

Морской биологический журнал

2016, Том 1, № 3, с. 3–13

http://mbj.imbr-ras.ru; doi: 10.21072/mbj.2016.01.3.01 ISSN 2499-9768 print / ISSN 2499-9779 online

УДК 504.054(262.5)

РАДИОЭКОЛОГИЧЕСКИЕ ЗАКОНОМЕРНОСТИ ПЕРЕРАСПРЕДЕЛЕНИЯ АЛЬФА-РАДИОНУКЛИДОВ ПЛУТОНИЯ В ЭКОСИСТЕМЕ ЧЁРНОГО МОРЯ

© 2016 г. **Н. Н. Терещенко**, канд. биол. наук, в. н. с., **С. Б. Гулин**, д-р. биол. наук, директор ФГБУН ИМБИ РАН, **В. Ю. Проскурнин**, м. н. с.

Институт морских биологических исследований им. А.О. Ковалевского РАН, Севастополь, Россия E-mail: ntereshchenko@yandex.ru

Поступила в редакцию 12.09.2016 г. Принята к публикации 27.09.2016 г.

Работа посвящена исследованию радиоэкологических процессов перераспределения альфа-радионуклидов плутония (239+240 Pu) как основных дозообразующих техногенных альфа-радионуклидов в период после аварии на Чернобыльской AЭС. $^{239+240}$ Pu — долгоживущие радиоизотопы, количество которых накапливается в природных экосистемах от инцидента к инциденту. Радиотоксичность этих радионуклидов высока, и необходимы научно обоснованные подходы к оценке и прогнозу радиоэкологического состояния водоёмов, подверженных риску повторного радиоактивного загрязнения ²³⁹⁺²⁴⁰Ри. К таким водоёмам относится Чёрное море, как внутренне море, расположенное в регионе высокоразвитых стран, использующих ядерные технологии. Работа выполнена современными методами, основными из которых были: радиохимический анализ, альфа-спектрометрия и радиотрассерные технологии. В результате исследования выявлены радиоэкологические закономерности поведения плутония (Рu) в экосистеме Чёрного моря в постчернобыльский период. Определены количественные параметры миграции ²³⁹⁺²⁴⁰Pu в море: скорость осадконакопления в разных районах моря, период полууменьшения удельной активности поверхностных вод по ²³⁹⁺²⁴⁰Pu, фактор радиоёмкости для донных отложений, потоки плутония, уровни содержания ²³⁹⁺²⁴⁰Pu в компонентах экосистемы, коэффициенты накопления биотическими и абиотическими составляющими. Выявлены особенности биогеохимического поведения плутония в экосистеме Чёрного моря и указаны условия и процессы, их обуславливающие. Отмечены повышенная способность черноморских поверхностных вод к самоочищению в отношении ²³⁹⁺²⁴⁰Pu, короткий период пребывания плутония в поверхностных водах, относительно быстрое накопление плутония в осадках за счёт биогеохимической седиментации элемента, высокая концентрационная способность иловых донных отложений в отношении ²³⁹⁺²⁴⁰Pu, тип биогеохимического поведения плутония в экосистеме Чёрного моря.

Ключевые слова: Чёрное море, техногенные радиоизотопы, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu, закономерности перераспределения, вода, донные отложения, гидробионты, фактор радиоёмкости, тип биогеохимического поведения радиоизотопов, самоочищение вод

Опыт ликвидации последствий радиационной аварии в 1986 г. на Чернобыльской АЭС (ЧАЭС) продемонстрировал необходимость изучения радиоэкологических закономерностей миграции радионуклидов в природе для оценки состояния экосистем и разработки оперативных мер по минимизации вредных последствий радиационных аварий.

После аварии на ЧАЭС альфа-радионуклиды плутония $^{239+240}$ Ри вошли в число основных техногенных дозообразующих альфа-радиоизотопов в природных экосистемах [9]. Наблюдаемые уровни загрязнения Ри не достигли в Чёрном море таких величин концентраций, радиационные нагрузки от которых могли бы вызывать поражающие эффекты у биоты [9], [26]. Однако использование ядер-

ных технологий продолжается, и осуществляются нормативные выбросы радиоактивных веществ в окружающую среду, а также эпизодически происходят радиационные аварии разных масштабов [1], [9], [29], поэтому угроза увеличения уровней радиоактивного загрязнения природных экосистем сохраняется. Альфа-радионуклиды Ри имеют длительные периоды полураспада (239 Pu — 24110 лет, а 240 Pu — 6563 года) [27], поэтому их концентрации в компонентах экосистем за счёт радиоактивного распада практически не уменьшаются и от инцидента к инциденту их количество в окружающей среде увеличивается. Моря служат своего рода буферными системами, куда поступают и где накапливаются многие радионуклиды как вследствие атмосферного переноса, так и с речным и поверх-

ностным стоком. Чёрное море подвержено риску радиационного загрязнения как внутреннее море, в водосборном бассейне которого произошла крупная радиационная авария на ЧАЭС и расположены развитые страны, использующие ядерные технологии, в частности атомную энергетику. По состоянию на 2016 г. в Российской Федерации эксплуатируется 10 атомных электростанций. На территории водосборного бассейна Чёрного моря находятся также 4 АЭС, функционирующие в Украине, 146 АЭС — на территории стран Европейского союза, 1 АЭС — в Армении. Турция планирует строительство своей первой АЭС [2]. Кроме энергетики, радионуклиды плутония находят своё применение в космических технологиях, приборостроении, медицине и других областях, а ²³⁹Pu — один из основных компонентов боезарядов ядерного оружия [27]. В то же время Чёрное море является источником промысла морепродуктов, добычи полезных ископаемых, а также обладает большим рекреационным ресурсом. Поэтому важно знать, как протекают радиоэкологические процессы в водоёме, их особенности и количественные параметры. Это необходимо для оценки дозовых нагрузок в отношении гидробионтов и человека, характеристики радиационной ситуации в водоёме, выработки адекватных мер по уменьшению последствий воздействия радиоактивного загрязнения на природные экосистемы.

