks: Formal Models and Their Applications – ICANN 2005*. Berlin, Heidelberg, Springer, 2005. Vol. 3697, pp. 115–120. DOI: 10.1007/11550907_19.
22. Andronov Yu.V., Strekalov A.V. Research on the use of ensembles of neural networks to improve the quality of solving regression problems. *Petroleum Engineering*, 2015, vol. 13, no. 1, pp. 50–55. In Rus.
23. Tretyak A.Ya., Kuznetsova A.V., Borisov K.A. Determination of cutter breakages using regression and neural network modeling. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2019, vol. 330, no. 5, pp. 169–177. In Rus.
24. Buslyayev G.V., Pavlov M.M., Kunshin A.A. Experience in the use of artificial neural networks to predict the optimal parameters of the well drilling regime. *Scientific journal of the Russian Gas Society*, 2019, vol. 2 (21), pp. 51–55. In Rus.
25. Kodirov Sh.Sh., Shestakov A.L. Development of an artificial neural network for predicting sticking of drill strings. *Bulletin of the South Ural State University. Ser. Computer Technologies, Automatic Control, Radio Electronics*, 2019, vol. 19, no. 3, pp. 20–32. In Rus.
26. Medvedev V.S., Potemkin V.G. *Neyronnye seti. MATLAB 6* [Neural networks. MATLAB 6]. Moscow, DIALOG-MEPHI, 2001. 630 p.
27. Harrell F.E. *Regression modeling strategies: with applications to linear models, logistic regression, and survival analysis*. New York, Springer-Verlag, 2001. DOI: 10.1007/978-1-4757-3462-1.
28. Chawla N.V., Bowyer K.W., Hall L.O. SMOTE: Synthetic Minority Oversampling Technique. *Journal Artificial Intelligence Research*, 2002, vol. 16, pp. 321–357. DOI: 10.1613/jair.953.

Received: 6 July 2022.

Information about the authors

Alexander Y. Tretyak, Dr. Sc., professor, head of the department of Oil and Gas Engineering and Technologies, M.I. Platov South Russian State Polytechnic University (NPI).

Alla V. Kuznetsova, Cand. Sc., associate professor, M.I. Platov South-Russian State Polytechnic University (NPI) of the department of Computer Engineering Software.

Konstantin A. Borisov, Cand. Sc., associate professor, M.I. Platov South-Russian State Polytechnic University (NPI) of the department of Oil and Gas Engineering and Technologies.

Ekaterina V. Karelskaya, assistant, M.I. Platov South-Russian State Polytechnic University (NPI).

УДК 550.8.013, 550.8.053

ИССЛЕДОВАНИЕ ТЕМПЕРАТУРНОГО ПОЛЯ В СКВАЖИНЕ ПЕРЕМЕННОГО ДИАМЕТРА ПОСЛЕ ПРОМЫВКИ

Акчурин Руслан Зуфарович¹,
ac4urin.ruslan@yandex.ru

Рюков Рамиль Ирекович¹,
ramilryukov97@mail.ru

Вахитова Гузель Ринатовна¹,
guzel.geotec@mail.ru

Рамазанов Айрат Шайхуллович¹,
ramaz-1953@mail.ru

¹ Башкирский Государственный Университет,
Россия, 450076, г. Уфа, ул. Заки Валиди, 32.

Актуальность. В настоящее время не существует общепринятых методов, которые позволяют определить равновесную температуру горных пород по данным термометрии в вышедших из бурения скважинах. Во время бурения скважины естественное распределение температуры в породах вокруг скважины существенно изменяется и требуется значительное время для его восстановления в период простоя. Данный процесс может длиться до нескольких месяцев и даже больше в глубоких скважинах, поэтому естественную температуру горных пород можно непосредственно измерить только в течение длительного времени в бездействующих скважинах. Моделирование процесса восстановления температуры в скважинах после завершения бурения – единственная возможность спрогнозировать невозмущенную температуру пород, необходимую для определения равновесного градиента температуры и плотности теплового потока, чтобы предоставить необходимые исходные данные для бассейнового моделирования.

Объект: бурящиеся скважины и скважины, в которых проводится предварительная промывка перед температурными исследованиями. Диаметр скважины после бурения изменяется из-за наличия каверн, что также сказывается на распределении температуры и после обсадки скважины, т. к. в этих интервалах увеличен объем закачанного цемента.

Цель: определение температурного нарушения в зоне с измененным диаметром скважины вследствие образования каверн, а также влияния цементного кольца на температурное поле в данных интервалах.

Результаты. Исследовано влияние размеров каверны (высоты и глубины) на формирование температурного поля в скважине. Разработана математическая модель, описывающая движение промывочной жидкости в скважине, учитывающая изменение диаметра. Результаты расчетов сравниваются с распределением температуры без учета изменения диаметра скважины по глубине. Показано, что температурное поле напротив интервалов каверн достаточно сильно нарушено в необсаженной скважине. Установлено, что при увеличении расхода промывочной жидкости поле температуры сильнее всего нарушено напротив подошвы интервала каверны.

Ключевые слова:

Температурное поле, скважина переменного диаметра, промывка скважины, теплообмен, численное моделирование.

Введение

Температура как комплексный параметр, содержащий в себе информацию о множестве процессов, происходящих в горных породах, позволяет решать множество задач, таких как контроль за разработкой месторождений, определение интервалов притока флюида из проницаемых пластов и т. д. Для решения этих задач необходима информация о распределении температуры в скважине, а также математические модели, описывающие процессы тепломассопереноса в скважине и горной породе. Существующие математические модели теплопереноса делятся на аналитические и численные [1–11]. Например, в работе [1] описывается математическая модель тепловых процессов, которая позволяет учитывать геометрию скважины, историю бурения, процессы при бурении скважины, такие как тепловые потери при вращении буровой колонны, теплофизические и реологические свойства бурового раствора, его расход в проницаемые пласты, а также цементацию скважины.

Существующие модели имеют ряд ограничений, не учитывающих определенные процессы, происходящие во время промывки. Например, в работах [2–11] отсутствует учет влияния обсадной колонны в модели, не учитываются такие явления, как: тепловыделение в процессе гидратации цемента; остановка в процессе бурения, во время которой происходит восстановление равновесной температуры; распределение температуры в радиальном направлении в горных породах, процесс промывки скважины при бурении.

Симулятор DrillSim [12, 13], разработанный в рамках сотрудничества Сколтеха и Башкирского государственного университета, позволяет снять многие из вышеперечисленных ограничений. В настоящее время симулятор DrillSim проходит тестирование на предмет возможности его применения для прогнозирования невозмущенной температуры пласта на основе экспериментальных данных термометрии в промышленных скважинах сразу после завершения бурения.

Симулятор предназначен для моделирования процесса теплопереноса в скважине во время бурения, при ее промывке и простое [14]. Решая обратную задачу на основе разработанного симулятора, возможно определение распределения ненарушенной температуры горных пород, а следовательно, градиента температуры и теплового потока.

Физико-математические основы симулятора

В данной статье рассматривается влияние изменения диаметра скважины на распределение температуры в

скважине после промывки. Считается, что при моделировании фильтрация жидкости отсутствует и окружающие горные породы непроницаемые. Рассматриваются различные вариации диаметра и высоты нарушенной зоны, и моделируется температура в скважине.

Исследуются два случая: скважина без обсадной металлической колонной и обсаженная скважина (обсадная колонна + цементное кольцо). На рис. 1 приведена схема для необсаженной (рис. 1, а) и обсаженной (рис. 1, б) скважин.

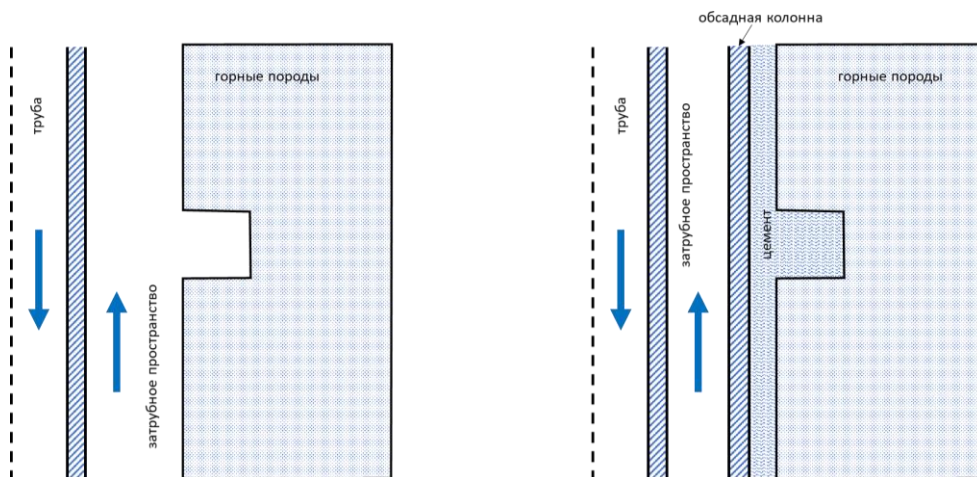


Рис. 1. Схематическое изображение процесса промывки в необсаженной (а) и обсаженной (б) скважинах

Fig. 1. Schematic representation of the circulation process in uncased (a) and cased (b) wells

Уравнение для нисходящего потока промывочной жидкости выглядит следующим образом:

$$Q_1 \rho_m c_m \frac{\partial T_1(z, t)}{\partial z} + H_t [T_1(z, t) - T_2(z, t)] = -S_1 \rho_m c_m \frac{\partial T_1(z, t)}{\partial t}.$$

Температура восходящего потока жидкости описывается следующим уравнением:

$$Q_2 \rho_m c_m \frac{\partial T_2(z, t)}{\partial z} + H_t [T_1(z, t) - T_2(z, t)] + H_a [T_3(r_w, z, t) - T_2(z, t)] = S_2 \rho_m c_m \frac{\partial T_2(z, t)}{\partial t}.$$

Здесь T_1, T_2 – температура промывочной жидкости (буровая труба и затрубное пространство соответственно), К; ρ_m – плотность промывочной жидкости, кг/м³; Q_1, Q_2 – расход промывочной жидкости (буровая труба и затрубное пространство соответственно), м³/с; S_1, S_2 – площадь внутреннего сечения (буровая труба и затрубное пространство соответственно), м²; c_m – удельная теплоемкость промывочной жидкости, Дж/(кг·К); H_t – коэффициент теплообмена между нисходящим потоком в буровой трубе и восходящим в затрубном пространстве; H_a – коэффициент теплообмена между восходящим потоком в затрубном пространстве и горными породами, Вт/(м·К).

Уравнение переноса тепла в горных породах и цементном кольце (для случая обсаженной скважины):

$$C \frac{\partial T_3(r, z, t)}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \lambda \frac{\partial T_3(r, z, t)}{\partial r} \right).$$

Здесь C – объемная теплоемкость горной породы (металла, цементного кольца), Дж/(м³·К); $\lambda(r)$ – теплопроводность, Вт/(м·К).

На стенке скважины (обсадной колонны) тепловой поток определяется конвективным теплообменом с флюидом в скважине [15, 16]:

$$\left[\lambda \frac{\partial T_3}{\partial r} \right]_{r_0} = \frac{H_a}{2\pi r_0} (T_3(r_0, z, t) - T_2(z, t)).$$

Коэффициент теплообмена между двумя потоками жидкости рассчитывается по следующей формуле [17, 18]:

$$H_t = 2\pi \left(\frac{2}{\lambda_f Nu_1} + \frac{2(r_w - r_2)}{\lambda_f Nu_2 \cdot r_w} + \frac{1}{\lambda_{me}} \ln \left(\frac{r_2}{r_1} \right) \right)^{-1},$$

где λ_f – теплопроводность флюида, Вт/(м·К); λ_m – теплопроводность материала трубы, Вт/(м·К); Nu_1 – число Нуссельта внутри трубы; Nu_2 – число Нуссельта в затрубном пространстве; r_w – радиус скважины; r_1 – внутренний радиус трубы; r_2 – внешний радиус трубы.

Коэффициент теплообмена между восходящим потоком в затрубном пространстве и горными породами (обсадной колонной) определяется как [19, 20]:

$$H_a = 2\pi \left(\frac{2(r_w - r_2)}{\lambda_f Nu_2 \cdot r_w} \right)^{-1}.$$

Теплофизические свойства материалов для моделирования приведены в таблице.

Таблица. Теплофизические свойства материалов
Table. Thermophysical properties of materials

Свойства Properties	Вода Water	Металл Metal	Цемент Cement	Порода Rock
λ , Вт/(м·К) W/(m·K)	0,60	50	1,2	2,2
C, МДж/(м³·К) MJ/(m³·K)	4,2	3,7	2,4	2,5

В данном случае моделируется горная порода с постоянными теплофизическими параметрами на всем протяжении скважины (без учета слоистости горных пород).

Расход промывочной жидкости измеряется в объемах скважины, промытых за 12 часов. В приведенных примерах расход равен 1 объему скважины, промытому в течение 12 часов, что соответствует массовому расходу промывочной жидкости 2,54 кг/с.

Примеры использования симулятора

Рассмотрим влияние изменения диаметра скважины на процесс теплообмена между двумя встречными потоками жидкости в трубе и затрубном пространстве и между восходящим потоком жидкости и горными породами. Скважина не обсажена.

На рис. 2 приведены графики зависимости величины коэффициента теплообмена от диаметра скважины. Внутренний и внешний диаметры трубы равны 62 и 73 мм соответственно, диаметр скважины 216 мм.

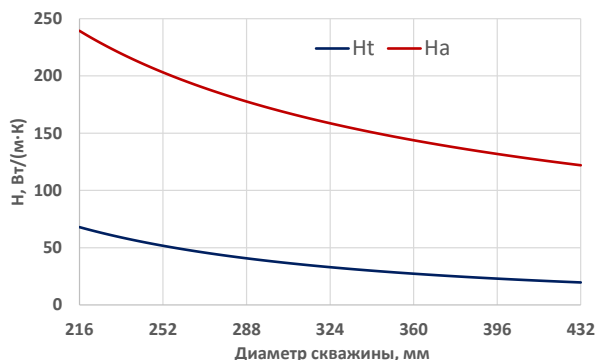


Рис. 2. Зависимость коэффициента теплообмена от диаметра скважины. Шифр кривых: H_t – коэффициент теплообмена между двумя потоками жидкости; H_a – коэффициент теплообмена между восходящим потоком и горными породами

Fig. 2. Dependence of the heat exchange coefficient on the well diameter. The legend: H_t is the heat exchange coefficient between two fluid flows; H_a is the heat exchange coefficient between the upstream fluid flow and the rocks surrounding the well

Как видно из рис. 2, увеличение диаметра скважины в 2 раза приводит к уменьшению коэффициента теплообмена между встречными потоками флюида H_t в 2 раза (изменяется от 240 до 122 Вт/(м·К)), коэффициент теплообмена восходящего потока с горными породами H_a уменьшается в 3,5 раза (изменяется от 70 до 20 Вт/(м·К)).

Следующим шагом является оценка влияния изменения диаметра скважины по сравнению с номинальным диаметром для необсаженной скважины на распределение температуры в конце промывки. На рис. 3 приведены графики разностей распределения температур при постоянном диаметре скважины и при увеличении диаметра скважины в некотором интервале. Графики приведены для температуры внутри буровой трубы и в затрубном пространстве.

Как видно из рис. 3, при увеличении диаметра скважины нарушается температурное распределение в трубе и затрубном пространстве. Величина нарушения температуры зависит от величины увеличения диаметра. По графику разностной температуры можно определить интервал изменения диаметра скважины, на рисунке четко выделяются границы нарушения диаметра.

Кроме этого, выполнен анализ влияния расхода промывочной жидкости в необсаженной скважине на распределение температуры в буровой трубе и затрубном пространстве в конце промывки. На рис. 4 показаны графики изменения разности температуры с глубиной для буровой трубы и затрубья.

Из рис. 4 видно, что изменение расхода промывочной жидкости значительно сказывается на распределении температуры в скважине.

Рассмотрим влияние высоты интервала нарушения диаметра на распределение температуры в необсаженной скважине. На рис. 5 приведены соответствующие графики для температуры в буровой трубе и в затрубном пространстве.

Из графиков на рис. 5 видно, что увеличение высоты интервала изменения диаметра приводит к увеличению расхождения между рассчитанными распределениями температуры. Если разница температуры в интервале нарушения высотой 2 м составляет 0,05 °С, то в интервале нарушения высотой 100 м достигает почти 2 °С. В буровой трубе аномалия температуры локализована выше по сравнению с затрубным пространством. По температурным кривым отчетливо определяются границы интервала нарушения.

Заключение

Моделирование распределения температуры в процессе бурения, промывки и простоя скважины симулятором DrillSim позволяет определить распределение ненарушенной температуры горных пород, а также градиент температуры и тепловой поток, необходимые для решения задач реконструкции палеотемператур и прогноза нефтегенерационного потенциала. При этом полученные результаты учитывают вариации диаметра скважины, влияющие на распределение температуры в буровой трубе и затрубном пространстве. В работе выполнен анализ влияния геометрических размеров интервала нарушения диаметра скважины, таких как высота и диаметр. Установлено, что увеличение высоты нарушенной зоны и ее диаметра приводит к значительному искажению температурного поля в скважине. Так, при увеличении диаметра скважины с 216 до 260 мм (+20 %) приводит к изменению температуры на 0,4 °С напротив нижней границы нарушения диаметра и на 0,2 °С напротив верхней границы нарушения диаметра.

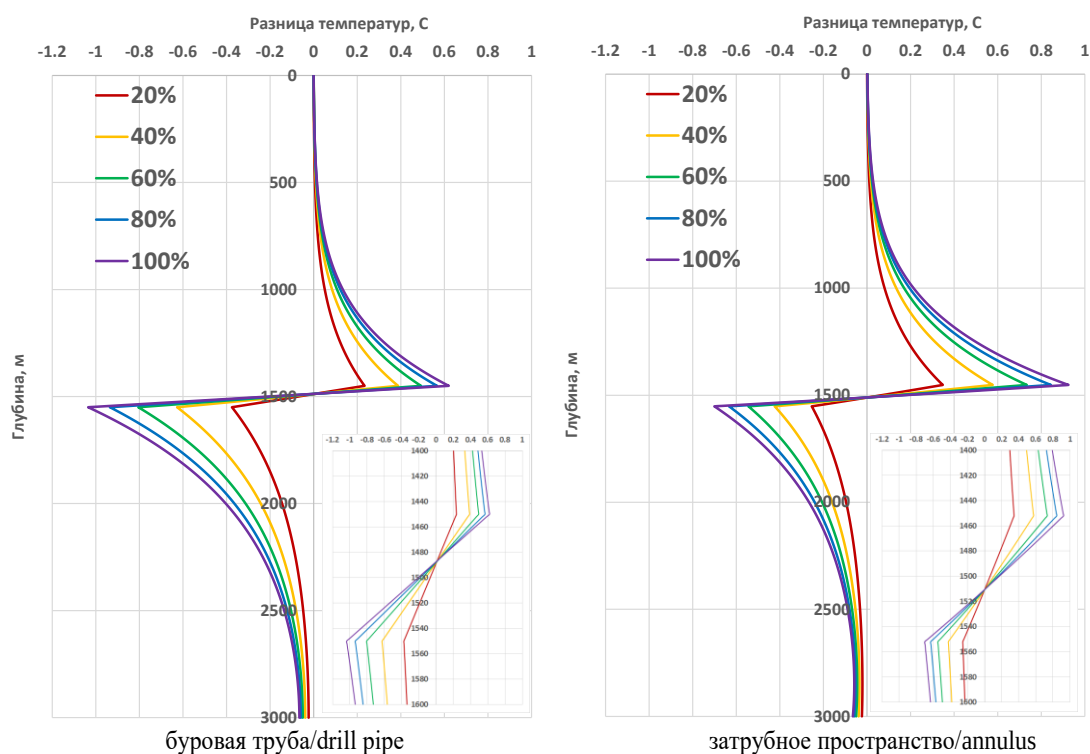


Рис. 3. Разница распределений температур, полученных при моделировании ситуаций с постоянным диаметром скважины и при наличии участка с увеличенным диаметром после окончания промывки. Шифр кривых – увеличение диаметра скважины в интервале 1450–1550 м относительно номинального диаметра скважины

Fig. 3. Absolute difference of temperature distributions between results of modeling situations with a constant well diameter and with a presence of an area with an increased diameter after well circulation. The legend – the increase of the well diameter in the interval of 1450–1550 m in comparison with the nominal one

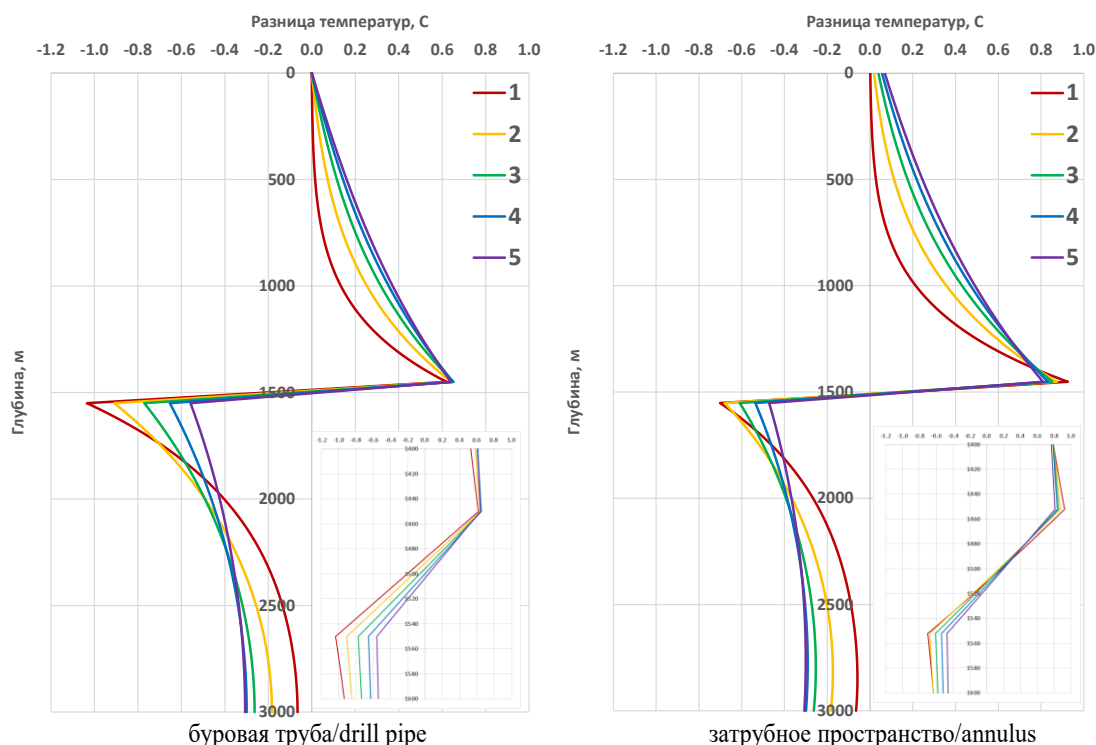


Рис. 4. Абсолютная разница распределений температур после окончания промывки, рассчитанных с учетом и без учета изменения диаметра скважины. Шифр кривых – расход бурового раствора в объемах скважины, промытых в течение 12 часов

Fig. 4. Absolute difference of temperature distributions calculated after the end of well flushing with and without taking into account the changing of well diameter. The legend – the drilling fluid flow rate, measured using the number of well volumes flushed during 12 hours

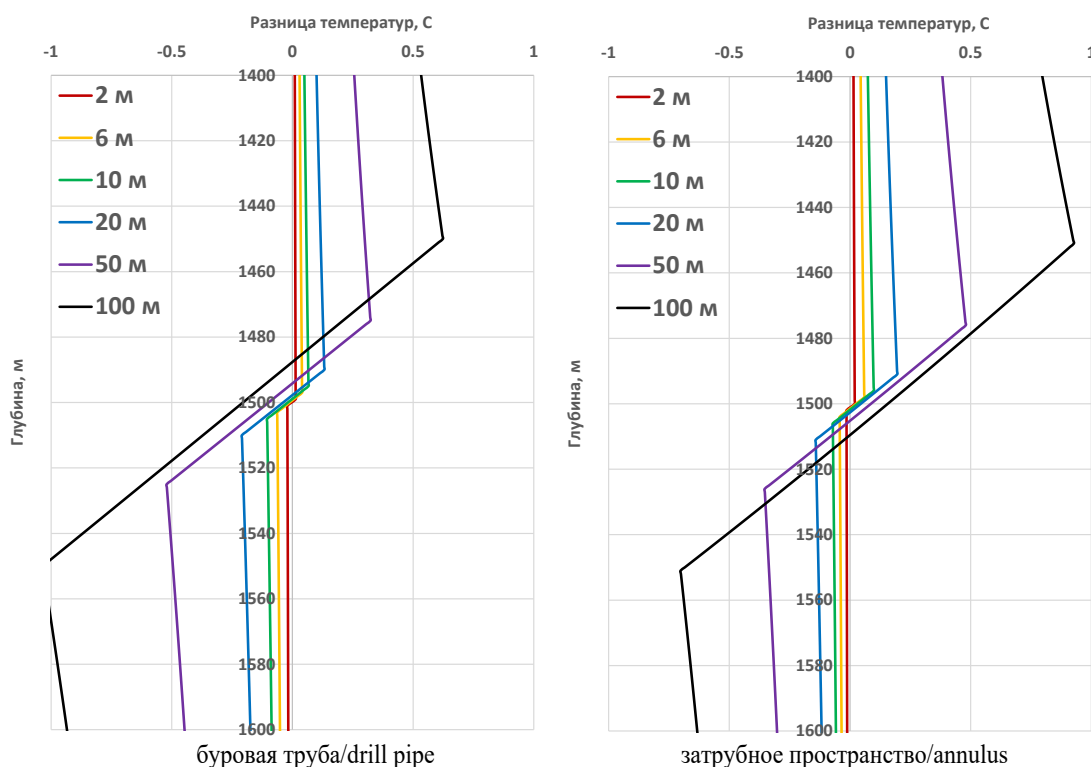


Рис. 5. Абсолютная разница распределений температур, рассчитанных после окончания промывки с учетом изменения диаметра скважины и без учета. Шифр кривых – высота интервала с измененным диаметром в м

Fig. 5. Absolute difference of temperature distributions calculated after the end of well flushing with and without taking into account the changing of well diameter. The legend – interval depth with the changed diameter, m

Увеличение диаметра скважины в 2 раза, т. е. до 432 мм, приводит к изменению температуры на 1 и на 0,6 °С, соответственно. Изучено влияние расхода промывочной жидкости на распределение температуры в скважине. Установлено, что увеличение расхода жидкости при промывке скважины приводит к уменьшению погрешности расчета температуры с постоянным диаметром. Так, разница расчетных температур напротив нижней и верхней границ интервала нарушения диаметра при расходе 2,54 кг/с составляет 1 и 0,6 °С для трубы и затрубного пространства, соответственно. Для расхода 12,7 кг/с эти изменения составляют 0,55 и 0,6 °С.

Температурное поле при наличии интервалов изменения диаметра скважины значительно отличается

от рассчитанных для номинального диаметра в интервалах с измененным диаметром. При моделировании с помощью симулятора это необходимо учитывать. Если моделирование проводится для постоянного по глубине диаметра скважины, рекомендуется на фактически измеренных термограммах выделить интервалы изменения диаметра и исключить их при определении распределения ненарушенной температуры горных пород.

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования РФ по теме «Создание интеллектуальной комплексной технологии исследования и интерпретации данных промыслово-геофизических исследований ...», соглашение № 075-11-2021-061 от 25 июня 2021 г.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Семенова А.П. Теоретическое изучение теплопереноса в скважине и горном массиве применительно к задачам геотермии: дис. ... канд. физ.-мат. наук. – М., 2006. – 149 с.
- Raymond L.R. Temperature distribution in a circulating drilling fluid // Journal of Petroleum Technology. – 1969. – V. 246. – P. 333–341.
- Bittleston S.H. A two-dimensional simulator to predict circulating temperatures during cementing operations (SPE 20448) // 65th Annual Technical Conference and Exhibition of the SPE. – New Orleans, USA, SPE Publ., 1990. – 12 p.
- Beirute R.M. A circulating and shut-in well-temperature profile simulator // Journal of Petroleum Technology. – 1991. – V. 43. – P. 1140–1146.
- Schoepel R.J., Bennett R.E. Numerical simulation of borehole and formation temperature distributions while drilling to total depth (SPE 3364) // 46th Annual Fall Meeting of the SPE of AIME. – New Orleans, USA, SPE Publ., 1971. – 10 p.
- Thompson M., Burgess T.M. The prediction of interpretation of downhole mud temperature while drilling (SPE 14180) // 60th Annual Technical Conference and Exhibition of SPE. – Las Vegas, USA, SPE Publ., 1995. – 12 p.
- TEMPLOPI: a thermal simulator for estimation of drilling mud and formation temperatures during drilling of geothermal wells / A. Garcia, I. Hernandez, G. Espinosa, E. Santoyo // Computers and Geosciences. – 1998. – V. 24. – P. 465–477.
- GEOTRANS: a computer code for estimating transient temperatures in the completion of geothermal wells with drilling fluid losses / A. Garcia, G. Espinosa, E. Santoyo, P. Mendoza, I. Hernandez // Proceedings World Geothermal Congress 2000. – Tohoku, Japan, 2000. – P. 4023–4028.
- Jiang M. A heat transfer model for accurate wellbore temperature prediction during drilling // International Journal of Petroleum and Petrochemical Engineering. – 2019. – V. 5. – P. 1–4.
- Temperature log simulations in high-enthalpy boreholes / J. Wang, F. Nitschke, M.G. Korzani, Th. Kohl // Geothermal Energy. – 2019. – V. 7. – № 32. – P. 1–21.

11. Transient heat transfer model for wellbore and formation of shut-in offshore oil wells (SPE 196277) / T. Fang, Y. Liu, J. Bai, H. Chen, Sh. Zhao, Y. Li, M. Pang, Yu. Wang // IATMI Asia Pacific Oil & Gas Conference and Exhibition. – Beijing, China, China University of Petroleum Publ., 2019. – 10 p
12. Акчурин Р.З., Рамазанов А.Ш. Моделирование распределения температуры в бурящейся скважине // Вестник Башкирского государственного университета. – 2016. – Т. 21. – № 2. – С. 269–273.
13. Программа для ЭВМ «DrillSim» для моделирования распределения температуры в скважине при бурении, промывке и простое: пат. Рос. Федерация, № 2020619596, заявл. 27.07.2020; опубл. 19.08.2020.
14. Kutasov I.M., Eppelbaum L.V. Determination of formation temperature from bottom-hole temperature logs - a generalized Horner method // Journal of Geophysics and Engineering. – 2005. – V. 2. – P. 90–96.
15. Fundamentals of heat and mass transfer. 8th ed. / Th.L. Bergman, A.S. Lavine, F.P. Incropera, D.P. deWitt. – USA: University of Notre Dame, 2006. – 1070 p
16. Булакова Г.Т., Шарифуллин А.Р., Ситдилов М.Р. Математическое моделирование тепломассопереноса в вертикальной трещине гидроразрыва пласта при закачке и очистке трещины // Вестник Тюменского государственного университета. Физико-математическое моделирование. Нефть, газ, энергетика. – 2020. – Т. 6. – № 2 (22). – С. 41–62.
17. Михеев М.А., Михеева И.М. Основы теплопередачи. – М.: Изд-во «Энергия», 1977. – 344 с.
18. Чекалюк Э.Б. Термодинамика нефтяного пласта. – М.: Изд-во «Недра», 1965. – 238 с.
19. Zazovsky A.F., Haddad S.S., Tertychnyy V.V. Thermal history reconstruction and estimation of formation temperature using wireline formation tester measurements (SPE 92263) // SPE Europe/EAGE Annual Conference. – Madrid, Spain, SPE Publ., 2005. – 8 p.
20. Zazovsky A.F., Haddad S.S., Tertychnyy V.V. A Method for formation temperature estimation using wireline formation tester measurements (SPE 92262) // SPE Western Regional Meeting. – Irvine, USA, SPE Publ., 2005. – 10 p.

Поступила 04.06.2022 г.

Информация об авторах

Акчурин Р.З., старший преподаватель кафедры геофизики Физико-технического института Башкирского Государственного Университета.

Рюков Р.И., аспирант, Башкирский Государственный Университет.

Вахитова Г.Р., кандидат технических наук, доцент кафедры геофизики Физико-технического института Башкирского Государственного Университета.

Рамазанов А.Ш., доктор технических наук, профессор кафедры геофизики Физико-технического института Башкирского Государственного Университета.

UDC 550.8.013, 550.8.053

INVESTIGATION OF THE TEMPERATURE FIELD IN A WELL WITH THE VARIABLE DIAMETER AFTER CIRCULATION

Ruslan Z. Akchurin¹,
ac4urin.ruslan@yandex.ru

Ramil I. Ryukov¹,
ramilryukov97@mail.ru

Guzel R. Vakhitova¹,
guzel.geotec@mail.ru

Ayrat Sh. Ramazanov¹,
ramaz-1953@mail.ru

¹ Bashkir State University,
32, Zaki Validi street, Ufa, 450076, Russia.

Relevance. At present, there are no general methods for determining temperature of an undisturbed formation from thermometry data in non-equilibrium wells. When drilling a well, the natural temperature distribution in the formation surrounding the well changes significantly and it takes a considerable time to wait for its restoration. This process can last up to a number of months and even more in deep wells. Therefore, the undisturbed formation can only be directly measured in a small number of shut-in wells. Modeling the temperature recovery process in wells after drilling is the only way to predict the undisturbed formation temperature, required to the equilibrium temperature gradient and heat flux density determination in order to provide necessary initial data for basin and hydrocarbon system modeling.

Object: drilling wells and preliminary flushed wells before temperature studies. Well diameter changes after drilling due to the presence of cavities. The cavities affect the temperature distribution after the well casing, since the volume of injected cement in these intervals is increasing.

Purpose of the research is to determine the temperature field disturbance in the depth intervals with a changed well diameter due to the cavitation process, as well as the cement sheath effect on the temperature distributions.

Results. The influence of cavity size (height and depth) on the temperature field in the well was studied. The authors developed the mathematical model describing flushing fluid movement in the well and taking into account changes in well diameter. It was shown that the temperature field opposite the cave intervals is strongly disturbed in an uncased well. It was revealed that with an increase in the flow rate of the flushing fluid the temperature field is most strongly disturbed opposite the bottom of the cavity interval.

Key words:

Temperature field, variable diameter well, well circulation, heat transfer, numerical simulation.

The research was financially supported by the Ministry of Science and Higher Education of the Russian Federation within the subject «Development of intelligent complex technology for studying and interpreting the data of well logging ...», agreement no. 075-11-2021-061, 25 June 2021.

