

УДК 504.455+551.510.7

## РАДИОАКТИВНЫЕ НУКЛИДЫ КАК ПОКАЗАТЕЛИ ВРЕМЕНИ ВОДООБМЕНА ЛАДОЖСКОГО ОЗЕРА

© 2003 г. А. В. Блинов, С. Г. Каретников, В. Е. Лазарев, М. А. Науменко, Э. Нольте

Представлено академиком К.Я. Кондратьевым 18.03.2003 г.

Поступило 31.03.2003 г.

Процессы формирования качества воды в водоемах, перенос и трансформация поступающих в озеро органических и неорганических веществ тесно связаны со временем замены воды в озере и на водосборе. Традиционно для характеристики времени полного водообмена озер принимают условную величину, равную отношению среднего объема озера на среднегодовой сток из него. Для определения независимым способом времени полного обновления воды озера и интегрального времени добегания воды с его водосбора можно использовать измерения концентраций радиоактивных нуклидов космогенного и антропогенного происхождения. Два указанных подхода были применены для определения времени водообмена крупнейшего в Европе Ладожского озера.

**Измерения концентрации  $^{36}\text{Cl}$  в ладожской воде.** Использование  $^{36}\text{Cl}$  (период полураспада 300 тыс. лет) в изучении водных систем до настоящего времени ограничивалось датированием грунтовых вод [1] и исследованием динамики Великих американских озер [2]. Участие в комплексной программе измерения  $^{36}\text{Cl}$  в озерах мира позволило нам провести уникальные измерения в Ладожском озере и других крупных озерах Северо-Запада России. Образцы воды были отобраны во время двух экспедиционных рейсов научно-исследовательского судна “Талан” Института озероведения РАН: в центральной части Ладожского озера с глубины 20 м (14.07.1999) и в северной части с глубины 200 м (21.09.2000). После фильтрации и концентрирования образцы были доставлены в Технический университет Мюнхена. Измерение содержания изотопа  $^{36}\text{Cl}$  проведено в два этапа. Методом жидкостной хроматографии измерена концентрация стабильного хлора Cl в исходной озерной воде. В хлоре, выделенном из во-

ды в форме хлористого серебра, отношение  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  измерено методом ускорительной масс-спектрометрии [3]. Произведение концентрации стабильного хлора в воде на отношение  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$  с поправкой на фоновый образец дает концентрацию  $^{36}\text{Cl}$ , приведенную в табл. 1.

**Измерения концентрации  $^{22}\text{Na}$  в ладожской воде.** Измерение радиоактивного  $^{22}\text{Na}$  (период полураспада 2.6 года) для оценки характерного времени обмена в водных экосистемах, и в частности, в Ладожском озере, впервые предложено в [4]. Измерение концентрации  $^{22}\text{Na}$ , выполненное около 30 лет назад [5], повторено нами для современных природных условий. Вода была отобрана 29.08.2001 в северной части Ладожского озера (61°24' N, 30°29' E) с глубины 150 м. Измеренная пламенным фотометром FLAPN04 концентрация натрия в воде составила 5.6 мг · л<sup>-1</sup>. Выделение натрия из полного объема воды (300 л) для последующего измерения радиоактивности проведено на ионообменной колонке с DOWEX 50WX8. Масса высушенного порошка составила 11.24 г, из которых примерно 4 г – соединения натрия, а остальные – преимущественно соединения кальция. Эффективность извлечения натрия контролировали измерением его концентрации в смывах и порошке, она составила 95%. В качестве детектора для  $\gamma$ -спектрометрии использовали поверхностно-барьерный полупроводниковый германиевый детектор цилиндрической формы размерами  $\varnothing 85$  мм на 100 мм. Спектрометрический блок (энергетическое разрешение 7.3% по пику  $^{137}\text{Cs}$ ), снабженный свинцовой защитой от внешнего излучения, располагался в специальной низкофоновой камере под землей. Активность стандарта  $^{22}\text{Na}$  составляла 59.9 Бк, а фоновый образец был изготовлен из порошка древней каменной соли равной массы. Результаты измерений приведены в табл. 2, для сравнения даны результаты [5].

Уравнение баланса для концентрации нуклида C в озере может быть записано в форме

$$\frac{d(CV)}{dt} = -\frac{(CV)}{\tau_d} - CF_{out} + S \sum_i Q_i, \quad (1)$$

Санкт-Петербургский государственный  
политехнический университет

Институт озероведения  
Российской Академии наук, Санкт-Петербург  
Мюнхенский технический университет, ФРГ

где  $\tau_d$  – время жизни радиоактивного нуклида,  $F_{out}$  – сток из озера,  $S$  – площадь водосбора,  $Q_i$  – мощность отдельного атмосферного источника. На основе многолетних мониторинговых измерений концентрации ионов хлора и натрия в Ладожском озере [6] условия их обмена можно считать стационарными. Тогда уравнение (1) вырождается в алгебраическое равенство

$$\left(\frac{1}{\tau_0} + \frac{1}{\tau_d}\right)C = \frac{S}{V} \sum_i Q_i, \quad (2)$$

где  $\tau_0$  – время полной смены воды в озере.