Наша работа посвящена изучению уровней содержания, миграции и депонирования $^{239+240}$ Ри в компонентах экосистемы Чёрного моря.

Цель работы состояла в выявлении закономерностей радиоэкологических процессов перераспределения плутония и их особенностей в данном водоёме для использования полученных результатов в качестве научной основы оценки и прогноза радиоэкологического состояния акваторий в широком спектре возможных концентраций Ри в морской среде.

МАТЕРИАЛ И МЕТОДЫ

Радиоэкологические исследования проводились в основном в Чёрном море с 1986 по 2013 гг. Пробы были отобраны в ходе многочисленных морских и прибрежных экспедиций, преимущественно в северо-западной и центральной частях моря, прибрежных акваториях Крымского полуострова, в частности в Севастопольской бухте, в постчернобыльский период [9], [13], [14], [15], [16], [17], [21], [25], а также в Средиземном море и Пригибралтарском районе Атлантического океана в 2003 г. [16], [22].

Плутоний из природных образцов выделяли по известным методикам [9], [16], [25]. При выделении $^{239+240}$ Ри осуществляли термическую и химическую обработку природных образцов, затем — хроматографическую очистку и выделение Ри с помощью ионообменных смол с последующим изготовлением тонкослойных препаратов соосаждением плутония с фторидом лантана или проводили его электроосаждение на стальные диски с последующей фиксацией и измерением образ-

цов на вакуумируемых, низкофоновых кремниевых детекторах на альфа-спектрометрометрическом комплексе EG&G ORTEC BERTHOLD-WALLAC (OCTETE-PC 8-FOLD COMPLETE ALPHA SPECTROSCOPY SYSTEM). Калибровку энергетических спектров и определение эффективности счёта детекторов проводили с использованием стандартов из долгоживущих изотопов плутония 242 Pu, 239 Ри и америция 243 Am. Скорость счёта фона для каждого из детекторов в области энергий определяемых радионуклидов не превышала 10^{-5} имп/с. Радиоизотопы 239 Ри и ²⁴⁰Ри испускают альфа-частицы, значения энергий которых очень близки (239 Pu — 5.16 МэВ (72 %), 5.14 МэВ (16.8 %), 5.11 M₃B (11.2 %); ²⁴⁰Pu – 5.17 M₃B (75.5 %), 5.12 МэВ (24.4 %) [6], [27], поэтому их энергетические альфа-спектры перекрываются и, вследствие этого, альфаспекторметрический метод не позволяет раздельно измерять активность каждого из радиоизотопов 239 Pu и 240 Pu. В связи с этим в препаратах измеряли суммарную активность этих радионуклидов $^{239+240}$ Pu.

По альфа-спектрам радиоизотопов плутония проводили также количественное определение индивидуальных радиоизотопов: 238 Pu, 242 Pu. Радиоизотоп 242 Pu в природные образцы вносили в качестве радиоактивного трассера перед аналитическими процедурами для оценки химического выхода Pu. Химический выход Pu составлял 40–80 %. Ошибка определения $^{239+240}$ Pu в пробах донных отложений не превышала 13, а в пробах морской воды и гидробионтов — 20 %.

Для определения скоростей осадконакопления SR (мм/год) был применён метод радиоизотопной геохронологической реконструкции радиоактивного загрязнения [9], [21], [23], который при наблюдавшихся величинах скорости осадконакопления в Чёрном море обеспечивал разрешающую способность около 5 лет [9].

На основе ретроспективного анализа концентрационной активности $^{239+240}$ Ри в морской воде был определён период полууменьшения ($T_{1/2}$, годы) $^{239+240}$ Ри в поверхностных черноморских водах традиционным методом [13], [29].

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Как известно, Чёрное море имеет в своих глубинах сероводородную зону с восстановительными свойствами (глубже 200 м) (рис. 1) [4], [7], [10]. В этой зоне происходит смена форм многих химических элементов, включая Ри, который в водных растворах может проявлять переменную валентность III—VI в зависимости от условий среды [6], [26]. В глубинных черноморских водах практически весь Ри находится в восстановленном состоянии, в такой форме у него увеличивается сродство к частицам [6], [27], и он переходит из растворённой формы во взвешенную [28].

Чёрное море является мезотрофным водоёмом из-за поступления большого количества, особенно в северо-западной части моря, речных вод (около $300 \text{ км}^3 \cdot \text{год}^{-1}$)



Рис. 1. Физико-химические формы Pu в зависимости от окислительно-восстановительных свойств черноморских вод и их влияние на биогеохимическое поведение плутония в экосистеме моря

Fig. 1. The Pu physic-chemical forms depending on the redox properties of the Black Sea waters and their influence on the biogeochemical behavior of plutonium in the sea ecosystem

и терригенной взвеси (более $1 \cdot 10^6$ т.год⁻¹), а также апвеллинга глубинных черноморских вод [4], [10], которые приносят с собой значительное количество биогенных элементов в фотический слой. Это вызывает повышенную продуктивность морских вод [10], [20], и, как следствие, поток биоседиментации в донные отложения должен усиливаться, что может приводить к ускорению вертикальной миграции Ри в толще черноморских вод и к сравнительно короткому времени пребывания Ри в поверхностных водах моря. Для подтверждения этого изучено пространственное распределение радионуклидов плутония в поверхностной черноморской воде в разные периоды после аварии на Чернобыльской АЭС.

Анализ данных по распределению удельной активности поверхностных черноморских вод в отношении $^{239+240}$ Ри (Бк·м $^{-3}$) в послечернобыльский период показал его неравномерность (рис. 2) [9], [13], [16]. В 1986 г. самые высокие удельные активности вод в отношении $^{239+240}$ Ри (около 1 Бк/м 3) наблюдались в приустьевых зонах рек Днепр, Буг и Дунай, что, очевидно, связано с поступлением радиоактивного загрязнения с водами рек, водосборные бассейны которых были наиболее сильно подвержены радиоактивным выпадениям после аварии на ЧАЭС [9], [21]. В центре западной части моря концентрации Ри были ниже и составляли 9–17 мБк·м $^{-3}$. На рис. 2 показано изменение средней концентрационной активности общего (растворённого и взвешенного) плутония в поверхностной черноморской воде с 1986 по 2013 гг. [13], [24].