REFERENCES

1. Semenova A.P. *Teoreticheskoe izuchenie teploperenosa v skvazhine i gornom massive primenitelno k zadacham geotermii*. Dis. Kand. nauk [Theoretical study of heat transfer in a borehole and a rock mass as applied to a geothermal tasks. Cand. Diss.]. Moscow, 2006. 149 p.
2. Raymond L.R. Temperature distribution in a circulating drilling fluid. *Journal of Petroleum Technology*, 1969, vol. 246, pp. 333–341.
3. Bittleston S.H. A two-dimensional simulator to predict circulating temperatures during cementing operations (SPE 20448). *65th Annual Technical Conference and Exhibition of the SPE*. New Orleans, USA, SPE Publ., 1990. 12 p.
4. Beirute R.M. A circulating and shut-in well-temperature profile simulator. *Journal of Petroleum Technology*, 1991, vol. 43, pp. 1140–1146.
5. Schoeppel R.J., Bennett R.E. Numerical simulation of borehole and formation temperature distributions while drilling to total depth (SPE 3364). *46th Annual Fall Meeting of the SPE of AIME*. New Orleans, USA, SPE Publ., 1971. 10 p.
6. Thompson M., Burgess T.M. The prediction of interpretation of downhole mud temperature while drilling (SPE 14180). *60th Annular Technical Conference and Exhibition of SPE*. Las Vegas, USA, SPE Publ., 1995. 12 p.
7. Garcia A., Hernandez I., Espinosa G., Santoyo E. TEMPLOPI: a thermal simulator for estimation of drilling mud and formation temperatures during drilling of geothermal wells. *Computers and Geosciences*, 1998, vol. 24, pp. 465–477.
8. Garcia A., Espinosa G., Santoyo E., Mendoza P., Hernandez I. GEOTRANS: a computer code for estimating transient temperatures in the completion of geothermal wells with drilling fluid losses. *Proceedings World Geothermal Congress 2000*. Tohoku, Japan, 2000. pp. 4023–4028.
9. Jiang M. A heat transfer model for accurate wellbore temperature prediction during drilling. *International Journal of Petroleum and Petrochemical Engineering*, 2019, vol. 5, pp. 1–4.
10. Wang J., Nitschke F., Korzani M.G., Kohl Th. Temperature log simulations in high-enthalpy boreholes. *Geothermal Energy*, 2019, vol. 7, no. 32, pp. 1–21.
11. Fang T., Liu Y., Bai J., Chen H., Zhao Sh., Li Y., Pang M., Wang Yu. Transient heat transfer model for wellbore and formation of shut-in offshore oil wells (SPE 196277). *IATMI Asia Pacific Oil & Gas Conference and Exhibition*. Beijing, China, China University of Petroleum Publ., 2019. 10 p.
12. Akchurin R.Z., Ramazanov A.Sh. Modeling of the temperature distribution in drilling well. *Bulletin of the Bashkir State University*, 2016, vol. 21, no. 2, pp. 269–273. In Rus.
13. Akchurin R.Z., Ramazanov A.Sh. *Programma dlya EVM «DrillSim» dlya modelirovaniya raspredeleniya temperatury v*

- skvazhine pri burenii, promyvke i prostoe [Computer program «DrillSim» for modeling temperature distribution in the well during drilling, flushing and shut-in processes]. Patent RF, no. 2020619596, 2020.
14. Kutasov I.M., Eppelbaum L.V. Determination of formation temperature from bottom-hole temperature logs - a generalized Horner method. *Journal of Geophysics and Engineering*, 2005, vol. 2, pp. 90–96.
 15. Bergman Th.L., Lavine A.S., Incropera F.P., DeWitt D.P. *Fundamentals of heat and mass transfer*. 8th ed. USA, University of Notre Dame, 2006. 1070 p.
 16. Bulgakova G.T., Sharifullin A.R., Sitdikov M.R. Mathematical modeling heat and mass transfer in a vertical hydraulic fracture crack during inflation and cleaning. *Tyumen State University Herald. Physical and Mathematical Modeling. Oil, Gas, Energy*, 2020, vol. 6, no. 2 (22), pp. 41–62. In Rus.
 17. Mikheev M.A., Mikheeva I.M. *Osnovy teploperedachi* [Heat-transfer principles]. Moscow, Energiya Publ., 1977. 344 p.
 18. Chekalyuk E.B. *Termodinamika neftyanogo plasta* [Thermodynamics of the oil reservoir]. Moskva, Nedra Publ., 1965. 238 p.
 19. Zazovsky A.F., Haddad S.S., Tertychnyy V.V. Thermal history reconstruction and estimation of formation temperature using wireline formation tester measurements (SPE 92263). *SPE Europe/EAGE Annual Conference*. Madrid, Spain, SPE Publ., 2005. 8 p.
 20. Zazovsky A.F., Haddad S.S., Tertychnyy V.V. A method for formation temperature estimation using wireline formation tester measurements (SPE 92262). *SPE Western Regional Meeting*. Irvine, USA, SPE Publ., 2005. 10 p.

Received: 4 June 2022.

Information about the authors

Ruslan Z. Akchurin, senior lecturer, Bashkir State University.

Ramil I. Ryukov, postgraduate student, Bashkir State University.

Guzel R. Vakhitova, Cand. Sc., associate professor, Bashkir State University.

Ayrat Sh. Ramazanov, Dr. Sc., professor, Bashkir State University.

УДК 519.246:622.1

ГЕОСТАТИСТИЧЕСКИЙ СМЫСЛ НЕОПРЕДЕЛЕННОГО МНОЖИТЕЛЯ ЛАГРАНЖА В МЕТОДАХ ОРДИНАРНОГО И ДВОЙНОГО КРИГИНГА

Степанов Дмитрий Юрьевич¹,
sdu@ispms.ru

Шестаков Валерий Владимирович²,
valeriy.shestakov@inbox.ru

Гергет Ольга Михайловна²,
gerget@tpu.ru

¹ Институт физики прочности и материаловедения СО РАН,
Россия, 634055, г. Томск, пр. Академический, 2/4.

² Национальный исследовательский Томский политехнический университет,
Россия, 634050, г. Томск, пр. Ленина, 30.

Актуальность. При разработке новых методов объемного моделирования вещественного состава геологических сред по данным скважинных и наземных наблюдений ранее авторы выдвинули предположение о возможности альтернативной оценки ошибки с помощью множителя Лагранжа. На практике, в силу малого количества скважинных измерений и большого расстояния между скважинами, важно не только использовать эффективную модель среды, но и оценить ее точность в межскважинном пространстве. Использование простых и понятных оценок точности моделирования является залогом снижения рисков принятия неверного решения по последующему бурению.

Метод неопределенных множителей Лагранжа используется при решении экстремальных задач с ограничениями типа равенства. В таких науках, как экономика, статистическая и классическая механика в множители Лагранжа вкладывается экономический или физический смысл, и он приобретает практическое значение. Однако в геостатистике при решении задачи выбора оптимальных методов интерполяции пространственных данных от множителя Лагранжа избавляются на первых этапах решения систем линейных уравнений. В связи с этим отсутствуют как аналитические, так и прикладные исследования его значения.

Цель: выяснить смысл множителя Лагранжа при решении систем ординарного и двойного кригинга; разработать новые способы получения нормированных оценок ошибки геостатистического моделирования; провести исследования полученных выражений на реальных материалах, а именно, при решении задач прогноза вещественного состава геологических сред.

Методы: ординарный кригинг, двойной кригинг, метод неопределенных множителей Лагранжа, метод Крамера.

Результаты. Для проведения исследований предложено в модель набора известных значений прогнозируемого параметра добавить неизвестную составляющую. На основе этой модели проведены аналитические и численные исследования, которые привели к новым выражениям, связывающим вес неизвестной составляющей и ковариационные свойства измерений с множителем Лагранжа. Предложены оценки весовой функции неизвестной составляющей. На примере реальных данных для решения задачи прогноза вещественного состава геологических сред показана практическая значимость множителя Лагранжа при анализе ошибок моделирования.

Ключевые слова:

Моделирование параметров геологической среды, ошибки моделирования, геостатистика, кригинг, неопределенные множители Лагранжа, статистические оценки.

Введение

Геостатистические методы активно используются в практике геолого-геофизических работ. Несмотря на наличие хороших теоретических работ по анализу их ошибок, статистический анализ редко применяется при моделировании реальных геологических сред. Возможно, это связано с желанием прикладных специалистов оперировать простыми и понятными цифрами. Традиционно проблемы анализа ошибок должны решаться путем перехода от анализа среднего значения квадрата ошибки к анализу среднеквадратической ошибки или нормированной среднеквадратической ошибки. Так, в работе [1] приводится описание анализа ошибок метода двойного кригинга и выдвигается предположение о связи множителя Лагранжа с ошибкой моделирования. Метод имеет общий характер, но разрабатывался специально для решения задач объемного моделирования петрофизических свойств

геологических сред. В отличие от других геостатистических методов, метод двойного кригинга объединяет две модели: первую, построенную по данным петрофизических измерений в скважинах, и вторую, построенную по данным наземных сейсмических наблюдений. В данном случае вопрос оценки точности моделирования может быть решен классическим подходом, т. е. оценкой дисперсии кригинга. Однако этот подход опирается на предположение о несмещенности оценки прогнозного значения, и в противном случае анализ дисперсии кригинга дает неверную интерпретацию. Для ординарного кригинга и, возможно, для других геостатистических методов анализ смещенности прогнозного значения не даст результатов ввиду отсутствия дополнительной информации в области интерполяции. Но для метода двойного кригинга, где сейсмические данные дополняют модель скважинных измерений, такой анализ позволяет по-

строить новую оценку точности моделирования параметров среды, обладающую большей детальностью.

Экстремальные задачи занимают достаточно большое место в практике вычислительных методов. В ситуации, когда необходимо решать линейные, нелинейные и дифференциальные уравнения с дополнительными ограничениями типа равенства, часто используют метод неопределенных множителей Лагранжа [2–4]. В литературе большое внимание уделяется результатам применения этого метода в различных областях исследований и разработок. Так, в работе [5] приводится большой ряд примеров внедрения метода при решении задач статической механики, классической механики, экономики, инженерии и т. п. Отмечается, что там, где были проведены исследования, смысл множителей Лагранжа всегда тесно связан со смыслом равенств-ограничений. Например, в экономике множители Лагранжа связывают со скоростью изменения оптимизируемой величины по отношению к некоторому параметру вычисления [4–7]. В других областях интерпретация физического значения множителей Лагранжа часто остается за рамками исследований. Геоэкономистика в этом плане не является исключением: в попытке найти оптимальные методы интерполяции пространственных данных от множителя Лагранжа избавляются на первых этапах решения систем линейных уравнений [8–12]. В данной работе приводится исследование смысла множителя при решении систем кригинга и возможности его использования для оценки точности интерполяции.

Общие положения кригинга

Основным предметом анализа геоэкономистики являются пространственные переменные, т. е. переменные с координатной привязкой. Примером пространственной переменной $z(\vec{\rho})$ являются параметры геологической среды, сейсмические атрибуты, объем выброса выхлопных газов и т. д. В геоэкономистике оценка неизвестной случайной пространственной переменной $Z(\vec{\rho})$ рассчитывается с использованием ограниченного набора известных значений z_i , измеренных в точках пространства $\vec{\rho}_i$ ($i = \overline{1, N}$) и попавших в пределы некоторого геометрического поля. В рамках ординарного кригинга вводится предположение, что внутри этого поля можно восстановить значение пространственной переменной путем весового суммирования [8]:

$$\hat{Z}(\vec{\rho}) = \sum_{i=1}^N w_i(\vec{\rho}) z_i, \quad (1)$$

где $w_i(\vec{\rho})$ – весовые функции. Среднее значение квадрата ошибки оценки $\hat{Z}(\vec{\rho})$ можно записать в следующем виде [8, 11]:

$$\sigma_{\text{ок}}^2(\vec{\rho}) = M \left[\left(Z(\vec{\rho}) - \hat{Z}(\vec{\rho}) \right)^2 \right] - \psi^2 - 2 \sum_{j=1}^N w_j(\vec{\rho}) c_{j0}(\vec{\rho}) + \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N w_i(\vec{\rho}) w_j(\vec{\rho}) c_{ji}, \quad (2)$$

где $c_{ji} = M[z_j z_i]$ – ковариации, определяемые значениями параметра в точках измерений; $c_{j0}(\vec{\rho}) = M[z_j Z(\vec{\rho})]$ – функция ковариации, определяемая значениями параметра в точке прогноза $\vec{\rho}$ и точках измерений; $\psi^2 = M[Z^2(\vec{\rho})]$ – вариация прогнозируемого поля.

Существует бесконечное множество равновероятных оценок $\hat{Z}(\vec{\rho})$, из всего этого множества необходимо выбрать одну единственную, удовлетворяющую некоторым критериям. В методе кригинга оценка $\hat{Z}(\vec{\rho})$ выбирается таким образом, чтобы она являлась несмещенной и удовлетворяла условию минимума среднего значения квадрата ошибки (2). Условие несмещенности достигается путем наложения на весовые функции ограничения [8, 11]:

$$\sum_{i=1}^N w_i(\vec{\rho}) = 1. \quad (3)$$

При соблюдении ограничения (3) оценка (1) обладает нулевой ошибкой смещения и выражение (2) можно расценивать как *дисперсию ординарного кригинга* [11].

Если верно предположение о непрерывной дифференцируемости $\sigma_{\text{ок}}^2(\vec{\rho})$ и $w_i(\vec{\rho})$, то задача оценки $\hat{Z}(\vec{\rho})$ становится классической задачей оптимизации с ограничением типа равенства и решается методом множителей Лагранжа. Функция Лагранжа в нашем случае примет вид:

$$L(\vec{\rho}) = \psi^2 - 2 \sum_{j=1}^N w_j(\vec{\rho}) c_{j0}(\vec{\rho}) + \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N w_i(\vec{\rho}) w_j(\vec{\rho}) c_{ji} + \mu(\vec{\rho}) \left(\sum_{i=1}^N w_i(\vec{\rho}) - 1 \right), \quad (4)$$

где $\mu(\vec{\rho})$ – неопределенный множитель Лагранжа. Задача минимизации выражения (4) решается путем его дифференцирования относительно каждого $w_i(\vec{\rho})$ и $\mu(\vec{\rho})$ и приравнивания их к нулю. В результате образуется система линейных алгебраических уравнений (СЛАУ) – *система уравнений ординарного кригинга* следующего вида [8, 11]:

$$\begin{cases} \sum_{i=1}^N w_i(\vec{\rho}) c_{ji} + \mu(\vec{\rho}) = c_{j0}(\vec{\rho}), & j = \overline{1, N}, \\ \sum_{i=1}^N w_i(\vec{\rho}) = 1. \end{cases} \quad (5)$$

При решении системы (5) во многих работах, начиная с работ Ж. Матерона, значение множителя Лагранжа игнорируется и в дальнейшем не рассматривается, т. к. «не представляет интереса». Если решение системы (5) нетривиально, тогда, в соответствии с методом Крамера, неизвестные СЛАУ могут быть получены с помощью определителя основной матрицы СЛАУ C и определителя матрицы $C_i(\vec{\rho})$, полученной путем замены i -го столбца C на столбец свободных членов [1]:

$$w_i(\vec{\rho}) = \frac{\det(C_i(\vec{\rho}))}{\det(C)}, \quad i = \overline{1, N}, \quad \mu(\vec{\rho}) = \frac{\det(C_{N+1}(\vec{\rho}))}{\det(C)}. \quad (6)$$

В соответствии с выражением (6), если $\vec{\rho} = \vec{\rho}_k$, т. е. точка прогноза совпадает с k -й точкой измерений, k -й столбец основной матрицы СЛАУ будет совпадать со столбцом свободных членов и, следовательно, $\det(C_k(\vec{\rho})) = \det(C)$, а $\det(C_i(\vec{\rho})) = 0$ для $\forall i \neq k$. Из этого следует, что решениями (5) будут являться $w_k(\vec{\rho}) = 1$ и $w_i(\vec{\rho}) = 0$ для $\forall i \neq k$, а $\mu(\vec{\rho}) = 0$. Таким образом, множитель Лагранжа всегда будет равен нулю в точках измерений.

Ввиду того, что $Z(\vec{\rho})$ неизвестно в точке прогноза, невозможно рассчитать правую часть системы (5) и её необходимо моделировать. В большинстве методов геостатистики моделирование правой части системы (5) осуществляется в предположении о том, что пространственная переменная удовлетворяет условиям однородности второго рода и вместо ковариации используется модельная вариограмма, представляющая собой статистический момент второго порядка [11, 13–15]. Модельная вариограмма используется для описания пространственной вариации переменной $Z(\vec{\rho})$ и зависит только от расстояния между точками пространства $\Delta\rho$, ввиду чего может быть рассчитана в любой точке исследуемого пространства.

Анализ ошибок кригинга

При геостатистическом моделировании существует возможность оценки ошибки кригинга (2), которая получена в общих выражениях, не зависит от процедур подготовки исходных данных и использует модельную вариограмму. Поэтому ее величина не имеет практического значения, но демонстрирует важные свойства кригинга: *ошибка растет с удалением от точек прогноза, а сама прогнозная величина стремится к среднему значению*. В этой ситуации единственным способом количественной оценки качества геостатистического моделирования остается сравнение гистограмм исходных и модельных данных.

В данной работе ошибки кригинга рассмотрены с другой стороны, а именно, когда исходное предположение о возможности представить прогнозное значение в виде взвешенной суммы известных значений не выполняется, что приводит к появлению отклонения:

$$Q(\vec{\rho}) = Z(\vec{\rho}) - \sum_{i=1}^N v_i(\vec{\rho}) z_i. \quad (7)$$

Если математическое ожидание (7) отлично от нуля (оценка (1) смещенная), то $Q(\vec{\rho})$ можно интерпретировать как недостающее (неизвестное) и представить в виде произведения веса и значения неизвестного: $Q(\vec{\rho}) = w_{N+1}(\vec{\rho}) z_{N+1}$. В последующих геостатистических методах (универсальный кригинг, кригинг с внешним дрейфом, кокригинг) это отклонение учитывают путем добавления в модель (1) тренда, дрейфа и т. п. В данной работе ограничимся условиями ординарного кригинга и будем считать, что если в исходный набор известных измерений добавить измерение z_{N+1} , то отклонение $Q(\vec{\rho})$ обратится в нуль.

Проведем анализ отклонения (7) на основе общей модели прогнозируемого значения, представляющего собой линейную комбинацию известных N значений и неизвестного $(N+1)$ -го значения:

$$Z(\vec{\rho}) = \hat{Z}(\vec{\rho}) + Q(\vec{\rho}) = \sum_{i=1}^N v_i(\vec{\rho}) z_i + v_{N+1}(\vec{\rho}) z_{N+1}.$$

Пусть для этой модели выполняется условие несмещенности:

$$\sum_{i=1}^N v_i(\vec{\rho}) + v_{N+1}(\vec{\rho}) = 1. \quad (8)$$

Для получения среднего квадрата ошибки оценим вариацию и множитель Лагранжа. Вариация модели:

$$\psi^2 = M[Z^2(\vec{\rho})] = \sum_{i=1}^N v_i(\vec{\rho}) \sum_{j=1}^N (v_j(\vec{\rho}) c_{ji} + 2v_{N+1}(\vec{\rho}) c_{jN+1}) + v_{N+1}^2(\vec{\rho}) \psi_{N+1}^2,$$

где ψ_{N+1}^2 – вариация неизвестной составляющей; $c_{jN+1} = M[z_j z_{N+1}]$. Для оценки множителя Лагранжа найдем определители матриц $C_i(\vec{\rho})$ и $C_{N+1}(\vec{\rho})$. Коэффициенты ковариации матрицы свободных членов СЛАУ (5) теперь могут быть представлены в виде линейной комбинации элементов основной матрицы:

$$c_{j0} = M[z_j Z(\vec{\rho})] = \sum_{i=1}^N v_i(\vec{\rho}) c_{ji} + v_{N+1}(\vec{\rho}) c_{jN+1}.$$

Следовательно, в общем случае матрицу $C_i(\vec{\rho})$ с учетом условия несмещенности (8) можно записать в виде:

$$C_i(\vec{\rho}) = \begin{pmatrix} c_{11} & \dots & ac_{11} + \dots + bc_{1N} + dc_{1N+1} & \dots & c_{1N} & 1 \\ c_{21} & \dots & ac_{21} + \dots + bc_{2N} + dc_{2N+1} & \dots & c_{2N} & 1 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \ddots & \vdots & \vdots \\ c_{N1} & \dots & ac_{N1} + \dots + bc_{NN} + dc_{NN+1} & \dots & c_{NN} & 1 \\ 1 & \dots & a + \dots + b + d & \dots & 1 & 0 \end{pmatrix},$$

$$a = v_1(\vec{\rho}), \quad b = v_N(\vec{\rho}), \quad d = v_{N+1}(\vec{\rho}). \quad (9)$$

Та как определитель матрицы является полилинейной функцией строк или столбцов [16], определитель матрицы (9) можно разложить в виде суммы следующего вида [1]:

$$\det(C_i(\vec{\rho})) = v_i(\vec{\rho}) \det(C) + v_{N+1}(\vec{\rho}) \det(G_i),$$

$$\text{где } G_i = \begin{pmatrix} 1 & \dots & i & \dots & N & N+1 \\ c_{11} & \dots & c_{1N+1} & \dots & c_{1N} & 1 \\ c_{21} & \dots & c_{2N+1} & \dots & c_{2N} & 1 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \ddots & \vdots & \vdots \\ c_{N1} & \dots & c_{NN+1} & \dots & c_{NN} & 1 \\ 1 & \dots & 1 & \dots & 1 & 0 \end{pmatrix} - \text{матрица, в}$$

которой, в отличие от матрицы $C_i(\vec{\rho})$, в i -м столбце стоят не ковариации известных значений с прогнозным, а ковариации известных значений с неизвестным. Аналогичным способом, анализируя матрицу $C_{N+1}(\vec{\rho})$, можно доказать, что:

$$\det(C_{N+1}(\vec{\rho})) = v_{N+1}(\vec{\rho}) \det(G_{N+1}).$$

Решением системы (5) будут значения:

$$w_i(\vec{\rho}) = v_i(\vec{\rho}) + v_{N+1}(\vec{\rho}) \frac{\det(G_i)}{\det(C)}, \quad i = \overline{1, N}, \quad (10)$$

$$\mu(\vec{\rho}) = v_{N+1}(\vec{\rho}) \frac{\det(G_{N+1})}{\det(C)}, \quad (11)$$

Таким образом, исходя из выражений (10), (11), если в текущей точке прогноза известных измерений не хватает для осуществления точной оценки в виде (1), ошибка оценки весовых функций и множитель Лагранжа прямо пропорциональны весовому коэффициенту неизвестного значения $v_{N+1}(\vec{\rho})$ и в общем случае отличны от нуля. Средний квадрат ошибки, соответственно, также становится отличным от нуля

$$\sigma_{\text{ок}}^2(\vec{\rho}) = v_{N+1}(\vec{\rho}) \left(v_{N+1}(\vec{\rho}) \psi_{N+1}^2 + \sum_{j=1}^N \left(v_j(\vec{\rho}) c_{jN+1} - \frac{\det(G_j)}{\det(C)} \left(\sum_{i=1}^N v_i(\vec{\rho}) c_{ji} - v_{N+1}(\vec{\rho}) c_{iN+1} \right) \right) \right) \quad (12)$$

и также прямо пропорционален весовому коэффициенту неизвестного значения. Сопоставляя выражения (11) и (12), видим, что множитель Лагранжа несет в себе информацию об ошибках прогнозирования, точнее о весе (значимости) недостающих данных, и

определяется ковариациями не только известных значений, но и неизвестного значения с известными. В работе [5] утверждается, что смысл множителя Лагранжа должен быть связан со смыслом ограничения. В постановке задачи кригинга ограничение (3) введено для получения несмещенной оценки прогнозируемого параметра, т. е. статистического критерия ограничения на ошибку. Как видно из приведенных выражений, множитель Лагранжа связан с ошибкой прогнозирования, но отличается от среднего значения квадрата.

В предельном случае, когда все известные и неизвестное измерения

- a) обладают нулевым математическим ожиданием;
- b) некоррелированы между собой ($c_{ji}=0$ и $c_{jN+1}=0$);
- c) обладают одинаковыми средними значениями квадрата ($c_{11}=c_{22} \dots = c_{NN} = \psi_{N+1}^2 = \psi_0^2$).

Определитель основной матрицы и определители матриц G_i принимают простые выражения:

$$\det(C) = -N\psi_0^{2N-2}, \quad \det(G_i) = \psi_0^{2N},$$

а множитель Лагранжа

$$\mu(\vec{\rho}) = -v_{N+1}(\vec{\rho}) \frac{\psi_0^2}{N} \quad (13)$$

оказывается прямо пропорционален весу неизвестного и вариации измерений и обратно пропорционален их количеству. Дисперсия кригинга:

$$\sigma_{\text{ок}}^2(\vec{\rho}) = v_{N+1}^2(\vec{\rho}) \psi_0^2. \quad (14)$$

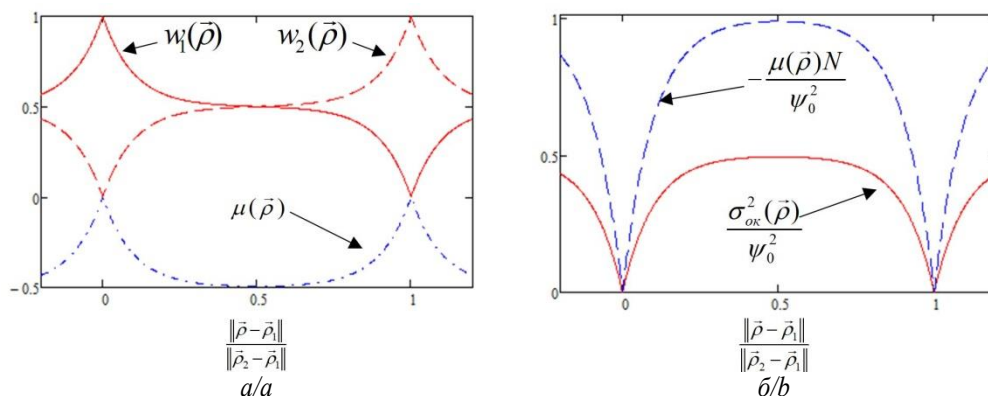


Рис. 1. Решение системы ординарного кригинга (a), нормированные дисперсия ординарного кригинга и множитель Лагранжа (б)

Fig. 1. Solution of the ordinary kriging system (a), normalized variance of ordinary kriging and Lagrange multiplier (b)

На рис. 1 приведены результаты расчета дисперсии ординарного кригинга (2) и множителя Лагранжа на примере модели из двух известных измерений ($N=2$) и ковариации $c(\Delta\rho) = \psi_0^2 e^{-\beta\Delta\rho}$, зависящей от расстояния между пространственными координатами $\Delta\rho$. Как видно из рисунка, множитель Лагранжа имеет схожее поведение с дисперсией кригинга. С точки зрения практического применения полученные выражения (11) и (13) для ординарного кригинга могут показаться незначимыми, т. к. в расчетах используются модельные вариограммы и по сравнению с оценкой дисперсии кригинга они не несут новой информации о точности моделирования.

Совсем другое дело, когда при геоestatистическом моделировании производится уточнение ковариационных связей за счет привлечения дополнительной информации. Так, в методе двойного кригинга оценка ковариаций осуществляется не по измеренным значениям, которые обычно получают по редкой сетке наблюдений, а по измерениям дополнительного параметра среды, измеренного по более частой сетке [1, 14]. Такой прием позволяет получить более достоверную ковариационную функцию прогнозируемого параметра и тем самым повысить точность прогноза, не увеличивая объема исходных данных. Например, при изменении ковариации, использованной в экспе-

рименте рис. 1, на иную ковариацию, когда на середине интервала между точками измерений она достигает максимально возможной величины $\frac{\psi^2}{2}$ (рис. 2, соответственно вид функции 1 и 2). Это обусловлено требованием сохранения статистических характеристик исследуемого процесса: сумма ковариаций точки прогноза и точек измерений не должна превосходить среднее значение квадрата

$$c(\|\bar{\rho} - \bar{\rho}_1\|) + c(\|\bar{\rho} - \bar{\rho}_2\|) \leq \psi^2.$$

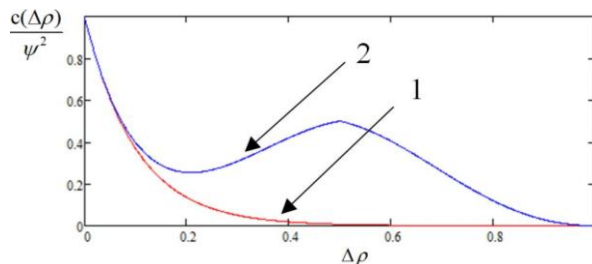


Рис. 2. Ковариационные функции экспериментов
Fig. 2. Covariance functions of experiments

Далее по методу двойного кригинга решая систему (5) с ковариацией вида 2 (рис. 2) мы получим ана-

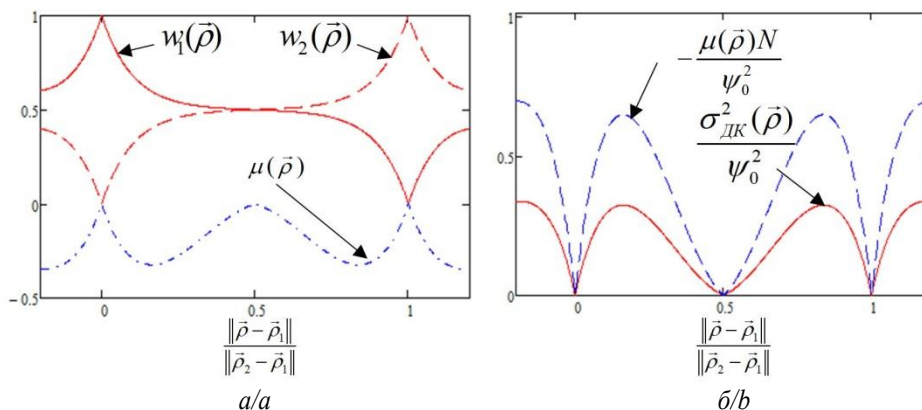


Рис. 3. Решение системы двойного кригинга (а), нормированные дисперсия двойного кригинга и множитель Лагранжа (б)
Fig. 3. Solution of the double kriging system (a), normalized double kriging variance and Lagrange multiplier (b)

Для проверки полученных соотношений были проведены расчеты по геолого-геофизическим данным. Проведена специальная обработка материалов метода общей глубинной точки (3D МОГТ) Конторовичского месторождения Томской области и данных геофизических исследований в скважинах (ГИС), пробуренных на этом же месторождении. Методом двойного кригинга осуществлялось моделирование петрофизических свойств в диапазоне глубин, охватывающих Меловые и Юрские отложения.

На первом этапе множество исходных данных включало в себя данные ГИС только трех скважин (рис. 4, а). На многих участках анализируемой области, за исключением отдельных зон, оценка весовой функции неизвестной составляющей оказалась зна-

логичные весовые функции и совершенно другой множитель Лагранжа (рис. 3, а). Очевидно и закономерно, что в данном случае для ординарного и двойного кригинга результаты прогнозирования будут одинаковыми, однако дисперсия ординарного кригинга будет иметь в середине интервала прогноза ошибку, близкую к 50 %, а дисперсия двойного кригинга и множитель Лагранжа будут свидетельствовать о точном прогнозе (рис. 3, б).

Основываясь на выражениях (13) и (14), можно построить оценки весовой функции неизвестной составляющей в виде:

$$\hat{\nu}_{N+1}(\bar{\rho}) = -\frac{N\mu(\bar{\rho})}{\psi_0^2}, \quad (15)$$

или

$$\hat{\nu}_{N+1}(\bar{\rho}) = -\frac{\sigma_{\text{ок}}^2(\bar{\rho})}{N\mu(\bar{\rho})}. \quad (16)$$

Обе полученные оценки имеют практическое значение и отличаются только процессом вычисления. Оценки неизвестной составляющей можно рассматривать и как нормированную ошибку кригинга, т. к. она дает значения в диапазоне [0,1], который является более удобным для интерпретации ошибок прогнозирования.

чимой (больше 0,8), что говорит о плохом качестве полученной модели. На втором этапе в расчеты были добавлены данные ГИС еще двух скважин, расположенных в центральной части площади. В результате значение оценки весовой функции существенно снизилось как вблизи скважин, так и на значительном удалении от них (рис. 4, б). На третьем этапе множество включало в себя данные ГИС семи скважин. Результаты моделирования приведены на рис. 4, в. Оценка весовой функции неизвестной составляющей оказалась менее 0,05 в большей части рассматриваемой области, а наибольшие значения (до 0,3) наблюдались в зонах, соответствующих краям сейсмического куба, где преобладают ошибки обработки сейсмических наблюдений.

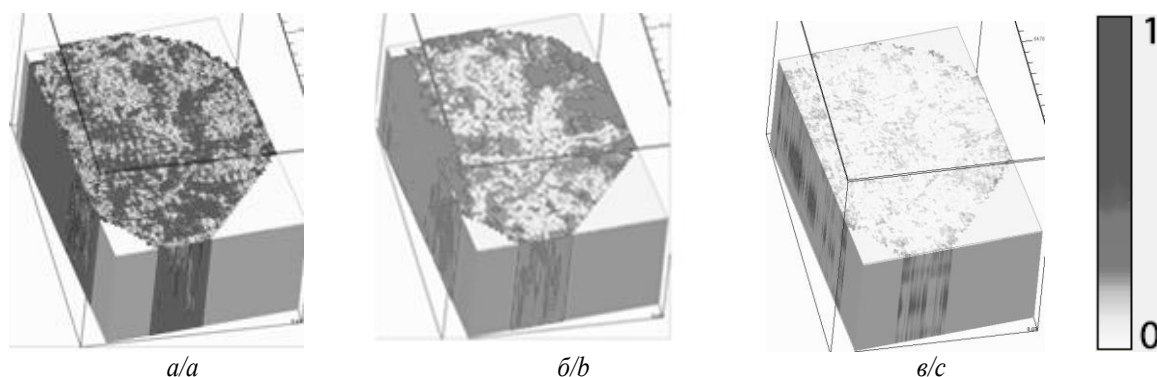


Рис. 4. Срез куба оценки весовой функции неизвестной составляющей, полученный вдоль Баженовской свиты при моделировании: по трем скважинам (а); пяти скважинам (б); семи скважинам (в). Конторовичское месторождение Томской области (с разрешения ООО «Томскгеонефтегаз»)

Fig. 4. Slice of the cube of the unknown component weight function estimation obtained along the Bazhenov formation during modeling: for three wells (a); five wells (b); seven wells (c). Kontorovichskoe field of the Tomsk region (with the permission of Tomskgeoneftegaz LLC)

Проведенный эксперимент показал возможность использования новых выражений для оценки точности построения объемной петрофизической модели и доказал достаточность выборки данных ГИС семи скважин для достижения ошибки моделирования в 5 %. В общем случае оценка веса неизвестной состав-

ляющей может быть использована для локализации зон недостаточности выборки данных ГИС с целью выявления возможных аномальных зон, требующих проведения дополнительных исследований или признания результатов моделирования в них недостоверными.

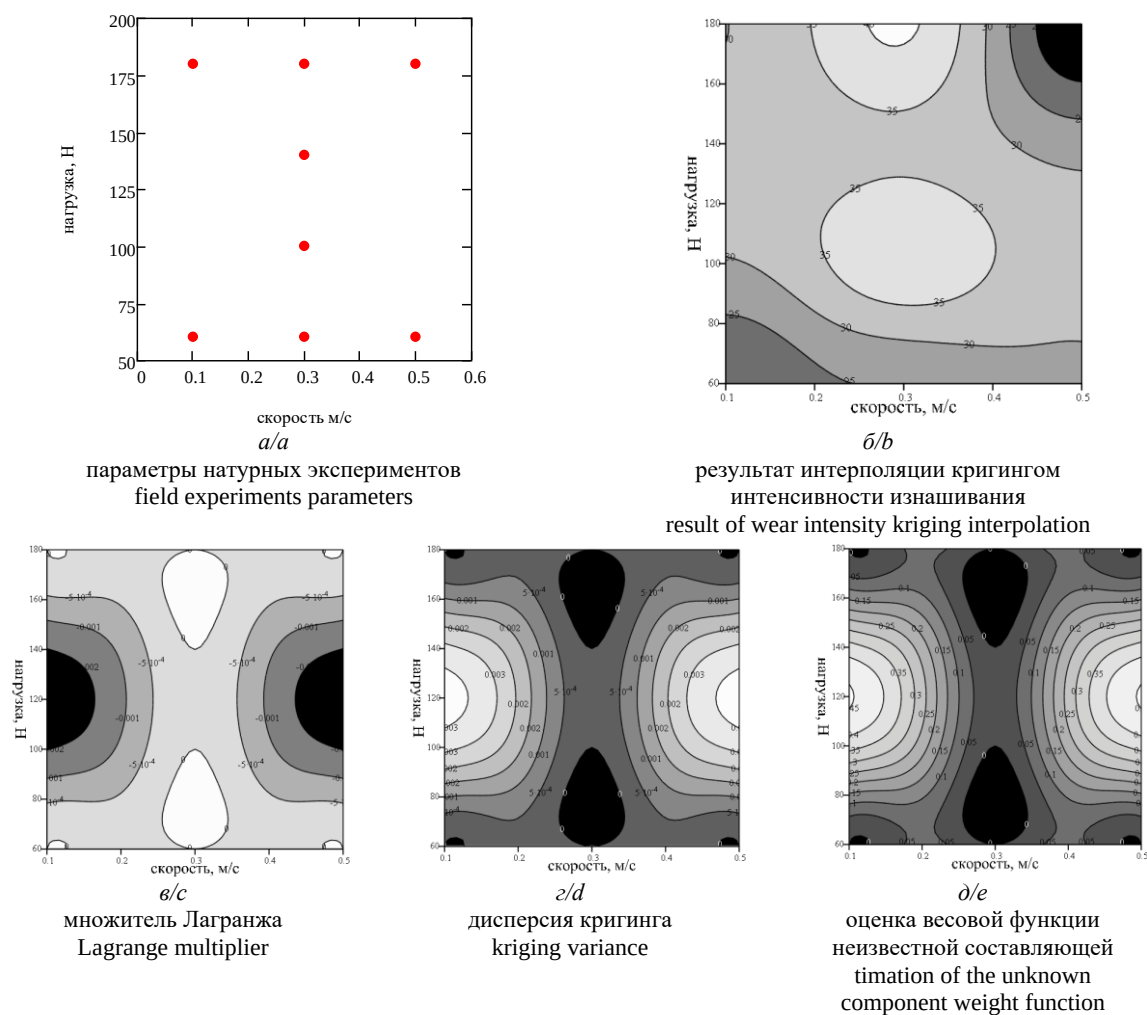


Рис. 5. Исследование множителя Лагранжа на примере изнашивания композитов на основе полиимида

Fig. 5. Research of the Lagrange multiplier on the example of wear of polyimide-based composites

С целью обоснования универсальности данного подхода были также проведены расчеты по материалам трибологических исследований антифрикционных композитов на основе полиимида [17–19].

