МОДЕЛИРОВАНИЕ И ПРОГНОЗ СОСТОЯНИЯ ПРИРОДНЫХ СРЕД В ЗОНЕ ВОЗДЕЙСТВИЯ МЕДНО-НИКЕЛЕВОГО КОМБИНАТА: СБАЛАНСИРОВАННАЯ МОДЕЛЬ ТРАНСФОРМАЦИИ АТМОСФЕРНЫХ ВЫПАДЕНИЙ НА ВОДОСБОРЕ И В ОЗЕРЕ

© 2023 г. А. В. Соколов^{а, b,} *, Т. И. Моисеенко^а, Н. А. Гашкина^а, Ю. Г. Таций^а

^аИнститут геохимии и аналитической химии им. В.И. Вернадского РАН, ул. Косыгина, 19, Москва, 119991 Россия

^bИнститут проблем передачи информации им. А.А. Харкевича РАН,

Б. Каретный пер., д. 19, стр. 1, Москва, 127051 Россия *e-mail: alexander.v.sokolov@gmail.com Поступила в редакцию 25.09.2022 г. После доработки 06.01.2023 г. Принята к публикации 28.01.2023 г.

В статье рассматривается моделирование динамики концентрации никеля в почвах, воде и донных отложениях озер, вызванное выбросами в атмосферу комбината Печенганикель (Кольский полуостров) в течение всего периода его функционирования. Используется технология сбалансированной идентификации, которая позволяет на основе математического описания разнородных геохимических процессов, протекающих в экосистемах, объединить разнородные экспериментальные данные и построить компьютерную модель с оптимальным балансом сложности и близости к данным. Модель используется для анализа пространственно-временной изменчивости природных объектов в зоне распространения атмосферных загрязнений (никелем) от комбината Печенганикель. Приводятся и обсуждаются результаты, в том числе оценки ретроспективного состояния моделируемых объектов (до начала интенсивных исследований) и прогноз их динамики до 2030 г. По модельным расчетам интенсивность накопления Ni в почве и донных отложениях составляла 2.35 и 4.48 мг/м² год в периоды максимальных выпадений (1980–2005 гг.), тогда как по прогнозу после остановки комбината начнется снижение интенсивности накопления Ni в донных отложениях (0.23 мг/м² год) и медленное выщелачивание Ni из почвы (0.19 мг/м² год).

Ключевые слова: трансформация загрязнений, никель, субарктические водные и наземные экосистемы, математическое моделирование, сбалансированная идентификация, прогнозирование **DOI:** 10.31857/S0016752523060092, **EDN:** DTQVDZ

введение

Стремительный рост численности населения на планете, экстенсивное вовлечение в эксплуатацию минерально-сырьевых ресурсов драматическим образом сказались на состоянии окружающей среды и привели к ряду серьезных экологических проблем. Осознание комплекса негативных последствий загрязнения привело к пониманию необходимости снижения загрязнений и восстановления нарушенных экосистем. В 2019 г. Генеральная ассамблея ООН объявила 2021-2031 гг. "Десятилетием ООН по восстановлению экосистем". Его цель – ускорение глобального восстановления деградированных экосистем, обеспечение населения чистой водой и защита биоразнообразия на планете (Waltham et al., 2020). Наиболее сложной задачей является определение конечных целей восстановления с учетом пролонгированного

влияния накопленного загрязнения и сопутствующих биогеохимических процессов на фоне происходящих климатических изменений. В ряде работ (Strobl et al., 2019; Zipkin et al., 2021; Stavi et al., 2019) подчеркивается, что практика экологического восстановления должна быть основана на законах фундаментальной науки – изучении многофункциональности и многообразия процессов, развивающихся в период восстановления. Rydgren et al. (2019) показали, что результаты восстановления могут быть непредсказуемы, и чтобы добиться успехов в области прогнозирования восстановления, необходимо использовать теоретические знания о взаимосвязанности и взаимообусловленности биогеохимических процессов в экосистемах. Необходимо в первую очередь исследовать, как долго природные среды будут освобождаться от загрязнения с учетом длительного периода их накопления.

Функционирование медно-никелевых плавильных производств на Кольском Севере России привело к значительному загрязнению окружающей среды никелем, медью, кадмием и другими металлами. Диоксид серы и большая группа тяжелых металлов присутствовали в составе дымовых выбросов, причем среди тяжелых металлов наиболее высокие концентрации имели медь и никель. Доказано, что тяжелые металлы, поступившие в окружающую среду и содержащиеся в воде, обладают высокой опасностью, как для животных, так и человека (Моисеенко и др., 2010). Экономический кризис 1990-х и последующая модернизация технологий привели к снижению потока тяжелых металлов в окружающую среду. В этот период было проведено много исследований, которые подтвердили негативные последствия атмосферных выбросов тяжелых металлов и их сброса в водные системы (Moiseenko, 1999; Моисеенко, Гашкина, 2010; Даувальтер и др. 2015). В 2020 году плавильные производства комбината "Печенганикель" остановили свою работу. Опыт Канады подтверждает (Nriagu et al., 1998), что значительное уменьшение выбросов в атмосферу (с 1970 годов) не приводит к быстрому очищению почв от загрязнения тяжелыми металлами, поскольку проявляются вторичные эффекты перераспределения загрязнения в окружающей среде.

В представленной работе были рассмотрены малые озера в зоне распространения металлов с дымовыми выбросами, которые отражают аэротехногенное загрязнение, включая и трансграничные переносы. В основу модели легли данные, характеризующие поведение элементов (в нашем случае, никеля) в системе "водосбор—водоем". Исследования были начаты в 1990—1995 гг. в рамках крупного проекта "Survey lakes", (Kvaeven et al., 2001). В этот период в проект были включены и работы на Кольском Севере России (Skjelkvale et al., 2001). В объективе исследований и соответственно моделирования находились озера аэротехногенного загрязнения, не испытывающие каких-либо стоков.

