УДК [556.1:577.34] (285.33)

## В. В. Беляев, Е. Н. Волкова

Институт гидробиологии НАН Украины, г. Киев

## МОДЕЛИРОВАНИЕ ПРОЦЕССОВ САМООЧИЩЕНИЯ ВОДНЫХ МАСС ОТ РАДИОАКТИВНЫХ ВЕЩЕСТВ

Определена скорость очищения водных масс от радионуклидов в наиболее загрязненных водоёмах Украины. В водоёмах зоны отчуждения содержание <sup>137</sup>Cs в водных массах уменьшалось с периодом полуочищения 9,6±1,4 года. Рассмотрен механизм замедления скорости очищения водных масс от радионуклидов. Показано, что через два года после поступления радионуклида в водоём происходит значительное замедление скорости очищения водных масс.

Ключевые слова: водоёмы, радионуклиды, скорость очищения, период полуочищения.

Прогнозная оценка качества природных вод в условиях антропогенной нагрузки, в частности при поступлении искусственных радионуклидов или радионуклидов техногенно усиленных источников природного происхождения в водоёмы, является одной из важнейших задач охраны окружающей среды. Загрязняющие вещества могут попадать в водоёмы с аэрозольными выпадениями, поступать в результате смыва с площади водосбора или со сбросными водами предприятий.

В настоящее время большинство моделей, описывающих распространение загрязняющих веществ в водных массах, базируются на предположении, что изменение концентрации загрязнителей в единицу времени пропорционально их концентрации и гидродинамическим характеристикам потока [1—5]. Во многих случаях невозможно учесть все факторы, влияющие на концентрацию загрязнителей в водных массах, поэтому при моделировании прибегают к обобщениям и упрощению описания процессов.

Одним из удачных примеров упрощения описания гидродинамических процессов является модель Ю. А. Егорова и С. В. Казакова [6—8], прогнозирующая динамику содержания радиоактивных веществ в воде, донных отложениях и биоте. В этой модели, как и большинстве других, параметр, описывающий самоочищение водных масс от радионуклидов, является величиной постоянной. При этом подразумевается, что данную величину можно применять для большинства пресноводных водоёмов. Однако скорость очищения водных масс Киевского водохранилища от <sup>137</sup>Cs за период 1987—1995 гг., рассчитанная нами по этой модели [9], оказалась гораздо меньше указанной авторами модели. Также имеются сведения о том, что с течением времени в водоёмах Восточно-Уральского радиоактивного следа наблюдалось замедление скорости самоочищения водных масс от радионуклидов [10]. Поэтому целью нашей работы было не только определение скорости самоочищения водных масс от радионуклидов, но и раскрытие механизмов ее замедления.

Работа выполнена при поддержке НАН Украины, договор № К-8-51/2013.

Методические подходы к определению скорости самоочищения водных масс от радионуклидов. В случае, когда можно пренебречь гидрологическими процессами, в том числе разбавлением водных масс водоёмов более чистыми водами притоков, самоочищение водных масс от радионуклидов описывается следующей формулой:

$$A(t) = A(0) \cdot \exp\left(\frac{-t \cdot \ln 2}{T_{1/2}}\right),\tag{1}$$

где A(t) — активность радионуклида в водных массах в момент времени t, Бк; A(0) — начальная активность радионуклида в водных массах, Бк; t — время нахождения радионуклида в водных массах, сут;  $T_{1/2}$  — период полуочищения водных масс от радионуклида, сут.

Для водотоков и водохранилищ формулу (1) можно интерпретировать следующим образом: A(0) и A(t) — активность радионуклидов, проходящих через верхнее и нижнее сечения (на входе и выходе водохранилища), t — время прохождения водных масс от верхнего до нижнего сечения. Тогда формула (1) принимает вид

$$A(t) = A(0) \cdot \exp\left(\frac{-\ln 2}{K \cdot T_{1/2}}\right),\tag{2}$$

где A(0), A(t) — активность радионуклидов притока и стока; K=365,25/t — коэффициент водообмена, год<sup>-1</sup>.

