

## КАЧЕСТВО И ОХРАНА ВОД, ЭКОЛОГИЧЕСКИЕ ПРОЦЕССЫ

УДК 55.504;550.424

# ОЦЕНКА ДОЛГОСРОЧНОЙ БЕЗОПАСНОСТИ ЗАХОРОНЕНИЯ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ. 2. ИССЛЕДОВАНИЕ ВОДООБМЕНА В МНОГОСЛОЙНОЙ СИСТЕМЕ ИЗОТОПНЫМИ МЕТОДАМИ<sup>1</sup>

© 2009 г. И. В. Токарев\*, А. А. Зубков\*\*, В. Г. Румынин\*, С. П. Поздняков\*\*\*

\*Санкт-Петербургское отделение Института геоэкологии Российской академии наук

199178 Санкт-Петербург, ВО, Средний пр., 41

\*\*Сибирский химический комбинат

636000 Северск, ул. Курчатова 1

\*\*\*Московский государственный университет

119991 Москва ГСП-1, Ленинские горы

Поступила в редакцию 02.10.2007 г.

В дополнение к ранее выполненным исследованиям изотопных систем  $^3\text{H}$ ,  $\delta^2\text{H}$ ,  $\delta^{18}\text{O}$ , Ar,  $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$  и  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  дается количественная интерпретация данных уран-гелиевого метода датирования подземных вод на полигоне захоронения радиоактивных отходов Сибирского химического комбината. В основу интерпретации положены аналитические модели, в которых учитывается подток глубинного гелия, а также диффузионно-конвективный межслойевой обмен. Расчетные значения скорости фильтрации в пластах-коллекторах и буферных горизонтах в целом согласуются с ранее выполненными гидродинамическими оценками. На основе полученных значений скоростей горизонтального массопереноса выполнена оценка возраста подземных вод в точках отбора проб. В нижних (II и III) горизонтах, куда происходит нагнетание радиоактивных отходов, возраст воды варьирует от 7 до 14 (среднее значение ~9), в буферном горизонте IV – от 2 до 4, в верхнем горизонте V – от 1 до 2 тыс. лет.

Наряду с ранее выполненными оценками безопасности подземного захоронения радиоактивных отходов (РАО) Сибирского химического комбината (СХК), выполненными на основе гидродинамических расчетов [5, 8], а также с использованием изотопных методов для палеореконструкции условий формирования подземных вод региона [6], важной является прямая оценка гидродинамических показателей, контролирующих риск, возникающий от захоронения РАО. Настоящая статья посвящена определению интенсивности региональных фильтрационных потоков на основе изотопных данных (водорстворенных  $^{3,4}\text{He}$ ,  $^{20}\text{Ne}$ ,  $^{36,40}\text{Ar}$  и содержащихся в водовмещающих породах U, Th), полученных при отборе проб воды и пород из скважин режимной сети полигона захоронения РАО в 2003–2005 гг.

## ФАКТИЧЕСКИЙ МАТЕРИАЛ

Отбор проб воды осуществлялся из скважин, оборудованных фильтрами на пять основных водонесущих горизонтов [6], одна проба была отобрана из скважины, которая вскрыла породы палеозойского фундамента.

<sup>1</sup> Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (гранты 04-05-97508 р\_офи и 07-05-00796-а), Международного научно-технического центра (гранты 3193 и 3590) и Фонда гражданских исследований и развития (грант RUG2-2821МО-06).

В пробах объемным методом определялась концентрация  $^{40}\text{Ar}$ , а масс-спектрометрическим методом – изотопные соотношения  $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ ,  $^{20}\text{Ne}/^{4}\text{He}$  и  $^{3}\text{He}/^{4}\text{He}$ . Изотопное отношение  $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$  использовалось для контроля происхождения аргона. Измерения показали, что добавки радиогенного аргона отсутствуют, так как во всех пробах отношение  $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$  практически соответствовало атмосферному значению. Температура насыщения атмосферными газами рассчитывалась по концентрации Ar на основе методики [11], результаты приведены в табл. 1. По этой температуре согласно [16] определялся вклад атмосферного гелия  $[^{4}\text{He}]_{\text{атм}}$  и неона  $[^{20}\text{Ne}]_{\text{атм}}$ . Последние величины использовались для

**Таблица 1.** Температура подземных вод, °C, рассчитанная по Ar (здесь и в табл. 4, 5 в скобках – количество определений; здесь и в табл. 5 прочерк – отсутствие данных)

| Горизонт | Скважины регионального контроля вне ореола растекания РАО | Площадка 18 |
|----------|---|-------------|
| I        | +2.0 (3)  | –           |
| II       | +1.4 (8)  | +16.8 (6)   |
| III      | -0.2 (8)  | +12.4 (4)   |
| IV       | +2.6 (8)  | +0.9 (1)    |
| V        | +4.2 (7)  | +0.1 (1)    |

**Таблица 2.** Результаты определения концентраций радиогенного  $[{}^4\text{He}]$  в водоносных горизонтах,  $\text{nsm}^3/\text{cm}^3 \text{H}_2\text{O}$ 

| Горизонт | Место отбора | $[{}^4\text{He}]$     | $[{}^4\text{He}]_{\text{cp}}^*$ | Горизонт | Место отбора | $[{}^4\text{He}]$     | $[{}^4\text{He}]_{\text{cp}}$ |
|----------|--------------|-----------------------|---------------------------------|----------|--------------|-----------------------|-------------------------------|
| F**      | C-115***     | $1.37 \times 10^{-5}$ | $1.37 \times 10^{-5}$           | III      | K-13         | $2.10 \times 10^{-6}$ |                               |
| I        | Г-27         | $5.52 \times 10^{-6}$ | $4.78 \times 10^{-6}$           | III      | K-10         | $5.97 \times 10^{-6}$ |                               |
| I        | K-5****      | $5.15 \times 10^{-6}$ |                                 | IV       | K-2          | $2.28 \times 10^{-7}$ | $3.92 \times 10^{-7}$         |
| I        | K-9          | $5.46 \times 10^{-6}$ |                                 | IV       | K-1          | $9.52 \times 10^{-8}$ |                               |
| I        | K-3          | $3.00 \times 10^{-6}$ |                                 | IV       | K-10         | $6.69 \times 10^{-7}$ |                               |
| II       | K-1          | $4.82 \times 10^{-6}$ | $5.28 \times 10^{-6}$           | IV       | K-7          | $3.29 \times 10^{-7}$ |                               |
| II       | K-7          | $1.76 \times 10^{-6}$ |                                 | IV       | K-12         | $9.02 \times 10^{-7}$ |                               |
| II       | C-16         | $6.34 \times 10^{-6}$ |                                 | IV       | K-13         | $6.51 \times 10^{-7}$ |                               |
| II       | K-2          | $4.30 \times 10^{-6}$ |                                 | IV       | K-6          | $1.15 \times 10^{-7}$ |                               |
| II       | K-5          | $4.12 \times 10^{-6}$ |                                 | IV       | K-5          | $1.46 \times 10^{-7}$ |                               |
| II       | K-12         | $7.82 \times 10^{-6}$ |                                 | V        | E-26         | $1.17 \times 10^{-7}$ | $6.81 \times 10^{-8}$         |
| II       | K-13         | $5.33 \times 10^{-6}$ |                                 | V        | T-6          | $5.04 \times 10^{-8}$ |                               |
| II       | K-10         | $7.82 \times 10^{-6}$ |                                 | V        | K-9          | $5.54 \times 10^{-8}$ |                               |
| III      | K-1          | $1.76 \times 10^{-6}$ | $3.34 \times 10^{-6}$           | V        | K-2          | $4.69 \times 10^{-8}$ |                               |
| III      | K-2          | $1.63 \times 10^{-6}$ |                                 | V        | K-1          | $3.03 \times 10^{-8}$ |                               |
| III      | K-5          | $4.04 \times 10^{-6}$ |                                 | V        | K-6          | $9.18 \times 10^{-8}$ |                               |
| III      | K-6          | $4.82 \times 10^{-6}$ |                                 | V        | K-5          | $5.28 \times 10^{-8}$ |                               |
| III      | K-12         | $3.10 \times 10^{-6}$ |                                 | V        | K-10         | $1.00 \times 10^{-7}$ |                               |

\* – среднее значение;

\*\* – фундамент;

\*\*\* – номер одиночной скважины [6];

\*\*\*\* – индекс “K” означает, что точка относится к кусту ярусных скважин, имеющих порядковые номера от 1 до 13 [6].

