

СОРБЦИОННО-ДИФФУЗИОННАЯ МОДЕЛЬ ПОГЛОЩЕНИЯ ^{137}Cs ДОННЫМИ ОТЛОЖЕНИЯМИ ОЗЕР В РЕКОНСТРУКЦИИ ВЫПАДЕНИЯ ^{137}Cs НА ВОДОЕМЫ

© 2020 г. Н. А. Бакунов, Д. Ю. Большиянов, С. А. Правкин*, А. С. Макаров

Арктический и Антарктический научно-исследовательский институт, 199397, Санкт-Петербург, ул. Беринга, 38

*e-mail: s.pravkin@aari.ru

Получена 05.06.2019, после доработки 08.07.2019, принята к публикации 09.07.2019

Для 6 бессточных озер со средними глубинами ≤ 12 м реконструировано выпадение ^{137}Cs на водоемы с привлечением к расчетам сорбционно-диффузионной модели поглощения радионуклида дном и данных позднего (через годы) мониторинга ^{137}Cs . По модели рассчитывалась концентрация ^{137}Cs в воде на дату загрязнения озера с последующим определением запаса ^{137}Cs в объеме озерных вод. Многократное различие в плотности выпадения ^{137}Cs на водоемы (18–700 кБк/м²), времени экспозиции ^{137}Cs и неодинаковые природные свойства озер не повлияли на корректность оценки выпадения ^{137}Cs : результаты расчета согласовывались с данными содержания ^{137}Cs в почвах побережья водоемов. На даты мониторинга ^{137}Cs в воде озер (7, 16, 35 лет) после загрязнения водоемов его запас в объеме вод не превышал 0.18–6.6% количества, выпавшего на поверхность озер. Показатели миграции ^{137}Cs в системе вода–дно – коэффициент распределения K_d и диффузии D – составили 2000–4000 л/кг и $1.0\text{--}0.2 \times 10^{-7}$ см²/с соответственно. Илы как основные носители сорбционных свойств дна водоемов на многие годы определяли загрязнение вод бессточных озер ^{137}Cs .

Ключевые слова: цезий-137, озеро, донный грунт, миграция, сорбция, диффузия

DOI: 10.31857/S0033831120050123

Актуальность исследований водной миграции искусственных радионуклидов (ИРН) для России обуславливается разнообразием природных условий на территории страны и наличием районов со следами радиационных аварий, сохраняющих загрязнение почв и водоемов долгоживущими ИРН с полупериодами распада от 30 (^{90}Sr , ^{137}Cs) до нескольких тысяч лет ($^{239,240}\text{Pu}$) [1–3]. Поэтому остаются востребованными результаты исследований связей и закономерностей миграции ИРН, а также показаний и ограничений к их использованию в прогнозах состояния загрязнения водоемов, находящихся в неодинаковых природных условиях. Строительство АЭС на плавучих платформах и размещение их в арктических районах страны повышают значимость исследований миграции (ИРН) в пресноводных и морских экосистемах.

В Финляндии, Швеции и Норвегии было уделено значительное внимание радиологическим

исследованиям водоемов загрязненных ^{137}Cs от аварийного выброса с ЧАЭС [4, 5]. Эти исследования позволили оценить последствия загрязнения водоемов ^{137}Cs и выявить отдельные закономерности миграции ^{137}Cs , свойственные природным условиям Скандинавского полуострова. В России основной массив эмпирических данных загрязнения поверхностных вод ^{137}Cs получен для водоемов средних широт. Разнообразие природных условий в России ограничивает возможности переноса эмпирических сведений по миграции ^{137}Cs , полученных для водоемов средних широт, на другие районы страны с иными ландшафтом и климатом. При работе АЭС не исключается выход ИРН за пределы технологических регламентов, последствием чего становится загрязнение природных сред – воздуха, почв, поверхностных вод.