Математическое моделирование последствий атмосферных загрязнений Кольского полуострова осуществляется несколько десятилетий. Для моделирования выпадения используются модели двух типов: модели, основанные на знаниях (knowledge based models) и модели, основанные на данных (data based models). В моделях первого типа используются сложные модели атмосферного переноса, а экспериментальные данные играют второстепенную роль (результаты применения таких моделей можно найти в Rognerud et al., 1993; Tømmervik et al., 1998). Для их применения, помимо описания динамики атмосферы, необходимо задать значительное количество специальных коэффициентов, определяющих источники выбросов, многие из которых неизвестны. В моделях второго типа используются относительно

простые модели выпадения, однако они строятся на основе большого объема специально собранных данных. Полученные в результате модели (Раткин и др., 2001, Раткин, 2001) не уступают первым по точности и до сих пор успешно используются в сложных распределенных моделях (Motovilov, 2013; Мотовилов, 2015), подробно (с шагом по времени 1 день) описывающих динамику загрязнений в речных бассейнах.

Разрабатываемая модель требует особых подходов и совсем иных исходных данных в отличие от вышеприведенных работ. Метод построения моделей сочетает преимущества обоих подходов — мы используем значительный объем разнородных (экспериментальных) данных и для него выбираем модель соответствующей сложности, содержащую (в виде различных уравнений и неравенств) современные знания о функционировании объекта исследования.

Целью работы являлась разработка модели "отклика" малых озер в зоне аэротехногенного загрязнения и не испытывающих никаких воздействий сточных вод, учитывающей геохимические процессы миграции элементов — от выпадений на водосборе, накопления и вымывания из почвы, осаждение в донных отложениях и до удаления с естественным стоком из озера. Дать ретроспективные и прогнозные оценки выпадению металлов из загрязненной атмосферы по данным моделирования, последующего самоочищения водных систем после сокращения выпадений (на примере одного из основных загрязняющих элементов — никеля).

МЕТОДОЛОГИЯ И МЕТОДЫ МОДЕЛИРОВАНИЯ

Методологической основой исследования является математическое моделирование, которое на основе объединения существующих знаний о природных процессах и разнородного экспериментального материала. позволяет сделать выводы о прошлом, настоящем и будущем изучаемого объекта – природной среды в районе воздействия атмосферных выбросов комбината "Печенганикель". Для этого используется технология сбалансированной идентификации. В качестве временного интервала моделирования предлагается выбрать диапазон с 1946 по 2030 г. При этом необходимо отметить, что данные по выбросам имеются лишь с 1975 г., а интенсивное исследование последствий загрязнения (и, соответственно, поступление экспериментального материала) началось лишь в 90-х годах прошлого века.

Как восстановить прошлое? Современные исследователи ищут "следы" прошлых событий в сегодняшнем состоянии природных объектов. Такая информация о загрязнении различных слоев почв и донных отложений позволяет реконструировать прошлое. Причем, если в почве отражается накопление в целом, то анализ донных отложений (послойный, с датировкой слоев) позволяет качественно и количественно оценить динамику накопления и, следовательно, выбросов. Использование таких интегральных данных при наличии адекватных моделей позволяет оценить и прошлое состояние озер, почв, растительного покрова и т.д.

Как прогнозировать будущее? Прогноз делается для заданного сценария воздействия (полное прекращение атмосферных выбросов) в предположении, что выявленные закономерности (и построенная на их основе математическая модель) справедливы в течение периода прогноза. Выявление расхождения при сравнении прогноза с реальностью является поводом для критического анализа модели, ее модификации или пересмотра принятого сценария воздействия.

Анализ существующего экспериментального материала (см. следующий раздел) позволил сформулировать следующие формальные требования к модели.

 Временной интервал моделирования должен включать весь период интенсивных атмосферных выбросов и некоторое время, после их прекращения – с 1946 по 2030 г. Шаг по времени 1 год представляется достаточным.

 Область моделирования определяется дальностью переноса выбросов и должна включать "эталонные" озера, не подвергшиеся сильному загрязнению — 100 км от комбината. Единицей моделирования является небольшой водосбор с озером. Такой выбор объясняется с одной стороны наличием многолетних систематических исследований озер, с другой – тем, что малые озера, питание которых осуществляется на 79-90% за счет атмосферных выпадений, наилучшим образом отражают атмосферные потоки загрязняющих веществ на водосборы (Moiseenko et al., 2020). Кроме того относительно небольшой размер водосбора позволяет считать его однородным объектом, пренебречь его распределенной, территориальной структурой и считать, что интенсивность выпадений одинакова на всей его площади.

 В модели необходимо рассмотреть атмосферный перенос загрязнителей, их выпадение на поверхность, формализовать процессы миграции в почве, воде озера и донных отложениях.

На начальном этапе исследования предлагается ограничиться одним загрязняющим элементом — тяжелым металлом никелем (Ni).

До последнего времени, построить по разнородным экспериментальным данным нелинейную распределенную модель динамики нескольких показателей было затруднительно. Появившееся специальное программное обеспечение и

ГЕОХИМИЯ том 68 № 7 2023

доступность мощных вычислительных ресурсов (кластеров) позволили создать технологию для решения задач такой сложности — технологию сбалансированной идентификации (Соколов, Волошинов, 2018; Sokolov, Voloshinov, 2020). Отметим, что технология успешно использовалась при решении обратных задач в различных научных областях (механика, физика плазмы, теплопроводность, биология, физиология растений, эпидемиология, метеорология, перенос атмосферных загрязнений и др., более развернутое перечисление можно найти в (Sokolov, Voloshinov, 2020)).

