

Jadwiga SZCZEPAŃSKA, Irena TWARDOWSKA

## Wpływ chlorków w odpadach skał karbońskich GZW na otaczające środowisko wodne

Odpady skał karbońskich deponowane na zwałowiskach zawierają znaczne ilości łatwo rozpuszczalnych soli chlorkowych. Badania wykazały, że zasolenie chlorkowe skał jest ściśle powiązane z koncentracją jonu  $\text{Cl}^-$  w nasycających je wodach podziemnych. Zależność ta umożliwia prognozowanie zasolenia odpadów górniczych. Sole chlorkowe zawarte w tych odpadach są ługowane przez wody opadowe i stanowią źródło skażeń wód powierzchniowych i podziemnych w rejonie zwałowisk. Badania modelowe wykazały, że dynamika ługowania chlorków zależy od stopnia zasolenia chlorkowego skały oraz intensywności przepływu wód ługujących.

### WSTĘP

Odpady skał karbońskich, powstające w trakcie eksploatacji węgla kamiennego, stanowią obecnie od 30 do ok. 50% globalnego urobku (I. Twardowska, 1981). Są one reprezentowane przez piaskowce, ilowce oraz podrzędnie łupki węglowe i węgle. W GZW ok. 80% tych odpadów jest składowana na zwałowiskach przykopalnianych, o powierzchni od kilku do kilkunastu hektarów, lub centralnych, o powierzchni kilkuset hektarów. Obecna tendencja budowy dużych zwałowisk centralnych, a także ich lokalizacja na obszarach o przepuszczalnym podłożu (z uwagi na brak terenów o nieprzepuszczalnym podłożu), powoduje wzrost zagrożenia środowiska wodnego przez składniki ługowane z odpadów powęglowych (H.G. Glover, 1978; J.P. Schubert, 1979).

Wśród składników ługowanych z odpadów skał karbońskich deponowanych na zwałowiskach istotną rolę odgrywają chlorki, z uwagi na ich wyjątkową podatność na ługowanie (Z. Strzyszczyński, 1978; I. Twardowska, 1981) oraz wysoką zdolność migracyjną (G.H. Brunette i in., 1971).

Należy zaznaczyć, iż mimo niewątpliwie ujemnego wpływu jonów chlorkowych na środowisko wodne w otoczeniu zwałowisk oraz silnych właściwości korozyjnych chlorków dynamika ich ługowania na zwałowiskach odpadów skał karbońskich jest słabo poznana. Zagadnienia dotyczące zasolenia chlorkowego skał karbońskich

GZW i jego zmienności oraz genezy nie są jeszcze w pełni wyjaśnione. Wstępne wyniki badań zmienności zasolenia chlorkowego wybranych pokładów węglowych GZW zamieszczono w pracy J. Herziga i in. (1984).

Celem przedstawionych badań jest ściśle powiązanie zasolenia chlorkowego skał karbońskich z zasoleniem wód podziemnych GZW, umożliwiające prognozowanie zasolenia chlorkowego skał na podstawie koncentracji jonu  $\text{Cl}^-$  w wodach podziemnych otoczenia, a ponadto prześledzenie dynamiki ługowania chlorków z odpadów skał karbońskich w warunkach modelowych (badania lizymetryczne) oraz *in situ* na wytypowanych zwałowiskach. Znajomość zasolenia chlorkowego odpadów skał karbońskich i jego zmian w czasie (dynamiki ługowania) pozwoli na dokonanie oceny stopnia zagrożenia, jakie mogą stwarzać zwałowiska tych odpadów dla wód powierzchniowych i podziemnych. Badania przeprowadzono w ramach problemu węzłowego 10.2. koordynowanego przez Instytut Podstaw Inżynierii Środowiska PAN w Zabrze.

### METODYKA BADAŃ

Do badań zmienności zasolenia chlorkowego skał karbońskich pobrano 120 próbek węgla i skał przywęglowych (piaskowce, iłowce) ze wszystkich serii litostratygraficznych karbonu górnego GZW oraz równoległe próbki wód podziemnych z naturalnych wycieków. Badania hydrogeochemiczne obejmowały oznaczenia zawartości jonu  $\text{Cl}^-$  w wyciągach wodnych, sporządzonych ze wszystkich pobranych próbek skalnych, oraz w wodach podziemnych. Wyniki te pozwoliły na dokonanie analizy porównawczej między zawartością chlorków w roztworach porowych skał karbońskich a koncentracją jonu  $\text{Cl}^-$  w wodach podziemnych otoczenia.

Badania dynamiki ługowania chlorków z odpadów skał karbońskich prowadzono w warunkach modelowych (badania lizymetryczne) oraz *in situ* na czterech wytypowanych zwałowiskach: Przezchlebie, Smolnica, Pochwacie i Makoszowy. Dla wyjaśnienia podstawowych czynników wpływających na dynamikę ługowania i transport chlorków w badaniach modelowych zastosowano następujące zmienne parametry:

1. Rodzaj odpadów skał karbońskich. Do badań użyto cztery typy świeżych odpadów (w stanie powietrzno-suchym), o różnym stopniu zasolenia chlorkowego od 0,003 do 0,085%  $\text{Cl}^-$  reprezentatywne dla GZW:

Typ I (próbka I) – odpady średniozwięzłe o znikomym zasoleniu chlorkowym charakterystyczne dla wschodniej części GZW.

Typ II (próbka II) – odpady zwięzłe o średnim zasoleniu chlorkowym charakterystyczne dla większości odpadów skał karbońskich GZW.

Typ III (próbka III) – odpady średniozwięzłe o podwyższonym zasoleniu chlorkowym charakterystyczne dla rejonów GZW o zwiększonej mineralizacji wód podziemnych.

Typ IV (próbka IV) – odpady zwięzłe o wysokim zasoleniu chlorkowym charakterystyczne dla południowo-zachodniej części GZW, gdzie występują wody podziemne o znacznym zasoleniu.

2. Miąższość warstwy odpadów skał karbońskich  $H = 1, 2, 3, 6$  i  $20$  m. Miąższości  $6$  i  $20$  m uzyskano przez szeregowe połączenie 2 lizymetrów o  $H = 3$  m i 10 lizymetrów o  $H = 2$  m.