При изучении последствий радиационных аварий [6–8] часто возникают необходимость в рекон-

струкции уровней ИРН в компонентах наземной и водной экосистем и доз, полученных организмами биоты. В качестве примера сошлемся на реконструкцию уровней ИРН в воде и донных отложений (ДО) озер Кожановское в Брянской обл. и Тыгиш на южном Урале [6, 7, 9]. Реконструкции уровней радионуклидов выполнены с использованием нерегулярных наблюдений за содержанием в воде ^{137}Cs (^{90}Sr) и привлечением экспоненциальной модели к оценке временной динамики радионуклидов в воде озер [6, 7, 9].

Нами к реконструкции выпадения ^{137}Cs на озера привлекалась сорбционно-диффузионная модель поглощения радионуклида дном водоема [10, 11]. Ранее эта модель использовалась в определениях «чернобыльского» ^{137}Cs в воде при небольших экспозициях радионуклида в озерах [11, 12].

Задача исследования состояла в обосновании привлечения сорбционно-диффузионной модели поглощения радионуклида дном к реконструкции начального выпадения ^{137}Cs на водоем по данным мониторинга ^{137}Cs в воде, выполненного спустя годы после его загрязнения. Фактически речь идет о применении модели [10, 11] для решения обратной задачи – установлению начального уровня (U_0) ^{137}Cs в воде водоема по данным, относящимся к отдаленному периоду времени мониторинга уровня ^{137}Cs в воде (U_t). Противопоказания к такой постановке задачи нет, но есть объективное ограничение, исходящее из природы физико-химического взаимодействия ионов ^{137}Cs с грунтами дна водоема. Отсутствуют экспериментальные данные, позволяющие оценить наличие постоянства или значительной изменчивости во времени (годы) показателей сорбции (K_d) и диффузии (D) ^{137}Cs в верхнем слое донных отложений (ДО) озер. В воде озер после выпадения ^{137}Cs относительно быстро (2–3 года) устанавливаются псевдоравновесные концентрации ^{137}Cs , которые во временном ряду наблюдений характеризуются слабым трендом снижения уровней. Такой замедленный тренд косвенно позволяет допустить, что с установлением псевдоравновесной концентрации ^{137}Cs в водоеме не происходит значительных количественных изменений в показателях (K_d , D) миграции ^{137}Cs . Поэтому вопрос применимости сорбционно-диффузионной модели к решению поставленной задачи зависит от того, как долго в сорбционной системе будет сохраняться постоянство численных характеристик сорбции и диффузии ^{137}Cs .

Уровни «чернобыльского» ^{137}Cs в воде озер [5, 6, 12], полученные через 6–16 лет после загрязнения водоемов, привлекались к определению выпадения ^{137}Cs на озера в 1986 г. Для озер южного Урала Бердениш и Урускль экспозиция ^{137}Cs в водоемах после выпадения в 1957 г. составила 35 лет [8]. Результаты определения плотности выпадения ^{137}Cs на озера сравнивались с аналогичной характеристикой загрязнения ^{137}Cs почв побережья водоемов

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Реконструкция отложения «чернобыльского» ^{137}Cs на поверхность озер и их побережье выполнена применительно к бессточным озерам западных районов России (Ленинградская, Брянская области) и озер из центрального района Финляндии [5, 6, 12]. Средние глубины H озер составили 3–12 м. Содержание «чернобыльского» ^{137}Cs на побережье водоемов (табл. 1) изменялось от 18.5 до 1780 кБк/м² [5, 6, 13]. Уровни «чернобыльского» ^{137}Cs в озерах северо-западного региона России на даты контроля составили 12–11000 Бк/м³. В работах [5, 6, 12] определения ^{137}Cs в воде и почвах проводились гамма-спектрометрическим методом с относительной ошибкой измерений не более 30%. В нашей работе из проб воды объемом до 100 л ^{137}Cs поглощался сорбентом АНФЕЖ, содержание радионуклида в сорбенте измеряли гамма-спектрометрическим методом при минимально детектируемой радиоактивности 0.2 Бк/проба [12, 14].

