

7.4. Геохронологическая реконструкция седиментационных потоков техногенного плутония на основе радиоизотопного определения скорости седиментации взвешенного вещества в осадки на полувековом масштабе

Н.Н. Терещенко, С.Б. Гулин, В.Ю. Проскурнин, А.А. Параскив

Введение

Поступление в окружающую среду техногенных радионуклидов привело к накоплению их в различных компонентах и включению в круговорот вещества в природных экосистемах. Поэтому стало возможным с использованием антропогенных радионуклидов изучать в природных экосистемах процессы, в них происходящие, в естественных условиях, и с использованием техногенных радионуклидов в качестве радиотрассеров. Радиотрассерный метод (метод меченых атомов), который является частью изотопного метода в биогеохимии, геохронологии [Сергеев и др., 2015; White, 2015], радиоэкологии и биологической океанографии, применяют для датировки природных процессов с применением как природных радиоактивных изотопов, так и искусственных [Appleby, 1991, 1998; Sorgente et al., 1998; Gulin et al., 2002; Мирзоева и др., 2005; Поликарпов и др., 2008a; Isotopes...]

2013]. Как правило, этот метод основывается на соотношении разных изотопов и его изменении, а также характере распределения того или иного изотопа, способе его образования и поступления в среду. Применение техногенных радиоизотопов плутония для геохронологической датировки на масштабе десятилетий и изучения скоростей процессов в черноморских экосистемах стало возможным, благодаря разной величине отношения $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ в глобальных и чернобыльских радиоактивных выпадениях [Hardy et al., 1973; Aarkrog, 1988] и разобщенности во времени максимумов радиоактивных выпадений от этих источников антропогенных радионуклидов [Buessler, Benitez, 1994; Gulin et al., 2003; Терещенко и др., 2016]. Исследования методом меченых атомов позволяют получать информацию о процессах в море, которая важна как для гидробиологии, так и биогеохимии, радиоэкологии и молисмологии водоема в целом и его отдельных акваторий. Круг проблем для применения данного радионуклида в качестве радиоактивной метки определяется, в частности, типом его биогеохимического поведения. В связи с тем, что плутоний в Черном море проявляет ярко выраженные педотропные свойства [Терещенко, 2011; Tereshchenko et al., 2018], в круг наших интересов входило изучение процессов, связанных с донными отложениями. В частности, исследования касались датировки донных отложений в период с 60-х годов XX века до 2010-х годов, определения скорости седиментации взвешенного вещества и скорости процессов осадкообразования, а также и ретроспективной оценки изменения седиментационных потоков техногенных радионуклидов в донные отложения в разные периоды.

Целью нашего исследования было: а) изучение пространственного и вертикального распределения альфа-излучающих радионуклидов плутония в черноморских донных отложениях в прибрежных и глубоководных районах с последующей геохронологической датировкой загрязнения донных осадков, б) определение скорости седиментации взвешенного вещества, скорости осадконакопления на полувековом масштабе, в) реконструкция седиментационных потоков техногенного плутония в разные периоды истории антропогенного поступления радионуклидов плутония в Черное море.

Материал и методы исследования

Радиоэкологические исследования проводились в Черном море в постчернобыльский период. Пробы отбирали в ходе морских и прибрежных экспедиций, преимущественно в северо-западной и центральной, а также в южной и восточной частях моря, включая прибрежные акватории, в частности, Каркинитский и Каламитский заливы, Керченский пролив и бухты в морской акватории Севастополя [Поликарпов и др., 2008а; Терещенко и др., 2013; Tereshchenko et al., 2014] Концентрационную активность радионуклидов плутония ^{238}Pu и $^{239+240}\text{Pu}$ в природных

образцах определяли современным общепринятым радиохимическим методом [Поликарпов и др., 2008а; Tereshchenko et al., 2014]. При выделении $^{239,240}\text{Pu}$ осуществляли термическую и химическую обработку проб, затем хроматографическую очистку и выделение Pu с помощью ионообменной колоночной хроматографии. Тонкослойные препараты для альфа-спектрометрии готовили путем электроосаждения Pu на стальные диски. Измерения активности образцов проводили на альфа-спектрометрическом комплексе «EG&G ORTEC BERTHOLD–WALLAC» в вакуумируемых камерах с низкофоновыми кремниевыми детекторами. Скорость счета фона в области энергий определяемых радионуклидов не превышала 10^{-5} имп·с $^{-1}$. Как известно, радиоизотопы ^{239}Pu и ^{240}Pu испускают альфа-частицы, значения энергий которых очень близки (^{239}Pu – 5,16 МэВ (72%), 5,14 МэВ (16,8%), 5,11 МэВ (11,2%); ^{240}Pu – 5,17 МэВ (75,5%), 5,12 МэВ (24,4%) [Мефодьева, Крот, 1987], поэтому их энергетические альфа-спектры перекрываются. В связи с этим, измеряли суммарную активность радионуклидов $^{239+240}\text{Pu}$ и активность индивидуальных изотопов ^{238}Pu , ^{242}Pu . Радиоизотоп ^{242}Pu в пробы вносили как радиоактивный трассер перед аналитическими процедурами для оценки химического выхода Pu. Химический выход Pu составлял 40–80%. Ошибка определения $^{239+240}\text{Pu}$ в пробах донных осадков не превышала 13%. Концентрационную активность радионуклидов плутония выражали в Бк·кг $^{-1}$ сухой массы осадка.

Были использованы методы радиоизотопной геохронологической датировки донных отложений, определения скорости биогеохимической седиментации взвеси и осадконакопления, седиментационных потоков плутония в донные осадки в разных районах моря и аппроксимационный анализ кинетики потоков $^{239+240}\text{Pu}$ в глубоководной зоне моря [Gulin et al., 2002; WOMARS, 2005; Поликарпов и др., 2008а; Isotopes..., 2013].

Пространственное распределение $^{239+240}\text{Pu}$ в донных отложениях моря

Изучение пространственного распределения $^{239+240}\text{Pu}$ в черноморских донных отложениях показало, что, как и распределение в воде, оно носило пятнистый характер (рис. 7.4.1) [Поликарпов и др., 2008а; Терещенко, 2011; Терещенко и др., 2013; Tereshchenko et al., 2018]. С одной стороны, это связано с составом осадков и их аккумуляционной способностью (илистые осадки имеют коэффициенты накопления $^{239+240}\text{Pu}$ на порядок выше, чем песчанистые), а с другой — с историей поступления радионуклидов, и в частности – близостью к устьям Днепра, Буга, Дуная, Северо-Крымского канала. Эти природные и искусственные водотоки несли речные воды в Черное море из зон чернобыльского загрязнения и, следовательно, создавали локальные зоны повышенных уровней $^{239+240}\text{Pu}$ в воде, а затем и в донных отложениях. Сказывалась, безусловно, и пятнистость атмосферных выпадений. Кроме того, на поступление $^{238,239,240}\text{Pu}$ в донные отложения оказыва-