3. Natężenie przepływu wód ługujących. Badania wykonano stosując dawkę jednostkową odpowiadającą średniodobowej sumie opadów z wielolecia dla dni z opadami –  $4,74$  mm/d, oraz  $1,0$ ;  $10,0$ ;  $20,0$  i  $65,75$  mm/d. Badania na zwało-

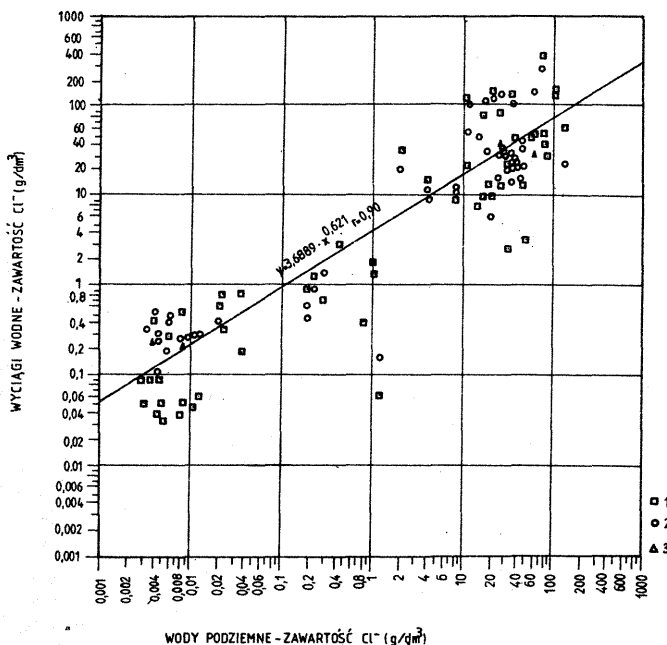


Fig. 1. Zależność między koncentracją jonu  $\text{Cl}^-$  w roztworze porowym skał karbońskich, obliczoną na podstawie wyciągu wodnego, a zawartością jonu  $\text{Cl}^-$  w wodzie podziemnej (według J. Herziga i in., 1984)

Relationship of concentrations of ion  $\text{Cl}^-$  in pore solutions of Carboniferous rocks (as determined by analysis of water extracts) and in underground waters (after J. Herzig et al., 1984)

1 – węgle; 2 – ilowce; 3 – piaskowce

1 – coals; 2 – claystones; 3 – sandstones

wiskach Przechlebie, Pochwacie, Makoszowy i Smolica obejmowały oznaczenia zawartości chlorków w warstwie przypowierzchniowej (0–100 cm) odpadów skał karbońskich o różnym wieku oraz w wyciekach pobranych w rowach opaskowych i wodach powierzchniowych w rejonie zwałowisk. W wodach podziemnych otoczenia zwałowiska Pochwacie oznaczono ponadto zawartości chlorków.

### PROGNOZOWANIE ZASOLENIA CHLORKOWEGO SKAŁ KARBOŃSKICH W OPARCIU O KONCENTRACJĘ JONÓW $\text{Cl}^-$ W WODACH PODZIEMNYCH

Zależność między koncentracją jonu  $\text{Cl}^-$  w roztworze porowym skał i wodach podziemnych (fig. 1) ma podstawowe znaczenie praktyczne dla oceny stopnia zagrożenia środowiska wodnego w rejonie deponowania odpadów kopalnianych, umożliwi bowiem prognozowanie zasolenia skał karbońskich na podstawie zawartości jonu  $\text{Cl}^-$  w wodach podziemnych. Stężenie jonu  $\text{Cl}^-$  w roztworze porowym skał karbońskich można wyliczyć na podstawie zawartości tego jonu w wodzie podziemnej, korzystając ze wzoru:

$$\text{Cl}^-_{\text{wyciągi wodne}} = 3,6889 \cdot \text{Cl}^-_{\text{wody podziemne}}^{0,621} \quad [1]$$

gdzie:  $\text{Cl}^-_{\text{wyciągi wodne}}$  – koncentracja jonu  $\text{Cl}^-$  ( $\text{g/dm}^3$ ) w roztworze porowym wy-

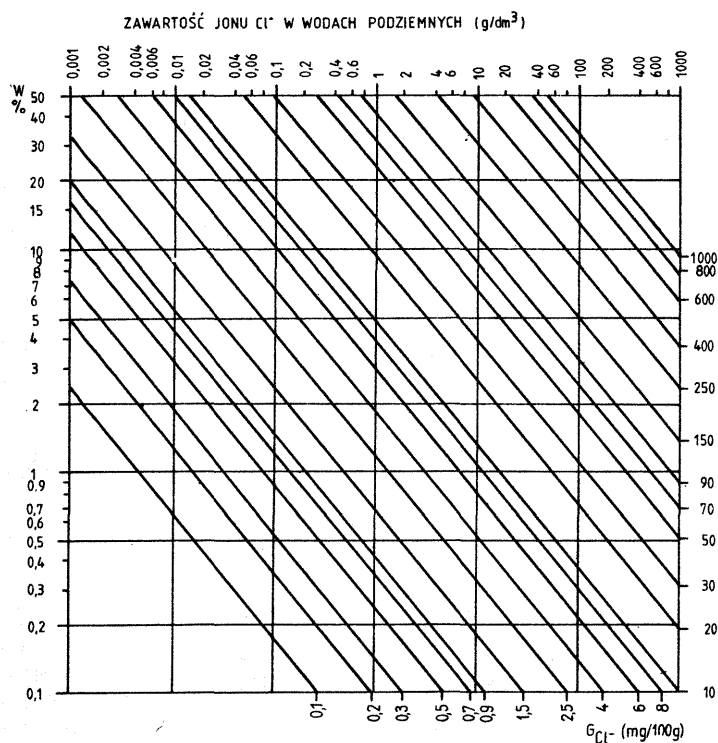


Fig. 2. Nomogram do określania zasolenia chlorkowego skał karbońskich ( $G_{\text{Cl}^-}$ ) na podstawie koncentracji jonu  $\text{Cl}^-$  w wodach podziemnych i wilgotności naturalnej skały ( $W$ )

Nomograph for determinations of chloride salinity of Carboniferous rocks ( $G_{\text{Cl}^-}$ ) on the basis of concentration of ion  $\text{Cl}^-$  in underground waters and natural moisture of rocks ( $W$ )

liczona ze wzoru [2] na podstawie wilgotności naturalnej skały;  $\text{Cl}^-$  wody podziemne – koncentracja jonu  $\text{Cl}^-$  ( $\text{g}/\text{dm}^3$ ) w wodzie podziemnej.

$$\text{Cl}^- = \frac{G_{\text{Cl}^-}}{W} \quad [2]$$

gdzie:  $\text{Cl}^-$  – stężenie jonu chlorkowego ( $\text{g}/\text{dm}^3$ ) w roztworze porowym;  $G_{\text{Cl}^-}$  – zawartość chlorków w skale ( $\text{mg}/100$  g skały) określona na podstawie wyciągu wodnego (1:5);  $W$  – wilgotność naturalna (% wag.).

Potencjalnym zagrożeniem środowiska wodnego w otoczeniu składowisk będą odpady skał karbońskich zawierające roztwory porowe o koncentracji  $\text{Cl}^-$  przekraczającej wartości dopuszczalne dla wód pitnych. Jako dopuszczalną górną ich granicę przyjmuje się w Polsce  $0,3 \text{ g}/\text{dm}^3$  zgodnie z rozporządzeniem Ministra Zdrowia i Opieki Społecznej z dnia 31.05.1977 r. w sprawie warunków, jakim powinna odpowiadać woda do picia i na potrzeby gospodarcze.

W węglach i skałach przywęglowych znajdujących się w otoczeniu wód słodkich ( $\text{Cl}^- \leq 0,3 \text{ g}/\text{dm}^3$ ) tło chlorkowe wód porowych jest wyższe od tła naturalnych wód podziemnych (fig. 1). Nie będzie to jednak zagrożeniem dla naturalnego środowiska wodnego ze względu na niską jego wartość wynoszącą ok.  $0,1 \text{ g}/\text{dm}^3$ .

