

Федеральное государственное автономное  
образовательное учреждение  
высшего образования  
«СИБИРСКИЙ ФЕДЕРАЛЬНЫЙ УНИВЕРСИТЕТ»  
Институт фундаментальной биологии и биотехнологии  
Кафедра биофизики

УТВЕРЖДАЮ  
Заведующий кафедрой

\_\_\_\_\_ B. A. Кратасюк

подпись

«\_\_\_\_\_» \_\_\_\_\_ 2019 г.

## БАКАЛАВРСКАЯ РАБОТА

03.03.02 Физика

### Ретроспективный анализ поступления техногенных радионуклидов в донные отложения реки Енисей

Научный  
руководитель \_\_\_\_\_ с.н.с., канд. биол. наук, доц. Т. А. Зотина  
подпись, дата

Научный  
консультант \_\_\_\_\_ с.н.с., канд. биол. наук Д. В. Дементьев  
подпись, дата

Выпускник \_\_\_\_\_ В. И. Вахрушев  
подпись, дата

Красноярск 2019

## **РЕФЕРАТ**

Выпускная квалификационная работа по теме «Ретроспективный анализ поступления техногенных радионуклидов в донные отложения реки Енисей» содержит 55 страниц текстового документа, 15 использованных источников, 16 листов графического материала.

**РЕТРОСПЕКТИВНЫЙ АНАЛИЗ, РАДИОИЗОТОПНОЕ ДАТИРОВАНИЕ, ДОННОЕ ОТЛОЖЕНИЕ, КЕРН, РАДИОНУКЛИД, ЕНИСЕЙ, РЕКА, РАДИОЭКОЛОГИЯ, ВЕРТИКАЛЬНОЕ РАСПРЕДЕЛЕНИЕ, ХРОНОЛОГИЯ, ГАММА-СПЕКТРОМЕТРИЯ, ЦЕЗИЙ.**

Объект исследования – керны донных отложений реки Енисей.

Цель исследования: ретроспективный анализ поступлений радионуклидов в керны донных отложений реки Енисей.

Задачи исследования: 1) ознакомиться с радиометрическими методами определения радионуклидов и их датирования в донных отложениях; 2) провести  $\gamma$ -спектрометрический анализ содержания радионуклидов в отобранных кернах донных отложений поймы реки Енисей; 3) выполнить ретроспективный анализ полученных результатов для составления хронологии поступления радионуклидов в керны донных отложений.

В результате данной работы проведён  $\gamma$ -спектрометрический анализ содержания радионуклидов в отобранных кернах донных отложений поймы р. Енисей в зоне влияния Горно-химического комбината. Построены вертикальные распределения природного  $^{210}\text{Pb}$  и техногенных  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{60}\text{Co}$  радиоизотопов, на основании чего проведено радиоизотопное датирование и ретроспективный анализ поступлений данных радиоизотопов в донные осадки реки Енисей в 30-км зоне Горно-химического комбината.

Выполненная работа позволяет оценить поступление техногенных радионуклидов в экосистему реки Енисей в прошлом, осуществлять мониторинг поступлений радионуклидов в реку в настоящее время и использоваться для прогноза радиоэкологической обстановки.

## СОДЕРЖАНИЕ

РЕФЕРАТ .....	2
СОДЕРЖАНИЕ .....	30
ВВЕДЕНИЕ.....	4
1. ЛИТЕРАТУРНЫЙ ОБЗОР .....	6
1.1. Определение радионуклидов в слоях донных отложений.....	6
1.2. Методы датирования донных отложений .....	10
1.3. Математические модели для радиометрического определения скоростей седиментации и датирования поступления радионуклидов в донные отложения.....	13
1.4. Практическое применение моделей и построение графических хронологий поступления радионуклидов в донные отложения .....	18
1.4.1. Датирование поступления радионуклидов в донные отложения вокруг шведского побережья.....	18
1.4.2. Датирование поступления радионуклидов в донные отложения швейцарских озёр по $^{210}\text{Pb}$ : результаты и проблемы.....	20
1.4.3. Датирование поступления радионуклидов в донные отложения аргентинских озёр по $^{210}\text{Pb}$ .....	22
1.4.4. Датирование поступления радионуклидов на основе $^{210}\text{Pb}$ в донные отложения водно-болотных угодий на примере устья Жёлтой реки (Китай).....	25
1.4.5. Датирование поступления радионуклидов в донные отложения из динамических осадочных систем африканских эстуариев вдоль экваториальной Атлантики с помощью модели TERESA .....	26
2 МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ.....	30
2.1. Объекты исследования и пробоподготовка.....	30
2.2. Гамма-спектрометрический метод определения содержания радионуклидов в слоях кернов .....	30
2.3. Технические параметры рабочей установки .....	35
2.4. Метод расчёта скоростей осадконакопления для проведения ретроспективного анализа .....	37
3 РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ .....	Error! Bookmark not defined.
3.1. Анализ вертикального распределения радионуклидов в кернах донных отложений .....	39
3.2. Определение скоростей осадконакопления радионуклидов в керны донных отложений реки Енисей.....	45
3.3. Ретроспективный анализ поступлений радионуклидов в донные отложения по результатам радиоизотопного датирования .....	47
ЗАКЛЮЧЕНИЕ .....	51
Список сокращений .....	53
Список использованных источников .....	54

## **ВВЕДЕНИЕ**

Ионизирующее излучение от природных источников космического и земного происхождения, действующее на поверхности Земли, всегда присутствовало и являлось ключевым фактором в эволюции живых организмов. Однако высокий радиационный фон пагубно действует на живую природу.

В последнее столетие, помимо наличия уже имевшегося естественного радиационного фона, человек, благодаря техническому прогрессу, привнёс на Землю техногенный радиационный фон, который с каждым десятилетием только увеличивался. Примером могут служить ядерные бомбардировки США Хиросимы и Нагасаки в 1945 году, череда испытаний ядерного оружия, проводившихся с 1949 по 1962 год, а также аварии на Чернобыльской АЭС в 1986 году и на АЭС Фукусима-1 в 2011 году.

Последствия произошедших техногенных событий, спустя время, проявились во многих частях планеты в виде повышенного содержания различных искусственных радионуклидов, рассеянных в биосфере Земли. Выпадая с осадками, техногенные радионуклиды повышали естественный радиационный фон.

Накопление донных отложений (ДО) является естественным процессом для водных систем, однако интенсивное антропогенное воздействие человека может приводить к ускорению естественных процессов заилиения, в результате чего теряется возможность использования водоёмов в хозяйственных и рекреационных целях, происходит деградация экосистем водных объектов, вплоть до их полного исчезновения.

Актуальность данной работы состоит в том, что, благодаря радиометрическому исследованию донного профиля, становится возможным составить хронологию событий радиоактивного загрязнения рек, а также составить карты радиоактивных загрязнений и спрогнозировать радиоэкологическую обстановку на основании определения пиков наибольших концентраций радионуклидов в слоях ДО конкретной местности.

Предметом исследования является участок реки Енисей — одной из самых длинных и полноводных рек мира, в 30-километровой зоне влияния сбросов Горно-химического комбината (ГХК) «Росатома», расположенного в г. Железногорске (Красноярский край). Долгое время Енисей подвергался техногенному загрязнению, в том числе и радиоактивному, в результате продолжительной работы промышленных предприятий. Деятельность ГХК является основным источником радиоактивного загрязнения реки. Комбинат интенсивно проводил сбросы в Енисей начиная с 1958 года до 2010 года, пока интенсивность сбросов не уменьшилась, сначала в 1991-92 гг. после остановки двух прямоточных реакторов и затем в апреле 2010 г. благодаря остановке последнего ядерного реактора по производству оружейного плутония. В настоящий момент сбросы радиоактивных веществ в пойму реки Енисей продолжаются, в результате деятельности радиохимического завода и производства топлива для реакторов на быстрых нейтронах. Уровень радиоактивных сбросов в Енисей существенно снизился, однако в ДО реки за время работы ГХК накоплена значительная активность техногенных радионуклидов, которая может оказывать негативное влияние на окружающую среду и человека.

В данной работе объектом исследования стали керны ДО поймы реки Енисей в 30-километровой зоне влияния ГХК.

Основной целью работы является ретроспективный анализ поступлений радионуклидов в керны ДО р. Енисей.

Для достижения цели были поставлены следующие задачи:

- 1) Ознакомиться с радиометрическими методами определения радионуклидов и их датирования в донных отложениях;
- 2) Провести  $\gamma$ -спектрометрический анализ содержания радионуклидов в отобранных кернах ДО поймы р. Енисей в зоне влияния ГХК;
- 3) Выполнить ретроспективный анализ полученных результатов для составления хронологии поступления радионуклидов в керны ДО.

# 1. ЛИТЕРАТУРНЫЙ ОБЗОР

## 1.1. Определение радионуклидов в слоях донных отложений

Для определения активностей радионуклидов в слоях донных отложений необходимо знать о характере излучения образца.  $\alpha$ -,  $\beta$ - и  $\gamma$ -излучающие радионуклиды требуют разных подходов и методов обнаружения с помощью специальных спектрометров и радиометров.

### *Альфа-спектрометрия*

Альфа-излучение представляет собой поток положительно заряженных частиц (ядер атомов гелия), энергия которых на длине пути около 10 см в воздухе и долей миллиметров в породах тратится на ионизацию и нагревание окружающей среды, поэтому проникающая способность у них очень мала.  $\alpha$ -Распад – это испускание радиоактивными ядрами  $\alpha$ -частицы, состоящей из 2 протонов и 2 нейтронов. Скорость  $\alpha$ -частицы при вылете из ядра от 12 до 20000 км/с. Так при  $\alpha$ -распаде  $^{238}\text{U}$  образуется  $^{234}\text{Th}$ , при  $\alpha$ -распаде  $^{230}\text{Th}$  –  $^{226}\text{Ra}$ , при  $\alpha$ -распаде  $^{226}\text{Ra}$  –  $^{222}\text{Rn}$  и так далее до стабильного изотопа  $^{206}\text{Pb}$  (Рис. 1).