По сорбционно-диффузионной модели [10, 11] концентрации радионуклида в воде U_t при больших временах сорбции дном водоема определяются из выражения

$$U_t / U_0 = H / [K_d \sqrt{(\pi D t)}], \quad (1)$$

где U_0 и U_t – концентрации ^{137}Cs в воде, исходная и на время t соответственно, H – средняя глубина водоема, D – коэффициент диффузии ^{137}Cs в донных отложениях (ДО), K_d – коэффициент распределения ^{137}Cs в системе вода–ДО, t – время экспозиции.

По условию постоянства коэффициентов K_d и D на значительном отрезке времени (годы) и концентрации ^{137}Cs U_t на время t

$$U_0 = U_t K_d \sqrt{(\pi D t)} / H. \quad (2)$$

Таблица 1. Реконструкция выпадения ^{137}Cs на поверхность озер, по данным позднего мониторинга загрязненных ^{137}Cs вод

Экспозиция ^{137}Cs в озерах, лет	H , м	S , км ²	$V \times 10^3$, км ³	^{137}Cs в воде, Бк/л	Параметры		Выпадения, кБк/м ²				
					K_d , л/кг	D , см ² /с	расчет	опыт ^a			
^{137}Cs «чернобыльский» в озерах северо-запада России [6, 12]											
Горовалдайское	3	2.8	8.4	0.013	4000	1.0×10^{-7}	16.7	18.5			
29				0.012					1.0×10^{-7}	17.4	18.5
31	3	0.1	0.3	21.5	2000	0.2×10^{-7}	1870	1780			
Святое				16.0					0.2×10^{-7}	1650	1780
7				11.0					0.2×10^{-7}	1770	1780
9											
16											
^{137}Cs «чернобыльский» в озерах центральной Финляндии [5]											
Вехкаярви	12	27	320	0.325	3000	0.2×10^{-7}	61.8	58			
12				0.290					0.2×10^{-7}	69.0	58
16	5	0.9	4.5	0.260	2500	0.2×10^{-7}	52.2	51.4			
Сиикаярви											
16											
^{137}Cs выпадений 1957 г. на озера южного Урала [1, 8, 16]											
Бердениш	2	12	24	0.70	3000	0.2×10^{-7}	389	396			
35											
Урускуль	3	5	15	0.70	2500	0.2×10^{-7}	326	263			
35											

^a Плотность выпадения ^{137}Cs на почву побережья озер.

С определением концентрации U_0 на время t_0 находили запас радионуклида Q_0 в объеме вод V озера

$$Q_0 = U_0 V, \quad (3)$$

Таблица 2. Запас ^{137}Cs в воде озер, % от выпадения на поверхность водоема

Озера, координаты	Экспозиция ^{137}Cs в озерах, лет	Запас ^{137}Cs в объеме вод, %
^{137}Cs чернобыльской аварии, 1986 г. [5, 6, 12]		
Горовалдайское, 59°58' с.ш., 29°10' в.д.	30	0.18
Вехкаярви, 61°28' с.ш., 26°55' в.д.	12	6.6
Вехкаярви, 61°28' с.ш., 26°55' в.д.	16	5.9
Сиикаярви	16	2.5
Святое	7	3.7
Святое	9	2.8
Святое	16	1.9
^{137}Cs аварии 1957 г. [1, 8, 16].		
Бердениш, 55°47' с.ш., 60°52' в.д.	35	0.34
Урускуль, 55°50' с.ш., 60°55' в.д.	35	0.79

и плотность A выпадения ^{137}Cs на поверхность S водоема

$$A = Q_0/S. \quad (4)$$

При определении U_0 учитывается распад ^{137}Cs . Допускалось одинаковое выпадение ^{137}Cs на поверхность озера и почвы побережья.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