Технология сбалансированной идентификации

Математические модели реальных объектов обычно содержат множество неизвестных параметров и функций, которые необходимо определить (идентифицировать) так, чтобы они удовлетворяли представлениям специалистов о закономерностях функционирования моделируемого объекта и проходили "недалеко" от экспериментальных данных. Объем таких знаний и количество данных, их качество (точность и надежность) и определяют сложность модели. Проиллюстрируем выбор оптимально сбалансированного решения (модели) простым примером. На рис. 1 приведены три решения задачи идентификации простейшей модели (функции f(t)), аппроксимирующей данные (в качестве примера используются данные по атмосферным выбросам комбината E_i).

Все три решения получены путем минимизации критерия идентификации (функционала)

$$F(f,\alpha) = \sum_{k=1975}^{2019} (E_k - f(t_k))^2 + \alpha \int_{1975}^{2019} \left(\frac{d^2 f}{dt^2}\right)^2 dt \to \min_{f(\cdot)},$$
(1)

где первое слагаемое отвечает за близость к данным (квадратичное отклонение), а второе за сложность модели (кривизну функции). Прямая на рис. 1а является простейшим вариантом линейной аппроксимации ($\alpha \to \infty$), она проходит слишком далеко от исходных данных. Ее противоположностью является кривая на рис. 1в – слишком сложная (переобученная) модель ($\alpha \to 0$), воспроизводящая, помимо сути явления, все ошибки. Наконец, кривая на рис. 1б соответствует оптимальному балансу между близостью модели (функции) к измерениям и ее простотой. В последнем случае значение α выбирается путем минимизации среднеквадратичной ошибки кроссвалидации.

Технология сбалансированной идентификации позволяет решать и более сложные задачи, в которых модели могут содержать значительное число уравнений с большим количеством неиз-



Рис. 1. Три варианта аппроксимации данных в зависимости от соотношения объема данных (*D*) сложности модели (*M*): (а) – слишком простая (недообученная) модель, (б) – оптимально сбалансированная модель, (в) – слишком сложная (переобученная) модель.



Рис. 2. Точки проведения исследований – 84 водосбора в зоне моделирования (влияния атмосферных выбросов комбината): *1* – источники выбросов, *2* – выпадения, *3* – почва, *4* – озера, *5* – донные отложения.

вестных функций. Для их идентификации могут использоваться разнородные данные. Критерий идентификации (1) в этом случае содержит слагаемые, соответствующие близости к каждому типу данных и слагаемые, формализующие понятие сложности для каждой неизвестной функции. Результатом применения технологии являются выбор математической модели с оптимальным балансом сложности и близости ее траектории к экспериментальным данным, оценки надежности данных и погрешностей моделирования (Соколов, Волошинов, 2018; Sokolov, Voloshinov, 2020), графические и числовые результаты моделирования исследуемого объекта.

Использованные данные

В основу модели легли современные представления о функционировании экосистемы водосбора, включая озеро, и многочисленные натурные и экспериментальные данные. Были учтены систематические (с 1990 по 2018 г. с интервалом 4—5 лет) данные по состоянию 25 озер вокруг комбината (рис. 2). В процессе выполнения работы были привлечены опубликованные данные по атмосферным выбросам, выпадению, состоянию почв и донных отложений. Следует отметить, что используемые источники данных, являются результатом различных исследований и проектов, слабо связанных между собой.

В результате анализа научной литературы по последствиям выбросов загрязняющих веществ в исследуемом регионе удалось собрать экспериментальные данные, связанные со всеми компонентами модели. Кратко перечислим используемые источники и обозначим их роль в построении модели. Атмосферные выбросы загрязнений. Для вычисления выпадений никеля необходимы оценки выбросов: до 1997 г. такие данные можно найти в (Кашулина, 2002) и (Раткин, 2001), после – в официальной статистике, в форме № 2-тп (воздух).

Розы ветров. Для расчета переноса атмосферных загрязнений необходимо знать розы ветров для двух источников загрязнений в поселке городского типа Никель и г. Заполярный

https://world-weather.ru/archive/russia/nikel/ https://world-weather.ru/archive/russia/zapolyarny/

Выпадение (годовое поступление) — текущий (на данный момент) показатель выпадения. Имеется 8 точек за 2005 г. из отчета (Current State..., 2008).

Почва — интегральный показатель выпадения, суммирует выпадения до момента проведения измерений. В работе используются данные по концентрации Ni: 4 точки за 2000 г. (Рассеянные элементы..., 2004), 14 точек за 2014 г. (Евдокимова и др., 2014) и 3 колонки, полученные нами в 2018 г. Фоновые значения берутся из нижнего горизонта.

Озера. Концентрации различных элементов (1990–2018) – быстрый (подвижный) показатель выпадения и медленный – выщелачивания из почв. Кроме того, используются площади водосбора и исследуемого озера. Всего имеется около 500 записей по озерам и времени. Это данные являются основой данного исследования, они собирались более двух десятилетий по единой методической схеме. Более подробное описание можно найти в (Moiseenko et al., 2020; Гашкина, Моисеенко, 2016). На данном этапе моделирования были выбраны 25 озер, которые попали в регион моделирования и для которых имеется много измерений в различные моменты времени (что существенно для описания временной динамики).

Поступление в донные отложения. Есть 2 точки по скорости аккумуляции осадков (Norton et al., 1996): одна для 1956, 1976, 1986 гг., другая для 1971 и 1986 гг.

