

УДК 556.11:504.4.064

**МАТЕМАТИЧЕСКОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ ПОСТУПЛЕНИЯ И МИГРАЦИИ Cs-137
В ДОННЫХ ОТЛОЖЕНИЯХ**

В. В. ПУТЫРСКАЯ, канд. биол. наук, доц. Н.В. ГОНЧАРОВА
(Международный государственный экологический университет им. А.Д. Сахарова, Минск),
д-р физ. наук, проф. Э. КЛЕМТ, д-р физ. наук, проф. Г. ЦИБОЛЬТ
(Fachhochschule Ravensburg-Weingarten University of Applied Sciences)

Изучены параметры и вертикальное распределение радионуклидов (^{137}Cs , ^{210}Pb , ^{241}Am и др.) в воде и донных отложениях итальянского озера Маджоре с целью исследования протекающих в озере процессов сорбции и миграции радионуклидов, а также оценки существующей радиологической обстановки. Проведен ряд экспериментов по выделению ^{137}Cs из различных геохимических фракций. Предложена математическая модель для описания поступления ^{137}Cs в донные отложения, а также его вертикального распределения по профилю.

По своему положению в рельефе суши и системе поверхностного стока озера являются аккумуляторами веществ, которые циркулируют в пределах водосбора и в конечном итоге попадают в водоёмы. Дальнейшая «судьба» поступающих в озеро химических элементов, в том числе и радиоактивных, определяется сложным комплексом физических, химических и биологических процессов, приводящих к их существенному перераспределению между различными компонентами водной экосистемы. В природе не существует механизмов деструкции техногенных радионуклидов, к тому же большая часть из них обладает сильным радиационным и биологическим эффектом, поэтому изучение распределения радионуклидов в донных отложениях позволяет не только уточнять датировку событий, но и способствует развитию и осуществлению комплексного изучения озёр в целом. Более того, изучение озерной седиментации в условиях радиоактивного загрязнения позволяет проследить закономерности миграции радионуклидов на водосборах и в неодинаковых по строению озёрных котловинах. Математическое моделирование миграции радионуклидов позволяет оценить общий характер осадконакопления, выделить типичные и аномальные показатели, установить корреляционные связи компонентов, выделить преобладающие процессы седиментогенеза и дать прогноз для исследуемой экосистемы.

В результате аварии на Чернобыльской АЭС большинство водоемов и рек Европы подверглось радиоактивному загрязнению. В первый период после аварии радионуклиды выпали как на почву, так и на водную поверхность. В дальнейшем началось перераспределение радионуклидов - вторичный массоперенос радионуклидов, главную роль в котором играют такие процессы, как смыв радионуклидов с площадей водосбора, перенос их по руслам рек и седиментация в донные отложения. Так, например, на водную поверхность озера Лугано (Италия) после аварии выпало приблизительно 20 кБк/м² ^{137}Cs . Возможно, примерно такому же загрязнению подверглось и соседнее озеро Маджоре. Но, в отличие от озера Лугано, загрязнение радионуклидами озера Маджоре до настоящего времени не изучено.

Озеро Маджоре, расположенное на высоте 194 м над уровнем моря (поверхность 212 км², максимальная глубина 370 м), - одно из самых больших бассейнов питьевой воды на юге Альп. Река Тичино, долина которой была сформирована во время таяния ледника в последний ледниковый период, течет с севера озера на юг. Другие притоки - Верзаска и Маджия - на севере, Точе - на западе и Треса (отток оз. Лугано) - на востоке. Первоначально озеро Маджоре было олиготрофным, но в течение 60-х годов XX столетия оно эвтрофицировалось и стало мезотрофным. В настоящее время озеро снова перешло в олиготрофное состояние [1].

Материалы и методы. Для оценки баланса ^{137}Cs в озере Маджоре, миграции и поведения ^{137}Cs в донных отложениях, а также для определения его вертикального распределения и сорбции на различных геохимических фракциях использовали пробоотборник ДТШ-3 (производства фирмы «Экотекнис», Россия), позволяющий отбирать ненарушенную колонку длиной до 30 см с площади дна 100 см².