ско-Бугского лимана, то к 2014 г. максимальные значения $^{239+240}\text{Pu}$ составляли около 1–2 Бк·кг⁻¹. Высокие значения в глубоководной зоне в западной части моря, приведенные на рис. 7.4.1, объясняются тем, что в слой 0–5 см входит максимум чернобыльских выпадений и максимум глобальных выпадений, которые не заглоубились ниже 5 см из-за низкой скорости осадконакопления в этой зоне. В поверхностном слое, который отвечает современному периоду (0–5 мм), уровень $^{239+240}\text{Pu}$ составлял порядка 1,7 Бк·кг⁻¹. В зависимости от скорости седиментации взвешенного вещества и скорости осадконакопления в рассматриваемом районе 0–5 см слой в разных районах несет информацию о поступлении радионуклидов плутония за разные промежутки времени. Поэтому для анализа изменения уровней радионуклидов плутония во времени в донных отложениях необходимо использовать вертикальные профили распределения $^{238,239,240}\text{Pu}$ в осадках в исследуемом районе [Tereshchenko et al., 2018].

Вертикальное распределение ^{238}Pu и $^{239+240}\text{Pu}$ в донных отложениях моря

Глубина залегания слоя максимальных выпадений после аварии на ЧАЭС различна в разных районах моря. Это хорошо иллюстрируют данные по вертикальному распределению удельной активности донных отложений в отношении $^{239+240}\text{Pu}$ в осадках из глубоководной котловины Черного моря и прибрежного района (рис. 7.4.2), где слои с максимальными значениями $^{239+240}\text{Pu}$ чернобыльского происхождения находятся под поверхностными слоями с меньшими уровнями загрязнения $^{239+240}\text{Pu}$, отражающими современное состояние осадков, но толщина поверхностных менее активных донных отложений существенно отличается в разных районах. Так, 2 максимума (чернобыльский и глобальный) $^{239+240}\text{Pu}$ в глубоководном профиле (см. рис. 7.4.2а) находятся в слое 0–5 см и отражают плотность загрязнения практически за всю ядерную эпоху. Поверхностный менее загрязненный слой донных осадков составляет около 25 мм.

Для сравнения на рис. 7.4.2б представлен вертикальный профиль 0–16 см в прибрежном районе, где скорость осадконакопления выше, максимум чернобыльских выпадений заглоубился до 11 см, а пик глобальных выпадений находится ниже 16 см. Слой поверхностных менее загрязненных слоев донных отложений составляет порядка 100 мм, т.е. в 4 раза толще, чем в глубоководном районе. Поэтому в районах моря с разной скоростью осадконакопления поверхностный слой 0–5 см отражает разные периоды времени формирования этого слоя, что необходимо учитывать для корректного сравнения интенсивности поступления радионуклидов плутония в слой равной толщины в разных акваториях.

Радиоэкологические и радиологические свойства радиоизотопов плутония и отличающийся плутониевый радиоизотопный состав в ядерных материалах из разных источников при изучении вертикальных профилей распределения ^{238}Pu и $^{239+240}\text{Pu}$ в осадках дают возможность использовать эти радиоизотопы не только как

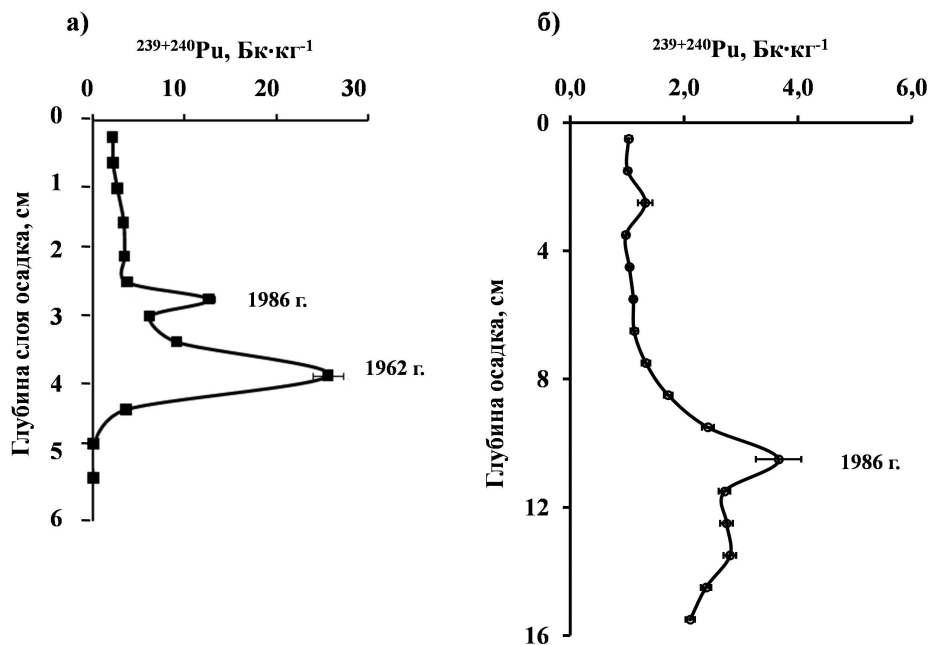


Рис. 7.4.2. Вертикальный профиль $^{239+240}\text{Pu}$ в донных отложениях в глубоководной котловине западной части Черного моря (а) и в прибрежном районе (б), где: 1962 г. – слой, соответствующий максимальным глобальным выпадениям, 1986 г. – максимальным чернобыльским выпадениям.

объект, но и как метод исследования процессов в природных черноморских экосистемах в текущий момент и ретроспективно [Поликарпов и др., 2008а; Gulin et al., 2002, 2013]. В частности, на основе изучения вертикальных профилей распределения ^{238}Pu и $^{239+240}\text{Pu}$ в глубоководных донных отложениях была выполнена геохронологическая реконструкция потоков депонирования плутония в глубоководных донных отложениях Черного моря по выполненной датировке этих отложений с помощью изучаемых изотопов, определены седиментационные характеристики исследуемого района (скорость седиментации взвешенного вещества и скорость осадконакопления) как важные составляющие для ретроспективной оценки потоков плутония в донные осадки моря и ими определяемой самоочищающей способности черноморских вод [Поликарпов и др., 2008а; Терещенко и др. 2013].