Донные отложения — интегральный показатель выпадения, слои с привязкой к временным интервалам, отражают выпадения за эти периоды. Имеются концентрации в верхнем слое — 50 озер для 1992 г. из (Rognerud et al., 1993) (координаты добавлены нами). Используются оценки скорости седиментации из (Norton et al., 1996). Две колонки с датировкой из (Даувальтер и др., 2012; Даувальтер и др., 2015). В исследование добавлены также новые данные, полученные нами в 2018 г. для двух колонок донных отложений с датировкой.

На карте (рис. 2) приведены данные, связанные с последствиями атмосферных загрязнений комбината. Они используются для идентификации модели. Для моделирования предлагается выбрать регион с центром в г. Заполярный (именно здесь находится начало координат). В регионе находятся два источника атмосферных выбросов Ni: поселок городского типа Никель (металлургия) и г. Заполярный (горно-обогатительный комбинат). Всего рассматривается 84 водосбора. Суммарная площадь бассейнов — 2181 км². Суммарная площадь озер — 150 км².

Описание модели трансформации атмосферных загрязнений

Балансовая модель трансформации атмосферных выбросов Ni в почве, воде и донных отложениях для одного источника и отдельного водосбора представлена на рис. 3 в виде потоковой диаграммы. Рассмотрим балансовую модель трансформации атмосферных выбросов Ni в почве, воде и донных отложениях. Единицей моделирования является озеро с соответствующим водосбором (почвой). Модель описывает 2 источника выбросов и 84 (не взаимодействующих между собой) водосбора.

Трансформацию загрязнений для водосбора, представленную на рис. 3, можно описать следующим образом. Источником загрязнения является промышленность (номер 1). С интенсивностью P(t) (номер 2) часть загрязнений выбрасывается в атмосферу (номер 3), откуда выпадает на поверхность в зависимости от времени t, расстояния до источника r и направления fi: интенсивность выпадения нерастворимых форм (номер 4а) Dunsol(t, fi, r), растворимых (номер 4b) Dsol(t, fi, r). Нерастворимая часть загрязнений попадает в почву (номер 5) и в донные отложения (номер 11). Загрязнение, попавшее в почву, частично задерживается в ней, частично смывается в донные отложения или переходит в растворимую форму (номер 6) и попадает в воду озера (номер 7). Загрязнения в растворимой форме попадают с интенсивностью Dsol(t, fi, r) (номер 4b) в воду озера, откуда могут выноситься с интенсивностью R (номер 8).

Схема на рис. 3, отражает лишь общее представление о функционировании объекта. Приведем более полное формальное математическое описание (основные уравнения) модели для водосбора. Каждый водосбор разбивается на две части: суша (площадь SQ_S) и озеро (площадь SQ_W). Начальный момент моделирования — 1946 г. Используемые обозначения расшифровываются в табл. 1.

1. Выпадение загрязняющих веществ от каждого источника. Предполагается мультипликативное представление функции.

Для источника в г. Никель (N):

 $D_N(\mathbf{t}, \boldsymbol{\varphi}_N, \boldsymbol{r}_N) = P_N(\mathbf{t}) R_N(\boldsymbol{r}_N) F I_N(\boldsymbol{\varphi}_N),$



Рис. 3. Схематическое представление трансформации (атмосферных) загрязнений для водосбора.

где r_N — расстояние от источника до водосбора и ϕ_N — соответствующее направление (полярные координаты).

Аналогично для источника в г. Заполярный:

$$D_Z(t, \varphi_Z, r_Z) = P_Z(t)R_Z(r_Z)FI_Z(\varphi_Z)$$

2. Для каждого водосбора выпадение загрязняющих веществ (в растворимой и нерастворимой форме) от двух источников суммируется:

$$Dsol(t) = D_N(t, \varphi_N, r_N)sol(r_N) + D_Z(t, \varphi_Z, r_Z)sol(r_Z),$$

$$Dunsol(t) = D_N(t, \varphi_N, r_N)unsol(r_N) +$$

$$+ D_Z(t, \varphi_Z, r_Z)unsol(r_Z).$$

3. Динамика запасов (содержания) загрязнения в почве:

$$dS/dt = Dunsol(t)(1-Snow) - leachS(t),$$

$$S(0) = S_{fon}.$$

Предполагается, что в начальный момент запасы в почве соответствуют фоновым значениям, что в почве остаются только нерастворимые формы, выпавшие в бесснежный период, что процесс выщелачивания переводит Ni в растворимую форму, которая выносится из почвы в воду.

4. Динамика содержания (концентрации) загрязнения в воде озера

$$\frac{dW}{dt} = (Dsol(t) + leachS(t)SQ_S/(SQ_W + SQ_S) - precipW)/(H + precip).$$

Предполагается, что все растворимые формы попадают в озеро вместе со всеми осадками (*precip* = 0.40 м/год), что все растворимые формы, образовавшиеся в почве в результате выщелачивания, добавляются в воду озера.

5. Донные отложения (по слоям): $B(t) = Dinsol(t)(1 + SQ_S/SQ_W)Snow + B_{fon}$.