Осуществлено восемь экспериментов с различными параметрами, определяющими координаты пространственных геоэкономических переменных на плоскости нагрузка–скорость (рис. 5, а). Итогом натурного эксперимента являлось измерение трибологических свойств материала – коэффициент трения, интенсивность изнашивания и температура. В области экспериментальных параметров измеренные значения интерполировались методом ординарного кригинга (пример на рис. 5, б). Вместе с оценкой прогнозной величины осуществлялась оценка дисперсии кригинга (2) и оценка весовой функции неизвестной составляющей (15), (16). Как показали расчеты, оценки (15) и (16) дают одинаковый результат (приведены на рис. 5, д). Множитель Лагранжа, как и дисперсия кригинга дают величины в размерности среднего значения квадрата прогнозной величины (на рис. 5, в, г в размерности $(\text{мм}^3/\text{Н}\cdot\text{м} \cdot 10^{-6})^2$). Для анализа величины ошибки прогнозирования с помощью дисперсии обычно проводят дополнительные расчеты, например, используют правило трех сигм или переходят к нормированному среднему значению квадрата, или используют приближенные выражения, полученные в предположении наличия белого шума [20, 21]. Выражения (15), (16) оказываются альтернативными данным подходам и позволяют получить нормированную ошибку, оценить уровень ошибки (на рис. 5, д не превышает 0,46) и локализовать области максимальной ошибки.

Заключение

Показано, что в случае, когда оценка геоэкономического моделирования имеет смещение, множитель Лагранжа несет в себе информацию об ошибках про-

гнозирования, точнее о весе недостающих данных. Множитель Лагранжа связан с дисперсией кригинга соотношениями (13), (14) и определяется весом неизвестной составляющей. Практическое значение проведенных исследований заключается в возможности оценивания нормированной ошибки кригинга через множитель Лагранжа по выражениям (15) или (16).

Проведены исследования на реальных измерениях свойств антифрикционных композитов при решении задач прогноза трибологических свойств. Показано, что разработанные оценки оказываются альтернативным подходом и позволяют получить нормированную ошибку прогнозирования и локализовать области максимальной ошибки.

Проведены исследования на реальных материалах ГИС и МОГТ при решении задач прогноза вещественного состава геологических сред. Показано, что полученные выражения оценки весовой функции неизвестной составляющей позволяют получить пространственное распределение нормированной ошибки моделирования и локализовать области, в которых моделирование осуществляется со значительными погрешностями. В последующем в условиях недостаточности данных ГИС совместная интерпретация результатов моделирования и подобных оценок нормированной ошибки должна позволить исключить некорректные заключения о вещественном составе геологических сред в зонах повышенного значения ошибок.

В основу выполненных аналитических исследований положены системы ординарного кригинга, а исследования проведены на реальных данных. Для более уверенного заключения о смысле неопределенного множителя Лагранжа необходимо провести подобные исследования и для других геоэкономических методов с целью обобщить полученные выводы.

Работа выполнена при частичной поддержке государственного задания ИФПМ СО РАН, проект FWRW-2021-0010.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Шестаков В.В., Степанов Д.Ю. Влияние репрезентативности исходных данных на результаты моделирования методом двойного крайнинга // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2019. – Т. 330. – № 1. – С. 88–97.
2. Bertsekas D.P. Constrained optimization and Lagrange multiplier methods. – Belmont: Academic press, 2014. – 395 p.
3. Осипов Г.С., Вашакидзе Н.С., Филиппова Г.В. Основы теории и методологии решения экстремальных задач методом Лагранжа // Постулат. – 2019. – № 3. – С. 1–9.
4. Моклячук М.П. Вариационное исчисление. Экстремальные задачи. – М.; Ижевск: НИЦ «Регулярная и хаотическая динамика», Институт компьютерных исследований, 2006. – 430 с.
5. Karabulut H. The physical meaning of Lagrange multipliers // European Journal of Physics. – 2006. – V. 27. – № 4. – P. 709–724.
6. Chiang, Alpha C. Fundamental Methods of Mathematical Economics (Third ed.). – USA: McGraw-Hill, 2005. – 386 p.
7. Бикетова С.В. Использование метода множителей Лагранжа в задачах на оптимизацию экономических процессов // Математические методы и модели техники, технологий и экономики. Сборник материалов Всероссийской научно-практической студенческой конференции. – СПб., 2021. – С. 38–42.
8. Matheron G. Traité de géostatistique appliquée // Paris, France: Editions BGRM, 1962. – 460 p.
9. Дюбрюль О. Геоэкономистика в нефтяной геологии. – М.: Институт компьютерных исследований, НИЦ «Регулярная и хаотическая динамика», 2009. – 256 с.
10. Morosov A.L., Bratvold R.B. Probability elicitation using geostatistics in hydrocarbon exploration // Computational Geosciences. – 2021. – V. 25. – P. 2109–2130.
11. Демьянов В.В., Савельева Е.А. Геоэкономистика: теория и практика. – М.: Наука, 2010. – 328 с.
12. Ковалевский Е.В. Геологическое моделирование на основе геоэкономистики. – М.: Изд-во EAGE, 2011. – 117 с.
13. Кошель С.М., Мусин О.Р. Методы цифрового моделирования: кригинг и радиальная интерполяция // Информационный бюллетень ГИС-Ассоциации. – 2001. – № 1 (28). – С. 23–24.
14. Шестаков В.В., Гергет О.М. Адаптация метода двойного крайнинга к структурным факторам геологической среды // Научный вестник новосибирского государственного технического университета. – 2020. – № 1. – С. 119–134.
15. Фрейдин К.В. Методы построения экспериментальных вариограмм случайного поля // Молодежный вестник Уфимского государственного авиационного технического университета. – 2020. – № 2. – С. 143–146.
16. Тыртышников Е.Е. Матричный анализ и линейная алгебра. – М.: Физматлит, 2007. – 480 с.
17. Effect of transfer film on tribological properties of anti-friction PEI- and PI-based composites at elevated temperatures / S.V. Panin, J. Luo, D.G. Buslovich, V.O. Alexenko, F. Berto, L.A. Kornienko // Polymers. – 2022. – V. 14. – № 6. – P. 1215–1243.

18. Omrani E., Rohatgi P.K., Menezes P.L. Tribology and applications of self-lubricating materials. 1st ed. – USA, Boca Raton: CRC Press, 2018. – 206 p.
19. Singer I.L., Pollock H.M. Fundamentals of friction: macroscopic and microscopic processes. – Germany, Dordrecht: Springer, 1992. – 621 p.
20. Bendat J.S., Piersol A.G. Random data: analysis and measurement procedures. – Hoboken: John Wiley & Sons, 2011. – 640 p.
21. Max J. Methodes et techniques de traitement du signal et applications aus mesures physiques. Vol. 2: Appareillage, methodes nouvelles, exemples d'applications. – Paris: Masson, 1987. – 256 p.

Поступила 06.07.2022 г.

Информация об авторах

Степанов Д.Ю., кандидат технических наук, научный сотрудник лаборатории механики полимерных композиционных материалов Института физики прочности и материаловедения СО РАН.

Шестаков В.В., аспирант Национального исследовательского Томского политехнического университета.

Гергет О.М., доктор технических наук, профессор отделения информационных технологий, Инженерной школы информационных технологий и робототехники, Национальный исследовательский Томский политехнический университет.

UDC 519.246:622.1

GEOSTATISTICAL MEANING OF THE INDEFINITE LAGRANGE MULTIPLIER IN THE ORDINARY AND DOUBLE KRIGING METHODS

Dmitry Y. Stepanov¹,
sdu@ispms.ru

Valery V. Shestakov²,
valeriy.shestakov@inbox.ru

Olga M. Gerget²,
gerget@tpu.ru

¹ Institute of Strength Physics and Materials Science SB RAS,
2/4, Akademicheskoy avenue, Tomsk, 634055, Russia.

² National Research Tomsk Polytechnic University,
30, Lenin avenue, Tomsk, 634050, Russia.

Relevance. When developing new methods of volumetric modeling of the material composition of geological environment according to borehole and surface observations, the authors previously proposed the possibility of an alternative estimate of the error using the Lagrange multiplier. In practice, due to small number of borehole measurements and large distance between boreholes, it is important not only to use effective model of the medium, but also to estimate its accuracy in the interwell space. The use of simple and understandable estimates of model accuracy is the key to reducing the risks of making incorrect decisions on subsequent drilling.

The method of indefinite Lagrange multipliers is used in solving extreme problems with constraints of equality type. In such sciences as economics, statistical and classical mechanics, Lagrange multipliers have economic or physical meaning and become of practical importance. However, in geostatistics, when solving the problem of selection of optimal methods of interpolation of spatial data, Lagrange multipliers are avoided at the first stages of solution of systems of linear equations. In this relation there are no both analytical and applied researches of its value.

Objective: to clarify the meaning of the Lagrange multiplier when solving systems of ordinal and double kriging; to develop new ways of obtaining normalized estimates of geostatistical modeling error; to carry out investigations of the obtained expressions on the real materials, namely, in solving the tasks of geological media material composition prediction.

Methods: ordinary kriging, double kriging, Lagrange multiplier method, Cramer's method.

Results. In order to conduct research it was proposed to add an unknown component to the model of the set of known values of the predicted parameter. Based on this model, analytical and numerical studies were conducted, which led to new expressions linking the weight of the unknown component and the covariance properties of the measurements with the Lagrange multiplier. Estimates of the weight function of the unknown component were proposed. The practical importance of the Lagrange multiplier in the analysis of modeling errors is shown on the example of real data for the solution of the problem of predicting the material composition of geological environments.

Key words:

Modeling geological environment parameters, modeling errors, geostatistics, kriging, indefinite Lagrange multipliers, statistical estimates.

The research was partially supported by the State task Institute of strength physics and materials science SB RAS, project FWRW-2021-0010.

REFERENCES

1. Shestakov V.V., Stepanov D.Yu. Influence of initial data representation on the simulation results by double kriging method. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2019, vol. no. 1, pp. 88–97. In Rus.
2. Bertsekas D.P. *Constrained optimization and Lagrange multiplier methods*. Belmont, Academic press, 2014, 395 p.
3. Osipov G.S., Vashakidze N.S., Filippova G.V. Fundamentals of the theory and methodology for solving extremal problems by the Lagrange method. *Postulat*, 2019, no. 3, pp. 1–9. In Rus.
4. Moklyachuk M.P. *Variatsionnoye ischisleniye. Ekstremalnye zadachi* [Variational calculus. Extreme tasks]. Moscow, Izhevsk, Institute for Computer Research Publ., 2006. 430 p.
5. Karabulut H. The physical meaning of Lagrange multipliers. *European Journal of Physics*, 2006, vol. 27, no. 4, pp. 709–724.
6. Chiang A.C. *Fundamental methods of mathematical economics* (Third ed.). USA, McGraw-Hill, 2005. 386 p.
7. Biketova S.V. Ispolzovanie metoda mnozhitel'ey Lagranzha v zadachakh na optimizatsiyu ekonomicheskikh protsessov [Using the method of Lagrange multipliers in problems of optimizing economic processes]. *Matematicheskie metody i modeli tekhniki, tekhnologiy i ekonomiki. Sbornik materialov Vserossiyskoy nauchno-prakticheskoy studencheskoy konferentsii* [Mathematical methods and models of engineering, technology and economics. Collection of materials of the All-Russian scientific and practical student conference]. St-Petersburg, 2021. pp. 38–42.
8. Matheron G. *Traité de géostatistique appliquée*. Paris, Editions BGRM, 1962. 460 p.
9. Dyubryul O. *Geostatistika v nefyanoy geologii* [Geostatistics in petroleum geology]. Moscow, Institute for Computer Research, National Research Center «Regular and Chaotic Dynamics» publ., 2009. 256 p.
10. Morosov A.L., Bratvold R.B. Probability elicitation using geostatistics in hydrocarbon exploration. *Computational Geosciences*, 2021, vol. 25, pp. 2109–2130.
11. Demianov V.V., Savelyeva E.A. *Geostatistika: teoriya i praktika* [Geostatistics: theory and practice]. Moscow, Nauka publ., 2010. 328 p.
12. Kovalevskiy E.V. *Geologicheskoe modelirovaniye na osnove geostatistiki* [Geological modeling based on geostatistics]. Moscow, EAGE Publ., 2011. 117 p.

13. Koshel S.M., Musin O.R. Metody tsifrovogo modelirovaniya: kriging i radialnaya interpolatsiya [Digital modeling methods: kriging and radial interpolation]. *Informatsionnyy byulleten GIS-Assotsiatsii*, 2001, no. 1 (28), pp. 23–24.
14. Shestakov V.V., Gerget O.M. The adaptation of the double kriging method to the geological environment structural factors. *Bulletin of the NSTU*, 2020, no. 1, pp. 119–134. In Rus.
15. Freydin K.V. Methods for constructing experimental variograms of a random field. *Youth Bulletin of the Ufa State Aviation Technical University*, 2020, no. 2, pp. 143–146. In Rus.
16. Tyrtysnikov E.E. *Matrichny analiz i lineynaya algebra* [Matrix analysis and linear algebra]. Moscow, Fizmatlit Publ., 2007. 480 p.
17. Panin S.V., Luo J., Buslovich D.G., Alexenko V.O., Berto F., Kornienko L.A. Effect of transfer film on tribological properties of anti-friction PEI- and PI-based composites at elevated temperatures. *Polymers*, 2022, vol. 14, no. 6, pp. 1215–1243.
18. Omrani E., Rohatgi P.K., Menezes P.L. *Tribology and applications of self-lubricating materials*. 1st ed. USA, Boca Raton, CRC Press, 2018. 206 p.
19. Singer I.L., Pollock H.M. *Fundamentals of friction: macroscopic and microscopic processes*. Germany, Dordrecht, Springer, 1992. 621 p.
20. Bendat J.S., Piersol A.G. *Random data: analysis and measurement procedures*. Hoboken, John Wiley & Sons, 2011. 640 p.
21. Max J. Methodes et techniques de traitement du signal et applications aus mesures physiques. *Appareillage, methodes nouvelles, exemples d'applications*. Paris, Masson, 1987. 256 p.

Received: 6 July 2022.

Information about the authors

Dmitry Y. Stepanov, Cand. Sc., researcher, Institute of Strength Physics and Materials Science SB RAS.

Valery V. Shestakov, postgraduate student, National Research Tomsk Polytechnic University.

Olga M. Gerget, Dr. Sc., professor, National Research Tomsk Polytechnic University.

УДК 620.9:662.92.001.5

ВОЗМОЖНОСТИ И ПЕРСПЕКТИВЫ ИСПОЛЬЗОВАНИЯ ОТРАБОТАННЫХ НЕФТЕПРОДУКТОВ КАК ТОПЛИВА

Кожевников Виталий Анатольевич¹,
kozhevnikovva@nitnn.transneft.ru

Попов Станислав Константинович²,
popovsk@mpei.ru

Строгонов Константин Владимирович²,
strogonovkv@mpei.ru

Федюхин Александр Валерьевич²,
fediukhinav@mpei.ru

Валинеева Анна Александровна²,
valineevaaa@mpei.ru

Мотов Егор Вячеславович²,
motovyv@mpei.ru

Малев Сергей Николаевич²,
malevsn@mpei.ru

¹ ООО «НИИ Транснефть»,
Россия, 117186, г. Москва, Севастопольский пр., 47а.

² Национальный исследовательский университет «МЭИ»,
Россия, 111250, г. Москва, вн.тер.г. муниципальный округ Лефортово, ул. Красноказарменная, 14, стр. 1.

Актуальность. Отработанные нефтепродукты, образующиеся в различных технологических системах, представляют собой материальный поток, который характеризуется множественностью разнородных составляющих (отработанные масла, нефтешламы, некондиционные жидкие нефтепродукты и др.) и распределенностью источников этих составляющих. Утилизация данного потока может быть реализована с соблюдением экологических нормативов и получением энергосберегающего эффекта путем использования отработанных нефтепродуктов как топлива. Реализация этой перспективы должна строиться на соответствующей нормативной базе.

Цель: систематизированное и полное представление информации, необходимой для эффективного использования отработанных нефтепродуктов в качестве топлива, разработка классификации топлива из отработанных нефтепродуктов на основе анализа литературных данных и результатов экспериментальных исследований.

Объект: отработанные нефтепродукты, к которым относятся отработанные масла, промывочные нефтяные жидкости, а также смеси нефти и нефтепродуктов, образующиеся при зачистке средств хранения, транспортирования, извлекаемые из нефтесодержащих вод.

Методы: анализ теплотехнических свойств отработанных нефтепродуктов для оценки перспектив их энергоэффективного использования в качестве топлива; исследование условий экологически эффективного сжигания отработанных нефтепродуктов в промышленных установках; разработка классификации топлива из отработанных нефтепродуктов.

Результаты. Выполнен анализ требований к отработанным нефтепродуктам как к топливу, которые установлены нормативными документами ряда стран. Приведены результаты исследования теплотехнических характеристик отработанных нефтепродуктов в качестве топлива. Получена аналитическая зависимость низшей теплоты сгорания отработанных нефтепродуктов от кинематической вязкости. Предложена классификация топлива из отработанных нефтепродуктов, которая может быть использована для создания соответствующей нормативной базы.

Ключевые слова:

Отработанные нефтепродукты, котельно-печное топливо, технические условия, классификация топлива, энергосбережение, экологические требования.

Введение

Функционирование множества технологических систем сопровождается образованием существенных объемов отработанных нефтепродуктов (ОНП) [1] различного генеза. В соответствии с действующим законодательством [2], ОНП должны быть утилизированы с обязательным соблюдением экологических нормативов.

Мировая практика обращения ОНП позволяет выделить направления их использования [3–5], представленные на рис. 1.

Такие факторы, как территориальная разрозненность мест образования ОНП, непостоянство количественного образования ОНП и длинные транспортные дистанции до пунктов сбора и переработки ОНП, существенно удорожают процедуры утилизации ОНП.

Потери ценных энергетических ресурсов (в ОНП) сопровождаются расходом моторного топлива на их перевозку и поставку котельных топлив на собственные нужды.

В то же время холодный климат России длительное время года вынуждает потреблять топливо для теплоснабжения в отопительный период и на энерготехнологии. Замещение низкосортных и топочных мазутов на качественное топливо из ОНП сокращает затраты теплоты источников на собственные нужды, увеличивает КПД котельно-печного оборудования, сокращает концентрации вредных веществ в отходящих газах и сужает санитарно-защитные зоны. Анализ [5] приводит к выводу, что в климатических условиях России приоритетом является сжигание ОНП в качестве котельно-печного топлива с получением энергосберегающего эффекта. Такое направле-

ние использования представляется актуальным и требует разработки современных технических решений, характеризующихся экологическим совершенством и энергоэффективностью.

Исследования [5, 6] позволили установить группы очищенных ОНП, характеристики которых могут соответствовать требованиям к топливам как энергетическому ресурсу (рис. 2).



Рис. 1. Направления использования отработанных нефтепродуктов

Fig. 1. Variants of used petroleum products application

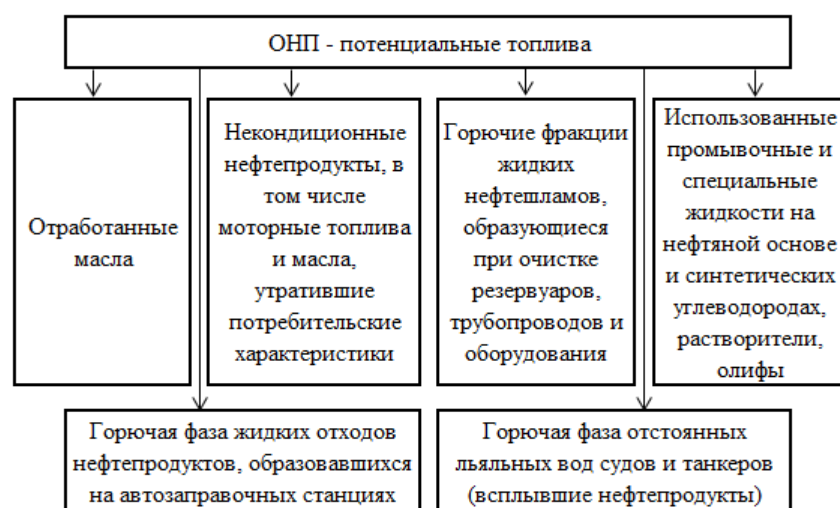


Рис. 2. Группы отработанных нефтепродуктов, потенциально близких по характеристикам к топливу

Fig. 2. Groups of used petroleum products potentially similar in characteristics to fuel

Представленные на рис. 2 ОНП имеют вязкости от 1 до 400 сСт при 50 °С, низшую теплоту сгорания от 40 до 43,5 МДж/кг [5, 6]. Вместе с тем проведенные исследования не дают достаточного представления о теплофизических и теплотехнических свойствах ОНП, рассматриваемых в качестве топлива.

Целью данной работы является систематизированное и полное представление информации, необходимой для эффективного использования ОНП в качестве топлива, создание классификации топлива из ОНП на основе анализа литературных данных и результатов экспериментальных исследований.

Связь состава загрязнителей и свойств нефтяных топлив

Анализ токсичности выбросов при использовании разных видов топлива приведен в монографиях International Agency for Research on Cancer [7, 8]. Результаты исследований Texas Department of Transportation (TxDOT) и Texas Tech University (TTU) с целью изучения углеводородного состава и свойств

отработанных масел в сравнении со свежими маслами, поиска путей их восстановления и продления жизненного цикла представлены в [9].

В материалах исследований Vermont Agency of Natural Resources [10] рассматриваются в качестве топлива отработанные масла от бензиновых и дизельных автомобилей, приводятся данные о составе загрязнителей и эмиссии выбросов при их сжигании в теплогенераторах, описаны методики исследований. Физико-химические свойства тяжелых нефтяных топлив, сведения об их токсикологической, санитарной и экологической опасности представлены в отчете CONCAWE [11]. В публикации Department of the Interior and Geological Survey US [12] представлен анализ содержания загрязнителей в тяжелых нефтяных топливах – мазутах и битумах. Приведено сопоставление осредненного состава и концентраций загрязнителей в этих топливах с маслами. Установлено, что масла являются более предпочтительным видом топлива в сравнении с обычными топливными смесями, мазутами и битумами.

В исследованиях министерства окружающей среды Новой Зеландии [3] приводится оценка выбросов загрязняющих веществ в различных производствах при сжигании ОНП, residual-топлив. Оценка эмиссии выбросов представлена в зависимости от технологий сжигания, типа и мощности сжигающих установок. Результаты исследования отработанных картерных и трансмиссионных масел, проведенные с целью определения их пригодности для регенерации, вторичного использования или сжигания, представлены в [13]. В качестве топливных характеристик изучены температура вспышки и содержание загрязнителей: мышьяка, кадмия, хрома, свинца, галогенов, полихлорированных бифенилов (ПХБ). Проведено сопоставление концентраций загрязнителей с нормами ЕС, стандартами ASTM и данными исследований США. По содержанию галогенов и ПХБ в определенных условиях не выявлено препятствий для сжигания отработанных масел в качестве топлива. Здесь и далее под содержанием галогенов понимается общее количество ионов хлора, йода, брома и фтора.

American Petroleum Institute (API) с участием National Oilheat Research Alliance (NORA) провели крупную аналитическую работу [14] по использованию ОНП. Дан сопоставительный анализ состава загрязнителей и других характеристик основных видов топлива и масел, приведена оценка токсичности. На основе проведенных исследований в США сформирована нормативно-правовая база в области использования ОНП как топлива, зафиксированная в разделе 40 федерального Свода правил (Code of Federal Regulations – CFR) Агентства по охране окружающей среды США (части 241, 279, 761 и 260 [15–18]).

Перечни нормируемых загрязняющих веществ, содержащихся в топливах и маслах, приводятся в каталогах American Society for Testing and Materials (ASTM), Petrochemical standards [19, 20]. Международными стандартами [21, 22] содержание ПХБ в ОНП не нормируется. Стандартами России ограничение содержания ПХБ в ОНП также не определено, но для нефти, сжигаемой в котельно-печном оборудовании, содержание хлорорганических соединений, включая ПХБ, установлено до 10 ppm [23].

За последние 30–40 лет по мере совершенствования технологий очистки нефти и нефтепродуктов, производства масел, топлива, нефтяных жидкостей и синтетических нефтепродуктов концентрации загрязнителей снизились многократно, что только повышает ценность ОНП как топлива. Динамика снижения концентрации загрязняющих веществ в маслах иллюстрируется данными табл. 1 [24]. По этой причине концентрации ПХБ и суммарные концентрации галогенов становятся главным критерием применимости ОНП в качестве топлива [8].

Для нефтешламов месторождений и нефтеперерабатывающих заводов состав углеводородов и содержание загрязняющих веществ в виде тяжелых металлов и солей представлены в работах [25–28]. Состав загрязнителей, образующихся в процессах регенерации ОНП, приведен в справочнике [29] министерства природных ресурсов РФ. Близкими к ОНП по составу

и свойствам являются мазуты, дизельные и судовые топлива, требования к которым на территории России изложены в [22].

Таблица 1. Изменение концентрации загрязнителей в маслах за 1980–2000-е гг.

Table 1. Change in the concentration of pollutants in oils for the 1980–2000s

Наименование загрязнителя Pollutant name	Концентрация загрязнителя Pollutant concentration, ppm		
	1980-е г. in 1980s	1990-е г. in 1990s	2000-е г. in 2000s
Мышьяк/Arsenic	20	–	0,06
Барий/Barium	137	1–7	3,4
Кадмий/Cadmium	4	0,3–7	1
Хром/Chrome	38	2–7	4,1
Свинец/Lead	555	20–146	4,1
Цинк/Zinc	707	570–2370	2
Галогены/Halogens	5500	100–440	5,7–7,8

В национальных законодательствах в сфере обращения отходов практикуется разделять все ОНП на «used» (используемые) и «waste» (отходы), при этом устанавливаются свои нормы содержания загрязнителей. Так, например, в CFR США нормируется содержание мышьяка, кадмия, хрома и свинца. В Канаде контролируется содержание в ОНП не хрома, а ртути [30, 31]. Нормативы содержания расширенного перечня металлов в ОНП, разрешенных к сжиганию в Великобритании в качестве котельно-печного топлива, приведены в приложении Processed Fuel Oil (PFO) к стандарту BS 2869 [32], согласно которому допустимая суммарная концентрация металлов составляет 415 ppm (для свежих дистиллированных топлив – 65 ppm). Однако далеко не все вещества, содержащиеся в ОНП, подлежат обязательному контролю нормативами США [33, 34] или других стран.

Анализ представленных материалов иностранных и отечественных исследований, в том числе результатов исследований Национального исследовательского университета «МЭИ» (Россия, г. Москва) – далее НИУ «МЭИ», в сфере нефтяных топлив приводит к выводу о наличии связи вязкости топлив с их теплотой сгорания и другими теплотехническими характеристиками, влияющими на температуру факела и возможности эффективного обезвреживания галогеносодержащих загрязнителей. Выполненный анализ, результаты которого представлены в данной статье, позволил систематизировать и пополнить сведения о теплотехнических характеристиках ОНП как топлива.

Теплотехнические характеристики отработанных нефтепродуктов

На основе опубликованных данных по температурным зависимостям вязкости различных нефтяных топлив установлена связь между диапазонами вязкостей и характерной для этих диапазонов теплотой сгорания топлив [35–37]. Накопленный многолетний опыт исследования различных ОНП как топлива дает основание принять допущение, что нефтепродукты – топлива и отработанные нефтепродукты – с одинаковой вязкостью имеют одинаковую теплоту сгорания. Это позволяет оценить теплоту сгорания ОНП по его вязкости [37].

В исследовании [38] на основе обработки литературных и собственных экспериментальных данных получена аналитическая зависимость низшей теплоты сгорания ОНП Q_l^a (кДж/кг) от кинематической вязкости ν (мм²/с или сСт при 50 °С)

$$Q_l^a = 44000 - 500 \log_2(\nu). \quad (1)$$

Формула справедлива в диапазоне значений кинематической вязкости от 2 до 128 сСт при 50 °С, в котором величина Q_l^a изменяется в диапазоне от 40500

до 43500 кДж/кг. В табл. 2 представлены результаты [38] экспериментального исследования зависимости низшей теплоты сгорания ОНП (строка 2) от кинематической вязкости (строка 1), а также расчетов по формуле (1) (строка 3). Относительное расхождение экспериментальных и расчетных значений Q_l^a не превышает 0,32 % в рассмотренном диапазоне вязкостей (строка 4).

Таблица 2. Сравнение экспериментальных и расчетных значений Q_l^a (Россия)

Table 2. Comparison of experimental and calculated values of Q_l^a (Russia)

№	Наименование показателя Indicator name	Значение показателя/Indicator value								
1	Кинематическая вязкость при 50 °С, сСт (эксперимент) Kinematic viscosity at 50 °C, cSt (experiment)	358,4	179,2	89,6	44,8	22,4	11,2	5,6	2,8	1,4
2	Q_l^a , кДж/кг (эксперимент) kJ/kg (experiment)	39810	40286	40762	41238	41714	42190	42667	43143	43619
3	Q_l^a , кДж/кг (расчет по (1)) kJ/kg (calculation by (1))	39757	40257	40757	41257	41757	42257	42757	43257	43757
4	Относительное расхождение Relative discrepancy Q_l^a , %	–0,13	–0,07	–0,01	0,05	0,10	0,16	0,21	0,26	0,32

Сопоставим результаты расчета по формуле (1) с характеристиками жидких топлив, опубликованными в различных источниках. В табл. 3–5 приведены данные нормативных документов России (СССР), Великобритании и Германии [39].

Экспериментальные данные, опубликованные в Великобритании [32, 40], дают возможность оценить адекватность формулы (1) в области низких значений кинематической вязкости (табл. 6), тогда как результаты [41] исследования эффективности гидродинамической обработки мазута и приготовления водотопливных эмульсий позволяют провести такой же анализ в области высоких значений кинематической вязкости (табл. 7).

Таблица 3. Сопоставление с данными ГОСТ 10585-99 «Топливо нефтяное. Мазут. Технические условия»

Table 3. Comparison with the data of SS 10585-99 «Oil fuel. Fuel oil. Specifications»

Наименование показателя Indicator name	Значение показателя для различных марок топлива Value of the indicator for different brands of fuel			
	Ф-5	Ф-12	М-40	М-100
Кинематическая вязкость при 50 °С, сСт Kinematic viscosity at 50 °C, cSt	36,2	89,0	250	580
Содержание воды Water content, %	0,3	0,3	1	1
Зольность/Ash content, %	0,05	0,1	0,12	0,14
Механические примеси Mechanical impurities, %	0,1	0,12	0,5	1
Q_l^a (в пересчете на сухое топливо), кДж/кг in terms of dry fuel), kJ/kg	41454	41454	40740	40530
Q_l^a , кДж/кг (расчет по (1)) kJ/kg (calculation by (1))	41411	40762	40017	39410
Относительное расхождение Relative discrepancy Q_l^a , %	–0,10	–1,70	–1,81	–2,84

Таблица 4. Сопоставление с данными Британского института стандартов BS 2869-57

Table 4. Comparison with the data of the British Standards Institute BS 2869-57

Наименование показателя Indicator name	Топливо для отопления Fuel for heating	Мазуты для промышленных и морских топок Fuel oil for industrial and marine furnaces			
	D	E	F	G	H
Кинематическая вязкость при 50 °С, сСт Kinematic viscosity at 50 °C, cSt	6	36	125	370	690
Содержание воды Water content, %	0,25	0,5	1	1	1,5
Коксуемость Coking ability, %	0,2	–	–	–	–
Зольность/Ash content, %	0,01	–	–	–	–
Высшая теплота сгорания, кДж/кг Higher heating value, kJ/kg	43157	42738	42319	41900	41481
Q_l^a (в пересчете на сухое топливо), кДж/кг (in terms of dry fuel), kJ/kg	40643	40015	39721	39512	39302
Q_l^a , кДж/кг (расчет по (1)) kJ/kg (calculation by (1))	42708	41415	40517	39734	39285
Относительное расхождение Relative discrepancy Q_l^a , %	4,83	3,38	1,96	0,56	–0,04

Экспериментальные данные США по характеристикам мазутов Residual Fuel Oil [8, 42, 43] представлены в табл. 8.

В НИУ «МЭИ» проведен комплекс исследований теплотехнических свойств образцов ОНП, предоставленных ООО «НИИ Транснефть». Некоторые результаты исследования приведены в табл. 9.

Таблица 5. Сопоставление с данными по мазутам стандарта Германии DIN-51603-60

Table 5. Comparison with data on fuel oils of the German standard DIN-51603-60

Наименование показателя Indicator name	Значение показателя для различных марок топлива Value of the indicator for different brands of fuel			
	EL	L	M	S
Кинематическая вязкость при 50 °C, cSt Kinematic viscosity at 50 °C, cSt	3,5	7	38	450
Коксуемость/Coking ability, %	0,05	2	10	15
Зольность/Ash content, %	0,01	0,04	0,07	0,15
Содержание воды/Water content, %	0,1	0,3	0,5	0,5
Механические примеси Mechanical impurities, %	0,05	0,1	0,25	0,5
Q_i^a (в пересчете на сухое топливо), кДж/кг/(in terms of dry fuel), kJ/kg	41900	41062	40224	39386
Q_i^a , кДж/кг (расчет по (1)) kJ/kg (calculation by (1))	43096	42596	41376	39593
Относительное расхождение Relative discrepancy Q_i^a , %	2,78	3,60	2,78	0,52

Таблица 6. Сопоставление с данными исследований [32, 40] (Великобритания)

Table 6. Comparison with research data [32, 40] (UK)

Наименование показателя Indicator name	Значение показателя для различных марок топлива Value of the indicator for different brands of fuel	
	PFO	LFO
Кинематическая вязкость при 50 °C, cSt Kinematic viscosity at 50 °C, cSt	8	8
Плотность, кг/л/Density, kg/l	0,8978	0,93
Содержание воды/Water content, %	0,54	0,25
Зольность/Ash content, %	0,08	0,04
Содержание серы/Sulfur content, %	1	1
Q_i^a , кДж/л (kJ/l)	38200	39710
Q_i^a , кДж/кг (kJ/kg)	42548	42699
Q_i^a , кДж/кг (расчет по (1)) kJ/kg (calculation by (1))	42500	42500
Относительное расхождение Relative discrepancy Q_i^a , %	–0,11	–0,47

Таблица 7. Сопоставление с данными исследований [41] (Россия)

Table 7. Comparison with research data [41] (Russia)

Наименование показателя Indicator name	Значение показателя для различных марок топлива Value of the indicator for different brands of fuel	
	ИТ	ГТ
Кинематическая вязкость при 50 °C, cSt/Kinematic viscosity at 50 °C, cSt	562,12	572,14
Плотность, кг/л/Density, kg/l	1000,4	1000,2
Содержание воды/Water content, %	0,06	0,24
Коксуемость/Coking ability, %	19,19	19,06
Содержание серы/Sulfur content, %	3,90	3,83
Высшая теплота сгорания, кДж/кг/Higher heating value, kJ/kg	41440	42119
Высшая теплота сгорания (в пересчете на сухое топливо), кДж/кг Higher heating value, kJ/kg (in terms of dry fuel)	41465	42199
Q_i^a (в пересчете на сухое топливо), кДж/кг/(in terms of dry fuel), kJ/kg	39526	40157
Q_i^a , кДж/кг (расчет по (1)) kJ/kg (calculation by (1))	39433	39420
Относительное расхождение Relative discrepancy Q_i^a , %	–0,17	–1,61

В исследовании [38] использовались распылительные форсунки, а также испарительное горелочное устройство для сжигания ОНП, представленное на рис. 3. Топливо (ОНП) подается в емкость – 1. В топливной емкости осуществляется розжиг и крекинг топлива. Первичный воздух на розжиг топлива всасывается под действием разрежения через щелевые зазоры между топливной емкостью и испарительной камерой. Регулирование всаса первичного воздуха осуществляется посредством изменения проходного сечения зазоров для воздуха путем перемещения подвижной топливной емкости в направлении параллельно оси дожигателя. Вторичный воздух подается в горелочное устройство компрессором через фурму – 5, снабженную соплом – 7. Фурма находится в потоке воспламененных газов внутри испарительной камеры, охлаждаясь изнутри потоком вторичного воздуха.