Рассмотрение изменения концентрационной активности плутония в исследованный период показало, что для этого временного промежутка характерно экспоненциальное снижение во времени концентрационной активности $^{239+240}$ Ри в поверхностных водах Чёрного моря (рис. 3). Анализ уравнения, описывающего аппроксимационную кривую, отражающую уменьшение концентрационной активности $^{239+240}$ Ри во времени в поверхностной воде, позволил оценить скорость элиминации $^{239+240}$ Ри из поверхностных черноморских вод. Установлено, что время уменьшения концентрационной активности $^{239+240}$ Ри в два раза в поверхностных водах (так называемый эффективный период полууменьшения радионуклида в поверхностных водах — $T_{1/2}$) составило 4 ± 2 года [13]. Следовательно, для радионуклидов плутония $^{239+240}$ Ри $T_{1/2}$ ниже, чем таковой, полученный аналогичным методом для 137 Сѕ (7 лет) в черноморских водах [9], [22].

 $T_{1/2}$ $^{239+240}$ Ри в Чёрном море также примерно в два раза меньше, чем таковой в океанических водах, который составляет в среднем для поверхностных вод Тихого океана — 7.4, Индийского — 9.0, Атлантического — 9.1 года [29].

Как указано выше, альфа-радионуклиды плутония $^{239}{\rm Pu}$ и $^{240}{\rm Pu}$ характеризуются длительными периодами полураспада. Поэтому на уменьшении их концентрации в объектах окружающей среды на временном масштабе в десятки лет не сказывается процесс радиоактивного распада, как это происходит с техногенными радионуклидами $^{137}{\rm Cs}$ или $^{90}{\rm Sr}$, периоды полураспада которых составляют около трёх десятилетий. Поэтому элиминация плутония из воды может объясняться другими свойствами самого плутония или особыми условиями и биогеохимическими процессами, характерными именно для Чёрного моря. Как отмечалось выше (рис. 1), более быстрая элими-

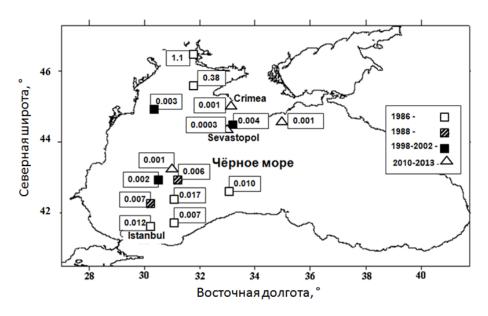


Рис. 2. Концентрационная активность радионуклидов плутония $^{239+240}$ Ри (Бк·м $^{-3}$) в поверхностных черноморских водах в период после аварии на Чернобыльской АЭС

Fig. 2. The concentration activity of plutonium radionuclides $^{239+240}$ Pu (Bq·m $^{-3}$) in the Black Sea surface waters in the period after the Chernobyl accident

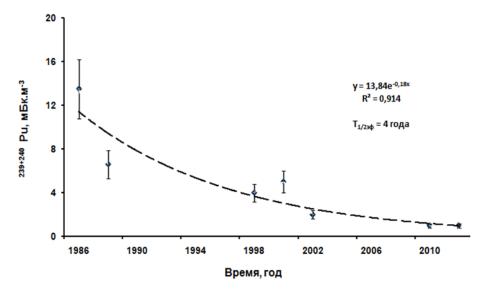


Рис. 3. Многолетний тренд изменения концентрационной активности радионуклидов плутония $^{239+240}$ Ри (мБк·м $^{-3}$) в поверхностных черноморских водах

Fig. 3. The long-term changes of the concentration activity trend of the plutonium radionuclides $^{239+240}$ Pu (mBq·m⁻³) in the Black Sea surface water

нация плутония из черноморских вод происходит благодаря свойствам Pu, его способности прочно связываться с частицами взвеси и отсутствию ремобилизации плутония в водную среду в сероводородной зоне, где окислительные условия изменяются на восстановительные и прочность связывания плутония с частицами возрастает. Существенным фактором, способствующим ускорению вертикальной миграции плутония, служат также так называемые барьерные зоны в Чёрном море [7]. Это — зоны смешения речных и морских вод на шельфе и граница окислительной и восстановительной зон. Общим для этих слоёв вод является то, что в результате смены условий среды происходит переход растворённого марганца и железа во взвешенную форму. Поскольку эти элементы служат соо-

садителями для плутония, в барьерных зонах происходит соосаждение плутония с железом и марганцем — переход плутония из растворённой формы во взвешенную и дальнейшая седиментация плутония со взвесью. Интегрированно все эти процессы выражаются в уменьшении времени пребывания плутония в поверхностных черноморских водах, количественно характеризуемых эффективным периодом полууменьшения радионуклида в поверхностных водах (рис. 2), что и подтверждает значимое влияние особых физико-химических условий в Чёрном море на параметры миграции плутония в водоёме.