В каждой позиции озера Маджоре (рис. 1) отбирали пробы в 3-кратной повторности. Содержимое колонки разрезали на две идентичные части вдоль, а затем поперек на тонкие слои толщиной 1 см. Пробы подвергали сублимационной сушке с последующей их гомогенизацией в фарфоровой ступке.

В двух, наиболее глубоких позициях (2, 5 м), с помощью фильтрующей установки «Мидия» были отобраны пробы озерной воды больших объемов. В установке использовали набор из 10 бумажных фильт-

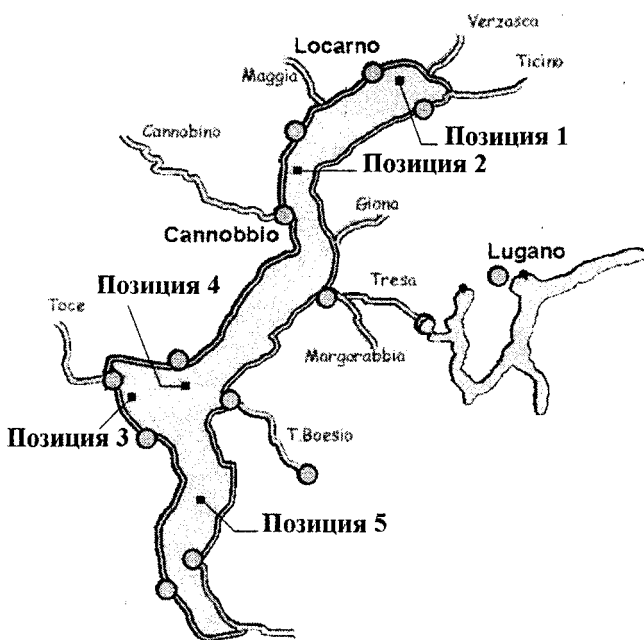


Рис. 1. Позиции отбора проб на озере Маджоре в 2003-2004 гг.

Результаты и их обсуждение. На рис. 2, а, б, в соответственно представлено вертикальное распределение ^{137}Cs , неравновесного ^{210}Pb , а также объемной плотности седиментов, отобранных со второй позиции в районе бассейна реки Каннобио.

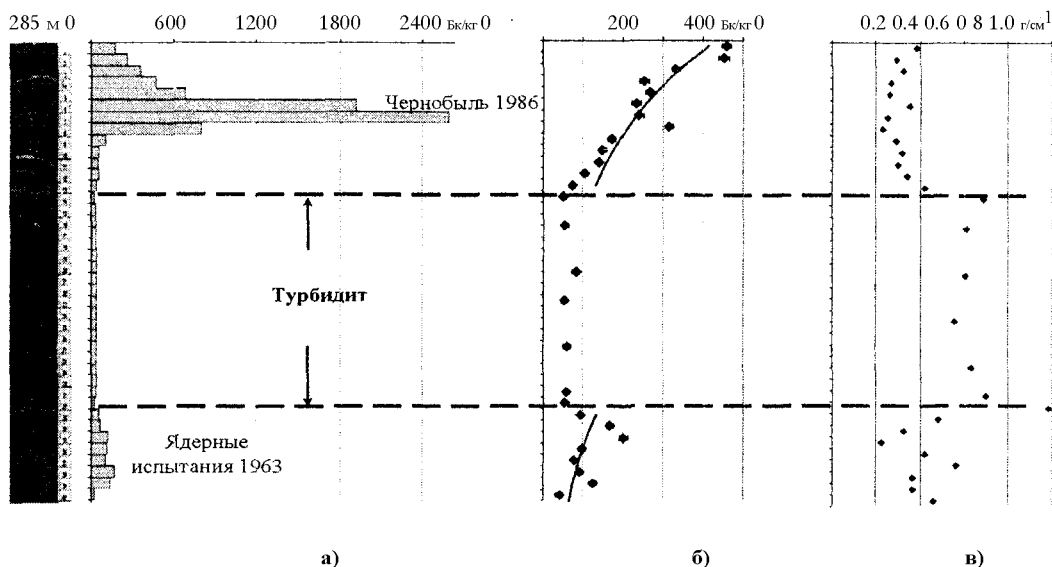


Рис. 2. Вертикальное распределение ^{137}Cs (на 1.05.86), неравновесного ^{210}Pb и объемная плотность донных отложений озера Маджоре (0 - 40 см), отобранных со второй позиции на глубине 285 м

Хорошо различимы два максимума для ^{137}Cs , которые можно отнести к выпадениям после аварии в Чернобыле в 1986 году и выбросам в атмосферу в результате ядерных испытаний в 60-х годах. Концентрации ^{137}Cs и ^{210}Pb , так же как и объемная плотность в этом слое, постоянны.