Альфа-спектрометрия используется с целью определения концентрации  $\alpha$ -радиоактивных изотопов таких элементов как Ru, U, Ra и др. в образцах. Использование  $\alpha$ -спектрометрии является сложной задачей из-за специфики  $\alpha$ -частиц. При прохождении через вещество тяжёлые положительно заряженные частицы быстро теряют свою энергию, в результате чего регистрация детектором  $\alpha$ -излучения затруднительна, поэтому перед тем, как проводить  $\alpha$ -спектрометрию, необходимо предварительно провести радиохимическое выделение  $\alpha$ -радиоактивных изотопов из исследуемого образца, например, с помощью ионообменных смол. Для измерения  $\alpha$ -излучения используются ячеистые сцинтилляционные системы, пропорциональные газопроточныесчётчики и сцинтилляционные жидкостные счётчики в совокупности с предусилителем, усилителем,

источником высокого напряжения, счетными и записывающими устройствами [1].

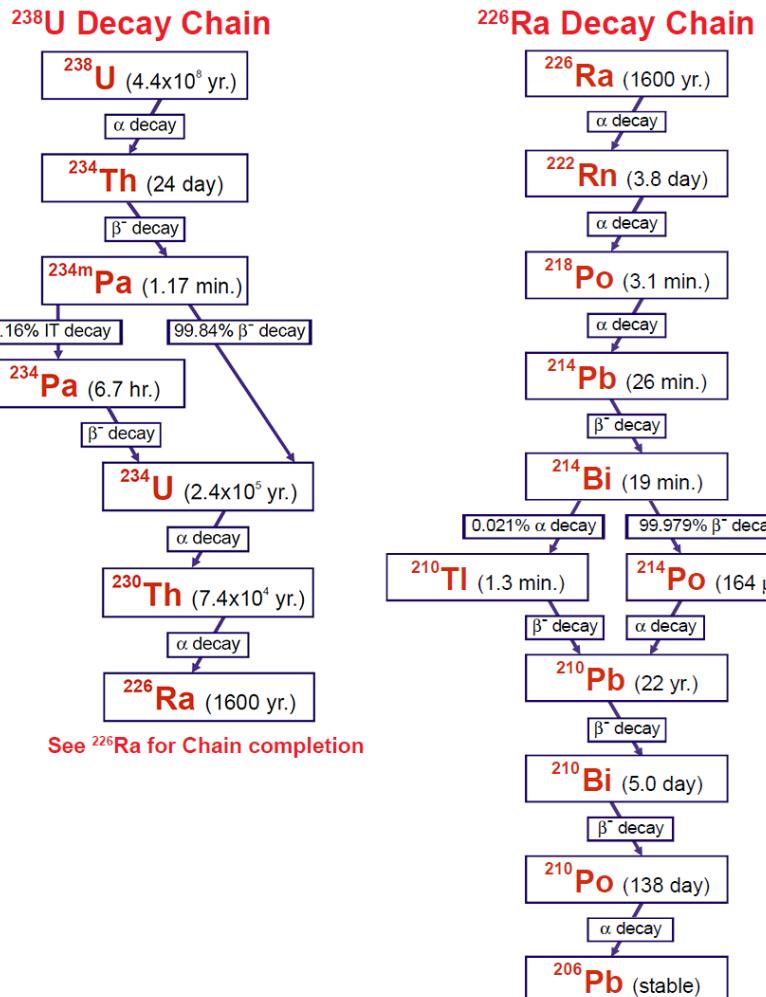


Рисунок 1 – Радиоактивный ряд распада <sup>238</sup>U

### Бета-радиометрия

Бета-излучение представляет собой поток электронов ( $\beta^-$ -излучение, или, чаще всего, просто  $\beta$ -излучение) или позитронов ( $\beta^+$ -излучение), возникающих при радиоактивном распаде. В настоящее время известно около 900  $\beta$ -радиоактивных изотопов. Масса  $\beta$ -частиц в несколько десятков тысяч раз меньше массы  $\alpha$ -частиц. В зависимости от природы источника  $\beta$ -излучения скорость этих частиц может лежать в пределах 0,30-0,99 скорости света. Максимальное значение энергии для  $\beta$ -излучения равно 4 МэВ.  $\beta$ -частицы вызывают в основном ионизацию окружающей среды, т.е.

образование положительных ионов и свободных электронов вследствие вырывания электронов из внешних оболочек атомов.

Полевые методы с использованием  $\beta$ -радиометрии предназначены для определения примерных зон рассеяния радиоактивных элементов в поверхностном слое образцов. Измерение  $\beta$ -излучения производится ионизационными методами, однако чаще всего его измеряют импульсным методом на лабораторных радиометрах. В лабораторных условиях  $\beta$ -радиометрия является основным методом установления содержания урана в урановых рудах. Радиоактивность пробы образца по  $\beta$ -лучам сравнивается с радиоактивностью эталона при одинаковых условиях измерения.

Бета-радиометрический анализ удобен при выполнении анализов проб известного нуклидного состава, при проведении радиоэкологического мониторинга, радиационного обследования территорий и т.д. В то же время использование  $\beta$ -радиометрии для расшифровки радионуклидного состава является трудной задачей в прикладной спектрометрии ионизирующих излучений. Трудности в основном заключаются в сложности идентификации непрерывных спектров  $\beta$ -излучений. Сложности в расшифровке аппаратурных  $\beta$ -спектров возникают и в связи с одновременной регистрацией рентгеновского,  $\gamma$ -излучения и комптоновских электронов. Кроме этого, имеет место эффект обратного рассеивания электронов, а при регистрации энергии электронов выше 1 МэВ – эффект тормозного излучения [2].

### *Гамма-спектрометрия*

Гамма-излучение представляет собой поток электромагнитного излучения высокой частоты. Хоть они рассеиваются и поглощаются окружающей средой, но благодаря своей электрической нейтральности отличаются высокой проникающей способностью (сотни метров в воздухе и до метра в горных породах). Количество и концентрация долгоживущих

радионуклидов ( $\text{U}$ ,  $\text{Th}$ ,  $^{40}\text{K}$ ) в горной породе определяются их массой и процентным содержанием (или эквивалентным содержанием урана).

Существуют различные приборы с чувствительностью к  $\gamma$ -излучению. Выбор оптимального устройства зависит от условий проведения  $\gamma$ -съемки и требований, предъявляемых к ее результатам. Основная масса оборудования производит измерения мощности экспозиционной дозы  $\gamma$ -излучения от 0,1 до 10000 мкР/ч в энергетическом диапазоне от 50 кэВ до 3 МэВ. Лабораторная  $\gamma$ -спектрометрия применяется для установления содержания в пробах  $\gamma$ -излучающих радиоактивных изотопов. Измерения  $\gamma$ -излучения проб производятся импульсным методом (импульсный спектрометрический нейтронный  $\gamma$ -каротаж основан на регистрации  $\gamma$ -излучения неупругого рассеяния и радиационного захвата нейtronов, генерируемых высокочастотным излучателем быстрых нейtronов), полупроводниковым или со сцинтилляционными счетчиками. Чтобы зарегистрировать  $\gamma$ -излучение, оно должно взаимодействовать с детектором так, чтобы передать всю или часть энергии  $\gamma$ -кванта. Основой всех систем регистрации  $\gamma$ -излучения является сбор электрического заряда, пропорционального переданной детектору энергии, чтобы получить импульс напряжения, амплитуда которого пропорциональна энергии  $\gamma$ -излучения. В спектрометрах  $\gamma$ -излучения эти импульсы сортируются с помощью соответствующей электроники, такой, как одноканальный или многоканальный анализатор. С помощью многоканальных анализаторов информация о  $\gamma$ -излучении, имеющем различные значения энергии, может быть выведена в графическом виде на дисплей или печать, чтобы получить энергетический спектр  $\gamma$ -излучения, который представляет подробную информацию для анализируемого материала. Применение этих счетчиков дает возможность производить измерения  $\gamma$ -квантов с высоким уровнем чувствительности. Далее следует сравнение активности исследуемой пробы с активностью эталона, измеренных в одинаковых геометрических условиях [3].

## 1.2. Методы датирования донных отложений

Датирование при помощи радионуклидов является единственным способом определения абсолютного возраста седиментов. Это связано с тем, что радионуклиды обладают специфическим времененным параметром – периодом полураспада. Основой всех методов датирования является закон радиоактивного распада:

$$N(t) = N_0 \cdot e^{-\lambda t}, \quad (1)$$

где  $N(t)$  – число не распавшихся ядер через время  $t$ , а  $N_0$  – это число ядер в момент времени  $t = 0$ . В седиментационных исследованиях это уравнение преобразуется путём замены показателя времени на параметр глубины. Предполагается непрерывность седиментации, отсутствие ресуспензирования и миграции радионуклидов после того, как они оказались в седименте. Если скорость седиментации  $V$  постоянна и нет перемешивания, тогда  $t$  связано с глубиной седимента  $x$  как

$$x = V \cdot t, \quad (2)$$

и, следовательно,

$$N(x) = N_0 \cdot e^{-\lambda \frac{x}{V}}. \quad (3)$$

Таким образом, измеряя  $N(x)$ , можно определить  $V$ . Этот простой метод успешно применяется для различных природных объектов, хотя удовлетворяет ограниченному классу природных событий, происходящих в седиментах. Тем не менее, применение метода даёт толчок развитию способов анализа полученных данных, выражающихся в создании разного рода моделей.