Геохронологическая датировка донных отложений по отношению $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$

Характерной особенностью истории поступления техногенных радионуклидов плутония в акваторию Черного моря является достаточно ограниченная по времени (по сравнению с периодом рассмотрения процессов миграции) продолжительность максимальных выпадений на поверхность бассейна. Вторым важным моментом служит существенное различие (более чем на порядок) отношения активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ в основных источниках его поступления. Так, плутоний из глобальных радиоактивных выпадений наиболее интенсивно поступал на поверхность Черного моря в период 1962–1963 гг., при этом отношение $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$, как отмечалось выше, для широтного пояса 40–50° с.ш., где и расположено Черное море, составляло 0,036 в 1971 г. В свою очередь, плутоний чернобыльского происхождения поступал из атмосферы преимущественно в первые месяцы после аварии в 1986 г., а отношение активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ в аварийном выбросе составляло 0,45–0,50. Поэтому существенное различие отношения активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ и разница во времени поступления из указанных источников более чем в два десятилетия дает уникальную возможность определения скорости седиментации взвешенного вещества и скорости осадконакопления в до- и постчернобыльский периоды по глубинам залегания пиковых удельных активностей плутония в донных отложениях и трем временным точкам: время максимумов глобальных и чернобыльских выпадений, а также даты отбора проб в сочетании с величиной отношения активностей этих изотопов в вертикальном профиле их распределения.

По литературным данным, вертикальное распределение изотопов плутония в глубоководных донных отложениях Черного моря было представлено лишь в одной работе [Buessler, Benitez, 1994]. Результаты исследований вертикального профиля $^{239+240}\text{Pu}$, выполненные авторами в 1988 г., показали, что в тот период наблюдали лишь один подповерхностный максимум концентрационной активности $^{239+240}\text{Pu}$ в слое 0–0,5 см, который, вероятно, был обусловлен плутонием глобальных выпадений. Максимальные уровни $^{239+240}\text{Pu}$ в этом слое осадка достигали нескольких десятков беккерелей на килограмм. Данные по ^{238}Pu не были изложены и отношение активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ не исследовали, следовательно, и геохронологические датировки профиля не проводили.

Впервые геохронологическая датировка вертикального профиля распределения радионуклидов плутония в глубоководной зоне Черного моря была выполнена по данным, полученным в 2013 г., т.е. через 27 лет после аварии на ЧАЭС [Терещенко и др., 2016; Проскурнин и др., 2017]. Глубина водной толщи в исследуемом районе моря составила 2030 м. Так как горизонт с плутонием чернобыльского происхождения ожидался, по предварительным оценкам, мощностью порядка десятков миллиметров, то для анализа была отобрана колонка высотой 0–10 см и она была разделена на слои толщиной 2,5–5 мм.

Рассмотрим детально анализ вертикального профиля радионуклидов в донных отложениях и их датировку на примере колонки осадка из глубоководной зоны Черного моря. Результаты натуральных наблюдений вертикального распределения концентрационной активности $^{239+240}\text{Pu}$, ^{238}Pu в донных отложениях и отношения активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ в их профиле, из керна осадка в районе западного циклонического круговорота в котловине Черного моря в точке с координатами $43^{\circ}31,824'$ с.ш., $32^{\circ}28,088'$ в.д., и геохронологическая датировка профиля представлены на рис. 7.4.3. В донных отложениях в вертикальном профиле плутония было обнаружено два максимума концентрационной активности $^{239,240}\text{Pu}$, один из которых был приурочен к слою донных отложений 2,75–3,00 см, а другой – 4,0–4,5 см. Концентрационная активность $^{239,240}\text{Pu}$ в осадках в слое 2,75–3,00 см составила $18,3 \pm 1,9$ Бк·кг $^{-1}$, а отношение активностей радионуклидов $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ было равно $0,34 \pm 0,06$. Полученные значения отношения $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ указывают на то, что природа максимума концентрационной активности плутония в слое 2,75–3,00 см обусловлена преимущественно выпадениями радионуклидов чернобыльского происхождения. Вклад чернобыльского плутония в этом слое достиг 70%. Концентрационная активность $^{239,240}\text{Pu}$ в донных отложениях в слое 4,0–4,5 см была равна $25,45 \pm 3,8$ Бк·кг $^{-1}$, а отношение активностей радионуклидов $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ составило $0,035 \pm 0,009$, что соответствует радиоизотопному составу плутония глобальных выпадений. Сравнение значений отношения активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$, определенных в профиле донных отложений, с величинами, характерными для основных источников радиоизотопов плутония в Черном море, дало возможность

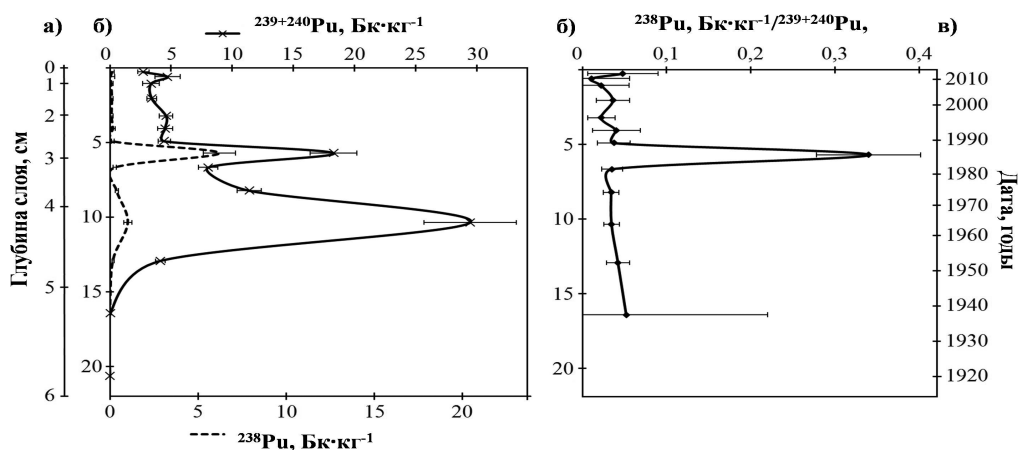


Рис. 7.4.3. Вертикальное распределение $^{239+240}\text{Pu}$ и ^{238}Pu и отношения их активностей ($^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$) в донных отложениях западной части котловины Черного моря, где: а) фактическая глубина залегания слоя донных отложений, см; б) рассчитанная глубина залегания слоя осадков при разуплотненной их толщине, см; в) датировка профиля, год.

датировать слой донных осадков 2,75–3,00 см 1986 годом, а слой 4,0–4,5 см – 1962 годом. Отношение активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ во всех горизонтах ниже 3 см донного осадка не превышало величину $0,035 \pm 0,010$. Это говорит о том, что значение отношения было характерным для плутония глобального происхождения без примеси плутония чернобыльских выпадений. Полученные результаты позволяют заключить, что донные отложения глубже 3 см в 2013 г. отражали историю поступления плутония в период до аварии на ЧАЭС (до 1986 г.), тогда как верхние 3 см осадков были сформированы после 1986 года, включительно. Средняя концентрационная активность $^{239+240}\text{Pu}$ в донных отложениях в глубоководной части моря в дочернобыльский период была значительно выше ($13 \text{ Бк} \cdot \text{кг}^{-1}$), чем уровни радионуклидов плутония в осадках после 1986 г. включительно – $5,7 \text{ Бк} \cdot \text{кг}^{-1}$. Эти данные указывают на спад потока плутония в донные отложения в связи с отсутствием значительных источников его поступления в акваторию моря и что чернобыльские выпадения были менее интенсивные, чем глобальные радиоактивные выпадения в 70-е годы XX века. Уменьшение $^{239,240}\text{Pu}$ в донных отложениях в слое ниже 5 см до величин, сравнимых с пределом детектирования используемого метода ($0,02 \text{ Бк} \cdot \text{кг}^{-1}$), свидетельствует о том, что эти слои осадка сформировались в начале ядерной эпохи – времени, когда антропогенные $^{238,239,240}\text{Pu}$ стали поступать в окружающую среду в незначительных количествах.

