

Ю. А. Тунакова, Р. А. Шагидуллина, С. В. Новикова,
В. С. Валиев

МЕТОДОЛОГИЯ РАЗРАБОТКИ СОПРЕДЕЛЬНЫХ НОРМАТИВОВ ДЛЯ ПРИОРИТЕТНЫХ ЗАГРЯЗНЯЮЩИХ ВЕЩЕСТВ

Ключевые слова: приоритетные загрязняющие вещества, нормирование, сопредельные среды.

Обосновывается оригинальная методология разработки нормативов сопредельности для приоритетных загрязняющих веществ. Приводятся результаты специальных исследований, проведенных для расчета нормативов сопредельности содержания металлов в объектах окружающей среды на территории г.Казани.

Key words: priority polluting substances, normative maintenance, adjacent environments.

The original methodology of development of specifications of adjacency for priority polluting substances is proved. Results of the special researches which have been lead for calculation of specifications of adjacency of the maintenance of metals in objects of an environment in territory of Kazan are resulted.

Действующая в нашей стране система санитарно-гигиенического нормирования охватывает все среды, различные пути поступления вредных веществ в организм. Учет комбинированного действия (одновременное или последовательное действие нескольких веществ, при одном и том же пути поступления) регламентируется лишь для атмосферного воздуха для веществ, обладающих эффектом суммации при их одновременном присутствии. А учет комплексного (поступления вредных веществ в организм различными путями и с различными средами – с воздухом, водой, пищей, через кожные покровы) и сочетанного воздействия всего многообразия физических, химических и биологических факторов окружающей среды не регламентируется в принципе. Разработка сочетанных нормативов в настоящее время не представляется возможной ввиду сложностей получения исходной информации по наборам факторов различной природы и создания масштабных банков данных.

Нами предлагается учесть сопредельное (дополнительное поступление из сопредельных сред) воздействие. Под сопредельностью сред мы понимаем динамическое неравновесное состояние системы, которое обусловлено потоками веществ на границах подсистем в пределах единой системы. Учет поступления загрязняющих веществ из сопредельных сред возможен за счет построения нейросетевых каскадных моделей. Это концептуальное допущение обосновывает и непосредственно подводит к идее «сопредельного нормирования» если ее разрабатывать с точки зрения системного подхода, как оценке риска неравновесного состояния системы.

Нами предлагается оценивать состояние компонентов окружающей среды на основе оценки буферной ёмкости сопредельной среды (снежного покрова). Для оценки буферной емкости сопредельной среды предлагается использовать вероятностный экологический риск, как наиболее адекватный интегральный показатель благополучия или неблагополучия среды. Нормативом сопредельности в данном случае является разность между предельным содержанием загрязняющего вещества, соответствующим границе высокого риска и его содержанием, соответствующим границе приемлемого риска.

Физический смысл норматива – максимально допустимое поступление загрязняющего вещества в среде сверх норматива, при котором сопредельная среда депонирования способна оставаться вне критического состояния (бифуркации).

Для расчета норматива сопредельности используется значение вероятностного риска для конкретной среды. Вероятностный экологический риск вычисляется как средневзвешенное нормированных содержаний загрязняющих веществ в среде с эмпирическим коэффициентом 1/5,05697918952499.

$$R_{\text{среды}} = A \times \sum_{i=1}^N \frac{x_i}{\max(x_i)} \quad (1)$$

Здесь A – эмпирический коэффициент (максимальное отмеченное значение из всех полученных сумм приведенных отношений); N – количество учитываемых загрязняющих веществ в среде; x_i – концентрация в среде i -того загрязняющего вещества.

Полученное значение приведенного экологического риска необходимо соотнести со шкалой состояний среды, полученной методом квартилей:

- Низкий риск. Удовлетворительное состояние: $R_{\text{среды}} \leq p_0$
- Средний риск. Напряженное состояние: $p_0 < R_{\text{среды}} \leq p_1$
- Повышенный риск. Кризисное состояние: $p_1 < R_{\text{среды}} \leq p_2$
- Высокий риск. Критическое состояние: $R_{\text{среды}} > p_2$

В результате будет получена таблица значений экспериментальных данных, отражающих зависимость вероятностного экологического риска от концентраций загрязняющих веществ в среде:

$$R_{\text{среды}} = f(x_1, x_2 \dots x_N) \quad (2)$$

где x_i – концентрация i -того загрязняющего вещества. Для определения норматива сопредельности загрязняющего вещества в среде необходимо решить обратную задачу: определение концентрации загрязняющего вещества, при котором достигается заданное граничное значение вероятностного экологического риска, соответствующее границе повышенного риска p_1 :

$$C_i^{норм} = f^{-1} \left(P_{среды}^* \Big|_{P_{среды}=P_1} \right) \quad (3)$$