В [7] отмечается, что расчет скорости самоочищения водных масс водоёмов-охладителей АЭС от радионуклидов, выполненный по временным рядам концентрации радионуклидов в воде и расходу воды, отличается малой точностью в связи со значительной вариабельностью величины концентрации. Расчет, выполненный по формуле (2), где учитывается общая усредненная за определенные промежутки времени активность радионуклида, будет более точным.

Расчет параметров самоочищения водных масс водохранилищ Днепровского каскада. Используя данные о балансе <sup>90</sup>Sr и <sup>137</sup>Cs в Киевском водохранилище и в целом по Днепровскому каскаду, мы определили скорость очищения водных масс от указанных радионуклидов. Анализ данных [11, 12] показывает, что за период 1987—1995 гг. задерживалось 8—33 % поступившего в Киевское водохранилище <sup>90</sup>Sr, что соответствует периоду полуочищения от 82 до 508, в среднем 188±145 сут. В расположенных ниже водохранилищах (от Каневского до Каховского) аккумулировалось 21—67 % поступившего <sup>90</sup>Sr, что соответствует периоду полуочищения 830±290 сут, т. е. самоочищение водных масс этих водохранилищ от <sup>90</sup>Sr происходило гораздо медленнее, чем Киевского.

Таким образом, в очищении водных масс от <sup>90</sup>Sr наблюдаются две компоненты. Итерационными методами установлено, что парциальный вклад быстрой компоненты очищения водных масс от <sup>90</sup>Sr составляет 36 %, парциальный период полуочищения — 50 сут; для второй, более медленной компоненты — 64 % и 1200 сут, соответственно.

Водность рек изменяется с годами, соответственно изменяется коэффициент водообмена, т. е. время прохождения водных масс между разрезами. В Киевском водохранилище, в зависимости от водности года, коэффициент водообмена составляет 6,7—15,6 год<sup>-1</sup> [13]. Расчеты показывают, что с уменьшением водообмена в водоёме увеличивается доля <sup>90</sup>Sr, выводимая из водных масс с быстрой компонентой, следовательно, увеличивается и общая доля этого радионуклида, изымаемая из водных масс, что приводит к формальному уменьшению периода полуочищения водных масс, рассчитанного в однокомпонентном приближении

по формуле (2). Зависимость периода полуочищения водных масс от коэффициента водообмена наилучшим образом описывается линейной функцией (рис. 1).

Ранее, на основании теоретических расчетов, нами было показано [14], что вычисления в однокомпонентном приближении, проведенные по формуле (2), в случае многокомпонентных процессов дает величины периода полууменьшения, значительно отличающиеся от парциальных периодов. Таким образом, натурные данные хорошо согласуются с теоретическими расчетами.

Отметим, что <sup>90</sup>Sr мигрирует с водными массами в основном в растворенном виде и приведенные данные относятся к растворенным формам радионуклида.

В отличие от стронция, изотопы цезия мигрируют в водных массах в растворенной и сорбированной на взвесях формах примерно в равных долях. В Киевском водохранилище период полуочищения водных масс от сорбированного на взвесях <sup>137</sup>Cs составляет 27±5 сут, от растворенного — 111±39 сут. За время прохождения водных масс через Киевское водохранилище в донные отложения выводится 53—85 % поступившего с твердым стоком <sup>137</sup>Cs и 12—33 % растворенной формы радионуклида. Средний период полуочищения водных масс Киевского водохранилища от <sup>137</sup>Cs составляет 60±14 сут. В диапазоне водообмена, характерного для Киевского водохранилища, не обнаружено взаимосвязи скорости очищения водных масс от <sup>137</sup>Cs и коэффициента водообмена (на рис. 2 приведены формулы линейной регрессии).