W skałach karbońskich znajdujących się w otoczeniu wód o koncentracji  $\text{Cl}^- >$

Tabela 1

Zawartość jonu chlorkowego (% wag.) w odpadach skał karbońskich GZW  
(wartości średnie)

Kopalnia	Odpady zdeponowane na zwałowisku	Odpady górnicze	Odpady wytwarzane w procesie wzbogacania węgla		
			ze wzbogalnika zawiesinowego	z osadzarki	po flotacyjnie
Siersza	0,003	—	0,003	—	—
Anna	0,01	—	—	—	—
Szczygłowiec	0,03	—	0,03	0,03	—
Moszczenica	0,04	0,04	0,02	0,03	0,11
Jastrzębie	0,05	0,07	0,03	0,05	0,06
1-go Maja	0,06	0,07	0,03	0,03	0,10
Manifest Lipcowy	0,06	0,08	0,05	0,05	0,06
Borynia	0,065	—	—	—	0,09
XXX-lecia PRL	0,085	0,08	0,05	0,04	—
Makoszowy	0,11	—	0,11	0,11	—

0,3 g/dm<sup>3</sup> zawartość jonu Cl<sup>-</sup> w roztworze porowym jest proporcjonalna do koncentracji tego jonu w wodzie podziemnej. Odpady tych skał będą potencjalnym źródłem zanieczyszczenia wód podziemnych i powierzchniowych w rejonie ich składowania z uwagi na wysokie koncentracje jonu chlorkowego.

Oceny stopnia zagrożenia środowiska wodnego przez deponowane odpady skał karbońskich będzie można dokonać na podstawie zawartości w skale jonu Cl<sup>-</sup> wyliczonej z wzoru:

$$G_{Cl^-} = 3,6889 \cdot Cl^- 0,621 \cdot W \quad [3]$$

wyprowadzonego z zależności [1] i [2].

Zasolenie chlorkowe skały można wyznaczyć również z nomogramu (fig. 2) na podstawie koncentracji jonu Cl<sup>-</sup> w wodzie podziemnej i wilgotności – rzeczywiście stwierdzonej ilości wody w skale.

Zależność między zasoleniem chlorkowym skał karbońskich i wód podziemnych w ich otoczeniu (fig. 1) umożliwi prognozowanie zasolenia skał na podstawie znanych regionalnych prawidłowości rozmieszczenia słonych wód podziemnych w GZW (J. Pałys, 1971; A. Różkowski, 1978, 1984; A. Różkowski, Z. Wilk, 1982; A. Różkowski, T. Rudzińska-Zapaśnik, 1983). Z mineralizacji wód podziemnych, odczytanych z map regionalnych, można określić koncentrację jonu Cl<sup>-</sup> z wykresu zależności między koncentracją jonu Cl<sup>-</sup> w wodzie podziemnej a jej mineralizacją. Wyznaczona w ten sposób zawartość jonu Cl<sup>-</sup> pozwala na określenie zasolenia chlorkowego skał karbońskich metodą pośrednią ze wzoru [3] lub z nomogramu (fig. 2) z dokładnością wystarczającą dla praktyki.

Zasolenie chlorkowe badanych odpadów skał karbońskich (tab. 1) kształtuje się znacznie poniżej 1% i wykazuje ścisły związek z zasoleniem wód podziemnych w GZW. Największe zasolenie mają odpady z KWK XXX-lecia PRL i KWK Makoszowy (tab. 1), zlokalizowanych w południowo-zachodniej części GZW, najniższe zaś z KWK Siersza (tab. 1), usytuowanej w północno-wschodniej części

GZW, gdzie pokłady węgla występują w otoczeniu wód słodkich o bardzo niskiej koncentracji jonu chlorkowego ( $Cl^- \approx 0,003 \text{ g/dm}^3$ ). Dane z tab. 1 wskazują ponadto, że w procesie wzbogacenia następuje redukcja zawartości chlorków w gruboziarnistych odpadach popłuczkowych.

Nieco wyższe koncentracje chlorków stwierdzono dla węgla w Brytyjskim Zagłębiu Węglowym (E. Skipsey, 1974, 1975; S.A. Caswell i in., 1984a, b). Wykazują one ścisły związek z gatunkiem węgla (E. Skipsey, 1974). Węgla niskouwęglone ( $C \leq 86\%$ ) zawierają bowiem ok. 1% chlorków, podczas gdy wysokouwęglone ( $C > 86\%$ ) rzadko powyżej 0,2%. Z danych *National Coal Board* (1977) wynika, że zawartość chlorków w odpadach górnictwa węglowego jest niższa niż w pokładach węglowych. Ponadto koncentracja chlorków w przekroju pionowym zwałowiska jest zróżnicowana i zależy od wieku i stopnia zagęszczenia odpadów skalnych. W zagęszczonych odpadach, nawet po upływie kilku lat, istotna redukcja zawartości chlorków następuje tylko w warstwie górnej – przypowierzchniowej. Dane *NCB* (1977) wskazują ponadto na niezgodność zawartości chlorków w wyciekach wodnych ze zwałowiska ze stopniem ich redukcji w materiale zwałowiskowym. Zasolenie wycieków jest zawsze wyższe niż należałoby się tego spodziewać na podstawie stwierdzonej redukcji zawartości chlorków w odpadach zwałowiska.

Z. Strzyszc (1978) na podstawie badań lizymetrycznych stwierdził, że zasadnicza część chlorków w warstwie odpadów o grubości 1,6 m zostaje wylugowana w okresie rocznym, przy czym maksymalną intensywność ługowania zaobserwowano w pierwszym półroczu po rozpoczęciu eksperymentu.

#### DYNAMIKA ŁUGOWANIA CHLORKÓW Z ODPADÓW SKAŁ KARBONSKICH

Dla ustalenia stopnia zagrożenia środowiska wodnego przez chlorki zawarte w odpadach kopalnianych deponowanych na zwałowiskach niezbędna jest znajomość dynamiki ługowania tego jonu. Jak stwierdzono na podstawie przeprowadzonych badań cały ładunek chlorków w skale ( $G_{Cl^-}$ ) i zasocjowanego w nim sodu ( $G_{Na^+}$ ) jest zaadsorbowany powierzchniowo przez skałę jako woda porowa i występuje w postaci zdysocjowanych jonów. Stężenie tych jonów w warstwie przyściennej ziarna skalnego wynosi zatem:

$$g_{Cl^-}^x = \frac{g_{Na^+}^x}{SCR} = \frac{G_{Cl^-}}{V_{ads}} = \frac{G_{Na^+}}{SCR \cdot V_{ads}} \quad [4]$$

gdzie:  $SCR$  – stosunek  $r \frac{Na^+}{Cl^-}$  (G.N. Daybell, 1967);  $V_{ads}$  – objętość wody zretencjonowanej w odpadach.

