

УДК 532.546

## ИССЛЕДОВАНИЕ ОШИБОК ОЦЕНКИ ПАРАМЕТРОВ ПЕРЕНОСА РАДИОНУКЛИДОВ В ПОДЗЕМНЫХ ВОДАХ ИЗОТОПНЫМИ МЕТОДАМИ ПРИ РЕШЕНИИ ЭПИГНОЗНЫХ ЗАДАЧ

И. В. Токарев, М. Г. Храмченков, А. Н. Чекалин, Н. Д. Якимов  
(филиал Института геоэкологии РАН, г. Санкт-Петербург;  
НИИММ им. Н. Г. Чеботарева КГУ, г. Казань)

Рассматриваются задачи оценки возраста подземных вод с помощью изотопных методов, в частности метода гелий/третий-датирования. Даны постановки основных задач, возникающих при корректной схематизации процесса миграции радионуклидов в подземной гидросфере. Проанализированы возможные ошибки, возникающие при традиционном использовании изотопного датирования.

### Введение

При построении математических моделей миграции техногенных радионуклидов в подземных водах в качестве процедуры калибровки, как правило, используется решение эпигнозных задач. Для калибровки модели конкретного объекта необходимо наличие соответствующих исходных данных о концентрациях и длительности существования источника загрязнения. При корректном решении эпигнозной задачи полученные в ходе подбора миграционные параметры можно использовать для решения прогнозных задач.

Весьма удобно в качестве техногенного трассера использовать тритий ( $^3\text{H}$ ), так как он дает ряд существенных преимуществ перед другими радионуклидами [1, 2]. Во-первых, период полураспада трития,  $T_{1/2} = 12,26$  года, удачно "накрывает" временную шкалу поступления техногенных радионуклидов в подземную гидросферу, так как активное поступление стало отмечаться в последние 50 лет. Во-вторых, тритий входит в молекулу воды и моделирует собой движение химически инертного трассера, что является требованием нормативных документов при прогнозе радиоактивного загрязнения. В-третьих, тритий — постоянный компонент загрязнения техногенными радионуклидами и всегда присутствует в самих стоках и/или воде, используемой в технологическом цикле. Миграционные параметры, рассчитанные по тритию, могут быть использованы в дальнейшем для оценки переноса сорбируемых компонентов, например, с помощью введения эффективной пористости или другими приемами.

Для химически инертного компонента скорость переноса определяется гидравлическими параметрами:

$$v = \frac{k_f I}{n},$$

где  $v$  — действительная скорость фильтрации (м/сут);  $k_f$  — коэффициент фильтрации (м/сут);  $I$  — гидравлический градиент;  $n$  — пористость среды.

Исходя из данных о действительной скорости фильтрации и размере  $l$  области переноса может быть вычислено время переноса

$$t = \frac{l}{v}.$$

Поскольку движение воды в водоносных горизонтах происходит по различным линиям тока, среднее время переноса (*гидравлический возраст воды*) определяется как

$$\tau = \frac{\sum_i Q_i t_i}{\sum_i t_i}. \quad (1)$$

Прямая оценка  $Q_i$  и  $t_i$  представляет значительную техническую трудность, но использование трития, обладающего радиоактивным распадом, а значит, независимой внутренней меткой времени, позволяет оценивать времена переноса. Данной теме посвящено большое количество работ, при этом ключевым является понятие *возраста подземных вод*, которое по смыслу отвечает времени пребывания трития в подземной гидросфере.

Поскольку тритий входит в молекулу воды, предполагается, что оценку возраста воды по тритию (*изотопный возраст*) можно поставить в прямое соответствие с гидравлическим *истинным* возрастом воды.

В данной работе демонстрируется, что изотопный возраст воды в некоторых случаях может значительно отличаться от ее гидравлического возраста. Кроме того, оцениваются относительные величины этих ошибок, для того чтобы продемонстрировать, в каких условиях отклонения изотопных возрастов от гидравлических должны учитываться при калибровке миграционных моделей.

### Геохимия трития

Кратко рассмотрим условия поступления трития в качестве трассера в подземную гидросферу. Распределенным источником трития являются атмосферные осадки, восполняющие ресурсы подземных вод за счет инфильтрации [1, 2]. Содержания трития в атмосферных осадках имели глобальный пик в период 1963—1964 гг., связанный с испытаниями термоядерного оружия в атмосфере (рис. 1).

График содержаний трития в атмосферных осадках может быть использован как *входная функция по тритию* для инфильтрационных вод, питающих подземные водоносные горизонты. Из рис. 1 видно, что в настоящее время содержания трития в метеорных водах, несмотря на сезонные колебания, можно рассматривать как квазистационарные.