Измерение температуры факела проводилось термомпарами с открытым спаем. Измерения CO_2 , CO , O_2 , NO_x осуществлялись газоанализатором Vario Plus Industrial. Коксуемость определялась по методу Конрадсона (ГОСТ 19932-99), зольность – согласно ГОСТ 1461-75. Кинематическая вязкость определялась с помощью вискозиметра ВЗ-1 согласно ГОСТ 9070-75. Измерения теплоты сгорания ОНП проводились на калориметре ИКА С 2000.

Таблица 8. Сопоставление с данными исследований [8, 42] (США)

Table 8. Comparison with research data [8, 42] (USA)

Наименование показателя Indicator name	Значение показателя для различных марок топлива, Value of the indicator for different brands of fuel	
	RFO-70	RFO-100
Кинематическая вязкость при 50 °C, cSt Kinematic viscosity at 50 °C, cSt	70	100
Q_i^a , кДж/кг (kJ/kg)	40910	40610
Q_i^a , кДж/кг (расчет по (1)) kJ/kg (calculation by (1))	40935	40678
Относительное расхождение Relative discrepancy Q_i^a , %	0,06	0,17

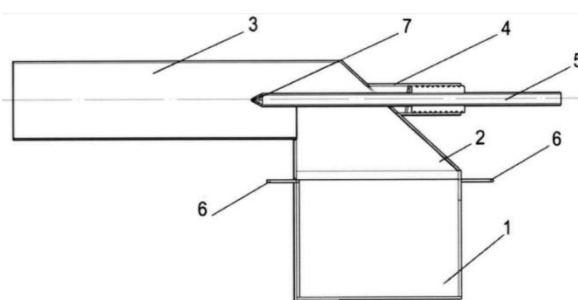


Рис. 3. Конструктивная схема горелочного устройства: 1 – топливная емкость; 2 – испарительная камера; 3 – труба-дожигатель; 4 – втулка регулирования положения воздушной фурмы; 5 – воздушная фурма; 6 – рукоятки для перемещения топливной емкости; 7 – сопло воздушной фурмы

Fig. 3. Design diagram of the burner device: 1 – fuel tank; 2 – evaporation chamber; 3 – afterburner pipe; 4 – air tuyere position control sleeve; 5 – air tuyere; 6 – handles for moving the fuel tank; 7 – air tuyere nozzle

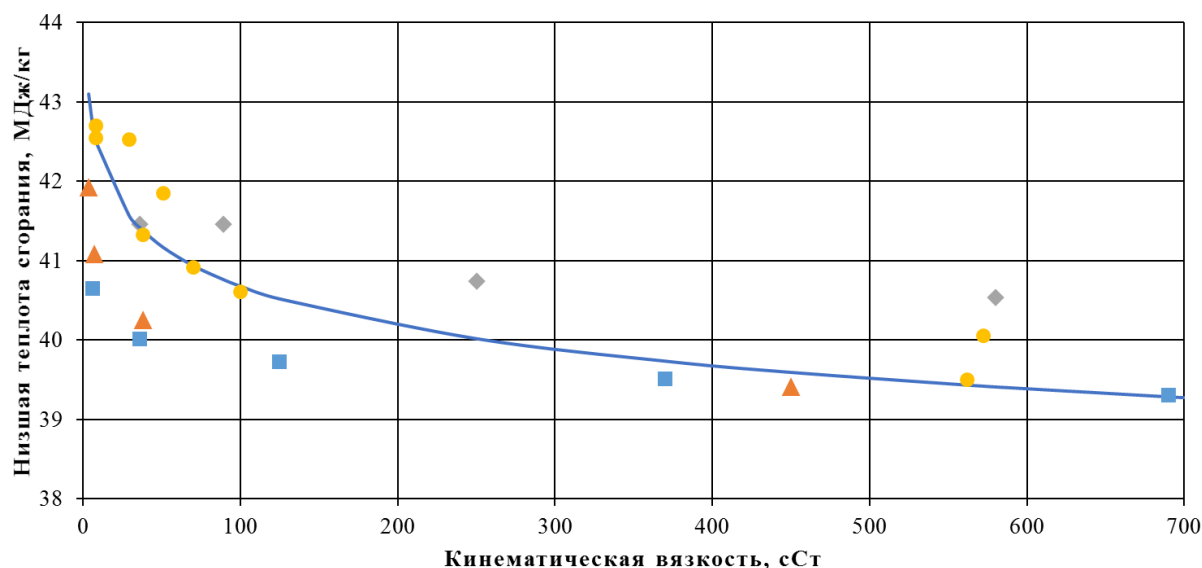


Рис. 4. Сопоставление значений низшей теплоты сгорания (НТС) с результатами расчета по формуле (1): — — расчетная НТС, табл. 2; ● — экспериментальная НТС, табл. 6–9; ◆ — ГОСТ 10585-99, табл. 3; ■ — BS 2869-57, Британский институт стандартов, табл. 4; ▲ — DIN-51603-60, Национальный стандарт Германии, табл. 5.

Fig. 4. Comparison of the lower heating value (LHV) with the calculation results according to the formula (1): — — calculated LHV, table 2; ● — experimental LHV, tables 6–9; ◆ — GOST 10585-99, table 3; ■ — BS 2869-57, British Standards Institute, table 4; ▲ — DIN-51603-60, German National Standard, table 5

Результаты сопоставления расчетных значений низшей теплоты сгорания по формуле (1) с данными, представленными в табл. 3–9, иллюстрируются рис. 4.

Таблица 9. Сопоставление с данными исследований НИУ «МЭИ» и ООО «НИИ Транснефть» (Россия)

Table 9. Comparison with the research data of the National Research Institute «MPEI» and LLC «Research Institute of Transneft» (Russia)

Наименование показателя Indicator name	Значение показателя для различных образцов отработанных нефтепродуктов Value of the indicator for different samples of used petroleum products		
	1	2	3
Кинематическая вязкость при 50 °С, сСт/Kinematic viscosity at 50 °C, cSt	51,08	38,16	29,28
Высшая теплота сгорания, кДж/кг Higher heating value, kJ/kg	44223	43504	45162
Q_l^a , кДж/кг (kJ/kg)	41842	41326	42519
Температура вспышки в открытом тигле (мин) Flash point in an open crucible (min), °C	142	138,1	201
Коксуемость/Coking ability, %	3,33	2,57	0,36
Зольность/Ash content, %	1,03	0,3	0,18
Температура факела при распылительном сжигании Temperature of the torch during spray combustion, °C	1185	1183	1200
Q_l^a , кДж/кг (расчет по (1)) kJ/kg (calculation by (1))	41163	41373	41564
Относительное расхождение Relative discrepancy Q_l^a , %	–1,65	0,11	–2,30

Анализ результатов приводит к выводу о достаточно высокой сходимости расчетных значений Q_l^a с

данными российских и зарубежных источников. Сведения о низшей теплоте сгорания в стандартах BS 2869-57 и DIN-51603-60 выглядят заниженными в рассматриваемом диапазоне вязкости и могут быть устаревшими ввиду ужесточения энергетических и экологических требований к топливам.

Классификация топлива из отработанных нефтепродуктов

Представленная в работах [35–38] зависимость низшей теплоты сгорания топлива из ОНП от его кинематической вязкости, описанная формулой (1), может быть представлена в виде

$$Q_l^a = 44000 - 500 N, \quad N = \log_2(v). \quad (2)$$

Диапазону кинематической вязкости от 2 до 128 сСт при 50 °С соответствует, согласно (2), ряд целых значений N от 1 по 7. На этой основе предлагается использовать данные значения N для нумерации сортов нефтяного топлива (НТ) из ОНП (табл. 10).

При выборе из данного ряда тех сортов НТ, которые могут быть использованы как котельно-печное топливо, необходимо учитывать следующие ограничения:

- нефтяные топлива с вязкостью менее 3,5 сСт при 50 °С могут иметь температуру вспышки ниже 38 °С, что не позволяет классифицировать их как топлива из ОНП [5, 9, 17, 20, 22];
- при сжигании нефтяных топлив с вязкостью около 65 сСт и выше не гарантируется возможность достижения минимально допустимой температуры факела 1200 °С [3, 14, 18, 37, 38].

Следовательно, в качестве котельно-печного топлива могут быть непосредственно использованы сорта НТ-2–НТ-6.

Таблица 10. Соответствие низшей теплоты сгорания и кинематической вязкости сорту нефтяного топлива (НТ)

Table 10. Compliance of the lower heating value and kinematic viscosity with the class of petroleum fuel (HT)

Сорт/Class (HT)	НТ-1	НТ-2	НТ-3	НТ-4	НТ-5	НТ-6	НТ-7
Кинематическая вязкость при 50 °С, сСт/Kinematic viscosity at 50 °C, cSt	2	4	8	16	32	64	128
Низшая теплота сгорания, кДж/кг/Lower heating value, kJ/kg	43500	43000	42500	42000	41500	41000	40500

Условное обозначение котельно-печного топлива из ОНП имеет вид:

НТ–НТС–КВТ–К,

где НТС – низшая теплота сгорания, МДж/кг; КВТ – кинематическая вязкость при 50 °С, мм²/с (сСт); К – категория топлива, I или II: категория I – топливо с «условно чистыми» техническими характеристиками;

категория II – топливо с «условно грязными» техническими характеристиками.

Технические характеристики топлив из ОНП приведены в табл. 11. К категории II отнесены топлива, для которых значения коксуемости, зольности и содержания загрязнителей (механических примесей, воды/рассола, серы, металлов) превышают аналогичные значения для категории I, но не более чем в 2 раза.

Таблица 11. Технические характеристики топлива из ОНП

Table 11. Technical characteristics of used petroleum products

Наименование показателя Indicator name		Значение в зависимости от сорта топлива Value depending on the fuel class				
		НТ-2	НТ-3	НТ-4	НТ-5	НТ-6
Низшая теплота сгорания, МДж/кг, не менее Lower heating value, MJ/kg, not less		43,0	42,5	42,0	41,5	41,0
Кинематическая вязкость при 50 °С, мм ² /с (сСт), не более Kinematic viscosity at 50 °C, mm ² /s (cSt), no more		4	8	16	32	64
Температура вспышки в открытом тигле, °С, не ниже Flash point in an open crucible, °C, not lower		43	50	57	64	71
Предельная температура фильтруемости, °С, не выше Maximum filterability temperature, °C, not higher		–5	0	0	0	+ 5
Содержание хлорид-ионов, мг/кг, не более Chloride ion content, mg/kg, no more		400	200	100	80	80
Для категории I/For category I						
Коксуемость, мас. %, не более/Coking ability, wt. %, no more		1,0	1,5	2,0	2,5	3,0
Зольность, мас. %, не более/Ash content, wt. %, no more		0,10	0,15	0,20	0,25	0,30
Доля механических примесей, мас. %, не более Proportion of mechanical impurities, wt. %, no more		0,10	0,15	0,20	0,25	0,30
Доля воды/рассола, мас. %, не более Proportion of water/brine, wt. %, no more		0,3	0,4	0,5	0,6	0,7
Содержание серы, мас. %, не более Sulfur content, wt.%, no more		0,2	0,3	0,4	0,5	0,6
Концентрация металлов, мг/кг, не более Concentration of metals, mg/kg, no more	Высокотоксичных/highly toxic (сумма/total Hg, Cd, As)	1,0	1,5	2,0	2,5	3,0
	Токсичных/toxic (сумма/total Ni, Cr, Tl, Sb, Co, Mn, V)	14,0	21,0	28,0	35,0	42,0
	Свинца/lead, Pb	10,0	15,0	20,0	25,0	30,0
	других металлов/other metals (сумма/total Cu, Zn)	100,0	150,0	200,0	250,0	300,0
	Всего/Total	125,0	187,5	250,0	312,5	375,0
Для категории II/For category II						
Коксуемость, мас. %, не более/Coking ability, wt. %, no more		2	3	4	5	6
Зольность, мас. %, не более/Ash content, wt. %, no more		0,2	0,3	0,4	0,5	0,6
Доля механических примесей, мас. %, не более Proportion of mechanical impurities, wt. %, no more		0,2	0,3	0,4	0,5	0,6
Доля воды/рассола, мас. %, не более Proportion of water/brine, wt. %, no more		0,6	0,8	1,0	1,2	1,4
Содержание серы, мас. %, не более Sulfur content, wt. %, no more		0,4	0,6	0,8	1,0	1,2
Концентрация металлов, мг/кг, не более Concentration of metals, mg/kg, no more	Высокотоксичных/highly toxic (сумма/total Hg, Cd, As)	2	3	4	5	6
	Токсичных/toxic (сумма/total Ni, Cr, Tl, Sb, Co, Mn, V)	28	42	56	70	84
	Свинца/lead, Pb	20	30	40	50	60
	других металлов/other metals (сумма/total Cu, Zn)	200	300	400	500	600
	Всего/Total	250	375	500	625	750

Нормативное содержание галогенов и ПХБ в топливе определяется в соответствии с установленными корреляционными связями с вязкостью и температурами обезвреживания, зависящими от теплоты сгора-

ния и условий сжигания [5, 17, 18, 37, 38]. Условия использования топлива обеспечиваются технологиями сбора и очистки ОНП, подготовки и сжигания данного топлива.

Сжигание топлива из ОНП следует вести с соблюдением температурных режимов обезвреживания га-

логеносодержащих загрязнителей, представленных в табл. 12.

Таблица 12. Условия экологически безопасного использования галогеносодержащих сортов топлива из ОНП

Table 12. Conditions for the environmentally safe use of halogen-containing fuels from used petroleum products

Сорт топлива/Fuel grade		НТ-2	НТ-3	НТ-4	НТ-5	НТ-6
Температура факела контрольная, °С, не ниже Control flame temperature, °C, not lower		1350	1300	1250	1200	1150
Содержание галогенов и ПХБ, мг/кг, не более Content of halogens and PCBs, mg/kg, no more	сумма галогенов amount of halogens	500	250	125	100	100
	концентрация ПХБ PCB concentration	25,00	12,50	6,25	5,00	5,00

Надо заметить, что сорт НТ-6 представляют в основном ОНП и мазуты, предназначенные для технологических печей, промышленных, энергетических и судовых агрегатов [44], которые целесообразно оснащать системами дожигания (учитывая пути попадания влаги в зону горения [45]) и/или очистки отходящих газов (например, влажным орошением), обеспечивающих должный уровень экологической безопасности.

Предложенная классификация для топлива из ОНП, будучи закреплённой соответствующим нормативным документом, явится научной основой организации процесса использования отработанных нефтепродуктов как источника энергии для топливотребляющих установок с соблюдением экологических требований и получением энергосберегающего эффекта.

Заключение

По итогам проведенных исследований получены следующие результаты:

1. Выполнен анализ требований к отработанным нефтепродуктам как к топливу, которые установлены нормативными документами ряда стран. В качестве топливных характеристик принимаются

во внимание температура вспышки, теплота сгорания и содержание загрязнителей: металлов, галогенов, полихлорированных бифенилов.

2. Выполнен комплекс аналитических и экспериментальных исследований теплотехнических характеристик ОНП: теплоты сгорания, кинематической вязкости, температуры вспышки, коксуемости и зольности. На этой основе получена аналитическая зависимость низшей теплоты сгорания ОНП от кинематической вязкости. Установлена достаточно высокая сходимость расчетных значений теплоты сгорания ОНП с данными российских и зарубежных источников.
3. На основе анализа и систематизации литературных данных, результатов экспериментальных исследований процесса сжигания ОНП в испарительных и распылительных горелочных устройствах сформулированы предложения по классификации топлива из ОНП.
4. Предложенная классификация топлива из ОНП рекомендуется как основа для создания отечественной нормативной документации по энергоэффективному и экологически безопасному сжиганию ОНП в теплотехнических установках.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. ГОСТ 26098-84. Нефтепродукты. Термины и определения. – М.: Стандартинформ, 2010. – 11 с.
2. Федеральный закон «Об отходах производства и потребления» № 89-ФЗ от 24.06.1998. URL: <https://docs.cntd.ru/document/901711591> (дата обращения: 25.02.2022).
3. Assessment of the effects of combustion of waste, oil and health effects associated with the use of waste oil as a dust suppressant. Woodward-Clyde. Ministry for the Environment New Zealand. 2000. URL: <https://www.mfe.govt.nz/sites/default/files/used-oil-dust-suppressant-aug00.pdf> (дата обращения: 25.02.2022).
4. Department of Agriculture, Water and the Environment. Australian Government. URL: <https://www.environment.gov.au/protection/used-oil-recycling> (дата обращения: 25.02.2022).
5. Кожевников В.А., Попов С.К. Энергоэффективное использование отработанных нефтепродуктов как топлива // Вестник МЭИ. – 2020. – № 2. – С. 42–51.
6. Николаева А.В., Кожевников В.А., Черных В.А. Анализ потенциала использования отработанных нефтепродуктов на собственные нужды в организациях системы «Транснефть» // Наука и технологии трубопроводного транспорта нефти и нефтепродуктов. – 2020. – Т. 10. – № 1. – С. 70–83. URL: <https://www.elibrary.ru/item.asp?id=42447161> (дата обращения: 25.02.2022).
7. IARC Monographs on the evaluation of carcinogenic risks to humans. Occupational Exposures in Petroleum Refining; Crude Oil and Major Petroleum Fuels. International Agency for Research on Cancer. – 1989. – V. 45. URL: [https://monographs.iarc.fr/wp-](https://monographs.iarc.fr/wp-content/uploads/2018/06/mono45.pdf)

[content/uploads/2018/06/mono45.pdf](https://monographs.iarc.fr/wp-content/uploads/2018/06/mono45.pdf) (дата обращения: 25.02.2022).

8. Fuel Oil Combustion. AP-42. United States Environment Protection Agency. URL: <https://www3.epa.gov/ttn/chief/ap42/ch01/bgdocs/b01s03.pdf> (дата обращения: 25.02.2022).
9. Re-refined oil performance and TxDOT used oil collection procedure / J.C. Jones, T.T. Maxwell, R. Narayan, A. Ertas. Final Report Project No. 0-1355. Texas Tech University. 1995. URL: <https://library.ctr.utexas.edu/digitized/texasarchive/phase1/1355-1.pdf> (дата обращения: 25.02.2022).
10. Vermont used oil analysis and waste oil fumace emissions study. Vermont Agency of Natural Resources, U.S. EPA. 1996. Vermont Used Oil Analysis & Waste Oil Fumace Emission Study (epa.gov). URL: https://www3.epa.gov/ttn/catc/dir1/w_oilacr.pdf (дата обращения: 25.02.2022).
11. Heavy fuel oils. Prepared by CONCAWE's Petroleum Products and Health Management Groups. Brussels. 1998. URL: https://clu-in.org/download/contaminantfocus/dnapl/Toxicology/concawe_heavy_fuel_oils_2002-00198-01-E.pdf (дата обращения: 25.02.2022).
12. Meyer R.F., Attanasi E.D., Freeman P.A. Heavy oil and natural bitumen resources in geological basins of the world. U.S. Geological Survey Open-File Report 2007-1084. 2007. URL: <https://pubs.usgs.gov/of/2007/1084/OF2007-1084v1.pdf> (дата обращения: 25.02.2022).
13. Pelitli V., Doğan Ö., Köroğlu H.J. Waste oil management: analyses of waste oils from vehicle crankcases and gearboxes // Global J. Environ. 2017. URL: https://www.gjesm.net/article_22148_03e030d8c64c45fd18a362bc6f9d017c.pdf (дата обращения: 25.02.2022).

14. Life cycle assessment of used oil management. Prepared for the American Petroleum Institute. 2017. URL: <https://www.api.org/~media/Files/Certification/Engine-Oil-Diesel/Publications/LCA-of-Used-Oil-Mgmt-ERM-10012017.pdf> (дата обращения: 25.02.2022).
15. Title 40 CFR part 241. Solid Wastes Used as Fuels or Ingredients in Combustion Units. Electronic Code of Federal Regulations. USA. URL: <https://www.ecfr.gov/cgi-bin/text-idx?SID=b656ab603496daf6d620241043222e6a&mc=true&node=pt40.27.241&rgn=div5> (дата обращения: 25.02.2022).
16. Title 40 CFR part 260. Hazardous Waste Management System: General. Electronic Code of Federal Regulations. USA. URL: <https://www.ecfr.gov/cgi-bin/text-idx?SID=b656ab603496daf6d620241043222e6a&mc=true&node=pt40.28.260&rgn=div5> (дата обращения: 25.02.2022).
17. Title 40 CFR part 279. Standards for the Management of Used Oil. Electronic Code of Federal Regulations. USA. URL: <https://www.ecfr.gov/cgi-bin/text-idx?SID=a6739eadc899514c81d8e3781bb37e7e&mc=true&node=pt40.29.279&rgn=div5> (дата обращения: 25.02.2022).
18. Title 40 CFR part 761. Polychlorinated Biphenyls (PCBs) Manufacturing, Processing, Distribution in Commerce, and Use Prohibitions. Electronic Code of Federal Regulations. USA. URL: <https://www.ecfr.gov/cgi-bin/text-idx?SID=a6739eadc899514c81d8e3781bb37e7e&mc=true&node=pt40.34.761&rgn=div5> (дата обращения: 25.02.2022).
19. Petrochemical standards. CONOSTAN. Edition 2011/2012. URL: <http://www.ecolan.com.ru/standard-samples-foreign/4/4-2.pdf> (дата обращения: 25.02.2022).
20. Petrochemical standards. ASTM. AccuStandard is accredited to ISO Guide 34, ISO/IEC 17025 and certified to ISO 9001. 2015. URL: https://weber.hu/Downloads/Standards/AccuStandard_Petrochemicals.pdf (дата обращения: 25.02.2022).
21. ГОСТ 32510-2013 (ISO 8217). Топлива судовые. Технические условия. – М.: Стандартинформ, 2014. – 15 с.
22. Технический регламент Таможенного союза 013/2011. О требованиях к автомобильному и авиационному бензину, дизельному и судовому топливу, топливу для реактивных двигателей и мазуту. URL: <http://docs.cntd.ru/document/902307833> (дата обращения: 25.02.2022).
23. ГОСТ 31378-2009. Нефть. Общие технические условия. – М.: Стандартинформ, 2012. – 11 с.
24. Hassan Ali Durrani. Energy management by recycling of vehicle waste oil in Pakistan // International Journal of Scientific Engineering and Technology. – 2013. – V. 2. – P. 928–931. URL: <https://www.ijset.com/publication/v2/173.pdf> (дата обращения: 25.02.2022).
25. Цомбуева Б.В. Влияние деятельности нефтеперерабатывающего комплекса на загрязнение земель юго-востока Республики Калмыкии: автореф. дис. ... канд. хим. наук. – Иваново, 2017. – 16 с.
26. Тыныбаева Т.Г. Мониторинг загрязнения почв на газонефтяном месторождении Северные Бузачи (Казахстан): автореф. дис. ... канд. биол. наук. – М., 2006. – 28 с.
27. Шпербер Е.Р. Разработка комплекса природоохранных технологий переработки отходов НПЗ Краснодарского края: автореф. дис. ... д-ра техн. наук. – М., 2016. – 48 с.
28. Шпербер Д.Р. Разработка ресурсосберегающих технологий переработки нефтешлама: автореф. дис. ... канд. техн. наук. – Краснодар, 2015. – 23 с.
29. Справочный документ по наилучшим доступным технологиям по обращению с отходами. Министерство природных ресурсов России. 2011. URL: http://www.mnr.gov.ru/docs/metodicheskie_dokumenty/nailuchshie_dostupnye_tekhnologii/ (дата обращения: 25.02.2022).
30. Code of Practice for Energy Recovery. 2005. URL: <http://www.qp.alberta.ca/documents/codes/ENERGY.PDF> (дата обращения: 25.02.2022).
31. Determination of mercury and other trace elements in home heating oil used in New York State / M. Ahmadi, J. Graham, L. Shields, P.J. Miller // Energy Fuels. – 2018. – V. 32. – P. 44–54.
32. BSI BS 2869-2017 Specification Fuel oils for agricultural, domestic and industrial engines and boilers. Processed Fuel Oil (PFO) End of waste criteria for the production and use of processed fuel oil from waste lubricating oils. URL: https://assets.publishing.service.gov.uk/government/uploads/system/uploads/attachment_data/file/296420/geho0211btmo-e-e.pdf (дата обращения: 25.02.2022).
33. Hazardous waste management system. Burning of waste fuel and used oil fuel in boilers and industrial furnaces. Environmental Protection Agency USA. Rules and Regulations. Federal Register. – 1985. – V. 50. – № 230. URL: https://www.epa.gov/sites/production/files/2016-04/documents/50fr49164_1.pdf (дата обращения: 25.02.2022).
34. Burning of hazardous waste in boilers and industrial furnaces. Environmental Protection Agency USA. Proposed Rules. Federal Register. – 1987. – V. 52. – № 87. URL: <https://www.epa.gov/sites/production/files/2016-03/documents/52fr16982.pdf> (дата обращения: 25.02.2022).
35. Кожевников В.А., Попов С.К. Разработка нормативной базы для энергоэффективного использования отработанных нефтепродуктов в качестве котельно-печного топлива // Использование твердых топлив для эффективного и экологически чистого производства электроэнергии и тепла: сб. докл. под общ. ред. д-ра техн. наук Г.А. Рябова. V Международная научно-техническая конференция. – М.: ОАО «ВТИ», 2020. – С. 124–130.
36. Kozhevnikov V.A., Popov S.K. Energy efficient employment of Used Petroleum Products as fuel based on environmental norms // 3rd 2021 International Youth Conference on Radio Electronics, Electrical and Power Engineering (REEPE). – 2021. – P. 1–5. DOI: 10.1109/REEPE51337.2021.9388076.
37. Кожевников В.А., Попов С.К. Теплотехнические и экологические характеристики сжигания отработанных нефтепродуктов в промышленных установках // Вестник МЭИ. – 2022. – № 1. – С. 39–50.
38. Кожевников В.А. Повышение энергетической и экологической эффективности объектов транспорта нефти за счет использования отработанных нефтепродуктов в качестве топлива: автореф. дис. ... канд. техн. наук. – М., 2021. – 20 с.
39. Нефтепродукты. Свойства, качество, применение: справочник / под ред. проф. Б.В. Лосикова. – М.: Химия, 1966. – 776 с.
40. SEPA: Processed Fuel Oil. RE-AN International Technology Services. Ian Gillespie MSc, BSc (Hons), PG Dip, Env Eng, M.I.E.I Report. 1/8/2012. URL: <https://www.gov.uk/government/publications/production-and-use-of-processed-fuel-oil-from-waste-lubricating-oils> (дата обращения: 25.02.2022).
41. Исследование эффективности гидродинамической обработки мазута и приготовления водотопливных эмульсий на установках ВКИ. URL: <https://additive.spb.ru/vte-issled.html> (дата обращения: 25.02.2022).
42. McDonald R. Evaluation of gas, oil and wood pellet fueled residential heating system emissions characteristics. Brookhaven National laboratory. Energy Sciences and Technology Department Energy Resources Division. 2009. URL: <https://www.bnl.gov/isd/documents/71376.pdf> (дата обращения: 25.02.2022).
43. The bottom of the barrel: how the dirtiest heating oil pollutes our air and harms our health. Environmental Defense Fund & Urban Green Council. 2009. URL: https://www.edf.org/sites/default/files/10085_EDF_Heating_Oil_Report.pdf (дата обращения: 25.02.2022).
44. Правила технической эксплуатации дизелей. – С.-Пб.: Гипробфлот, 1999. – 92 с. URL: https://trans-service.org/ru.php?section=info&page=s_u&subpage=sud_dvig_10-11 (дата обращения: 25.02.2022).
45. Росляков П.В., Проскурин Ю.В., Кожевников В.А. Моделирование процесса горения нефти с подмесом подтоварной воды в жаротрубных котлах // Наука и технологии трубопроводного транспорта нефти и нефтепродуктов. – 2017. – № 2. – С. 94–101. DOI: 10.28999/2541-9595-2017-7-2-94-101

Поступила 13.07.2022 г.

Информация об авторах

Кожевников В.А., кандидат технических наук, старший научный сотрудник ООО «НИИ Транснефть».

Попов С.К., доктор технических наук, профессор кафедры инновационных технологий наукоемких отраслей Национального исследовательского университета «МЭИ».

Строгонов К.В., кандидат технических наук, доцент кафедры инновационных технологий наукоемких отраслей Национального исследовательского университета «МЭИ».

Федюхин А.В., кандидат технических наук, доцент кафедры промышленных теплоэнергетических систем Национального исследовательского университета «МЭИ».

Валинеева А.А., старший преподаватель кафедры инновационных технологий наукоемких отраслей Национального исследовательского университета «МЭИ».

Мотов Е.В., ведущий инженер кафедры инновационных технологий наукоемких отраслей Национального исследовательского университета «МЭИ».

Малев С.Н., инженер кафедры инновационных технологий наукоемких отраслей Национального исследовательского университета «МЭИ».

UDC 620.9:662.92.001.5

OPPORTUNITIES AND PROSPECTS FOR APPLICATION OF USED PETROLEUM PRODUCTS AS FUEL

Vitaly A. Kozhevnikov¹,
kozhevnikovva@niitnn.transneft.ru

Stanislav K. Popov²,
popovsk@mpei.ru

Konstantin V. Strogonov²,
strogonovkv@mpei.ru

Alexander V. Fedyukhin²,
fedyukhinav@mpei.ru

Anna A. Valineeva²,
valineevaaa@mpei.ru

Egor V. Motov²,
motovyv@mpei.ru

Sergey N. Malev²,
malevsn@mpei.ru

¹ Transneft Research Institute LLC,
47a, Sevastopolskiy avenue, Moscow, 117186, Russia.

² National Research University «MPEI»,
14, bld. 1, Krasnokazarmennaya street, Moscow, 111250, Russia.

Relevance. Used petroleum products formed in various technological systems represent a material flow, which is characterized by a multiplicity of heterogeneous components (used oils, oil sludge, substandard liquid petroleum products, etc.) and the distribution of sources of these components. Utilization of this stream can be implemented in compliance with environmental regulations and obtaining an energy-saving effect by applying used petroleum products as fuel. The implementation of this perspective should be based on an appropriate regulatory framework.

Objective: systematic and complete presentation of the information necessary for the effective spend of used petroleum products as fuel, development of a classification of fuel from used petroleum products based on the analysis of literature data and the results of experimental studies.

Object: used petroleum products, which include used oils, flushing oil liquids, as well as mixtures of oil and petroleum products formed during the cleaning of storage and transportation facilities, extracted from oil-containing waters.

Methods: analysis of the thermal properties of used petroleum products to assess the prospects for their energy-efficient use as fuel; study of the conditions for environmentally efficient combustion of used petroleum products in industrial installations; development of fuel classification from used petroleum products.

Results. The authors carried out the analysis of the requirements for used petroleum products as fuel, which are established by regulatory documents of a number of countries. The results of the study of the thermal characteristics of used petroleum products as fuel are presented. The analytical dependence of the lower heating value of used petroleum products on the kinematic viscosity is obtained. The classification of fuel from used petroleum products is proposed, which can be used to create an appropriate regulatory framework.

Key words:

Used petroleum products, boiler and furnace fuel, technical conditions, fuel classification, energy saving, environmental requirements.

REFERENCES

1. GOST 26098-84. Nefteprodukty. Terminy i opredeleniya [State standard 26098-84. Petroleum products. Terms and definitions]. Moscow, StandartInform Publ., 2010. 11 p.
2. Federalny zakon «Ob otkhodakh proizvodstva i potrebleniya» № 89-FZ ot 24.06.1998 [The federal law of 24.06.1998 «On Production and Consumption Waste» N 89-FZ of 24.06.1998]. (1998, 24 June). Available at: <https://docs.cntd.ru/document/901711591> (accessed 02/25/2022).
3. Assessment of the effects of combustion of waste, oil and health effects associated with the use of waste oil as a dust suppressant. Woodward-Clyde. Ministry for the Environment New Zealand. 2000. Retrieved from <https://www.mfe.govt.nz/sites/default/files/used-oil-dust-suppressant-aug00.pdf> (дата обращения: 25.02.2022).
4. Assessment of the effects of combustion of waste, oil and health effects associated with the use of waste oil as a dust suppressant. Woodward-Clyde. Ministry for the Environment New Zealand. 2000. Available at: <https://www.mfe.govt.nz/sites/default/files/used-oil-dust-suppressant-aug00.pdf> (accessed 25 February 2022).
5. Department of Agriculture, Water and the Environment. Australian Government. Available at: <https://www.environment.gov.au/protection/used-oil-recycling> (accessed 25 February 2022).
6. Kozhevnikov V.A., Popov S.K. Energy efficient use of waste petroleum products as fuel. *Bulletin of MPEI*, 2020, no. 2, pp. 42–51. In Rus. DOI: <https://doi.org/10.24160/1993-6982-2020-2-42-51>
7. Nikolaeva, A.V., Kozhevnikov V.A., Chernykh V.A. Analiz potentsiala ispolzovaniya otrabotannykh nefteproduktov na sobstvennye nuzhdy v organizatsiyakh sistemy «Transneft» [Analysis of the potential use of used oil products for their self-needs in the organizations of the Transneft system]. *Science and technology of pipeline transport of oil and petroleum products*, 2020, vol. 10, no. 1, pp. 70–83. Available at: <https://www.elibrary.ru/item.asp?id=42447161> (accessed 25 February 2022).
8. IARC Monographs on the evaluation of carcinogenic risks to humans. Occupational Exposures in Petroleum Refining; Crude Oil and Major Petroleum Fuels. *International Agency for Research on Cancer*, 1989, vol. 45. Available at: <https://monographs.iarc.fr/wp-content/uploads/2018/06/mono45.pdf> (accessed 25 February 2022).
9. Fuel Oil Combustion. AR-42. *United States Environment Protection Agency*. Available at: <https://www3.epa.gov/ttn/chief/ap42/ch01/bgdocs/b01s03.pdf> (accessed 25 February 2022).
10. Jones J.C., Maxwell T.T., Narayan R., Ertas A. *Re-refined oil performance and TxDOT used oil collection procedure*. Final Report Project No. 0-1355. Texas Tech University. 1995. URL: <https://library.ctr.utexas.edu/digitized/texasarchive/phase1/1355-1.pdf> (accessed 25 February 2022).
11. *Vermont used oil analysis and waste oil furnace emissions study*. Vermont Agency of Natural Resources, U.S. EPA. 1996. Available at: https://www3.epa.gov/ttn/catc/dir1/w_oilacr.pdf (accessed 25 February 2022).