### *Метод датирования донных отложений по неравновесному $^{210}Pb$*

Данный метод датирования основан на нарушении равновесия в ряду распада  $^{238}U$  (рис. 1). Равновесие нарушается за счёт эманирования  $^{222}Rn$ , который превращается в атмосфере в  $^{210}Pb$ , попадающий с глобальными выпадениями в водоёмы и накапливающийся в донных отложениях. До

попадания в седименты  $^{210}\text{Pb}$  находится в воде 1-2 года. Такой  $^{210}\text{Pb}$ , не находящийся в радиоактивном равновесии с  $^{226}\text{Ra}$  называется неравновесным. Он определяется как разность между активностями  $^{210}\text{Pb}$  и  $^{226}\text{Ra}$ , измеренными для каждого слоя ДО [4, 5].

Для определения количества неравновесного  $^{210}\text{Pb}$  необходимо измерять в слоях концентрации  $^{210}\text{Pb}$  и  $^{214}\text{Pb}$  ( $^{210}\text{Bi}$ ). Поскольку все радионуклиды в ряду распада  $^{226}\text{Ra} \rightarrow ^{210}\text{Pb}$  находятся в состоянии векового равновесия, то  $A_1 = A_2 = A_3 = \dots = A_i$ , где  $A$  – измеренные активности изотопов, находящихся в вековом равновесии. Отсюда следует, что

$$A(^{210}\text{Pb}_{\text{нр}}) = A(^{210}\text{Pb}) - A(^{214}\text{Pb}). \quad (4)$$

Распадаясь,  $^{210}\text{Pb}$  испускает  $\gamma$ -кванты с энергией 46,5 кэВ с вероятностью испускания 4,5%. Если их регистрации не мешает рентгеновское излучение  $^{152}\text{Eu}$  (46,6 кэВ), то возможно  $\gamma$ -спектрометрическое определение активности  $^{210}\text{Pb}$ , требующее длительных измерений (до 3-х дней на образец).

Определение  $^{210}\text{Pb}$  детектированием  $\beta$ -частиц также является непростой задачей, так как энергия  $\beta$ -излучения невелика и равна 16,5 и 63,0 кэВ (вероятность испускания 82 и 18%). Поэтому  $^{210}\text{Pb}$  в сedimentах определяется косвенно: либо по  $\beta$ -излучению дочернего изотопа  $^{210}\text{Bi}$ , либо по  $\alpha$ -частицам последующего изотопа  $^{210}\text{Po}$  [6].

### *Метод датирования донных отложений по соотношениям техногенных радиоизотопов*

В окружающей среде встречаются родоначальники радиоактивных семейств —  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  и  $^{232}\text{Th}$ . Элементы, входящие в радиоактивные ряды, различны по своим химическим свойствам и обладают различным геохимическим поведением. А соотношения активностей членов естественных рядов может служить источником полезной информации. В определении скоростей седиментации используются, к примеру, такие изотопы как  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{154}\text{Eu}$  и  $^{241}\text{Pu}$ . В основе метода расчёта скоростей

осадконакопления по отношениям изотопов лежит предположение о том, что используемые соотношения изотопов являются постоянными и пребывают в вековом равновесии, но в результате различных периодов полураспада изотопов и процессов, протекающих в окружающей среде, со временем их соотношение изменяется, что позволяет определить скорость седиментации осадков в керне. А также, например, применяется соотношение  $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$  для оценки скоростей океанической седиментации, определения возраста морских биогенных карбонатов и железомарганцевых конкреций. А использование отношения активностей радионуклидов  $^{230}\text{Th}/^{231}\text{Pa}$ , обладающих сходными химическими свойствами, но различными периодами полураспада, позволяет существенно повысить надежность определения возраста осадков [7].

Применение искусственных радионуклидов в качестве трассеров возможно в том случае, когда известен источник радионуклида и изменение его интенсивности со временем. Возможности существенно расширяются, когда имеется пара изотопов с различными периодами полураспада. Например, изменение соотношения  $^{137}\text{Cs}/^{134}\text{Cs}$  по мере удаления от источника позволяет определить скорости горизонтального перемещения водных масс, содержащих радионуклиды, сбрасываемые в водоём. Поступление искусственных радионуклидов в окружающую среду в 1986 г. в результате аварии на ЧАЭС позволяет датировать ДО, в частности, например, в Черном и Балтийском морях. Другими характерными временными реперными точками являются начало ядерных испытаний и максимум их интенсивности (череда испытаний ядерного оружия, проводившихся с 1949 по 1962 год). Помимо изотопов Cs в качестве трассеров используются и другие радионуклиды искусственного происхождения. Продукты деления, которые возникали в результате атмосферных ядерных взрывов небольшой мощности, применяются в качестве трассеров для изучения тропосферного переноса. Наиболее перспективным представляется исследование изотопных

соотношений Ru и других трансурановых элементов, представляющих собой хорошие маркеры [7].

### 1.3. Математические модели для радиометрического определения скоростей седиментации и датирования поступления радионуклидов в донные отложения

Для оценки скорости осадконакопления и датирования ДО, исходя из вертикальных распределений радионуклида, необходимы достоверные математические модели по отношению к моделируемой системе, позволяющие определять необходимые свойства системы при разных вариантах её структуры и разных внешних воздействиях на неё. Рассмотрены модели постоянного потока радионуклида, а именно: 1) модель постоянного потока / постоянной скорости седиментации (CFCS), 2) постоянной начальной концентрации (CIC) и 3) с постоянной скоростью потока (CRS), а также рассмотрена модель 4) постоянной начальной концентрации / постоянной скорости седиментации (CICCS), разработанная специально для речных пойм, и 5) модель седиментной изотопной томографии (SIT). Более подробная информация о каждой модели приведена ниже.

#### Модель CFCS

Модель постоянного потока / постоянной скорости седиментации (CFCS) разработана для интерпретации снижения скорости накопления неравновесного  $^{210}\text{Pb}$  с глубиной для морских и озёрных ДО. В модели предполагается, что поток  $^{210}\text{Pb}_{\text{hp}}$  из воды в ДО является постоянным во времени (т. е. из года в год), и постоянна скорость седиментации. Скорость седиментации  $R$  ( $\text{кг}\cdot\text{м}^{-2}\cdot\text{год}^{-1}$ ) может быть рассчитана по наклону линии, связывающей активность  $^{210}\text{Pb}_{\text{hp}}$   $A$  ( $\text{Бк}/\text{кг}$ ) с глубиной  $z$  ( $\text{кг}\cdot\text{м}^{-2}$ ): рассчитывается исходя из полученной линейной регрессии  $\ln(^{210}\text{Pb}_{\text{hp}})$  по сравнению с глубиной образца с помощью уравнения (5):

$$A(z) = A(0) \cdot e^{-\frac{\lambda_{Pb} z}{R}}, \quad (5)$$

где  $A(z)$  и  $A(0)$  (Бк/кг) являются активностями  $^{210}\text{Pb}_{\text{hp}}$  на глубине  $z$  и на поверхности соответственно;  $\lambda_{\text{Pb}} = 0,03114$  — константа радиоактивного распада  $^{210}\text{Pb}$  [8].

### *Модель CIC*

В модели постоянной начальной концентрации предполагается, что начальная концентрация  $^{210}\text{Pb}_{\text{hp}}$  в ДО является постоянной, и поэтому увеличение потока частиц в водной толщи будет пропорционально увеличению потока  $^{210}\text{Pb}_{\text{hp}}$  из воды в ДО. Согласно этому, вертикальное распределение  $^{210}\text{Pb}_{\text{hp}}$  будет демонстрировать монотонное уменьшение концентраций с глубиной из-за процесса естественного распада. При этом предполагается, что после осаждения перераспределения слоя или  $^{210}\text{Pb}_{\text{hp}}$  не происходит. Сравнивая концентрацию на любой глубине с таковой на поверхности, можно оценить возраст слоя на этой глубине из уравнения для радиоактивного распада. Понижение активности  $^{210}\text{Pb}_{\text{hp}}$  с глубиной  $z$  может быть представлено следующим образом:

$$A(z) = A(0) \cdot e^{-\lambda t} \quad (6)$$

и возраст  $t$  (год) слоя на глубине  $z$  с концентрацией  $^{210}\text{Pb}_{\text{hp}}$   $A(z)$  может быть получен из:

$$t = \frac{1}{\lambda_{\text{Pb}}} \ln \left( \frac{A(0)}{A(z)} \right). \quad (7)$$

### *Модель CRS*

В модель постоянной скорости потока предполагается, что осаждение  $^{210}\text{Pb}_{\text{hp}}$  в ДО постоянно во времени, и вертикальное распределение  $^{210}\text{Pb}_{\text{hp}}$  отражает взаимодействие скорости осадконакопления и радиоактивного распада. В этом случае скорость осадконакопления и начальная концентрация  $^{210}\text{Pb}_{\text{hp}}$  в ДО могут изменяться во времени. Используя эту модель, возраст  $t$  слоя керна ДО на глубине  $z$  можно оценить следующим образом:

$$t = \frac{1}{\lambda_{Pb}} \ln \left( \frac{I(0)}{I(z)} \right), \quad (8)$$

где  $I(0)$  (Бк·м<sup>-2</sup>) представляет собой общую поверхностную активность  $^{210}\text{Pb}_{\text{нр}}$  для верхнего слоя керна ДО, а  $I(z)$  (Бк·м<sup>-2</sup>) представляет собой запасённую активность  $^{210}\text{Pb}_{\text{нр}}$  в слое на глубине  $z$ . Тогда скорость осадконакопления  $R$  (кг·м<sup>-2</sup>·год<sup>-1</sup>) равна:

$$R = \frac{\lambda_{Pb} I(z)}{A(z)}. \quad (9)$$

Когда существуют расхождения между результатами, предоставленными моделью CRS и хроностратиграфическими маркерами  $^{137}\text{Cs}$ , то предполагается, что информация, предоставленная маркерами  $^{137}\text{Cs}$ , может быть включена в модель CRS в виде смешанной модели CRS или C-CRS для улучшения конечного результата. Этот метод описан следующим образом: если  $x_1$  и  $x_2$  - это глубины двух слоёв с известными датами их отложения  $t_1$  и  $t_2$  в керне ДО, тогда можно вычислить средний поток  $^{210}\text{Pb}$  ( $P$ ) в течение периода отложения этих слоёв, что описывается следующим уравнением [8]:

$$P = \frac{\lambda_{Pb} \Delta I_{x_1-x_2}}{e^{-\lambda_{Pb} t_1} - e^{-\lambda_{Pb} t_2}}, \quad (10)$$