Локальными источниками трития в подземной гидросфере являются участки размещения предприятий ядерного топливного цикла, складирования радиоактивных отходов (РАО) на поверхности земли, полигоны глубинного захоронения жидких РАО и т. п.

Время пребывания трития в подземной гидросфере определяется видом функции, описывающей распределение  $t_i$  в уравнении (1). Поведение этого параметра, названного *функцией распределения времени пребывания* (ФРВП) воды в подземной гидросфере, рассматривалось в ряде работ [3—8].

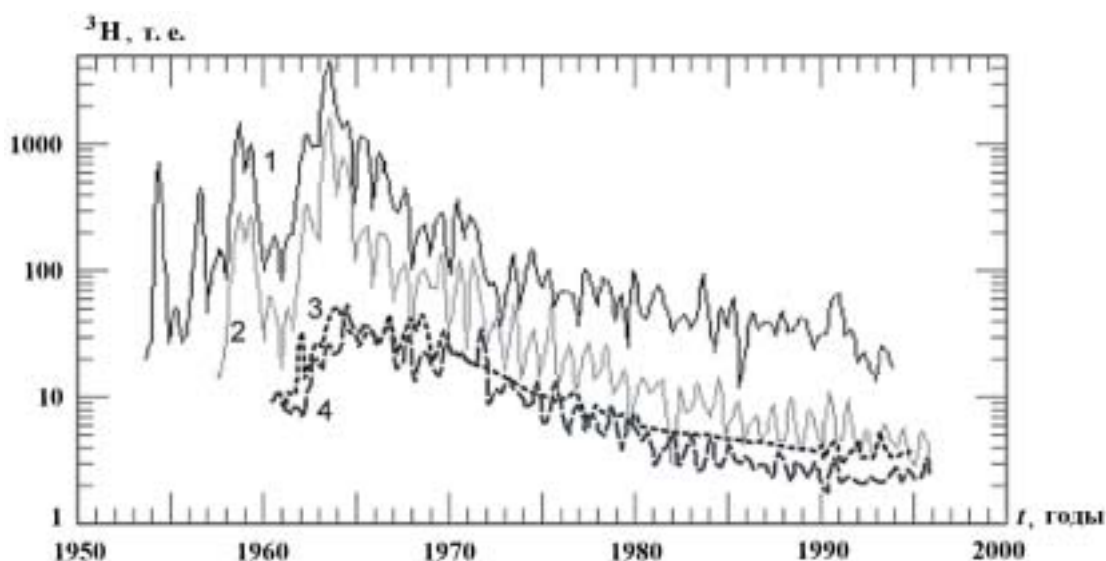


Рис. 1. Распределение содержаний трития в атмосферных осадках по станциям МАГАТЭ (1953—1996 гг.): 1 — Оттава (Канада); 2 — Валенсия (Ирландия); 3 — Хараре (Зимбабве); 4 — Каитоке (Новая Зеландия)

С достаточно хорошим приближением ФРВП может быть описана тремя распределениями — нормальным, пуассоновым и кусочно-постоянным.

- Указанные распределения имеют место, например, в следующих гидрогеологических ситуациях:
- при опробовании наблюдательных скважин в грунтовых горизонтах — нормальное или близкое к нему распределение  $t_i$  (рис. 2,а);
  - в гидравлически связанных пластах — пуассоновое распределение  $t_i$  (рис. 2,б);
  - при совместном опробовании гидравлически изолированных пластов с удаленными областями питания — кусочно-постоянное распределение  $t_i$  (рис. 2,в).

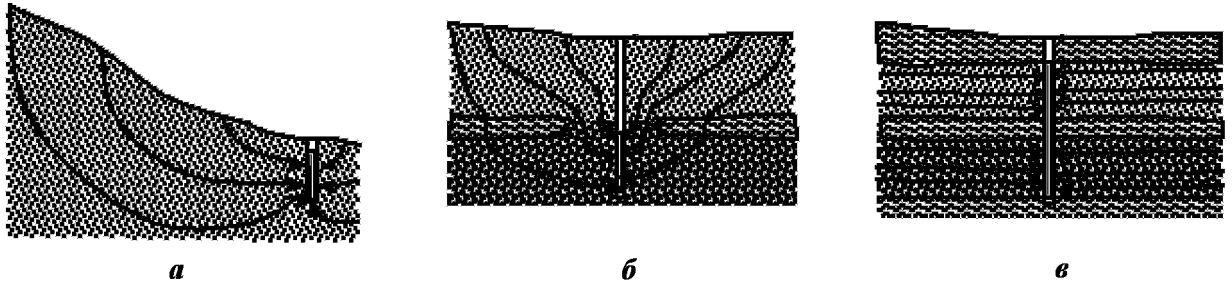


Рис. 2. Формирование функции распределения времени пребывания воды в подземной гидросфере для различных гидрогеологических ситуаций: а — нормальное распределение; б — пуассоновое распределение; в — кусочно-постоянное распределение

Для демонстрации эффекта смещения изотопного возраста относительно истинного гидравлического рассмотрим упрощенный случай, когда входная функция по тритию постоянна:  ${}^3\text{H}_0 = \text{const}$ .