В западной части глубоководной котловины Черного моря запасы $^{239+240}\text{Pu}$ и ^{238}Pu до 1986 г. составляли $31,4 \pm 2,7$ и $1,1 \pm 0,2 \text{ Бк} \cdot \text{м}^2$, соответственно. К 2013 г. уровни радионуклидов плутония возросли до значений $39,4 \pm 2,7$ и $1,7 \pm 0,2 \text{ Бк} \cdot \text{м}^2$, соответственно. После аварии на ЧАЭС в глубоководных донных осадках произошло увеличение запасов $^{239+240}\text{Pu}$ на 20%, а ^{238}Pu – на 34% по сравнению с доаварийным уровнем. Важно отметить, что $0,2 \text{ Бк} \cdot \text{м}^2$ ^{238}Pu из его накопленного количества до 1986 г. распалось за период с 1986 по 2013 г. за счет радиоактивного распада (период полураспада $^{238}\text{Pu} = 87,7$ лет [The Chemistry..., 2010]). Следовательно, большую часть запаса $^{239+240}\text{Pu}$ (80%) к 2013 г. составлял плутоний глобальных выпадений. В то же время только 53% от запаса ^{238}Pu в 2013 г. были накоплены до аварии на ЧАЭС. Эта разница отражает более существенный вклад чернобыльских выпадений, в которых отношение активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ выше более чем на порядок, по сравнению с отношением в глобальных выпадениях. Так как плутоний чернобыльского происхождения «обогащен» изотопом ^{238}Pu , то и вклад чернобыльских выпадений в формирование современных запасов ^{238}Pu более существенный, чем в формирование запасов $^{239+240}\text{Pu}$. А в суммарном количестве радионуклидов $^{238,239,240}\text{Pu}$ доля плутония глобального происхождения составила в целом 78% от общего запаса $^{238,239,240}\text{Pu}$ в донных осадках в западной части глубоководной котловины Черного моря.

Скорость осадконакопления, рассчитанная как по чернобыльскому концентрационному пику плутония, так и по пику глобальных выпадений, составила $2,1 \text{ мм} \cdot \text{год}^{-1}$ неуплотненного осадка, а усредненная скорость осадконакопления за 51

год с 1962 по 2013 гг. для естественной плотности осадка составила $0,8 \text{ мм}\cdot\text{год}^{-1}$. Совпадение скоростей накопления неуплотненного осадка, рассчитанных по разным пикам плутония, указывает на отсутствие существенных изменений в скорости осадконакопления в исследуемом регионе на масштабе 50 лет. Средняя скорость седиментации взвешенного вещества составила $60 \text{ г}\cdot(\text{м}^2\cdot\text{год}^{-1})$. Полученная величина скорости седиментации близка к оценке, полученной ранее ($70 \text{ г}\cdot(\text{м}^2\cdot\text{год}^{-1})$) с использованием профилей ^{137}Cs [Gulin et al., 2002; Поликарпов и др., 2008а].

Впервые геохронологическая датировка вертикального профиля распределения радионуклидов плутония в шельфовой зоне была выполнена в 1997 г. в донных отложениях на взморье Дуная (рис. 7.4.4) [Gulin et al., 2002]. Основываясь на вертикальных профилях распределения ^{238}Pu и $^{239+240}\text{Pu}$ в донных осадках и про-

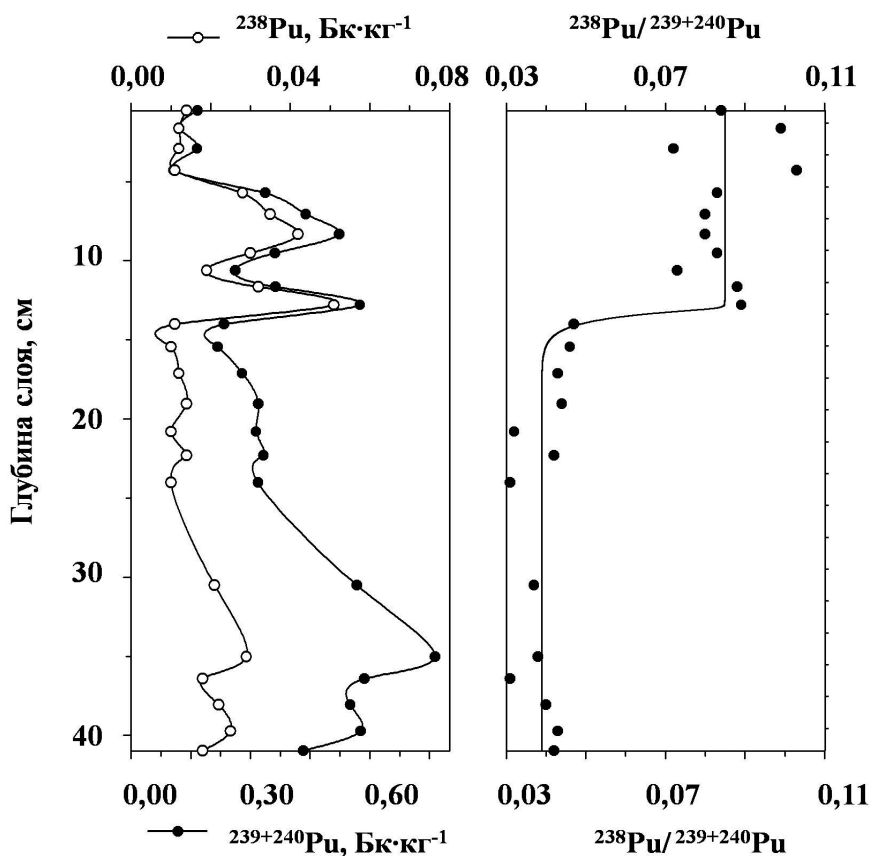


Рис. 7.4.4. Вертикальные распределения изотопов плутония ^{238}Pu и $^{239+240}\text{Pu}$, $\text{Бк}\cdot\text{кг}^{-1}$ и отношение их активностей в вертикальном профиле донных отложений Черного моря на взморье Дуная ($45^{\circ}12,4'$ с.ш., $29^{\circ}51,0'$ в.д., глубина – 26 м) [Gulin et al., 2002].