12. *Heavy fuel oils*. Prepared by CONCAWE's Petroleum Products and Health Management Groups. Brussels. 1998. Available at: https://clu-in.org/download/contaminantfocus/dnapl/Toxicology/concawe_heavy_fuel_oils_2002-00198-01-E.pdf (accessed 25 February 2022).
13. Meyer R.F., Attanasi E.D., Freeman P.A. Heavy oil and natural bitumen resources in geological basins of the world. *U.S. Geological Survey Open-File Report 2007-1084*. 2007. Available at: <https://pubs.usgs.gov/of/2007/1084/OF2007-1084v1.pdf> (accessed 25 February 2022).
14. Pelitli V., Doğan Ö., Koroğlu H.J. Waste oil management: analyses of waste oils from vehicle crankcases and gearboxes. *Global J. Environ.* 2017. Available at: https://www.gjesm.net/article_22148_03e030d8c64c45fd18a362bc6f9d017c.pdf (accessed 25 February 2022).
15. *Life cycle assessment of used oil management*. Prepared for the American Petroleum Institute. 2017. Available at: <https://www.api.org/~media/Files/Certification/Engine-Oil-Diesel/Publications/LCA-of-Used-Oil-Mgmt-ERM-10012017.pdf> (accessed 25 February 2022).
16. Title 40 CFR part 241. Solid Wastes Used as Fuels or Ingredients in Combustion Units. *Electronic Code of Federal Regulations*. USA. Available at: <https://www.ecfr.gov/cgi-bin/text-idx?SID=b656ab603496daf6d620241043222e6a&mc=true&node=pt40.27.241&rgn=div5> (accessed 25 February 2022).
17. Title 40 CFR part 260. Hazardous Waste Management System: General. *Electronic Code of Federal Regulations*. USA. Available at: <https://www.ecfr.gov/cgi-bin/text-idx?SID=b656ab603496daf6d620241043222e6a&mc=true&node=pt40.28.260&rgn=div5> (accessed 25 February 2022).
18. Title 40 CFR part 279. Standards for the Management of Used Oil. *Electronic Code of Federal Regulations*. USA. Available at: <https://www.ecfr.gov/cgi-bin/text-idx?SID=a6739eadc899514c81d8e3781bb37e7e&mc=true&node=pt40.29.279&rgn=div5> (accessed 25 February 2022).
19. Title 40 CFR part 761. Polychlorinated Biphenyls (PCBs) Manufacturing, Processing, Distribution in Commerce, and Use Prohibitions. *Electronic Code of Federal Regulations*. USA. Available at: <https://www.ecfr.gov/cgi-bin/text-idx?SID=a6739eadc899514c81d8e3781bb37e7e&mc=true&node=pt40.34.761&rgn=div5> (accessed 25 February 2022).
20. *Petrochemical standards. CONOSTAN. Edition 2011/2012*. Available at: <http://www.ecolan.com.ru/standard-samples-foreign/4/4-2.pdf> (accessed 25 February 2022).
21. *Petrochemical standards*. ASTM. Accredited to ISO Guide 34, ISO/IEC 17025 and certified to ISO 9001. 2015. Available at: https://weber.hu/Downloads/Standards/AccuStandard_Petrochemicals.pdf, http://www.amchro.com/accu/Master_Catalog_Petrochemical_Section.pdf (accessed 25 February 2022).
22. *GOST 32510-2013 (ISO 8217). Topлива sudovye. Tekhnicheskie usloviya* [State standard 32510-2013 (ISO 8217). Marine fuels. Technical conditions]. Moscow, StandartInform Publ., 2014. 15 p.
23. *Technical Regulations of the Customs Union 013/2011*. About the requirements for automotive and aviation gasoline, diesel and marine fuel, jet fuel and fuel oil. Available at: <http://docs.cntd.ru/document/902307833> (accessed 25 February 2022).
24. *GOST 31378-2009. Neft. Obshchie tekhnicheskie usloviya* [State standard 31378-2009. Oil. General technical conditions]. Moscow, Standartinform Publ., 2012. 11 p.
25. Hassan Ali Durrani. Energy management by recycling of vehicle waste oil in Pakistan. *International Journal of Scientific Engineering and Technology*, 2013, vol. 2, pp. 928–931. Available at: <https://www.ijset.com/publication/v2/173.pdf> (accessed 25 February 2022).
26. Tsombueva B.V. *Vliyaniye deyatelnosti neftepererabatyvayushchego kompleksa na zagryazneniye zemel yugo-vostoka Respubliki Kalmykii*. Avtoreferat Dis. Kand. nauk [Impact of the oil refining complex on the pollution of the lands of the south-east of the Republic of Kalmykia. Cand. Diss. Abstract]. Ivanovo, 2017. 16 p.
27. Tynybayeva T.G. *Monitoring zagryazneniya pochvy na gazoneftefyanom mestorozhdenii Severnyye Buzachi (Kazakhstan)*. Avtoreferat Dis. Kand. nauk [Monitoring of soil pollution at the Severnyye Buzachi gas and oil field (Kazakhstan). Cand. Diss. Abstract]. Moscow, 2006. 28 p.
28. Shperber E.R. *Razrabotka kompleksa prirodookhrannykh tekhnologiy pererabotki otkhodov NPZ Krasnodarskogo kraya*. Avtoreferat Dis. Dokt. nauk [Development of a complex of environmental technologies for processing waste from refineries of the Krasnodar Territory. Dr. Diss. Abstract]. Moscow, 2016. 48 p.
29. Shperber D.R. *Razrabotka resursosberegayushchikh tekhnologiy pererabotki nefteshlama*. Avtoreferat Dis. Kand. nauk [Development of resource-saving technologies for oil sludge processing. Cand. Diss. Abstract]. Krasnodar, 2015. 23 p.
30. *Spravochny dokument po nailuchshim dostupnym tekhnologiyam po obrashcheniyu s otkhodami. Ministerstvo prirodnnykh resursov Rossii* [Reference document on the best available technologies for waste management. Ministry of Natural Resources of Russia]. 2011. Available at: http://www.mnr.gov.ru/docs/metodicheskije_dokumenty/nailuchshie_dostupnye_tekhnologii (accessed 25 February 2022).
31. *Code of Practice for Energy Recovery*. 2005. Available at: <http://www.qp.alberta.ca/documents/codes/ENERGY.PDF> (accessed 25 February 2022).
32. Ahmadi M., Graham J., Shields L., Miller P.J. Determination of mercury and other trace elements in home heating oil used in New York State. *Energy Fuels*, 2018, vol. 32, pp. 44–54.
33. *BSI BS 2869-2017 Specification Fuel oils for agricultural, domestic and industrial engines and boilers*. Processed Fuel Oil (PFO) End of waste criteria for the production and use of processed fuel oil from waste lubricating oils. Available at: https://assets.publishing.service.gov.uk/government/uploads/system/uploads/attachment_data/file/296420/geho0211btmo-e-e.pdf (accessed 25 February 2022).
34. *Hazardous waste management system*. Burning of Waste Fuel and Used Oil Fuel in Boilers and Industrial Furnaces. Environmental Protection Agency USA. Rules and Regulations. Federal Register. 1985. Vol. 50, no. 230. Available at: https://www.epa.gov/sites/production/files/2016-04/documents/50fr49164_1.pdf (accessed 25 February 2022).
35. *Burning of hazardous waste in boilers and industrial furnaces*. Environmental Protection Agency USA. Proposed Rules. Federal Register. 1987. Vol. 52, no. 87. Available at: <https://www.epa.gov/sites/production/files/2016-03/documents/52fr16982.pdf> (accessed 25 February 2022).
36. Kozhevnikov V.A., Popov S.K. *Razrabotka normativnoy bazy dlya energoeffektivnogo ispolzovaniya otrabotannykh nefteproduktov v kachestve kotelno-pechnogo topliva* [Development of a regulatory framework for the energy-efficient use of spent petroleum products as boiler and furnace fuel]. *Ispolzovanie tverdykh topliv dlya effektivnogo i ekologicheskogo chistogo proizvodstva elektroenergii i tepla. Sbornik dokladov pod obshchey redaktsiey Dokt. nauk G.A. Ryabova. V Mezhdunarodnaya nauchno-tekhnicheskaya konferentsiya* [Use of solid fuels for efficient and environmentally friendly production of electricity and heat. Collection of reports under the general editorship of Dr. Sc. G.A. Ryabov. V International Scientific and Technical Conference]. Moscow, JSC «VTI» Publ., 2020. pp. 124–130.
37. Kozhevnikov V.A., Popov S.K. Energy efficient employment of Used Petroleum Products as fuel based on environmental norms. *3rd 2021 International Youth Conference on Radio Electronics, Electrical and Power Engineering (REEPE)*. 2021, pp. 1–5. DOI: 10.1109/REEPE51337.2021.9388076.
38. Kozhevnikov V.A., Popov S.K. Thermal and environmental characteristics of spent petroleum product combustion in industrial plants. *Bulletin of MPEI*, 2022, no. 1, pp. 39–50. In Rus. DOI: <https://doi.org/10.24160/1993-6982-2022-1-39-50>.
39. Kozhevnikov V.A. *Povysheniye energeticheskoy i ekologicheskoy effektivnosti obektov transporta nefti za schet ispolzovaniya otrabotannykh nefteproduktov v kachestve topliva*. Avtoreferat Dis. Kand. nauk [Improving the energy and environmental efficiency of oil transportation facilities through the use of spent petroleum products as fuel. Cand. Diss. Abstract]. Moscow, 2021. 20 p.
40. *Svoystva, kachestvo, primeneniye: spravochnik* [Petroleum products. Properties, quality, application: reference]. Ed. by prof. B.V. Losikov. Moscow, Khimiya Publ., 1966. 776 p.

41. SEPA: *Processed Fuel Oil. RE-AN International Technology Services*. Ian Gillespie MSc, BSc (Hons), PG Dip, Env Eng, M.I.E.I Report. 1/8/2012. Available at: <https://www.gov.uk/government/publications/production-and-use-of-processed-fuel-oil-from-waste-lubricating-oils> (accessed 25 February 2022).
42. *Issledovanie effektivnosti gidrodinamicheskoy obrabotki mazuta i prigotovleniya vodotoplivnykh emulsiy na ustanovke VKI* [Investigation of the effectiveness of hydrodynamic treatment of fuel oil and preparation of water-fuel emulsions at the VKI installation]. Available at: <https://additive.spb.ru/vte-issled.html> (accessed 25 February 2022).
43. McDonald R. *Evaluation of gas, oil and wood pellet fueled residential heating system emissions characteristics*. Brookhaven National laboratory. Energy Sciences and Technology Department Energy Resources Division. 2009. Available at: <https://www.bnl.gov/isd/documents/71376.pdf> (accessed 25 February 2022).
44. *The bottom of the barrel: how the dirtiest heating oil pollutes our air and harms our health*. Environmental Defense Fund & Urban Green Council. 2009. Available at: https://www.edf.org/sites/default/files/10085_EDF_Heating_Oil_Report.pdf (accessed 25 February 2022).
45. *Pravila tekhnicheskoy ekspluatatsii dizeley* [Rules for the technical operation of diesel engines]. St. Petersburg, Giprorybflot Publ., 1999. 92 p. Available at: https://trans-service.org/ru.php?section=info&page=s_u&subpage=sud_dvig_10-11 (accessed 02/25/2022).
46. Roslyakov P.V., Proskurin Yu.V., Kozhevnikov V.A. Simulation of the oil burning process with the admixture of bottom water in fire-tube boilers. *Science and technology of pipeline transport of oil and petroleum products*, 2017, no. 2, pp. 94–101. In Rus. DOI: 10.28999/2541-9595-2017-7-2-94-101.

Received: 13 July 2022.

Information about the authors

Vitaly A. Kozhevnikov, Cand. Sc., senior researcher, Transneft Research Institute LLC.

Stanislav K. Popov, Dr. Sc., professor, National Research University «MPEI».

Konstantin V. Stroganov, Cand. Sc., associate professor, National Research University «MPEI».

Alexander V. Fedyukhin, Cand. Sc., associate professor, National Research University «MPEI».

Anna A. Valineeva, senior lecturer, National Research University «MPEI».

Egor V. Motov, leading engineer, National Research University «MPEI».

Sergey N. Malev, engineer, National Research University «MPEI».

УДК 504.05:550.424:550.47

РАСПРЕДЕЛЕНИЕ СОДЕРЖАНИЯ СВИНЦА И ФОРМЫ ЕГО СОЕДИНЕНИЙ В ТЕХНОГЕННОЙ ПОЧВЕ Г. СВИРСКА (ЮЖНОЕ ПРИБАЙКАЛЬЕ)

Баенгуев Борис Александрович¹,
baenguev@igc.irk.ru

Белоголова Галина Александровна¹,
gabel@igc.irk.ru

Чупарина Елена Владимировна¹,
lchup@igc.irk.ru

Просекин Сергей Николаевич¹,
pros.sergey@gmail.com

Долгих Павел Геннадьевич¹,
pdolgikh@igc.irk.ru

Пастухов Михаил Владимирович¹,
mpast@igc.irk.ru

¹ Институт геохимии им. А.П. Виноградова СО РАН,
Россия, 664033, г. Иркутск, ул. Фаворского, 1 «А».

Актуальность. В настоящее время особенно остро стоит вопрос химического загрязнения почв промышленных городов тяжелыми металлами. Одним из таких примеров является город Свирск, где, помимо мышьяка, вторым по значимости загрязнителем, входящим в отходы производства Ангарского металлургического завода, является свинец, средняя концентрация которого в грунтах отвала составляла 1,5...3,0 %.

Цель: оценка степени загрязнения свинцом техногенных почв и особенности его миграционной подвижности в почвах и грунтах после ликвидации Ангарского металлургического завода.

Объект: техногенные почвы территории бывшего Ангарского металлургического завода г. Свирска.

Методы. Фракционный состав соединений Pb изучали методом постадийной экстракции почвы из одной навески. Химический анализ вытяжек и валовое содержание свинца в почве определяли с помощью атомно-абсорбционного метода.

Результаты. Установлено, что содержание свинца в техногенных почвах после ликвидации Ангарского металлургического завода превышает ориентировочно допустимую концентрацию в 60–150 раз в зоне бывших отвалов, которая является основным очагом загрязнения. На удалении от этой зоны степень загрязнения почв уменьшается, а миграционная подвижность свинца увеличивается, что может приводить к накоплению его в биообъектах. С глубиной наблюдаются процессы иммобилизации свинца в глинах, что может препятствовать поступлению его в подземные воды и реку Ангару. Основными факторами, влияющими на иммобилизацию свинца в почве, являлись pH, наличие органического вещества, гидроксидов железа, карбонатов и глин. Значительная часть свинца остается связанной с фракцией легко разрушаемых минералов и твердым остатком, что указывает на относительно слабую его подвижность. Изученный механизм подвижности свинца может иметь практическую значимость при проведении мероприятий по рекультивации трансформированных техногенных почв.

Ключевые слова:

Южное Прибайкалье, свинец, фракционирование, селективные вытяжки, техногенные почвы.

Введение

Свинец считается одним из наиболее распространенных и токсичных элементов для живых организмов и обычным загрязнителем урбанизированных территорий [1–3]. Повышенное содержание свинца в организме человека приводит к острым и хроническим заболеваниям различных систем органов в результате вмешательства в клеточные процессы [4]. Воздействие свинца вызывает риск возникновения анемии, снижение умственного развития у детей, неврологических, сердечно-сосудистых, онкологических заболеваний, болезни почек, способствует выносу Са из костной системы [5, 6].

Вследствие глобального загрязнения почв свинцом, особенно верхних горизонтов, довольно сложно разделять данные исследователей о фоновых значе-

ниях и данные, которые характеризуют степень загрязнения почв [7]. Естественное содержание свинца в верхних горизонтах почв мира варьирует в пределах 10–40 мг/кг, а среднее значение составляет 20 мг/кг [8].

Основными источниками загрязнения окружающей природной среды свинцом считают автомобильный транспорт и предприятия горно-металлургического комплекса [9–11]. Одним из таких предприятий являлся Ангарский металлургический завод (АМЗ) в г. Свирске (Южное Прибайкалье), работавший в 1934–1949 гг. в целях оборонной промышленности и занимавшийся выпуском веществ на основе триоксида мышьяка. Для его производства использовали сульфидную руду с высоким содержанием арсенопирита, привезенную с Запоровского и Дарасунского золоторудных месторождений Забайкалья [12].

Помимо мышьяка, вторым по значимости загрязнителем, входящим в отходы производства АМЗ, являлся свинец. Средняя концентрация этого элемента в грунтах бывшего отвала составляла 1,5–3,0 % [13]. В настоящее время имеется незначительное количество данных о свинцовом загрязнении почв территории АМЗ и его окрестностей. Несмотря на большой объем опубликованного материала, посвященного поведению мышьяка, его миграции и формам его соединений на этой территории [14–16], мало что известно об особенностях загрязнения почв свинцом, особенно после ликвидации предприятия, завершеного в 2015 г. Полученные новые результаты могут представлять не только практический, но и теоретический интерес, связанный с особенностями миграции свинца в грунтах отвала и техногенных почвах окрестностей, где преобладают пылевые источники этого элемента. Они могут инициировать повышенную мобильность свинца и его накопление в растениях и пищевой цепи человека. По вопросу о подвижности свинца в техногенных почвах часто мнения авторов расходятся [2]. Это объясняется тем, что в результате длительного техногенного воздействия может происходить трансформация соединений свинца вследствие изменения их подвижности и соотношения свинца в различных его формах.

Цель проведенных исследований заключалась в оценке степени загрязнения свинцом техногенных почв и особенности миграционной подвижности свинца в почвах территории производственных объектов АМЗ после их ликвидации.

Объекты и методы

Район исследования. Объектом исследования являлась территория бывшего АМЗ города Свирска, расположенного вблизи реки Ангара в пределах Иркутско-Черемховской равнины (Южное Прибайкалье). В геологическом отношении этот район приурочен к южной части Сибирской платформы, где преимущественно развиты карбонатные породы нижнекембрийского возраста, на которых залегают аллювиальные отложения. Верхняя часть пород в основном представлена разнообразными глинистыми и доломитовыми известняками. Мощность суглинистого слоя почв на глубине колеблется от 2 до 7,5 м. Они имеют слабую водопроницаемость, что может являться барьером для миграции химических элементов на глубину [17]. Почвы исследуемого района преимущественно серые лесные с локальными участками чернозема и дерново-карбонатных почв [18].

После закрытия завода в 1949 г. здание, оборудование, а также отходы производства были брошены без дальнейшей их ликвидации. Около 131 тыс. т арсенопиритовых огарков в отвалах находились на территории бывшего АМЗ, в опасной близости от р. Ангара и частного сектора в течение более 60 лет, что представляло большую угрозу здоровью для местного населения [17].

Работы по ликвидации сооружений завода и дальнейшему захоронению отходов производства были завершены в 2015 г. [16]. После обезвреживания и за-

хоронения объектов на специальном полигоне за пределами города была проведена рекультивация нарушенных земель, включающая сбор и вывоз «зараженной» почвы, затем внесение удобрений в привезенный плодородный грунт [15]. Эти меры были проведены на территории строений бывшего АМЗ и вблизи него.

Объектом данного исследования являлись техногенно трансформированные почвы территории бывшего АМЗ г. Свирска. Отбор проб проводили летом 2019 г. Для оценки пространственного распределения свинца в поверхностном слое почвы были заложены 70 площадок на приблизительно равном удалении друг от друга. Для изучения миграции Рb на глубину были опробованы два почвенных разреза на глубину до 70 см. Первый разрез (N 53°05'44,2" E 103°20'18,8") находился на территории бывших отвалов, второй (N 53°05'49,3" E 103°20'27,2") – на территории бывшего здания завода. Каждая заложённая площадка фиксировалась с помощью приемников системы навигации (GPS) для дальнейшего построения карт загрязнения.

На исследуемой территории условно выделены три зоны: участок № 1 – территория бывших мышьяковых отвалов, участок № 2 – территория, где непосредственно располагались строения АМЗ, участок № 3 – окрестности участков 1 и 2.

Аналитические методы. Химические анализы проводились на научном оборудовании сертифицированного аналитического центра коллективного пользования «Изотопно-геохимические исследования» Института геохимии СО РАН. Для определения содержания свинца и форм его соединений в пробах почв использовали атомно-абсорбционный метод. Измерения проводились на спектрометрах моделей 403 и 503 производства Perkin Elmer (США), погрешность определения не превышала 10 %. Стандартные образцы использовали в качестве контроля: карбонатная серая почва ССК-1 и техногенная почва SDPS-2.

Для изучения форм соединений Рb использовали метод последовательной экстракции [19] с модификацией [20]. Этот метод ранее применялся для изучения форм соединений тяжелых металлов в техногенных почвах Байкальского региона [13, 14]. Данные исследования подтвердили возможность экстракции для оценки миграционной подвижности и биодоступности свинца для растений. Метод химического фракционирования широко распространен в настоящее время при различных геохимических исследованиях, в том числе при изучении природных и техногенных почв [21].

Для последовательного извлечения свинца из почв использовали фракции: легкообменную, сорбированную, органическую, гидроксидов железа, фракцию легко разрушаемых минералов и труднорастворимый остаток. Экстрагирующие растворы для выделения поэтапных вытяжек из почв, которые могут характеризовать формы соединений свинца и его потенциальную подвижность в почве, приведены в табл. 1.

Наибольшую подвижность в почве имеют соединения легкообменной (ионно-обменной) и специфически сорбированной фракции почв. Эти соединения пред-

ставляют собой резерв химических элементов, способных высвобождаться при изменении физико-химических параметров, и являться наиболее доступными для поглощения растениями. Менее растворимыми для Pb считаются формы его соединений, связанные с гидроксидами железа, а также фракция легко

разрушаемых минералов. Это могут быть соединения свинца, входящие в состав глинистых минералов и карбонатов, и других вторичных минералов. Наименее растворимой является остаточная фракция, которая может содержать свинец, прочно закрепленный в кристаллической решетке минералов почв [22, 23].

Таблица 1. Краткая методика селективных вытяжек

Table 1. Brief sequential extraction procedure

Фракции/Fractions	Используемые реактивы/Used reagents	
	По методике/According to [20]	Реально использованные/Really used
Легкообменная Easily exchangeable	1н CH ₃ COONa, pH 7,0	1н CH ₃ COONH ₄ (уксуснокислый аммоний/acetous ammonium) pH 4,8
Специфически сорбированная Specifically sorbed	1н CH ₃ COONa+1н CH ₃ COOH pH 3,5	1н CH ₃ COONH ₄ +1н CH ₃ COOH, pH 3,5
Органическая/Organic	30 % H ₂ O ₂ , 1н CH ₃ COONa	0,02M HNO ₃ +30 % H ₂ O ₂ +3,2 M CH ₃ COONH ₄ +20 % HNO ₃ pH 4,8
Гидроксидов Fe Iron hydroxide	0,5M C ₅ H ₈ O ₅ COONa+1н NaHCO ₃	0,04M NH ₂ OH·HCl гидроксиламина солянокислого в/hydroxylamine hydrochloric acid in 25 % CH ₃ COOH уксусной кислоте/acid, pH 1,8
Легко разрушаемых минералов Easily destroyed minerals	10 % HCl	10 % HCl с кипячением/with boiling
Остаточная Residual	HCl, катионированная вода cationic water	HNO ₃ +HClO ₄ +HF

Органический углерод (C_{орг}) почвы анализировали по методике Тюрина (ГОСТ 23740-79). Величину pH водное определяли из почвенной суспензии.

Статистический анализ. Статистический анализ содержаний свинца проведен на основе программы Statistica 10. Графики регрессионной зависимости между содержанием Pb в почве и pH, C_{орг} были построены с помощью полиномиальных уравнений с использованием программы Microsoft Excel 10. Для построения карты-схемы использовали программу QGIS.

Результаты и обсуждение

Распределение содержания свинца на территории бывшего АМЗ г. Свирска представлено на рис. 1. Данная территория характеризуется повышенными концентрациями свинца в почве, значительно превышающими ОДК (32 мг/кг [24]). Максимальные концентрации свинца установлены в почвенном грунте участка 1, наибольшее содержание здесь в точке № 44 составляет 4910 мг/кг, минимальное значение – 53 мг/кг, что также выше ОДК (рис. 1). Данный участок выделяется интенсивной аномалией с неоднородным распределением концентраций свинца, на что указывает высокое значение стандартного отклонения (табл. 2). На этом участке значения pH изменяются в большом диапазоне – от 3,0 до 8,0, а также повышены концентрации C_{орг} до 13,5 %, связанного с остатками огарков. Источником этой аномалии является прикорневая часть бывших отвалов от производства рудного концентрата, которая осталась после ликвидации бывшей промышленной площадки. Отвалы огарков сложены продуктами обжига сульфидных руд, в состав которых входили арсенопирит, пирит, галенит и другие сульфиды, а также представлены алюмосиликатным материалом. На поверхности отвалов и вблизи него образовалась зона окисления с сульфатами и гидроксидами железа [14]. Основным источником повышенных содержаний свинца в грунте и почвах являлся галенит PbS и вторичные минералы свинца.

На территории участков 2 и 3 почвы менее загрязнены свинцом. Концентрации Pb на участке 2, где ранее находились строения завода, имеют невысокие значения вследствие проведенных здесь мероприятий по рекультивации почв [15].

На удалении от максимально загрязненной территории наблюдаются небольшие аномалии (образцы № 9 и 59) на фоне содержаний Pb 100–500 мг/кг (рис. 1).

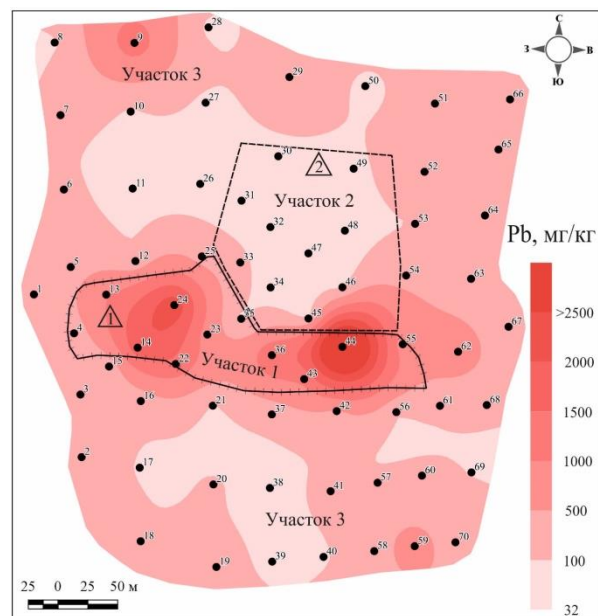


Рис. 1. Схема распределения концентраций свинца, мг/кг. Участок 1 – зона бывших отвалов, 2 – бывшая территория здания завода, 3 – территория, расположенная за пределами участков 1, 2. Примечание: треугольниками на рисунке обозначены почвенные разрезы 1, 2

Fig. 1. Scheme of lead distribution, mg/kg. Site 1 – former dumps, site 2 – area of former plant building, site 3 – area located on the outskirts of the study area. Note: triangles in the figure indicate soil sections 1 and 2

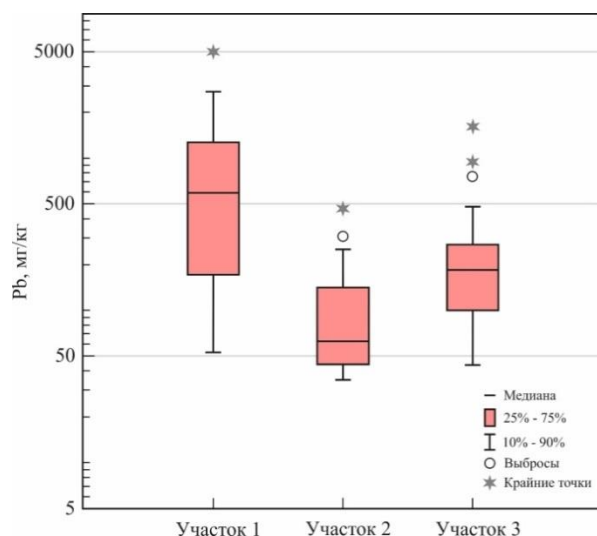


Рис. 2. Распределение концентрации Pb (мг/кг) в техногенных почвах. Минимальные, максимальные значения и медиана. Примечание: Участок 1 – территория бывших отвалов, 2 – бывшая территория здания завода, 3 – расположен за пределами участков 1, 2

Fig. 2. Lead distribution (mg/kg) in technogenic soils. Minimum, maximum values and median. Note: Site 1 – former dumps, site 2 – area of former plant building, site 3 – area located on the outskirts of the study area

Таблица 2. Характеристика концентраций Pb, мг/кг

Table 2. Characteristics of Pb concentrations, mg/kg

№ участка Site no.	Количество проб Number of samples	Pb, мг/кг/mg/kg		Среднее содержание Average content	Стандартное отклонение Standard deviation
		Максимальное Maximum	Минимальное Minimum		
1	18	4910	53	1020	1245
2	15	467	35	116,9	122
3	37	1610	43	263	293

Статистическое распределение концентраций свинца в техногенных почвах по трем участкам приведено на рис. 2, где также видно, что максимальное загрязнение свинцом установлено в зоне бывших отвалов, которое уменьшается на участках 2 и 3. По медиане участок 2 характеризуется минимальным свинцовым загрязнением почв.

При оценке загрязнения почв свинцом большое значение имеет изучение его подвижности. Известно, что величина pH и органическое вещество почв оказывают значительное влияние на подвижность этого металла в почве [15]. В процессе исследований были изучены закономерности влияния pH на накопление Pb в почвах на основе регрессионного анализа, показанного на графиках регрессионной зависимости между этими параметрами для участков 1 и 3 (рис. 3).

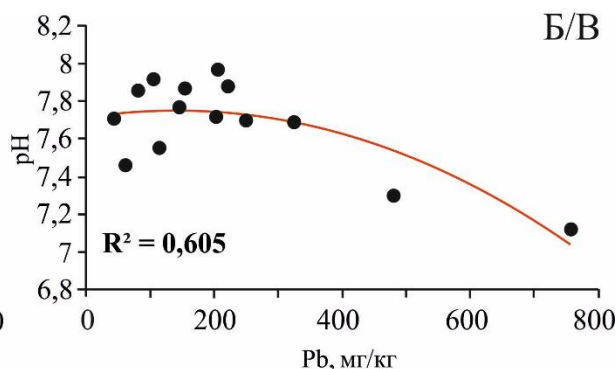
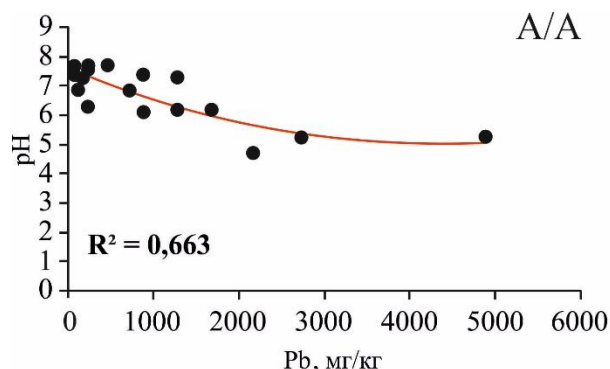


Рис. 3. Зависимость концентраций Pb от pH при вероятности $p < 0,01$ в техногенном грунте участка 1 (А), в техногенном участке 3 (Б) при $p < 0,01$

Fig. 3. Dependence of Pb concentrations on pH with probability at $p < 0,01$ in the technogenic soil of site 1 (A), on technogenic site 3 (B) at $p < 0,01$

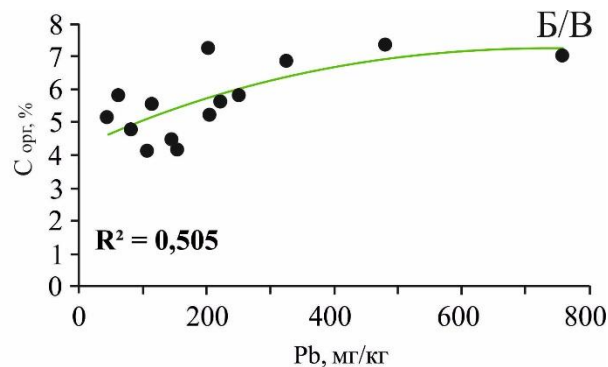
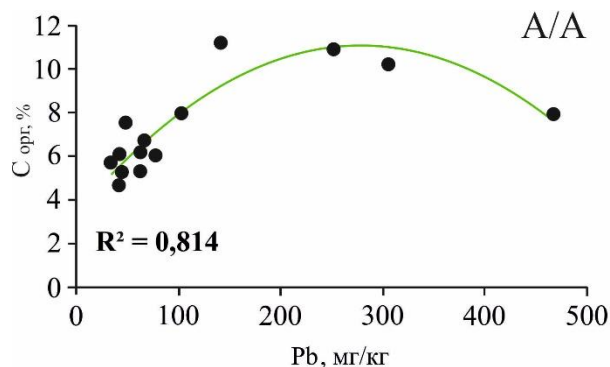


Рис. 4. Зависимость концентраций Pb от $C_{орг}$ при $p < 0,001$ в техногенном грунте участка 2 (А), в техногенном участке 3 (Б) при $p < 0,05$

Fig. 4. Dependence of Pb concentrations on $C_{орг}$ at $p < 0,001$ in the technogenic soil of site 2 (A), on technogenic site 3 (B) at $p < 0,05$

Установлена зависимость концентраций Pb в грунтах и почве относительно их pH. При уменьшении значений pH в техногенном грунте участка 1 (рис. 3, А) наблюдается увеличение концентраций Pb в почве. Такая же закономерность установлена в пределах участка 3 (рис. 3, Б). Это показано на 14 образцах дерново-карбонатных почв, незатронутых детоксикацией, находящихся в южной части изученной территории (рис. 1, 3). На участке 2 такая закономерность отсутствует, что связано с проведенными на этом участке мероприятиями по детоксикации почв с использованием известкового раствора и внесением чистых почв с повышенным содержанием гумуса [15]. В результате чего почвы имели повышенное однородное распределение значений pH (7,0–7,9), что могло дополнительно инициировать иммобилизацию Pb органическим веществом почв. Эта закономерность показана на рис. 4, А, где видна высокая корреляционная зависимость между $C_{орг}$ и содержанием Pb в почве. Аналогичная закономерность прослеживается для 14 образцов дерново-карбонатных почв участка 3, незатронутых рекультивацией (рис. 4, Б).

Свинец, являясь маломобильным элементом, прочно закрепляется в почве главным образом благодаря образованию специфических комплексов, связанных с органическим веществом. Основная часть Pb может аккумулироваться в органогенном горизонте [25], что подтверждается и по нашим данным.

На участке 1 значимая корреляция между концентрациями Pb и $C_{орг}$ отсутствует, так как свинец здесь находится преимущественно в минеральной форме, связанной с частично разрушенными сульфидами свинца, а органическое вещество представлено в основном в виде угольных огарков.

Особенности распределения концентрации свинца на глубину по почвенному профилю приведены на примере двух почвенных разрезов, показанных на рис. 1, в табл. 3.

Таблица 3. Распределение содержания Pb, Mg, Ca (мг/кг), $C_{орг}$ (%), pH в почвенных разрезах

Table 3. Distribution of Pb, Mg, Ca (mg/kg), $C_{орг}$ (%), pH in soil profiles

Параметры Parameters	Глубина, см/Depth, cm						
	0–10	10–20	20–30	30–40	40–50	50–60	60–70
1 разрез/section 1							
Pb	4510	295	220	40	38	44	60
Mg	4480	10341	11838	11897	18250	20266	18725
Ca	20257	5908	13533	50412	69393	77518	60671
$C_{орг}$	6,47	4,02	3,02	1,52	1,42	0,89	0,71
pH	3,03	3,1	3,46	6,76	7,73	7,94	8,0
2 разрез/section 2							
Pb	37	33	37	39	42	51	113
Mg	10175	13607	14405	16894	18694	19363	21221
Ca	7738	15508	15560	28851	64430	76758	67841
$C_{орг}$	4,74	4,13	2,89	2,31	1,09	0,83	0,61
pH	3,78	3,79	4,07	7,4	7,85	8,13	8,05

В почвенном разрезе 1 до глубины 30–40 см прослеживается грунт огарков, на глубине 40–50 см является суглинок, который переходит в глинистые отложения с вкраплением карбонатов. Максимальное

содержание свинца в верхнем горизонте разреза 1 в зоне отвалов составляет 4510 мг/кг, резко снижается на глубину. Такая же тенденция характерна и для $C_{орг}$, что обусловлено уменьшением количества огарков на глубину. Значительное снижение содержания Pb на глубине 40–50 см указывает на прикорневую часть отвала, так как основная его часть была вывезена. Кислотность почв повышена в верхних горизонтах и уменьшается с глубиной. Небольшое увеличение содержания Pb на глубине связано с сорбцией его на глинистых отложениях и карбонатах. Повышенные концентрации Ca и Mg в нижней части разреза, показанные в табл. 3, и высокое значение pH могут указывать на наличие здесь карбонатов $CaCO_3$, $MgCO_3$.