Из-за смены степени окисления Ри в восстановительной зоне и последующего перехода во взвешенное состояние и увеличения прочности связывания плутония с частицами взвешенного вещества он значительно быстрее мигрирует из поверхностных вод, чем Cs, который (хоть и в меньшей степени, чем Ри) характеризуется также способностью связываться со взвещенными частицами. Одним из показателей разной сорбционной активности этих элементов могут служить коэффициенты их накопления донными отложениями, которые в Чёрном море составили для Pu величины порядка $n \times 10^5$, а для Cs — $n \times 10^2$ (рис. 6) [9], [11], [25]. На степени сорбции цезия взвесью может также сказываться и наличие в морской воде его химического аналога — калия. Но для условий Чёрного моря важно, что цезий имеет постоянную степень окисления и не подвержен описанным физико-химическим превращениям, характерным для плутония. Поэтому время нахождения Cs в поверхностных черноморских водах больше, чем для Ри. Если в 1986 г. в Средиземном и Чёрном морях концентрация плутония в поверхностных водах составляла 17–22 и 9–17 мБк·м $^{-3}$ соответственно, то в 2002–2003 гг. — 8.9 и 1.7 мБк·м $^{-3}$ [16]. Это свидетельствует о том, что скорость уменьшения концентрации Ри в поверхностных водах Чёрного моря выше, чем в Средиземном море — олиготрофном водоёме, воды которого характеризуются окислительными свойствами, где $T_{1/2}$ (Pu) составил 13 лет, т. е. оказался более чем в 3 раза выше, чем Т_{1/2} (Ри) в Чёрном море — мезотрофном водоёме с барьерными физико-химическими зонами.

Влияние уровня трофности вод и физико-химических свойств черноморских водных масс и самого плутония можно проследить, сравнивая миграцию Pu и Cs в Чёрном и Средиземном морях. Время пребывания цезия в поверхностных водах Средиземного моря составляет более высокую величину, чем в водах Чёрного моря, так как $T_{1/2}$ (Cs) в Средиземном море был равен 12.9 года и превышал $T_{1/2}$ (Cs) в Чёрном море (6 лет) почти в 2 раза. Таким образом, олиготрофный статус Средиземного моря, для которого характерно меньшее количество взвеси, приводит к увеличению пребывания и плутония, и цезия как элементов, связывающихся со взвесью, в средиземноморских водах. Но отсутствие в Чёрном море влияния на биогеохимическое поведение цезия окислительно-восстановительных условий и процессов соосаждения в барьерных зонах, ко-

торое испытывает плутоний, приводит к тому, что разница во времени пребывания плутония в поверхностных водах сравниваемых морей (9 лет) на 50 % превышает разницу во времени пребывания цезия в поверхностных водах в Средиземном и Чёрном морях (5,9 года). Вероятно, именно эта процентная доля и даёт количественную оценку влияния особых физико-химических условий в черноморских водах на процессы перераспределения плутония в экосистеме водоёма, в частности на $T_{1/2}$ (Pu), который характеризует скорость элиминации плутония из поверхностных вод. Интенсивность элиминации плутония определяет скорость самоочищения поверхностных черноморских вод за счёт биогеохимических процессов функционирования экосистемы, включая биотическую составляющую (в частности, продукционные процессы, которые служат показателем уровня трофности вод) и физикохимические преобразования, которые приводят к формированию более мощных биогеохимических седиментационных потоков плутония.

Меньшее значение $T_{1/2}$ (Pu) в Чёрном море (4 года) указывает на более высокую (соответственно, более чем в 3 раза) скорость самоочищения поверхностных вод от Ри за счёт седиментационных процессов, чем в Средиземном море. Это способствует накоплению Ри в донных осадках и должно вызвать отличие в перераспределении плутония в экосистемах этих морей. Натурные исследования удельной активности вод и донных осадков в Средиземном [29] и Чёрном морях [11], [17], [25] и оценка (на их основе) запасов плутония в толще вод и донных осадках подтвердили, что высокая скорость самоочищения черноморских водных масс привела к существенному отличию перераспределения Ри между водой и донными отложениями в сравниваемых водоёмах [13]. Только 10.7 % $^{239+240}$ Ри в Чёрном море сосредоточено в водной толще, а в донных осадках — 89.3, тогда как в Средиземном — 95.1 % в водной толще и только 4.9 — в донных отложениях.

Изучение пространственного распределения $^{239+240}$ Ри в черноморских донных отложениях показало, что, как и распределение в воде, оно носило пятнистый характер [9], [11], [17], [25]. С одной стороны, это связано с составом осадков, а с другой — с историей поступления загрязнения и, в частности, с близостью к устьям Днепра, Буга, Дуная, Северо-Крымского канала и, следовательно, с уровнями удельной активности вод в отношении $^{239+240}$ Ри, а также с величиной седиментационных потоков взвешенного вещества в акваториях [3], [9].

Применение радиотрассерных технологий с использованием техногенных радиоактивных изотопов, поступивших в экосистему Чёрного моря вследствие ядерных инцидентов [9], [11], [17], [22], [23], позволило получить величины седиментационных потоков плутония и выявить их прямую связь со скоростью осадконакопления (SR), уровнем трофности акватории и удалённостью от источников терригенной взвеси. В целом в открытой части моря SR составляла 0.4–0.6, на континентальном склоне — по-

рядка 2.2, в шельфовых районах — от 2.4 до $11.5 \,\mathrm{mm\cdot rog^{-1}}$. Самые высокие значения SR приурочены к приустьевым зонам Дуная, Днепра и Буга [9], [23].

Уменьшение $^{239+240}$ Рu в воде со временем (рис. 2, 3) привело к снижению потока плутония в донные осадки и к засыпанию донных отложений с высоким содержанием $^{239+240}$ Рu более чистыми осадками. Это подтверждают данные по вертикальному распределению удельной активности донных отложений в отношении $^{239+240}$ Рu (рис. 4), где слои с максимальными значениями $^{239+240}$ Рu чернобыльского происхождения находятся под поверхностными слоями с меньшими уровнями загрязнения $^{239+240}$ Рu.