В 2015–2018 гг., по нашим данным, концентрация ^{137}Cs в воде озера Горовалдайское составила $11.6.0 \pm 1.2$ Бк/м³. По расчету плотность выпадения ^{137}Cs на озеро при экспозиции в водоеме 29 и 31 лет составила 16.7 и 17.4 кБк/м² (табл. 1). Согласно данным мониторинга почв [13], выпадения ^{137}Cs в районе расположения озера в 1986 г. не превышали 18.5 кБк/м². Согласованность между данными измерений ^{137}Cs на прибрежной поверхности и расчета выпадения ^{137}Cs является высокой. На даты наблюдений запас ^{137}Cs в объеме вод озера (табл. 2) составил ~0.18% от выпавшего на озеро в 1986 г. В прошлом озеро Горовалдайское являлось лагуной Финского залива. Его донные отложения представлены песком и обломочным материалом, наиболее заиленными в глубокой части водоема.

Более высокое выпадение ^{137}Cs в 1986 г. наблюдалось севернее Финского залива в центральном районе Финляндии [4, 5]. Для экспозиции ^{137}Cs в оз. Вехкаярви (Vehkäjärvi) 12 и 16 лет плотность выпадения ^{137}Cs на водоем по расчету составила 61.8 и 69.0 кБк/м³ (табл. 1). Эти значения близки к запасу ^{137}Cs в почвах побережья водоема, равно 58 кБк/м² [5]. С учетом межгодовых колебаний концентраций ^{137}Cs в воде озера и вариабельности содержания ^{137}Cs в почвах результат оценки выпадения ^{137}Cs можно признать удовлетворительным. Для близко расположенного оз. Сиикаярви (Siikajärvi) согласованность между расчетной (52.2) и опытной величиной выпадения ^{137}Cs 51.4 кБк/м² выше, чем для оз. Вехкаярви. Величина выпадения ^{137}Cs на озера Вехкаярви и Сиикаярви определялась корректно. В объеме вод этих глубоких озер находилось 6.6 и 5.9% от количества, выпавшего на поверхность в 1986 г. (табл. 2). По данным послойного распределения ^{137}Cs в колонках донного грунта этих озер нами определялся [14] коэффициент диффузии ^{137}Cs , составивший 3.7×10^{-8} и 3.0×10^{-8} см²/с. Опытное значение $D = 3.7 \times 10^{-8}$ см²/с для грунта оз. Вехкаярви нами привлекалось к оценке K_d ^{137}Cs в системе вода–дно. Концентрации ^{137}Cs в воде озера в 1986 и 1998 г. составили 4.90 и 0.320 Бк/л соответственно [5]. Из выражения (1) находили и рассчитывали K_d после подстановки в (5) концентрации ^{137}Cs в воде на время t_0 и t соответственно

$$K_d = U_0 H / [U_1 \sqrt{(\pi D t)}]. \quad (5)$$

$K_d = 2100$ л/кг в целом согласуется с значением K_d , принятым для характеристики сорбционной системы вода–дно оз. Вехкаярви (табл. 1). Вехкаярви и Сиикаярви являются олиготрофными озерами со средними глубинами 12 и 5 м, в глубоководной части которых находятся илы. Уровень ^{137}Cs в воде финских озер в ~3.5 раза меньше допустимого по российскому санитарному регламенту – 11 Бк/л [15].

Плотность выпадения ^{137}Cs в 1986 г. на неглубокое оз. Святое в Брянской области [6] составила 1780 кБк/м². Для озера применительно к экспозиции ^{137}Cs в водоеме 7, 9 и 16 лет определяли плотность выпадения ^{137}Cs . По расчету плотность выпадения ^{137}Cs на водоем в 1986 г. составила 1870, 1652 и 1774 при среднем 1765 ± 109 кБк/м², что согласуется с данными табл. 1. Разброс значений