Przebieg ługowania chlorków przez wodę przepływającą przez zwałowisko opisuje ogólnie znane równanie dyfuzji w środowisku izotropowym:

$$\frac{dg_{Cl^-}}{dt} = K_d(g_{Cl^-}^x - g_{Cl^-}) \quad [5]$$

gdzie:  $g_i^x$  – stężenie jonu  $Cl^-$  lub  $Na^+$  w warstwie przyściennej ziarna skalnego;  $K_d$  – współczynnik dyfuzji.

Kinetyka ługowania zależy od wielkości powierzchni czynnej warstwy przyściennej i ilości wody przepływającej w zwałowisku oraz od gradientu stężeń  $g_i^x - g_i$  stanowiącego siłę napędową procesu. Hiperboliczny przebieg ługowania chlorków (fig. 3) jest całkowicie zgodny z przedstawionym modelem.

Ługowanie związków rozpuszczalnych, w tym jonów chlorkowych i sodowych,

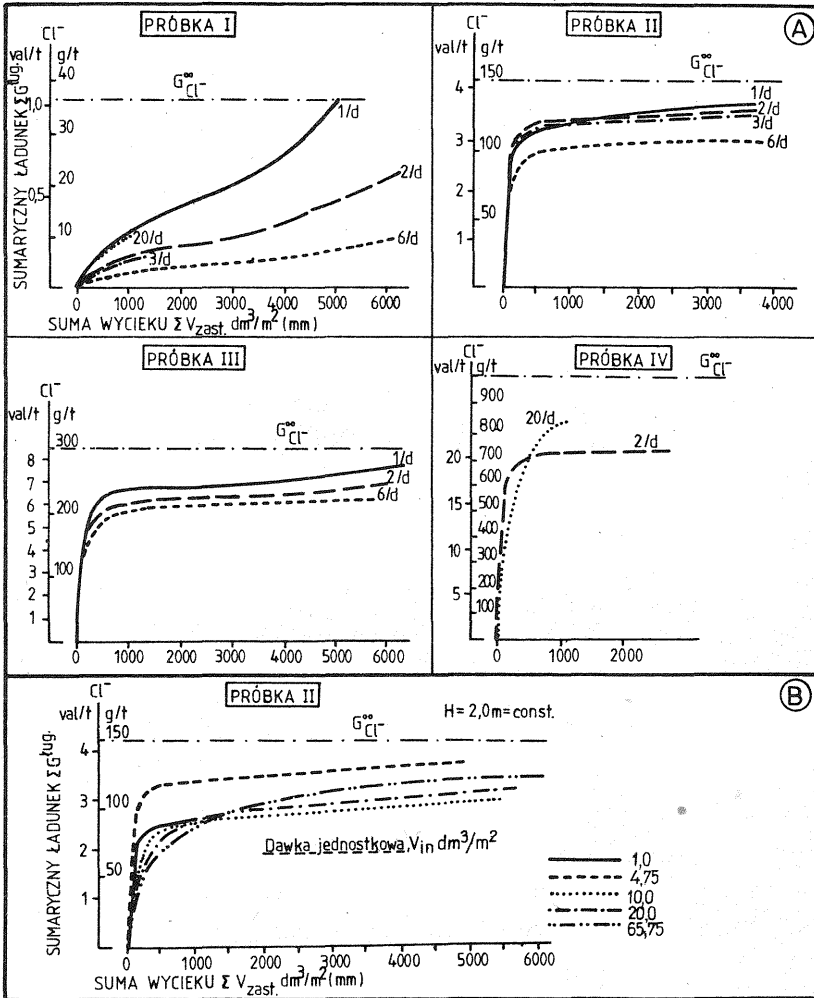


Fig. 3. Dynamika ługowania chlorków z odpadów skał karbońskich  
Dynamics of leaching of chlorides from Carboniferous coal mine spoils

A – wyniki badań dynamiki ługowania chlorków z odpadów skał karbońskich typu I, II, III i IV przy zastosowaniu dawki średniodobowej z wielolecia dla dni z opadami  $d = 4,74 \text{ mm/d}$ ; B – wyniki badań dynamiki ługowania chlorków z odpadów skał karbońskich typu II przy zastosowaniu różnych dawek wody ługującej od 1,0 do  $65,75 \text{ dm}^3/\text{m}^2$ ; 1/d: 1 – miąższość warstwy odpadów równa 1 m,  $d$  – dawka wody ługującej, równa średniodobowej sumie opadów z wielolecia dla dni z opadami  $d = 4,74 \text{ mm/d}$

A – results of studies on dynamics of leaching of chlorides from Carboniferous coal mine spoils of the types I, II, III, and IV, treated with water doses equal to many-years mean daily rates of precipitation for rainy days ( $d = 4.74 \text{ mm/d}$ ); B – results of studies on dynamics of leaching of chlorides from Carboniferous coal mine spoils of the type II, treated with water doses ranging from 1.0 to  $65.75 \text{ dm}^3/\text{m}^2$ ; 1/d: 1 – thickness of the spoil layer equal 1 m;  $d$  – volume of leaching water dose equal to many-years mean daily rate of precipitation for rainy days ( $4.74 \text{ mm/d}$ )

przy swobodnym, pionowym przepływie wód infiltracyjnych przez warstwę odpadów odbywa się w sposób porcjowy. Infiltrująca woda pełni rolę środka transportu ładunku soli w masie zwałowiska (w układzie) i poza zwałowiskiem (poza układem). Biorąc pod uwagę zdolność sorpcyjną i retencyjną odpadów w stosunku

Tabela 2

## Charakterystyka badanych odpadów skał karbońskich GZW

Numer próbki (fig. 3)	Kopalnia	Rodzaj odpadów	Wilgotność (% wag.)	Całkowita pojemność wodna – retencja (% wag.)	Zawartość Cl <sup>-</sup>		Zawartość Na <sup>+</sup>		SCR (G.N. Daybell, 1967)
					g/t	val/t	g/t	val/t	
I	Siersza	gruboziarniste popłucz- kowe	3,14	6,17	33,7	0,95	12,0	0,52	0,54
II	Anna	popłuczkowe	1,76	4,54	150,3	4,24	434,5	18,90	4,46
III	Szczygłowice	popłuczkowe	3,67	4,83	305,3	8,61	820,0	35,67	4,14
IV	XXX-lecia PRL	górnice, popłuczkowe, poflotacyjne	3,40	7,68	1020,1	28,77	1075,0	43,58	1,51



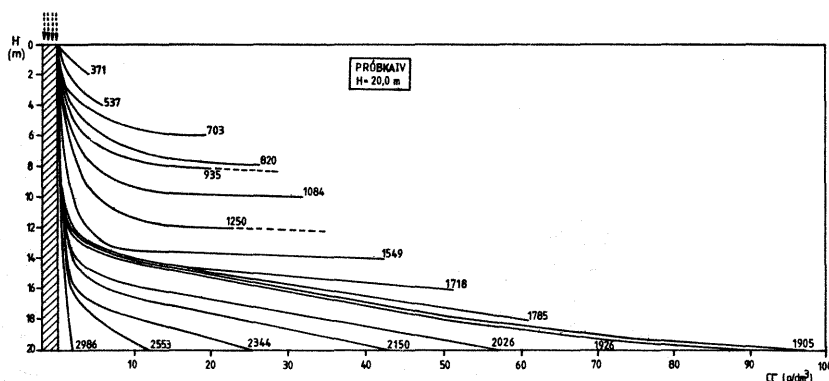


Fig. 4. Wyniki badań lizymetrycznych dynamiki ługowania chlorków z 20-metrowej warstwy odpadów skał karbońskich typu IV