Для  $^{36}\text{Cl}$  радиоактивным распадом на исследуемых временах можно пренебречь. До антропогенного воздействия доминирующим источником образования радиоактивного хлора являлись ядерные реакции космических лучей в атмосфере. Скорость образования зависит от геомагнитной широты, определяющей степень экранирования атмосферы от космических лучей. С учетом транспортной модели [7] поток космогенного  $^{36}\text{Cl}$  на территории водосбора Ладожского озера составляет  $Q_1 = 36 \text{ ат} \cdot \text{м}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ .

Интегральный по времени поток (флюенс) бомбового  $^{36}\text{Cl}$  может быть определен из нормировки на измерения  $^{36}\text{Cl}$  во льду Гренландии и в горных ледниках соответствующего возраста [8]. Его величина составляет  $\Phi_2 = 1.4 \cdot 10^{12} \text{ ат} \cdot \text{м}^{-2}$ .

Оценка количества  $^{36}\text{Cl}$ , попавшего в Ладожское озеро в результате аварии на Чернобыльской АЭС, имеет большую неопределенность. Для ряда западноевропейских озер можно провести его нормировку по  $^{137}\text{Cs}$ , измеренному от того же источника. Наилучшее соответствие достигается в предположении, что  $1 \text{ кБк} \cdot \text{м}^{-2} \text{ }^{137}\text{Cs}$  соответствует  $9 \cdot 10^{10} \text{ ат} \cdot \text{м}^{-2} \text{ }^{36}\text{Cl}$ . К сожалению, детальные данные о выпадениях  $^{137}\text{Cs}$  в бассейне Ладожского озера также отсутствуют. В среднем они составили  $2\text{--}4 \text{ кБк} \cdot \text{м}^{-2}$ , но местами достигали  $20 \text{ кБк} \cdot \text{м}^{-2}$  [9]. Полагая средний поток цезия на территории водосбора равным  $5 \text{ кБк} \cdot \text{м}^{-2}$ , получим интегральный поток  $^{36}\text{Cl}$ , равный  $\Phi_3 = 4.5 \cdot 10^{11} \text{ ат} \cdot \text{м}^{-2}$ . Стационарное значение концентрации  $^{36}\text{Cl}$  в озере, таким образом, определяется из (2) как

$$C = \frac{Q_1 S}{V} \tau_0 + \frac{\Phi_2 S}{V} \exp\left(-\frac{t_2}{\tau_0}\right) + \frac{\Phi_3 S}{V} \exp\left(-\frac{t_3}{\tau_0}\right), \quad (3)$$

где  $t_2$  и  $t_3$  – время от инъекции соответственно бомбового и Чернобыльского  $^{36}\text{Cl}$  до момента взятия пробы. Поскольку атмосферная вода в Ладожское озеро поступает с временной задержкой, его необходимо рассматривать как динамическую систему, связанную с озерами Онежское и

**Таблица 1.** Результаты измерений  $^{36}\text{Cl}$  в образцах воды Ладожского озера

| Параметр  | Образец 1999 г. | Образец 2000 г. |
|---|-----------------|-----------------|
| Объем воды, л   | 3.0             | 2.75            |
| Концентрация хлора, $\text{мг} \cdot \text{л}^{-1}$                     | $6.12 \pm 0.10$ | $5.90 \pm 0.11$ |
| Отношение $^{36}\text{Cl}/^{35}\text{Cl} + ^{37}\text{Cl}$ , $10^{-13}$ | $7.45 \pm 0.81$ | $6.53 \pm 0.78$ |
| Концентрация $^{36}\text{Cl}$ , $10^7 \text{ атом} \cdot \text{л}^{-1}$ | $7.76 \pm 0.86$ | $6.56 \pm 0.79$ |
| Активность $^{36}\text{Cl}$ , $10^{-6} \text{ Бк} \cdot \text{л}^{-1}$  | $8.21 \pm 0.91$ | $6.94 \pm 0.84$ |

**Таблица 2.** Результаты измерения концентрации  $^{22}\text{Na}$  в воде Ладожского озера

| Параметр  | Образец 1972 г. [5] | Образец 2001 г. |
|---|---------------------|-----------------|
| Объем воды, л   | 1000                | 300             |
| Концентрация натрия, $\text{мг} \cdot \text{л}^{-1}$                      | 4.3                 | $5.6 \pm 0.1$   |
| Активность $^{22}\text{Na}$ , $10^{-2} \text{ Бк} \cdot \text{г Na}^{-1}$ | $3.5 \pm 0.3$       | $2.10 \pm 0.27$ |
| Концентрация $^{22}\text{Na}$ , $10^4 \text{ ат} \cdot \text{л}^{-1}$     | $1.5 \pm 0.14$      | $1.48 \pm 0.18$ |
| Активность $^{22}\text{Na}$ , $10^{-4} \text{ Бк} \cdot \text{л}^{-1}$    | $1.1 \pm 0.1$       | $1.24 \pm 0.15$ |

Ильмень. С использованием измеренных в них концентраций  $^{36}\text{Cl}$  и с учетом их гидрологических характеристик [10, 11], проведено сопоставление эффективности означенных источников  $^{36}\text{Cl}$ , а также сравнение с измеренными значениями. Определяющий вклад – более 70% – в современную концентрацию  $^{36}\text{Cl}$  в северных озерах вносит инъекция от Чернобыля.