Расчет скорости самоочищения водных масс загрязненных водоёмов зоны отчуждения. Для водохранилищ мы рассчитывали скорость

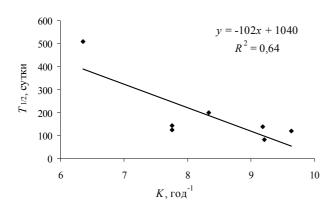


Рис. 1. Зависимость от коэффициента водообмена (K) периода полуочищения ( $T_{1/2}$ ) водных масс от  $^{90}$ Sr (Киевское водохранилище, 1987—1993 гг.); R — коэффициент корреляции

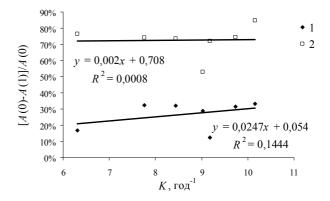


Рис. 2. Зависимость доли  $^{137}$ Cs, аккумулированной в водохранилище, в растворенной (I) и сорбированной на взвесях (2) формах от коэффициента водообмена (Киевское водохранилище, 1987—1993 гг.); A(0) — приток радионуклида в водохранилище; A(1) — сток радионуклида из водохранилища; R — коэффициент корреляции

очищения водных масс от радионуклидов на основании баланса радионуклидов в экосистеме. Для замкнутых водоёмов скорость самоочищения водных масс можно оценить по многолетним трендам усредненной активности радионуклидов в воде.

Вычислены периоды полуочищения водных масс от радионуклидов наиболее загрязненных водоёмов зоны отчуждения с использованием данных ГСНПП «Экоцентр» [15—17] за период 1997—2012 гг. Содержание <sup>137</sup>Сѕ в водных массах уменьшалось с периодом полуочищения 9,6±1,4 года (средневзвешенное значение 9,1±0,8 года) (табл. 1). Примерно с такой же скоростью уменьшалось содержание <sup>90</sup>Ѕг в водных массах озера Азбучин и Яновского затона, в других водоёмах достоверное снижение концентрации <sup>90</sup>Ѕг в водных массах не зарегистрировано. Эффективный период полуочищения водных масс от радионуклидов, учитывающий радиоактивный распад изотопов, будет примерно на 25 % меньше.

Моделирование самоочищения водных масс при разовом поступлением радионуклидов в водоём. Приведенная выше оценка скорости самоочищения от радионуклидов водохранилищ Днепровского каскада и водоёмов зоны отчуждения основана на фактическом материале о многолетнем содержании <sup>90</sup>Sr и <sup>137</sup>Cs в водных массах. Теперь, на основании теоретических предположений, определим скорость самоочищения водных масс в случае разового поступления радионуклидов в водоём. При расчетах были приняты следующие условия: 1) хроническое поступление и сток радионуклидов в водоёме отсутствуют; 2) самоочищение водных масс происходит только за счет сорбции радионуклидов верхним «активным» слоем ила и на взвесях; 3) скорость седиментации и коэффициенты накопления  $(K_{\rm H})$ , т. е. отношение удельной активности радионуклида в донных отложениях к его концентрации в воде, постоянны. Принятые условия позволяют проводить аналитические расчеты в интегральном виде. Радиоактивный распад и стационарный сток можно описать следующим выражением:

$$p_{\mathrm{s}\Phi} = p_0 + p_{\mathrm{\Phi}} + p_{\mathrm{c}} \,,$$

где  $p_{9\varphi}$  — эффективная скорость самоочищения,  $c^{-1}$ ;  $p_0$  — скорость самоочищения водных масс от радионуклидов за счет сорбции на взвесях и «активным» слоем донных отложениями,  $c^{-1}$ ;  $p_{\varphi}$  — скорость физического распада радионуклида,  $c^{-1}$ ;  $p_c$  — скорость стока радионуклида,  $c^{-1}$ .

Эффективная скорость самоочищения связана с эффективным периодом полуочищения  $(T_{3\phi})$  следующим выражением:

$$T_{\rm sp} = \ln 2/p_{\rm sp}$$
.