### Предварительное обсуждение и определения

Здесь пока не обсуждается, зачем нужно датирование подземных вод. В случае, когда исследуемая вода является смесью вод разных возрастов (возможные причины будут рассмотрены ниже), очевидно, целью датирования в идеале является определение *возрастного* состава воды, т. е. исследование распределения возрастов воды, например, в виде некоторой функции  $p(\tau)$  (плотность вероятности возраста *частиц* воды  $\int_0^\infty p(\tau) d\tau = 1$ ). Полное и точное определение такой функции, видимо, невозможно, но желательно нахождение хотя бы основных характеристик этого распределения. В первую очередь это, очевидно, среднеинтегральный (гидравлический) возраст воды. Цель дальнейшего изложения — рассмотреть особенности определения такого возраста одним из изотопных способов датирования — так называемым  ${}^3\text{H}/{}^3\text{He}$ -методом. Сначала рассмотрим основные понятия, определения и обозначения.

**Модель неподвижной воды.** Начальная концентрация трития равна  $c_0$  (в атомах в единице объема). Текущая в момент времени  $\tau$  концентрация трития

$$c_{\text{H}} = c_0 e^{-\lambda\tau},$$

где  $\lambda = \ln 2/T_R$ ,  $T_R$  — период полураспада, для трития  $\lambda = 0,05654$  года $^{-1}$ . Возраст воды можно определить по  $c_{\text{H}}$  в виде

$$\tau = \frac{1}{\lambda} \ln \frac{c_0}{c_{\text{H}}}.$$

Начальная концентрация гелия  ${}^3\text{He}$  —  $c_{0\text{He}}$ , текущая —  $c_{\text{He}} = c_{0\text{He}} + c_0 (1 - e^{-\lambda\tau})$ . Текущее значение отношения концентраций  ${}^3\text{He}$  и  ${}^3\text{H}$

$$\frac{c_{\text{He}}}{c_{\text{H}}} = \frac{c_{0\text{He}} + c_0 (1 - e^{-\lambda\tau})}{c_0 e^{-\lambda\tau}} = \left( \frac{c_{0\text{He}}}{c_0} + 1 \right) e^{\lambda\tau} - 1.$$

Если  $c_{0\text{He}} = 0$ , то отношение не зависит от  $c_0$ , что позволяет определять  $\tau$  по этому отношению, не зная  $c_0$  (этого нельзя сделать, имея отдельную концентрацию).

**Смесь с непрерывно меняющимся возрастом при  $c_0 = c_0(\tau)$ .** Пусть в конечной смеси содержится вода с распределением возрастов  $p(\tau)$  (плотность вероятности возраста частиц воды  $\int_0^\infty p(\tau) d\tau = 1$ ,  $0 \leq \tau < \infty$ ). Гидравлический (среднеинтегральный) возраст воды  $\tau_m = \int_0^\infty \tau p(\tau) d\tau$ . Для *инертной* (нераспадающейся, при  $\lambda = 0$ ) примеси конечная (просто суммарная) концентрация равна  $c_{\text{const}} = \int_0^\infty c_0(\tau) p(\tau) d\tau$ . Конечная концентрация распадающегося трития соответственно равна  $c_{\text{H}} = \int_0^\infty c_0(\tau) p(\tau) e^{-\lambda\tau} d\tau$ . Тогда конечная концентрация  $^3\text{He}$  окажется равной  $c_{\text{He}} = \int_0^\infty [c_{0\text{He}}(\tau) + c_0(\tau)(1 - e^{-\lambda\tau})] p(\tau) d\tau$ . Текущее значение отношения концентраций  $^3\text{He}$  и  $^3\text{H}$  равно

$$\frac{c_{\text{He}}}{c_{\text{H}}} = \frac{\int_0^\infty [c_{0\text{He}}(\tau) + c_0(\tau)(1 - e^{-\lambda\tau})] p(\tau) d\tau}{\int_0^\infty c_0(\tau) e^{-\lambda\tau} p(\tau) d\tau},$$

даже при  $c_{0\text{He}} = 0$  получается довольно сложное выражение

$$\frac{c_{\text{He}}}{c_{\text{H}}} = \frac{\int_0^\infty c_0(\tau) p(\tau) d\tau}{\int_0^\infty c_0(\tau) e^{-\lambda\tau} p(\tau) d\tau} - 1,$$

так что, например, и при известном значении  $c_{\text{H}}/c_0$  отношение найти пока нельзя.