Results of lysimetric studies on dynamics of leaching of chlorides from layer of Carboniferous coal mine spoils of the type IV, 20 m in thickness

Przegrupowanie ładunków  $\text{Cl}^-$  w profilu pionowym suchej warstwy odpadów w okresie wypełniania pojemności sorpcyjnej i retencyjnej:  $H$  – miąższości warstwy odpadów skał karbońskich; liczby przy krzywych (np. 371) oznaczają sumy wycieków w milimetrach licząc od rozpoczęcia procesu ługowania

Rearrangement of  $\text{Cl}^-$  charges in vertical section of dry spoil layer in time of infilling of sorptional and retentional capacity:  $H$  – thickness of layer of Carboniferous coal mine spoils numbers marked along the curves (e.g. 371) – summative volume of leakage from the beginning of leaching

do wody (tab. 2), w pracy zwałowiska deponowanego na sucho można wyróżnić dwa etapy:

I. Stopniowe wypełnianie pojemności sorpcyjnej i retencyjnej odpadów skalnych (etap rozruchu zwałowiska).

II. Swobodne przesiąkanie wody przez całą miąższość odpadów (etap ustalonej pracy zwałowiska).

Podczas stopniowego i przesuniętego w czasie (dla każdej kolejno deponowanej warstwy odpadów) procesu wypełniania pojemności sorpcyjnej i retencyjnej odpadów skalnych następuje przegrupowanie ładunków składników rozpuszczalnych w przekroju pionowym warstwy. Jest to związane z adsorpcją i zatrzymywaniem wody – wraz z ładunkiem soli wylugowanym z warstw położonych powyżej – w warstwie zwałowiska, gdzie w danym odcinku czasowym praca zwałowiska jest już ustalona. Proces ten w stosunku do chlorków i zasocjowanych z nimi jonów sodu odbywa się szczególnie dynamicznie. Jest to uzasadnione zarówno wysoką zdolnością migracyjną tych jonów, jak też brakiem ograniczeń równowagowych w zakresie występujących w praktyce (na zwałowiskach) stężeń.

Pojawienie się wycieków ze zwałowiska sygnalizuje rozpoczęcie etapu jego ustalonej pracy, tj. usuwanie ładunków soli poza układ. W następstwie przenoszenia ładunków w profilu pionowym górna warstwa praktycznie nie zawiera wówczas chlorków, podczas gdy w warstwie dolnej ich ładunek wielokrotnie przekracza poziom wyjściowy w odpadach skalnych (fig. 4). Stopień przegrupowania ładunków w profilu pionowym zależy od poziomu wysycenia pojemności sorpcyjnej i retencyjnej odpadów skalnych deponowanych na zwałowiskach. Im jest on wyższy, tym mniejsza jest dynamika ługowania warstwy odpadów wraz ze wzrostem jej wysokości wskutek malejącego gradientu stężeń  $g_{\text{Cl}^-} - G_{\text{Cl}^-}$ .

Chlorki oraz równoważące je kationy sodu odznaczają się bardzo wysoką dynamiką ługowania w odpadach skalnych o średnim i wysokim stopniu zasolenia (próbki II–IV). Ługowanie 2-metrowej warstwy półroczną sumą opadów powo-

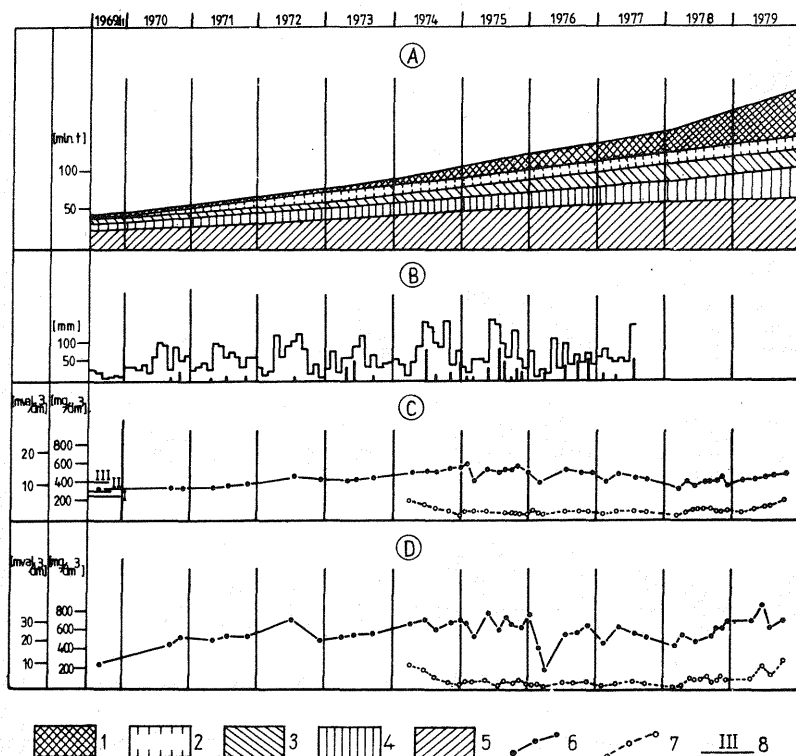


Fig. 5. Zmiany zasolenia chlorkowego wód powierzchniowych w wyniku deponowania odpadów skał karbońskich – zwałowisko Przechlebie

Changes in chloride salinity of surface waters due to disposal of Carboniferous coal mine spoils – the Przechlebie spoil tip

A – ilość zwalowanych odpadów; B – opady ( $\Sigma$  mies., dek.); C – zawartość  $\text{Cl}^-$ ; D – zawartość  $\text{Na}^+$ ; 1 – odpady energetyczne (pyły); odpady z: 2 – 6 kopalń węgla kamiennego; 3 – KWK Pstrowski; 4 – KWK Makoszowy; 5 – KWK Zabrze; 6 – odpływ ze zwałowiska (wody skażone); 7 – wody rzeki Drama (czyste); 8 – klasy czystości wód powierzchniowych z uwagi na zawartość jonu  $\text{Cl}^-$

A – amount of disposed spoils; B – precipitation (summative volumes for months and decades); C – concentration of  $\text{Cl}^-$ ; D – concentration of  $\text{Na}^+$ ; 1 – ashes; 2 – coal mine spoils from 6 coal mines; 3 – as above, from the Pstrowski coal mine; 4 – as above, from the Makoszowy coal mine; 5 – as above, from the Zabrze coal mine; 6 – outflow of waters (polluted) from the tip; 7 – Drama River waters (clear); 8 – classes of clearness of surface waters (with reference to concentration of ion  $\text{Cl}^-$ )

dowało wymycie 62–76% całkowitego ładunku początkowego chlorków (fig. 3). W odpadach tych stwierdzono bardzo silną asocjacje jonu chlorkowego z sodem (tab. 2). Dla odpadów skał karbońskich o średnim i wysokim stopniu zasolenia chlorkowego (próbki II–IV) wskaźnik  $SCR$  jest większy od 1 ( $SCR = 1,5–4,5$ ), a więc jest wyższy od wartości podawanych przez G.N. Daybella (1967). Również skład jonowy wycieków ze zwałowisk, na których zdeponowano odpady skalne o średnim i wysokim stopniu zasolenia, wykazuje znaczną przewagę jonu sodowego nad chlorkowym (fig. 5 i 6). Wskazuje to na wymianę jonową i przejście jonów sodu z kompleksu sorpcyjnego minerałów ilastych do roztworu porowego.