Содержание свинца в поверхностном горизонте участка 2 намного ниже по сравнению с грунтами участка 1, но возрастает с глубиной. В почвенном разрезе 2 до 30 см прослеживается привнесенная при рекультивации черноземная почва, на глубине 40–70 см распространены суглинок и глины с включением карбонатов. Максимальные значения Pb достигают 113 мг/кг на глубине 70 см (табл. 3). Вероятно, это связано с тем, что свинец в почвах участка 2 имеет более подвижные формы, в результате чего интенсивно сорбировался на глинах и связывался карбонатами, распространенными в нижней части почвенного разреза.

Это подтверждается и результатами изучения форм соединений Pb в грунтах на территории отвалов, в почвах участка 2 и на удалении от максимальной зоны загрязнения в зоне распространения дерново-карбонатных почв участка 3, незатронутых рекультивацией. Формы соединений свинца на исследуемой территории изучены на примере трех площадок: участок 1 (точки опробования: № 22, № 43, № 44), участок 2 (№ 31, № 47), участок 3 на удалении от отвала (№ 54, № 19, № 59) и почвенных разрезов 1, 2, показанных на рис. 1, 5.

На рис. 5 видно, что Pb на участке 1 и в верхнем горизонте почвенного разреза 1 на месте бывшего отвала концентрируется главным образом в закрепленной слабо растворимой фракции легко разрушаемых минералов (42–65 %) и в твердом остатке (34–48 %), что свидетельствует о слабой миграционной способности свинца на данной территории. Это может быть обусловлено преобладанием на этой территории минеральных фракций свинца.

На удалении от участка 1 соединения свинца обладают более высокой подвижностью по сравнению с зоной отвалов. Особенно ярко это проявлено на участке 2, где концентрация Pb достигает 14–20 % в ионно-обменной фракции, а также в органической до 11 %, во фракции гидроксидов железа – до 21 %. Полученные данные указывают на то, что Pb на территории строений бывшего завода обладает повышенной подвижностью. Это могло происходить в результате обжига сульфидных руд, которые использовали для выделения мышьякового концентрата на этой территории. Использование промывки почв известковым раствором и внесение чистых гумусовых почв на поверхность участка 2 при рекультивации могло инициировать образование соединений Pb с органическим веществом и с гидроксидами Fe (рис. 5).

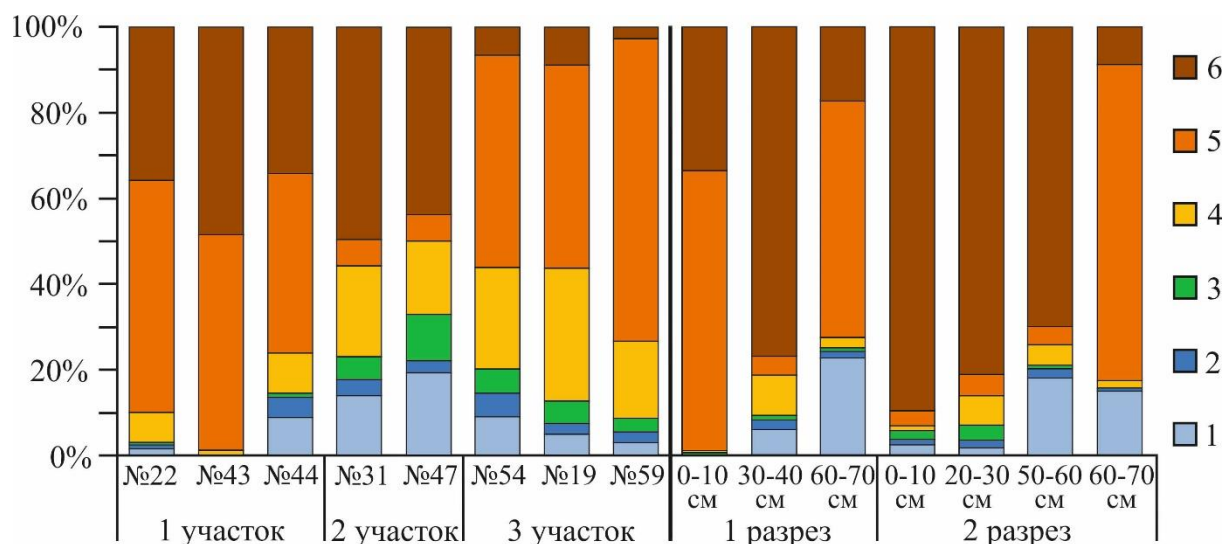


Рис. 5. Распределение концентраций Pb по фракциям (процент от суммы фракций). Фракции: 1 – легко обменная, 2 – специфически сорбированная, 3 – органическая, 4 – гидроксидов-Fe, 5 – легко разрушаемых минералов, 6 – остаточная. Примечание: пространственное распределение точек опробования показано на рис. 1

Fig. 5. Percentage distribution of Pb across all fractions (percentage of the sum of all Pb fractions). Fractions: 1 – easily exchangeable, 2 – specifically sorbed, 3 – organic, 4 – iron hydroxide, 5 – easily destroyed minerals, 6 – residual. Note: spatial distribution of sampling sites is shown in Fig. 1

Подвижные формы соединений свинца характерны и для дерново-карбонатных почв участка 3, незагрязненных рекультивацией. Здесь увеличивается доля Pb в ионно-обменной (3–9 %) и сорбированной (2–5 %) фракциях. Содержание свинца в органической фракции на удалении от отвалов повышается и колеблется от 3 до 6 %, тогда как на участке 1 менее 1 %. Свинец, связанный с гидроксидами железа, составляет 18–31 % на участке 3, так как почвы этой территории достаточно обогащены железом, которое поступало за счет окисления и разрушения остатков сульфидного концентрата в отвалах и переноса их в виде пылевых частиц в окружающую среду. В результате свинец в остаточной фракции имеет минимальное процентное содержание (рис. 5).

В почвенном разрезе 1 на глубине 0–10 см свинец находится преимущественно в минеральной фракции и твердом остатке, что составляют в совокупности 99 %. С глубиной подвижность свинца увеличивается, так как его доля в ионно-обменной фракции на глубине 30–40 см увеличивается до 6 %, а на глубине 60–70 см достигает 23 %, что свидетельствует об увеличении миграционной подвижности свинца на глубину. Основной минеральной формой свинца на участке 1 мог являться галенит PbS. В то же время при выветривании сульфиды Pb окисляются и частично разрушаются, pH здесь имеют низкие значения, а на глубине 60–70 см щелочность увеличивается за счет распространенных здесь карбонатов, в которых присутствуют Ca и Mg. Повышенные содержания этих элементов установлены в нижних частях почвенных разрезов. Источниками повышенных содержаний Ca и Mg могут быть залегающие на глубине доломиты. Здесь также развиты глинистые слои (табл. 3). Глинистые минералы и карбонаты с включением Pb могут характеризоваться фракцией 5, которая достигает 55 %

на глубине 70 см разреза 1 (рис. 5). Некоторые авторы отмечают, что Pb может частично входить в карбонаты и сорбироваться на глинах [2, 26–28]. Это подтверждается и результатами наших исследований.

В почвенном разрезе 2 соединения свинца в подвижной ионно-обменной фракции с глубиной увеличиваются до 15–18 %. На глубине 70 см преобладает фракция 5, подобно разрезу 1. В отличие от первого разреза, в данном случае наблюдается максимальное накопление свинца – до 74 % – во фракции 5. Здесь выявлена такая же закономерность, связанная с увеличением подвижности свинца на глубине и частичной сорбцией его на глинистом горизонте и карбонатах. Такое разнообразие форм этого элемента вызвано окислением сульфидных руд, содержащих свинец, его высвобождением до ионно-обменных соединений, которые под воздействием физико-химических процессов и буферных свойств почв способны образовывать различные соединения Pb: сорбированные, органические комплексы, связанные с гидроксидами железа. Большая часть свинца остается в остаточной фракции и с легко разрушаемыми минералами, в том числе с глинами, что указывает на невысокую его миграционную способность.

Заключение

После ликвидации промышленных объектов Ангарского металлургического завода и проведенной на этой территории рекультивации содержание свинца в почвах и грунтах остается очень высоким, превышающим ОДК в 60–150 раз в зоне бывших отвалов, которая является основным очагом загрязнения с минимальной подвижностью свинца. На удалении от этой зоны степень загрязнения почв уменьшается, в то же время миграционная подвижность свинца увеличивается, что может приводить к накоплению его в биообъектах.

С глубиной наблюдаются процессы иммобилизации свинца в глинах, что может препятствовать поступлению его в подземные воды и реку Ангару.

Изучение форм соединений свинца в почве и грунтах указывает на то, что в результате длительного антропогенного воздействия происходили процессы высвобождения этого элемента из минералов, а также менялось соотношение форм соединений свинца в почве.

Установлено, что на изученной территории основными факторами, влияющими на иммобилизацию свинца в почве, являлись: увеличение pH, наличие

органического вещества, гидроксидов Fe, карбонатов и глинистых отложений. Большая часть этого элемента остается связанной с фракцией легко разрушаемых минералов и в твердом остатке, что в целом указывает на относительно невысокую его подвижность.

Сделан вывод, что по уровню загрязнения верхних горизонтов почв свинцом данная территория не пригодна для землепользования.

Исследование выполнено в соответствии с государственным заданием в рамках научного проекта № 0284-2021-0003.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Lead pollution recorded in Greenland ice indicates European emissions tracked plagues, wars, and imperial expansion during antiquity / J.R. McConnell, A.I. Wilson, A. Stohl, M.M. Arienzo, N.J. Chellman, S. Eckhardt, E.M. Thompson, A.M. Pollard, J.P. Steffensen // *Proceedings of the National Academy of Sciences*. – 2018. – V. 115 (22). – P. 5726–5731. URL: <https://doi.org/10.1073/pnas.1721818115> (дата обращения 14.04.2022).
2. Kabata-Pendias A. Trace elements in soil and plants. 4th ed. – Boca Raton: CRC Press Taylor and Francis Group, LLC, 2011. – 505 p.
3. Lead-induced genotoxicity to *Vicia faba* L. roots in relation with metal cell uptake and initial speciation / M. Shahid, E. Pinelli, B. Pourrut, J. Silvestre, C. Dumat // *Ecotoxicology and Environmental Safety*. – 2011. – V. 74 (1). – P. 78–84. URL: <http://dx.doi.org/10.1016/j.ecoenv.2010.08.037> (дата обращения 14.04.2022).
4. Reducing children's risk from lead in soil / J.A. Ryan, W.R. Berti, S.L. Brown, S.W. Casteel, R.L. Chaney, M. Doolan, P. Grevatt, J. Hallfrisch, M. Maddaloni, D. Mosby, K.G. Scheckel // *Environmental Science Technology*. – 2004. – V. 38 (1). – P. 18a–24a. URL: <https://doi.org/10.1021/es040337r> (дата обращения 14.04.2022).
5. Low-level environmental lead exposure and children's intellectual function: an international pooled analysis / B.P. Lanphear, R. Hornung, J. Khoury, K. Yolton, P. Baghurst, D.C. Bellinger, R.L. Canfield, K.N. Dietrich, R. Bornschein, T. Greene, S.J. Rothenberg, H.L. Needleman, L. Schnaas, G. Wasserman, J. Graziano, R. Roberts // *Environmental Health Perspectives*. – 2005. – V. 113 (7). – P. 894–899. URL: <https://doi.org/10.1289/ehp.7688> (дата обращения 14.04.2022).
6. Child lead exposure near abandoned lead acid battery recycling sites in a residential community in Bangladesh: risk factors and the impact of soil remediation on blood lead levels / K.I.A. Chowdhury, S. Nurunnahar, M.L. Kabir, M.T. Islam, M. Baker, M.S. Islam, M. Rahman, M.A. Hasan, A. Sikder, L.H. Kwong, G.K. Binkhorst, E. Nash, J. Keith, A. McCartor, S.P. Luby, J.E. Forsyth // *Environmental Research*. – 2021. – V. 194. – P. 110689. URL: <https://doi.org/10.1016/j.envres.2020.110689> (дата обращения 14.04.2022).
7. Bioavailability and ecotoxicity of lead in soil: implications for setting ecological soil quality standards / K. Oorts, E. Smolders, R. Lanno, M.J. Chowdhury // *Environmental Toxicology and Chemistry*. – 2020. – V. 40. – P. 1950–1963. URL: <https://doi.org/10.1002/etc.5051> (дата обращения 14.04.2022).
8. Chemistry of Europe's agricultural soils. Pt. A: Methodology and interpretation of the GEMAS data set / C. Reimann, M. Birke, A. Demetriades, P. Filzmoser, P. O'Connor. – Schweizerbart, Hannover, Germany, 2014. – 523 p.
9. Steinnes E. Lead // *Heavy metals in soils: trace metals and metalloids in soils and their bioavailability* / Ed. by B.J. Alloway. – Dordrecht: Springer Netherlands, 2013. – 613 p.
10. A critical review on speciation, mobilization and toxicity of lead in soil-microbe-plant system and bioremediation strategies / A. Kushwaha, N. Hans, S. Kumar, R. Rani // *Ecotoxicology Environmental Safety*. – 2018. – V. 147. – P. 1035–1045. URL: <https://doi.org/10.1016/j.ecoenv.2017.09.049> (дата обращения 14.04.2022).
11. Ecological risk and human health implications of heavy metals contamination of surface soil in Ewaste recycling sites in Douala, Cameroun / R.E. Ouabo, M.B. Ogundiran, A.Y. Sangodoyin, B.A. Babalola // *Journal of Health & Pollution*. – 2019. – V. 9 (21). – 190310. URL: <https://doi.org/10.5696/2156-9614-9.21.190310> (дата обращения 14.04.2022).
12. Kachor O.L., Sarapulova G.I., Bogdanov A.V. Investigation of the possibility of immobilization of mobile forms of arsenic in technogenic soils // *Journal of Mining Institute*. – 2019. – V. 239. – P. 596–602. URL: <https://doi.org/10.31897/pmi.2019.5.596> (дата обращения 14.04.2022).
13. Transformation of lead compounds in the soil-plant system under the influence of *Bacillus* and *Azotobacter* rhizobacteria / G. Belogolova, O. Gordeeva, M. Sokolova M. Pastukhov, O. Vaishlya, V. Poletaeva, O. Belozerovala // *Chemistry and Ecology*. – 2020. – V. 36. – Iss. 3. – P. 220–235. URL: <https://doi.org/10.1080/02757540.2020.1723557> (дата обращения 14.04.2022).
14. Regularities of the distribution and heavy metal forms in technogenically transformed chernozems of the Southern Angara river basin and northeastern China / G.A. Belogolova, O.N. Gordeeva, P.V. Koval, Q.X. Zhou, G. L. Guo // *Eurasian Soil Science*. – 2009. – V. 42 (4). – P. 394–404. URL: <https://doi.org/10.1134/S1064229309040061> (дата обращения 14.04.2022).
15. Bogdanov A.V., Kachor O.L., Abarinova N.G. Neutralization of arsenic wastes from mining and metallurgical industry // *Russian Journal of General Chemistry*. – 2014. – V. 84. – № 11. – P. 2346–2349. URL: <https://doi.org/10.1134/S1070363214110565> (дата обращения 14.04.2022).
16. Качор О.Л. Разработка модели миграции мышьяка по почвенному профилю из накопленных отходов горно-перерабатывающей промышленности // *Известия Сибирского отделения секции наук о Земле Российской академии естественных наук. Геология, разведка и разработка месторождений полезных ископаемых*. – 2019. – Т. 42. – № 2 (67). – С. 144–150. URL: <https://doi.org/10.21285/2541-9455-2019-42-2-144-150> (дата обращения 14.04.2022).
17. Shen'kman B.M. Svirsky dump of arsenopyrite concentrate and its impact on water bodies // *Water Resources*. – 2017. – V. 44. – P. 914–923. URL: <https://doi.org/10.1134/S0097807817070120> (дата обращения 14.04.2022).
18. Атлас. Иркутская область. Экологические условия развития. – М.: Иркутск: Изд-во ИГ СО РАН, Роскартография, 2004. – 92 с.
19. Tessier A., Campbell P.G.C., Bisson M. Sequential extraction procedures for the speciation of particulate trace metals // *Analytical chemistry*. – 1979. – V. 51. – P. 844–851. URL: <https://doi.org/10.1021/ac50043a017> (дата обращения 14.04.2022).
20. Кузнецов В.А., Шимко Г.А. Метод постадийных вытяжек при геохимических исследованиях. – Минск: Наука и техника, 1990. – 88 с.
21. Воробьева Д.А., Гусева Н.В. Геохимическая характеристика почв территории с высокой аэротехногенной нагрузкой // *Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов*. – 2021. – Т. 332. – № 6. – С. 149–159. URL: <https://doi.org/10.18799/24131830/2021/6/3245> (дата обращения 14.04.2022).
22. Ладонин Д.В. Соединения тяжелых металлов в почвах – проблемы и методы изучения // *Почвоведение*. – 2002. – № 6. – С. 682–692.
23. Ладонин Д.В. Методы определения фракционного состава соединений тяжелых металлов в почвах // *Теория и практика химического анализа почв* / под ред. Л.А. Воробьевой. – М.: ГЕОС, 2006. – С. 293–309.

24. СанПиН 1.2.3685-21. Гигиенические нормативы и требования к обеспечению безопасности и (или) безвредности для человека факторов среды обитания. – М: ЦЕНТРМАГ, 2022. – 736 с.
25. Ладонин Д.В. Фракционно-изотопный состав соединений свинца в почвах заповедника «Кологривский лес» // Почвоведение. – 2018. – № 8. – С. 994–1003.
26. Soil lead distribution in Chicago, USA / G.P. Watson, N.F. Martin, Z.B. Grant, S.C. Batka, A.J. Margenot // Geoderma regional. – 2022. – V. 28. – e00480. URL: <https://doi.org/10.1016/j.geodrs.2021.e00480> (дата обращения 14.04.2022).
27. Rao S.M., Gaurave K., Sarvanan A. Lead retention by soils at field moisture contents // Soil and Sediment Contamination: an International Journal. – 2013. – V. 22. – Iss. 2. – P. 208–222. URL: <https://doi.org/10.1080/15320383.2012.714423> (дата обращения 14.04.2022).
28. The source of lead determines the relationship between soil properties and lead bioaccessibility / K. Yan, Z. Dong, M.A. Wijayawardena, Y. Liu, Y. Li, R. Naidu // Environmental Pollution. – 2019. – V. 246. – P. 53–59. URL: <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2018.11.104> (дата обращения 14.04.2022).

Поступила 13.07.2022 г.

Информация об авторах

Баенгуев Б.А., младший научный сотрудник Института геохимии им. А.П. Виноградова СО РАН.

Белоголова Г.А., кандидат геолого-минералогических наук, старший научный сотрудник Института геохимии им. А.П. Виноградова СО РАН.

Чупарина Е.В., кандидат химических наук, старший научный сотрудник Института геохимии им. А.П. Виноградова СО РАН.

Просекин С.Н., кандидат геолого-минералогических наук, младший научный сотрудник Института геохимии им. А.П. Виноградова СО РАН.

Долгих П.Г., младший научный сотрудник Института геохимии им. А.П. Виноградова СО РАН.

Пастухов М.В., кандидат биологических наук, старший научный сотрудник Института геохимии им. А.П. Виноградова СО РАН.

UDC 504.05:550.424:550.47

LEAD DISTRIBUTION AND FORMS OF LEAD-CONTAINING COMPOUNDS IN THE TECHNOGENIC SOIL, SVIRSK TOWN, SOUTH BAIKAL REGION

Boris A. Baenguev¹,
baenguev@igc.irk.ru

Galina A. Belogolova¹,
gabel@igc.irk.ru

Elena V. Chuparina¹,
lchup@igc.irk.ru

Sergey N. Prosekin¹,
pros.sergey@gmail.com

Pavel G. Dolgikh¹,
pdolgikh@igc.irk.ru

Mikhail V. Pastukhov¹,
mpast@igc.irk.ru

¹ Vinogradov Institute of Geochemistry SB RAS,
1 «A», Favorskiy street, Irkutsk, 664033, Russia.

The relevance. Currently, the heavy metal contamination of soil in industrial cities is an urgent problem. One of such examples is Svirsk town, where, in addition to arsenic, the second most important pollutant contained in the production wastes of the Angarsk Metallurgical Plant, is lead, which average concentration in the dump soils amounted to 1,5...3,0 %.

The main aim of the study was to assess the degree of technogenic soil contamination by lead and the peculiarities of lead migratory mobility in the soils of the Angarsk Metallurgical Plant production facilities after the plant liquidation.

Object: technogenic soils in the area of the former Angarsk Metallurgical Plant, located in Svirsk town.

Methods. Forms of Pb compounds in soils were studied by the method of sequential extraction. The chemical analysis of the extracts and the total lead content in the soil were determined using the atomic absorption method.

Results. It was found that the lead content in technogenic soils after the liquidation of Angarsk Metallurgical Plant exceeds the approximate permissible concentration by 60–150 times in the area of former dumps, which is the main source of pollution. At a distance from this zone, the degree of soil pollution decreases, and the migration mobility of lead increases, which can lead to its accumulation in biological objects. With depth, there are processes of lead immobilization in clays. They can prevent lead entry into the groundwater and the Angara River. The main factors influencing lead immobilization in soil were pH, the presence of organic matter, iron hydroxides, carbonates, and clays. A significant part of lead remains associated with the fraction of easily degradable minerals and solid residue that suggests its relatively low mobility. The studied mechanism of lead mobility can be of practical importance for the reclamation of transformed technogenic soils.

Key words:

South Baikal region, lead, fractionation, sequential extraction, technogenic soils.

The research was carried out according to the state task within the scientific project no. 0284-2021-0003.

REFERENCES

1. McConnell J.R., Wilson A.I., Stohl A., Arienzo M.M., Chellman N.J., Eckhardt S., Thompson E.M., Pollard A.M., Steffensen J.P. Lead pollution recorded in Greenland ice indicates European emissions tracked plagues, wars, and imperial expansion during antiquity. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 2018, vol. 115 (22), pp. 5726–5731. Available at: <https://doi.org/10.1073/pnas.1721818115> (accessed 14 April 2022).
2. Kabata-Pendias A. *Trace elements in soil and plants*. 4th ed. Boca Raton, CRC Press Taylor and Francis Group, LLC, 2011. 505 p.
3. Shahid M., Pinelli E., Pourrut B., Silvestre J., Dumat C. Lead-induced genotoxicity to *Vicia faba* L. roots in relation with metal cell uptake and initial speciation. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2011, vol. 74, (1), pp. 78–84. Available at: <http://dx.doi.org/10.1016/j.ecoenv.2010.08.037> (accessed 14 April 2022).
4. Ryan J.A., Berti W.R., Brown S.L., Casteel S.W., Chaney R.L., Doonan M., Grevatt P., Hallfrisch J., Maddaloni M., Mosby D., Scheckel K.G. Reducing children's risk from lead in soil. *Environmental Science Technology*, 2004, vol. 38 (1), pp. 18a–24a. Available at: <https://doi.org/10.1021/es040337r> (accessed 14 April 2022).
5. Lanphear B.P., Hornung R., Khoury J., Yolton K., Baghurst P., Bellinger D.C., Canfield R.L., Dietrich K.N., Bornschein R., Greene T., Rothenberg S.J., Needleman H.L., Schnaas L., Wasserman G., Graziano J., Roberts R. Low-level environmental lead exposure and children's intellectual function: an international pooled analysis. *Environmental Health Perspectives*, 2005, vol. 113 (7), pp. 894–899. Available at: <https://doi.org/10.1289/ehp.7688> (accessed 14 April 2022).
6. Chowdhury K.I.A., Nurunnahar S., Kabir M.L., Islam M.T., Baker M., Islam M.S., Rahman M., Hasan M.A., Sikder A., Kwong L.H., Binkhorst G.K., Nash E., Keith J., McCartor A., Luby S.P., Forsyth J.E. Child lead exposure near abandoned lead acid battery recycling sites in a residential community in Bangladesh: risk factors and the impact of soil remediation on blood lead levels. *Environmental Research*, 2021, vol. 194, 110689. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.envres.2020.110689> (accessed 14 April 2022).

7. Oorts K., Smolders E., Lanno R., Chowdhury M.J. Bioavailability and ecotoxicity of lead in soil: implications for setting ecological soil quality standards. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 2020, vol. 40, pp. 1950–1963. Available at: <https://doi.org/10.1002/etc.5051> (accessed 14 April 2022).
8. Reimann C., Birke M., Demetriades A., Filzmoser P., O'Connor P. *Chemistry of Europe's agricultural soils. Pt. A: Methodology and interpretation of the GEMAS data set*. Schweizerbart, Hannover, Germany, 2014. 523 p.
9. Steinnes E. Lead. *Heavy metals in soils: trace metals and metalloids in soils and their bioavailability*. Ed. by B.J. Alloway. Dordrecht, Springer Netherlands, 2013. 613 p.
10. Kushwaha A., Hans N., Kumar S., Rani R. A critical review on speciation, mobilization and toxicity of lead in soil-microbe-plant system and bioremediation strategies. *Ecotoxicology Environmental Safety*, 2018, vol. 147, pp. 1035–1045. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.ecoenv.2017.09.049> (accessed 14 April 2022).
11. Ouabo R.E., Ogundiran M.B., Sangodoyin A.Y., Babalola B.A. Ecological risk and human health implications of heavy metals contamination of surface soil in Ewaste recycling sites in Douala, Cameroun. *Journal of Health & Pollution*, 2019, vol. 9 (21), 190310. Available at: <https://doi.org/10.5696/2156-9614-9.21.190310> (accessed 14 April 2022).
12. Kachor O.L., Sarapulova G.I., Bogdanov A.V. Investigation of the possibility of immobilization of mobile forms of arsenic in technogenic soils. *Journal of Mining Institute*, 2019, vol. 239, pp. 596–602. Available at: <https://doi.org/10.31897/pmi.2019.5.596> (accessed 14 April 2022).
13. Belogolova G., Gordeeva O., Sokolova M., Pastukhov M., Vaishlya O., Poletaeva V., Belozero O. Transformation of lead compounds in the soil-plant system under the influence of *Bacillus* and *Azotobacter* rhizobacteria. *Chemistry and Ecology*, 2020, vol. 36, Iss. 3, pp. 220–235. Available at: <https://doi.org/10.1080/02757540.2020.1723557> (accessed 14 April 2022).
14. Belogolova G.A., Gordeeva O.N., Koval P.V., Zhou Q.X., Guo G.L. Regularities of the distribution and heavy metal forms in technogenically transformed chernozems of the Southern Angara river basin and northeastern China. *Eurasian Soil Science*, 2009, vol. 42 (4), pp. 394–404. Available at: <https://doi.org/10.1134/S1064229309040061> (accessed 14 April 2022).
15. Bogdanov A.V., Kachor O.L., Abarinova N.G. Neutralization of arsenic wastes from mining and metallurgical industry. *Russian Journal of General Chemistry*, 2014, vol. 84, no. 11, pp. 2346–2349. Available at: <https://doi.org/10.1134/S1070363214110565> (accessed 14 April 2022).
16. Kachor O.L. Modeling of arsenic migration from the accumulated mining industrial waste along the soil profile. *Proceedings of the Siberian Department of the Section of Earth Sciences RANS. Geology, Exploration and Development of Mineral Deposits*, 2019, vol. 42, no. 2, pp. 144–150. In Rus. Available at: <https://doi.org/10.21285/2541-9455-2019-42-2-144-150> (accessed 14 April 2022).
17. Shen'kman B.M. Svirsky dump of arsenopyrite concentrate and its impact on water bodies. *Water Resources*, 2017, vol. 44, pp. 914–923. Available at: <https://doi.org/10.1134/S0097807817070120> (accessed 14 April 2022).
18. *Atlas. Irkutskaya oblast. Ekologicheskie usloviya razvitiya* [Atlas. Irkutsk region. Ecological conditions of development]. Moscow, Irkutsk, IG SO RAN, Roskartografiya Publ., 2004. 92 p.
19. Tessier A., Campbell P.G.C., Bisson M. Sequential extraction procedures for the speciation of particulate trace metals. *Analytical chemistry*, 1979, vol. 51, pp. 844–851. Available at: <https://doi.org/10.1021/ac50043a017> (accessed 14 April 2022).
20. Kuznetsov V.A., Shimko G.A. *Metod postadiynykh vytyazhek pri geokhimicheskikh issledovaniyakh* [Stepwise method extracts in geochemical studies]. Minsk, Nauka i tekhnika Publ., 1990. 65 p.
21. Vorobeva D.A., Guseva N.V. Geochemical characteristics of soils: a case study of territory with a high aerotechnogenic load. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2021, vol. 332, no. 6, pp. 149–159. In Rus. Available at: <https://doi.org/10.18799/24131830/2021/6/3245> (accessed 14 April 2022).
22. Ladonin D.V. Soedineniya tyazhelykh metallov v pochvakh – problemy i metody izucheniya [Heavy metal compounds in soils – problems and methods of study]. *Pochvovedenie*, 2002, vol. 6, pp. 682–692.
23. Ladonin D.V. Metody opredeleniya fraktsionnogo sostava soedineniy tyazhelykh metallov v pochvakh [Methods for determining the fractional composition of heavy metal compounds in soils]. *Teoriya i praktika khimicheskogo analiza pochv* [Theory and practice of soil chemical analysis]. Ed. by L.A. Vorobyeva. Moscow, GEOS Publ., 2006. pp. 293–309.
24. SanPiN 1.2.3685-21. *Gigienicheskie normativy i trebovaniya k obespecheniyu bezopasnosti i (ili) bezvrednosti dlya cheloveka faktorov sredy obitaniya* [Hygienic standards and requirements for ensuring the safety and (or) harmlessness to humans of environmental factors]. Moscow, CENTRMAG Publ., 2022. 736 p.
25. Ladonin D.V. Fraktsionno-izotopny sostav soedineniy svintsya v pochvakh zapovednika «Kologrivskiy les» [Fractional-Isotopic Composition of Lead Compounds in Soils of the Kologrivskii Forest Reserve]. *Pochvovedenie*, 2018, vol. 51, no. 8, pp. 994–1003.
26. Watson G.P., Martin N.F., Grant Z.B., Batka S.C., Margenot A.J. Soil lead distribution in Chicago, USA. *Geoderma regional*, 2022, vol. 28, e00480. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.geodrs.2021.e00480> (accessed 14 April 2022).
27. Rao S.M., Gaurave K., Sarvanan A. Lead retention by soils at field moisture contents. *Soil and Sediment Contamination: an International Journal*, 2013, vol. 22, Iss. 2, pp. 208–222. Available at: <https://doi.org/10.1080/15320383.2012.714423> (accessed 14 April 2022).
28. Yan K., Dong Z., Wijayawardena M.A., Liu Y., Li Y., Naidu R. The source of lead determines the relationship between soil properties and lead bioaccessibility. *Environmental Pollution*, 2019, vol. 246, pp. 53–59. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2018.11.104> (accessed 14 April 2022).

Received: 13 July 2022.

Information about the authors

Boris A. Baenguev, junior researcher, Vinogradov Institute of Geochemistry SB RAS.

Galina A. Belogolova, Cand. Sc., senior researcher, Vinogradov Institute of Geochemistry SB RAS.

Elena V. Chuparina, Cand. Sc., senior researcher, Vinogradov Institute of Geochemistry SB RAS.

Sergey N. Prosekin, Cand. Sc., junior researcher, Vinogradov Institute of Geochemistry SB RAS.

Pavel G. Dolgikh, junior researcher, Vinogradov Institute of Geochemistry SB RAS.

Mikhail V. Pastukhov, Cand. Sc., senior researcher, Vinogradov Institute of Geochemistry SB RAS.

УДК 556.561

АНАЛИЗ СЕЗОННОЙ И МНОГОЛЕТНЕЙ ДИНАМИКИ ХИМИЧЕСКОГО СОСТАВА ВОД ОСУШЕННОГО УЧАСТКА ВАСЮГАНСКОГО БОЛОТА

Харанжевская Юлия Александровна,
kharan@yandex.ru

Сибирский научно-исследовательский институт сельского хозяйства и торфа –
филиал Сибирского федерального научного центра агробиотехнологий РАН,
Россия, 634050, г. Томск, ул. Гагарина, 3.

Актуальность исследования обусловлена необходимостью оценки трансформации химического состава природных вод под влиянием изменения климата и хозяйственной деятельности.

Цель: исследование химического состава вод Васюганского болота, анализ условий его формирования, оценка сезонных и многолетних закономерностей его изменения под влиянием осушения.

Объекты: северо-восточный участок Васюганского болота в районе с. Полынянка Бакчарского района Томской области.

Методы. Лабораторное изучение химического состава болотных вод проводилось методами титриметрии, спектрофотометрии, пламенной фотометрии в Лабораторно-аналитическом центре Сибирского научно-исследовательского института сельского хозяйства и торфа – филиале Сибирского федерального научного центра агробиотехнологий РАН. Статистический анализ данных проводился с применением непараметрического критерия Манна–Уитни, кластерного анализа и метода главных компонент.

Результаты. Исследования показали, что в результате проведенной лесомелиорации, а также вследствие пожара 2016 г. в водах северо-восточного участка Васюганского болота, в сравнении с естественной его частью, отмечается статистически значимое повышение концентрации Ca^{2+} , Mg^{2+} , $\text{Fe}_{\text{общ}}$, NH_4^+ , NO_3^- , Cl^- , $\text{C}_{\text{орг}}$. Однако в настоящее время в связи с зарастанием каналов отмечается процесс самовосстановления болота, в результате чего химический состав вод осушенного и естественного участка Васюганского болота имеет минимальные отличия в маловодные 2015–2016 гг. и многоводный 2018 г. и более существенные различия в содержании компонентов наблюдаются в средние 2017, 2020–2021 гг. и маловодный 2019 г. Индикатором влияния пирогенного фактора на химический состав являлось повышение в болотных водах величины pH и содержания ионов K^+ , Na^+ , SO_4^{2-} , NO_3^- , HCO_3^- , а также Ca^{2+} , Mg^{2+} , $\text{Fe}_{\text{общ}}$. Анализ условий формирования химического состава вод Васюганского болота показал, что ведущим фактором является температура, при этом повышение уровней болотных вод после продолжительных засушливых периодов приводит к повышению концентраций химических веществ в водах.

Ключевые слова:

Болотные воды, химический состав, лесомелиорация, влияние, Васюганское болото, Западная Сибирь.

Введение

В настоящее время проблема деградации болот в результате хозяйственного использования и в условиях изменения климата является одной из самых актуальных в мире [1–7]. Важность проблем определяется экологическими функциями, которые выполняют болотные экосистемы. Болота в естественном состоянии поглощают углекислый газ и выделяют кислород, играя тем самым ключевую роль в балансе углерода [7, 8]. Болота способны ассимилировать большое количество загрязняющих веществ из атмосферы, а располагаясь в поймах и террасах рек выполняют функцию геохимических барьеров, отвечающих за сохранение качества речных вод [9–11]. Гидрологическая роль определяется наличием аккумулятивной емкости в деятельном слое торфяной залежи и осциллирующей поверхности болот [12, 13], что способствует снижению паводочного стока рек. Осушение болот и их хозяйственное использование ведет к деградации экосистем, меняется растительный покров, увеличивается вынос минеральных и органических веществ [14–16], изменяются водно-физические свойства торфяной залежи [17].