расчета концентрации радиогенного изотопа  $[{}^4\text{He}]_{\text{рад}}$ , накопленного за счет продуцирования ураном и торием в водовмещающих породах и последующей эманации в поровую воду. Так как источником  ${}^{20}\text{Ne}$  в подземной воде может быть только атмосферный воздух, то его содержание в подземной воде инфильтрационного генезиса  $[{}^{20}\text{Ne}]_{\text{атм}}$  определяется степенью насыщения воды этим газом в момент инфильтрации атмосферных осадков [11]. Тогда, используя измеренное отношение  $[{}^{20}\text{Ne}/{}^4\text{He}]_{\text{изм}}$ , можно рассчитать концентрацию радиогенного гелия в пробе

$$[{}^4\text{He}]_{\text{рад}} \equiv C_2 = [{}^{20}\text{Ne}]_{\text{атм}} / [{}^{20}\text{Ne}/{}^4\text{He}]_{\text{изм}} - [{}^4\text{He}]_{\text{атм}}. \quad (1)$$

По формуле (1) были рассчитаны текущие значения концентраций  $[{}^4\text{He}]_{\text{рад}}$  (далее для краткости – просто  $[{}^4\text{He}]$ , табл. 2). В таблицу включены скважины (всего 36), находящиеся за пределами зоны, занятой РАО, что контролировалось по отсутствию в пробах трития (для исключения влияния ореола радиоактивных растворов).

Из табличных данных хорошо видно, что наблюдается закономерное распределение гелия в разрезе. Повышенными концентрациями  ${}^4\text{He}$  характеризуются воды нижней части разреза. Максимальные значения были зарегистрированы в

скважине, вскрывшей воды в фундаменте  $[{}^4\text{He}] = 1.37 \times 10^{-5} \text{ nsm}^3/\text{cm}^3 \text{H}_2\text{O}$ . Средние содержания гелия –  $[{}^4\text{He}]_{\text{cp}}$  в горизонтах I, II и III имеют порядок  $n \times 10^{-6} \text{ nsm}^3/\text{cm}^3 \text{H}_2\text{O}$ , причем статистически значимые величины  $[{}^4\text{He}]$  в горизонте III меньше, чем в горизонтах I и II. В верхней части разреза в IV горизонте концентрация уменьшается примерно на порядок  $[{}^4\text{He}]_{\text{cp}} = 3.92 \times 10^{-7} \text{ nsm}^3/\text{cm}^3 \text{H}_2\text{O}$ . Наконец, в V горизонте значения  $[{}^4\text{He}]_{\text{cp}}$  еще меньше –  $6.81 \times 10^{-8} \text{ nsm}^3/\text{cm}^3 \text{H}_2\text{O}$ . Таким образом, имеет место экспоненциальное затухание содержаний  ${}^4\text{He}$  по мере приближения к поверхности Земли и удаления от фундамента.

Модельные построения предполагают определение скорости продуцирования  $P_i$  радиогенного  ${}^4\text{He}$  водовмещающими породами. В данной работе оценки базировались на данных изучения содержаний U и Th в 45 пробах пород, отобранных из опорной скважины, а также их корреляции с данными массового гамма-каротажа скважин [15]. Анализ распределения концентраций U и Th в породе показывает, что несколько повышенной природной ра-

диоактивностью обладают породы, слагающие верхнюю часть разреза (табл. 3), что учитывалось в расчетах темпов водообмена. Учитывая, что вариации концентраций родительских изотопов в геологическом разрезе относительно невелики и время контакта воды с вмещающими породами не превышает 15 тыс. лет (см. ниже), можно заранее предположить, что эта разница не должна сказываться на измеряемых содержаниях гелия и на результатах расчетов.

### ТЕОРЕТИЧЕСКИЕ ОСНОВЫ МЕТОДА

В ходе данного исследования была разработана оригинальная методика расчета баланса гелия в многопластовой системе с учетом вынужденного конвективного и собственного диффузационного транспорта гелия, рассмотрение которой начнем с модели однопластовой системы.

#### *Изолированный пласт*

Пусть родительскими являются радионуклиды изотопных рядов  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  [9], полный  $\alpha$ -распад каждого из атомов которых приводит к эмиссии соответственно  $k_1 = 8$ ,  $k_2 = 7$ ,  $k_3 = 6$  атомов стабильного ( $\lambda_2 = 0$ ) изотопа гелия  $^4\text{He}$ . Тогда решение соответствующей краевой задачи относительно концентрации  $^4\text{He}$  ( $C_2$ ) имеет вид (подробнее в Приложении 1)

$$C_2 = \frac{1}{n}(k_1 C_1^1 (e^{-\lambda_1^1 t} - 1) + k_2 C_1^2 (e^{-\lambda_1^2 t} - 1) + k_3 C_1^3 (e^{-\lambda_1^3 t} - 1)) \text{ при } t < t_0 \text{ и} \quad (2)$$

$$C_2 = \frac{1}{n}(k_1 C_1^1 (e^{-\lambda_1^1 t_0} - 1) + k_2 C_1^2 (e^{-\lambda_1^2 t_0} - 1) + k_3 C_1^3 (e^{-\lambda_1^3 t_0} - 1)) \text{ при } t \geq t_0; \quad (3)$$

здесь  $C_1^1$ ,  $C_1^2$ ,  $C_1^3$  – исходные содержания  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  в породе [ $L^{-3}$ ] (ат/ед. объема);  $\lambda_1^j$  – константы распада [ $T^{-1}$ ];  $t_0$  – время движения фронта от входной (питающей) границы пласта, где происходит поступление в него атмосферных вод, до расчетной точки [ $T$ ]. В одномерном варианте  $t_0 = xn/v$ , где  $x$  – линейная пространственная координата [ $L$ ],  $v$  – скорость фильтрации [ $LT^{-1}$ ],  $n$  – пористость [ $L^3 L^{-3}$ ]).

Метод уран-гелиевого датирования используется для изучения водообмена в глубоких водоносных системах, продолжительность существования которых измеряется геологическими отрезками времени, в течение которых влияние питающих границ проявляется в полной мере, то есть предпосылка  $t \geq t_0$  практически всегда выполняется. Время  $t_0$  в этом случае ассоциируется с “возрастом подземной воды” – периодом времени, отделяющим время от-

**Таблица 3.** Содержание природных радионуклидов в водовмещающих породах

| Горизонты | $^{238}\text{U}$ $C_1^{1, W} 10^6$ , г/т | $^{232}\text{Th}$ $C_1^{3, W} 10^6$ , г/т |
|-----------|--|---|
| IV и V    | 2.27                                     | 7.42                                      |
| II и III  | 1.26                                     | 5.34                                      |
| Среднее   | 1.77                                     | 6.38                                      |

бора пробы в точке  $x$  от момента поступления атмосферных вод в подземный горизонт в точке  $x = 0$  (одномерная постановка задачи). В общем случае оно может быть найдено из уравнения (3).

Если положить при  $\lambda_1^j t_0 \ll 1$  значение  $e^{\lambda_1^j t} \approx 1 + \lambda_1^j t_0$ , то выражения в скобках в решении (3) становятся линейными функциями  $t_0$  и формулу (3) можно преобразовать к виду

$$C_2 = \left( \frac{k_1 \lambda_1^1}{n} C_1^1 + \frac{k_2 \lambda_1^2}{n} C_1^2 + \frac{k_3 \lambda_1^3}{n} C_1^3 \right) t_0, \quad (4)$$

откуда

$$t_0 = \frac{C_2}{P'}, \quad (5)$$

где

$$P' = \frac{k_1 \lambda_1^1}{n} C_1^1 + \frac{k_2 \lambda_1^2}{n} C_1^2 + \frac{k_3 \lambda_1^3}{n} C_1^3 \quad (6)$$

– скорость накопления радиогенного гелия ат/л год, т.е. при малых значениях безразмерных комплексов  $\lambda_1^j t_0$ , соответствующих промежуткам времени в первые десятки миллионов лет, накопление  $^4\text{He}$  происходит примерно с постоянной скоростью.

