

Способ расчета концентрации радиоактивной примеси в воде и донном слое непроточных водоемов

Ф. Я. Ровинский

Рассматриваются некоторые закономерности миграции и перераспределения радиоактивной примеси в непроточных водоемах при их однократном загрязнении. Захват растворенной примеси донным слоем происходит вследствие процессов ионообменной и молекулярной адсорбции. На этом основании выведены формулы, описывающие изменение концентрации радиоактивных изотопов в зависимости от времени в воде и донном слое. Полученные формулы позволяют рассчитывать содержание примеси в компонентах непроточных водоемов.

В работе [1] показано, что радиоактивные изотопы распределяются между основными компонентами водоемов (водой, донными отложениями, биомассой) так, что количеством радиоактивных изотопов в биомассе можно пренебречь. Следовательно, непроточный водоем можно рассматривать как двухкомпонентную систему.

Для прогноза уровней загрязнения воды и донных отложений рассмотрим водоем с объемом воды $V \text{ м}^3$ и площадью донного слоя $S \text{ м}^2$ при небольшой средней глубине, не превышающей 4—5 м. Для такого водоема, имеющего форму плоской котловины, характерно интенсивное турбулентное и конвективное перемешивание водной массы, которое приводит к взаимодействию всей массы воды с контактирующим донным слоем [2].

Допустим, что происходит однократное внесение радиоактивной примеси в количестве A кюри первоначально только в водную массу водоема так, что это количество мгновенно распределяется по всему объему V . Обозначим через $Q(t)$ количество (запас) радиоактивной примеси в воде, а через $P(t)$ — количество (запас) радиоактивной примеси, поглощенной донным слоем, изменяющиеся с течением времени t . Тогда в качестве начальных можно принять следующие условия:

$$t=0; \quad Q_0 = A; \quad P_0 = 0,$$

где Q_0 и P_0 — начальный запас примеси в воде и донном слое соответственно. Так как внесенная в водоем примесь в дальнейшем будет только перераспределяться между водой и донным слоем, то, не учитывая пока радиоактивный распад, получим

$$A = Q(t) + P(t). \quad (1)$$

Захват растворенной примеси донными отложениями происходит вследствие процессов ионообменной и молекулярной адсорбции, поэтому изменение запаса примеси в донном слое (рис. 1) в общем может быть записано следующим уравнением:

$$\frac{dP(t)}{dt} = \mu_1 Q(t) - \mu_2 P(t), \quad (2)$$

где μ_1 и μ_2 — константы, определяющие скорости сорбции и десорбции.

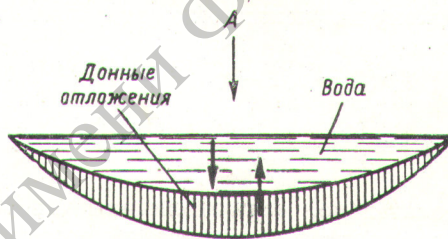


Рис. 1. Схема миграции изотопов в непроточном водоеме.

Решение уравнения (2) с учетом начальных условий и равенства (1) имеет вид:

$$P(t) = \frac{A}{1 + \frac{\mu_2}{\mu_1}} (1 - e^{-\mu_2(1 + \frac{\mu_1}{\mu_2})t}); \quad (3)$$

$$Q(t) = \frac{A}{1 + \frac{\mu_2}{\mu_1}} \left(\frac{\mu_2}{\mu_1} + e^{-\mu_2(1 + \frac{\mu_1}{\mu_2})t} \right). \quad (4)$$

Обозначим через $p(t)$ и $q(t)$ соответственно средние значения поверхностной плотности радиоактивной примеси в донном слое и ее объемной концентрации в воде:

$$p(t) = \frac{P(t)}{S} = \frac{A}{S} \cdot \frac{1}{1 + \frac{\mu_2}{\mu_1}} (1 - e^{-\mu_2(1 + \frac{\mu_1}{\mu_2})t}); \quad (5)$$

$$q(t) = \frac{Q(t)}{V} = \frac{A}{V} \cdot \frac{1}{1 + \frac{\mu_2}{\mu_1}} \left(\frac{\mu_2}{\mu_1} + e^{-\mu_2(1 + \frac{\mu_1}{\mu_2})t} \right). \quad (6)$$

Найдя предельные значения этих величин при $t \rightarrow \infty$, заключаем, что с течением вре-

Таблица 1

Гидрохимический состав озерных вод

Водоём	Состав, мг/л								
	Na ⁺¹	K ⁺¹	Mg ⁺²	Ca ⁺²	Cl ⁻¹	HCO ₃ ⁻¹	SO ₄ ⁻²	SiO ₂	Сумма
Первый	105,3	9,3	56,4	25	57,1	354	125	4,7	759
Второй	943	45,6	110,5	8,5	866	1282	127	3	3493

мени в водоеме устанавливается равновесие примеси между водой и донным слоем:

$$\mu_1 V \bar{q} = \mu_2 S \bar{p}, \quad (7)$$

где \bar{q} и \bar{p} — равновесные концентрации соответственно в воде и донном слое.