где  $\Delta I_{x_1-x_2}$  — это активность  $^{210}\text{Pb}$  между  $x_1$  и  $x_2$ . Если слой на глубине  $x$  является промежуточным между  $x_1$  и  $x_2$ , то дату этого слоя можно вычислить, решая уравнение (11) и предполагая, что поток должен быть постоянным внутри интервала.

$$\frac{P}{\lambda_{Pb}} e^{-\lambda_{Pb} t} = \frac{P}{\lambda_{Pb}} e^{-\lambda_{Pb} t_1} + \Delta I_{x_1-x}, \quad (11)$$

где  $\Delta I_{x_1-x}$  — это активность  $^{210}\text{Pb}$  между  $x_1$  и  $x$ . Скорость осадконакопления в момент времени  $t$  можно оценить, используя уравнение [8]:

$$R = \frac{P e^{-\lambda_{Pb} t}}{A(x)}. \quad (12)$$

## Модель CICCS

Модель постоянной начальной концентрации и скорости седиментации была разработана специально для условий поймы. Эта модель использует только общий запас  $^{210}\text{Pb}_{\text{hp}}$  в целом керне ДО, и дает оценку средней скорости седиментации за последние ~100 лет (т.е. ~5 периодов полураспада). Подход метода основан на расчёте поверхностной активности  $I_t$  ( $\text{Бк}\cdot\text{м}^{-2}$ )  $^{210}\text{Pb}_{\text{hp}}$ , включающую в себя активность, связанную с атмосферной  $I_{\text{at}}$  ( $\text{Бк}\cdot\text{м}^{-2}$ ), и осаждённой активностью  $I_{\text{sed}}$  ( $\text{Бк}\cdot\text{м}^{-2}$ )  $^{210}\text{Pb}_{\text{hp}}$ . Значения активности  $I_{\text{at}}$  определяются на участках в стороне от места исследования загрязнений атмосферного выпадения. «Избыточную» неравновесную активность  $I_{\text{sed}}$ , можно рассчитать как разницу между  $I_t$  и  $I_{\text{at}}$ . Значение неравновесной активности  $I_{\text{sed}}$   $^{210}\text{Pb}_{\text{hp}}$  может быть использовано для оценки скорости осадконакопления  $R$  ( $\text{г}\cdot\text{см}^{-2}\cdot\text{год}^{-1}$ ) с учётом начальной концентрации  $A_i$  ( $\text{Бк}\cdot\text{кг}^{-1}$ )  $^{210}\text{Pb}_{\text{hp}}$  в  $i$ -м слое керна [8]:

$$R = \lambda_{Pb} \frac{I_t - I_{\text{at}}}{A_i}. \quad (13)$$

$A_i$  является ключевым параметром в уравнении (13), который следует оценивать эмпирически.

В случае ограничений на количество недавно осаждённых слоёв, которые можно было собрать в ходе полевых работ, и неопределённостей относительно времени, прошедшего с момента осаждения слоя, может применяться альтернативный подход к оценке  $A_i$ . Подход включает в себя определение общей активности  $^{210}\text{Pb}_{\text{hp}}$ , связанной с верхней частью (до глубины  $z$ ) вертикального распределения ДО  $I_{z,t}$  ( $\text{Бк}\cdot\text{м}^{-2}$ ), и вычитания значений оценки вклада прямых поступлений в данный слой  $I_{z,\text{at}}$  ( $\text{Бк}\cdot\text{м}^{-2}$ ). Это необходимо для достоверной оценки осажденного  $^{210}\text{Pb}_{\text{hp}}$   $I_{z,\text{sed}}$  ( $\text{Бк}\cdot\text{м}^{-2}$ ).

Активность пика  $^{137}\text{Cs}$  может находиться на несколько сантиметров ниже поверхности, что характерно для некультурных почв и отражает прекращение значительного поступления радиоактивных осадков  $^{137}\text{Cs}$  в результате биотурбаций и других явлений. Это учитывается для

ограниченных нисходящих максимальных активностей  $^{137}\text{Cs}$  и при использовании положений максимумов, регистрируемых 1963 г. и 1986 г.. В таком случае, для оценки средней скорости осадконакопления  $V$  ( $\text{г}\cdot\text{см}^{-2}\cdot\text{год}^{-1}$ )  $^{137}\text{Cs}$  используется следующее уравнение [8]:

$$V = \frac{M_p}{T}, \quad (15)$$

где  $M_p$  — глубина слоя до максимума  $^{137}\text{Cs}$ , а  $T$  — количество лет от зарегистрированного максимума.

### *Модель седиментной изотопной томографии (SIT)*

В модели SIT скорости накопления седимента и потоки радионуклида переменны во времени:

$$P(x) = P_0 \cdot \exp \left\{ \left[ -Bx + \sum_{n=1}^N \frac{a_n}{n\pi} \sin \left( \frac{n\pi x}{x_{max}} \right) \right] + \left[ \sum_{n=1}^N \frac{b_n}{n\pi} \left( 1 - \cos \left( \frac{n\pi x}{x_{max}} \right) \right) \right] \right\}, \quad (16)$$

где  $a_n$  — коэффициент, относящийся к осадконакоплению (расположен в седиментационном члене),  $b_n$  — коэффициент источника;  $x_{max}$  — максимальная глубина измерений,  $B$  — коэффициент, относящийся к средней скорости седиментации  $V$ , как  $B = \lambda/V$  [9].

Переменными величинами в модели SIT являются  $P_0$ ,  $B$  и  $N$ . Они определяются двумя -уравнениями с 24-мя неизвестными. Решение уравнений находится стандартной матричной инверсией для определения Фурье-коэффициентов  $a_n$  и  $b_n$ . Для каждого набора  $P_0$ ,  $B$  и  $N$  существует единственный набор коэффициентов  $a_n$  и  $b_n$ , поэтому уравнение (16) имеет одно решение [9].

Затем вводится нелинейная итерационная схема, автоматически подбирающая значения  $P_0$ ,  $B$ ,  $N$  и всё ближе приближающаяся к опытным (экспериментальным) значениям. Итерационный процесс прекращается тогда, когда достигается значение критерия конвергенции (разность между теоретическими ( $\text{Pred}(x_i)$ ) и экспериментальными ( $\text{Obs}(x_i)$ ) значениями меньше разрешения измерения). Мерой подгонки служит:

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^M \frac{[\text{Pred}(x_i) - \text{Obs}(x_i)]^2}{M}. \quad (17)$$

где  $M$  – число точек (значений экспериментальных данных) [9].

Для уменьшения количества модель-детерминированных решений вводят независимые временные маркеры.

#### 1.4. Практическое применение моделей и построение графических хронологий поступления радионуклидов в донные отложения

##### 1.4.1. Датирование поступления радионуклидов в донные отложения вокруг шведского побережья

В работе были определены удельные активности и вертикальные распределения  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  и  $^{210}\text{Pb}$  по результатам анализа шести осадочных кернов из Балтийского моря и пролива Каттегат. Для определения  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  и  $^{226}\text{Ra}$  слои каждого керна измеряли с помощью полупроводникового  $\gamma$ -спектрометра со сверхчистым низкофоновым германиевым детектором в откалиброванных геометриях. Активность  $^{226}\text{Ra}$  определяли по его короткоживущим  $\gamma$ -излучающим дочерним изотопам ( $^{214}\text{Pb}$  и  $^{214}\text{Bi}$ ), не предполагая потери  $^{222}\text{Rn}$  из измеряемого образца. Активность  $^{226}\text{Ra}$  использовалась для получения равновесного уровня  $^{210}\text{Pb}$  в модели датирования. Активность радионуклидов определяли по площадям фотопиков с вычитанием площади под пиком: 351,9 кэВ для  $^{214}\text{Pb}$ , 238,6 кэВ для  $^{212}\text{Pb}$  и 661,3 кэВ для  $^{137}\text{Cs}$ . Активности  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  были определены  $\alpha$ -спектрометрическим методом на 1024-канальном  $\alpha$ -спектрометре с детектором площадью 300  $\text{мм}^2$  с предварительнымadioхимическим выделением, используя эпоксидные смолы. Далее, строились вертикальные распределения измеренных удельных активностей радионуклидов от глубины их обнаружения (рис.2) [10].

Керны были датированы с использованием модели поступления  $^{210}\text{Pb}$  в ДО, предполагая постоянную скорость осаждения и постоянный поток  $^{210}\text{Pb}$

[10]. За основу был взят модифицированный метод CRS, при котором поток и скорость накопления осадков постоянны.

Построено вертикальное распределение по  $^{210}\text{Pb}$ . Скорости осадконакопления, начальный и равновесный  $^{210}\text{Pb}$  были определены с использованием метода нелинейных наименьших квадратов. При определении скоростей осадконакопления  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  и  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  и по результатам датирования было обнаружено, что максимальные пики удельной активности  $^{137}\text{Cs}$  и отношения  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  возникли вследствие аварии на Чернобыльской АЭС (1986 г.), а пик активности  $^{239+240}\text{Pu}$  – в результате испытаний ядерного оружия (1963 г.). Погрешности датирования по  $^{210}\text{Pb}$  были получены из рабочей модели [10].