Таблица 1. Периоды полуочищения водных масс  $(T_{1/2})$  от радионуклидов некоторых водоёмов зоны отчуждения, лет

Водоём	<sup>90</sup> Sr	<sup>137</sup> Cs
оз. Азбучин	9,1±1,1	8,8±0,9
Водоём-охладитель ЧАЭС	*	8,9±0,5
Яновский затон	8,6±0,6	11,9±2,2
оз. Далекое		9,7±3,4
оз. Глубокое		8,5±0,4

<sup>\* «—» —</sup> значение не определено

В качестве параметров модели использовались литературные и полученные нами данные по Киевскому водохранилищу: 1) площадь илонакопления составляет 0,5 акватории, средняя скорость илонакопления равна 0,8 см/год, что соответствует 7 кг/м² при естественной влажности или 1,4 кг/м² сухой массы в год; 2) для песков коэффициент накопления  $^{90}$ Sr  $K_{\rm H}$ =300 л/кг,  $^{137}$ Cs —  $K_{\rm H}$ =1000 л/кг; 3) для илов и взвесей коэффициент накопления  $^{90}$ Sr  $K_{\rm H}$ =2000 л/кг,  $^{137}$ Cs —  $K_{\rm H}$ =100000 л/кг; 4) средняя глубина водоёма — 4 м. При таких параметрах накоплением радионуклидов в песках можно пренебречь, при этом ошибка расчетов для  $^{137}$ Cs не превысит 1 %, для  $^{90}$ Sr — 15 %.

Для других пресноводных водоёмов приведенные выше параметры могут сильно отличаться. Так, по нашим оценкам, в водоёме-охладителе Хмельницкой АЭС средняя по акватории скорость илонакопления (0,36 кг/м² в год) в два раза меньше, чем в Киевском водохранилище, а коэффициент накопления  $^{137}$ Сѕ взвесями  $K_{\rm H}$ =270000 л/кг, илами — не превышает 18000 л/кг. Для оз. Белого, расположенного на территории Владимирецкого района Ровенской области, характерны незначительные средние скорости илонакопления, а интегральная плотность загрязнения  $^{137}$ Сѕ песков выше, чем илов.

Для аналитического описания модели примем следующие обозначения:  $A_0$  — разово поступившая в водоём активность радионуклида на единицу акватории,  $\mathsf{Бк/m}^2$ ; V — объем воды на единицу площади,  $\mathsf{л/m}^2$ ;  $\Delta h$  — средняя по водоёму скорость илонакопления,  $\mathsf{кr}\cdot(\mathsf{m}^2\cdot\mathsf{год})^{-1}$ ; z — мощность «активного» слоя донных отложений,  $\mathsf{кr}/\mathsf{m}^2$ ;  $T_{1/2}$  — период полуочищения водных масс от радионуклидов, лет;  $A_{\mathsf{B}}(t)$ ,  $A_{\mathsf{J}}(t)$  — удельная активность воды и донных отложений, соответственно, в момент времени t,  $\mathsf{Бк/n}$  ( $\mathsf{Бк/кr}$ ). Равенство величин  $K_{\mathsf{H}}$  для взвесей и илов тождественно равенству удельной активности радионуклида на взвесях и верхнем «активном» слое илов.

Через год после поступления баланс радионуклидов описывается следующим уравнением:

$$A_0 = A_{\rm R}(t) \cdot V + A_{\rm II}(t) \cdot (\Delta h + z). \tag{3}$$

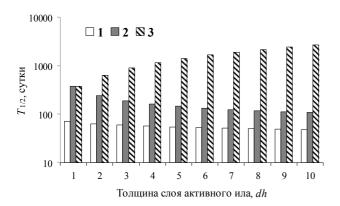


Рис. 3. Динамика скорости очищения водных масс от  $^{137}\mathrm{Cs}\ (dh\ (\equiv \Delta h)$  — скорость илонакопления): I — первый год; 2 — второй год; 3 — третий год

Введем безразмерную величину n, численно равную  $z/\Delta h$ ; тогда уравнение (3) можно записать следующим образом:

$$A_0 = A_{\rm B}(t) \cdot V + A_{\rm A}(t) \cdot \Delta h \cdot (1+n). \tag{4}$$

Используя подстановку  $A_{\rm д} = K_{\rm H} \cdot A_{\rm B}$ , исключаем из уравнения (4) удельную активность донных отложений (подстановка справедлива для верхнего участвующего в обмене слоя илов при t >> 1 сут):

$$A_0 = A_{\rm\scriptscriptstyle B}(t) \cdot V + A_{\rm\scriptscriptstyle B}(t) \cdot K_{\rm\scriptscriptstyle H} \cdot \Delta h \cdot (1+n), \tag{5}$$