Глубина залегания слоёв с максимальной удельной активностью осадков определяется скоростью осадконакопления. В данном районе она составляла величину порядка $0.6~{\rm km}~{\rm год}^{-1}$. В районах с разной SR слои с максимальными удельными активностями по плутонию залегали на разных глубинах. Так, в районе с маскимальной скоростью осадконакопления — у устья Дуная (SR = 11.5 мм-год $^{-1}$) — в 1997 г. пик находился на глубине 13 см от поверхности осадка, в районе Днепровско-Бугского лимана (SR = $9.2 \text{ мм} \cdot \text{год}^{-1}$) — на 10 см, тогда как в Севастопольской бухте в районе Павловского мыса в 2007 г. максимум $^{239+240}$ Ри залегал на глубине около 7 см (SR = 2.4 мм·год⁻¹) [3], [9], [17], [22]. Таким образом, скорость осадконакопления — один из основных факторов биогеохимической миграции плутония как элемента, легко связывающегося с частицами взвеси и перераспределяющегося в донные осадки.

Результаты определения скорости осадконакопления, скорости седиментации взвешенного вещества и уровней удельной активности компонент черноморских экосистем по $^{239+240}$ Ри и отношения активностей 238 Ри к ²³⁹⁺²⁴⁰Pu, которое является характеристическим параметром источника поступления радиоактивного загрязнения, позволили рассчитать биогеохимические седиментационные потоки плутония в Чёрном море. Так, для глубоководной зоны в западной части моря скорость седиментации взвешенного вещества, определённая методом геохронологической реконструкции (рис. 4), составляла 175.6 г·м $^{-2}$ ·год $^{-1}$, что определило средний а в период максимальных чернобыльских выпадений — $2.\overline{21}$ Бк $^{239+240}$ Ри·м $^{-2}$ ·год $^{-1}$. При этом плутоний чернобыльского происхождения составлял около 66 % всего осевшего плутония (исходя из соотношения 238 Ри/ $^{239+240}$ Ри в этом слое, равного 0.34). Остальное количество плутония пополнялось за счёт радиоактивного загрязнения глобальных выпадений. После пика поступления чернобыльского загрязнения (рис. 4) уже в следующей временной точке соотношение 238 Pu/ $^{239+240}$ Pu снизилось до 0.03-0.04, и доля чернобыльского плутония также снизилась до 2-5 %. На современном этапе в донные отложения глубоководного района поступление плутония равнялось $0.29 \text{ Бк}^{239+240} \text{Pu·м}^{-2} \cdot \text{год}^{-1}$ (рис. 4), где доля глобального плутония оценивалась в 96 %. Таким образом, основное количество плутония чернобыльского происхождения поступило в глубоководную зону Чёрного моря преимущественно путём атмосферного переноса в первый период после аварии на ЧАЭС.

Интегральной характеристикой для оценки роли донных отложений в перераспределении радионуклида в водоёме служит радиоёмкость как мера способности донных отложений аккумулировать и удерживать радиоактивные вещества, изначально поступившие в водную среду. В качестве количественного показателя радиоёмкости используют фактор радиоемкости (H, %) [8], [13], [15]. Являясь относительной величиной, он указывает на долю радионуклида, которую аккумулируют донные осадки из водной толщи, и зависит от аккумулирующей способности донных отложений, а также от глубины водоёма и толщины аккумулирующего слоя осадков.

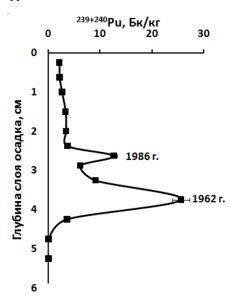


Рис. 4. Вертикальное распределение удельной активности осадка по $^{239+240}$ Ри в глубоководном районе западной части Чёрного моря, где: 1962 г. — слой максимальных глобальных выпадений, 1986 г. — слой максимальных чернобыльских выпадений

Fig. 4. The vertical distribution of specific activity against $^{239+240}$ Pu in bottom sediment at the deepwater area of the Western Black Sea, where: in 1962 — a layer of maximum global fallout,in 1986 — layer of maximum Chernobyl fallout

Величины фактора радиоёмкости для черноморских донных отложений в отношении Pu, рассчитанные на основе натурных данных наблюдений и выраженные в процентах, представлены на рис. 5. Высокие значения H (Pu) характеризуют особенности поведения этого радионуклида в черноморских экосистемах [13], [15].

Если сравнивать H (Pu) с таковым для цезия и стронция, то очевидны отличия биогеохимического поведения Pu (рис. 5). Как известно, стронций относится к гидро-

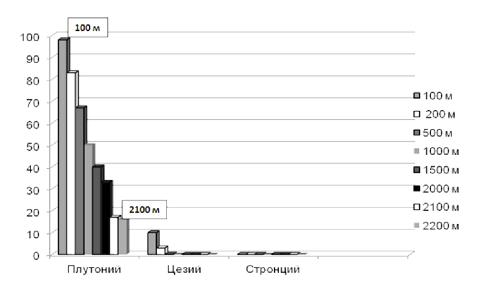


Рис. 5. Сравнительная характеристика фактора радиоемкости (H, %) илистых донных отложений Чёрного моря в отношении радионуклидов $^{239+240}$ Pu [11], [15], 137 Cs и 90 Sr [8]

Fig. 5. Comparative characteristics of radiocapacity factor (H, %) of the Black Sea silt bottom sediment against radionuclides $^{239+240}$ Pu [11], [15], 137 Cs and 90 Sr [8]

тропным радионуклидам. Он остаётся в воде и перемещается вместе с водными массами (в том числе за пределы Чёрного моря), а донными отложениями накапливается очень мало [9], поэтому Н (Sr) составляет тысячные доли процента.

Хотя цезий в пресноводных экосистемах относится к педотропным радионуклидам [18], его аккумулирование в донных отложениях существенно влияет на перераспределение в системе вода — донные отложения только на шельфе, и в Чёрном море он проявляет свойства эквитропного элемента, т. е. более равномерно распределяется между основными компонентами водной экосистемы вода — донные осадки — биота. Донные осадки материкового склона и котловины Чёрного моря аккумулируют в значительно меньшей степени Cs, основное количество которого остаётся в водной массе и может мигрировать за пределы водоёма. Плутоний же обладает самым высоким Н (Pu) как на шельфе, так и в районах материкового склона и котловины Чёрного моря. Особенно существенны эти величины для илов. На глубинах до 100-200 м илы способны аккумулировать около 98 % радионуклида, а на больших глубинах — от 14 до 30 %. Это определяет относительно быстрое обеднение черноморских водных масс в отношении Ри и уменьшение его выноса за пределы экосистемы моря с водными массами.