W odpadach o niskim stopniu zasolenia chlorkowego (próbka I) wskaźnik  $SCR$  jest mniejszy od 1 ( $SCR = 0,54$ ). Dynamika ługowania chlorków z tych odpadów jest niższa niż z odpadów zasolonych (fig. 4), co jest związane z niskim gradientem stężeń.

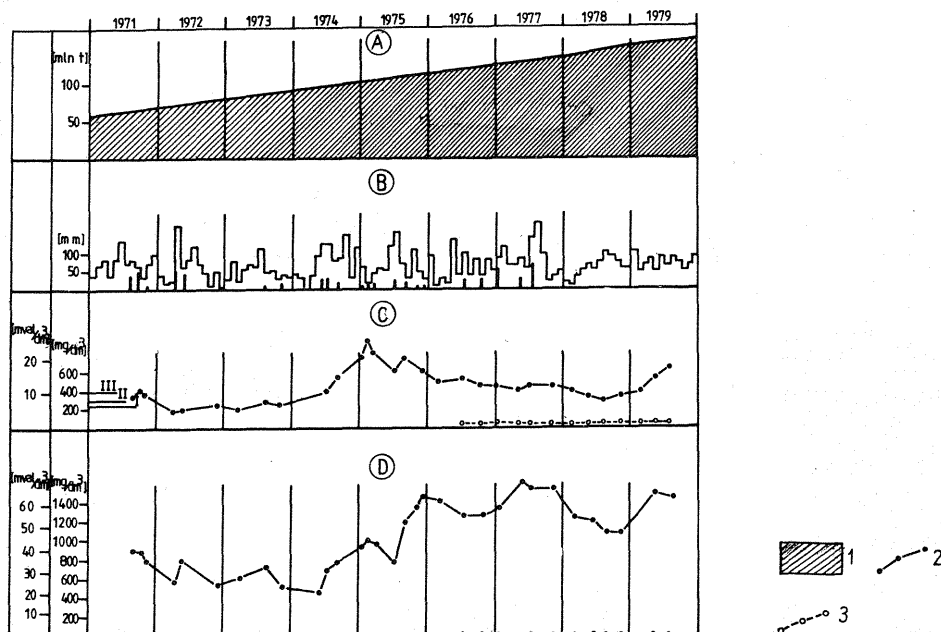


Fig. 6. Zmiany zasolenia chlorkowego wód powierzchniowych w wyniku deponowania odpadów skał karbońskich – zwałowisko Smolnica

Changes in chloride salinity of surface waters due to disposal of Carboniferous coal mine spoils – the Smolnica spoil tip

1 – KWK Szczygłowice; 2 – odwodnienie zwałowiska, rów opaskowy (wody skażone); 3 – rów opaskowy powyżej zwałowiska (wody czyste); pozostałe objaśnienia jak na fig. 5

1 – Szczygłowice coal mine; 2 – drainage of spoil tip and draining trench (polluted waters); 3 – draining trench above spoil tip (clear waters); other explanations as given in Fig. 5

Dynamika ługowania chlorków przy pionowym przepływie wody w zależności od wielkości dawek wody ługującej (fig. 3B) wykazała wzrost w zakresie stosowanych dawek od 1 do  $4,75 \text{ dm}^3/\text{m}^2$  i spadek przy dalszym zwiększaniu dawek. Jest to uzasadnione charakterem przepływu wody przez warstwę odpadów skalnych. Przy niskiej intensywności przepływu wód ługujących wielkość wynoszonego ładunku jest limitowana ograniczonym kontaktem wody z odpadami skalnymi. Osiągnięciu pełnego kontaktu odpowiadają maksymalne wyługowane ładunki chlorków. Dalszy wzrost intensywności przepływu wód ługujących powoduje przenikanie ich w postaci strug o znacznej prędkości i w następstwie pogorszenie warunków dyfuzji jonów do ługującej wody.

Badania zawartości chlorków w odpadach skalnych różnego wieku pobranych z warstwy przypowierzchniowej (0–1 m p.p.t.) czynnych zwałowisk oraz w wyciekach spod zwałowisk potwierdzają rezultaty badań lizymetrycznych. Dynamika ługowania jonu chlorkowego z warstwy przypowierzchniowej na zwałowisku jest przy tym wyższa aniżeli w badaniach lizymetrycznych. Jest to wynik intensywniejszej dezintegracji uziarnienia w warunkach naturalnych (na zwałowisku) w porównaniu z warunkami laboratoryjnymi. Znacznie większy zakres zmian temperatury oraz wilgotności na zwałowisku sprzyjają bardziej intensywnemu rozdrobnieniu materiału skalnego. Stopień wyługowania chlorków w pierwszym roku po zdeponowaniu odpadów w warstwie przypowierzchniowej wynosi 81–95%, zaś w na-

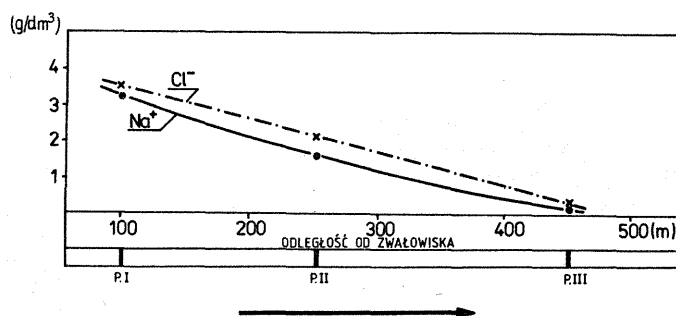


Fig. 7. Zmienność zasolenia chlorkowego wód podziemnych w rejonie zwałowiska Pochwacie  
Changes in chloride salinity of underground waters in area of the Pochwacie spoil tip

P.I.–P.III – piezometry, z których pobrane zostały próbki wód do analiz chemicznych; strzałka wskazuje kierunek splotu wód podziemnych

P.I–P.III – piezometers, from which water samples were taken for chemical analyses; arrow indicates direction of flow of underground waters

stępnym latach zawartość chlorków wykazuje minimalne zmiany. Oznacza to, iż zanieczyszczenie wód jonem chlorkowym pod zwałowiskiem występuje praktycznie tylko w pierwszym roku po zdeponowaniu odpadów. W związku z tym dynamika ługowania chlorków ze zwałowiska nie zależy od jego powierzchni i całkowitej ilości zgromadzonego materiału, lecz wyłącznie od ilości odpadów świeżo składowanych w okresie 0,5–1 roku. Dalsza migracja chlorków w wodach podziemnych otoczenia zwałowiska może oczywiście trwać znacznie dłużej w zależności od ukształtowania pola hydrodynamicznego.