филе отношения активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ (см. рис. 7.4.4), авторы, так же как и для глубоководной зоны моря, показали наличие плутония чернобыльского происхождения в верхних слоях донных отложений и его отсутствие в более глубоких слоях, содержащих лишь плутоний глобальных выпадений. Идентифицированные максимумы поступления радионуклидов плутония чернобыльского и глобального происхождения были отмечены на значительно больших глубинах, чем в глубоководной зоне, что связано главным образом с влиянием твердого стока Дуная, и как следствие – с высокой скоростью накопления в этом районе шельфа. Скорость осадконакопления в этом районе в расчете на естественную толщину осадка составила $11,5 \text{ мм}\cdot\text{год}^{-1}$ при скорости седиментации взвешенного вещества $3994 \text{ г}\cdot(\text{м}^2\cdot\text{год}^{-1})$. Такая высокая, по отношению к другим районам моря [Поликарпов и др., 2008а], скорость осадконакопления сделала возможным заглубление плутония чернобыльского происхождения уже к 1997 г. до горизонта 13 см в толще донных отложений. Третий верхний максимум ^{238}Pu и $^{239+240}\text{Pu}$ связывают с обильным весенним половодьем на р. Дунай в начале 90-х годов XX века, что привело к усиленному выносу взвеси из водосборного бассейна и вместе с взвешенным веществом – к повышенному выносу в море радионуклидов плутония [Поликарпов и др., 2008а].

В 2013 г. был получен вертикальный профиль ^{238}Pu и $^{239+240}\text{Pu}$ в другом районе на шельфе – на севере северо-западной части моря (рис. 7.4.5).

Для слоев ниже 12 см значения активности ^{238}Pu в препаратах проб были ниже предела детектирования, а для $^{239+240}\text{Pu}$ – определены очень низкие уровни, на грани предела детектирования, это свидетельствует о практическом отсутствии радионуклидов плутония на горизонтах осадка более 16 см, что позволяет отнести формирование этих слоев донных отложений до начала массовых испытаний ядерного оружия в открытых средах.

Максимальные уровни $^{239+240}\text{Pu}$ в чернобыльском пике достигали $3,2 \text{ Бк}\cdot\text{кг}^{-1}$, что значительно выше, чем на взморье Дуная ($0,6 \text{ Бк}\cdot\text{кг}^{-1}$). Также и в глобальном пике, значения $^{239+240}\text{Pu}$ у Дуная были в 3 раза ниже: $0,8$ по сравнению с $2,4 \text{ Бк}\cdot\text{кг}^{-1}$. Согласно изменению отношения $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ в слое 0–12 см можно отметить, что скорость осадконакопления была низкой в этом районе, составила $2,1\pm 0,3 \text{ мм}\cdot\text{год}^{-1}$. Чернобыльский и глобальный пик находились в слое 4–6 и 10–12 см, соответственно, (см. рис. 7.4.5). Скорость осадконакопления в этом районе существенно ниже, чем на взморье Дуная, что соответствует разности среднегодового твердого стока Дуная и Днестра: 68 и 2,12 млн. т в год (без учета твердого стока реки Южный Буг) [Gulin et al., 2003]. Повышение отношения $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ в поверхностном слое может быть связано со спуском воды из пруда охладителя в реку Припять в 2008–2010 гг. и увеличением доли чернобыльского плутония, учитывая, что уровни ^{238}Pu приведены к 1986 г.

В 2013 г. были получены вертикальные профили радионуклидов в прибрежном районе шельфа – у выхода из Севастопольской бухты на глубине 15 м (рис. 7.4.6).

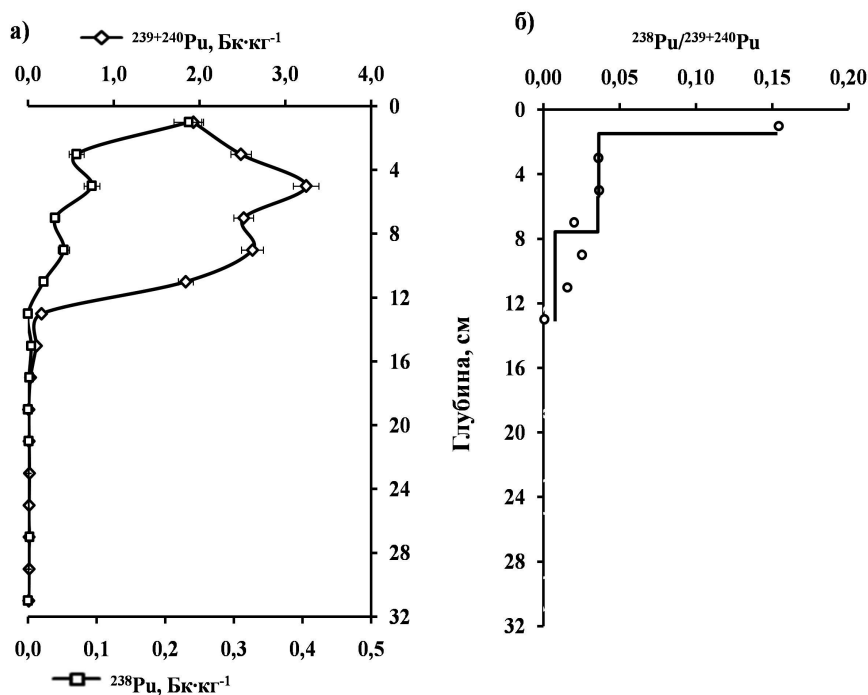


Рис. 7.4.5. Вертикальные профили ²³⁹⁺²⁴⁰Pu и ²³⁸Pu и отношение их активностей в донных отложениях в северо-западной части Черного моря (46°25,15' с.ш., 31°09,49' в.д., глубина – 20 м) на трассе Днепроовско-Бугского лимана.

С использованием полученных профилей и отношения радионуклидов плутония была рассчитана скорость осадконакопления, которая составила в период с 1986 по 2013 гг. $4,07 \pm 0,25$ мм·год⁻¹. Что в пределах ошибки определения совпало с данными, полученными по ¹³⁷Cs – 4,5 мм·год⁻¹. В период с 1962 по 1986 гг. скорость осадконакопления была ниже – $2,5 \pm 0,2$ мм·год⁻¹, что практически на 40% меньше, чем в постчернобыльский период. Скорость седиментации взвешенного вещества при этом составляла 3012 г·(м²·год⁻¹) в постчернобыльский период и 1767 г·(м²·год⁻¹) – до 1986 г. – времени аварии на ЧАЭС и возведения заградительных молов на выходе из бухты. Полученные результаты согласуются с изменениями гидрологического режима бухты, произошедшими после строительства заградительных молов. В 1986 г. выход из Севастопольской бухты был сужен с 1235 м до 415 м. Вследствие этого водообмен с открытой частью моря уменьшился на 40–70% [Иванов и др., 2006], что, в свою очередь, создало своего рода седиментационную ловушку в этой акватории и привело к увеличению скорости седиментации взвешенного вещества в этом участке бухты.