#### *Многопластовая система в условиях регионального потока глубинного гелия*

Многочисленные исследования свидетельствуют о том, что расчеты, основанные на применении рассмотренной выше модели, приводят к существенно-му завышению возраста подземных вод [3, 7, 9]. Это объясняется притоком глубинного  $^4\text{He}$ , обуславливающим повышенные концентрации данного изотопа по сравнению со значениями, которые можно ожидать исходя из гипотезы о его продуцировании исключительно за счет активности  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  только в исследуемом водоносном горизонте. Интенсивность потока глубинного гелия ( $J_0$ ), связанного с распадом радиоактивных элементов земной коры, может достигать значений, находящихся в диапазоне от  $10^{-7}$  до  $10^{-6}$  нсм $^3$   $^4\text{He}/(\text{см}^2 \text{год})$  [2, 7, 9]. Эта величина, согласуется с [4], где поток  $^4\text{He}$  в ат-

мосферу из Земли в целом оценивается на уровне от десятых долей до первых единиц  $10^{-6}$  ат/см<sup>2</sup> с.

Стационарное (при  $t > t_0$ ) распределение  $^4\text{He}$  в многопластовой системе описывается системой дифференциальных уравнений

$$\begin{aligned} v_1 \frac{\partial C_1}{\partial x} - n_1 P'_1 - J_0/m_1 + \alpha_1(C_1 - C_2) &= 0, \\ v_2 \frac{\partial C_1}{\partial x} - n_2 P'_2 - \alpha_1(C_1 - C_2) + \alpha_2(C_2 - C_3) &= 0, \\ v_i \frac{\partial C_1}{\partial x} - n_i P'_i - \alpha_{i-1}(C_{i-1} - C_i) + \alpha_i(C_i - C_{i+1}) &= 0, \end{aligned} \quad (7)$$

где

$$\alpha_i = \frac{D_m}{m_{0i} m_i} \quad (8)$$

— коэффициент межслоевого обмена; здесь  $J_i$  — интенсивность межслоевых перетоков,  $v_i$  — горизонтальная скорость фильтрации,  $D_m$  — коэффициент молекулярной диффузии  $^4\text{He}$ ,  $m_i$  и  $m_{0i}$  — мощности хорошо- и слабопроницаемых слоев соответственно. Система уравнений (7) может быть решена численно.

В представленных выше зависимостях в качестве единиц измерения для базовых функций концентраций  $C_1 (C_1^j)$  и  $C_2$  использовались количества атомов в единице объема раствора или породы. При уран-гелиевом методе датирования в пробах подземных вод измеряется объемное содержание растворенного гелия-4 [ $C_2^V$ ], л/л<sub>H<sub>2</sub>O</sub> или нсм<sup>3</sup>/см<sub>H<sub>2</sub>O</sub> (санитметры кубические при нормальных условиях), и весовое содержание родительских изотопов  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  и  $^{232}\text{Th}$ , [ $C_2^{j, w}$ ], г/(г скелета породы). Для перевода единиц измерения необходимо воспользоваться соотношениями, связывающими между собой количество вещества, молекулярную массу и объемы (Приложение 2).

### ОЦЕНКА ИНТЕНСИВНОСТИ РЕГИОНАЛЬНОГО ВОДООБМЕНА В РАЙОНЕ ПОЛИГОНА ЗАХОРОНЕНИЯ РАО

Применительно к участку, на котором расположен полигон захоронения РАО СХК, стандартный уран-гелиевый метод, предполагающий накопление  $^4\text{He}$  исключительно за счет распада природных радионуклидов в горизонтах I–V без его миграции вверх по разрезу, дает явно завышенный возраст подземных вод. Так, для нижних горизонтов расчетный возраст составляет от многих сотен тысяч до первых миллионов лет, а для верхних горизонтов десятки и сотни тысяч лет. Такая оценка входит в резкое противоречие с гидродинамической обста-

новкой района и гидрохимическим обликом подземных вод, а также выполненной нами палеореконструкцией [6].

Логично предположить, что погрешности обусловлены наличием дополнительного источника радиогенного  $^4\text{He}$  в подземных водах. Очевидно, этот источник расположен в глубоких зонах земной коры — в фундаменте. Благодаря этому формируется субвертикальный диффузионный поток  $^4\text{He}$ , охватывающий (учитывая геологические масштабы времени) вышерасположенные водоносные породы осадочного чехла. Таким образом, более полной является модель, учитывающая не только продуцирование этого газа природными радионуклидами вмещающих пород, но и приток в слоистую толщу глубинного  $^4\text{He}$  и его диффузионное перераспределение между отдельными горизонтами. Источниками  $^4\text{He}$  в каждом из горизонтов является радиоактивный распад элементов уран-ториевых рядов, а также региональный поток этого газа из фундамента. Система является открытой по отношению к атмосфере, что предполагает в самом верхнем (VI) горизонте содержание радиогенного  $^4\text{He}$ , равное нулю.

Анализ гидрогеологической ситуации и данных опробования позволяет рассматривать региональный разрез территории в качестве четырехслойного (табл. 4), выделяя следующие базовые/модельные слои (снизу вверх): первый, объединяющий горизонты I и II; второй — горизонт III; третий — горизонт IV и четвертый — горизонт V. Объединение горизонтов I и II в один модельный слой обусловлено близостью полученных значений концентраций  $^4\text{He}$  и сопоставимой интенсивностью водообмена в связи с относительно малой мощностью разделяющего их водоупора. При интерпретации изотопных данных необходимо учитывать, что наличие разделяющих прослоев  $B$  и  $E$  в пределах базовых слоев 1 и 3 (табл. 4) должно занижать расчетные значения горизонтальных скоростей фильтрации, поскольку задаваемые (эффективные) мощности  $m_1$  и  $m_3$  этих слоев меньше суммарной мощности фильтрующих зон  $m_{v_1}$  и  $m_{v_3}$ .

В соответствии с данной моделью процесс переноса описывается системой дифференциальных уравнений (7) для  $i = 1, 2, 3, 4$ , а контролирующими параметрами являются (табл. 4) мощности фильтрующих и слабопроницаемых/разделяющих горизонтов  $m_i$  и  $m_{0i}$ , пористость  $n_i$ , скорости фильтрации  $v_i$ , интенсивность продуцирования  $^4\text{He}$  за счет распада природных радионуклидов  $P_i$ , коэффициенты межслоевого обмена  $\alpha_i$ , величина потока глубинного гелия  $J_0$ .

В качестве фиксированных величин приняты следующие параметры:

мощности слоев, для которых средние в региональном плане значения отличаются от значений в пределах полигона захоронения (табл. 4);

**Таблица 4.** Исходные данные к расчету и результаты подбора средних значений  $J_0$  и  $v_i$ 

| Индексы  |                               | Исходные характеристики и параметры |          |   |                      |                      |   | Модельные оценки                        |          |   |
|----------|-------------------------------|-------------------------------------|----------|---|----------------------|----------------------|---|---|----------|---|
| <i>i</i> | Горизонты и разделяющие слои* | $m_i$ , $m_{0i}^{**}$               | $m_{vi}$ | $[^4\text{He}]_i^{***}$                                     | $n$                  | $\alpha_i$           | $P$   | $J_0$                                   | $v_i$    | $[^4\text{He}]_i$   |
|          |                               | м                                   |          | нсм <sup>3</sup> /см <sup>3</sup> <sub>H<sub>2</sub>O</sub> | Доли единицы         | 1/год                | нсм <sup>3</sup> /(см <sup>3</sup> <sub>H<sub>2</sub>O</sub> год) | нсм <sup>3</sup> /(см <sup>2</sup> год) | м/год    | нсм <sup>3</sup> /см <sup>3</sup> <sub>H<sub>2</sub>O</sub> |
| 4        | VI                            | 20                                  |          | 0   | 0.25                 | —                    | $3.7 \times 10^{-12}$   | $1 \times 10^{-8}$                      | $\infty$ | 0   |
|          | G                             | 15                                  |          |   |                      | $1.9 \times 10^{-5}$ |   |   |          |   |
|          | V                             | 55                                  | 55       | $6.8 \times 10^{-8}$  |                      | $4.2 \times 10^{-5}$ |   |   | 5.0      | $2.2 \times 10^{-8}$  |
|          | F                             | 10                                  |          |   |                      |                      |   |   | 2.0      | $3.1 \times 10^{-7}$  |
| 3        | IVa                           | 75 (85)                             | 65       | $3.9 \times 10^{-7}$  |                      |                      |   |   |          |   |
|          | E                             |                                     |          |   |                      |                      |   |   |          |   |
|          | IV                            |                                     |          |   |                      |                      |   |   |          |   |
| 2        | D                             | 40 (60)                             |          |   | 2.0 $\times 10^{-5}$ |                      | $2.3 \times 10^{-12}$   |   | 0.5      | $2.9 \times 10^{-6}$  |
|          | III                           | 40 (60)                             |          | $3.3 \times 10^{-6}$  |                      |                      |   |   |          |   |
|          | C                             | 15 (20)                             |          |   |                      | $3.8 \times 10^{-5}$ |   |   |          |   |
| 1        | II                            | 55 (90)                             | 40       | $5.3 \times 10^{-6}$  |                      |                      |   |   | 0.6      | $5.5 \times 10^{-6}$  |
|          | B                             |                                     |          |   |                      |                      |   |   |          |   |
|          | I                             |                                     |          | $4.8 \times 10^{-6}$  |                      |                      |   |   |          |   |

\* – римские цифры – номера водоносных горизонтов, латинские буквы – индексы водоупорных слоев [6];

\*\* – средние мощности слоев в модели, в скобках приведены значения, отвечающие мощности слоев вблизи участка закачки РАО [5, 13];

\*\*\* – средние значения (табл. 2).