Należy podkreślić, że przeważająca część odpadów GZW o wysokim stopniu zasolenia chlorkowego charakteryzuje się dobrą przepuszczalnością ( $k \geq 10^{-4} - 10^{-5}$  m/s), co sprzyja ługowaniu chlorków w całej bryle zwałowiska. Wielkość SCR w odpadach o różnym wieku nie jest stabilna i wykazuje na ogół miejscowy wzrost, a następnie bardzo znaczny spadek, często poniżej 1,0.

Średnie stężenie chlorków w wodach z odwodnienia zwałowisk wykazuje, że mimo znacznego stopnia rozcieńczenia chlorków w tych wodach wynikającego ze stosunku odpadów świeżych (do 1 roku) do starszych na zwałowisku oraz dynamiki ługowania chlorków, czynne zwałowiska stanowią realne zagrożenie jakości wód powierzchniowych i podziemnych w ich otoczeniu (fig. 5–7). Cechą charakterystyczną wód pochodzących z odwodnienia zwałowisk odpadów skał karbońskich o wysokim stopniu zasolenia chlorkowego jest  $SCR > 1$  oraz dominujący w ich składzie jonowym kation sodu.

## WNIOSKI

Analiza zmienności zasolenia chlorkowego skał karbońskich w GZW oraz badania dynamiki ługowania chlorków z odpadów skał karbońskich prowadzone w warunkach modelowych (badania laboratoryjne) oraz *in situ* (wytypowane zwałowiska) pozwoliły na sformułowanie następujących wniosków:

1. Zasolenie chlorkowe skał karbońskich GZW jest wynikiem obecności w porach tych skał stężonych wód o zmiennej koncentracji jonu  $Cl^-$ . Stwierdzona zależność między zawartością jonu  $Cl^-$  w roztworach porowych skał i wodach podziemnych umożliwia prognozowanie zasolenia chlorkowego skał karbońskich,

na podstawie koncentracji jonu  $\text{Cl}^-$  w wodzie podziemnej i zawartości wody w skale (wilgotność naturalna).

2. Generalnie, całkowita zawartość chlorków w odpadach skał karbońskich GZW nie przekracza 1%. Są one jednak bardzo podatne na ługowanie i w związku z tym stanowią zagrożenie dla jakości wód powierzchniowych i podziemnych w rejonie zwałowisk.

3. Badania modelowe dynamiki ługowania chlorków wykazały, że zależy ona od stopnia zasolenia chlorkowego odpadów skał karbońskich oraz intensywności przepływu wód ługujących. Odpady kopalniane o średnim i wysokim stopniu zasolenia chlorkowego odznaczają się bardzo dużą dynamiką ługowania, natomiast odpady o niskim stopniu zasolenia chlorkowego – mniejszą, co wiąże się z niskim gradientem stężeń. Dynamika ługowania chlorków w zależności od intensywności przepływu wód ługujących wykazała wzrost w zakresie dawek od 1 do  $4,75 \text{ dm}^3/\text{m}^2$  i spadek przy dalszym zwiększaniu dawek wody ługującej.

4. Badania dynamiki ługowania chlorków przeprowadzone *in situ* na wytypowanych zwałowiskach GZW potwierdziły rezultaty badań modelowych. Stopień wylugowania chlorków w pierwszym roku po zdeponowaniu odpadów wynosi średnio 81–95%. Oznacza to, że zagrożenie wód jonem chlorkowym bezpośrednio w podłożu zwałowiska występuje praktycznie tylko w pierwszym roku po zdeponowaniu odpadów. Dalsza migracja chlorków w wodach podziemnych poza zwałowiskiem zależy od ukształtowania pola hydrodynamicznego i może trwać znacznie dłużej.

5. Pomierzone koncentracje chlorków w wodach pochodzących z odwodnienia zwałowisk odpadów skał karbońskich i wodach podziemnych poza zwałowiskiem wskazują, że mimo znacznego stopnia rozcieńczenia chlorków w tych wodach (wynikającego ze stosunku odpadów świeżych – do 1 roku – do starszych) i dynamiki ługowania chlorków czynne zwałowiska stanowią zagrożenie dla jakości wód w ich otoczeniu przez cały okres ich budowy (deponowanie świeżych odpadów).

Instytut Hydrogeologii  
i Geologii Inżynierskiej  
Akademii Górniczo-Hutniczej  
Kraków, al. Mickiewicza 30

Instytut Podstaw Inżynierii  
Środowiska PAN  
Zabrze, ul. M. Curie-Skłodowskiej 34  
Nadesłano dnia 10 maja 1985 r.

## PIŚMIENICTWO

- BRUNETTE G.H., GENDRIN, HUGAN, SIMLER (1971) – A study of groundwater pollution by salt. *Advances in water pollution research. Proc. 5-th International Conference held in San Francisco and Hawaii*. Ed. S.H. Jenkins, 1, p. 1–34. Pergamon Press, Oxford.
- CASWELL S.A., HOLMES J.F., SPEARS D.A. (1984a) – Water – soluble chlorine and associated major cations from the coal and mudrocks of the Cannock and North Staffordshire coalfields. *Fuel*, 63, p. 774–781.
- CASWELL S.A., HOLMES J.F., SPEARS D.A. (1984b) – Total chlorine in coal seam profiles from the South Staffordshire (Cannock) coalfield. *Fuel*, 63, p. 782–787.

- DAYBELL G.N. (1967) – Journal Inst. Fuel, **40**, p. 3–17.
- GLOVER H.G. (1978) – The disposal of coal mine spoil in the United Kingdom. W: Environmental Management of Mineral Wastes. Ed. by G.T. Goodman, Sythoff and Noordhoff. The Netherlands, p. 35–70.
- HERZIG J., SZCZEPAŃSKA J., WITCZAK S. (1984) – Charakterystyka zasolenia wybranych pokładów węglowych w Górnośląskim Zagłębiu Węglowym na podstawie badań roztworów porowych. Kwart. Geol., **28**, p. 569–587, nr 3/4.
- NATIONAL COAL BOARD (1977) – Chloride retention in colliery spoil, with particular reference to water pollution et S... Mine. NCB – S. Nottinghamshire Area, Sc. Department, N.E. Leicestershire Prospect. Report No SNT/6/77.
- PAEYS J. (1971) – Pochodzenie słonych wód w karbonie ważniejszych zagłębi węglowych Europy na tle ich geologicznego rozwoju. Pr. Inst. Geol., **62**.
- RÓŻKOWSKI A. (1978) – Wody podziemne Górnośląskiego Zagłębia Węglowego. Prz. Geol., **26**, p. 549–552, nr 9.
- RÓŻKOWSKI A. (1984) – Górnośląskie Zagłębie Węglowe. Mapy mineralizacji wód na głębokości 500 i 750 m. Arch. Inst. Geol. Sosnowiec.
- RÓŻKOWSKI A., RUDZIŃSKA-ZAPAŚNIK T. (1983) – The application of hydrogeochemical methods isotope techniques and paleohydrogeologic analysis in hydrogeologic investigations of Polish Coal Basins. W: Geological Problems of Coal Basins in Poland, p. 365–418. Inst. Geol. Warszawa.
- RÓŻKOWSKI A., WILK Z. (1982) – Zagadnienia hydrogeologiczne Górnośląskiego Zagłębia Węglowego i jego północno-wschodniego obrzeżenia. Przew. 54 Zjazdu Pol. Tow. Geol., p. 72–89.
- SCHUBERT J.P. (1979) – Groundwater contamination problems resulting from coal refuse disposal. Paper to 1-st International Mine Drainage Symposium, Denver. Report CONF – 7905106–1, p. 16–29.
- SKIPSEY E. (1974) – Distribution of alkali chlorides in British coal seams. Fuel, **53**, p. 258–267.
- SKIPSEY E. (1975) – Relations between chlorine in coal and the salinity of strata waters. Fuel, **54**, p. 121–125.
- STRZYSZCZ Z. (1978) – Chemiczne przemiany utworów karbońskich w aspekcie biologicznej rekultywacji i zagospodarowania centralnych zwałowisk. Pr. Stud., **19**. PAN, Inst. Podstaw Inżynierii Środowiska. Wyd. PAN, Zakład Narodowy im. Ossolińskich.
- TWARDOWSKA I. (1981) – Mechanizm i dynamika ługowania odpadów karbońskich na zwałowiskach. Pr. Stud., **25**. PAN, Inst. Podstaw Inżynierii Środowiska. Wyd. PAN, Zakład Narodowy im. Ossolińskich.