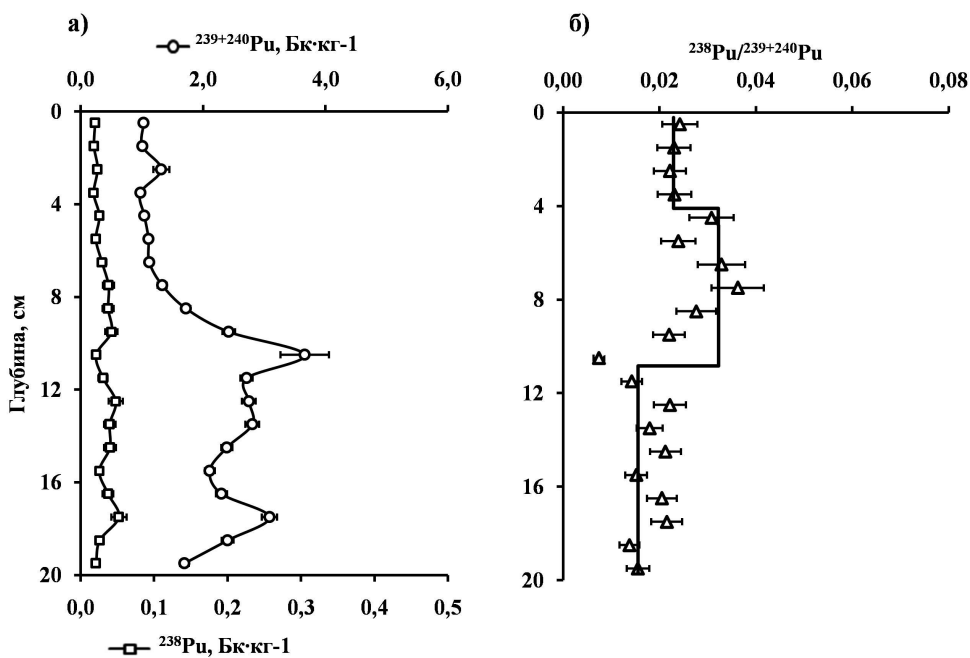


Рис. 7.4.6. Вертикальные профили концентрационной активности $^{239+240}\text{Pu}$ и ^{238}Pu (а) и отношение их активностей (б) в донных осадках из Севастопольской бухты (44° 37,53' с.ш., 33° 31,32' в.д., глубина – 14 м).

Сравнение вертикальных профилей распределения $\text{Pu}^{239+240}$ и ^{238}Pu из глубоководной котловины Черного моря – из сероводородной зоны (см. рис. 7.4.3) и таковых из мелководных районов окислительной зоны Черного моря (см. рис. 7.4.4–7.4.6) показало, что последние не сохраняют полностью неизменной стратификацию осадков во времени. Здесь, на небольших глубинах в кислородной зоне (глубины 26–14 м), вероятно, сказывается эффект перемешивания, биотурбации и возможного переосаждения осадка, особенно в прибрежных акваториях, что снижает точность детального анализа профиля. Но, используя концентрационные активности разных радионуклидов в донных отложениях, вес осадка, площадь проб и скорость осадконакопления, скорость седиментации взвешенного вещества, полученные сочетанием методов с применением искусственных и естественных радионуклидов [Поликарпов и др., 2008а; Gulina et al., 2013; Egorov et al., 2018], по вертикальным профилям можно оценить плотность загрязнения донных осадков суммарным плутонием – чернобыльского и глобального происхождения в конкретных акваториях Черного моря. А также возможны оценки потоков плутония, их изменения в разные периоды времени.

Реконструкция потоков $^{239+240}\text{Pu}$ в донные отложения

На основе полученных данных о скорости седиментации взвешенного вещества в глубоководной зоне Черного моря и распределения $^{239+240}\text{Pu}$ и ^{238}Pu в толще донных отложений были рассчитаны потоки депонирования этих радионуклидов в донные отложения в соответствующие временные интервалы и произведена геохронологическая ретроспективная реконструкция этих потоков. Проведенный подробный анализ потоков плутония в до- и постчернобыльский период на примере глубоководной зоны Черного моря представлен на рис. 7.4.7.

Максимальный поток седиментационного депонирования $^{239+240}\text{Pu}$ в донные отложения наблюдали в первой половине 1960-х годов во время максимально интенсивных глобальных выпадений. Он составлял $1,77 \pm 0,22 \text{ Бк} \cdot \text{м}^{-2} \cdot \text{год}^{-1}$.

После прекращения массовых испытаний ядерного оружия основными ядерными державами в открытых средах в 1963 г. поступление искусственных радионуклидов в атмосферу резко снизилось и поток $^{239+240}\text{Pu}$ в донные отложения начал резко спадать в отсутствие дополнительных значительных поступлений $^{239+240}\text{Pu}$ в море. В глубоководном районе к первой половине 1980-х годов поток $^{239+240}\text{Pu}$ уменьшился до $0,48 \pm 0,05 \text{ Бк} \cdot (\text{м}^{-2} \cdot \text{год}^{-1})$. В 1986 г. за счет залпового поступления плутония с атмосферными выпадениями после аварии на ЧАЭС произошло резкое увеличение седиментационного потока $^{239+240}\text{Pu}$ в донные отложения – более

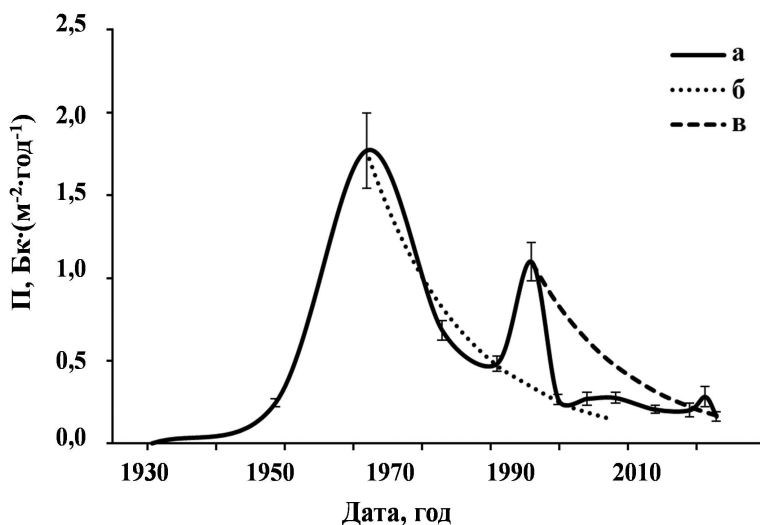


Рис. 7.4.7. Геохронологическая ретроспективная реконструкция потоков седиментационного депонирования $^{239+240}\text{Pu}$ (П , $\text{Бк} \cdot (\text{м}^{-2} \cdot \text{год}^{-1})$) в глубоководных донных отложениях Черного моря: а – кривая, построенная по натурным данным; б – результаты моделирования уменьшения потоков до аварии на ЧАЭС; в – результаты моделирования уменьшения потоков после аварии на ЧАЭС.