пористость, для которой использовано среднее для всех горизонтов значение  $n \equiv n_i = 0.25$ . По данным лабораторного анализа кернового материала среднее значение общей пористости  $n_0 = 0.36$ . Однако, доля проточных пор составляет 40–50% от этой величины [5]; учитывая длительный характер процесса региональной миграции, что предполагает значительную степень насыщения порового пространства растворенными компонентами, принимается среднее значение между общей и проточной пористостями;

интенсивность продуцирования гелия  $P_1 = P_2$ ,  $P_3 = P_4$ , причем при использовании объемных единиц измерения для концентраций  ${}^4\text{He}$  в системе уравнении (7) можно положить  $P_i \equiv P_i$

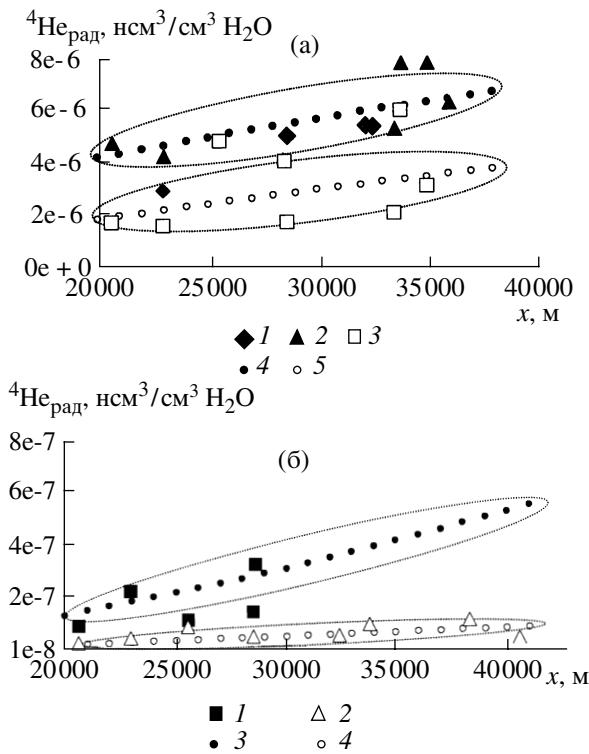
коэффициенты межслоевого диффузационного обмена  $\alpha_i$ , которые рассчитывались по формуле (8), а коэффициент молекулярной диффузии гелия  $D_m$  был определен из соотношения  $D_m/n = 3.46 \times 10^{-4} \text{ м}^2/\text{сут} = 4.0 \times 10^{-9} \text{ м}^2/\text{с}$  по данным работы [9], так что при  $n = 0.25$   $D_m = 0.0315 \text{ м}^2/\text{год}$ . Достаточно высокое значение  $D_m$  обусловлено большой подвижностью гелия в подземной гидросфере, пре-восходящей соответствующие показатели для таких компонентов как  $\text{Cl}^-$  и  ${}^3\text{H}$  (в составе воды).

Подбираемыми параметрами являлись скорости фильтрации  $v_i$  и региональный вертикальный поток гелия  $J_0$ . Последняя величина подбиралась в со-

ответствии с первым законом Фика, исходя из предположения об установившемся режиме диффузационного движения гелия и об отсутствии вертикальных фильтрационных перетоков, на базе наблюдаемого градиента концентраций гелия между водами в породах фундамента и в I горизонте. В качестве целевой функции использовались концентрационные распределения  ${}^4\text{He}$ ,  $C_i = f(x)$  в различных *i*-х горизонтах (рис. 1). Концентрационные функции аналитических решений пересчитывались в соответствии с методикой, изложенной в Приложении 2.

Координата  $x$  отсчитывалась вдоль линий тока от водораздельной линии, проходящей между долинами рек Томи и Чулым. Именно в этой области, в соответствии с данными регионального моделирования [13], водоносные горизонты получают основное инфильтрационное питание. Такой способ определения пространственного положения точек опробования на линии тока в области транзита носит приближенный характер, так как сетка движения могла несколько меняться во времени. Однако, несмотря на это, полученные графики (рис. 1) иллюстрируют тенденцию накопления  ${}^4\text{He}$  по мере движения подземных вод от области питания к области разгрузки.

Подбор перечисленных выше параметров осуществлялся на основе многовариантных численных решений системы дифференциальных уравнений



**Рис. 1.** Распределения концентраций радиогенного  ${}^4\text{He}$  в подземных водах. (а) 1–3 – фактические в I–III горизонтах; 4, 5 – модельные в I + II, III горизонтах. (б) 1, 2 – фактические и 4, 5 – модельные в IV, V горизонтах.

(7). В результате было выбрано единственное решение, которое наилучшим образом описывает пространственное распределение  ${}^4\text{He}$  во всех водоносных горизонтах одновременно (рис. 1). Этому решению соответствуют значения скоростей фильтрации и массового потока гелия, приведенные в

**Таблица 5.** Сопоставление результатов расчета средних скоростей фильтрации по данным о  ${}^4\text{He}$  с оценками других авторов, м/год

| Горизонты | $U/{}^4\text{He}$ метод* | [5]          | [13]** |
|-----------|--------------------------|--------------|--------|
| V         | 5.0                      | –            | 7.3    |
| IV        | 2.0 (2.6)                | –            | 2.6    |
| III       | 0.5                      | 0.75–1.25*** | 0.26   |
| I + II    | 0.6 (0.83)               |              |        |

\* – в скобках – значения скорости фильтрации, рассчитанные исходя из эффективной мощности потока  $m_v$  (табл. 4);

\*\* – результаты численного моделирования на региональной геофильтрационной модели;

\*\*\* – пересчитано из приведенных в данной работе значений действительной скорости фильтрации  $u = 3–5$  м/год по формуле  $v = up$  при  $n = 0.25$ .

табл. 4. О качестве подбора можно судить также из сопоставления фактических и модельных концентраций  ${}^4\text{He}$  (табл. 4).

Полученные значения  $v_i$  в целом согласуются с ранее выполненными гидродинамическими оценками (табл. 5). Наибольшие расхождения отмечаются с данными работы [13] для нижних (I–III) горизонтов: установленная в результате интерпретации результатов гелиевого опробования скорость фильтрации примерно в два раза превосходит значения, найденные при решении региональной геофильтрационной задачи. Заметим, однако, что подобранные значение  $J_0$  заметно уступает величинам, полученным для других регионов. Обнаруживаемое отличие, по-видимому, отражает существование в прошлом мерзлоты на данной территории, которое не было учтено при построении численной модели [13].

Наконец, основываясь на полученных значениях  $v_i$ , можно оценить возраст подземных вод во всех точках ( $x$ ) отбора проб по соотношению  $t_{0i} = xn/v_i$  (рис. 2).

## ВЫВОДЫ

В основу исследования положены аналитические модели, в которых учитывается подток в исследуемый пласт глубинного гелия, а также диффузионно-конвективный межслоевой обмен. Выполненное исследование позволило количественно интерпретировать данные уран-гелиевого датирования подземных вод на полигоне захоронения РАО СХК. Полученные значения скорости фильтрации в пластах-коллекторах и буферных горизонтах в целом согласуются с ранее выполненными гидродинамическими оценками.

Подобрано значение регионального потока глубинного гелия. На основе полученных значений скоростей горизонтального массопереноса была выполнена оценка возраста подземных вод во всех точках отбора проб: в нижних (I–III) горизонтах возраст воды варьирует от 7 до 14 тыс. (среднее значение ~ 9 тыс.), в горизонте IV – от 2 до 4 тыс., в горизонте V – от 1 до 2 тыс. лет.