В последние десятилетия в бореальных водоемах и водотоках по всему миру наблюдаются повышенные концентрации углерода и цветности вод, что связывают, с одной стороны, с изменением климата и

уменьшением кислотных выпадений [18], а с другой стороны – с масштабным осушением болот [16]. Так, крупномасштабное осушение болот в Северной Европе для лесного хозяйства в результате оказало значительное влияние на качество речных вод в бассейне Балтийского моря [16]. Для юга Западной Сибири, где хозяйственное использование болот невелико, осушенные участки болот могут являться своеобразными природными моделями для оценки влияния изменений климата на качество природных вод. В условиях высокой заболоченности водосборов рек Западной Сибири вопрос изучения химического состава болотных вод весьма актуален в связи ведущей ролью болот в формировании состава речных вод данной территории, которая является водосборным бассейном Карского моря. Целью данной работы является исследование химического состава вод Васюганского болота, анализ условий его формирования, оценка сезонных и многолетних закономерностей его изменения под влиянием осушения.

Объекты и методика исследования

Исследования проводились в пределах северо-восточного участка Васюганского болота в границах бассейна р. Гавриловка (левобережный приток р. Икса), вблизи с. Полынянка Бакчарского района Томской области. В 1980-х гг. проведена лесомелиорация,

осушение выполнено сетью открытых каналов с расстоянием 160–180 м. В настоящее время отмечается зарастание осушительных каналов и восстановление скорости торфонакопления (рис. 1) [19, 20]. В 2016 г. на расстоянии 200 м на юг от участка отбора проб произошел пожар и выгорела территория площадью 5,54 км². Наибольшее выгорание растительности и поверхности болота наблюдалось преимущественно вблизи осушительных каналов, где торфяная залежь выгорела на 5–15 см, на остальной территории наблюдалось частичное выгорание поверхности болота в слое до 5 см [21]. В качестве фоновой территории был использован аналогичный естественный участок Васюганского болота, расположенный в 8 км севернее, в границах водосбора малой р. Ключ (правобережный приток р. Бакчар).

Отбор проб болотных вод производился с периодичностью 1 раз в месяц с марта по сентябрь 2015–2021 гг. в пределах аналогичных сосново-кустарничково-сфагновых болотных микроландшафтов, мощность торфяной залежи на осушенном участке (56°53' 25,8", 82°40' 50,5") составила 2,75 м, на естественном участке (56°58'24, 3", 82°36'41,2") – 2,90 м. Всего было отобрано 42 пробы на осушенном участке (ПГ) и 49 проб болотных вод на естественном участке (ПЗ) Васюганского болота. Определение химического состава болотных вод (табл. 1) проводилось в Лабораторно-аналитическом центре Сибирского научно-исследовательского института сельского хозяйства и торфа – филиале Сибирского федерального научного центра агробиотехнологий РАН. Оценка условий формирования химического состава болотных вод и особенностей гидрохимического режима болота проводилась с применением данных наблюдений за температурой воздуха и количеством атмосферных осадков по метеостанции у с. Бакчар, а также использовались данные, полученные с применением автономных сенсорных датчиков уровней и температуры (САМ, ИМКЭС СО РАН), установленных в торфяную залежь непосредственно в месте отбора проб [22].

Методика исследований включала кластерный анализ и оценку значимости различий в химическом составе вод естественного и осушенного участков Васюганского болота по непараметрическому критерию Манна-Уитни при уровне значимости $p=5\%$ в Statistica 10:

$$Z = \frac{W - \frac{1}{2}n_x n_y}{\sqrt{\frac{1}{12}n_x n_y (n_x + n_y + 1)}}$$

где W – статистика критерия, определяется согласно выражению

$$W = n_x n_y + \frac{n(n+1)}{2} - R,$$

где n_x , n_y – объем выборки x и y , n – объем выборки, имеющей большую ранговую сумму, R – большая сумма рангов (порядковых номеров) выборок x и y [23].

Кластерный анализ проводили с использованием иерархического метода Уорда с расчетом евклидова расстояния. Статистический анализ условий форми-

рования химического состава болотных вод осушенного участка Васюганского болота осуществлялся методом главных компонент (Principal component analysis) с расчетом факторных нагрузок и построением графика каменистой осыпи.

Таблица 1. Описание методов определения химического состава болотных вод

Table 1. Analytical methods

Компонент Component	Метод/Method
Ca ²⁺	Титриметрия/Titrimetry
Mg ²⁺	Титриметрия/Titrimetry
K ⁺	Пламенная фотометрия/Flame photometry (PFA-378, Russia)
Na ⁺	Пламенная фотометрия/Flame photometry (PFA-378, Russia)
SO ₄ ²⁻	Спектрофотометрия/Spectrophotometry (Specol-1300, Analytik Jena, Germany)
Cl ⁻	Титриметрия/Titrimetry
NH ₄ ⁺	Спектрофотометрия/Spectrophotometry (Specol-1300, Analytik Jena, Germany)
Fe _{total}	Спектрофотометрия/Spectrophotometry (Specol-1300, Analytik Jena, Germany)
HCO ₃ ⁻	Титриметрия/Titrimetry
NO ₃ ⁻	Спектрофотометрия/Spectrophotometry (Specol-1300, Analytik Jena, Germany)
C _{орг} /DOC	Спектрофотометрия Spectrophotometry (PE-5400VI, Russia)
XПК/COD	Титриметрия/Titrimetry

Результаты и обсуждение

Исследования химического состава болотных вод осушенного и естественного участка Васюганского болота проводились за период наблюдений 2015–2021 гг. За период исследований можно выделить маловодные года – 2015, 2016, 2019, средние по водности – 2017, 2020, 2021 и многоводный 2018 г. (табл. 1). Среднегодовая температура за период исследований составила 1,12 °С. За 7 лет наиболее теплообеспеченными являлись 2015–2016 и 2020–2021 гг., среднегодовая температура воздуха в 2015 и 2020 гг. составила 2,05–3,03 °С, что являлось абсолютным максимумом за период наблюдений 1970–2021 гг. на метеостанции у с. Бакчар. Анализ уровня режима показал, что осушенный и естественный участки Васюганского болота характеризуются достоверными различиями в отметках уровней болотных вод (УБВ) за апрель–сентябрь 2015–2021, в многолетней динамике снижение среднесезонных уровней на осушенном участке отмечалось в 2016–2017, 2019–2021 гг., тогда как на естественном участке более низкие уровни воды были отмечены в 2015, 2016, 2019 гг. (табл. 2).

Анализируя весь массив данных за многолетний период, можно отметить, что осушенный участок характеризуется повышенным содержанием всех компонентов в химическом составе вод в сравнении с естественным участком, при этом наиболее достоверные различия (тест Манна-Уитни) отмечаются по Ca²⁺ ($Z=1,69$, $p<0,05$), Mg²⁺ ($Z=1,55$, $p<0,05$), Fe_{общ} ($Z=1,20$, $p<0,05$), NH₄⁺ ($Z=1,24$, $p<0,05$), NO₃⁻ ($Z=1,34$, $p<0,05$), Cl⁻ ($Z=1,23$, $p<0,05$), C_{орг} ($Z=1,25$, $p<0,05$), ЕС ($Z=1,24$, $p<0,05$), что согласуется с опубликованными данными [14, 24]. Исследования, проведенные в Фин-

ляндии [14], показали, что в водах осушенного болота аналогично нашим данным отмечаются более высокие концентрации Ca^{2+} , $\text{C}_{\text{орг}}$. Увеличение концентрации $\text{C}_{\text{орг}}$ в водах связано с его повышенной продукцией в водах в условиях увеличения флуктуации уровней болотных вод. Повышение концентрации $\text{Fe}_{\text{общ}}$ в водах в результате осушения определяется формированием аэробных условий в торфяной залежи, сниже-

нием pH при увеличении концентрации гуминовых веществ, что отмечается также в [24]. Исследования на болотах Шотландии показали, что отмечается увеличение сезонной вариации химического состава вод под влиянием осушения на 35–80 % от общей дисперсии [24]. Однако наши данные показали более существенную вариацию в химическом составе естественного участка Васюганского болота.

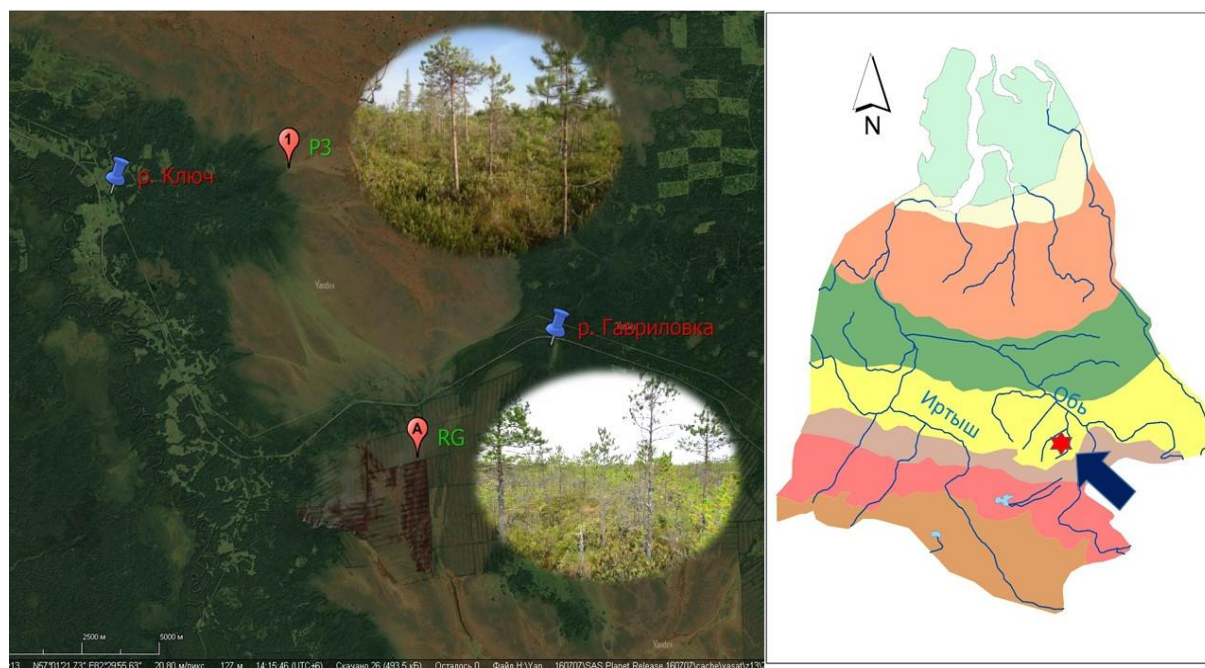


Рис. 1. Схема расположения пунктов отбора проб в пределах Васюганского болота

Fig. 1. Sampling points location within the Great Vasyugan mire

Таблица 2. Гидрометеорологические условия согласно данным метеорологической станции у с. Бакчар [25]

Table 2. Hydrometeorological conditions according to the meteorological station near the Bakchar village [25]

Год Year	Сумма осадков, мм Amount of precipitation, mm		Среднегодовая температура воздуха, °C Average annual air temperature, °C	Сумма $T > 10^\circ\text{C}$ Sum $T > 10^\circ\text{C}$	УБВ апрель–сентябрь, см WTL April– September, cm
	за год per year	за апрель–сентябрь in April–September			осушенный/ естественный drained/pristine
2015	616	382	2,05	1972	–22/–20
2016	486	348	0,72	2162	–24/–20
2017	566	419	1,30	1891	–25/–14
2018	677	495	–0,80	1781	–22/–13
2019	431	284	0,88	1860	–25/–19
2020	477	293	3,03	2136	–30/–17
2021	630	470	0,63	2001	–25/–12

Сопоставление химического состава вод осушенного и естественного участков Васюганского болота показало, что в разные годы достоверные различия

отмечаются по разным компонентам (рис. 2). Так, в маловодный 2015 г. отмечены статистически значимые различия по содержанию в водах осушенного участка Cl^- ($Z=2,19$, $p=0,028$), NO_3^- ($Z=2,65$, $p=0,008$). В 2016 г., который также можно охарактеризовать как маловодный, достоверные различия в составе вод осушенного участка определяется только повышенными концентрациями CO_2 ($Z=2,16$, $p=0,031$).

В средний по водности 2017 г. отмечаются более значимые различия по содержанию в водах осушенного участка Ca^{2+} ($Z=2,00$, $p=0,045$), $\text{C}_{\text{орг}}$ ($Z=2,32$, $p=0,020$), а также по величине УБВ ($Z=-2,24$, $p=0,025$). В многоводный 2018 г. отмечались различия в концентрации в водах Cl^- ($Z=2,48$, $p=0,013$), $\text{C}_{\text{орг}}$ ($Z=2,00$, $p=0,045$), а также минерализации вод ($Z=2,16$, $p=0,031$), что определяется засушливыми условиями в конце вегетационного периода 2017 г. В маловодный 2019 г. и как следствие пожара в водах осушенного участка достоверно повышается содержание Ca^{2+} ($Z=2,00$, $p=0,045$), SO_4^{2-} ($Z=2,00$, $p=0,045$), $\text{C}_{\text{орг}}$ ($Z=2,48$, $p=0,013$) и общая минерализация вод ($Z=2,16$, $p=0,030$). В средний по водности 2020 г. наблюдалось достоверно более высокое содержание в водах осушенного участка Ca^{2+} ($Z=2,00$, $p=0,045$), ХПК ($Z=2,00$, $p=0,045$), CO_2 ($Z=2,32$, $p=0,020$). В 2021 г., который также можно охарактеризовать как средний по водности, отмечены достоверные различия по содержанию

в водах Ca^{2+} ($Z=2,16$, $p=0,031$), Mg^{2+} ($Z=2,32$, $p=0,020$), ХПК ($Z=2,16$, $p=0,031$), $\text{C}_{\text{орг}}$ ($Z=2,16$, $p=0,031$). В целом можно отметить тенденцию увеличения различий в химическом составе естественного и осушенного участков Васюганского болота начиная с 2017 г., что является следствием пожара 2016 г., произошедшего на сопредельной территории болота.

Анализ многолетних изменений химического состава вод показал сходную динамику содержания Mg^{2+} , NH_4^+ , HCO_3^- , $\text{C}_{\text{орг}}$ и минерализации вод на осушенном и естественном участках Васюганского болота, максимальные концентрации которых отмечены в маловодный 2015 г. Содержание остальных компо-

нентов в водах естественного и осушенного участка болота имеет более сложную динамику, в том числе в связи с влиянием пожара, в результате чего отмечено увеличение в водах pH, Na^+ , K^+ , Ca^{2+} , SO_4^{2-} , $\text{Fe}_{\text{общ}}$, в 2016, 2017, 2019 гг., и наблюдается рост содержания Cl^- , NO_3^- в 2019–2021 гг. Минимальные концентрации всех исследуемых компонентов в водах естественного участка отмечены в многоводный 2018 г. и маловодный 2019 г. В водах осушенного участка минимальные pH и концентрации Ca^{2+} , Mg^{2+} , Cl^- отмечены в многоводный 2018 г., Na^+ , K^+ , NH_4^+ , $\text{Fe}_{\text{общ}}$, HCO_3^- , минерализации в 2021 г., NO_3^- и $\text{C}_{\text{орг}}$ в 2016 г.

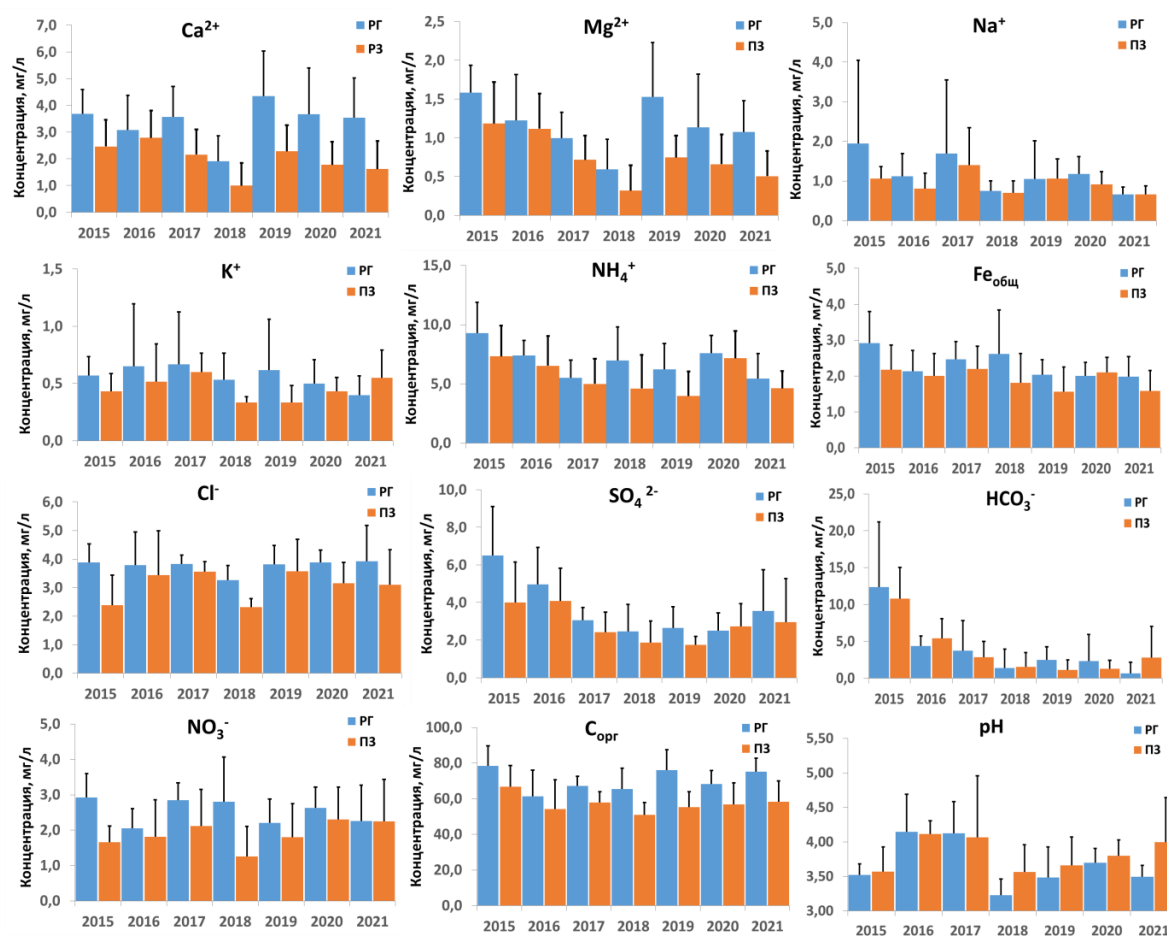


Рис. 2. Многолетняя динамика химического состава вод осушенного (РГ) и естественного (ПЗ) участков Васюганского болота в 2015–2021 гг. (планками обозначено стандартное отклонение)

Fig. 2. Long-term dynamics in water chemistry at drained (RG) and pristine (P3) parts of the Great Vasyugan mire in 2015–2021 (bars indicate standard deviation)

Отмеченные закономерности изменения химического состава вод осушенного участка Васюганского болота в результате влияния пожара в целом согласуются с опубликованными данными [26–28] и проведенными нами исследованиями в пределах выгоревшего участка [29]. Анализ химического состава болотных вод, отобранных на мезотрофном болоте Галицкий мох в Тверской области, выгоревшем на глубину до 30 см в 2010 г., показал, что общая минерализация воды возросла в 3 раза, увеличился pH вод

до 7,2, повысилось содержание Ca^{2+} , SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ , $\text{Fe}_{\text{общ}}$, Cl^- , HCO_3^- , снизилась цветность вод [26, 27]. Результаты, полученные на участке низинного болота в Бейжанском национальном парке в Польше, показали, что в водах спустя 12 лет после пожара отмечаются более высокий pH, повышенные концентрации Ca^{2+} , Mg^{2+} , Na^+ , K^+ , NO_3^- , а на некоторых участках также PO_4^{3-} и Fe^{3+} [28]. Под влиянием пирогенного фактора в водах Васюганского болота отмечается увеличение концентраций K^+ , Na^+ , Ca^{2+} ,

Mg^{2+} , $Fe_{общ}$, SO_4^{2-} , Cl^- , HCO_3^- [29]. Также влияние пожара на химический состав отмечается и за пределами пожарного контура, что связано с выносом веществ с болотными водами при фильтрации их в торфяной залежи и в результате аэрозольного переноса веществ [30]. Поэтому пожар 2016 г. оказал влияние на химический состав болотных вод как осушенного участка, так и естественного участка Васюганского болота, который расположен в 8 км.

Анализируя сезонную динамику за период 2015–2021 гг., можно отметить, что достоверные различия по критерию Манна–Уитни в химическом составе вод осушенного и естественного участка Васюганского болота отмечаются в апреле по содержанию в болотных водах NO_3^- ($Z=2,93$, $p=0,003$), Cl^- ($Z=2,50$, $p=0,012$), HCO_3^- ($Z=-2,50$, $p=0,012$), ХПК ($Z=-2,01$, $p=0,038$) и в мае по концентрациям Ca^{2+} ($Z=2,30$, $p=0,021$), $Fe_{общ}$ ($Z=2,62$, $p=0,009$), Cl^- ($Z=2,17$, $p=0,030$), NO_3^- ($Z=2,17$, $p=0,030$), $C_{орг}$ ($Z=2,30$, $p=0,021$), CO_2 ($Z=2,30$, $p=0,021$). В мае также отмечаются достоверные различия в отметках уровня болотных вод ($Z=-2,62$, $p=0,009$). В летний период достоверные различия отмечены по содержанию в июне в водах NH_4^+ ($Z=-2,17$, $p=0,030$), $C_{орг}$ ($Z=2,43$, $p=0,015$), CO_2 ($Z=2,04$, $p=0,041$), что также согласуется с различиями в уровнях болотных вод в этот период ($Z=-2,36$, $p=0,018$). В июле значимые различия в химическом составе осушенного и естественного участков наблюдаются только по содержанию $C_{орг}$ ($Z=2,55$, $p=0,011$) (табл. 3). В августе повышаются различия в концентрациях в болотных водах Ca^{2+} ($Z=2,17$, $p=0,030$), $C_{орг}$ ($Z=2,56$, $p=0,011$), что согласуется с достоверными различиями в уровнях болотных вод ($Z=-2,43$, $p=0,018$). В сентябре отмечаются достоверные различия в содержании в болотных водах Ca^{2+} ($Z=2,04$, $p=0,041$), $C_{орг}$ ($Z=2,43$, $p=0,015$), CO_2 ($Z=2,04$, $p=0,041$).

Анализ сезонной динамики химического состава болотных вод естественного и осушенного участков Васюганского болота показал повышение концентраций компонентов химического состава болотных вод в конце зимы и в летний межennyй период, что согласуется с ранними исследованиями [31, 32]. В марте в связи с концентрированием раствора при промерзании торфяной залежи возрастает pH, минерализация вод и содержание Ca^{2+} , Mg^{2+} , Na^+ , K^+ , HCO_3^- , Cl^- , NH_4^+ , SO_4^{2-} , а также в водах идет процесс трансформации растительных остатков, о чем свидетельствует резкое возрастание концентраций CO_2 , $C_{орг}$ и величин ХПК в водах. Повышение концентрации K^+ в марте отмечено преимущественно в пределах осушенного участка, что, вероятно, является следствием пожара. Повышение концентрации компонентов химического состава болотных вод в летний период определяется процессами трансформации органических остатков верхних слоев торфяной залежи при повышении температуры воздуха и/или снижении уровней болотных вод с июля по сентябрь: отмечается увеличение ЕС, pH, минерализации вод, величин ХПК, концентраций Ca^{2+} , Mg^{2+} , Na^+ , K^+ , HCO_3^- , Cl^- , SO_4^{2-} и биогенных компонентов состава болотных вод NH_4^+ , NO_3^- , $Fe_{общ}$,

а также CO_2 и $C_{орг}$. Следует отметить, что особенности сезонной динамики химического состава вод Васюганского болота сопоставимы с данными, полученными по основным типам болот России [33, 34]. Сравнение с результатами, полученными на смежном участке Васюганского болота [35], показало сопоставимое содержание компонентов в химическом составе болотных вод, однако несколько различные тенденции в гидрохимическом режиме, что, вероятно, связано с неравномерностью отбора проб по сезонам.

Таблица 3. Сезонная динамика химического состава вод на естественном и осушенном участке Васюганского болота в 2015–2021 гг.

Table 3. Seasonal dynamics in water chemistry at the pristine and drained area of the Great Vasyugan mire in 2015–2021

Компонент Component	Участок Site	Зима Winter	Весна Spring		Лето Summer			Осень Autumn
		III*	IV	V	VI	VII	VIII	IX
pH	РГ	3,97	3,95	3,52	3,52	3,80	3,74	3,53
	ПЗ	3,84	4,13	3,89	3,57	3,62	3,91	3,83
K^+	РГ	1,48	0,50	0,40	0,47	0,47	0,55	0,97
	ПЗ	0,40	0,41	0,34	0,44	0,49	0,51	0,52
Na^+	РГ	2,10	1,05	0,71	0,74	0,96	1,26	2,36
	ПЗ	2,33	0,88	0,77	0,73	0,94	1,17	1,21
Ca^{2+}	РГ	5,17	2,38	3,47	3,59	2,53	3,90	4,33
	ПЗ	3,99	1,48	1,62	2,34	1,78	2,35	2,47
Mg^{2+}	РГ	1,47	0,69	1,15	1,30	0,80	1,50	1,39
	ПЗ	1,50	0,47	0,54	0,96	0,65	0,98	0,87
NH_4^+	РГ	7,86	4,81	6,61	7,64	6,93	6,86	8,10
	ПЗ	6,96	2,79	4,12	5,23	6,82	7,10	7,60
$Fe_{общ}$	РГ	1,09	1,66	2,28	2,55	2,46	2,36	2,37
	ПЗ	1,25	1,14	1,42	2,18	2,33	2,22	2,23
Cl^-	РГ	3,88	3,13	3,30	3,59	4,17	4,14	4,16
	ПЗ	3,12	1,91	2,36	3,31	3,56	3,49	3,71
SO_4^{2-}	РГ	14,2	3,25	4,22	2,87	3,97	3,09	4,13
	ПЗ	3,75	1,30	2,83	2,65	3,34	3,80	3,04
NO_3^-	РГ	2,43	2,39	2,40	2,20	2,44	2,83	2,85
	ПЗ	1,76	0,70	1,48	1,55	2,02	2,74	2,83
HCO_3^-	РГ	10,5	0,99	3,49	3,31	5,37	4,29	4,29
	ПЗ	3,89	5,12	2,84	4,18	4,77	2,23	3,01
ХПК	РГ	253,6	167	161,9	159,7	178,6	175,1	205
	ПЗ	195,2	126,3	126	135,4	151,8	175,1	180
CO_2	РГ	159,4	32,8	51,1	72,1	71,2	59,2	64,0
	ПЗ	112,2	19,9	28,2	35,5	67,7	35,9	32,7
$C_{орг}$	РГ	120,5	57,4	68,0	68,2	72,6	73,7	78,9
	ПЗ	77,0	42,7	52,8	57,5	61,5	61,7	67,0
$\Sigma_{и}$	РГ	50,2	20,8	28,0	28,3	30,1	30,8	34,9
	ПЗ	28,9	16,2	18,3	23,5	26,7	26,6	27,5
ЕС	РГ	51	46	51	54	58	54	62
	ПЗ	77	32	37	46	56	55	55
O_2	РГ	4,54	2,66	2,61	0,93	1,67	1,22	1,72
	ПЗ	3,29	4,80	2,95	0,92	1,36	2,69	1,46

Примечание: *отбор проб в зимний период на осушенном участке производился только в 2020 и 2021 гг.; РГ – осушенный участок, ПЗ – естественный участок.

Note: *winter water sampling at drained site was made only in 2020 and 2021; RG – drained area, P3 – pristine area.

В работе [35] отмечается рост pH в летне-осеннюю межень, тогда как наши данные показывают тенденцию к снижению pH болотных вод в условиях увеличения концентрации органических веществ в водах в летний период. Согласно данным [35] минерализация вод, со-

держание Fe в водах сопоставимы в весенний и летне-осенний период, а концентрации NH_4^+ немного снижаются осенью, тогда как наши данные показывают рост минерализации вод, а также концентраций $\text{Fe}_{\text{общ}}$, NH_4^+ примерно в 1,8–2 раза соответственно от весны к осени.

Кластерный анализ, проведенный нами с использованием осредненных за сезон данных по химическому составу, показал достоверные различия для осушенного и естественного участков Васюганского болота, разделив их на 2 кластера (рис. 3). В первый кластер вошли пробы с осушенного участка за период после пожара 2017, 2019–2021 гг., пробы, отобранные в 2015, 2016 и 2018 гг. попали во второй кластер с пробами с естественного участка. При этом следует отметить, что пробы, отобранные на естественном и осушенном участках в маловодные 2016 и 2015 гг., согласно дендрограмме, выделились в отдельный подкластер, что связано с высокой теплообеспеченностью летних периодов в эти года и способствовало повышению концентраций всех компонентов химического состава вод в этот период. В 2018 г. среднегодовая температура воздуха и сумма активных температур была чуть ниже, в летний период выпало значительное количество осадков, что в связи с зарастанием каналов и за счет эффекта разбавления привело к снижению концентраций химических веществ в водах.

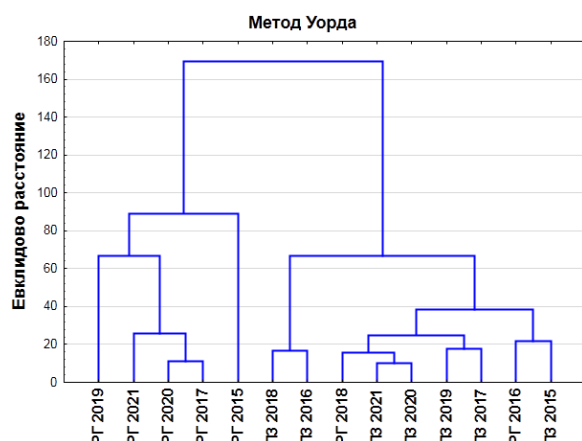


Рис. 3. Дендрограмма многолетних характеристик химического состава болотных вод осушенного (РГ) и естественного (ПЗ) участков Васюганского болота

Fig. 3. Dendrogram of the long-term data of water chemistry at drained (RG) and pristine (P3) parts of the Great Vasyugan mire

Поэтому по итогам кластерного анализа в 2015, 2016, 2018 гг. химический состав вод естественного и осушенного участков Васюганского болота был сопоставим. Исследования, проведенные в Канаде, также показали незначительное влияние осушения на химический состав вод болот, что определяется сходными климатическими условиями в Западной Сибири. Отмечено, что степень различия в химическом составе естественных и осушенных участков определяется скоростью разложения органических остатков и биогеохимических процессов в регионе, которая во многом зависит от среднегодовой температуры воздуха [36].

Кластерный анализ, проведенный на основании всех проб воды, отобранных в пределах естественного и осушенного участков, также показал наличие четырех кластеров. В первый кластер вошли пробы, отобранные в пределах естественного участка (ПЗ) Васюганского болота преимущественно в весенний период (апрель–май) 2015–2021 гг., также в него вошла проба, отобранная на осушенном участке (РГ) в апреле 2016 г. Болотные воды первого кластера за счет разбавления тальми снеговыми водами характеризуются наименьшими концентрациями Ca^{2+} и Mg^{2+} , которые в среднем составляют 1,60 и 0,61 мг/л соответственно. Концентрации ионов K^+ и Na^+ в водах равны 0,34 и 0,74 мг/л, что также значительно меньше в сравнении с пробами, вошедшими во второй кластер. Также в водах отмечено более низкое содержание NH_4^+ , $\text{Fe}_{\text{общ}}$, Cl^- , NO_3^- (рис. 4). Содержание $\text{C}_{\text{орг}}$ в водах первого кластера преимущественно ниже, чем в остальных пробах вод с болота, и в среднем составляет 43,6 мг/л, но превышает данные по атмосферным осадкам. Среднее содержание в водах SO_4^{2-} составило 2,70 мг/л, что сопоставимо с содержанием в водах второго кластера. Наоборот, в водах отмечен более высокий pH (4,02), концентрации HCO_3^- (3,47 мг/л) и O_2 (4,19 мг/л), что отмечается в результате смешения с тальми снеговыми водами.

Во второй кластер вошла большая часть проб, отобранных на естественном участке в летне-осенний период (июнь–сентябрь) и 16 проб (41 %), отобранных в пределах осушенного участка преимущественно в весенне-летний период (апрель, май, июнь). Болотные воды характеризуются снижением величины pH (3,70) и содержания HCO_3^- (3,23 мг/л) за счет увеличения концентрации $\text{C}_{\text{орг}}$ (62,5 мг/л). В водах наблюдается повышение содержания Ca^{2+} , Mg^{2+} , K^+ , Na^+ , NH_4^+ , $\text{Fe}_{\text{общ}}$, Cl^- , NO_3^- в 1,4–2 раза в сравнении с пробами вод, отобранными в весенний период (первый кластер). В третий кластер выделилось 29 проб, отобранных в пределах осушенного участка в летне-осенний период, а также 5 проб с естественного участка Васюганского болота. Обращает внимание, что в отдельный подкластер выделились 7 проб, в том числе 3 пробы с естественного участка, отобранные в периоды подъема уровней после продолжительной засухи, в августе 2015 г., сентябре 2017 г., июле–сентябре 2019 г., сентябре 2021 г. По химическому составу вод четвертый кластер отличается значимым повышением – в 2–3 раза – в пробах Ca^{2+} , Mg^{2+} , NO_3^- , CO_2 . Концентрации Ca^{2+} и Mg^{2+} в водах в среднем составили 3,62 и 1,23 мг/л соответственно. Менее значимое повышение концентраций – в 1,3–1,8 раза относительно первого кластера – отмечено по следующим компонентам химического состава вод: K^+ , Na^+ , $\text{Fe}_{\text{общ}}$, Cl^- , SO_4^{2-} , HCO_3^- , $\text{C}_{\text{орг}}$. При этом в водах отмечается снижение величины pH, в отдельных пробах до 2,98 единиц, а также уменьшается среднее содержание растворенного O_2 в водах (1,31 мг/л).

Анализ условий формирования химического состава вод в пределах осушенного участка за весь период отбора проб 2015–2021 гг. показал, что ведущим фактором, определяющим минерализацию (0,85) и

содержание в водах Ca^{2+} (0,68), Mg^{2+} (0,61), Cl^- (0,53), NH_4^+ (0,48), K^+ (0,40), SO_4^{2-} (0,41), HCO_3^- (0,66), $\text{C}_{\text{орг}}$ (0,62), является температура воды (0,66) и торфяной залежи в слое 1 м (0,71), а уровень болотных вод

находится преимущественно в обратной корреляции (–0,76), что свидетельствует о значительной роли эффекта разбавления (рис. 5).

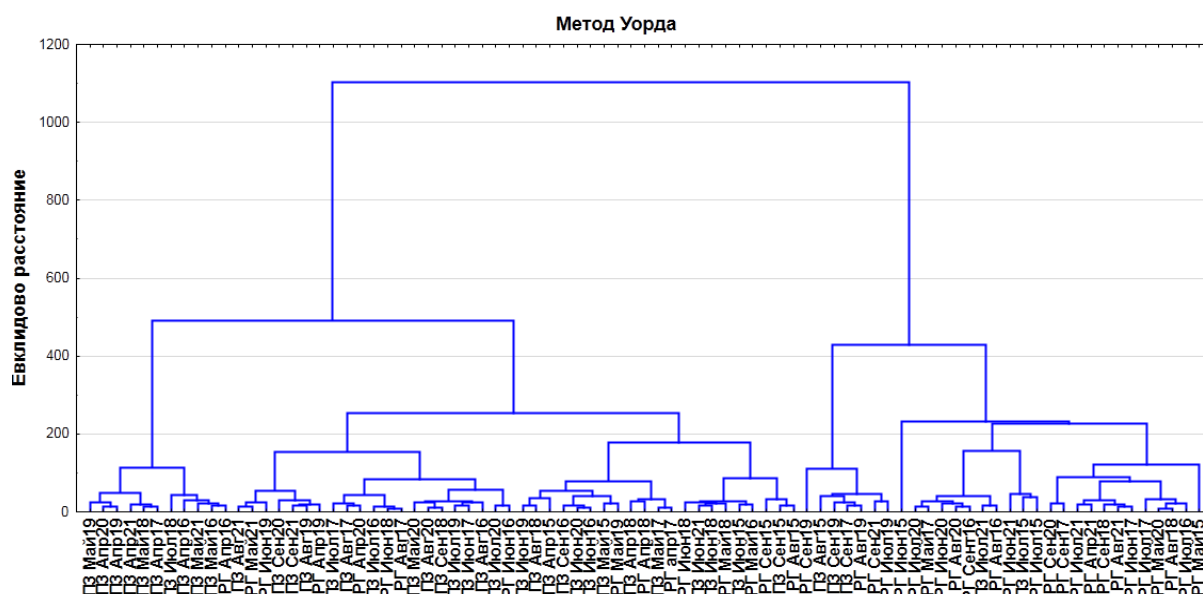


Рис. 4. Дендрограмма химического состава болотных вод осушенного (РГ) и естественного (ПЗ) участков Васюганского болота за период отбора проб с апреля по сентябрь 2015–2021 гг.