чем в два раза – до $1,10 \pm 0,11$ Бк·(м²·год⁻¹). Уже к первой половине 1990-х годов поток ²³⁹⁺²⁴⁰Pu сократился до значений практически в два раза ниже минимальных потоков, которые были характерны в 80-е годы XX века до аварии на ЧАЭС, и оставался практически постоянным в пределах погрешности используемого метода определения. Средний поток седиментационного депонирования ²³⁹⁺²⁴⁰Pu в донные отложения в 1990–2000-х годах составил $0,24 \pm 0,04$ Бк·(м²·год⁻¹).

При детальном изучении изменения потоков седиментационного депонирования плутония в донные отложения было сделано предположение, что залповое поступление плутония с чернобыльскими атмосферными выпадениями не привело к долгосрочному увеличению потока депонирования плутония в глубоководной части Черного моря. Это подтверждается данными моделирования седиментационного потока ²³⁹⁺²⁴⁰Pu (см. рис. 7.4.7б, в). Было определено, что период уменьшения потока седиментационного депонирования плутония в глубоководной котловине Черного моря в период до аварии на ЧАЭС составлял величину около 10 лет, а изменение величины этого потока с достоверностью аппроксимации 98,3% описывается уравнением (7.4.1) (см. рис. 7.4.7б):

$$П = П_0 \cdot 2^{-\frac{t}{10}}, \quad (7.4.1)$$

где: П – поток седиментационного депонирования радиоизотопов плутония в донные отложения в момент времени t , после максимального поступления этих радиоизотопов в 1962 г., Бк·(м²·год⁻¹); t – время после 1962 г., годы; $П_0$ – поток седиментационного депонирования радиоизотопов плутония в исходный момент времени t_0 , ($t_0 = 1962$ г.), Бк·(м²·год⁻¹).

В пользу высказанного предположения, обозначенного выше, говорит также тот факт, что натурные значения потока седиментационного депонирования плутония в 1990 и 1994 гг., включенные в регрессионный анализ аппроксимирующей кривой (уравнение (7.4.1), см. рис. 7.4.7б) при исключении данных за 1986 г. не ухудшают достоверность аппроксимации. В свою очередь, попытка описать изменение потока плутония уравнением аналогичным уравнению (7.4.1) в постчернобыльский период (см. рис. 7.4.7в) с начальным условием $П_0 = П_{1986}$, т.е. с исходным потоком, приуроченным к 1986 г., приводит к завышенным значениям потока плутония, а достоверность аппроксимации при этом низкая – 23,2%. В пользу предположения о слабом влиянии радионуклидов плутония чернобыльского происхождения на формирование потоков его седиментационного депонирования в период после аварии на ЧАЭС также говорит отношение активностей ²³⁸Pu/Pu²³⁹⁺²⁴⁰ в горизонтах донных отложений с 2,75 см, величина которого имеет значения, характерные для изотопного состава плутония глобальных выпадений, практически без влияния радиоактивного загрязнения чернобыльского происхождения (см. рис. 7.4.3).

Незначительные изменения величины потоков седиментационного депонирования плутония с середины 1990-х годов и до конца изучаемого периода (2013 г.)

вокруг среднего значения в пределах погрешности метода определения можно объяснить установлением равновесия между потоком поступления плутония в акваторию Черного моря и его выведением из водной толщи путем ее биогеохимического седиментационного самоочищения. Поток поступления плутония в Черное море в современных условиях, по всей видимости, складывается из атмосферных выпадений остаточных количеств плутония оружейного происхождения и вторичного поступления его с речным и поверхностным стоком, а также следовых количеств рассеянного плутония чернобыльского происхождения, количество которого настолько мало, что не приводит к повышению отношения активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$. Для глубоководной толщи также вероятным источником плутония является перенос его из прибрежных районов с водными массами в результате возможной его ремобилизации из-за штормовой и биологической активности в прибрежных и шельфовых акваториях, характеризующихся окислительными свойствами. Возможно также влияние средиземноморских вод, которые поступают в Черное море через пролив Босфор [Терещенко, 20176], так как концентрационные активности плутония в Средиземном море были выше, чем в Черном, и изотопный состав изотопов плутония в средиземноморских водах соответствует таковому в глобальных выпадениях [WOMARS, 2005]. Согласно полученным результатам, все указанные источники в первой половине 2010-х годов создавали суммарный поток седиментационного депонирования радионуклидов плутония в глубоководной зоне моря на уровне $0,16 \pm 0,03 \text{ Бк} \cdot (\text{м}^2 \cdot \text{год}^{-1})$ (см. рис. 7.4.7).

Оценки потоков $^{239+240}\text{Pu}$ были выполнены и для шельфовых районов моря. На основании полученных данных по скорости седиментации взвешенного вещества, скорости осадконакопления и уровнях $^{239+240}\text{Pu}$ в донных отложениях (см. рис. 7.4.6) были рассчитаны седиментационные потоки плутония в донные осадки устьевой части Севастопольской бухты. Так, средняя величина потока $^{239+240}\text{Pu}$ в дочернобыльский период составляет $3,80 \text{ Бк} \cdot \text{м}^2 \cdot \text{год}^{-1}$, а в постчернобыльский – $5,65 \text{ Бк} \cdot \text{м}^2 \cdot \text{год}^{-1}$. Для радиоизотопа ^{238}Pu данные величины были равны соответственно $0,06$ и $0,15 \text{ Бк} \cdot \text{м}^2 \cdot \text{год}^{-1}$. Кумулятивные седиментационные потоки $^{239+240}\text{Pu}$ составляют в дочернобыльский период $91,08 \text{ Бк} \cdot \text{м}^2$, в постчернобыльский – $152,45 \text{ Бк} \cdot \text{м}^2$, а ^{238}Pu – $1,38$ и $2,82 \text{ Бк} \cdot \text{м}^2$, соответственно. Более высокие потоки $^{239+240}\text{Pu}$ в постчернобыльский период могут быть объяснены, как уже говорилось выше, зарегулированием водообмена бухты строительством молов, и как следствие – увеличением скорости седиментации взвешенного вещества, скорости осадконакопления в устьевой части бухты и увеличением выноса радионуклидов плутония из вод бухты в донные отложения.