Сокращения	Расшифровка	Ед. изм.
t	Время	год
r	Расстояние от источника загрязнения до точки выпадения	KM
φ	Угол направления от источника загрязнения до точки выпадения	град
<i>P</i> (t)	Мощность источника	т/год
R(r)	Зависимость интенсивности выпадения от <i>r</i>	1/м ²
$Fi(\phi)$	Зависимость интенсивности выпадения от ф	_
D	Интенсивность выпадения (на единицу площади в единицу времени)	мг/м ² /год
Dsol	Интенсивность выпадения растворимой формы загрязнителя	мг/м ² /год
Dinsol	Интенсивность выпадения нерастворимой формы загрязнителя	мг/м ² /год
sol	Доля растворимой формы	_
insol	Доля нерастворимой формы	_
<i>S</i> (t)	Запас загрязнителя в почве в момент времени t	мг/м ²
Snow	Часть года со снежным покровом	_
leach	Выщелачивание: переход из нерастворимой в растворимую (результатом иденти- фикации является <i>leach</i> = 0.001)	1/год
S _{fon}	Фоновые значения запасов в почве	мг/м ²
<i>W</i> (t)	Концентрация загрязнителя в воде озера в момент времени t	мг/м ³
SQ_S	Площадь суши	м ²
SQ_W	Площадь озера	м ²
precip	Осадки	м/год
Н	Условная глубина озера. Определяет интенсивность водообмена (результатом идентификации является <i>H</i> = 1.2)	М
<i>B</i> (t)	Ежегодное поступление загрязнителя в донные отложения в момент времени t. Запас загрязнителя в слое t	мг/м ² год
B _{fon}	Фоновое ежегодное поступление загрязнителя в донные отложения	мг/м ² год

Таблица 1. Сокращения и единицы измерения

Предполагается, что слой донных отложений формируется из нерастворимых форм, попадающих непосредственно на поверхность озера, из нерастворимых форм, попадающих непосредственно на сушу в зимний период (и попавших в озеро в половодье) и из фонового значения, отражающее доиндустриальные процессы выветривания коренных пород и выщелачивания почв.

Модель содержит множество неизвестных функций, которые необходимо определить (идентифицировать) так, чтобы обеспечить баланс между близостью траектории модели к данным и сложностью модели. Для этого и используется технология сбалансированной идентификации. Критерий идентификации и операторы, связывающие переменные модели с измерениями, здесь не приводятся.

РЕЗУЛЬТАТЫ МОДЕЛИРОВАНИЯ И ПРОГНОЗ ЗАГРЯЗНЕНИЙ

Приведем некоторые полученные результаты моделирования состояния водосборов, находящихся в зоне действия атмосферных выбросов комбината "Печенганикель" (см. рис. 2), на временном интервале 1946–2030 гг. Реальные данные имеются до 2019 г. (выбросы) – так что можно считать, что прогноз осуществляется с 2019 г. Основным предположением прогноза является полное прекращение атмосферных выбросов комбината с 2022 г.

Выбросы Ni

Исходные данные и результаты моделирования динамики атмосферных выбросов приводят-

СОКОЛОВ и др.



Рис. 4. Данные и результаты моделирования динамики атмосферных выбросов.



Рис. 5. (а) Распределение выпадения Ni. (б) Баланс накопления Ni.

ся на рис. 4. Модельная кривая до 1975 г. — ретроспективные оценки выбросов. Данные с 2022 по 2030 гг. — прогноз нулевых выбросов. Значения в первых двух точках оценочные и, по-видимому, сильно занижены.

Поступление и накопление Ni

Распределение выпадения Ni по составляющим: почва (суша), вода (озера) и донные отложения для среднего водосбора приведено на рис. 5а. Из графика видно, что около 40% ежегодного выпадения Ni поступает в донные отложения и приблизительно по 30% — в воду и в почву. Здесь и далее под средним водосбором будем подразумевать среднее по 84 водосборам, взвешенное по площади.

Баланс накопления Ni по составляющим: почва (суша), вода (озера), донные отложения и потери со стоком для среднего водосбора на рис. 5б показывает, что около 50% выпавшего Ni накапливается в донных отложениях, 30% уходит со стоком и 20% накапливается в почве. Накоплением в воде можно пренебречь. Заметим, что с 2020-х гг. потери со стоком только начинают отражаться на медленном снижении накопления в почве при стабилизации накопления в донных отложениях.

Динамика концентрации Ni воде и содержания Ni в почве

Так как загрязнение воды и почвы представляют особый интерес, приведем их динамику на отдельных графиках.

На рис. ба приведена динамика концентрации Ni в воде озер для среднего водосбора. Сравнение кривой на рис. ба с исходными данными и результатами моделирования динамики атмосферных выбросов (рис. 4), позволяет сделать вывод, что вода в целом отслеживает динамику ежегодного выпадения Ni и к 2030 г. прогнозируется возвращение к фоновым значениям.

Динамика содержания Ni в почве для среднего водосбора (рис. 6б) демонстрирует накопление Ni до 2020 г. и затем медленное уменьшение вследствие процесса выщелачивания.



Рис. 6. (а) Концентрация Ni в воде озер. (б) Содержание Ni в почве.

Динамика загрязнений в территориальном разрезе

На рис. 7 приведены результаты моделирования показателей загрязнения на всем регионе моделирования в различные моменты времени: 1995 г. – начало интенсивных исследований, 2005 г. – второй пик больших выбросов, 2018 г. – последний год интенсивных измерений; 2030 – конец прогноза. При расчетах использовали следующие предположения: начальная (1946 г.) концентрация Ni в воде равна 1 мг/м³, фоновое значение содержания Ni в почве равно 20 мг/кг (сух. веса), отношение площади водосбора к площади озера равно 15: 1.

Представленные на рис. 7 выпадения Ni отражают максимальные выбросы в 1980-х гг., их увеличение после спада в 1990-х гг. (2005 г.), их снижение (2018 г.) и их прекращение после 2021 г. Это качественно соответствует результатам расчетов, полученным ранее (для отдельного года) с помощью более сложных моделей атмосферного переноса (Rognerud et al., 1993; Tømmervik et al., 1998).