Концентрация ^{137}Cs в воде увеличивается с глубиной и достигает 1 мБк/л. Концентрация конкурирующих ионов $[\text{K}^+]$ и $[\text{NH}_4^+]$ постоянна по водному профилю и равна 2 и 0,01 мг/л соответственно. Но эти значения резко изменяются при переходе от озерной воды к поровой, где концентрация увеличивает -

ров («голубая полоска») для определения активности ^{137}Cs на взвешенных частицах, а также основанный на целлюлозе неорганический сорбент ANFEZH с высокой сорбционной способностью (95 - 98 %) для определения содержания ^{137}Cs непосредственно в воде. Далее фильтры высушивали при температуре 60 °С в течение 24 часов и помещали в эксикатор на 1 день. Тщательно гомогенизированный сорбент, имеющий стандартную геометрию (1 л), подвергали гамма-спектрометрическому анализу.

Пробы донных отложений (пластинки), взвешенного вещества (фильтры) и воды (сорбент) анализировали гамма-спектрометрически с помощью широкоэнергетического германиевого детектора (BEGe-5030, Canberra-Eurysis).

Химическое выделение ^{137}Cs , а также анализ содержания органического вещества проводили на влажных седиментах.

ся до 5 мг/л для K^+ и 9 мг/л для NH_4^+ . Оба конкурирующих иона влияют на миграцию ^{137}Cs , уменьшая замедленную диффузию в донных отложениях.

Другие водные параметры, такие как pH (7,0) и содержание кислорода (около 6,5 мг/л) остаются примерно постоянными по всей глубине озера [2]. Однако замечено, что величина pH незначительно уменьшается с глубиной и это соответствует увеличению концентрации ионов водорода $[H^+]$ и увеличению концентрации ^{137}Cs (рис. 3).

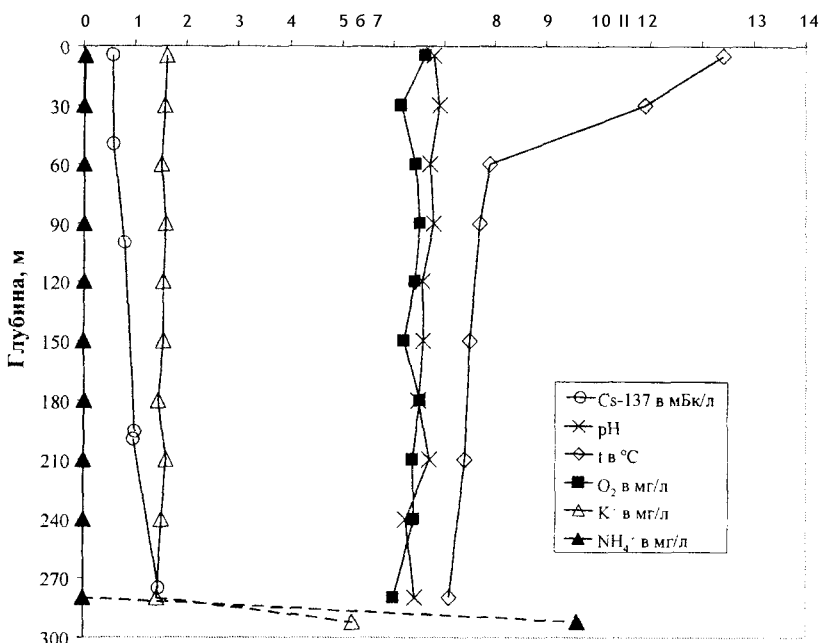


Рис. 3. Вертикальное распределение ^{137}Cs и водных параметров в озере Маджоре (позиция 2)

Данные определения концентрации ^{137}Cs позволили рассчитать коэффициент распределения K_f .

$$K_f = \frac{C_s - 137(\text{Бк/кг твердой фазы})}{d C_w - 137(\text{Бк/л жидкой фазы})} \quad (1)$$

Различают обменный (K_d) и общий (A/λ) коэффициенты распределения, которые можно рассчитать, зная соответственно концентрацию обменных ионов или общую радиоактивность в осадках. Отношение этих двух коэффициентов дает долю обменной радиоактивности a в донных отложениях:

$$a = \frac{K_d^{ex}}{K_d^{tot}} = \frac{C_{ex}}{C_s + C_f} = \frac{r}{\Gamma + f} \quad (2)$$

где C_E и C_f - обменная и фиксированная части радиоактивности соответственно, Бк/м²; и r - коэффициенты фиксации и растворения, г⁻¹.