плотности выпадения ^{137}Cs низкий. По-видимому, в интервале экспозиции ^{137}Cs в озере 7–16 лет параметры его миграции (K_d и D) не были подвержены значительным изменениям. Доминирующими грунтами дна озера являются заиленные песчаные отложения. На побережье озера присутствуют легкие по гранулометрическому составу песчаные и супесчаные почвы. Из-за низкой сорбционной способности грунтов дна запас ^{137}Cs в воде озера составил 1.9–3.7% от выпавшего на водоем в 1986 г. Воды озера при небольшой минерализации (<0.1‰) характеризовались повышенным содержанием элемента К и иона NH_4 : 12.4 и 0.35 мг/л соответственно [6]. Эти неизотопные носители ^{137}Cs способствовали снижению его сорбции грунтами дна. Поэтому относительный запас (%) ^{137}Cs в объеме вод оз. Святое выше, чем в оз. Горвалдайское.

В неглубоких эвтрофных озерах южного Урала Бердениш и Урускуль экспозиция ^{137}Cs к 1992 г. составила 35 лет [8]. Воды этих озер имеют повышенное содержание солей – 0.8 и 3.5‰ соответственно. Загрязнение озер ^{137}Cs произошло в 1957 г. [1]. На этот год оценки загрязнения вод и почв побережья ^{137}Cs получены расчетным путем [8] исходя из соотношения в выпадениях $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$. В [16] это соотношение принято ~75. Донные отложения озер на мелководье представлены песками с примесью илистых частиц, а в центральной части водоемов – сапропелевыми илами значительной мощности [17]. Через 35 лет после загрязнения водоемов концентрация ^{137}Cs в озерах [8] равнялась 700 Бк/м³. По данным реконструкции, плотность выпадения ^{137}Cs на оз. Бердениш и Урускуль оценена в 389 и 326 кБк/м³. Пересчет плотности выпадения ^{90}Sr на озера Бердениш и Урускуль в 1957 г. [1] на такую ^{137}Cs дает оценку загрязнения водоемов в 396 и 263 кБк/м² соответственно. Эти озера из-за низких осадков (~320–340 мм/год в аномальные по гидрологическим условиям годы испытывают значительные нарушения своего состояния: изменяются площадь и объем вод. Наблюдения в 1992 г. за уровнями ^{137}Cs в воде озер относятся к периоду, когда после продолжительного засушливого периода 70-х годов стабилизировались морфогидрологические характеристики водоемов. Запасы ^{137}Cs в водной массе озер Бердениш и Урускуль составили 0.34 и 0.79% от выпадения на озера в 1957 г. Несмотря на большую площадь оз. Бердениш и более

высокую плотность выпадения ^{137}Cs на водоем, запас ^{137}Cs в объеме вод оз. Урускуль выше (табл. 2). Различие между озерами по химическому составу вод повлияло на миграцию ^{137}Cs . В оз. Урускуль соленость вод в 4 раза выше, чем в оз. Бердениш. В воде оз. Урускуль сумма химических элементов (Na+K) составила 340, а оз. Бердениш – 110 мг/л. Высокое содержание Na и K в воде оз. Урускуль способствовало снижению сорбции ^{137}Cs грунтами дна и удержанию ^{137}Cs в водной фазе водоема. 35-летней экспозиции ^{137}Cs в озерах южного Урала оказалось достаточно, чтобы загрязнение вод ^{137}Cs снизилось до 0.7 Бк/л – величины в ~15 раз меньшей санитарного регламента.