Отличие в скорости осадконакопления, условия поступления плутония в черноморские акватории (в частности, удаленность от источников речного стока из загрязненных территорий) и другие особенности акваторий привели к формированию разных плотностей загрязнения донных отложений долгоживущими радиоизотопами $^{239+240}\text{Pu}$ в разных районах моря в современный период. Оценка плотности загрязнения донных осадков в постчернобыльский период в разных

районах Черного моря показана в табл. 7.4.1 [Gulin et al., 2002, 2003; Поликарпов и др., 2008а; Егоров и др., 2013; Терещенко и др., 2013; 2016; Tereshchenko et al., 2018]. Самая высокая плотность $^{239+240}\text{Pu}$ отмечена на севере западной части Черного моря на траверзе Днепровско-Бугского лимана, где наиболее выражено влияние стока рек Днепра и Буга. Самая низкая плотность в донных осадках $^{239+240}\text{Pu}$ в современный период была определена на взморье Дуная.

Разница в плотности загрязнения $^{239+240}\text{Pu}$ поверхностного 0–1-сантиметрового слоя донных осадков в разных районах связана с близостью к источнику поступления, а следовательно с уровнями $^{239+240}\text{Pu}$ и его формой в воде, со скоростью седиментации взвеси и осадконакопления, которые, в свою очередь, связаны с продуктивностью вод акватории, а также с поступлением аллохтонной взвеси в акваторию и, следовательно, временем формирования слоя 0–1 см, условиями водной среды и аккумуляционной способностью донных осадков, которая характеризуется коэффициентами накопления Pu, зависящими от гранулометрического состава осадков [Поликарпов, 2008а; Tereshchenko et al., 2018].

Таблица 7.4.1

Время формирования и плотность загрязнения поверхностных черноморских донных осадков $^{239+240}\text{Pu}$ в глубоководном районе и разных шельфовых акваториях Черного моря в современный период (2010-е годы)

Район Черного моря	SR, мм·год ⁻¹	MAR, г·(м ² ·год ⁻¹)	П($^{239+240}\text{Pu}$), Бк·(м ² ·год ⁻¹)	Время формирования слоя 0-1 см, год	Плотность $^{239+240}\text{Pu}$, Бк·м ⁻² в слое 0-1 см
Глубоководный район Кн = $2 \cdot 10^6$	0,8	60	0,160	12,5	2,0
Взморье Дуная Кн = $1 \cdot 10^5$	11,5	3994	0,811	0,87	0,7
Север западной части моря Кн = $6 \cdot 10^6$	4,1	1636	3,151	2,3	8,1
Балаклавская бухта (среднее по бухте) Кн = $2 \cdot 10^6$	5,4	2825	0,965	1,9	1,8
Стрелецкая бухта (среднее по бухте) Кн = $2 \cdot 10^6$	3,5	888	0,910	2,9	2,6
Севастопольская бухта (устье) Кн = $2 \cdot 10^6$	4,1	2899	2,899	2,4	6,9

SR – скорость осадконакопления, MAR – скорость седиментации взвешенного вещества, П – седиментационный поток $^{239+240}\text{Pu}$ в осадки, Кн – коэффициенты накопления $^{239+240}\text{Pu}$ донными осадками

Заключение

В результате исследования распределения радионуклидов плутония в донных отложениях Черного моря установлено, что в открытой части моря в 1962 г. концентрационная активность $^{239+240}\text{Pu}$ в поверхностном слое была равна 25,60, в 1986 – 12,68 в 2013 – 1,68 Бк·кг⁻¹, а в прибрежных районах в современный период в поверхностном слое в северо-западной части – 1,93, в Каркинитском заливе – 0,30–0,76, в Севастопольской бухте – 0,30–1,32, в Стрелецкой бухте – 0,75, у восточного побережья Крыма – 0,32–0,60 Бк·кг⁻¹. Средняя концентрационная активность $^{239+240}\text{Pu}$ в толще донных отложений в дочернобыльский период была значительно выше (13 Бк·кг⁻¹), чем после аварии на ЧАЭС – 5,7 Бк·кг⁻¹,

Применение радиотрассерных технологий с использованием техногенных радиоактивных изотопов плутония, поступивших в экосистему Черного моря вследствие ядерных инцидентов, позволило провести геохронологическую датировку донных отложений и поступления радионуклидов плутония в черноморские донные осадки, рассчитать скорость седиментации взвешенного вещества (MAR), скорость осадконакопления (SR). В целом в открытой части моря MAR составляла 60, а в исследованных шельфовых районах варьировала от 888 до 3994 г·(м²год⁻¹). Самые высокие значения MAR приурочены к акваториям приустьевой зоны Дуная, Севастопольской и Балаклавской бухтам.

На основе геохронологической датировки осадков, уровней радионуклидов плутония в вертикальных профилях донных отложений, SR и MAR определены величины седиментационных потоков радионуклидов плутония и выявлена их прямая связь с уровнем трофности вод акватории, близостью к источникам терригенной взвеси и поступления плутония в акваторию моря, а также характеристиками донных отложений, в частности, их аккумуляционной способности, связанной с гранулометрическим составом донных отложений, уровнем радионуклидов плутония в воде.

Проведена ретроспективная реконструкция потоков плутония в донные осадки и проанализирована их кинетика в до- и постчернобыльский период. Средний поток седиментационного депонирования $^{239+240}\text{Pu}$ в донные отложения в 1990–2000-х годах в глубоководном районе составил $0,24 \pm 0,04$ Бк·(м²·год⁻¹). В современный период в глубоководной зоне седиментационный поток $^{239+240}\text{Pu}$ составлял 0,16, а шельфовых районах изменялся в пределах 0,81–3,15 Бк·(м²·год⁻¹).

По результатам проведенной датировки глубоководных донных отложений показано заглабление пика чернобыльского плутония до горизонта осадка 3 см. Установлено, что верхние 3 см донных отложений в западной части котловины Черного моря сформированы за 27 лет – с 1986 по 2013 гг, горизонт отложений мощностью 3–5 см сформировался за период с 1950-х до 1986 гг. Профили концентраций ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ отражают историю поступления плутония в акваторию Черного моря и потоков депонирования его в донные отложения в соответствующую

щие временные интервалы. Показано, что современные запасы $^{239+240}\text{Pu}$ в глубоководных донных отложениях на 80% сформированы до 1986 г., тогда как почти половина (47%) запасов ^{238}Pu была накоплена за период с 1986 по 2013 гг. Это отражает более существенный вклад чернобыльских выпадений в формирование запаса ^{238}Pu , чем $^{239+240}\text{Pu}$. По результатам реконструкции потока плутония в донные осадки определен период полууменьшения седиментационного потока плутония, равный 10 годам. Показано, что чернобыльские выпадения носили залповый характер и не привели к долгосрочному увеличению седиментационного потока плутония в постчернобыльский период в глубоководной зоне Черного моря.

Определена плотность загрязнения поверхностных донных осадков по $^{239+240}\text{Pu}$ в современный период (2010-е годы), она варьировала от 0,7 до 8,1 Бк·м⁻², при этом максимальные уровни плотности загрязнения осадка находятся на севере шельфа западной части моря.

Работа выполнена по теме государственного задания ФГБУН ИМБИ «Молисмологические и биогеохимические основы гомеостаза морских экосистем», № АААА-А18-118020890090-2.