Взвешенное среднее по всей глубине водного профиля (без учета поверхностного слоя) составляет $(92\ 000 \pm 18\ 000)$ л/кг.

Связывание ^{137}Cs различными геохимическими фракциями донных отложений было определено путем проведения последовательных экспериментов по выделению ^{137}Cs из проб, отобранных в различных позициях на различной глубине. Результаты экспериментов показали, что ^{137}Cs прочно связан с осадками [3]. Содержание обменного ^{137}Cs изменялось от 0,5 % до 1,0 %, тогда как более 90 % его осталось в осадке, который представляет собой в основном глинистые минералы, полевой шпат и кварц.

В озерах имеют место не только процессы седиментации, но и идут сравнимые с процессами седиментации процессы миграции и десорбции из донных отложений. Не меньшую роль в формировании радиоактивности играет поступление радионуклидов с речным стоком. Совокупность всех процессов, определяющих конечные концентрации радионуклидов в водной системе, могут быть описаны математическими моделями.

Математические модели позволяют оценить общий характер осадконакопления, выделить типичные и аномальные показатели, установить корреляционные связи компонентов, выделить преобладающие процессы седиментогенеза.

Для моделирования поведения ^{137}Cs в озере Маджоре использовали содержание обменного цезия, выделенного на первом этапе экстракции – обменную фракцию (C_E) и оставшуюся часть – фиксированную фракцию (C_F).

Предложенная нами модель представляет собой систему двух дифференциальных уравнений в частных производных (3), в которой учитываются поступление ^{137}Cs в донные отложения со взвешенным веществом, находящимся в равновесии в озерной водой, процессы фиксации (f) и растворения (r), замедленная диффузия обменного ^{137}Cs (D_E), био- или физическое перемешивание в верхних слоях седиментов (D_{phys}), а также радиоактивный распад (λ).

$$\frac{\partial C_E(x,t)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left((D_E + D_{phys}) \cdot \frac{\partial}{\partial x} C_E \right) + \frac{\partial}{\partial x} (v_s \cdot C_E) - f \cdot C_E + r \cdot C_F - \lambda \cdot C_E; \quad (3)$$

$$\frac{\partial C_F(x,t)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D_{phys} \cdot \frac{\partial}{\partial x} C_F \right) + \frac{\partial}{\partial x} (v_s \cdot C_F) + f \cdot C_E - r \cdot C_F - \lambda \cdot C_F.$$

Для решения данной системы двух дифференциальных уравнений в частных производных мы использовали в качестве граничного условия Дирихле концентрацию ^{137}Cs в воде озера Маджоре ($C_{вода}$):

$$C_E = K_d C_{вода}. \quad (4)$$

Радиоактивность ^{137}Cs рассчитана с помощью моделей MOIRA и AQUASCOPE [4]. Полученные результаты сопоставили с измерениями, произведенными в 2003 и 2004 гг., и данными, полученными в Институте по окружающей среде из Испры [5 – 10] (рис. 4).