Полученные значения возраста подземных вод характеризуют интенсивность миграции инертных (несорбируемых породой) в химическом отношении частиц. Движение радионуклидов существенно замедляется благодаря процессам адсорбции на минеральном скелете и соосаждения с минеральными солями, выпадающими в осадок на подвижных геохимических барьерах при взаимодействии жидких радиоактивных растворов с пластовыми водами и вмещающими породами (12). По лабораторным экспериментам фактор сорбционной задержки оценивается десятками (для продуктов распада, таких как  ${}^{90}\text{Sr}$ ,  ${}^{137}\text{Cs}$ ) и сотнями (для актинидов, таких как  ${}^{239}\text{Pu}$  и  ${}^{241}\text{Am}$  и др.) относительных единиц (12). Это



**Рис. 2.** Возраст воды в различных горизонтах для точек, разноудаленных от области питания, по данным уран-гелиевого метода. 1 – I + II; 2 – III; 3 – IV; 4 – V горизонты.

значит, что время нахождения радионуклидов в пластах-коллекторах должно измеряться, по крайней мере, сотнями тысяч лет – период, вполне достаточный для самоочищения радиоактивных отходов за счет радиоактивного распада. Полученный вывод является подтверждением безопасности выбранной на данном предприятии схемы изоляции жидких РАО посредством их закачки в глубокие водоносные горизонты.

#### ПРИЛОЖЕНИЕ 1. АНАЛИТИЧЕСКИЕ РЕШЕНИЯ ДЛЯ РАСПАДА ДВУХ РАДИОНУКЛИДОВ В СОСТАВЕ ВОДОВМЕЩАЮЩИХ ПОРОД

##### Основные аналитические решения

**Случай распада одного элемента в составе породы.** Предположим, что источником радиоактивности подземных вод является пористая матрица породы (рис. 3). Исходная ( $t = 0$ ) концентрация радионуклида в ней –  $C_{10}$ . На входной границе пласта ( $x = 0$ ) задается постоянный расход фильтрационного потока  $q_0$ . С этим потоком в пласт привносится только “чистая” вода, свободная от родительского  $A_1$  и дочернего  $A_2$  изотопов  $C_1 = C_2 = 0$  при  $x = 0$ . Кроме того, в расчетной схеме допускается перетекание глубинных вод с удельной интенсивностью  $\varepsilon_u$ . Эти воды несут компонент  $A_2$  в концентрации  $C_{20}$ , так что его массовый поток  $J_0 = \varepsilon_u C_{20}$ . С оценкой величины регионального потока  $J_0$  часто связаны основные трудности корректной интерпретации данных изотопного датирования, так как занижение потока ведет к фиктивному уменьшению темпов водообмена и наоборот.

Система уравнений изотопного баланса имеет вид

$$\frac{\partial C_1}{\partial t} + \lambda_1 C_1 = 0, \quad (1)$$

$$n \frac{\partial C_2}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x} (v_x C_2) + \lambda_2 n C_2 - \lambda_1 k_1 C_1 - \frac{\varepsilon_u}{m} C_{20} = 0,$$

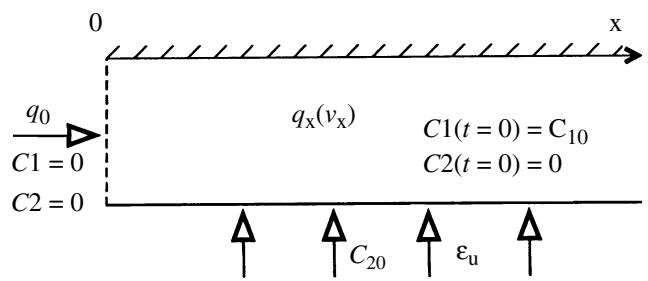
где  $C_1$  – число атомов, способных к распаду, в единице объема породы;  $C_2$  – число атомов, способных к распаду, в единице объема порового раствора (подземной воды);  $k_1$  – количество дочерних атомов, образующихся при распаде одного атома родительского элемента;  $n$  – пористость в долях единицы; скорость потока подземных вод определяется из соотношения  $v_x = \frac{\varepsilon_u x}{m} + \frac{q_0}{m}$ , где  $m$  – мощность пласта.

С учетом последнего соотношения система уравнений (1) преобразуется к виду

$$\begin{aligned} \frac{\partial C_1}{\partial t} + \lambda_1 C_1 &= 0, \\ \frac{\partial C_2}{\partial t} + \frac{\partial C_2}{\partial x} + (\varepsilon^* + \lambda_2) C_2 - \lambda_1 \frac{k_1}{n} C_1 &= \varepsilon^* C_{20}, \end{aligned} \quad (2)$$

где  $\varepsilon^* = \varepsilon_u/mn$ .

В уравнениях (1) и (2) может быть учтена неполнота выделения дочернего продукта распада из породы. Для этого достаточно помножить константу  $k_1$  в уравнениях (1) и (2) на коэффициент потерь  $K_{\text{отд}}$ .



**Рис. 3.** Схема построения расчетных зависимостей для изотопного датирования подземных вод.

Используя преобразование Лапласа с учетом начального условия  $\tilde{C}_1(t=0) = C_{10}$  получаем аналог системы (2) в изображениях

$$(p + \lambda_1)\tilde{C}_1 = C_{10}, \\ \frac{\partial \tilde{C}_2}{\partial t_0} + (p + \varepsilon^* + \lambda_2)\tilde{C}_2 = \frac{k_1 \lambda_1 C_{10}}{n(p + \lambda_1)} + \frac{\varepsilon^* C_{20}}{p}. \quad (3)$$

Первое уравнение относится к классу алгебраических и имеет тривиальное решение. Второе уравнение системы (3) является дифференциальным уравнением первого порядка. Его решение может быть найдено с помощью подстановки  $\tilde{C}_2 = uv$ . В результате получаем

$$\tilde{C}_1 = \frac{C_{10}}{p + \lambda_1}, \quad (4)$$

$$\tilde{C}_2 = \frac{k_1}{n} \frac{\lambda_1 C_{10}}{(p + \lambda_1)(p + \varepsilon^* + \lambda_2)} + \frac{\varepsilon^* C_{20}}{p(p + \varepsilon^* + \lambda_2)} + \\ + \left( \frac{k_1}{n} \frac{\lambda_1 C_{10}}{(p + \lambda_1)(p + \varepsilon^* + \lambda_2)} + \right. \\ \left. + \frac{\varepsilon^* C_{20}}{p(p + \varepsilon^* + \lambda_2)} \right) e^{-(p + \varepsilon^* + \lambda_2)t_0}. \quad (5)$$

Обращение функций  $\tilde{C}_1$  и  $\tilde{C}_2$  дает оригиналы

$$C_1 = C_{10} e^{\lambda_1 t}, \quad (6)$$

$$C_2 = \frac{k_1}{n} \frac{\lambda_1 C_{10}}{(\lambda_1 - \lambda_2 - \varepsilon^*)} (e^{-(\lambda_2 + \varepsilon^*)t} - e^{-\lambda_1 t}) + \\ + \frac{\varepsilon^* C_{20}}{\varepsilon^* + \lambda_2} (1 - e^{-(\lambda_2 + \varepsilon^*)t}) \quad \text{при } t < t_0, \quad (7)$$

$$C_2 = \frac{k_1}{n} \frac{\lambda_1 C_{10}}{(\lambda_1 - \lambda_2 - \varepsilon^*)} (e^{-(\lambda_2 + \varepsilon^*)t_0} e^{-\lambda_1(t-t_0)} - e^{-\lambda_1 t}) + \\ + \frac{\varepsilon^* C_{20}}{\varepsilon^* + \lambda_2} (1 - e^{-(\lambda_2 + \varepsilon^*)t_0}) \quad \text{при } t \geq t_0. \quad (8)$$

Если распадом дочернего продукта можно пренебречь ( $\lambda_2 = 0$ ), то уравнения (6)–(7) упрощаются и могут быть представлены в следующей форме:

$$C_1 = C_{10} e^{-i}, \quad (9)$$

$$C_2 = \frac{k_1}{n} \frac{C_{10} e^{-i}}{(1 - \bar{\varepsilon}_\lambda)} (e^{(1 - \bar{\varepsilon}_\lambda)i} - 1) + C_{20} (1 - e^{-(1 - \bar{\varepsilon}_\lambda)i}) \quad (10)$$

при  $t < t_0$ ,

$$C_2 = \frac{k_1}{n} \frac{C_{10} e^{-i}}{(1 - \bar{\varepsilon}_\lambda)} (e^{(1 - \bar{\varepsilon}_\lambda)i_0} - 1) + C_{20} (1 - e^{-\bar{\varepsilon}_\lambda i_0}) \quad (11)$$

при  $t \geq t_0$ ,

здесь  $\bar{\varepsilon}_\lambda = \frac{\varepsilon^*}{\lambda_1}$ ,  $i = \lambda_1 t$ ,  $i_0 = \lambda_1 t_0$ .