**Смесь с непрерывно меняющимся возрастом при  $c_0 = \text{const}$ .** В данном случае при  $c_{0\text{He}} = 0$  имеем  $c_{\text{He}}/c_{\text{H}} = \left( \int_0^\infty e^{-\lambda\tau} p(\tau) d\tau \right)^{-1} - 1$ , т. е. это отношение однозначно связано с величиной  $c_{\text{H}}/c_0 = \int_0^\infty e^{-\lambda\tau} p(\tau) d\tau$  при любых  $p(\tau)$  и все рассуждения можно вести только для  $c_{\text{H}}$ . Все эффекты влияния распределения  $p(\tau)$  на концентрацию  $c_{\text{H}}/c_0$  в этом случае сразу однозначно переносятся на отношение концентраций  $c_{\text{He}}/c_{\text{H}} = (c_{\text{H}}/c_0)^{-1} - 1$ . Впрочем, как можно видеть, это будет и при заданном  $c_{0\text{He}} = \text{const}$ .

Таким образом, если смешивается вода разных возрастов при переменных во времени начальных концентрациях  $c_0(\tau)$  (и  $c_{0\text{He}}(\tau)$ ), то в общем случае сложно сказать что-либо определенное о результате.

Положение значительно упрощается, если принять  $c_0 = \text{const}$ ,  $c_{0\text{He}} = \text{const}$ . При этом достаточно рассматривать влияние функции  $p(\tau)$ , характеризующей смешение, только на концентрацию трития. Ее влияние на отношение концентраций  $^3\text{He}$  и  $^3\text{H}$  и соответственно на датирование определится при этом однозначно. В частности, результат определения времени будет тем же самым.

Такую постановку проблемы и примем сначала. Будем иметь в виду, что здесь не нужно требовать стационарности течения или процесса — речь идет просто об образовании смеси из компонентов с разными возрастами.

Следует отметить, что в этой постановке проблема относится к датированию смесей вообще радиоизотопными методами, а не только воды  $^3\text{H}/^3\text{He}$ -методом. Так что не исключено, что эти вопросы уже были рассмотрены. Впрочем, хотя нет сомнений, что влияние *подмешивания* на датирование изучалось, но, возможно, при этом была нужна лишь погрешность датирования основного компо-

нента из-за подмешивания вспомогательного с другим возрастом. До погрешности определения среднего возраста смеси, авторы надеются, дело не доходило. В таком случае полученные результаты будут иметь более общую область применения.

### Случайный разброс в однородном грунте

Рассмотрим случай нормального распределения возрастов

$$p(\tau) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \exp\left(-\frac{1}{2}\left(\frac{\tau - \tau_m}{\sigma}\right)^2\right),$$

причем нормальное распределение задается (и теоретически отлично от нуля!) на всей оси  $-\infty < \tau < \infty$ , а не на полуоси  $0 < \tau < \infty$ , как должно быть по физическому смыслу. Последнее подтверждает, что распределение  $p(\tau)$  в этих задачах, строго говоря, не может быть нормальным. Но при  $\sigma \ll \tau_m$  будут достаточно обычными случаи, когда распределение практически не отличается от нормального. В частности, такие случаи, видимо, имеют место при фильтрации воды в средах типа песков, когда разброс времен пребывания происходит за счет обычной дисперсии.

Подсчитаем относительную концентрацию:

$$\frac{c_H}{c_0} = \int_{-\infty}^{\infty} p(\tau) e^{-\lambda\tau} d\tau = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{\tau - \tau_m}{\sigma}\right)^2} e^{-\lambda\tau} d\tau = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-\left[\frac{1}{2}\left(\frac{\tau - \tau_m}{\sigma}\right)^2 + \lambda\tau\right]} d\tau.$$

Показатель экспоненты в квадратных скобках можно представить в виде

$$\frac{1}{2}\left(\frac{\tau - \tau_m}{\sigma}\right)^2 + \lambda\tau = \frac{1}{2\sigma^2} [\tau - (\tau_m - b)]^2 + \lambda\left(\tau_m - \frac{b}{2}\right),$$

где  $b = \lambda\sigma^2$ . Следовательно,

$$\frac{c_H}{c_0} = e^{-\lambda(\tau_m - b/2)} \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{\tau - (\tau_m - b)}{\sigma}\right)^2} d\tau = e^{-\lambda(\tau_m - b/2)}.$$

То есть, если определять средний *изотопный* возраст воды по  $c_H/c_0$  обычным образом,  $\tau_H = \frac{1}{\lambda} \ln \frac{c_0}{c_H}$  (или по отношению  $c_{He}/c_H$  концентраций  ${}^3\text{He}$  и  ${}^3\text{H}$  по соответствующим формулам), то этот возраст в силу  $\tau_H = \tau_m - b/2$  окажется меньше гидравлического (среднеинтегрального)  $\tau_m$  на величину  $\frac{b}{2} = \frac{\lambda\sigma^2}{2} = \frac{\ln 2}{2} \frac{\sigma^2}{T_R} = \sigma \left(\frac{\ln 2}{2} \frac{\sigma}{T_R}\right)$ .