Особый интерес представляет определение времени полной смены воды Ладожского озера, характеризующее в том числе и скорость его очистки от возможных загрязнений. Выражение (3) дает для  $\tau_0$  наиболее вероятную величину 12.3 года, очень близкую к определенной гидрологически и равной 11.4 года [6]. Этот факт указывает на равномерное распределение  $^{36}\text{Cl}$  по водной массе благодаря интенсивному внутреннему водообмену. Ладожское озеро относится к димиктическим озерам, и дважды в год в нем происходит выравнивание по вертикали от поверхности до дна не только температуры воды, но и концентрации растворенных веществ в результате свободной конвекции. Форма котловины озера способствует интенсивному горизонтальному обмену. Вместе с тем путем измерения концентрации в воде радио-

активного  $^{36}\text{Cl}$  появляется возможность мониторинга величины притока воды в озеро.

Инжектированный в окружающую среду от глобальных ядерных испытаний  $^{22}\text{Na}$  уже распался, а его локальные источники, связанные с ядерной энергетикой, включая загрязнения от Чернобыльской аварии, пренебрежимо малы. Таким образом, нынешним доминирующим источником его образования являются ядерные реакции космических лучей в атмосфере, и уравнение (2) для  $^{22}\text{Na}$  принимает вид

$$\left(\frac{1}{\tau_0} + \frac{1}{\tau_d}\right)C = \frac{Q}{V}S(\tau_w),$$

где  $\tau_w$  – характерное время добегания воды с водосбора Ладожского озера. Распад выпавших из атмосферы ядер  $^{22}\text{Na}$  на пути к озеру для величины измеренной активности будет эквивалентен уменьшению площади водосбора. Задаваясь экспоненциальным распределением времени добегания воды и используя время обмена  $\tau_0$  из результатов по  $^{36}\text{Cl}$ , можно получить для  $\tau_w$  значения в диапазоне от 0 до 2.4 лет в пределах неточности знания используемого в вычислениях потока космогенного  $^{22}\text{Na}$ . Экспериментальное определение  $\tau_w$  как обобщенной характеристики может быть применено для типизации озер по видам водосбора.

Таким образом, проведенные исследования на примере Ладожского озера демонстрируют эффективность применения радиоактивных нуклидов для оценки характерного времени обменных процессов. Время водообмена, т.е. обновления воды Ладожского озера, составляет по  $^{36}\text{Cl}$  12.3 года. Среднее время добегания воды с водосбора Ладожского озера по натрию не превышает

2.4 года. Неопределенности этих величин связаны не с экспериментальными погрешностями, а с неопределенностью знания распределения  $^{36}\text{Cl}$  от Чернобыльской аварии и атмосферной скорости образования  $^{22}\text{Na}$ .

Авторы благодарят Федеральную целевую программу “Интеграция” за финансовую поддержку работы (экспедиционный грант С0150, 1999–2000 гг.).

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Nolte E., Krauthan P., Heim U., Korschinek G. // Nucl. Instrum. and Meth. 1990. V. B52. P. 477–482.
2. Milton J.C.D., Andrews H.R., Chant L.A. et al. // Nucl. Instrum. and Meth. 1994. V. B92. P. 440–444.
3. Faestermann H., Kato K., Korschinek G. et al. // Nucl. Instrum. and Meth. 1990. V. B50. P. 275–279.
4. Флейшман Д.Г., Каневский Ю.П., Гримченко З.Г. // Геохимия. 1975. № 2. С. 280–290.
5. Флейшман Д.Г. Щелочные элементы и их радиоактивные изотопы в водных системах. Л.: Наука, 1982. 160 с.
6. Ладожское озеро – прошлое, настоящее, будущее / Под ред. В.А. Румянцева, В.Г. Драбковой. СПб.: Наука, 2002. 327 с.
7. Huggle D., Blinov A., Stan-Sion C. et al. // Planet. and Space Sci. 1996. V. 44. № 2. P. 147–151.
8. Synal H.-A., Beer J., Bonani H.J. et al. // Nucl. Instrum. and Meth. 1990. V. B52. P. 483–487.
9. Атлас загрязнения Европы цезием после Чернобыльской аварии / Под ред. Ю. А. Израэля. Эдинбург, 1998. 132 с.
10. Науменко М.А. // ДАН. 2000. Т. 370. № 3. С. 393–396.
11. Природные ресурсы больших озер СССР и вероятные их изменения / Под ред. О.А. Алекина. Л.: Наука, 1984. 286 с.