Если положить  $\varepsilon_u = 0$ , т.е. пренебречь региональным (“фоновым”) потоком природных изотопов дочернего продукта распада через подошву пласта, то уравнения (10) и (24) можно представить в безразмерной форме

$$\bar{C}_2^{nk} = \frac{n}{k_1} \frac{C_2}{C_{10}} = (1 - e^{-\lambda_1 t}) \quad \text{при } t < t_0, \quad (12)$$

$$\bar{C}_2^{nk} = \frac{n}{k_1} \frac{C_2}{C_{10}} = (e^{-\lambda_1(t-t_0)} - e^{-\lambda_1 t}) \quad \text{при } t \geq t_0. \quad (13)$$

Подстановка  $C_{10}$  из формулы (9) в (10) и (11) дает

$$\bar{C}_{21}^{nk} = \frac{n}{k_1} \frac{C_2}{C_1} = (e^{\lambda_1 t} - 1) \quad \text{при } t < t_0, \quad (14)$$

$$\bar{C}_{21}^{nk} = \frac{n}{k_1} \frac{C_2}{C_1} = (e^{\lambda_1 t_0} - 1) \quad \text{при } t \geq t_0. \quad (15)$$

Так как  $\varepsilon_u = 0$ , то  $t_0 = xnm/q_0 = xn/v_0$ . Графики решений (9) и (14) даны на рис. 4.

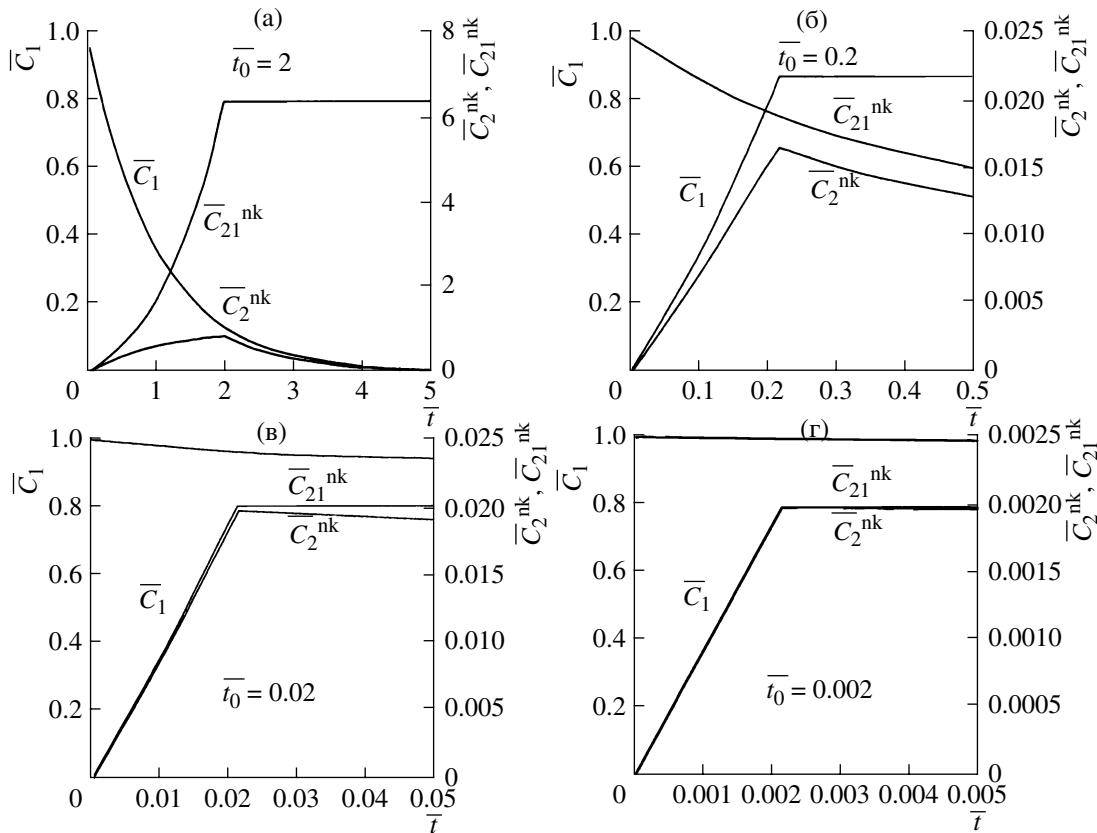
**Случай распада нескольких элементов в составе породы.** Предположим теперь, что радиоактивность пористой матрицы обусловлена присутствием нескольких ( $j = 1, 2, \dots, J$ ) элементов, подверженных распаду, причем распад каждого из атомов  $j$ -го изотопа приводит к образованию  $k_j$  дочерних атомов. Исходные атомарные концентрации каждого из элементов –  $C_{10}^j$ . В этом случае система уравнений изотопного баланса имеет вид

$$\begin{aligned} \frac{\partial C_1^1}{\partial t} + \lambda_1^1 C_1^1 &= 0, \\ \frac{\partial C_1^2}{\partial t} + \lambda_1^2 C_1^2 &= 0, \\ \frac{\partial C_1^j}{\partial t} + \lambda_1^j C_1^j &= 0, \\ n \frac{\partial C_2}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x} (V_x C_2) + \lambda_2 n C_2 - \sum_{j=1}^{j=J} \lambda_1^j k_j C_1^j - \frac{\varepsilon_u}{m} C_{20} &= 0, \end{aligned} \quad (16)$$

где  $j$  – условный порядковый номер радиоактивного элемента,  $\lambda_1^j$  – константа его распада.

Так как система является линейной, ее решение не представляет существенных математических сложностей. В результате имеем

$$C_1^j = C_{10}^j e^{-\lambda_1^j t}, \quad (17)$$



**Рис. 4.** Графики функций  $\bar{C}_1 = C_1/C_{10}$ ,  $\bar{C}_2^{nk}$ ,  $\bar{C}_{21}^{nk}$  при  $\bar{t}_0 = 2$  (а),  $\bar{t}_0 = 0.2$  (б),  $\bar{t}_0 = 0.02$  (в) и  $\bar{t}_0 = 0.002$  (г);  $\bar{t} = \lambda_1 t$ ,  $\bar{t}_0 = \lambda_1 t_0$ .

$$C_2 = \frac{1}{n} \sum_{j=1}^J \frac{k_j \lambda_1^j C_{10}^j}{(\lambda_1^j - \lambda_2 - \varepsilon^*)} e^{-\lambda_1^j t} (e^{-(\varepsilon^* + \lambda_2 - \lambda_1^j)t} - 1) + \frac{\varepsilon^* C_{20}}{\varepsilon^* + \lambda_2} e^{-(\varepsilon^* + \lambda_2)t} \quad \text{при } t < t_0, \quad (18)$$

$$C_2 = \frac{1}{n} \sum_{j=1}^J \frac{k_j \lambda_1^j C_{10}^j}{(\lambda_1^j - \lambda_2 - \varepsilon^*)} e^{-\lambda_1^j t_0} (e^{-(\varepsilon^* + \lambda_2 - \lambda_1^j)t_0} - 1) + \frac{\varepsilon^* C_{20}}{\varepsilon^* + \lambda_2} e^{-(\varepsilon^* + \lambda_2)t_0} \quad \text{при } t \geq t_0. \quad (19)$$

Таким образом, некоторые гидродинамические характеристики водоносных систем могут быть определены посредством замеров соотношений текущих концентраций изотопов (родительских и дочерних) в подземной воде и породе. Покажем это на примере расчетной схемы, которая может использоваться при интерпретации данных, получаемых при изучении распределения изотопов уранового ряда.