Таким образом, с одной стороны, определяемый  ${}^3\text{He}/{}^3\text{H}$ -методом средний изотопный возраст воды  $\tau_H$  не тождественен гидравлическому (среднеинтегральному)  $\tau_m$ . С другой стороны, при обычной дисперсии, когда  $\sigma/\tau_m \ll 1$ , причем  $\tau_m = O(T_R)$  (порядок  $\tau_m$  не выше периода полураспада), относительная погрешность  $\frac{\tau_m - \tau_H}{\tau_m}$  имеет второй порядок малости (по сравнению с относительным разбросом возрастов воды в смеси) и ее можно считать пренебрежимо малой, на практике отождествляя  $\tau_H$  и  $\tau_m$ . Впрочем, нужно иметь в виду, что если условия  $\sigma/\tau_m \ll 1$  и  $\tau_m = O(T_R)$  не выполняются, ошибка может быть заметной.

### Модель со случайными задержками частиц

Пусть при движении по пласту частица жидкости может задержаться (осесть за счет сорбции, оказаться в блоке, "блуждать поперек" по "извивам" пористой среды и т. п.) с экспоненциальным

распределением времени задержки. Такое распределение означает случайность выхода с независимой от времени оседания равномерной вероятностью (как бы со временем *полувыхода*, аналогично времени полураспада при распаде частиц). Так что через время  $t$  остается  $e^{-t/T_M}$  часть осевшего. Нетрудно определить, что здесь  $T_M$  — среднее время задержки (математическое ожидание), а  $T_M \ln 2$  — время полувыхода, когда остается половина осевших частиц ( $\ln 2 \approx 0,69$ ). При рассмотрении этих эффектов, как обычно, не будем рассматривать дисперсию, происходящую по другим причинам, считая, что без задержек все частицы воды прошли бы через пласт (точнее, весь путь под землей) за одно время  $T_f$  и к нему в данном процессе может добавляться время задержки с описанным распределением.

Таким образом, функция распределения возраста частиц будет

$$P(\tau) = \begin{cases} 0 & \text{при } \tau \leq T_f; \\ 1 - \exp\left(-\frac{\tau - T_f}{T_M}\right) & \text{при } \tau \geq T_f; \end{cases} \quad 0 \leq \tau < \infty.$$

Соответственно плотность распределения вероятностей

$$p(\tau) = \begin{cases} 0 & \text{при } \tau \leq T_f; \\ \frac{1}{T_M} e^{-\frac{\tau - T_f}{T_M}} & \text{при } \tau \geq T_f. \end{cases}$$

Среднее (гидравлическое) время пребывания частиц в пласте есть  $\tau_m = T_f + T_M$ .

Оценим теперь содержание изотопов. По приведенным выше формулам получаем для результирующей относительной концентрации распадающегося изотопа

$$\frac{c_H}{c_0} = \int_{T_f}^{\infty} p(\tau) e^{-\lambda\tau} d\tau = \frac{1}{T_M} \int_{T_f}^{\infty} e^{-\frac{\tau - T_f}{T_M}} e^{-\lambda\tau} d\tau.$$

Для выкладок представляется удобным перейти от  $\tau$  к  $t = \tau - T_f$ , а вместо  $\lambda$  ввести  $T_\lambda = \frac{1}{\lambda} = \frac{T_R}{\ln 2}$  — среднее время жизни трития. Тогда  $\frac{c_H}{c_0} = \frac{1}{T_M} \int_{T_f}^{\infty} e^{-t/T_M} e^{-t/T_\lambda} e^{-T_f/T_\lambda} dt = \frac{e^{-T_f/T_\lambda}}{T_M} \int_{T_f}^{\infty} e^{-(t/T_M + t/T_\lambda)} dt = \frac{e^{-T_f/T_\lambda}}{T_M} \frac{1}{t/T_M + t/T_\lambda}$  т. е.  $\frac{c_H}{c_0} = e^{-T_f/T_\lambda} \frac{1}{1 + T_M/T_\lambda}$ . Здесь множитель  $e^{-T_f/T_\lambda}$  дает концентрацию за счет прохождения пути за время  $T_f$ , второй множитель — уменьшение концентрации из-за задержек. Поэтому можно записать

$$\frac{c_H}{c_0} = e^{-T_f/T_\lambda} e^{-\ln(1 + T_M/T_\lambda)} = e^{-1/T_\lambda [T_f + T_\lambda \ln(1 + T_M/T_\lambda)]}.$$