Если использовать равенства (1) и (7) и внести поправку на распад, окончательно получим:

$$p(t) = \bar{p} (1 - e^{-\mu_2 \frac{A}{A-pS} t}) e^{-\lambda t}; \quad (8)$$

$$q(t) = \left(\bar{q} + \frac{A - \bar{q}V}{V} e^{-\mu_2 \frac{A}{\bar{q}V} t} \right) e^{-\lambda t}. \quad (9)$$

Следовательно, если величины A , V и S известны, прогноз концентраций примеси в воде и донном слое сводится к определению \bar{q} , \bar{p} и μ_2 (или μ_1).

Допустим, что даны q_1 и q_2 — результаты измерений объемной концентрации в моменты времени t_1 и t_2 . Тогда, исключая μ_2 , получим

$$\frac{(q_2 - \bar{q})V}{A - \bar{q}V} = \left(\frac{(q_1 - \bar{q})V}{A - \bar{q}V} \right)^{t_2/t_1}. \quad (10)$$

Удобно выразить \bar{q} в явном виде, если $\frac{t_2}{t_1} = 2$. В этом случае:

$$\bar{q} = \frac{Aq_2 - Vq_1^2}{A + Vq_2 - 2Vq_1}; \quad (11)$$

$$\mu_2 = \frac{V(Aq_2 - Vq_1^2)}{At_1(A + Vq_2 - 2Vq_1)} \ln \frac{A - \bar{q}V}{(q_1 - \bar{q})V}. \quad (12)$$

На практике, конечно, целесообразно иметь не два измерения $q(t)$, а больше, причем моменты измерений должны подбираться в виде членов геометрической прогрессии со знаменателем, равным двум.

Таким образом, рассмотренная схема перераспределения радиоактивной примеси в непроточном водоеме дает возможность рассчитать содержание радиоактивной примеси в компонентах водоема на любой момент времени после однократного загрязнения.

Применим полученные формулы к случаю искусственного загрязнения двух непроточных водоемов смесью изотопов Sr⁹⁰, Ru¹⁰⁶ и Ce¹⁴⁴.

Экспериментальными водоемами являлись озеро евтрофного типа площадью 11,3 км² (первый водоем) и 4,5 км² (второй водоем). Дно озер плоское, блюдцеобразной формы. Они имеют мощные иловые отложения, полностью выравнивающие первоначальный рельеф дна. Берега частично зарастают тростником; распространена погруженная растительность — уруть, роголистник, рдест. В озерах имеются хорошие условия для развития биомассы: высокие летние температуры, достаточное содержание кислорода и органических веществ в воде, хорошая освещенность толщи воды и т. д. Гидрохимический состав озерных вод приводится в табл. 1.

В нашем распоряжении были результаты измерений концентрации изотопов в воде в течение пяти лет после внесения их в водоемы, причем в течение первых трех лет определялась суммарная активность пробы воды, а в течение следующих двух лет проводились радиохимические определения Sr⁹⁰. Результаты этих экспериментальных наблюдений представлены на рис. 2.

Кроме этого, экспериментально были найдены константы A , V , S , \bar{q} , \bar{p} (кроме μ_2) для расчетов по выведенным формулам. Константа μ_2 Sr⁹⁰ определялась по формуле (9), в которую подставляли значения $q(t)$ и t , найденные по кривым 1 рис. 2. При этом предполагалось, что начиная с третьего года после внесения радиоактивных изотопов в водоемы вклад Ru¹⁰⁶ и Ce¹⁴⁴ в суммарную активность воды невелик по сравнению с вкладом Sr⁹⁰ вследствие их радиоактивного распада и адсорбции донным слоем. Специальные анализы содержания указанных изотопов в воде подтвердили это предположение.

Константа μ_2 Sr⁹⁰ для первого и второго водоемов была найдена равной $1,9 \cdot 10^{-4}$ и $3,9 \cdot 10^{-4}$ сутки⁻¹ соответственно.