Для перераспределения радионуклидов в экосистеме большое значение имеет аккумуляционная способность её компонент. Коэффициенты накопления (Кн) Ри илистыми донными осадками составляли величины $n \cdot 10^5$ единиц, для песчанистых отложений они были на порядок ниже. Гидробионты, как и донные осадки, аккумулируют Ри бо-

лее интенсивно, чем цезий и стронций (рис. 6). Самые высокие Кн Ри среди черноморских гидробионтов наблюдали у водорослей (в среднем — $n \cdot 10^3$), самые низкие — у рыб $(1 \cdot 10^2)$.

Плутоний по сравнению с цезием и стронцием проявляет намного большую аккумуляционную активность в отношении донных отложений и водорослей. Аккумуляционная способность моллюсков в отношении плутония имеет величину одного порядка для таковой в отношении стронция, а аккумуляционная способность рыб в отношении плутония равняется таковой в отношении цезия. При этом величина аккумуляционной способности донных отложений в отношении плутония превышает его накопление всеми другими компонентами экосистемы на два порядка величин. Это указывает на ведущую роль донных осадков в перераспределении плутония в черноморских экосистемах и характеризует ярко выраженный педотропный тип биогеохимического поведения плутония в Чёрном море.

При оценке перераспределения Pu в экосистеме моря в целом гидробионты не играют большой роли, так как зона жизни оксибионтов в Чёрном море ограничена наличием сероводородной зоны и их биомасса несоизмеримо меньше массы абиогенных компонент моря.

Тем не менее из-за относительно высоких Кн биотические компоненты усиливают поток Ри по пищевым цепям [12], а также в мелководных участках при высокой плотности биомассы они могут оказывать влияние на миграцию плутония в локальных временных и пространственных масштабах. Например, если рассматривать современные уровни загрязнения ²³⁹⁺²⁴⁰ Ри Севастопольской бух-

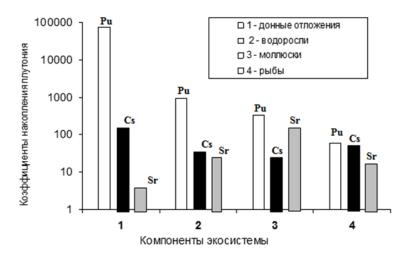


Рис. 6. Коэффициенты накопления $^{239+240}$ Ри (Кн Ри) [9], [11], [12], [13], [14] и 137 Сs, 90 Sr [9] абиотической и биотическими компонентами черноморских экосистем

Fig. 6. Accumulation factor of ²³⁹⁺²⁴⁰Pu (Fa Pu) [9], [11], [12], [13], [14] and ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr [9] by abiotic and biotic components of the Black Sea ecosystem

ты, то в её устьевой части в донные осадки за год поступает около 2440 мБк $^{239+240}$ Ри на 1 м 2 [3], [17]. В то же время заросли цистозиры, одной из массовых представителей многолетних многоклеточных водорослей у крымского побережья, в процессе продуцирования биомассы могут изымать из водной среды в районе Севастополя в среднем около 8 мБк·м $^{-2}$ ·год $^{-1}$ [5], что составляет около 0.3 % от удельного потока $^{239+240}$ Ри, поступающего в донные отложения в этом районе. Это еще раз подтверждает, что и в прибрежных акваториях донные отложения — основное депо плутония в черноморских экосистемах и, следовательно, критический биотоп по высоким уровням аккумуляции плутония.

Заключение. В результате проведённых исследований выявлены радиоэкологические закономерности поведения плутония в экосистеме Чёрного моря. Определены количественные параметры биогеохимических процессов миграции плутония: аккумуляционная способность в отношении ²³⁹⁺²⁴⁰Ри биоты и косных компонентов, фактор радиоёмкости донных осадков, среднегодовые потоки $^{239+240}$ Ри в разных районах моря, эффективный период полууменьшения радионуклидов ²³⁹⁺²⁴⁰Ри в поверхностных черноморских водах, уровни его содержания в компонентах экосистемы. Отмечена повышенная способность черноморских поверхностных вод к самоочищению по сравнению с другими морями, в частности со Средиземным. Выявленные особенности перераспределения $^{239+240}$ Ри в Чёрном море связаны как с условиями, сформировавшимися в море, в частности с наличием восстановительной сероводородной толщи вод, так и со свойствами плутония, что определило илистые донные отложения как основное долговременное депо плутония. Полученные результаты позволили охарактеризовать роль шельфовых районов и глубоководной зоны в миграции плутония. Выделены водоросли как звено с максимальной аккумуляционной способностью в отношении плутония среди биотических компонент. Определён критический биотоп — илистые донные отложения как основное место депонирования превалирующей части поступившего в море плутония. Дана количественная оценка педотропного типа биогеохимического поведения плутония в черноморских экосистемах.

Таким образом, изученные закономерности и количественные характеристики перераспределения ²³⁹⁺²⁴⁰Pu в Чёрном море дают возможность сформировать научную основу для характеристики тенденций перераспределения плутония в черноморской экосистеме в разных пространственных и временных масштабах, оценивать и прогнозировать радиоэкологическое состояние акваторий при разных вероятных удельных активностях черноморских вод в отношении радионуклидов плутония, используя количественные параметры биогеохимической миграции плутония в черноморских экосистемах.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ / REFERENCES

- 1. *Авария на АЭС «Фукусима-дайити»*: доклад генерального директора. Вена: IAEA Международное агенство по атомной энергии, 2015. 278 с. [*Avariya na AES "Fukusima-daiiti*": doklad general'nogo direktora. Vena: IAEA Mezhdunarodnoe agenstvo po atomnoi energii, 2015, 278 p. (in Russ.)].
- 2. АЭС Мира. Топ-10 стран: количество АЭС и ядерных реакторов [Электронный ресурс]. Режим доступа: http://miraes.ru/aes-mira-top-10-stran-po-kolichestvu-yadernyih-reaktorov [Дата обращения: 30.08.2016].