Территориальное накопление Ni в почве расширялось вплоть до 2018 г. (изолиния близкая к фоновым значениям 25 мг/кг достигли 50 км и более). Следует заметить, что значительное загрязнение почв имеет ярко выраженный локальный характер и ограничивается 10-км зоной. Если сравнивать уровень загрязнения почв в Садбери, Канада (Sudbury, Canada) (крупнейший в мире комплекс по выплавке никеля и меди), то максимальное накопление 300-1600 мг/кг наблюдалось в 15-км зоне, 120 мг/кг – на расстоянии 40 км, и выходило на фоновые значения 30 мг/кг уже на расстоянии более 90 км от плавильного комплекca (Narendrula et al., 2013). Если реакция на снижение выпадений (2018 г.) и полное их прекращение (2021 г.) не отражается на накоплении Ni в почве, то отклики концентрации Ni в воде вполне ощутимы (рис. 7). Быстрая реакция вод на изме-

ГЕОХИМИЯ том 68 № 7 2023

нение характера и интенсивности выбросов наблюдалась и в Садбери, Канада:

1) с 1972 г. после закрытия плавильного завода в Конистоне (Coniston) и строительства трубы высотой 381 м в Копер-Клиффе (Copper Cliff) водные системы начали восстанавливаться без каких-либо дополнительных мер (Gunn et al., 1995),

2) реакция качества вод также зафиксирована в первые несколько лет после ужесточения экологических норматив по выбросам в 1990-х гг. (Nriagu et al., 1998).

Донные отложения в достаточной степени отражают хронологию интенсивности выпадений Ni. Согласно результатам моделирования, представленным на рис. 5, интенсивность накопления Ni в донных отложениях была максимальна (4.48 мг/м² год) в период с первого по второй пик выпадений 1980-2005 гг., тогда как по прогнозу в период 2018-2030 гг. будет составлять лишь 0.23 мг/м² год. По данным одной из колонок, полученной в 2018 г. и охватывающий весь исследуемый период, донные отложения оз. Кейноярви, расположенного в 15 км от комбината "Печенганикель", отражают максимальное содержание 4187 мг/кг Ni в период 2000-2006 гг., фоновое доиндустриальное содержание 31 мг/кг и современное накопление 2545 мг/кг в 2012-2018 гг. (рис. 8). В Канаде донные отложения оз. Дейзи (Daisy), расположенного в 5 км от плавильного завода в Конистоне (Coniston), отражают максимальное накопление 4700 мг/кг в 40-е года прошлого столетия до закрытия завода, тогда как донные отложения озер Сван (Swan) и Тилтон (Tilton), расположенных в 13 и 14 км от Копер-Клиффа (Copper Cliff), показывают максимальное накопление 1400-1800 мг/кг после строительства сверхдлинной трубы (Tropea et al., 2010). Подробный анализ (с толщиной слоев в 1 мм) колонки донных отложений оз. Вермиллион (Vermillion), расположенного примерно в 32 км к западу от центра города







Садбери (Sudbury), свидетельствует о хорошем соответствии максимумов и минимумов накопления Ni в донных отложениях с количеством его производства до введения экологических норм в 1990-х гг., однако современное накопление 245 мг/кг (2010 г.) все еще высоко в сравнение с до-индустриальными концентрациями (39 мг/кг) в 1870-х гг., вероятно, из-за неатмосферного притока Ni с большого по размеру водосбора реки Вермиллион и дренажа хвостохранилищ (Schindler, Kamber, 2013).

Что касается почвы, то биогеохимические процессы здесь замедленны в силу низких температур. В период полярной зимы почва находится в замерзшем состоянии и выпавшие из атмосферы металлы накапливаются в снежном покрове и в периол весеннего половолья стекают в реки и озера по замерзшей почве (аккумуляция металлов зимой практически отсутствует). В период короткого лета никель, поступивший с атмосферными выпадениями на подстилающую поверхность, задерживается в почвах в период вегетации и прочно закрепляется в их верхнем органогенном слое (до 90%). Например, более 100 лет работы комплекса в Садбери, Канада значительно отразилось только накоплением в 5-см органогенном слое почв (Narendrula et al., 2013). Медленное очишение почв объясняется инерционностью происходящих здесь процессов в почвах, что учтено в модели – она так же демонстрирует длительный период очищения почв от загрязнения. По модельным расчетам (рис. 5) интенсивность накопления Ni в почве составляла 2.35 мг/м² год в периоды максимальных выпалений (1980-2005 гг.). тогла как по прогнозу после остановки комбината начнется медленное выщелачивание Ni из почвы с интенсивностью 0.19 мг/м² год. Необходимо отметить, что вышелачивание Ni может сильно зависеть от других загрязнений, в первую очередь от окислов серы. Многолетний (более 37 лет) опыт по реабилитации техногенных пустошей в районе Садбери показал, что на распределение металлов в почве в большей мере влияет рН и в меньшей содержание органического вещества (Kellaway et al., 2022).

Поверхностные воды более лабильный компонент природной системы "водосбор—озеро" и здесь наблюдается более стремительное повышение концентраций никеля в ответ на нарастание выбросов в атмосферу, которое достигло максимума к 1980-м гг. Воды суши также быстро реагируют и на их снижение. Быстрая реакция вод на снижение выпадений констатировалась и в водных системах в районе Садбери, Канада (Gunn et al., 1995; Nriagu et al., 1998). Возможно, в той или иной степени на поток металлов в озера могут влиять процессы десорбции металлов из почв на водосборах, которые даже в случае отсутствия выпадений, в той или иной степени могут поступать

ГЕОХИМИЯ том 68 № 7 2023



Рис. 8. Колонка донных отложений Ni (мг/кг сух вес) и модельная кривая.