#### Базовые соотношения для уран-гелиевого датирования

**Изолированный пласт.** Пусть родительскими являются радионуклиды изотопного ряда  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  [1], их  $\alpha$ -распад приводит к эмиссии  $k_1 = 8$ ,  $k_2 = 7$ ,  $k_3 = 6$  атомов стабильного ( $\lambda_2 = 0$ ) изотопа гелия  $^4\text{He}$  (табл. 6). Из формул (18) и (19) при подстановке в них исходных концентраций  $C_{10}^j$  из (17) ( $J = 3$ ) имеем (случай  $\varepsilon^* = 0$ )

$$C_2 = \frac{1}{n} (k_1 C_1^1 (e^{-\lambda_1^1 t} - 1) + k_2 C_1^2 (e^{-\lambda_1^2 t} - 1) + k_3 C_1^3 (e^{-\lambda_1^3 t} - 1)) \quad \text{при } t < t_0, \quad (20)$$

и

$$C_2 = \frac{1}{n} (k_1 C_1^1 (e^{-\lambda_1^1 t_0} - 1) + k_2 C_1^2 (e^{-\lambda_1^2 t_0} - 1) + k_3 C_1^3 (e^{-\lambda_1^3 t_0} - 1)) \quad \text{при } t \geq t_0. \quad (21)$$

Здесь  $C_1^1$ ,  $C_1^2$ ,  $C_1^3$  – исходные содержания  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  в породе.

В уравнениях (20) и (21) и во всех последующих зависимостях может быть учтена неполнота выделения гелия из породы в воду [1, 2]. Для этого достаточно помножить константы  $k_j$  в уравнениях (20) и (21) на коэффициент потерь гелия из породы в воду  $K_{\text{отд.}}$ .

Метод уран-гелиевого датирования используется для изучения водообмена в глубоких водоносных системах, продолжительность существования которых измеряется геологическими отрезками времени, в течение которых влияние питающих границ проявляется в полной мере, т.е. предпосылка  $t \geq t_0$  практически всегда выполняется. Время  $t_0$  в этом случае ассоциируется с “возрастом подземной воды”, т.е. временемым периодом, отделяющим время отбора пробы в точке  $x$  от момента внедрения атмосферных вод в подземный горизонт в точке  $x = 0$  (одномерная постановка задачи). В общем случае оно может быть найдено из уравнения (21).

Если положить при  $\lambda_1^j t_0 \ll 1$   $e^{\lambda_1 t} \approx 1 + \lambda_1^j t_0$ , то выражения в скобках в решении (21) становятся линейными функциями  $t_0$ , а формулу (21) можно преобразовать к виду

$$C_2 = \left( \frac{k_1 \lambda_1^1}{n} C_1^1 + \frac{k_2 \lambda_1^2}{n} C_1^2 + \frac{k_3 \lambda_1^3}{n} C_1^3 \right) t_0, \quad (22)$$

откуда

$$t_0 = \frac{C_2}{P'}, \quad (23)$$

где

$$P' = \frac{k_1 \lambda_1^1}{n} C_1^1 + \frac{k_2 \lambda_1^2}{n} C_1^2 + \frac{k_3 \lambda_1^3}{n} C_1^3 \quad (24)$$

— скорость накопления радиогенного гелия  $\text{at}/(\text{л}_{\text{H}_2\text{O}} \text{ год})$ , т.е. при малых значениях безразмерных комплексов  $\lambda_1^j t_0$  накопление  ${}^4\text{He}$  происходит примерно с постоянной скоростью.

Если последнее условие соблюдается, то стационарное (при  $t > t_0$ ) распределение  ${}^4\text{He}$  в однопластовой системе, когда  $v_x = v = \text{const}$ ,  $\varepsilon_u = 0$ ,  $\lambda_2 = 0$ ,  $C \equiv C_2$  (концентрация  ${}^4\text{He}$  в воде), описывается дифференциальным уравнением

$$vm \frac{\partial C}{\partial x} - mnP' = 0, \quad (25)$$

которое является своего рода обобщением системы уравнений (16); оно оказывается полезным при анализе накопления  ${}^4\text{He}$  в многопластовых системах (рис. 4).

При известных концентрациях в точках  $x_1$  и  $x_2$  ( $x_2 > x_1$ ), расположенных на одной линии тока, дей-

ствительная скорость массопереноса  $u = v_0/n$  может быть определена из выражения

$$u = \frac{x_2 - x_1}{\frac{C_2(x_2)}{P'(x_2)} - \frac{C_2(x_1)}{P'(x_1)}}, \quad (26)$$

вытекающего из (23).

**Многопластовая система в условиях регионального потока глубинного гелия.** Составим систему уравнений баланса изотопа  ${}^4\text{He}$  в многопластовой системе, имея в виду постоянство интенсивности генерации ( $P'_i$ ) данного изотопа за счет распада родительских продуктов (25) в каждом из  $i$ -х слоев, а также стационарный характер концентрационных распределений  $C_i$ , что справедливо при  $t > t_0$

$$\begin{aligned} v_1 m_1 \frac{\partial C_1}{\partial x} - m_1 n_1 P'_1 - J_0 + J_1 &= 0, \\ v_2 m_2 \frac{\partial C_2}{\partial x} - m_2 n_2 P'_2 - J_1 + J_2 &= 0, \\ v_i m_i \frac{\partial C_i}{\partial x} - m_i n_i P'_i - J_{i-1} + J_i &= 0, \end{aligned} \quad (27)$$

где интенсивность межслоевых перетоков  $J_i$  определяется концентрационными градиентами

$$\begin{aligned} J_1 &= \frac{D_m}{m_{01}} (C_1 - C_2), \quad J_2 = \frac{D_m}{m_{02}} (C_2 - C_3), \quad \dots, \\ J_i &= \frac{D_m}{m_{0i}} (C_i - C_{i+1}), \end{aligned} \quad (28)$$

здесь  $v_i$  — горизонтальная скорость фильтрации;  $D_m$  — коэффициент молекулярной диффузии  ${}^4\text{He}$ ;  $m_i$  и  $m_{0i}$  — мощности хорошо и слабо проницаемых слоев соответственно.

Подстановка выражений для массовых потоков из (28) в уравнения баланса (27) позволяет преобразовать последние к виду

$$\begin{aligned} v_1 \frac{\partial C_1}{\partial x} - n_1 P'_1 - J_0/m_1 + \alpha_1 (C_1 - C_2) &= 0, \\ v_2 \frac{\partial C_2}{\partial x} - n_2 P'_2 - \alpha_1 (C_1 - C_2) + \alpha_2 (C_2 - C_3) &= 0, \\ v_i \frac{\partial C_i}{\partial x} - n_i P'_i - \alpha_{i-1} (C_{i-1} - C_i) + \alpha_i (C_i - C_{i+1}) &= 0, \end{aligned} \quad (29)$$

где

$$\alpha_i = \frac{D_m}{m_{0i} m_i} \quad (30)$$

— коэффициент межслоевого обмена. Система уравнений решается численно при граничных условиях

$$C_i(x=0) = 0. \quad (31)$$

## ПРИЛОЖЕНИЕ 2. ПЕРЕСЧЕТ ФИЗИЧЕСКИХ ЕДИНИЦ ИЗМЕРЕНИЯ

В представленных выше зависимостях в качестве единиц измерения для базовых функций концентраций  $C_1(C_1^j)$  и  $C_2$  использовались количества атомов, подверженных распаду, в единице объема раствора или породы. При практическом анализе концентрационных распределений более привычным является использование других единиц измерения.

При уран-гелиевом методе датирования в пробах подземных вод измеряется объемное содержание растворенного гелия-4 [ $C_2^v$ ], л/л<sub>H<sub>2</sub>O</sub> или нсм<sup>3</sup>/см<sup>3</sup><sub>H<sub>2</sub>O</sub> (см<sup>3</sup> при нормальных условиях), и весовое содержание родительских изотопов <sup>238</sup>U, <sup>235</sup>U и <sup>232</sup>Th, [ $C_1^{j,w}$ ], г/(г скелета породы). Для перевода единиц измерения воспользуемся следующими соотношениями, связывающими между собой количество вещества, молекулярную массу и объемы.