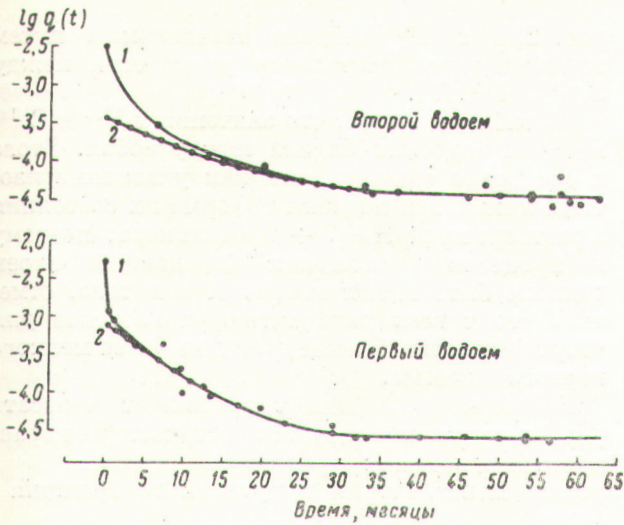
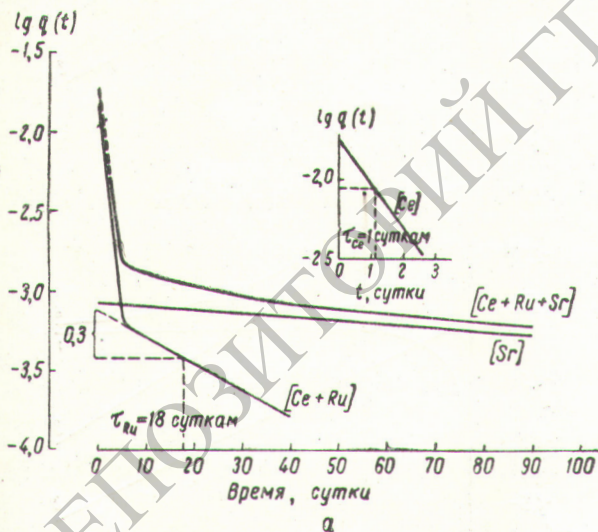


Рис. 2. Сопоставление фактического (●) изменения (1) концентрации изотопов в воде и расчетной (○) кривой (2) изменения концентрации Sr⁹⁰ в воде экспериментальных водоемов.

Далее, на основании имеющихся констант была рассчитана концентрация Sr⁹⁰ в течение всего промежутка времени. Сопоставление фактического изменения концентраций изотопов в воде с расчетными кривыми $q(t)$ Sr⁹⁰ приведено на рис. 2.



простым соотношением

$$\mu_2 = 0,693 \frac{\bar{q}V}{A\tau}$$

Значение τ Ru¹⁰⁶ и Ce¹⁴⁴ можно найти для первого и второго водоемов общеизвестным методом графического анализа сложной кривой. Точки на кривых для моментов времени, достаточно близких к t_0 , представляют собой концентрацию трех изотопов, т. е. [Ce + Ru + Sr]. Если вычесть расчетные кривые 2 из кривых 1 (см. рис. 2), то полученные разностные кривые будут соответствовать изменению концентрации двух компонентов в воде [Ce + Ru] (рис. 3, а, б). Прямолинейный участок кривых [Ce + Ru] соответствует изменению [Ru] со временем за счет миграции (так как здесь была введена поправка на распад Ru¹⁰⁶), и по наклону этого участка кривой можно найти значение τ Ru¹⁰⁶.

Далее, если вычесть прямую [Ru] из [Ce + Ru], то можно выделить прямую, соответствующую изменению концентрации Ce¹⁴⁴ в воде за счет миграции; по наклону этой прямой нетрудно найти τ Ce¹⁴⁴ (см. рис. 3, а, б).

Период полувыведения является количественной характеристикой процесса миграции радиоактивных изотопов из воды в донный слой непроточных водоемов.

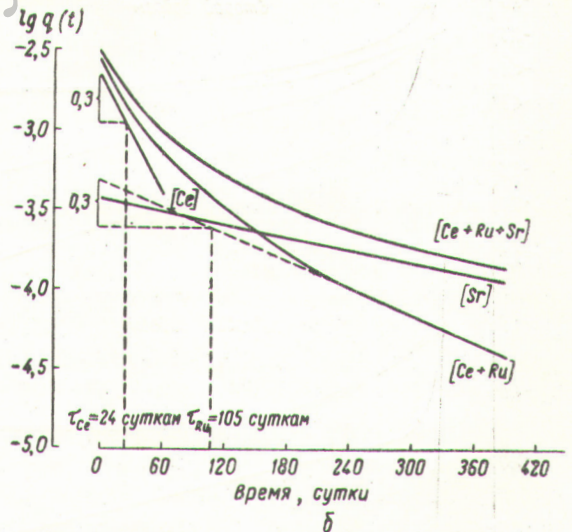


Рис. 3. Определение периода полувыведения Ru¹⁰⁶ и Ce¹⁴⁴ в первом (а) и во втором (б) водоемах.