Определяемое по результирующей концентрации изотопное время равно  $\tau_H = T_f + T_\lambda \ln(1 + T_M/T_\lambda)$ . Так как гидравлическое время  $\tau_m = T_f + T_M$ , то условная относительная разница равна  $\delta = \frac{\tau_m - \tau_H}{T_M} = 1 - k$ ,  $0 < \delta < 1$ , где  $k = \frac{\ln(1 + T_M/T_\lambda)}{T_M/T_\lambda}$  ( $0 < k < 1$ ) можно назвать коэффициентом изотопного искажения средней задержки, так как  $\tau_H = T_f + kT_M$ .

Таким образом, искажение времени определяется отношением  $T_M/T_\lambda$  среднего времени  $T_M$  задержки и среднего времени  $T_\lambda$  жизни изотопа. Это отношение, конечно, равно отношению периодов полувыхода/полураспада. Учитывая поведение функции  $\ln(1 + x)$  (например, из разложения в ряд) легко установить поведение  $k$  по аргументу  $T_M/T_\lambda$ . А именно,  $k$  близко к 1 при малых значениях отношения  $T_M/T_\lambda$  и  $k$  падает до нуля с ростом аргумента.

Расчеты показывают, что изотопная оценка  $T_M$  дает погрешность  $\delta$  до 1% при  $T_M < 0,02T_\lambda$ , около 9% при  $T_M < 0,2T_\lambda$ , около 30% при  $T_M \approx T_\lambda$ , около половины  $T_M$  при  $T_M = 2,5T_\lambda$ , в 4 раза (более 75%) при  $T_M = 10T_\lambda$ .

При необходимости можно ввести погрешность иначе. Истинное относительное отклонение должно включать время  $T_f$ . Но в целом можно сказать следующее. Изотопный возраст  $\tau_m$  меньше гидравлического  $\tau_H$  на величину, всегда меньшую среднего времени задержки  $T_M$ . Поэтому при  $T_M \ll T_f$  ( $T_f$  — время прохода пути без задержки) относительное отличие возрастов невелико. Но при времени задержки  $T_M$ , большем требуемой точности определения возраста, эти значения возрастов различаются на долю  $T_M$ , определяемую соотношением  $T_M/T_\lambda$  (равным отношению периодов полувыхода/полураспада). При малых  $T_M/T_\lambda$  погрешность невелика, но при соизмеримых значениях погрешность становится соизмеримой с величиной  $T_M$ .

### Оценки для неоднородного грунта (смесь вод двух возрастов)

Разброс возрастов воды в конечной смеси может быть вызван тем, что частицы воды двигались по разным участкам пласта с отличающимися свойствами — по одним участкам быстрее, по другим медленнее. Поставленная цель — оценить влияние именно неоднородности среды. Поэтому не будем учитывать дисперсию в грунте. Будем рассматривать горизонтальный пласт между двумя вертикальными плоскостями заданного напора (так что в однородном пласте все частицы движутся горизонтально, проходя один и тот же путь за одно и то же время).

Для простоты ограничимся линейной фильтрацией. Способность грунта пропускать частицы характеризует, например, величина  $k/m$ , где  $k$  — коэффициент фильтрации из закона Дарси  $v = -k\nabla h$ ;  $m$  — пористость;  $v$  — скорость фильтрации (среднеобъемная);  $v_\phi = v/m$  — скорость (средняя) частиц воды. Если свойства грунта имеют некоторые численные ограничения сверху и снизу, то можно ожидать, что неоднородность наиболее резко будет проявляться, когда у одних участков среды эти свойства имеют, скажем, наибольшие, у других — наименьшие значения. То есть среда — кусочно-однородная, с участками двух видов (без промежуточных значений).

Наибольшая разница возрастов будет, если одна вода двигалась все время по самым "быстрым", другая — по самым "медленным" участкам. Поэтому можно считать, что для оценки (сверху) влияния неоднородности на разброс возрастов и на определение среднего возраста смеси следует рассматривать фильтрацию в слоистом пласте со слоями двух видов. В каждом из слоев фильтрация будет одномерной. Так как дисперсия не учитывается, то существенно лишь соотношение суммарной толщины слоев каждого вида, число и толщина отдельных слоев неважны. Можно считать, что имеется всего два слоя, по одному каждого вида. Впрочем, в такой постановке речь идет просто о смешении вод двух возрастов в разном, вообще говоря, соотношении, необязательно за счет неоднородного грунта указанной схемы (и вообще неоднородного грунта).