Данная задача является нетривиальной: вероятностный экологический риск, как интегральный показатель состояния среды, учитывает одновременное поступление нескольких загрязняющих веществ, влияние которых в группе может усиливаться либо, наоборот, подавляться. Можно подобрать модель множественной регрессии, способную адекватно отражать зависимость вида (2), однако решение обратной задачи (3) относительно каждого отдельного параметра C_i потребует введения ($N-1$) дополнительного допущения и ограничений, что понизит точность расчетов в целом. Другим способом решения является построение отдельных парных регрессионных моделей вида:

$$P_{среды} = g_i(x_i), \quad (i = \overline{1, N}) \quad (4)$$

которые допускают относительно простое решение серии обратных задач:

$$C_i^{норм} = g_i^{-1} \left(P_{среды}^* \Big|_{P_{среды}=P_1} \right), \quad (i = \overline{1, N}) \quad (5)$$

Однако за счет исключения из соотношений (4) взаимных влияний загрязняющих веществ в группе, адекватность таких моделей вызывает сомнения.

Указанных недостатков лишен интеллектуальный универсальный аппроксиматор – искусственная нейронная сеть. Располагая таблично определенной функцией зависимости вероятностного риска от концентраций загрязняющих веществ в среде, легко построить нейронную сеть, отражающую обратную зависимость: в качестве входа рассматривается вероятностный экологический риск, а в качестве выходов – концентрации загрязняющих веществ. Полученная нейросетевая регрессионная модель не требует дополнительных преобразований для вычислений нормативных значений, легка в использовании, и учитывает совместное влияние нескольких загрязняющих веществ одновременно.

В качестве среды исследования был выбран снежный покров как среда накопления загрязняющих веществ, поступающих воздушным путем. Для определения вероятностного экологического риска были использованы измеренные нами концентрации металлов-предиктантов в снежном покрове. Максимальные значения предиктантов: Pb-1195,46; Cu-10325,0; Cr-5803,8; Zn-19899,4; Mn-13894,5; Fe-75127,4; Ni-10404,6.

Значения вероятностного экологического риска для металлов в снежном покрове рассчитаны согласно формуле (1). Полученные значения вероятностного экологического риска $R_{сн\text{ег}}$ соотносятся со следующей шкалой, полученной методом квантилей:

Таблица 1 - Расчетные концентрации металлов и градации вероятностного риска

Cu	Zn	Ni	Cr	Pb	Fe	Mn	R снег	Граница
414	2058	259	200	3188	5589,6	562	0,07	Rs
594	346	676	317	355	849	671	0,11	Rp
983	4809	1329	457	315	11181	717	0,16	Rv

Таким образом, для дальнейшего определения нормативов сопредельности можно принять

- Низкий риск (Rn). Удовлетворительное состояние: $R_{сн\text{ег}} \leq 0,0680$
- Средний риск (Rs). Напряженное состояние: $0,0680 < R_{сн\text{ег}} \leq 0,106$
- Повышенный риск (Rp). Кризисное состояние: $0,106 < R_{сн\text{ег}} \leq 0,155$
- Высокий риск (Rv). Критическое состояние: $R_{сн\text{ег}} > 0,155$.

Нейросетевая регрессионная модель для описания зависимости

$$(Pb, Cu, Cr, Zn, Mn, Fe, Ni) = g^{-1} \left(R_{среды}^* \right)$$

следующую топологию:

- Количество входов – 1 (значение $R_{сн\text{ег}}$);
- Количество скрытых слоев – 1;
- Количество нейронов в скрытом слое – 4;
- Функция активации нейронов скрытого слоя – гипертангенс;
- Количество выходных нейронов – 7 (значения концентрации металлов в снежном покрове);
- Функция активации выходного слоя – линейная.

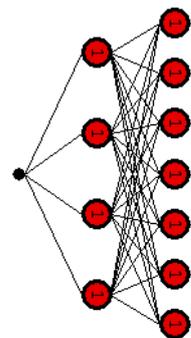


Рис. 1 - Топология нейросетевой регрессионной модели для определения концентрации группы металлов по значениям вероятностного экологического риска

Результаты моделирования значений концентраций металлов в зависимости от пороговых значений вероятностного риска показаны в табл. 1. Таким образом, для дальнейшего определения нормативов сопредельности можно принять следующие значения концентраций металлов в снежном покрове: Cu_норм -414,34; Zn_норм-2058,51; Ni_норм-259,27; Cr_норм-200,71; Pb_норм-317,72; Fe_норм-5589,67; Mn_норм-561,89.