Хронология осадконакопления была использована для определения времени и происхождения радионуклидных источников в отобранных отложениях. Осадочные керны были датированы с помощью модели неравновесного  $^{210}\text{Pb}$ , и результаты были подтверждены маркерными пиками. Идентификация источников с использованием отношений активностей изотопов показала, что Чернобыльская авария является основным источником  $^{137}\text{Cs}$  в Балтийском море; для  $^{239+240}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$  основным источником являются последствия испытаний ядерного оружия, проводимых в 60-х годах прошлого века. Чернобыльская авария оказала значительное влияние на прямые выпадения в Балтийском море  $^{238}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$  с их 65% вкладом в профиль донных отложений, датированные 1986 годом. Анализ вертикальных распределений подтвердил различные характеры выпадения  $^{137}\text{Cs}$  и изотопов Pu в результате Чернобыльской аварии. Максимальное загрязнение  $^{137}\text{Cs}$  наблюдалось в Ботническом заливе, в то время как чернобыльский Pu, как было установлено, в основном присутствует на севере Балтийского моря. В результате анализа вертикальных распределений определена зависимость накопления радионуклидов в ДО от их содержания в водах Балтийского моря. Кроме того, наблюдался вклад речных вод в

повышение удельных активностей в слоях ДО наиболее загрязнённого района на юге Ботнического залива (восточное побережье Швеции) [10].

#### 1.4.2. Датирование поступления радионуклидов в донные отложения швейцарских озёр по $^{210}\text{Pb}$ : результаты и проблемы

В данном исследовании приведены методы подготовки проб осадков для проведения  $\gamma$ -спектрометрии, результаты измерения и обработки данных,  $\gamma$ -спектрометрии, а также проанализированы процессы накопления осадков в озёрах. Проведён анализ вертикальных распределений искусственных изотопов ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ) и естественных радионуклидов ( $^{40}\text{K}$ ,  $^{210,214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$ ), а также стабильных микроэлементов (Fe, Mn, Pb) в кернах из четырёх швейцарских озёр [11].

Удельные активности радионуклидов из естественного ряда распада  $^{238}\text{U}$ , природного  $^{40}\text{K}$ , космогенного  $^7\text{Be}$ , а также искусственных радионуклидов  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{241}\text{Am}$  в образцах отложений были измерены с помощью полупроводникового  $\gamma$ -спектрометра со сверхчистым германиевым детектором. Эффективности регистрации фотопиков были рассчитаны калибровочным программным обеспечением, учитывающим не только характеристики детектора, но также самопоглощение  $\gamma$ -лучей как в образце, так и в материале контейнера. Для этого требовалась информация о составе пробы, плотности образца, высоте наполнения образца в контейнере и его размерах, а также материале самого контейнера. Активность радионуклидов регистрировали по фотопикам 609,3 кэВ для  $^{214}\text{Bi}$ , 351,9 кэВ для  $^{214}\text{Pb}$ , 1460 кэВ для  $^{40}\text{K}$  и 661,3 кэВ для  $^{137}\text{Cs}$ . Время измерения варьировалось от 24 до 96 ч для достижения минимальной ошибки измерения. После чего строились графики вертикальных распределений удельных активностей зарегистрированных радионуклидов (рис.3) [11].

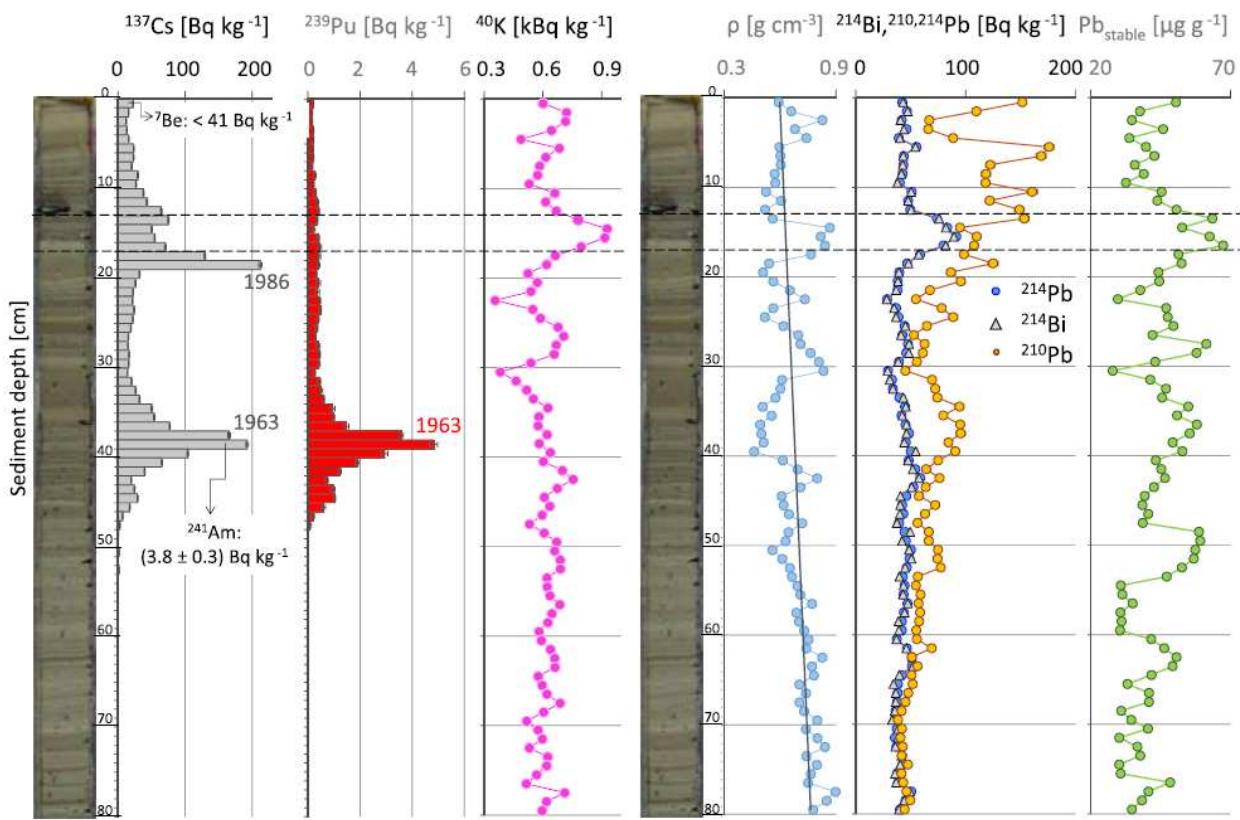


Рисунок 3 – Вертикальные распределения радионуклидов озера Люцерн  
(Швейцария)

В исследовании приводятся данные датирования озёрных осадков по неравновесному  $^{210}\text{Pb}$ . Для проведения датирования использовались вертикальные распределения техногенных изотопов ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ) и естественных ( $^{40}\text{K}$ ,  $^{210,214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$ ), а также стабильные микроэлементы (Fe, Mn, Pb) в кернах из четырех швейцарских озёр. Для них проводилось взаимное сравнение активностей и подтверждение их соотношений, установленных тремя моделями на основе неравновесного  $^{210}\text{Pb}$ : CFCS, CRS и SIT. Определено негативное влияние взмученных водных потоков на точность датирования осадков. Рассчитывались зависящие от времени скорости осадконакопления в озёрах Бриенц ( $0,35 \text{ см} \cdot \text{год}^{-1}$ ), Тун ( $0,39 \text{ см} \cdot \text{год}^{-1}$ ), Биль ( $0,81 \text{ см} \cdot \text{год}^{-1}$ ) и Люцерн ( $0,85 \text{ см} \cdot \text{год}^{-1}$ ) [11].

Описаны методы датирования по  $^{210}\text{Pb}$ , в которых предполагается, что в верхнем слое озёрных отложений имеется постоянная начальная концентрация  $^{210}\text{Pb}$  из атмосферы, а также то, что поток  $^{210}\text{Pb}$  на поверхности

отложения и скорость осадконакопления являются постоянными во времени. Это приводит к постоянной концентрации активности неравновесного  $^{210}\text{Pb}$  в поверхностном слое, отсюда же вертикальное распределение неравновесного  $^{210}\text{Pb}$  в ДО может быть описано экспоненциально, исходя из закона радиоактивного распада. Описана модель CRS, предполагающая осаждение того же количества неравновесного  $^{210}\text{Pb}$  в слои за определённый промежуток времени и переменной скорости осадконакопления. А метод SIT для осадочных отложений помог авторам интерпретировать более сложные вертикальные распределения  $^{210}\text{Pb}$  для случаев, когда скорости и потоки неравновесного  $^{210}\text{Pb}$  меняются со временем [11].

В результате из всех моделей, использованных в рассматриваемом исследовании, модель CRS, которая принимает поток  $^{210}\text{Pb}$  за постоянный при изменяющейся скорости накопления осадков, представляет наиболее достоверные результаты по сравнению с моделью CFCS, учитывающей постоянной скорость. Модель SIT успешно использована для описания вертикальных распределений  $^{210}\text{Pb}$  и для установления соотношений, но достоверные результаты были найдены только для постоянного поступления  $^{210}\text{Pb}$  и для четырех свободных параметров модели SIT. Изменение свободных параметров либо для моделей CRS, либо для модели изменяющегося потока  $^{210}\text{Pb}$  привело к нереалистичным колебаниям скоростей осадконакопления [11].

#### 1.4.3. Датирование поступления радионуклидов в донные отложения аргентинских озёр по $^{210}\text{Pb}$

В изученной работе приводятся результаты анализа вертикальных распределений по неравновесному  $^{210}\text{Pb}$  осадочных кернов, собранных в системе озёр, расположенных в Южных Пампасах в Аргентине ( $37^\circ\text{S}$ ,  $62^\circ\text{W}$ ). Неэкспоненциальные и немонотонные вертикальные распределения неравновесного  $^{210}\text{Pb}$  в осадочных отложениях рассматриваемых мелководных озёрных систем (рис.4) указали на взаимодействие сложных

процессов потока и осаждения радионуклидов, происходящих в озёрах. Активность равновесного  $^{210}\text{Pb}_{\text{sup}}$  была рассчитана из асимптотической активности по всей глубине (средняя общая активность  $^{210}\text{Pb}$  самых низких образцов в каждом керне считалась равновесной с  $^{226}\text{Ra}$ ) и была вычтена из общей активности  $^{210}\text{Pb}$ , измеренной на каждом уровне для получения активности неравновесного  $^{210}\text{Pb}_{\text{uns}}$  и последующего проведения датирования [12].