Согласно табл. 2, запас ^{137}Cs в водной массе изучаемых озер изменялся от 0.18 до 6.6% при экспозиции в водоемах от 7 до 35 лет. Наибольшим запасом ^{137}Cs в объеме вод 5.9 и 6.6% характеризовались озера Вехьяярви и Сиикаярви при экспозиции в водоемах 12–16 лет. К ним близким по запасу и времени экспозиции ^{137}Cs является оз. Святое. Запас ^{137}Cs в объеме его вод (1993–2002 гг.) уменьшился с 3.7 до 1.9%. Концентрация ^{137}Cs в воде озера в 2002 г. еще превышала санитарный регламент, равный 11Бк/л.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Для 6 бессточных озер с экспозицией ^{137}Cs в водоемах 7–35 лет корректно реконструировалось выпадение ^{137}Cs на водоемы по опытным данным содержания в воде, полученным через годы после загрязнения озер. Озера различались минерализацией вод (0.1–3.5‰), глубинам водоемов и трофией. Реконструкция выпадения ^{137}Cs на озера выполнена с применением сорбционно-диффузионной модели поглощения радионуклида дном. При миграции ^{137}Cs в системе вода–дно озер коэффициенты K_d и D составили 2000–4000 л/кг и $(1.0–0.2) \times 10^{-7}$ см²/с соответственно. Различия в природных условиях и свойствах озер не повлияли на оценки выпадения ^{137}Cs на озера в диапазоне ~18–1700 кБк/м². При экспозиции ^{137}Cs 7–35 лет запас радионуклида в воде составил 0.2–6.6% от выпадения на поверхность водоемов. Выполненные исследования позволяют использовать сорбционно-диффузионную модель поглощения ^{137}Cs дном бессточных водоемов в реконструкции загрязнения и анализе радиологической ситуации, обусловленной выпадением ^{137}Cs на водоемы.

КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Итоги изучения и опыт ликвидации последствий аварийного загрязнения территории продуктами деления урана / Под ред. А.И. Бурназяна. М.: Энергоатомиздат, 1990.
2. Чернобыль: Радиоактивное загрязнение природных сред / Под ред. Ю.А. Израэля. Л.: Гидрометеоздат, 1990.
3. Крышев И.И., Рязанцев Е.П. Экологическая безопасность ядерно-энергетического комплекса России. М.: ИздАт, 2010.
4. AMAP Assessment 2009: Radioactivity in the Arctic. Oslo, 2010. P. 35.
5. Saxen R., Ilus E. // Sci. Total Environ. 2008. Vol. 394. P. 349.
6. Вакуловский С.М., Газиев Я.И., Колесникова Л.В., Петренко Г.И., Тertyшник Э.Г., Уваров А.Д. // Атом. энергия. 2006. Т. 100, № 1. С. 68.
7. Вакуловский С.М., Колесникова Л.В., Тertyшник Э.Г., Уваров А.Д. // Радиационная биология. Радиоэкология. 2009. Т. 49, № 2. С. 203.
8. Крышев И.И., Романов Г.Н., Исаева Л.Н., Крышев А.И., Холина Ю.Б. // Проблемы радиоэкологии и пограничных дисциплин. Заречный, 2001. № 4. С. 107.
9. Трапезников А.В., Юшков П.И., Николкин В.Н., Трапезникова В.Н., Чеботина М.Я., Екиджин А.А. // Экология. 2003. № 3. С. 184.
10. Прохоров В.М. // Атом. 1966. № 5. С. 4489.
11. Бакунов Н.А., Большиянов Д.Ю., Макаров А.С. // Радиохимия. 2014. Т. 56, № 3. С. 271.
12. Бакунов Н.А., Большиянов Д.Ю., Макаров А.С. // Радиохимия. 2017. Т. 59, № 5. С. 475.
13. Дубасов Ю.В., Евдокимов А.В., Каменцев А.А., Саульский А.В., Чеплагина О.В. // Радиохимия. 2011. Т. 53, № 6. С. 559.
14. Бакунов Н.А., Большиянов Д.Ю., Правкин С.А. // Радиохимия. 2019. Т. 61, № 1. С. 84.
15. СанПин 2.61.2523-09 Нормы радиационной безопасности (НРБ-99/2009). М.: Минздрав России, 2009.
16. Romanov G.N., Nikipelov B.V., Drozhko E.K. // Proc. Seminar on Comparative Assessment of the Environmental Impact of Radionuclides Released during Three Major Nuclear Accidents: Kyshtym, Windscale, Chernobyl. Communities, EUR 13574, Luxemburg, Oct. 1–5, 1990. P. 25.
17. Андреева М.А. Озера Среднего и Южного Урала. Челябинск: ЮУКИ, 1973.