следующие значения концентраций металлов в снежном покрове: Cu_норм -414,34; Zn_норм-

2058,51; Ni_норм-259,27; Cr_норм-200,71; Pb_норм-317,72; Fe_норм-5589,67; Mn_норм-561,89.

Для расчета норматива используется величина вероятностного экологического риска для среды, сопредельной со средой исследования и являющейся непосредственным накопителем загрязняющих веществ в долгосрочной перспективе.

Вероятностный экологический риск рассчитывается по содержанию загрязняющих веществ непосредственно в сопредельной среде. В дальнейшем полученный экологический риск должен использоваться для определения нормативов сопредельности в среде исследования. Для практической реализации данного подхода необходимо сгенерировать кортежи данных: «концентрации загрязняющих веществ в среде исследования – концентрации загрязняющих веществ в сопредельной среде-вероятностный экологический риск сопредельной среды» для обеспечения соответствия данных будущей модели регрессии «вероятностный экологический риск сопредельной среды – концентрации токсикантов в среде исследования».

Затем для каждого кортежа в качестве величины экологического риска принимается средневзвешенное значение нормированных содержаний загрязняющих веществ в сопредельной среде с эмпирическим коэффициентом 1/5,35186133559018.

$$Q_{\text{сопред}} = B \times \sum_{j=1}^M \frac{y_j}{\max(y_j)} \quad (6)$$

где B - эмпирический коэффициент; M – количество учитываемых загрязняющих веществ в сопредельной среде; y_j – концентрация в сопредельной среде j -того загрязняющего вещества: $j=1,2...M$.

Полученное значение приведенного риска необходимо соотнести со шкалой состояний сопредельной среды, полученной методом квартилей:

- Низкий риск. Удовлетворительное состояние: $Q_{\text{сопред}} \leq q_0$
- Средний риск. Напряженное состояние: $q_0 < Q_{\text{сопред}} \leq q_1$
- Повышенный риск. Кризисное состояние: $q_1 < Q_{\text{сопред}} \leq q_2$
- Высокий риск. Критическое состояние: $Q_{\text{сопред}} > q_2$

Решение данной задачи предлагается осуществлять при помощи нейросетевой модели регрессии, обученной по известным кортежам данных:

$$(y_1, y_2, \dots, y_M) = \gamma(x_1, x_2, \dots, x_N) \quad (7)$$

В качестве топологии модели рекомендуется выбирать трехслойный перцептрон с линейной функцией активации выходного слоя и гипертангенсом для скрытого слоя. Конкретный вид модели в этом случае может быть представлен как:

$$\gamma_j(x_1, x_2, \dots, x_N) = \left(\sum_{k=1}^S w_{kj}^e \left(\frac{e^{2 \sum_{i=1}^N w_{ik}^d x_k - 1}}{2 \sum_{i=1}^N w_{ik}^d x_k - 1} - 1 \right) - 1 \right) \quad (8)$$

где

- N – размерность входного вектора- равна количеству учитываемых токсикантов исследуемой среды;
- S – количество нейронов в скрытом слое – подбирается эмпирически;
- M - количество нейронов в выходном слое – равно количеству учитываемых токсикантов для сопредельной среды;
- $W_{ik}^{(1)}$ - весовые коэффициенты скрытого (первого) слоя $i = \overline{1, N}$, $k = \overline{1, S}$, определенные на этапе обучения;
- $W_{kj}^{(2)}$ - весовые коэффициенты выходного слоя $j = \overline{1, M}$, определенные на этапе обучения.

Решение задачи предлагается осуществлять аналогично задаче определения уровня концентрации загрязняющего вещества, при котором достигается заданное граничное значение вероятностного экологического риска, а именно при помощи нейросетевых моделей регрессии. Построив модель вида:

$$(x_1, x_2, \dots, x_N) = \xi(P_{\text{сопред}}), \quad (9)$$

Можно найти предельную ёмкость среды исследования по каждому отдельному загрязняющему веществу как значение концентрации, соответствующее границе высокого экологического риска сопредельной среды:

$$C_1^{\text{пред}}, C_2^{\text{пред}} \dots C_N^{\text{пред}} = \xi(R_{\text{сопред}}^* | R_{\text{сопред}} = q_2) \quad (10)$$

Конечная ёмкость сопредельной среды выше нормативной концентрации загрязняющего вещества в среде исследования. Данный результат говорит о возможности дополнительного ассимилирования загрязняющего вещества средой и наличии зоны возможного накопления, определяемой разностью буферной ёмкости и норматива. Состояние среды, соответствующее зоне накопления, можно определить как напряженное, переходное состояние между благополучием (концентрация загрязняющего вещества меньше нормативной) и неблагополучием (концентрация выше предельной буферной ёмкости), что проиллюстрировано на рис. 2.