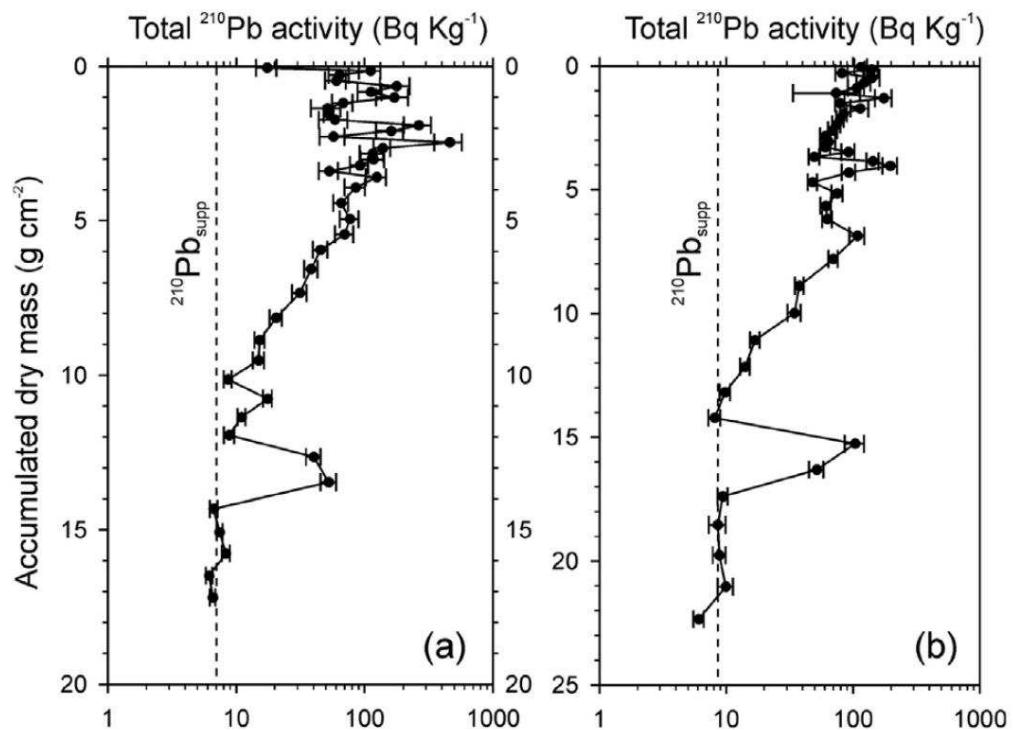


Рисунок 4 – Вертикальные распределения активностей  $^{210}\text{Pb}$  для аргентинских озёр Лагуна-дель-Монте (а) и Лагуна-дель-Венадо (б)

Ретроспективный анализ и скорости осадконакопления ДО для озёр Лагуна-дель-Монте и Лагуна-дель-Венадо, расположенных в Южных Пампасах (Аргентина), были смоделированы с использованием различных математических моделей на основе  $^{210}\text{Pb}$ . Поскольку подходящая расчётная модель была неизвестна, полученная хронология по  $^{210}\text{Pb}$  и скорость накопления осадков были рассчитаны с использованием численных моделей CRS, CIC, CFCS и SIT. Модели CRS, CIC и CFCS использовались для расчёта датировки поступления осаждений и скоростей, включая расчёт погрешности

с помощью программного обеспечения расчётов по SIT. Модель SIT применялась либо с использованием только данных по неравновесному  $^{210}\text{Pb}$  (без ограничения SIT), либо была ограничена временными маркерами (с ограничением SIT). При датировании для охвата широкого временного интервала осадочные слои ДО, выходящие за пределы интервала датирования по  $^{210}\text{Pb}$ , были рассчитаны с использованием экстраполированных начальных скоростей осадконакопления. Результаты поиска на большей глубине, исходя из предела активности неравновесного  $^{210}\text{Pb}$ , были исключены из дальнейших расчётов с использованием CRS-модели из-за большой неопределенности соответствующих расчётных скоростей осадконакопления. Было выбрано два контрольных слоя-маркера в верхней и нижней части кернов ДО. Младший слой-маркер, датированный  $1980 \pm 2$  годом, соответствовал самому высокому органическому углеродсодержащему бурому грязевому слою, накопленному в 1977–78 годах, а также наиболее заметному поднятию дна озера, возникшему в течение XX века и зарегистрированного с помощью палеолимнистических записей и приборов на Пампасских равнинах. Самый ранний слой соответствует  $1878 \pm 10$  году, что говорило о высокой скорости начальной фазы озера, связанной с аномально интенсивными выпадениями осадков в озеро и наводнениями в юго-восточной части Южной Америки для периода 1877–1878 годов. При сравнении полученных возрастов с маркерами результаты показали, что CRS-модель работает лучше, чем другие модели. Таким образом, известные независимые временные маркеры, использованные по всему вертикальному распределению радионуклидов в ДО, были критически важны для подтверждения составленной хронологии по  $^{210}\text{Pb}$ , и являются наиболее подходящим способом для проведения датирования верхних слоёв ДО озёрной системы Пампас. Сделан вывод, что CRS-модель является подходящей моделью для составления хронологии и определения скорости осадконакопления ДО озёрных систем при сильной гидрологической изменчивости [12].

#### 1.4.4. Датирование поступления радионуклидов на основе $^{210}\text{Pb}$ в донные отложения водно-болотных угодий на примере устья Жёлтой реки (Китай)

Исследованы вертикальные распределения радионуклидов  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  и  $^{40}\text{K}$  в керне ДО поймы части устья Жёлтой реки (Китай) для того, чтобы оценить экологические изменения в прибрежных болотах реки, исходя из распределения радионуклидов [13].

Керн ДО датирован с использованием метода CIC (постоянная начальная концентрация  $^{210}\text{Pb}$ ) и CRS по  $^{210}\text{Pb}$ . Предполагается, что модель CIC имеет исходную активность неравновесного  $^{210}\text{Pb}$  в момент его осаждения. В этом случае скорость осадконакопления постоянна, а активность неравновесного  $^{210}\text{Pb}$  в керне экспоненциально убывает с глубиной. Учитывалось то, что в районе устья реки в месте пробоотбора происходят сложные осадочные процессы, влияющие на осадконакопление. Также учтено, что модель CRS предполагает неизменной скорость осадконакопления  $^{210}\text{Pb}$  в отложения, что отражает постоянность потока  $^{210}\text{Pb}$  из атмосферы. Таким образом, начальная активность  $^{210}\text{Pb}$  в разных слоях керна может изменяться в связи с изменением скорости. В поймах устья Желтой реки скорость осадконакопления не может быть постоянной из-за сложных взаимодействий между почвой, морскими и речными системами. В результате этого было допущено, что изменение  $^{210}\text{Pb}$  не происходило в слоях, а поток  $^{210}\text{Pb}$  из атмосферы был постоянным, тогда скорость могла быть рассчитана с использованием модели CRS [13].

На основе датирования поступления  $^{210}\text{Pb}$  и  $^{137}\text{Cs}$  средняя скорость осадконакопления керна определена, как  $1,0 \text{ см} \cdot \text{год}^{-1}$ . Вертикальные распределения естественных радионуклидов  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  и  $^{40}\text{K}$  отражали существенные изменения в ДО. Удельные активности  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  и  $^{40}\text{K}$  имели определённые достоверные отношения содержания их в органическом веществе и в глине, но их распределения определялись разными факторами. Проведённый факторный анализ показал, что изменение концентраций  $^{238}\text{U}$

определялось накоплением речных донных отложений, в то время как  $^{226}\text{Ra}$  в основном определялся наличием морской воды в речной системе. Перемены в экологическом состоянии реки, такие как разрушение её русла, изменение уровня воды в реке, взмучивание или смешение слоёв ДО, вызывали изменения активностей радионуклидов. Частое вторжение морской воды в реку также увеличивало активность  $^{238}\text{U}$ . В результате медленного накопления ДО, что соответствовало незначительному повышению  $^{238}\text{U}$ , и постоянного вторжения морской воды в устье реки и, как следствие, большой потери  $^{226}\text{Ra}$  значение отношения  $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$  было высоким. Таким образом, вертикальные распределения природных радионуклидов и их отношения могут отражать изменения в осадконакоплении, и использоваться в качестве индикатора экологических процессов в прибрежных поймах эстуариев [13].

#### 1.4.5. Датирование поступления радионуклидов в донные отложения из динамических осадочных систем африканских эстуариев вдоль экваториальной Атлантики с помощью модели TERESA

Проведено датирование эстуариев динамических осадочных систем рек Вольта и Пра (Гана, Западная Африка), подверженных антропогенному воздействию человека, с целью прогнозирования возможности использования данных водоёмов в хозяйственных и рекреационных целях. В работе установлено, что условия для применения стандартных моделей датирования CRS, CIC и CFCS на основе  $^{210}\text{Pb}$  для изучаемых речных систем не выполняются. Так как потоки взвешенного вещества и скорость накопления осадков сильно изменялись со временем, вертикальные распределения радионуклидов  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{234}\text{Th}$ ,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{228}\text{Ra}$  и  $^{137}\text{Cs}$  были неравномерными. Это исключало возможность применения всех семейств моделей, не основанных на предположении об установившихся динамических условиях изучаемых речных систем. Модель SIT может использоваться при данных условиях, но в этой фундаментальной модели отсутствует хорошая физическая основа. Более того, полученные

вертикальные распределения  $^{210}\text{Pb}$  не содержат достаточной информации для проведения датирования вследствие того, что потоки  $^{210}\text{Pb}$  и скорость осадконакопления независимо изменяются со временем. Для разработки подходящего инструмента датирования установлены граничные условия. Прежние модели не позволяли достоверно обработать данные, полученные с этих рек, в которых присутствовала статистическая корреляция между потоками взвешенного вещества и скоростями накопления осадков, что вызывало проблемы и позволило разработать в ходе исследования новый инструмент для датирования на основе  $^{210}\text{Pb}$  (рис.6), и применить такую математическую модель, как TERESA (модель определения времени по случайному поступлению осадков и активностям радионуклидов) [14].