Ядвига ЩЕПАЊСКА, Ирена ТВАРДОВСКА

**ВОЗДЕЙСТВИЕ ХЛОРИДОВ,  
СОДЕРЖАЩИХСЯ В ОТХОДАХ КАМЕННОУГОЛЬНЫХ ПОРОД ВУБ,  
НА ОКРУЖАЮЩУЮ ВОДНУЮ СРЕДУ**

Резюме

Отходы карбо́нских пород, остающиеся в процессе эксплуатации каменного угля в ВУБ, состоят в основном из аргиллитов, песчаников и во вторую очередь из углистых сланцев и углей. В этих породах заключено значительное количество легко растворимых хлоридных солей (таб. 1). Изучение водных экстрактов из каменноугольных пород (угли, песчаники, аргиллиты) и под-

земных вод из естественных источников в районе исследований показало, что засоление карбонских пород обусловлено присутствием в порах этих пород вод с непостоянной концентрацией иона  $\text{Cl}^-$  (фиг. 1). Зависимость, существующая между содержанием иона  $\text{Cl}^-$  в поровых растворах пород и в подземных водах позволяет предсказать засоление пород карбона по содержанию иона  $\text{Cl}^-$  в подземных водах (фиг. 2).

Проникающие в породу воды атмосферных осадков вымывают из отходов карбонатных пород хлоридные соли и вместе с ними проникают в водную среду, способствуя тем самым загрязнению подземных и поверхностных вод в районе отвалов (фиг. 5—7).

Изучение на модели (лизиметрическое) динамики выщелачивания хлоридов из различного типа отходов каменноугольных пород (таб. 2) показало, что она зависит от степени хлоридного насыщения отходов и от интенсивности вымывающего потока (фиг. 3). Отходы пород карбона высокой и средней степени хлоридного засоления (образцы II, III, IV — фиг. 3) отличаются высокой динамикой выщелачивания. Промывка 2-метрового слоя отходов полугодовым суммарным количеством атмосферных осадков приводила в выщелачиванию 62—76% начального содержания хлоридов. Отходы с низкой степенью засоления хлоридами (образец 1 — фиг. 3) отличаются намного ниже динамикой выщелачивания. Эта динамика в зависимости от обилия промывочных вод растет при дозах вод от 1 до  $4,75 \text{ дм}^3/\text{м}^2$  и снижается при дальнейшем увеличении доз (фиг. 3В).

Изучение динамики выщелачивания хлоридов в условиях *in situ* показало, что степень выщелачивания хлоридов за первый год существования отвала составляет 81—95%. Это значит, что опасность загрязнения подземных вод ионом  $\text{Cl}^-$  под отвалом практически существует только в первый год его существования. Дальнейшая миграция хлоридов в водах отвала может продолжаться в зависимости от формирования гидродинамического поля. Концентрация хлоридов, измеренная в потоках, вытекающих из отвалов (фиг. 5, 6) и в подземных водах в районе отвалов (фиг. 7) говорит о том, что действующие отвалы создают постоянную угрозу качеству вод в их окружении.

Jadwiga SZCZEPAŃSKA, Irena TWARDOWSKA

## INFLUENCE OF CHLORIDES FROM CARBONIFEROUS COAL MINE SPOILS ON SURROUNDING WATER ENVIRONMENT IN THE UPPER SILESIAN COAL BASIN

### Summary

Carboniferous coal mine spoils set aside in mining of coal in the Upper Silesian Coal Basin mainly include claystones. The share of sandstones, coally shales, and coals is subordinate. The spoils yield large amounts of easily soluble chlorides (Table 1). Studies on water extracts from Carboniferous rocks (coals, sandstones, and claystones) and underground waters from natural effluences in the studied area showed that salinity of the rocks is due to presence of waters with varying concentrations of ion  $\text{Cl}^-$  in pores of these rocks (Fig. 1). The recorded relationship of concentrations of ion  $\text{Cl}^-$  in pore solutions of the rocks and underground waters makes possible prognosis of salinity of the rocks on the basis of concentrations of ion  $\text{Cl}^-$  in groundwaters (Fig. 2).

Percolating precipitation waters are leaching chlorides from Carboniferous coal mine spoils and carry them to water environment which leads to increase in pollution of ground and surface waters in area of tips (Figs. 5—7).

Model (lysimetric) studies showed that dynamics of leaching of chlorides from various types of Carboniferous coal mine spoils (Table 2) depends on concentration of chlorides in the coal mine spoils and

flow rate of percolation of leaching waters (Fig. 3). The dynamics is very high in the case of the spoils characterized by intermediate to high salinity (samples II, III, and IV – Fig. 3). Treatment of 2 meters thick layer of the spoils with volume of water equal to the sum of precipitation for a half of year resulted in leaching of 62 to 76% of original amount of chlorides. The dynamics of leaching markedly decreases in the case of spoils characterized by low salinity (sample I – Fig. 3). The studies showed that the dynamics increases along with increase flow rate of leaching water from 1 to 4.75 dm<sup>3</sup>/m<sup>2</sup> to decrease thereafter (Fig. 3B).

The "in situ" studies on the dynamics of this process showed that 81–95% of chlorides become leached out from spoils during the first year after disposal. This means that hazard of pollution of underground waters with ion Cl<sup>-</sup> in the vicinity of tip is practically limited to the first year. The migration of chlorides in waters beyond the tip may continue for some time, depending on geometry of the hydrodynamic field. The results of measurements of concentrations of chlorides in effluences from tips (Figs. 5, 6) and underground waters in the vicinity of tip (Fig. 7) showed that the currently used disposal sites create a continuous hazard of water pollution in their neighbourhood.