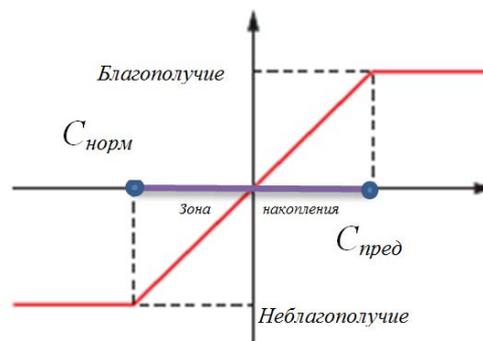


Рис. 2 - Среда с зоной накопления

Предельная ёмкость сопредельной среды равна, либо ниже норматива для среды исследования. В этом случае сопредельная среда не ассимилирует загрязняющее вещество. Зона накопления отсутствует,

среда переходит из состояния благополучия в состояние неблагополучия скачкообразно (бифуркация), что проиллюстрировано на рис. 3. В качестве порога перехода необходимо принять минимальное значение концентрации загрязняющего вещества.

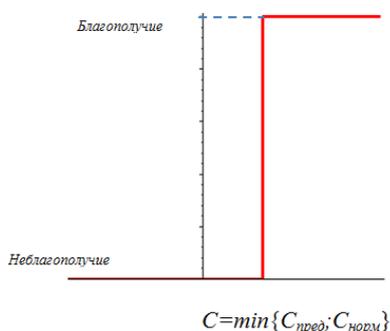


Рис. 3 - Среда без зоны накопления

В качестве среды исследования был выбран снежный покров как среда накопления загрязняющих веществ, поступающих аэрогенным путем. В качестве сопредельной среды для снежного покрова была выбрана почва, как депонирующая среда, аккумулирующая загрязняющих веществ. В качестве загрязняющих веществ, содержащихся в снежном покрове, рассматривались металлы (Pb, Cu, Cr, Zn, Mn, Fe, Ni). В качестве соответствующих объектов накопления в сопредельной среде (почве) были исследованы концентрации данных металлов в почве и произрастающих на этой же территории растениях, что позволило повысить адекватность и степень агрегативности рассчитанного вероятностного риска для сопредельной среды. После определения соответствующих друг другу кортежей данных «металл в снеге-металл в почве и растениях» была спроектирована нейронная сеть следующей топологии:

- Количество входных нейронов – 7 (концентрации металлов в снежном покрове). Для обработки пропущенных данных применим алгоритм «замена средним».
- Кол-во скрытых слоев – 1,
- Кол-во нейронов в скрытом слое – 12, функция активации нейронов- гиперболический тангенс.
- Количество выходных нейронов -15: содержание меди в почве (мг/кг); содержание цинка в почве (мг/кг); содержание никеля в почве (мг/кг); содержание хрома в почве (мг/кг); содержание свинца в почве (мг/кг); содержание кадмия в почве

(мг/кг); содержание кобальта в почве (мг/кг); содержание меди в растениях (мг/кг); содержание цинка в растениях (мг/кг); содержание никеля в растениях (мг/кг); содержание хрома в растениях (мг/кг); содержание свинца в растениях (мг/кг); содержание кадмия в растениях (мг/кг); содержание железа в растениях (мг/кг); содержание марганца в растениях (мг/кг).

Функция активации выходного слоя – линейная.

Рассчитанные нейросетью концентрации металлов в почвенном покрове: Cu_{почв}-35,410; Zn_{почв}-113,370; Ni_{почв}-52,410; Cr_{почв}-54,610; Pb_{почв}-12,330; Cd_{почв}-0,280; Co_{почв}-3,440.

Рассчитанные нейросетью концентрации металлов в растительном покрове: Cu_{раст}-14,200; Ni_{раст}-5,000; Cr_{раст}-15,000; Zn_{раст}-135,680; Cd_{раст}-0,110; Pb_{раст}-32,130; Fe_{раст}-33,180; Mn_{раст}-4,750.