Модель основывалась на следующем наборе предположений:

- 1)  $^{210}\text{Pb}$  ведёт себя как связанный с частицами маркер, и новые поступающие частицы равномерно осаждаются поверх существующих;
- 2) нет перераспределения после осаждения;
- 3) непрерывность последовательности накопления осадков (т. е. отсутствовали чётко выделенные слои ДО при эрозии);
- 4) Потоки  $^{210}\text{Pb}$  определяются “горизонтально распределяющимися входящими частицами”, и, следовательно, существует статистическая корреляция между потоками радионуклидов и скоростями осадконакопления.

Для двух кернов из эстуариев рассматриваемых рек были рассчитаны возрастные интервалы для каждого слоя, среднее значение скорости осадконакопления и связанную начальную удельную активность (на момент пробоотбора). Модель TERESA применима при условии, что начальные распределения активностей являются нормальными распределениями с нормирующими значениями по их средним арифметическим значениям со стандартными отклонениями. При первом расчёте (итерации) параметров с помощью модели формируются независимые случайные распределения со

значениями для средней скорости осадконакопления и начальной удельной активности; далее, специальным алгоритмом вычисляется их наилучшее сочетание для того, чтобы рассчитанное распределение активностей соответствовало измеренному экспериментально вертикальному распределению  $^{210}\text{Pb}$  по массе. Таким образом, в исследовании решали проблемы, связанные с проведением датирования, расчётом скоростей накопления осадков и потоков радионуклидов для динамических речных систем. Поскольку результат сильно зависел от первой оценки основных параметров, в модели применим метод отображения, повторяющий вновь весь процесс для каждого параметра, изменяющегося в широком диапазоне. А вычисленная ошибка позволяла определить приближения итераций для каждого отдельного цикла вычислений с помощью модели [14].

В итоге, описанная математическая модель TERESA позволяет более достоверно провести датирование по  $^{210}\text{Pb}$ , позволяя учесть изменяющиеся, но статистически коррелируемые потоки взвешенного вещества и скорости осадконакопления. Вертикальные распределения неравновесного  $^{210}\text{Pb}$  в кернах из эстуариев рек Пра и Вольта были неполными, немонотонными и имели большие погрешности в определении активности. Получена статистическая корреляция между удельной активностью  $^{40}\text{K}$  и плотностью, которая сохранялась для кернов из эстуариев двух рек ( $R^2=0,81$ ,  $p<0,00005$ ). Использование  $^{137}\text{Cs}$  в качестве временного маркера оказалось затруднительно в странах, расположенных у экватора в Южном полушарии, из-за его низких уровней выпадений. Керн из Вольты отражал динамические условия, сложившиеся после строительства плотины Акосомбо (гидроэлектростанция на юго-востоке Ганы в ущелье Акосомбо на реке Вольта), и имел среднее значение скорости осадконакопления  $1,05 \pm 0,03 \text{ г} \cdot \text{см}^{-2} \cdot \text{год}^{-1}$ , тогда как более высокое значение скорости осадконакопления  $2,73 \pm 0,06 \text{ г} \cdot \text{см}^{-2} \cdot \text{год}^{-1}$  было рассчитано для керна из ДО вдоль русла р. Пра после начала интенсивной добычи золота [14].

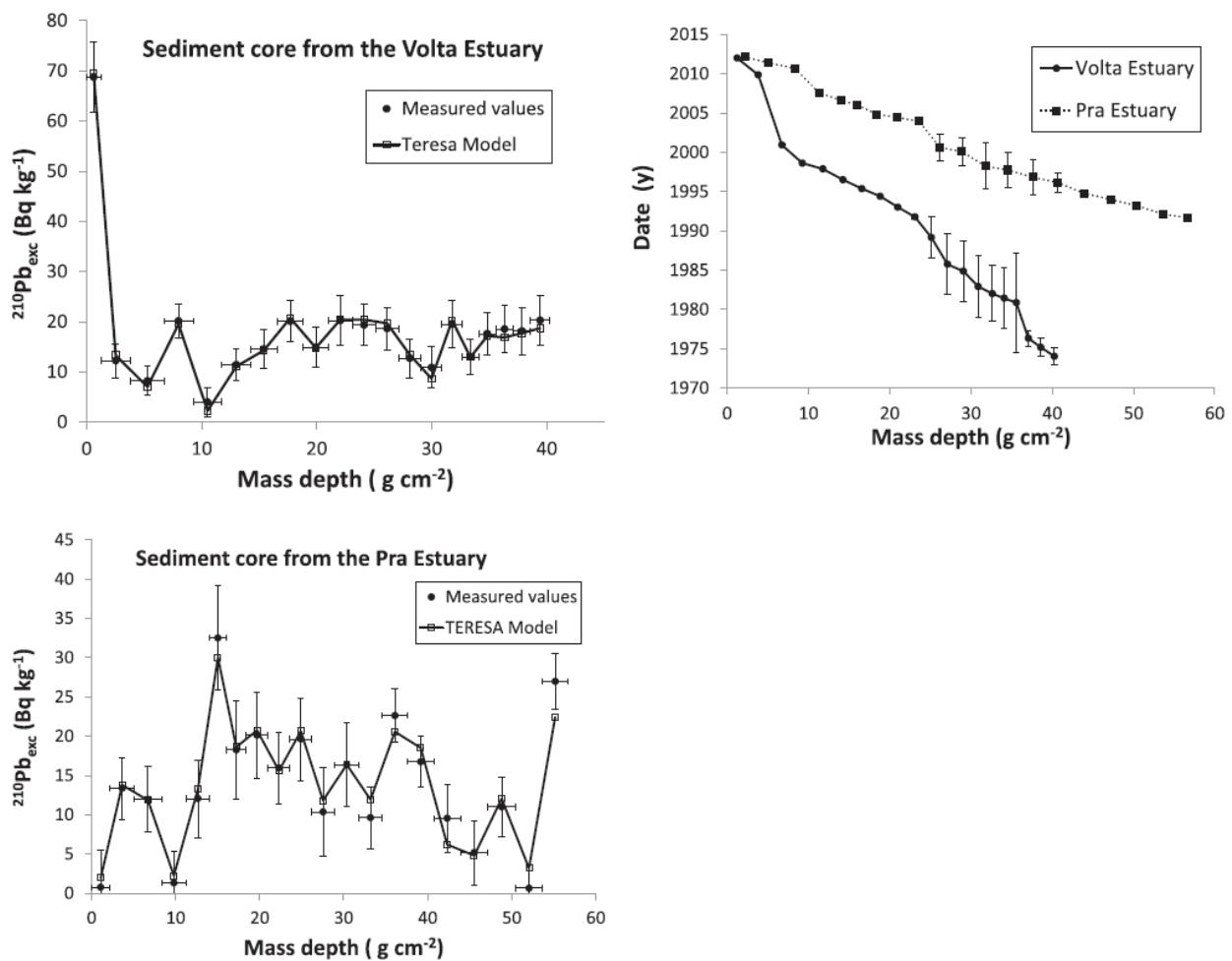


Рисунок 6 – Графики зависимостей активностей неравновесного  $^{210}\text{Pb}$  от глубины, а также графическая хронология датирования слоёв по неравновесному  $^{210}\text{Pb}$  с помощью модели TERESA

Рассмотренные литературные источники содержали способы измерения вертикальных распределений радионуклидов, а также методы расчёта скоростей осадконакоплений для последующего ретроспективного анализа и установления источников происхождения радионуклидов в рассмотренных речных, озёрных и морских системах. Изученные данные из литературных источников позволяют выбрать методы и модели для проведения ретроспективного анализа поступления радионуклидов в профиль донных отложений реки Енисей.

## **2. МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ**

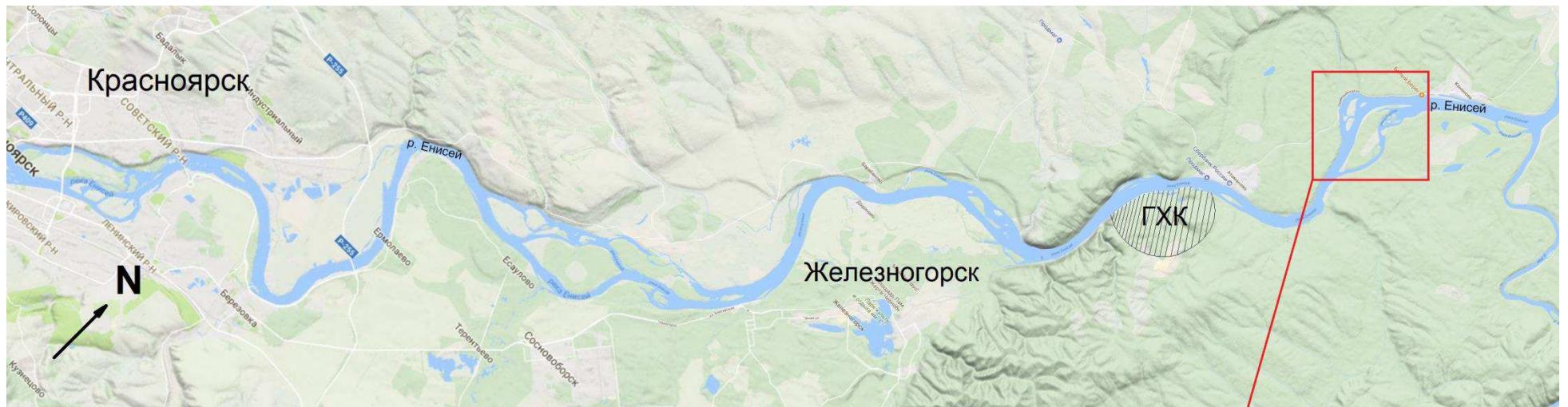
### **2.1. Объекты исследования и пробоподготовка**

Выбор места отбора проб донных отложений определялся характеристикой ландшафта, прежде всего мощностью покрова для рассматриваемой территории и степенью постоянного и периодического затопления. Для проведения пробоотбора кернов донных отложений была выбрана заводь затопляемого района берегового изгиба р. Енисей в районе села Б. Балчуг, расположенного в 30-км зоне ГХК (рис.7).