или

$$A_0/V = A_{\rm\scriptscriptstyle B}(t) \cdot \left(1 + K_{\rm\scriptscriptstyle H} \cdot \Delta h \cdot (1+n)/V\right). \tag{6}$$

Используя уравнения (1) и (6), получаем значение  $T_{1/2}$  (лет) за первый год:

$$T_{1/2} = \ln 2 \cdot \left[ \ln \left( 1 + K_{\text{H}} \cdot \Delta h \cdot (1+n) / V \right) \right]^{-1}.$$
 (7)

Для последующих лет последовательно применяли описанную выше схему, т. е. уравнения (4)—(7) с учетом захоронения (исключения из расчета) активности нижнего слоя, равного  $\Delta h$ .

При выбранных параметрах, в зависимости от мощности «активного» слоя ила, за первый год после поступления <sup>137</sup>Сѕ в водоём его содержание в водных массах уменьшится в 35—195 раз, что соответствует периоду полуочищения водных масс от радионуклида 71—48 сут (рис. 3). За второй год активность водных масс уменьшится в 2—10 раз с периодом полуочищения 380—108 сут, в последующие годы период полуочищения будет

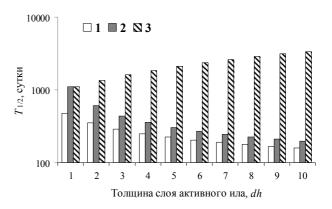


Рис. 4. Динамика скорости очищения водных масс от  ${}^{90}$ Sr  $(dh\ (\equiv \Delta h)$  — скорость илонакопления): I — первый год; 2 — второй год; 3 — третий год

составлять 380—2670 сут. Расчеты показывают, что через два года после поступления  $^{137}$ Сs в водоём, при любой фиксированной мощности слоя «активного» ила, периоды полуочищения водных масс не изменяются со временем. Таким образом, при мощности «активного» слоя  $10\Delta h$ , начиная с третьего года, активность  $^{137}$ Сs в водных массах будет уменьшаться в два раза за 7,3 года. Отметим, что если в первые два года с увеличением мощности «активного» слоя скорость выведения радионуклида из водных масс увеличивается, то в дальнейшем скорость очищения водных масс замедляется.

Очищение водных масс от  $^{90}$ Sr происходит медленнее, чем от  $^{137}$ Cs (рис. 4). При мощности «активного» слоя ила  $\Delta h$  период полуочищения водных масс составит 1,5—3 года. При мощности «активного» слоя  $10\Delta h$  период полуочищения водных масс от  $^{90}$ Sr за первый год составляет 160 сут, за второй — около 200 сут, за третий и последующие годы — около 9,2 года.

## Выводы

Результаты моделирования скорости самоочищения водных масс от радионуклидов за первый год после поступления хорошо согласуются с данными, полученными на примере каскада Днепровских водохранилищ, результаты последующих лет — со скоростью очищения водных масс от радионуклидов водоёмов зоны отчуждения. Учет захоронения радиоактивности в донных отложениях позволяет объяснить замедление процессов самоочищения водных масс от радионуклидов.

## Список использованной литературы

- 1. *Горев Л. М.* Основи моделювання в гідроекології: Підручник / Л. М. Горєв. К. : Либідь, 1996. 336 с.
- 2. *Лаврик В. І.* Методи математичного моделювання в екології / В. І. Лаврик. К. : Видавничий дім "КМ Академія", 2002. 203 с.