Для полученных данных рассчитан вероятностный риск для сопредельной среды согласно формуле (6). Полученные значения вероятностного риска R_{снег} соотносятся со следующей шкалой, полученной методом квартилей:

- Низкий риск. Удовлетворительное состояние: R_{сопред} ≤ 0,244
- Средний риск. Напряженное состояние: 0,244 < R_{сопред} ≤ 0,296
- Повышенный риск. Кризисное состояние: 0,296 < R_{сопред} ≤ 0,367
- Высокий риск. Критическое состояние: R_{сопред} > 0,367

Из полученных данных сформированы наборы соответствия для моделирования регрессионной модели вида (4):

$$(Pb, Cu, Cr, Zn, Mn, Fe, Ni) = \xi(R_{сопред})$$

и построена нейросетевая модель регрессии следующей топологии:

- Количество входов – 1 (значение R_{сопред}).
- Количество скрытых слоев – 1.
- Количество нейронов в скрытом слое -5.
- Функция активации нейронов скрытого слоя – гипертангенс.
- Количество выходных нейронов – 7 (значения концентрации в снеге Pb, Cu, Cr, Zn, Mn, Fe, Ni).

Результаты моделирования значений концентраций металлов в зависимости от пороговых значений вероятностного риска (табл.2).

Таблица 2 - Расчетные концентрации металлов в зависимости от градации вероятностного риска

Cu	Zn	Ni	Cr	Pb	Fe	Mn	R сопред	Граница
261,7	1674,8	145,7	179,3	247,4	5160,	500	0,24	Rs
327,80	1936	254	151	254	4993	472	0,29	Rp
595	2215	298	166	2897	4890	463	0,367	Rv

В качестве предельной буферной емкости снега по исследуемым металлам можно принять значения концентраций: Cu_{пред}-595,30; Zn_{пред}-

2215,52; Ni_{пред}-298,22; Cr_{пред}-166,55; Pb_{пред}-285,96; Fe_{пред}-4890,32; Mn_{пред}-463,60.

Сопоставление предельных и нормативных концентраций металлов в снеге (твердая фракция)

выявил, что снег имеет буферную емкость (зоны накопления) для меди (емкость зоны накопления 180,96 мг/кг – от 414,34 мг/кг до 595,3 мг/кг), цинка (емкость зоны накопления 157,0 мг/кг – от 2058,5 мг/кг до 2215,5 мг/кг) и никеля (емкость зоны накопления 38,95 мг/кг – от 259,3 мг/кг до 298,2 мг/кг). Для хрома, свинца, железа и марганца снег не обладает буферной емкостью, при этом в качестве нормативной концентрации металлов рекомендуется принять их предельные концентрации в снеге $C_{Cr} = 166,5$ мг/кг; $C_{Pb} = 285,9$ мг/кг; $C_{Fe} = 4890,3$ мг/кг и $C_{Mn} = 463,6$ мг/кг.

Таким образом, модель оценки нормативов сопредельности демонстрирует гибкость, чувствительность к конкретным условиям оценки, эффективность, выражаемую высокой агрегирующей способностью интегрального показателя взятого за основу – вероятностного риска.

Немаловажно и то обстоятельство, что предлагаемый подход легко может быть использован систе-

мами принятия решений, так как обладает четкой структурированностью.

Эти обстоятельства делают нашу методологию оптимальной как в процессе нормирования в целом, так и на самом сложном его этапе: на звене перевода аналитических параметров в управляющие.

Литература

1. Тунакова Ю.А. Шагидуллина Р.А., Новикова С.В., Валиев В.С. Вестник технологического университета, 16, 11, 259-263 (2013).
2. Тунакова Ю.А. Шагидуллина Р.А., Новикова С.В., Валиев В.С. Вестник технологического университета, 16, 14, 231-233 (2013).
3. Тунакова Ю.А. Шагидуллина Р.А., Новикова С.В., Валиев В.С. Вестник технологического университета, 16, 23, 147-151 (2013).
4. Тунакова Ю.А. Шагидуллина Р.А., Новикова С.В., Валиев В.С. Вестник технологического университета, 16, 20, 276-279 (2013).

© Ю. А. Тунакова – д-р хим. наук, проф. каф. технологии полимерных материалов КНИТУ, juliaprof@mail.ru; Р. А. Шагидуллина – канд. хим. наук, нач. отдела нормирования воздействия на окружающую среду Мин-ва экологии и природных ресурсов РТ, juliaprof@mail.ru; С. В. Новикова – канд. техн. наук, доц. каф. прикладной математики и информатики КНИТУ им. А.Н. Туполева-КАИ, sweta72@bk.ru; В. С. Валиев – науч. сотр. лаб. биогеохимии Института проблем экологии и недропользования АН РТ.