- [AES Mira. Top-10 stran: kolichestvo AES i yadernykh reaktorov. Available at: http://miraes.ru/aes-mira-top-10-stran-po-kolichestvu-yadernyih-reaktorov [accessed 30.08.2016] (in Russ.)].
- 3. Егоров В. Н., Гулин С. Б., Поповичев В. Н., Мирзоева Н.Ю., Терещенко Н.Н., Лазоренко Г.Е., Малахова Л. В., Плотицына О. В., Малахова Т. В., Проскурнин В. Ю., Сидоров И. Г., Гулина Л. В., Стецюк А. П., Марченко Ю. Г. Биогеохимические механизмы формирования критических зон в Чёрном море в отношении загрязняющих веществ // Морской экологический журнал, 2013. Т. 12, № 4. C. 5-26. [Egorov V. N., Gulin S. B., Popovichev V. N., Mirzoeva N. Yu., Tereshchenko N. N., Lazorenko G. E., Malakhova L. V., Plotitsyna O. V., Malakhova T. V., Proskurnin V. Yu., Sidorov I. G., Gulina L. V., Stetsyuk A. P., Marchenko Yu. G. Biogeochemical mechanisms of formations of critical zone concerning to pollutants in the Black Sea. Morskoi ekologicheskii zhurnal, 2013, vol. 12, no. 4, pp. 5-26. (in Russ.)].
- 4. Иванов В. А., Белокопытов В. Н. Океанография Чёрного моря / НАН Украины, Морской гидрофизический институт. Севастополь : ЭКОСИ-Гидрофизика, 2011. 212 c. [Ivanov V. A., Belokopytov V. N. Okeanografiya Chernogo morya / NAN Ukrainy, Morskoi gidrofizicheskii institut. Sevastopol: EKOSI-Gidrofizika, 2011, 212 p. (in Russ.)].
- 5. Калугина-Гутник А.А. Фитобентос Чёрного моря. Киев : Наукова думка, 1975. 247 с. [Kalugina-Gutnik A. A. Fitobentos Chernogo morya. Kiev: Naukova dumka, 1975, 247 p. (in Russ.)].
- 6. Мефодьева М. П., Крот Н. Н. Соединения трансирановых элементов. Москва: Наука, 1987. 302 с. [Mefod'eva M. P., Krot N. N. Soedinenija transuranovyh jelementov. Moscow: Nauka, 1987, 302 p. (in Russ.)].
- 7. Митропольский А.Ю., Безбородов А.А., Овсяный Е.И. Геохимия Чёрного моря. Киев : Наукова думка, 1982. 144 с. [Mitropol'skij A. Ju., Bezborodov A. A., Ovsjanyj E. I. Geohimija Chernogo morja. Kiev: Naukova dumka, 1982, 144 p. (in Russ.)].
- 8. Поликарпов Г. Г., Лазоренко Г. Е. Роль донных отложений восстановительной и окислительной зон Чёрного моря в извлечении радионуклидов из водной среды // Молисмология Чёрного моря / отв. ред. Г. Г. Поликарпов. Киев: Наукова думка, 1992. С. 135-143. [Polikarpov G. G., Lazorenko G. E. Rol' donnykh otlozhenii vosstanovitel'noi i okislitel'noi zon Chernogo morya v izvlechenii radionuklidov iz vodnoi sredy. In: Molismologiya Chernogo morya / Ed. G. G. Polikarpov. Kiev: Naukova dumka, 1992, pp. 135–143. (in Russ.)].
- 9. Радиоэкологический отклик Чёрного моря на чернобыльскую аварию / ред. Г.Г. Поликарпов, В.Н. Егоров. Севастополь: ЭКОСИ-Гидрофизика, 2008. 667 с. [Radioekologicheskii otklik Chernogo morya na chernobyl' skuyu avariyu / Eds. G. G. Polikarpov, V. N. Egorov.

- Sevastopol: EKOSI-Gidrofizika, 2008, 667 p. (in Russ.)].
- 10. Скопинцев Б. А. Формирование современного химического состава вод Чёрного моря. Ленинград: Гидрометеоиздат, 1975. 236 с. [Skopintsev B. A. Formirovanie sovremennogo khimicheskogo sostava vod Chernogo morya. Leningrad: Gidrometeoizdat, 1975, 236 p. (in Russ.)].
- 11. Терещенко Н. Н. Ведущая роль донных отложений в перераспределении плутония в черноморских экосистемах // Наукові праці: науково-методичний журнал. Техногенна безпека. 2011. Т. 169, № 157. C. 63-70. [Tereshchenko N.N. Vedushchaya rol' donnykh otlozhenii v pereraspredelenii plutoniya v chernomorskikh ekosistemakh. Naukovi pratsi: naukovometodichnii zhurnal. Tekhnogenna bezpeka, 2011, vol. 169, no. 157, pp. 63-70. (in Russ.)].
- 12. Терещенко Н. Н. Плутоний в гидробионтах Чёрного моря // Наукові праці: науково-методичний журнал. Техногенна безпека. 2013. Т. 210, № 198. С. 52-60. [Tereshchenko N. N. Plutonii v gidrobiontakh Chernogo morya. Naukovi pratsi: naukovo-metodichnii zhurnal. Tekhnogenna bezpeka, 2013, vol. 210, iss. 198, pp. 52–60. (in Russ.)]
- 13. Терещенко Н. Н., Гулин С. Б., Проскурнин В. Ю., Дука М.С. Радиоэкологические параметры миграции 239+240Ри в морской среде и их связь с биогеохимическими особенностями экосистемы Чёрного моря // Современные проблемы эволюции и экологии : Междунар. конф. (Ульяновск, 6-8 апреля 2015 г.) Ульяновск: Ульяновский университет, государственный педагогический 2015. C. 118-124. [Tereshchenko N. N., Gulin S. B., Proskurnin V. Yu., Duka M. S. Radioekologicheskie parametry migratsii 239+240Pu v morskoi srede i ikh svyaz' s biogeokhimicheskimi osobennostyami ekosistemy Chernogo morya. In: Sovremennye problemy evolyutsii i ekologii: Mezhdunar. konf. (Ul'yanovsk, 6-8 aprelya 2015 g.) Ul'yanovski Ul'yanovskii gosudarstvennyi pedagogicheskii universitet, 2015, pp. 118–124. (in Russ.)].
- 14. Терещенко Н. Н., Поликарпов Г. Г. Радиоэкологическая ситуация в Чёрном море в отношении радиоизотопов 238, 239+240Ри после Чернобыльской аварии по сравнению с некоторыми другими водоемами вне и в пределах 30-км зоны Чернобыльской АЭС // Проблемы радиоэкологии и пограничных дисциплин. Нижневартовск, 2007. Вып. 10. C. 12–29. [Tereshchenko N. N., Polikarpov G. G. Radioekologicheskaya situatsiya v Chernom more v otnoshenii radioizotopov 238, 239+240Pu posle Chernobyl'skoi avarii po sravneniyu s nekotorymi drugimi vodoemami vne i v predelakh 30-km zony Chernobyl'skoi AES. In: Problemy radioekologii i pogranichnykh distsiplin. Nizhnevartovsk, 2007, iss. 10, pp. 12-29. (in Russ.)].