Атомарная концентрация  $C_2$ , ат/л<sub>H<sub>2</sub>O</sub>, связана с мольной концентрацией  $C_2^m$  соотношением

$$C_2^m = \frac{C_2}{N_A}, \text{ моль/л}_{H_2O},$$

где  $N_A = 6.02205 \times 10^{23}$  атомов/моль – число Авогадро. Тогда физический объем растворенного <sup>4</sup>He ( $C_2^v$ ) будет

$$C_2^v = C_2^m V_m \text{ л/л}_{H_2O},$$

где  $V_m = 22.415$  л/моль – мольный объем. Тогда

$$C_2 = N_a \frac{C_2^v}{V_m} \text{ или } C_2^v = \frac{V_m}{N_a} C_2.$$

Пересчет объемной концентрации изотопа в породе [ $C_1^{j,v}$ ], г/л породы, в мольную [ $C_1^{j,m}$ ] осуществляется по формуле

$$C_1^{j,m} = \frac{C_1^{j,v}}{M_1^j}, \text{ моль/л породы},$$

где  $M_1^j$  – молекулярный вес  $j$ -го изотопа. Для связи  $C_1^{j,m}$  с атомарной концентрацией  $C_1^j$  имеем

$$C_1^j = C_1^{j,m} N_a, \text{ ат/л породы},$$

или

$$C_1 = \frac{C_1^{j,v}}{M_1^j} N_a \text{ ат/л породы.}$$

**Таблица 6.** Данные о родоначальниках природных радиоактивных рядов для расчета скорости накопления радиогенного гелия

| $j$ | Изотоп            | $k_j$ | $M_1^j$ , г/моль | $\lambda_1^j$ , год <sup>-1</sup> |
|-----|-------------------|-------|------------------|-----------------------------------|
| 1   | <sup>238</sup> U  | 8     | 238              | $1.5513 \times 10^{-10}$          |
| 2   | <sup>235</sup> U  | 7     | 235              | $9.8485 \times 10^{-10}$          |
| 3   | <sup>232</sup> Th | 6     | 232              | $4.9750 \times 10^{-11}$          |

В свою очередь, концентрация  $C_1^{j,v}$  связана с концентрацией радионуклида в весовых единицах на единицу веса скелета породы  $C_1^{j,w}$  соотношением

$$C_1^{j,w} = \frac{C_1^{j,v}}{\rho_b 10^3 (1-n)}, \text{ г/г},$$

где  $\rho_b$  – плотность породы, г/см<sup>3</sup>;  $n$  – пористость. Тогда

$$C_1 = \frac{N_a \rho_b 10^3 (1-n)}{M} C_1^{j,w}, \text{ ат/л породы.}$$

10<sup>3</sup> нсм<sup>3</sup>/л – множитель для пересчета плотности из г/см<sup>3</sup> в г/л.

Таким образом, формулу (23) для возраста подземных вод можно переписать следующим образом:

$$t_0 = \frac{C_2}{P}, \quad (32)$$

где

$$\begin{aligned} P = & \frac{k_1 \lambda_1^1 V_m \rho_b 10^3 (1-n)}{n M_1^1} C_1^{1,w} + \\ & + \frac{k_2 \lambda_1^2 V_m \rho_b 10^3 (1-n)}{n M_1^2} C_1^{2,w} + \\ & + \frac{k_3 \lambda_1^3 V_m \rho_b 10^3 (1-n)}{n M_1^3} C_1^{3,w}. \end{aligned} \quad (33)$$

Подставим в формулу (33) значения параметров из табл. 6. В результате имеем

$$\begin{aligned} P = & 0.1169 C_1^{1,w} \frac{\rho_b (1-n)}{n} 10^{-6} + \\ & + 0.659 C_1^{2,w} \frac{\rho_b (1-n)}{n} 10^{-6} + \\ & + 0.0288 C_1^{3,w} \frac{\rho_b (1-n)}{n} 10^{-6}, \text{ л/л}_{H_2O} \text{ год}^{-1}. \end{aligned} \quad (34)$$

Если  $C_2^v$  измеряется в нсм<sup>3</sup>/см<sup>3</sup><sub>H<sub>2</sub>O</sub>, то формула для скорости генерации  $P$  выглядит несколько иначе

$$\begin{aligned}
 P = & 0.1169 C_1^{1,w} \frac{\rho_b(1-n)}{n\rho_{H_2O}} 10^{-6} + \\
 & + 0.659 C_1^{2,w} \frac{\rho_b(1-n)}{n\rho_{H_2O}} 10^{-6} + \\
 & + 0.0288 C_1^{3,w} \frac{\rho_b(1-n)}{n\rho_{H_2O}} 10^{-6}, \text{ нсм}^3/\text{см}^3_{H_2O}
 \end{aligned} \quad (35)$$

где  $\rho_{H_2O}$  – плотность подземной воды, г/см<sup>3</sup>.

При кларковом содержании родительских изотопов  $[U] \sim (1-3) \times 10^{-6}$  г/г, отношении  $Th/U \sim 3-4$  и “средней” пористости пород скорость накопления гелия составляет  $P \sim 10^{-12} - 10^{-11}$  л/л<sub>H<sub>2</sub>O</sub> год<sup>-1</sup> [1, 2, 4, 7, 9].

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Горбушина Л.В., Тыминский В.Г. Радиоактивные и стабильные изотопы в геологии и гидрогеологии. М.: Атомиздат, 1974. 104 с.
2. Зверев В.Л., Токарев А.Н., Тыминский В.Г., Швец В.М. Радиоизотопная геохимия. М.: Недра, 1980. 201 с.
3. Коротков А.И., Павлов А.Н. Гидрохимический метод в геологии и гидрогеологии. Л.: Недра, 1972. 184 с.
4. Мамырин Б.А., Толстых И.Н. Изотопы гелия в природе. М.: Энергоиздат, 1981. 224 с.
5. Рыбальченко А.И., Пименов М.К., Костин П.П. и др. Глубинное захоронение жидких радиоактивных отходов. М.: АТ, 1994. 256 с.
6. Токарев И.В., Зубков А.А., Румынин В.Г. и др. Оценка долгосрочной безопасности захоронения радиоактивных отходов. 1. Палеореконструкция условий формирования подземных вод // Вод. ресурсы. 2009. Т. 36. № 2.
7. Aggarwal P.K., Froehlich K., Kulkarni K.M., Garsia-Agudo E. Nuclear techniques in groundwater investigations. Groundwater Studies // An International Guide for Hydrogeological Investigations / Eds. Kovalevsky V.S., Kruserman G.P., Rushton K.R. Vienna: UNESCO, 2004. № 3. 430 p.
8. Alexandrova L.N., Glinsky M.L., Danilov V.V. et al. Prediction of radioactive liquid waste migration at the Siberian Chemical Combine underground injection site based on mathematical modeling // Underground Injection Science and Technology. Berkeley, 2003. P. 46–53.
9. Castro M.C., Stute M., Schlosser P. Comparison of <sup>4</sup>He ages and <sup>14</sup>C ages in simple aquifer systems: implications for groundwater flow and chronologies // Appl. Geochim. 2000. V. 15. P. 1137–1167.
10. Kamensky I.L., Tokarev I.V., Tolstikhin I.N. <sup>3</sup>H-<sup>3</sup>He dating: a case for mixing of young and old groundwaters // Geochim. Cosmochim. Acta. 1991. V. 55. № 10. P. 2895–2900.
11. Mazor E. Paleotemperatures and other hydrological parameters deduced from noble gases dissolved in groundwaters; Jordan Rift Valley, Israel // Geochim. Cosmochim. Acta. 1972. V. 36. Issue 12. P. 1321–1336.
12. Rumynin V.G., Sindalovskiy L.N., Konosavsky P.K. et al. A review of the studies of radionuclide adsorption / desorption with application to radioactive waste disposal sites in the Russian Federation // Underground Injection Science and Technology. Amsterdam: Elsevier, 2005. P. 273–315.
13. Shestakov V.M., Kuvaev A.A., Lekhov A.V. et al. Flow and transport modeling of liquid radioactive waste injection using data from the Siberian Chemical Plant Injection Site // Environ. Geol. 2002. V. 42. № 2–3. P. 214–221.
14. Tokarev I.V., Kamensky I.L., Tolstikhin I.N. Tritium-helium-neon isotopical systematics of ground water: Application for hydrogeological and ecological problems // Proc. “Freiberg isotopen colloquium, 1996”. Freiberg: TU Bergakademie, 1996. P. 251–260.
15. Tokarev I.V., Zubkov A.A., Rumynin V.G. et al. Origin of high <sup>234</sup>U/<sup>238</sup>U ratio in post-permafrost aquifers // Uranium in the Environment (Mining Impact and Consequences) / Eds. Merkel B.J., Hasche-Berger A. Freiberg: Springer, 2005. P. 854–863.
16. Weiss R.F. The solubility of helium and neon argon in water and seawater // J. of Chem. Eng. Data. 1971. V. 16. P. 235–241.