Константа μ_2 данного изотопа связана с периодом полувыведения его из воды (τ)*

* Периодом полувыведения изотопа из воды непроточного водоема мы называем промежуток времени, в течение которого концентрация изотопа в воде уменьшается вдвое только за счет миграции изотопа в водоеме.

Приведенная формула (9) состоит из двух частей: некоторой постоянной \bar{q} и переменной

$$\frac{A - \bar{q}V}{V} e^{-\mu_2 \frac{A}{\bar{q}V} t} = \frac{A - \bar{q}V}{V} e^{-0,693t/\tau}$$

Очевидно, что τ характеризует скорость, с которой $q(t)$ стремится к \bar{q} . Чем τ больше, тем медленнее устанавливается в водоеме равновесие между водой и донным слоем, и, наоборот, чем меньше τ , тем равновесное состояние в водоеме наступает быстрее. Следовательно, τ характеризует время установления равновесия, но не определяет равновесных концентраций изотопов в водоеме.

Таблица 2
Период полувыведения τ нескольких изотопов для непроточных водоемов

Водоем	Средняя глубина, м	τ , сутки			
		Y ⁹⁰	Ce ¹⁴⁴	Ru ¹⁰⁶	Sr ⁹⁰
Первый . . .	1,0	1,1	1,0	18	116
Второй . . .	1,9	10,9	24	105	180

В табл. 2 даны значения τ четырех изотопов, причем τ Ce¹⁴⁴, Ru¹⁰⁶ и Sr⁹⁰ определены по экспериментальным данным, приведенным на

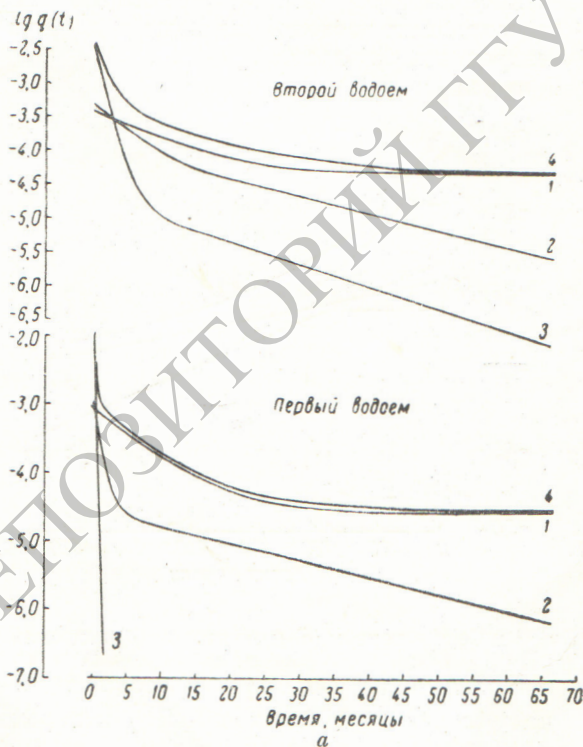


рис. 2, а τ Y⁹⁰ найдено независимым путем по сдвигу радиоактивного равновесия между Sr⁹⁰ и Y⁹⁰ [3].

Из таблицы видно, что значения τ Y⁹⁰ и Ce¹⁴⁴ в обоих водоемах близки между собой. Этого и следовало ожидать, так как указанные изотопы химически подобны и форма их состояния в растворе при pH = 7 ÷ 9 одинакова, поэтому и процессы поглощения их донным слоем должны быть идентичными. Кроме того, отметим, что τ всех радиоактивных изотопов для второго водоема больше, чем для более мелкого первого водоема.

Найденные значения τ позволяют написать ряд изотопов по скорости установления равновесия в водоеме: редкие земли, иттрий > рутений > стронций.