с водосбора. Однако большая часть из них входит в состав органоминеральных комплексов и слабо высвобождается, как показывает опыт исследований озер вокруг плавилен в Садбери. Относительно диффузии из донных отложений, то в малых арктических озерах, питание которых на 70% обеспечено атмосферными выпадениями, воды озер практически сохраняют высокое насыщение придонных горизонтов кислородом, поэтому окислы металлов осаждаются и захораниваются в донных отложениях (Даувальтер и др., 2015), диффузия металлов из ДО пока мало влияет на концентрацию металлов в толще вод.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Построенная на основе технологии сбалансированной идентификации модель продемонстрировала эффективность для реконструкции прошлого и прогноза состояния природных сред на водосборе в системе "атмосферные выпадения – почвы – воды суши". На ее основе было предсказано, что остановка выбросов плавильного цеха комбината "Печенганикель" (которая произошла в декабре 2020 г.) не приведет к быстрому восстановлению и очишению природных сред от никеля, как одного из основных загрязняющих элементов. Наибольшей инерцией к восстановлению обладают почвы. Вряд ли исследование почв и донных отложений поможет понять современную динамику - это слишком медленные процессы. Более быстрый ответ можно ожидать от концентрации Ni в воде – при отсутствии выбросов главным источником поступления будет являться выщелачивание накопленных в почве и ДО загрязнений. По модельным расчетам интенсивность накопления Ni в почве и донных отложениях составляла 2.35 и 4.48 мг/м² год в периоды максимальных выпадений (1980–2005 гг.), тогда как по прогнозу после остановки комбината начнется снижение накопления Ni в донных отложениях (0.23 мг/м² год) и медленное выщелачивание Ni из почвы (0.19 мг/м² год).

Преимущество представленной модели заключается в том, что она отражает полную картину происходящих процессов: структуру преобразования атмосферного загрязнения на всей исследуемой территории, балансовую оценку миграционных потоков и накопление загрязнения, территориального его распределения и прогноз состояния всех сред экосистемы в будущем.

Авторы выражают благодарность научному редактору Т.Н. Бугаевой и рецензентам.

Исследование выполнено с использованием оборудования центра коллективного пользования "Комплекс моделирования и обработки данных исследовательских установок мега-класса" НИЦ "Курчатовский институт", http://ckp.nrcki.ru/.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда, грант № 22-17-00061.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

Гашкина Н.А., Моисеенко Т.И. (2016) Пространственно-временные закономерности изменения химического состава вод озер под влиянием выбросов медноникелевых производств: прогноз закисления. *Геохимия.* (12), 1122-1137.

Gashkina N.A., Moiseenko T.I. (2016) Character of spatiotemporal variations in the chemical composition of lake water under the influence of emission from copper–nickel plants: Prediction of acidification *Geochem. Int.* **54**(12), 1079-1093.

Даувальтер В.А., Кашулин Н.А., Денисов Д.Б. (2015) Тенденции изменения содержания тяжелых металлов в донных отложениях озер Севера Фенноскандии в последние столетия. *Труды КарНЦ РАН*. (9), 62-75.

Даувальтер В.А., Кашулин Н.А., Сандимиров С.С. (2012) Тенденции изменений химического состава донных отложений пресноводных Субарктических и Арктических водоемов под влиянием природных и антропогенных факторов. *Труды КолНЦ РАН*. (3), 55-87.

Евдокимова Г.А., Мозгова Н.П., Корнейкова М.В. (2014) Содержание и токсичность тяжелых металлов в почвах зоны воздействия газовоздушных выбросов комбината "Печенганикель". *Почвоведение*. (5), 625-631.

Кашулина Г.М. (2002) Аэротехногенная трансформация почв европейского субарктичского региона. Апатиты: КНЦ РАН. Ч. 1. 158 с.

Моисеенко Т.И., Гашкина Н.А. (2010) Формирование химического состава вод озер в условиях изменения окружающей среды. М.: Наука, 268 с. Моисеенко Т.И., Мегорский В.В., Гашкина Н.А., Кудрявцева Л.П. (2010) Влияние загрязнения вод на здоровье населения индустриального региона севера. *Водные ресурсы.* **37**(2), 194-203.

Мотовилов Ю.Г. (2015) Оценки антропогенных загрязнений речных бассейнов тяжелыми металлами на основе модели ECOMAG. *Научное обеспечение реализации "Водной стратегии Российской Федерации на период до 2020 г."*, Том 1. Петрозаводск: Карельский научный центр РАН, 335-343.

Рассеянные элементы в бореальных лесах. (2004) (Под ред. Исаева А.С.). М.: Наука, 616 с.

Раткин Н.Е., Асминг В.Э., Кошкин В.В. (1999) Моделирование аэротехногенного загрязнения покрова (на примере Печенгского района). Эколого-географические проблемы Кольского Севера. Апатиты: Кольский научный центр РАН, Институт проблем промышленной экологии Севера, 28-42.

Раткин Н.Е. (2001) Методологические и методические аспекты изучения закономерностей аэротехногенного загрязнения импактных территорий (на примере Мурманской области). Мурманск: Изд-во МГТУ, 2001. 118 с.

Соколов А.В., Волошинов В.В. (2018) Выбор математической модели: баланс между сложностью и близостью к измерениям. *International J. Open Information Technologies.* **6**(9), 33-41.