Fig. 4. Dendrogram of water chemistry at drained (RG) and pristine (P3) parts of the Great Vasyugan mire for the sampling period from April to September 2015–2021

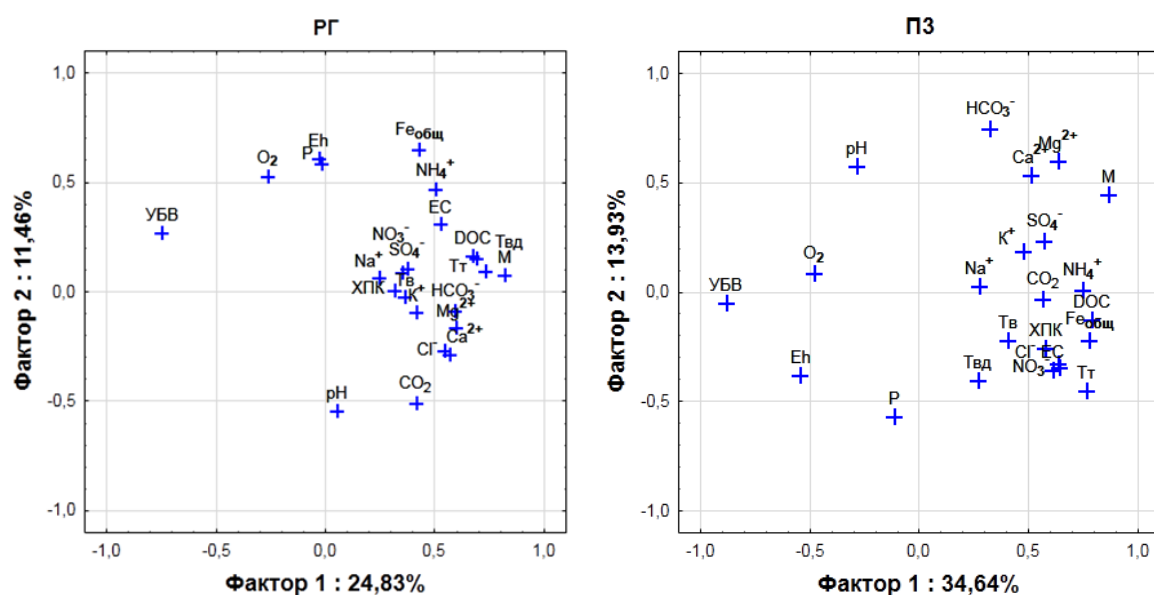


Рис. 5. Факторный анализ химического состава вод осушенного (РГ) и естественного (ПЗ) участков Васюганского болота (M – минерализация, мг/л; DOC (dissolved organic carbon) – растворенный углерод, мг/л; ХПК – химическое потребление кислорода, мгО/л; УБВ – уровень болотных вод в дату отбора проб, см; P – суммарное количество атмосферных осадков за 2 недели до отбора проб, мм; T_с – температура воздуха в дату отбора проб, °C; T_т – средняя температура торфяной залежи в слое 0–100 см в дату отбора проб, °C; T_{мс} – температура болотных вод в дату отбора проб, °C)

Fig. 5. Diagrams of factor analysis of water chemistry at drained (RG) and pristine (P3) parts of the Great Vasyugan mire (M – total dissolved solids, mg/l; DOC – dissolved organic carbon, mg/l; COD – chemical oxygen demand, mgO/l; WTL – water table level, cm; P – total amount of precipitation for 2 weeks before sampling, mm; T_s – air temperature on the sampling date, °C; T_m – average temperature of the peat deposit in the 0–100 cm layer on sampling date, °C; T_{so} – water temperature on sampling date, °C)

Содержание $\text{Fe}_{\text{общ}}$ в водах определяется в основном окислительно-восстановительными условиями среды и величиной pH, а также температурным режимом и количеством атмосферных осадков. Аналогично осушенному участку ведущим фактором формирования состава вод естественного участка Васюганского болота является температура торфяной залежи (0,76), которая находится в прямой корреляции с ЕС (0,61), с содержанием в водах Ca^{2+} (0,51), Mg^{2+} (0,63), NH_4^+ (0,74), $\text{Fe}_{\text{общ}}$ (0,78), Cl^- (0,63), SO_4^{2-} (0,57), NO_3^- (0,64), ХПК (0,58), CO_2 (0,56), $\text{C}_{\text{орг}}$ (0,79) и в обратной зависимости с уровнем болотных вод (–0,88).

Заключение

Исследования показали, что под влиянием осушения в водах Васюганского болота отмечается повышенное содержание всех компонентов в сравнении с естественным участком, при этом достоверные различия отмечены по содержанию в водах Ca^{2+} , Mg^{2+} , $\text{Fe}_{\text{общ}}$, NH_4^+ , NO_3^- , Cl^- , $\text{C}_{\text{орг}}$. Гидрохимический режим болота характеризуется увеличением концентрации основных макрокомпонентов в марте вследствие концентрирования при промерзании торфяной залежи, снижением содержания элементов в водах в апреле в период снеготаяния, увеличением с июня по сентябрь, снижением концентраций в середине сезона при выпадении дождей. В многолетней динамике следует отметить маловодный 2015 г. – в этот год в болотных водах естественного и осушенного участков Васюганского болота были отмечены максимальные за исследуемый период концентрации Na^+ , Mg^{2+} , NH_4^+ , $\text{Fe}_{\text{общ}}$, SO_4^{2-} , NO_3^- , HCO_3^- , $\text{C}_{\text{орг}}$ и минерализации вод.

В связи с зарастанием каналов происходит восстановление болота и химический состав вод осушенного и естественного участков Васюганского болота в отдельные периоды имеет минимальные различия, более существенные различия в содержании компонентов наблюдались в 2017, 2019–2021 гг., что являлось следствием пожара 2016 г. Кластерный анализ показал, что в 2015, 2016, 2018 гг. химический состав вод естественного и осушенного участков Васюганского болота был сопоставим, достоверные различия отмечались только по содержанию в водах Cl^- , NO_3^- , CO_2 , $\text{C}_{\text{орг}}$ и минерализации вод. Индикатором влияния пирогенного фактора на химический состав являлось повышение в болотных водах величины pH и содержания ионов K^+ , Na^+ , SO_4^{2-} , NO_3^- , HCO_3^- , а также Ca^{2+} , Mg^{2+} , $\text{Fe}_{\text{общ}}$. В 2017, 2019–2021 гг. достоверные различия в химическом составе осушенного и естественного участков отмечались по содержанию в водах Ca^{2+} , Mg^{2+} , SO_4^{2-} , $\text{C}_{\text{орг}}$, ХПК, CO_2 и общей минерализации вод. Факторный анализ, проведенный с применением метода главных компонент, показал, что ведущим фактором формирования химического состава вод Васюганского болота является температурный режим, при этом повышение уровней болотных вод после продолжительных засушливых периодов приводит к повышению концентраций химических веществ в водах. Таким образом, исследования показали, что изменение климата, рост температуры воздуха и количества атмосферных осадков в регионе, вероятно, будет способствовать выносу биогенных элементов и органических веществ с болот и повышению их концентрации в речных водах.

Исследование выполнено при финансовой поддержке Российского научного фонда, проект № 22-27-00242.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Restoration dilemmas between future ecosystem and current species values: the concept and a practical approach in Estonian mires / L. Remm, A. Lõhmus, E. Leibak, M. Kohv, J.-O. Salm, P. Lõhmus, R. Rosenvald, K. Runnel, K. Vellak, R. Rannap // Journal of Environmental Management. – 2019. – № 250. – 109439. doi:10.1016/j.jenvman.2019.109439
2. Catchment water quality in the year preceding and immediately following restoration of a drained afforested blanket bog / P. Gaffney, R. Andersen, M. Taggart, M. Hancock // Biogeochemistry. – 2021. – № 153. – P. 243–262. URL: <https://doi.org/10.1007/s10533-021-00782-y> (дата обращения 15.05.2022).
3. Water quality and the biodegradability of dissolved organic carbon in drained boreal peatland under different forest harvesting intensities / M. Palviainen, E. Peltomaa, A. Laurén, N. Kinnunen, A. Ojala, F. Berninger, Z. Xudan, J. Pumpanen // Science of the Total Environment. – 2022. – № 806 (4). – 150919. URL: <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2021.150919> (дата обращения 15.05.2022).
4. Increases in organic carbon and nitrogen concentrations in boreal forested catchments – Changes driven by climate and deposition / A. Lepistö, A. Räike, T. Sallantausta, L. Finér // Science of the Total Environment. – 2021. – № 780. – 146627. URL: <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2021.146627> (дата обращения 15.05.2022).
5. High sensitivity of peat decomposition to climate change through water-table feedback / T. Ise, A. Dunn, S. Wofsy, P.R. Moorcroft // Nature Geoscience. – 2008. – № 1. – P. 763–766. URL: <https://doi.org/10.1038/ngeo331> (дата обращения 15.05.2022).
6. Widespread drying of European peatlands in recent centuries / G.T. Swindles, P.J. Morris, D.J. Mullan, R.J. Payne, T.P. Roland, M.J. Amesbury, M. Lamentowicz, T.E. Turner, A. Gallego-Sala, T. Sim, I.D. Barr, M. Blaauw, A. Blundell, F.M. Chambers, D.J. Charman, A. Feurdean, J.M. Galloway, M. Gafka, S. Green, K. Kajukala, E. Karofeld, A. Korhola, L. Lamentowicz, P. Langdon, K. Marcisz, D. Mauquoy, Y.A. Mazei, M. McKeown, E.A.D. Mitchell, E. Novenko, G. Plunkett, H.M. Roe, K. Schoning, Ü. Sillasoo, A.N. Tsyganov, M. van der Linden, M. Valiranta, B. Warner // Nature Geoscience. – 2019. – № 12. – 922e928.
7. Worldwide peatland degradations and the related carbon dioxide emissions: the importance of policy regulations / I. Urák, T. Hartel, R. Gallé, A. Balog // Environmental Science & Policy. – 2017. – № 69. – P. 57–64. DOI: 10.1016/j.envsci.2016.12.012
8. Rewetting decreases carbon emissions from the Zoige Alpine Peatland on the Tibetan Plateau / L. Cui, X. Kang, W. Li, Y. Hao, Y. Zhang, J. Wang, L. Yan, X. Zhang, M. Zhang, J. Zhou, P. Kardol // Sustainability. – 2017. – № 9 (6). – 948. URL: <https://doi.org/10.3390/su9060948> (дата обращения 15.05.2022).
9. Broder T., Biester H. Linking major and trace element concentrations in a headwater stream to DOC release and hydrologic conditions in a bog and peaty riparian zone // Applied Geochemistry. – 2017. – № 87. – P. 188–201. DOI: 10.1016/j.apgeochem.2017.11.0
10. Geochemical barriers in oligotrophic peat bog (Western Siberia) / O. Savichev, E. Soldatova, M. Rudmin, A. Mazurov // Applied Geochemistry. – 2020. – № 113. – 104519. DOI: 10.1016/j.apgeochem.2019.1045
11. Wetland buffer zones for nitrogen and phosphorus retention: impacts of soil type, hydrology and vegetation / C.R. Walton, D. Zak, J. Audet, R.J. Petersen, J. Lange, C. Oehmke, W. Wichtmann, J. Kreyling, M. Grygoruk, E. Jabłońska, W. Kotowski, M. Wiśniewska, R. Ziegler, C.C. Hoffmann // Science of The Total Environment. – 2020. – 138709. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2020.1387

12. Howie S.A., Hebda R.J. Bog surface oscillation (mire breathing): a useful measure in raised bog restoration // *Hydrological Processes*. – 2018. – № 32 (11). – P. 1518–1530. DOI: 10.1002/hyp.11622
13. Bourgault M.-A., Larocque M., Garneau M. Quantification of peatland water storage capacity using the water table fluctuation method // *Hydrological Processes*. – 2017. – № 31 (5). – P. 1184–1195. DOI: 10.1002/hyp.11116
14. The effects of long-term drainage and subsequent restoration on water table level and pore water chemistry in boreal peatlands / T. Haapalehto, J.S. Kotiaho, R. Matilainen, T. Tahvanainen // *Journal of Hydrology*. – 2014. – V. 519. – P. 1493–1505. DOI: 10.1016/j.jhydrol.2014.09.013
15. Effects of drainage on dissolved organic carbon (DOC) characteristics of surface water from a mountain peatland / X. Xu, K. Lu, Z. Wang, M. Wang, S. Wang // *Science of The Total Environment*. – 2021. – № 789. – P. 147848. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2021.1478
16. Drainage for forestry increases N, P and TOC export to boreal surface waters / L. Finér, A. Lepistö, K. Karlsson, A. Räike, L. Härkönen, M. Huttunen, S. Joensuu, P. Kortelainen, T. Mattsson, S. Piirainen, S. Sallantausta, S. Sarkkola, S. Tattari, L. Ukonmaanaho // *Science of The Total Environment*. – 2021. – № 762. – P. 144098. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2020.1440
17. Effect of drainage and wildfire on peat hydrophysical properties / J.H. Sherwood, N. Kettridge, D.K. Thompson, P.J. Morris, U. Silins, J.M. Waddington // *Hydrological Processes*. – 2013. – № 27 (13). – P. 1866–1874. DOI: 10.1002/hyp.9820
18. Browning of freshwaters: consequences to ecosystem services, underlying drivers, and potential mitigation measures / E.S. Kritzberg, E.M. Hasselquist, M. Škerlep, S. Löfgren, O. Olsson, J. Stadmark, S. Vilinina, L.-A. Hansson, H. Laudon // *Ambio*. – 2020. – № 49 (2). – P. 375–390. URL: <https://doi.org/10.1007/s13280-019-01227-5> (дата обращения 15.05.2022).
19. Оценка антропогенной деградации болот Западной Сибири на примере верхового болота в бассейне реки Гавриловка / А.А. Малолетко, Е.С. Иванова, Ю.А. Харанжевская, А.А. Синюткина, Л.П. Гашкова // Тринадцатое Сибирское совещание и школа молодых ученых по климатологическому мониторингу: Тезисы докладов российской конференции. – Томск: Аграф-Пресс, 2019. – С. 204–205.
20. Sinyutkina A.A. Drainage consequences and self-restoration of drained raised bogs in the south-eastern part of Western Siberia: Peat accumulation and vegetation dynamics // *Catena*. – 2021. – № 205. – P. 105464. URL: <https://doi.org/10.1016/j.catena.2021.105464> (дата обращения 15.05.2022).
21. Post-fire ecological consequences within the drained site of the Great Vasyugan Mire: retrospective water-thermal regime and pyrogenic disturbance estimation / A.A. Sinyutkina, L.P. Gashkova, N.G. Koronotova, A.A. Maloletko, N.P. Mironycheva-Tokareva, I.V. Russkikh, O.V. Serebrennikova, E.B. Strel'nikova, E.K. Vishnyakova, Yu.A. Kharanzhevskaya // *IOP Conference Series: Earth and Environmental Sciences*. – 2020. – V. 408. – P. 012037. DOI: 10.1088/1755-1315/408/1/012037
22. Automatic meteorological measuring systems for microclimate monitoring / M.V. Kiselev, N.N. Voropay, E.A. Dyukarev, S.A. Kurakov, P.S. Kurakova, E.A. Makeev // *IOP Conference Series: Earth and Environmental Science*. – 2018. – V. 190. – P. 012031. URL: <https://doi.org/10.1088/1755-1315/190/1/012031> (дата обращения 15.05.2022).
23. Вуколов Э.А. Основы статистического анализа. Практикум по статистическим методам и исследованию операций с использованием пакетов STATISTICA и EXCEL. – М.: Форум, 2011. – 464 с.
24. Muller F.L.L., Tankéré-Muller S.P.C. Seasonal variations in surface water chemistry at disturbed and pristine peatland sites in the Flow Country of northern Scotland // *Science of The Total Environment*. – 2012. – № 435–436. – P. 351–362. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2012.06.0
25. Бульгина О.Н., Разуваев В.Н., Александрова Т.М. Описание массива данных суточной температуры воздуха и количества атмосферных осадков на метеорологических станциях России и бывшего СССР (ТТТ) Свидетельство о государственной регистрации базы данных № 2014620942. URL: <http://meteo.ru/data/162-temperature-precipitation/описание-массива-данных> (дата обращения 15.05.2022).
26. Ахметьева Н.П., Лапина Е.Е., Михайлова А.В. Изменение химического состава болотных вод после пожаров 2010 года (на примере водосбора Иваньковского водохранилища) // *Труды Института*. – 2011. – № 4 (57). – С. 12–16.
27. Естественное восстановление болот после пожаров / Н.П. Ахметьева, С.Э. Белова, Р.Г. Джамалов, И.С. Куличевская, Е.Е. Лапина, А.В. Михайлова // *Водные ресурсы*. – 2014. – Т. 41. – № 4. – С. 343–354.
28. Smouldering fire in a nutrient-limited wetland ecosystem: long-lasting changes in water and soil chemistry facilitate shrub expansion into a drained burned fen / M. Sulwiński, M. Mętrak, M. Wilk, M. Suska-Malawska // *Science of The Total Environment*. – 2020. – V. 746. – P. 141142. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2020.141142
29. Kharanzhevskaya Yu.A., Sinyutkina A.A. Effects of wildfire on the water chemistry of the northeastern part of the Great Vasyugan Mire (Western Siberia) // *IOP Conf. Series: Earth and Environmental Science*. – 2021. – P. 928. – P. 012006. DOI: 10.1088/1755-1315/928/1/012006
30. Синюткина А.А., Харанжевская Ю.А. Мониторинг атмосферных выпадений Zn, Cu, Cd, Pb в пределах участка Большого Васюганского болота // *Оптика атмосферы и океана*. – 2020. – Т. 33. – № 6. – С. 448–452. DOI: 10.15372/AOO20200605
31. Воистинова Е.С., Харанжевская Ю.А., Синюткина А.А. Особенности гидрохимического режима северо-восточной части Васюганского болота в междуречье рек Бакчар и Икса (Западная Сибирь) // *Водное хозяйство России*. – 2018. – № 3. – С. 16–34.
32. Харанжевская Ю.А., Чудиновская Л.А., Синюткина А.А. Сезонная вариация условий формирования химического состава вод северо-восточной части Васюганского болота // Тринадцатое Сибирское совещание и школа молодых ученых по климатологическому мониторингу: Тезисы докладов российской конференции. – Томск: Аграф-Пресс, 2019. – С. 240–241.
33. Калюжный И.Л. Общие черты формирования гидрохимического режима основных типов болот России // *Метеорология и гидрология*. – 2018. – № 8. – С. 72–81.
34. Калюжный И.Л. Гидрохимический режим и химический состав мезоолиготрофных болотных массивов Кольского полуострова // *Вестник Карельского научного центра РАН*. – 2016. – № 3. – С. 114–125.
35. Савичев О.Г., Мазуров А.К. Временные изменения химического состава вод в восточной части Васюганского болота (Западная Сибирь) // *Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов*. – 2018. – Т. 329. – № 2. – С. 38–48.
36. Limited effect of drainage on peat properties, porewater chemistry, and peat decomposition proxies in a boreal peatland / L.I. Harris, T.R. Moore, N.T. Roulet, A.J. Pinsonneault // *Biogeochemistry*. – 2020. DOI: 10.1007/s10533-020-00707-1

Поступила 29.06.2022 г.

Информация об авторах

Харанжевская Ю.А., кандидат геолого-минералогических наук, старший научный сотрудник, Сибирский научно-исследовательский институт сельского хозяйства и торфа – филиал Сибирского федерального научно-го центра агробиотехнологий РАН.

UDC 556.561

SEASONAL AND LONG-TERM DYNAMICS OF WATER CHEMISTRY WITHIN THE DRAINED PART OF THE GREAT VASYUGAN MIRE

Yulia A. Kharanzhevskaya,
kharan@yandex.ru

Siberian Federal Scientific Centre of Agro-BioTechnologies of the Russian Academy of Sciences,
Siberian Research Institute of Agriculture and Peat,
3, Gagarin street, Tomsk, 634050, Russia.

The relevance of the study is caused by the need to assess the transformation of water chemistry under the influence of climate change and economic activity.

The aim: to study the effects of drainage on water chemistry of the Great Vasyugan mire, to estimate the conditions, seasonal and long-term changes under the influence of drainage.

Objects: northeastern part of the Great Vasyugan mire close to Polynyanka village, Bakchar district, Tomsk region.

Methods. Laboratory analysis was carried out by titrimetry, spectrophotometry, flame photometry at the Laboratory and Analytical Center of the Siberian Research Institute of Agriculture and Peat. Statistical analysis of the data made using the non-parametric Mann–Whitney test, cluster analysis and the Principal component analysis.

Results. The studies shown that as a result of the forest reclamation, as well as because of the fire in 2016, in the waters of the northeastern section of the Great Vasyugan mire, in comparison with its natural part, there is a statistically significant increase in the concentration of Ca^{2+} , Mg^{2+} , Fe_{total} , NH_4^+ , NO_3^- , Cl^- , DOC. However, at present, due to the overgrowing of ditches, the mire self-restoration is noted, as a result of which the water chemistry of the drained and pristine areas of the Great Vasyugan mire has minimal differences in 2015, 2016, 2018, more significant differences in water chemistry due to fire event are observed in 2017, 2019–2021. The indicator of the influence of the pyrogenic factor on the water chemistry was an increase in the pH value and the content of K^+ , Na^+ , SO_4^{2-} , NO_3^- , HCO_3^- , as well as Ca^{2+} , Mg^{2+} , Fe_{total} . Principal component analysis showed that the leading factor in water chemistry formation is the temperature regime, while the increase in the water levels after long dry periods leads to increase in the concentrations in the waters.

Key words:

Mire waters, chemical composition, forest reclamation, influence, Great Vasyugan mire, Western Siberia.

The research was financially supported by the Russian Science Foundation, project no. 22-27-00242.

REFERENCES

1. Remm L., Lohmus A., Leibak E., Kohv M., Salm J.-O., Lohmus P., Rosenvald R., Runnel K., Vellak K., Rannap R. Restoration dilemmas between future ecosystem and current species values: The concept and a practical approach in Estonian mires. *Journal of Environmental Management*, 2019, no. 250, 109439. DOI: 10.1016/j.jenvman.2019.109439
2. Gaffney P., Andersen R., Taggart M., Hancock M. Catchment water quality in the year preceding and immediately following restoration of a drained afforested blanket bog. *Biogeochemistry*, 2021, no. 153, pp. 243–262. Available at: <https://doi.org/10.1007/s10533-021-00782-y> (accessed 15 May 2022).
3. Palviainen M., Peltomaa E., Laurén A., Kinnunen N., Ojala A., Berninger F., Xudan Z., Pumpanen J. Water quality and the biodegradability of dissolved organic carbon in drained boreal peatland under different forest harvesting intensities. *Science of the Total Environment*, 2022, no. 806, 150919. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2021.150919> (accessed 15 May 2022).
4. Lepistö A., Räike A., Sallantausta T., Finér L. Increases in organic carbon and nitrogen concentrations in boreal forested catchments – Changes driven by climate and deposition. *Science of the Total Environment*, 2021, no. 780, 146627. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2021.146627> (accessed 15 May 2022).
5. Ise T., Dunn A., Wofsy S., Moorcroft P.R. High sensitivity of peat decomposition to climate change through water-table feedback. *Nature Geoscience*, 2008, no. 1, pp. 763–766. Available at: <https://doi.org/10.1038/ngeo331> (accessed 15 May 2022).
6. Swindles G.T., Morris P.J., Mullan D.J., Payne R.J., Roland T.P., Amesbury M.J., Lamentowicz M., Turner T.E., Gallego-Sala A., Sim T., Barr I.D., Blaauw M., Blundell A., Chambers F.M., Charman D.J., Feurdean A., Galloway J.M., Galka M., Green S., Kajukalo K., Karofeld E., Korhola A., Lamentowicz L., Langdon P., Marcisz K., Mauquoy D., Mazei Y.A., McKeown M., Mitchell E.A.D., Novenko E., Plunkett G., Roe H.M., Schoning K., Sillasoo Ü., Tsyganov A.N., Van der Linden M., Valiranta M., Warner B. Widespread drying of European peatlands in recent centuries. *Nature Geoscience*, 2019, no. 12, 922e928.
7. Urák I., Hartel T., Gallé R., Balog A. Worldwide peatland degradations and the related carbon dioxide emissions: the importance of policy regulations. *Environmental Science & Policy*, 2017, no. 69, pp. 57–64. DOI: 10.1016/j.envsci.2016.12.012
8. Cui L., Kang X., Li W., Hao Y., Zhang Y., Wang J., Yan L., Zhang X., Zhang M., Zhou J., Kardol P. Rewetting decreases carbon emissions from the Zoige Alpine Peatland on the Tibetan Plateau. *Sustainability*, 2017, no. 9 (6), 948. Available at: <https://doi.org/10.3390/su9060948> (accessed 15 May 2022).
9. Broder T., Biester H. Linking major and trace element concentrations in a headwater stream to DOC release and hydrologic conditions in a bog and peaty riparian zone. *Applied Geochemistry*, 2017, no. 87, pp. 188–201. DOI: 10.1016/j.apgeochem.2017.11.0
10. Savichev O., Soldatova E., Rudmin M., Mazurov A. Geochemical barriers in oligotrophic peat bog (Western Siberia). *Applied Geochemistry*, 2020, no. 113, 104519. DOI: 10.1016/j.apgeochem.2019.1045
11. Walton C.R., Zak D., Audet J., Petersen R.J., Lange J., Oehmke C., Wichtmann W., Kreyling J., Grygoruk M., Jabłońska E., Kotowski W., Wiśniewska M., Ziegler R., Hoffmann C.C. Wetland buffer zones for nitrogen and phosphorus retention: Impacts of soil type, hydrology and vegetation. *Science of the Total Environment*, 2020, 138709. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2020.1387
12. Howie S.A., Hebda R.J. Bog surface oscillation (mire breathing): a useful measure in raised bog restoration. *Hydrological Processes*, 2018, no. 32 (11), pp. 1518–1530. DOI: 10.1002/hyp.11622
13. Bourgault M.-A., Larocque M., Garneau M. Quantification of peatland water storage capacity using the water table fluctuation

- method. *Hydrological Processes*, 2017, no. 31 (5), pp. 1184–1195. DOI: 10.1002/hyp.11116
14. Haapalehto T., Kotiaho J.S., Matilainen R., Tahvanainen T. The effects of long-term drainage and subsequent restoration on water table level and pore water chemistry in boreal peatlands. *Journal of Hydrology*, 2014, no. 519, pp. 1493–1505. DOI: 10.1016/j.jhydrol.2014.09.013
 15. Xu X., Lu K., Wang Z., Wang M., Wang S. Effects of drainage on dissolved organic carbon (DOC) characteristics of surface water from a mountain peatland. *Science of The Total Environment*, 2021, no. 789, 147848. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2021.1478
 16. Finér L., Lepistö A., Karlsson K., Räike A., Härkönen L., Huttunen, M., Joensuu S., Kortelainen P., Mattsson T., Piirainen S., Sallantausta T., Sarkkola S., Tattari S., Ukonmaanaho L. Drainage for forestry increases N, P and TOC export to boreal surface waters. *Science of The Total Environment*, 2021, no. 762, 144098. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2020.1440
 17. Sherwood J.H., Kettridge N., Thompson D.K., Morris P.J., Silins U., Waddington J.M. Effect of drainage and wildfire on peat hydrophysical properties. *Hydrological Processes*, 2013, no. 27 (13), pp. 1866–1874. DOI: 10.1002/hyp.9820
 18. Kritzberg E.S., Hasselquist E.M., Škerlep M., Löfgren S., Olsson O., Stadmark J., Vilinina S., Hansson L.-A., Laudon H. Browning of freshwaters: consequences to ecosystem services, underlying drivers, and potential mitigation measures. *Ambio*, 2020, no. 49, pp. 375–390. Available at: <https://doi.org/10.1007/s13280-019-01227-5> (accessed 15 May 2022).
 19. Maloletko A.A., Ivanova E.S., Kharanzhevskaya Yu.A., Sinyutkina A.A., Gashkova L.P. Otsenka antropogennoy degradatsii bolot Zapadnoy Sibiri na primere verkhovogo bolota v basseyn reki Gavrilovka [Assessment of anthropogenic degradation of Western Siberian bogs on the example of a raised bog in the Gavrilovka river basin]. *Trinadtsatoye Sibirskoye soveshchanie i shkola molodykh uchenykh po klimato-ekologicheskoy monitoring. Tezisy dokladov rossiyskoy konferentsii* [Thirteenth Siberian Conference and the School of Young Scientists on Climate and Ecological Monitoring. Abstracts of the Russian Conference]. Tomsk, Agraf-Press, 2019. pp. 204–205.
 20. Sinyutkina A.A. Drainage consequences and self-restoration of drained raised bogs in the south-eastern part of Western Siberia: peat accumulation and vegetation dynamics. *Catena*, 2021, no. 205, 105464. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.catena.2021.105464> (accessed 15 May 2022).
 21. Sinyutkina A.A., Gashkova L.P., Koronatova N.G., Maloletko A.A., Mironycheva-Tokareva N.P., Russkikh I.V., Serebrennikova O.V., Strel'nikova E.B., Vishnyakova E.K. Kharanzhevskaya Yu.A. Post-fire ecological consequences within the drained site of the Great Vasyugan Mire: retrospective water-thermal regime and pyrogenic disturbance estimation. *IOP Conference Series: Earth and Environmental Science*, 2020, vol. 408, 012037. DOI: 10.1088/1755-1315/408/1/012037
 22. Kiselev M.V., Voropay N.N., Dyukarev E.A., Kurakov S.A., Kurakova P.S., Makeev E.A. Automatic meteorological measuring systems for microclimate monitoring. *IOP Conference Series: Earth and Environmental Science*, 2018, no. 190, 012031. Available at: <https://doi.org/10.1088/1755-1315/190/1/012031> (accessed 15 May 2022).
 23. Vukolov E.A. *Osnovy statisticheskogo analiza. Praktikum po statisticheskim metodam i issledovaniyu operatsiy s ispolzovaniem paketov STATISTICA i EXCEL* [Basics of statistical analysis. Manual on statistical methods and operations research using STATISTICA and EXCEL Packages]. Moscow, Forum Publ., 2011. 464 p.
 24. Muller F.L.L., Tankeré-Muller S.P.C. Seasonal variations in surface water chemistry at disturbed and pristine peatland sites in the Flow Country of northern Scotland. *Science of The Total Environment*, 2012, no. 435–436, pp. 351–362. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2012.06.0
 25. Bulygina O.N., Razuvaev V.N., Aleksandrova T.M. *Description of the data array of daily air temperature and precipitation at meteorological stations in Russia and the former USSR (TTTR) Certificate of state registration of the database No. 2014620942/* Available at: <http://meteo.ru/data/162-temperature-precipitation#data-array-description> (accessed 15 May 2022).
 26. Akhmeteva N.P., Lapina E.E., Mikhailova A.V. Changes in the chemical composition of mire waters after the fires of 2010 (on the example of the watershed of the Ivankovo reservoir). *Proceedings of Instorf*, 2011, no. 4 (57), pp. 12–16. In Rus.
 27. Akhmeteva N.P., Belova S.E., Dzhamalov R.G., Kulichevskaya I.S., Lapina E.E., Mikhailova A.V. Self-restoration of mires after fires. *Water resources*, 2014, vol. 41, no. 4, pp. 343–354. In Rus.
 28. Sulwiński M., Mętrak M., Wilk M., Suska-Malawska M. Smouldering fire in a nutrient-limited wetland ecosystem: long-lasting changes in water and soil chemistry facilitate shrub expansion into a drained burned fen. *Science of The Total Environment*, 2020, no. 746, 141142. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2020.141142
 29. Kharanzhevskaya Yu.A., Sinyutkina A.A. Effects of wildfire on the water chemistry of the northeastern part of the Great Vasyugan Mire (Western Siberia). *IOP Conference Series: Earth and Environmental Science*, 2021, no. 928, 012006. DOI: 10.1088/1755-1315/928/1/012006
 30. Sinyutkina A.A., Kharanzhevskaya Yu.A. Monitoring of atmospheric deposition of Zn, Cu, Cd, and Pb within the area of the Great Vasyugan mire. *Atmospheric and Oceanic Optics*, 2020, no. 6. DOI: 10.15372/AOO20200605
 31. Voistina E.S., Kharanzhevskaya Yu.A., Sinyutkina A.A. Features of the hydrochemical regime of the northeastern part of the Great Vasyugan mire in the interfluvium of the Bakchar and Iksha rivers (Western Siberia). *Water Management of Russia*, 2018, no. 3, pp. 16–34. In Rus.
 32. Kharanzhevskaya Yu.A., Chudinovskaya L.A., Sinyutkina A.A. Sezonnaya variatsiya usloviy formirovaniya khimicheskogo sostava vod severo-vostochnoy chasti Vasyuganskogo bolota [Seasonal variation of the conditions water chemistry formation in the northeastern part of the Great Vasyugan Mire]. *Trinadtsatoye Sibirskoye soveshchanie i shkola molodykh uchenykh po klimato-ekologicheskoy monitoringu* [Thirteenth Siberian meeting and the school of young scientists on climate and environmental monitoring]. Tomsk, Agraf-Press, 2019. pp. 240–241.
 33. Kalyuzhny I.L. General features of the formation of the hydrochemical regime of the main types of mires in Russia. *Meteorology and hydrology*, 2018, no. 8, pp. 72–81. In Rus.
 34. Kalyuzhny I.L. Hydrochemical regime and water chemical composition of mezoooligotrophic bog on the Kola Peninsula. *Bulletin of the Karelian Scientific Center of the Russian Academy of Sciences*, 2016, no. 3, pp. 114–125. In Rus.
 35. Savichev O.G., Mazurov A.K. Changes of chemical composition of waters in the east part of the Vasyugan mire (Western Siberia). *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering*, 2018, vol. 329, no. 2, pp. 38–48. In Rus.
 36. Harris L.I., Moore T.R., Roulet N.T., Pinsonneault A.J. Limited effect of drainage on peat properties, porewater chemistry, and peat decomposition proxies in a boreal peatland. *Biogeochemistry*, 2020. DOI: 10.1007/s10533-020-00707-1

Received: 29 June 2022.

Information about the authors

Yulia A. Kharanzhevskaya, Cand. Sc., senior researcher, Siberian Federal Scientific Centre of Agro-BioTechnologies of the Russian Academy of Sciences, Siberian Research Institute of Agriculture and Peat.

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

Подписано к печати 28.08.2022. Дата выхода журнала: 30.08.2022.
Формат 60x84/8. Бумага «Снегурочка».
Печать XEROX. Усл. печ. л. 26,29. Уч.-изд. л. 23,78.
Заказ 168-22. Тираж 500 экз. Цена свободная.



Издательство

ТОМСКИЙ ПОЛИТЕХНИЧЕСКИЙ УНИВЕРСИТЕТ

Адрес учредителя, редакции, издателя, типографии:
634050, г. Томск, пр. Ленина, 30, каб. 139.