- 3. *Лутковский В. В.* "Мягкая" модель водного транспорта загрязнителей растворенных форм радионуклидов <sup>90</sup>Sr и <sup>137</sup>Cs с учетом нелинейного массообмена с дном / В. В. Лутковский, С. Н. Ягодинец // Наукові праці УкрНДГМІ. 2003. Вип. 251. С. 174—183.
- Мокін В. Б. Моделювання динаміки процесів біологічного самочищення вод з урахуванням їх послідовноодночасної взаємодії у водних системах / В. Б. Мокін // Гидробиол. журнал. — 2012. — Т. 48, № 2. — С. 105—113.
- 5. Радиогеоэкология водных объектов зоны влияния аварии на Чернобыльской АЭС. Прогнозы загрязнения вод, оценки рисков водопользования и эффективности водоохранных контрмер для водных экосистем зоны влияния Чернобыльской аварии / Под ред. О. В. Войцеховича. Т. 2. К.: Чернобыльинтеринформ, 1998. 277 с.
- 6. Егоров Ю. А. Принципы математического моделирования при прогнозировании и управлении жидкими радиоактивными сбросами АЭС / Ю. А. Егоров, С. В. Казаков; под общ. ред. Ю. А. Егорова // Радиационная безопасность и защита АЭС: Сб. ст. М.: Энергоатомиздат, 1985. Вып. 9. С. 160—168.
- 7. Егоров Ю. А. Прогнозирование накопления радионуклидов в основных компонентах экосистем водоёмов-охладителей АЭС и оценка допустимого сброса радионуклидов в водоём / Ю. А. Егоров, С. В. Казаков; под общ. ред. Ю. А. Егорова // Радиационная безопасность и защита АЭС: Сб. ст. М.: Энергоатомиздат, 1987. Вып. 12. С. 107—116.
- 8. Оценка эффекта самоочищения воды водоёмовохладителей АЭС от радиоактивных веществ / Ю. А. Егоров, С. В. Казаков, С. В. Леонов, Н. В. Стаурин; под общ. ред. Ю. А. Егорова // Радиационная безопасность и защита АЭС: Сб. ст. М.: Энергоатомиздат, 1985. Вып. 9. С. 204—209.
- Волкова О. М. Вплив гідрологічних факторів на формування радіонуклідного забруднення гідробіонтів / О. М. Волкова, В. В. Беляєв // Ядерна фізика та енергетика. 2009. Т. 10, № 1. С. 80—86.

- 10. Левина С. Г. Закономерности поведения <sup>90</sup>Sr и <sup>137</sup>Cs в озерных экосистемах восточно-уральского радиоактивного следа в отдаленные сроки после аварии: автореф. дис. ... доктора биол. наук: спец. 03.00.01-03 «Радиобиология» / С. Г. Левина. М., 2007. 47 с.
- 11. Моделирование и изучение механизмов переноса радиоактивных веществ из наземных экосистем в водные объекты зоны влияния Чернобыльской аварии: Заключительный отчет проекта экспериментального сотрудничества / Под ред. У. Сансоне и О. В. Войцеховича. Чернобыль: Чорнобильтехінформ, 1996. 195 с.
- 12. Радиогеоэкология водных объектов зоны влияния аварии на ЧАЭС / Под ред. О. В. Войцеховича. Т. 1. К.: Чернобыльинтеринформ, 1997. 308 с.
- 13. *Тимченко В. М.* Экологическая гидрология водоёмов Украины / В. М. Тимченко. К. : Наук. думка, 2006. 384 с.
- 14. *Беляев В. В.* Роль временного фактора в определении скорости выведения  $^{90}$ Sr и  $^{137}$ Cs у пресноводных рыб / В. В. Беляев, Е. Н. Волкова // Проблемы биогеохимии и геохимической экологии. 2012. № 2 (19). С. 51—56.
- 15.25 років Чорнобильської катастрофи. Безпека майбутнього: Національна доповідь України. К.: КІМ, 2011. 356 с.
- 16. Радіаційний стан на території зони відчуження у 2010 році / С. І. Кірєєв, Б. О. Годун, Д. О. Вишневський та ін. // Бюлетень екологічного стану зони відчуження та зони безумовного (обов'язкового) відселення. 2011. № 1 (37). С. 37—62.
- 17. Техногенні радіонукліди у прісноводних екосистемах / М. І. Кузьменко, Д. І. Гудков, С. І. Кірєєв та ін.; за ред. акад. НАН України В. Д. Романенка К. : Наук. думка, 2010. 263 с.

Получено 21.11.2013