Current State of Terrestrial Ecosystems in the Joint Norwegian, Russian and Finnish Border Area in Northern Fennoscandia. (2008) *Working Papers of the Finnish Forest Research Institute 85* (Eds. Derome J., Myking T., Aarrestad P.A.). Helsinki, Finland: Finnish Forest Research Institute, 98 p.

Gunn J., Keller W., Negusanti J., Potvin R., Beskett P., Winterhalder K. (1995) Ecosystem recovery after emission reductions: Sudbury, Canada. *Water Air Soil Pollut.* **85**, 1783-1788.

Kellaway E.J., Eimers M.C., Watmough S.A. (2022) Liming legacy effects associated with the world's largest soil liming and regreening program in Sudbury, Ontario, Canada. *Sci. Total Environ.* **805**, 150321.

Kvaeven B., Ulstein M.J., Skjelkvåle B.L. (2001) ICP Waters – An international program for surface water monitoring. *Water Air Soil Pollut.* **130**, 775-780.

Moiseenko T., Sharov A. (2019) Large Russian lakes Ladoga, Onega, and Imandra under strong pollution and in the period of revitalization: a review. *Geosciences.* **9**, 492.

Moiseenko T.I. (1999) The fate of metals in Arctic surface waters. Method for defining critical levels. *Sci. Total Environ.* **236**, 19-39.

Moiseenko T.I., Gashkina N.A., Dinu M.I., Kremleva T.A., Khoroshavin V.Y. (2020) Water Chemistry of Arctic Lakes under Airborne Contamination of Watersheds. *Water.* **12**, 1659.

Motovilov Yu.G. (2013) ECOMAG: a distributed model of runoff formation and pollution transformation in river basins solution. *IAHS Publ.* **361**, 227-234

Narendrula R., Nkongolo K.K., Beckett P., Spiers G. (2013) Total and bioavailable metals in two contrasting mining regions (Sudbury in Canada and Lubumbashi in DR-Congo): relation to genetic variation in plant populations. *Chem. Ecol.* **29**(2), 111-127.

Norton S.A., Appleby P.G., Dauvalter V., Traaen T.S. (1996) Trace metal pollution in eastern Finnmark, Norway and Kola Peninsula, Northeastern Russia as evidences by

studies of lake sediment. NIVA-Report 41/1996. Oslo, Norway: NIVA, 18 p.

Nriagu J.O., Wong H.K.T., Lawson G., Daniel P. (1998) Saturation of ecosystems with toxic metals in Sudbury basin, Ontario, Canada. *Sci. Total Environ.* 223, 99-117.

Palmer M.A., Zedler J. B., Falk D.A. (2016) Foundations of Restoration Ecology (The Science and Practice of Ecological Restoration Series). 2nd ed. Washington, Covelo, London: Island Press. 584 p.

Rognerud S., Norton S.A., Dauvalter V. (1993) *Heavy metal* pollution in lake sediments in the border areas between Russia and Norway. NIVA-Report 522/93. Oslo, Norway: NIVA, 18 p.

Rydgren K., Halvorsen R., Töpper J.P., Auestad I., Hamre L.N., Jongejans E., Sulavik J. (2019) Advancing restoration ecology: a new approach to predict time to recovery. *J. Appl. Ecol.* **56**, 225-234.

Schindler M., Kamber B.S. (2013) High-resolution lake sediment reconstruction of industrial impact in a worldclass mining and smelting center, Sudbury, Ontario, Canada. *Appl. Geochem.* **37**, 102-116.

Skjelkvale B.L., Andersen T., Fjeld E., Mannio J., Wilander A., Johansson K., Jensen J.P., Moiseenko T. (2001) Heavy Metals in Nordic Lakes; Concentrations, Geografical Patterns and Relation to Critical Limits. *AMBIO*. **30**(1), 2-10.

Sokolov A.V., Voloshinov V.V. (2020) Model Selection by Balanced Identification: the Interplay of Optimization and Distributed Computing. *Open Comput. Sci.* **10**, 283-295.

Stavi I., Siad S.M., Kyriazopoulos A.P., Halbac-Cotoara-Zamfir R. (2020) Water runoff harvesting systems for restoration of degraded rangelands: A review of challenges and opportunities. *J. Environ. Manage.* **255**, 109823.

Strobl K., Kollmann J., Teixeira L. H. (2019) Integrated assessment of ecosystem recovery using a multifunctionality approach. *Ecosphere*. **10**(11), e02930.

Tømmervik H., Johansen M.E., Pedersen J.P., Guneriussen T. (1998) Integration of remote sensed and in-situ data in an analysis of the air pollution effects on terrestrial ecosystems in the border areas between Norway and Russia. *Environ. Monit. Assess.* **49**, 51-85.

Tropea A.E., Paterson A.M., Keller W., Smol J.P. (2010) Sudbury sediments revisited: evaluating liminological recovery in a multiple-stressor environment. *Water Air Soil Pollut.* **210**, 317-333.

Waltham N.J., Elliott M., Lee S.Y., Lovelock C., Duarte C.M., Buelow C., Simenstad C., Nagelkerken I., Claassens L., Wen C.K.-C., Barletta M., Connolly R.M., Gillies C., Mitsch W.J., Ogburn M.B., Purandare J., Possingham H., Sheaves M. (2020) UN Decade on Ecosystem Restoration 2021–2030 – What Chance for Success in Restoring Coastal Ecosystems? *Front. Mar. Sci.* 7(71), 1-5.

Zipkin E.F., Zylstra E.R., Wright A.D., Saunders S.P., Finley A.O., Dietze M.C., Itter M.S., Tingley M.W. (2021) Addressing data integration challenges to link ecological processes across scales. *Front. Ecol. Environ.* **19**, 30-38.