Будет рассматривать относительные концентрации трития  $c = c_H/c_0$ .

1. Пусть доля воды с возрастом  $\tau_1$  в смеси равна  $q$ , с возрастом  $\tau_2$  — соответственно  $1 - q$ . Тогда гидравлический возраст

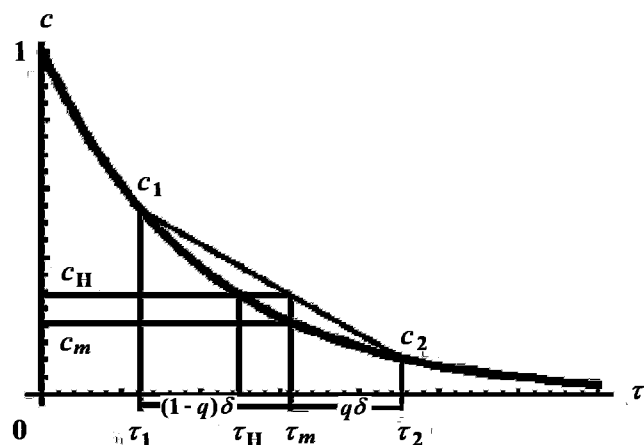


Рис. 3. Разница между изотопным и гидравлическим возрастaми

$$\tau_m = \tau_1 q + \tau_2 (1 - q) = \tau_1 + (1 - q) \delta = \tau_2 - \delta q,$$

где  $\delta = \tau_2 - \tau_1$ . При этом концентрация

$$\begin{aligned} c_H &= q c_1 + (1 - q) c_2 = q e^{-\lambda \tau_1} + (1 - q) e^{-\lambda \tau_2} = \\ &= e^{-\lambda \tau_1} \left[ q + (1 - q) e^{-\lambda \delta} \right] = e^{-\lambda \tau_2} \left[ 1 + q (e^{\lambda \delta} - 1) \right]. \end{aligned}$$

Можно показать, что  $c_H > e^{-\lambda \tau_m} = c_m$ , т. е. изотопный возраст  $\tau_H = -\frac{1}{\lambda} \ln c_H = \tau_2 - \frac{1}{\lambda} \ln (1 + q (e^{\lambda \delta} - 1))$  меньше гидравлического,  $\tau_H < \tau_m$ . Это видно из рис. 3. Разницу  $\Delta \tau = \tau_m - \tau_H$  при заданном  $q$  можно найти, например, в форме  $\lambda \Delta \tau = \ln (1 + q (e^{\lambda \delta} - 1)) - \lambda \delta q$ .

2. Видно, что для каждой пары  $\tau_1, \tau_2$  различие  $\tau_m$  и  $\tau_H$  будет наибольшим при некотором *средней*  $q$ . Этому соответствует точка кривой с таким же наклоном, как у секущей  $c_1c_2$  (см. рис. 3), т. е. при  $c' = \frac{c_2 - c_1}{\tau_2 - \tau_1}$  или  $c_M = \frac{c_1 - c_2}{\ln(c_1/c_2)}$ . Любопытно, что, таким образом, наибольшее расстояние этой кривой от секущей достигается при так называемом среднелогарифмическом значении, т. е. среднеинтегральном для экспоненциальной функции (а в безразмерном виде координата равна наклону секущей). Если выразить через  $\tau_1, \tau_2$ , то  $c_M = \frac{e^{-\lambda\tau_1} - e^{-\lambda\tau_2}}{\lambda\delta}$  и соответственно на кривой будем иметь изотопное время  $\tau_{HM} = -\frac{1}{\lambda} \ln c_M$ . Далее вычисляется  $q_M = \frac{c_M - c_2}{c_1 - c_2} = \frac{1}{\lambda\delta} - \frac{1}{c/c_2 - 1} = \frac{1}{\lambda\delta} - \frac{1}{e^{\lambda\delta} - 1}$  и соответственно гидравлическое время  $\tau_{mM} = \tau_2 - \delta q_M = \tau_2 - \frac{1}{\lambda} + \frac{\delta}{e^{\lambda\delta} - 1}$ . Отсюда

$$\Delta\tau_M = \tau_{mM} - \tau_{HM} = \tau_2 - \delta q_M = \tau_2 + \frac{\delta}{e^{\lambda\delta} - 1} + \frac{1}{\lambda} = \frac{\delta}{e^{\lambda\delta} - 1} + \frac{1}{\lambda} \left( \ln \frac{e^{\lambda\delta} - 1}{\lambda\delta} - 1 \right) \left( \ln \frac{e^{-\lambda\tau_1} - e^{-\lambda\tau_2}}{\lambda\delta} - 1 \right).$$