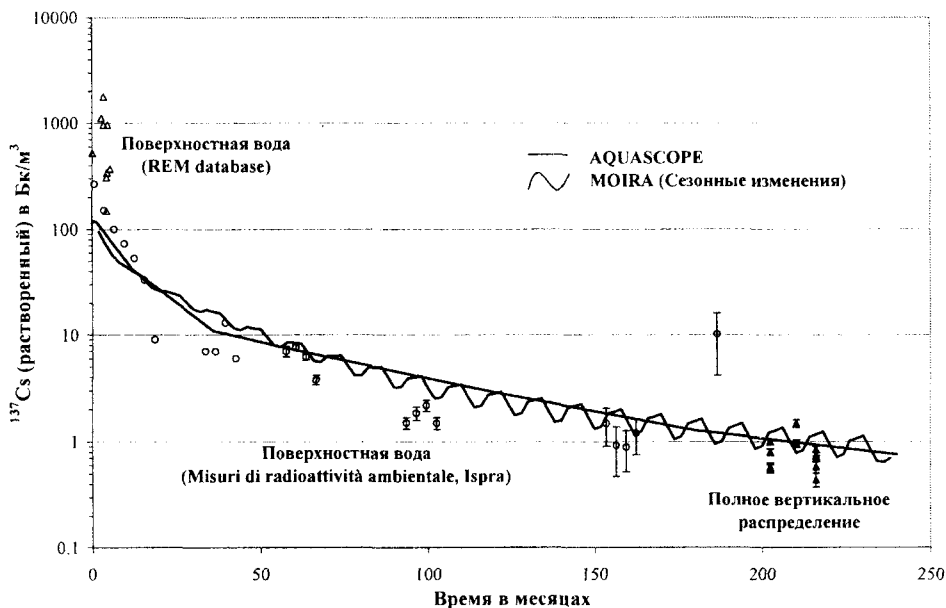


Рис. 4. Граничные условия для системы дифференциальных уравнений в частных производных: расчетный и измеренный ^{137}Cs в озерной воде

Предположили, что в начальный момент активность в донных отложениях равна нулю:

$$C_E(t = 0) = C_F(t = 0) = 0. \quad (5)$$

Свободные параметры, которые оптимизировали в результате моделирования, – это начальная скорость седиментации, рассчитанная на поверхности седиментов (исходя из их объемной плотности);

2 различных коэффициента распределения. Один коэффициент распределения оценивали, предполагая, что радиоактивность взвешенного вещества, оседающего на поверхность донных отложений, находится в равновесии с радиоактивностью ^{137}Cs , разбавленного в воде. В этом случае радиоактивность может переходить в глубь донных отложений, но если концентрация цезия в воде сравнительно низкая, может иметь место обратный процесс, когда ^{137}Cs диффундирует из седиментов. Второй коэффициент распределения K_d регулирует замедленную диффузию непосредственно в самих седиментах, ему соответствует величина выше, по сравнению с коэффициентами распределения в озерной воде, в результате увеличения концентрации конкурирующих ионов NH_4^+ и K^+ .

На рис. 5 светлыми блоками представлены экспериментальные данные, линией и точками - результат моделирования в виде функции и рассчитанного среднего для отдельных слоев донных отложений позиции 2 соответственно. Из рисунка следует, что результаты модели (черные точки) практически совпадают с экспериментальными данными.

Оптимизированная начальная скорость седиментации v_{c^0} для данной позиции равна $(0,45 \pm 0,003)$ см/г. Значения же полученных коэффициентов распределения следующие: $(93\ 300 \pm 5\ 500)$ л/кг для K_d^{tot} с учетом диффузии в верхнем слое и $(60\ 400 \pm 3\ 400)$ л/кг для K_d^{tot} с учетом диффузии в глубь седиментов.

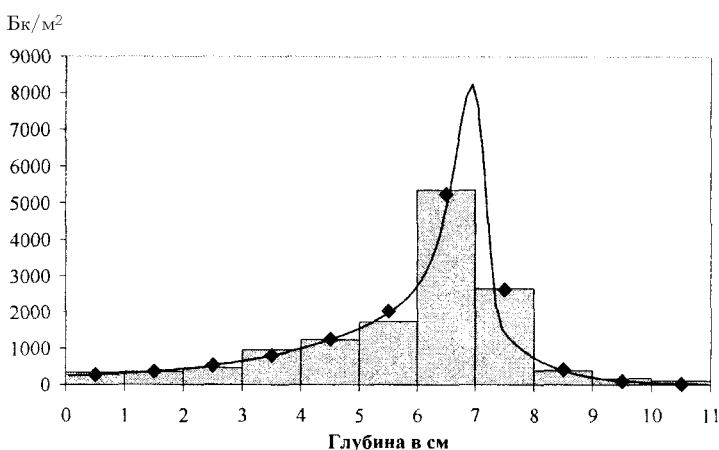


Рис. 5. Результаты моделирования вертикального распределения ^{137}Cs в донных отложениях озера Маджоре (позиция 2)

Сопоставление результатов моделирования для коэффициентов распределения с экспериментально рассчитанными данными позволяет заключить, что предложенная модель хорошо описывает поведение ^{137}Cs в озере и учитывает протекающие в нем процессы. В дальнейшем интерес представляет сравнение и анализ результатов моделирования для других позиций озера Маджоре.