После определения подходящего места взятия пробы происходил сбор образцов: место извлечения керна очищалось от дёрна после чего на всю длину вглубь донных отложений забивалась двойная стальная труба цилиндрического пробоотборника диаметром 11 см и длиной 70 см с лепестковым затвором (рис. 8). В ходе пробоотбора получено 6 кернов (К1-6), 3 из которых отобраны в 2016 году, а остальные – в 2017 году.

Пробы полученных донных осадков в виде керна на месте разрезали на слои по 3 см, фасовали и транспортировали для последующего анализа в лаборатории (рис. 9).

Перед измерением образцы гомогенизировали: сначала определяли сырую массу, после чего пробы сушили в сушильном шкафу при температуре 60°C до постоянной массы. Далее, образцы очищали от остатков органического мусора и камней, перемешивали и взвешивали, готовые навески помещали в цилиндрические пластиковые ёмкости и направляли на последующие измерения на  $\gamma$ -спектрометре.



31

Рисунок 7 – Район полевых работ у с. Б. Балчуг

[Изъято в связи с защитой авторских прав с 32 по 50 страницу].

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Для отобранных кернов ДО (К1-6) поймы Енисея в зоне влияния ГХК проведён анализ вертикального распределения техногенных радионуклидов  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{152}\text{Eu}$ .

Диапазон максимумов активности техногенного  $^{60}\text{Co}$  в верхних слоях (0-10 см) кернов К1-6 ДО составляет 35-134 Бк/кг и с глубиной убывает до уровня предела обнаружения (1 Бк/кг). В отличие от максимальных значений активностей  $^{60}\text{Co}$ , его общее поверхностное содержание в кернах К2-6 изменяется в меньшей степени – 1,2-2,9 кБк/м<sup>2</sup>, в то время как в керне К1 зафиксировано увеличение содержания  $^{60}\text{Co}$  почти в 3-8 раз (9,5 кБк/м<sup>2</sup>) по сравнению с кернами К2-6.

В отличие от максимумов  $^{60}\text{Co}$ , присутствующих только в верхних слоях кернов К1-6 ДО, пики активностей  $^{137}\text{Cs}$  в диапазоне 1,2-7,4 кБк/кг зафиксированы в глубине исследуемых кернов ДО. Также, в отличие от максимумов  $^{60}\text{Co}$  и  $^{152}\text{Eu}$ , которые имеются в единственном числе в верхних слоях кернов К1-6 ДО,  $^{137}\text{Cs}$  имеет 1-2 чётких пиков активности, в глубине кернов. Общие запасы активностей  $^{137}\text{Cs}$  в кернах К1-6 на 2 порядка выше, чем у  $^{60}\text{Co}$ , и составляют 160-500 кБк/м<sup>2</sup>.

Вертикальное распределение  $^{152}\text{Eu}$  в большинстве изученных кернов ДО аналогично распределению  $^{60}\text{Co}$ . Совпадение положения областей повышенной удельной активности  $^{60}\text{Co}$  и  $^{152}\text{Eu}$  в верхних слоях (0-10 см) указывает на новое непрерывное поступление этих изотопов. Диапазон максимумов активности техногенного  $^{152}\text{Eu}$  в верхних слоях (0-20 см) составляет для кернов К1-6 ДО 108-242 Бк/кг. Также, как и для  $^{60}\text{Co}$ , с глубиной содержание  $^{152}\text{Eu}$  убывает до уровня предела обнаружения (1 Бк/кг). Общая поверхностная активность  $^{152}\text{Eu}$  в кернах К2-6 изменяется незначительно в диапазоне 10-14 кБк/м<sup>2</sup>, в то время как в керне К1 зафиксировано такое же увеличение поверхностного содержания  $^{152}\text{Eu}$ , как и у  $^{60}\text{Co}$  в керне К1, почти в 3 раза (35 кБк/м<sup>2</sup>) по сравнению с кернами К2-6.

По изотопным соотношениям  $^{137}\text{Cs}/^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}/^{152}\text{Eu}$  и неравновесному  $^{210}\text{Pb}_{\text{hp}}$  определены скорости осадконакопления радионуклидов в кернах К1-6 ДО реки Енисей, лежащие в диапазоне 0,97-1,18 см/год, средняя скорость осадконакопления  $V = 1,1 \pm 0,1$  см/год.

На основании полученной скорости осадконакопления проведён ретроспективный анализ поступлений радионуклидов в ДО р. Енисей. По результатам датирования максимумы содержания  $^{137}\text{Cs}$  совпадают с годами аномальных паводков на реке:

- К1 и К2 имеют максимумы, соответствующие с учётом погрешности крупным паводкам 1966 и 2006 годов на р. Енисей;
- К3 и К4 содержат максимумы, совпадающие с паводком 1988 года на р. Енисей;
- К5 и К6 имеют пик активности и широкий максимум, относящиеся к наводнению 2006 года на р. Енисей.

Полученные результаты позволяют составить карты районов радиоактивного загрязнения реки Енисей в 30-км зоне ГХК, осуществлять мониторинг поступлений радионуклидов в реку в настоящее время, а также могут быть использованы при прогнозировании радиоэкологической обстановки реки с учётом влияния на неё техногенных и природных факторов.

## **СПИСОК СОКРАЩЕНИЙ**

- АЭС — атомная электростанция;
- ГХК — Горно-химический комбинат;
- ДО — донные отложения;
- ЧАЭС — Чернобыльская атомная электростанция.

## **СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННЫХ ИСТОЧНИКОВ**

1. Основы геофизических методов: учебник для вузов / В.К. Хмелевской, В.И. Костицын. – Пермь: Пермский университет, 2010. – 400 с.: ил.
2. Экология и безопасность жизнедеятельности / Кривошеин Д.А., Муравей Л.А. [и др.]. – Москва, 2000. – 447 с
3. Идентификация радионуклидов методом  $\gamma$ -спектрометрии: методические указания к лабораторной работе / В.А. Карелин. – Томск: Национальный исследовательский Томский политехнический университет, 2012. – 25 с.
4. Методы палеографических исследований: четвертичная геохронология: учебное пособие / А.В. Панин. – Москва: Географический факультет МГУ, 2014. – 116 с.
5. Радиоэкология: учебник для вузов / М. Г. Давыдов [и др.]. – Ростов на Дону: Феникс. – 2013. – 635 с.
6. Природные радионуклиды в морских исследованиях // Океанология / Р.А. Алиев. – Москва: 2005. – Т. 45. № 6. С. 936-948.
7. Радиоактивность окружающей среды: теория и практика / Ю. А. Сапожников, Р. А. Алиев, С. Н. Калмыков. — Москва: БИНОМ. Лаборатория знаний, 2006. — 286 с.
8. Using  $^{210}\text{Pb}$  measurements to estimate sedimentation rates on river floodplains // Journal of Environmental Radioactivity / Du P., Walling D.E. – 2012. – Vol.103. – p. 59-75.
9. Sedimentary Processes: Quantification Using Radionuclides // Radioactivity in the Environment / J. Carroll, I. Lerche. – 2003. – Vol.5. – p. 283.
10. On distribution and inventories of radionuclides in dated sediments around Swedish coast // Journal of Environmental Radioactivity / G. Olszewski [et al.]. – 2017. – №186. – p. 142-151.
11. Dating of sediments from four Swiss prealpine lakes with  $^{210}\text{Pb}$  determined by gamma-spectrometry: progress and problems // Journal of Environmental Radioactivity / V. Putyrskaya [et al.]. – 2015. – №145. – p. 78-94.

12. Independent time markers validate  $^{210}\text{Pb}$  chronologies for two shallow Argentine lakes in Southern Pampas // Quaternary International / Fr.E. Córdoba [et al.]. – 2016. – №438A. – p. 175-186.
13. Environmental evolution records reflected by radionuclides // Journal of Environmental Radioactivity / Q. Wang [et al.]. – 2016. – №162-163. – p. 87-96.
14. Radioecological assessment and radiometric dating of sediment cores (Ghana) // Journal of Environmental Radioactivity / E. Klubi [et al.]. – 2017. – №178-179. – p. 116-126.
15. Практическая гамма-спектрометрия: учебное пособие / А.В. Бушуев, Е.В. Петрова, А.Ф. Кожин. – Москва: МИФИ, 2006. – 124 с.

Федеральное государственное автономное  
образовательное учреждение  
высшего образования  
**«СИБИРСКИЙ ФЕДЕРАЛЬНЫЙ УНИВЕРСИТЕТ»**  
Институт фундаментальной биологии и биотехнологии  
Кафедра биофизики

УТВЕРЖДАЮ  
Заведующий кафедрой

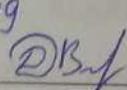
  
B. A. Кратасюк  
подпись  
«28 » 06 2019 г.

## БАКАЛАВРСКАЯ РАБОТА

03.03.02 Физика

**Ретроспективный анализ поступления техногенных радионуклидов в  
донные отложения реки Енисей**

Научный  
руководитель 28.06.19   
подпись, дата с.н.с., канд. биол. наук, доц. Т. А. Зотина

Научный 28.06.19   
консультант подпись, дата с.н.с., канд. биол. наук Д. В. Дементьев

Выпускник 28.06.19   
подпись, дата В. И. Вахрушев

Красноярск 2019