Таким образом,  $\lambda\Delta\tau = \ln \frac{e^{\lambda\delta} - 1}{\lambda\delta} + \frac{\lambda\delta}{e^{\lambda\delta} - 1} - 1$ . Здесь естественно использование безразмерного времени  $t = \lambda\tau = \ln 2(\tau/T_R) \approx 0,693\tau/T_R$ . Для трития  ${}^3\text{H}$  и  $\tau$  в годах  $t \approx 0,0565\tau \approx \tau/17,7$ . Если обозначить  $D = t_2 - t_1 = \lambda\delta = \lambda(\tau_2 - \tau_1)$  и  $\xi = \frac{D}{e^D - 1}$ , то для этих величин

$$c_M = \frac{c_2}{\xi}; \quad q_M = \frac{1 - \xi}{D}; \quad t_{mM} = t_2 - (1 - \xi); \quad t_{HM} = t_2 + \ln \xi; \quad \Delta t = \ln \frac{1}{\xi} - (1 - \xi).$$

Видно, что разность безразмерных гидравлического и изотопного возрастов зависит лишь от разности возрастов компонентов воды. Это естественно, так как в случае экспоненты сдвиг по горизонтальной оси ( $\tau$ ) соответствует масштабированию по вертикальной оси ( $c$ ). Рассматриваемые свойства не изменятся, если принять  $\tau_1 = 0$  (отсчет времени от  $\tau_1$ ) и  $c_1 = 1$  (концентрация относительно  $c_1$ ). Тогда выкладки упростятся.

Отметим основные значения рассмотренных здесь величин. При  $\lambda\delta = D = \{0,1; 1; 10; 100; 1000\}$   $\Delta t/D = \Delta\tau/\delta = \{0,0125; 0,123; 0,670; 0,944; 0,992\}$ ,  $q = \{0,4995; 0,408; 0,291; 0,173; 0,0177\}$ .

## Выводы

В работе рассмотрены особенности изотопного  ${}^3\text{H}/{}^3\text{He}$ -метода датирования подземных вод, связанные с тем, что на практике исследуемая этим методом вода оказывается смесью вод с разным возрастом (временем пребывания под землей) вследствие тех или иных особенностей механизма переноса. Показано, что гидравлический (средний) возраст воды при этом не совпадает с изотопным возрастом, определяемым этим методом (возрастом, который должна бы иметь *однородная* вода с таким же изотопным составом).

Рассмотрены схемы подземного переноса воды, соответствующие трем видам функции распределения в смеси вод разного возраста, — с нормальным распределением, с распределением Пуассона и кусочно-постоянным распределением. Для каждого из них получены явные аналитические выражения и оценки расхождений, выявлены причины их появления.

Из формул следует, что изотопный возраст всегда оказывается меньшим гидравлического, но при малом разбросе возрастов в смеси это расхождение будет малым. Однако в определенных случаях расхождение может быть существенным, причем это определяется не только отношением разброса возрастов и времени переноса, но и соотношением с временем полураспада трассера (трития).

Работа выполнена при поддержке МНТЦ (грант № 3590).



### Список литературы

1. Толстихин И. Н., Каменский И. Л. О возможности определения возраста подземной воды тритий—гелий-3 методом // Геохимия. 1969. № 8. С. 1027—1029.
2. Мамырин Б. А., Толстихин И. Н. Изотопы гелия в природе. М.: Энергоатомиздат, 1981. С. 224.
3. Varni M., Carrera J. Simulation of groundwater age distribution // Water Res. Researches. 1998. Vol. 34, No 12. P. 3271—3281.
4. Kamensky I. L., Tokarev I. V. and Tolstikhin I. N.  $^3\text{H}/^3\text{He}$  dating: a case for mixing of young and old groundwaters // Geoch. et Cosmoch. Acta. 1991. Vol. 55, No 10. P. 2895—2900.
5. Mazor E. Paleotemperatures and other hydrological parameters deduced from noble gases dissolved in groundwaters // Ibid. 1972. Vol. 36. P. 1321—1336.
6. Weiss R. F. The solubility of helium and neon argon in water and seawater // J. of Chemical Eng. Data. 1971. Vol. 16. P. 235—241.
7. Фор Г. Основы изотопной геологии. М.: Мир, 1989.
8. Akulov Yu. A. and Mamyrin B. A. Half-lives of atomic tritium and free triton determined from the chemical shift of the beta decay time constant // Technical Physics Letters. 2000. Vol. 26, No 6. P. 458—460.

Статья поступила в редакцию 18.04.08.

---