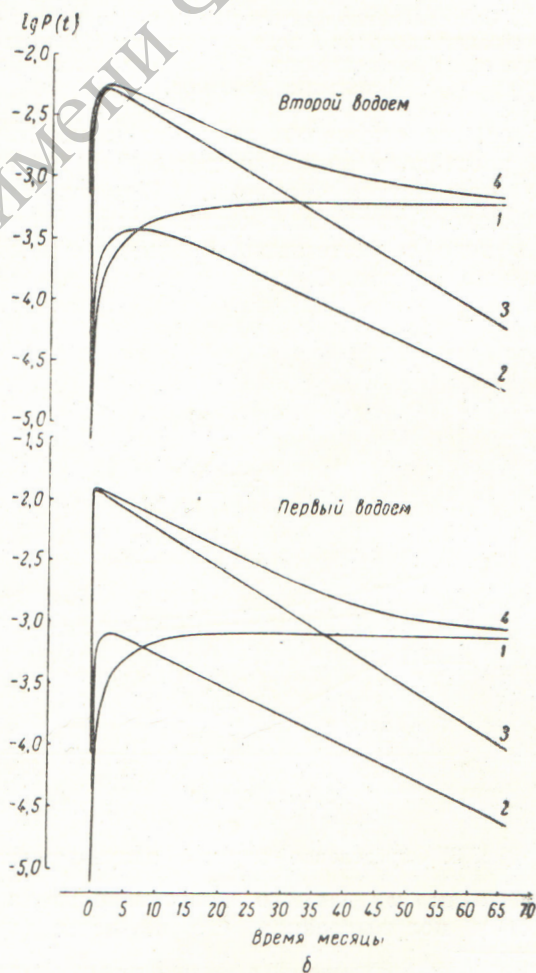


Рис. 4. Расчетные кривые изменения концентрации радиоактивных изотопов в воде (а) и донном слое (б) экспериментальных водоемов:

1 — Sr⁹⁰; 2 — Ru¹⁰⁶; 3 — Ce¹⁴⁴; 4 — сумма трех изотопов.

Таким образом, на основании экспериментальных данных удалось получить константы, необходимые для расчетов $q(t)$ и $p(t)$ Sr^{90} , Ru^{106} и Ce^{144} в двух водоемах, по формулам, выведенным при аппроксимации непроточного водоема двухкомпонентной системой. Результаты расчетов показаны на рис. 4, а и б.

Изменения суммарной концентрации Sr^{90} , Ru^{106} и Ce^{144} в воде (кривые 4 на рис. 4, а) достаточно хорошо соответствуют действительному ходу концентрации радиоактивных изотопов, полученному по измерениям общей β -активности проб (см. рис. 2).

На кривых $p(t)$ (см. рис. 4, б) имеется характерный максимум, наличие которого может быть показано и аналитически.

Таким образом, расчеты концентрации радиоактивных примесей в воде и донном слое непроточных водоемов достаточно хорошо подтверждаются тем фактическим материалом, который имеется в нашем распоряжении. Использование полученных формул позволило найти некоторые дополнительные характеристики поведения Sr^{90} , Ru^{106} и Ce^{144} в непроточных водоемах.

Поступила в Редакцию 17/V 1964 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. А. Л. Агре, В. И. Карогадин. «Мед. радиология», № 1, 67 (1960).
2. Б. Б. Богословский. Озероведение. М., Изд-во МГУ, 1960, стр. 84.
3. Г. А. Середя, Ф. Я. Ровинский. «Атомная энергия», 14, 326 (1963).

ПРАВИЛА ДЕПОНИРОВАНИЯ (ХРАНЕНИЯ) СТАТЕЙ

Депонирование статей, представляющих интерес для узкого круга специалистов, осуществляется или по просьбе авторов, или по решению редакционной коллегии журнала.

В журнале будут печататься подробные аннотации депонируемых статей, а полные тексты будут 5 лет храниться в редакции и высылаться читателям по их требованию наложенным платежом. Объем публикуемой аннотации не должен превышать 0,1 авторского листа (около 2 стр. машинописного текста), а максимальный объем депонируемого текста — 1 лист. По желанию авторов в аннотацию можно включать рисунок, таблицу, основные формулы и т. п. в пределах ее общего объема.

Срок опубликования аннотации не более 3—4 месяцев со дня поступления статьи в редакцию (если депонирование осуществляется по просьбе авторов) или

со дня получения согласия авторов на депонирование (если оно осуществляется по решению редакционной коллегии).

Депонированные статьи являются научными публикациями и учитываются при защите диссертаций.

Статьи, представляемые для депонирования, должны быть годными для фотографического воспроизведения — иметь четкий текст, формулы, таблицы и т. д.; рисунки должны быть изготовлены на кальке, вклеены в текст и снабжены подписями.

Цена одного экземпляра депонируемого текста 40 коп. При оформлении заказа на тексты депонированных статей необходимо указывать регистрационный номер статьи, который напечатан в конце аннотации.

Заказы направлять в редакцию журнала по адресу: Москва, Центр, ул. Кирова, 18.