Выводы. Результаты исследований на примере озера Маджоре, описанные в данной работе, еще раз подчеркивают то, что озерные экосистемы являются элементами окружающей среды, на которые в первую очередь воздействует вторичное загрязнение радионуклидами аварийной природы. Озера являются аккумуляторами различных веществ, в том числе и радионуклидов [11].

Увеличение удельной радиоактивности в определенных слоях донных отложений дает основание считать эти слои с глобальными выпадениями, связанными с испытаниями ядерного оружия, и позволяет в дальнейшем проводить хронологическое исследование образцов седиментов и их датирование.

Особенностями предложенной модели является учет скорости осаждения по профилю донных отложений в результате уплотнения, а также два различных коэффициента распределения K_d , один, указывающий на переход ^{137}Cs в верхний слой седиментов, а второй, регулирующий замедленную диффузию в седиментах. Отношение обоих коэффициентов K_d представлено отношением концентраций конкурирующих ионов в воде и донных отложениях соответственно.

Предложенная модель адекватно описывает распределение ^{137}Cs в донных отложениях озера Маджоре. Особый интерес представляет возможность данной модели оценить формирование общего загрязнения седиментов в зависимости от времени и учесть параметры, которые в действительности отличают одно озеро от другого, но также могут существовать внутри одной водной системы.

Данная работа выполнена в рамках договора о научном сотрудничестве НИЛ экологического мониторинга МГЭУ им. А.Д. Сахарова и лаборатории экологии Fachhochschule Ravensburg-Weingarten University of Applied Sciences (Germany) при финансовой поддержке Правительства Германии.

ЛИТЕРАТУРА

1. Calderoni, A., Mosello, R. L'eutrofizzazione del Lago Maggiore e il suo risanamento // Documenta Ist. ital. Idrobiol. - 1996 - Vol. 56. - P. 5 - 20.
2. Albrecht, A. The Behavior of Nuclear Reactor Derived Metallic Radionuclides in the Aquatic System of Switzerland // Schriftenreihe der EAWAG - 1998. - № 13.
3. Radiocaesium in water and sediments of Lago Maggiore: Measurements and Modeling. Advances in Nuclear and Radiochemistry / V. Putyrskaya, E. Klemt, H. Paliachenka, G. Zibold // Schriften des Forschungszentrums Jilich. - 2004. - P. 699-701.
4. Review and assessment of models used to predict the fate of radionuclides in lakes / L. Monte, J.E. Brittain, L. Flåkanson e.a. // Journal of Environmental Radioactivity. - 2003. - Vol. 69. - P. 177 - 205.
5. Dominici G. Misuri di Radioattività Ambientale. Ispra 1985 // Commissione delle Comunità europee - EUR 10947 IT-1987.
6. Dominici G. Misuri di Radioattività Ambientale. Ispra 1986 // Commissione delle Comunità europee - EUR 11348 IT - 1987.
7. G. Dominici. Misuri di Radioattività Ambientale. Ispra 1987 // Commissione delle Comunità europee - EUR 11821 IT-1988.
8. Dominici G. Misuri di Radioattività Ambientale. Ispra 1989 // Commissione delle Comunità europee - EUR 12884 IT-1990.
9. Dominici G., Risposi L. Misuri di Radioattività Ambientale. Ispra 1991 // Commissione delle Comunità europee-EUR 14890 IT-1992.
10. Misuri di Radioattività Ambientale sito di Ispra 1994 / C. Osimani, V. Vocino, F. D'Alberti, R. Cazzaniga. // Commissione delle Comunità europee - EUR 17309 IT-1997.
11. Мониторинг радиоактивного загрязнения поверхностных и подземных вод после Чернобыльской аварии / О.В. Войцехович, В.М. Шестопапов, А.С. Скальский, В.В. Канивец. - Киев, 2001. - 148 с.