- 15. Терещенко Н. Н., Поликарпов Г. Г., Крылова Т. А. Барьерная роль Чёрного моря в отношении 239+240Pu, 137Cs, 90Sr основных техногенных дозообразующих радионуклидов в постчернобыльский период // Экосистемы, их оптимизация и охрана. 2012. Т. 27, № 3. С. 243–250. [Tereshchenko N. N., Polikarpov G. G., Krylova T. A. Bar'ernaya rol' Chernogo morya v otnoshenii 239+240Pu, 137Cs, 90Sr osnovnykh tekhnogennykh dozoobrazuyushchikh radionuklidov v postchernobyl'skii period. Ekosistemy, ikh optimizatsiya i okhrana, 2012, vol. 27, no. 3, pp. 243–250. (in Russ.)].
- 16. Терещенко Н. Н., Гулин С. Б., Проскурнин В. Ю. Модифицированная методика определения плутония в морской воде // Екологическая безопасность прибрежной и шельфовой зон и комплексное использование ресурсов шельфа. Севастополь: ЭКОСИ-Гидрофизика, 2011. Т. 1, вып. 25. С. 241–251. [Tereshchenko N. N., Gulin S. B., Proskurnin V. Yu. Modifitsirovannaya metodika opredeleniya plutoniya v morskoi vode. In: Ekologicheskaya bezopasnost pribrezhnoi i shel'fovoi zon i kompleksnoe ispol'zovanie resursov shel'fa. Sevastopol: EKOSI-Gidrofizika, 2011, vol. 1, iss. 25, pp. 241–251. (in Russ.)].
- 17. Терещенко Н. Н., Проскурнин В. Ю., Гулин С. Б., Крылова Т. А. Радиоэкологический мониторинг плутония в донных отложениях севастопольских бухт // Экологическая безопасность прибрежной и шельфовой зон и комплексное использование ресурсов шельфа. Севастополь: ЭКОСИ-Гидрофизика, 2013. Вып. 27. С. 289–293. [Tereshchenko N. N., Proskurnin V. Yu., Gulin S. B., Krylova T. A. Radioekologicheskii monitoring plutoniya v donnykh otlozheniyakh sevastopol'skikh bukht. In: Ekologicheskaya bezopasnost' pribrezhnoi i shel'fovoi zon i kompleksnoe ispol'zovanie resursov shel'fa. Sevastopol: EKOSI-Gidrofizika, 2013, iss. 27, pp. 289–293. (in Russ.)].
- 18. Тимофеева-Ресовская Е. А. Распределение радиоизотопов по основным компонентам пресноводных водоемов // Труды Института биологии Уральского филиала АН СССР. 1963. Вып. 30. 77 с. [Timofeeva-Resovskaya E. A. Raspredelenie radioizotopov po osnovnym komponentam presnovodnykh vodoemov. Trudy Instityta biologii Ural'skogo filiala AN SSSR, 1963, iss. 30, 77 p. (in Russ.)].
- 19. Трапезников А. В., Трапезникова В. Н. Радиоэкология пресноводных экосистем. Екатеринбург: Уральская Государственная Сельхоз Академия, 2006. 390 с. [Trapeznikov A. V., Trapeznikova V. N. Radioekologiya presnovodnykh ekosistem. Ekaterinburg: Ural'skaya Gosudarstvennaya Sel'khoz Akademiya, 2006, 390 р. (in Russ.)].
- 20. Финенко З. З., Чурилова Т. Я., Суслин В. В. Оценка биомассы фитопланктона и первичной продукции в Чёрном море по спутниковым данным // *Про*-

- мысловые биоресурсы Чёрного и Азовского морей / ред. В.Н. Еремеев, А.В. Гаевская, Е.Г. Шульман, Ю.А. Загородняя. Севастополь : ЭКОСИ-Гидрофизика, 2011. С. 220–236. [Finenko Z.Z., Churilova T.Ya., Suslin V.V. Otsenka biomassy fitoplanktona i pervichnoi produktsii v Chernom more po sputnikovym dannym. In: *Promyslovye bioresursy Chernogo i Azovskogo morei* / Eds. V.N. Eremeev, A.V. Gaevskaya, E.G. Shul'man, Yu. A. Zagorodnyaya. Sevastopol: EKOSI-Gidrofizika, 2011, pp. 220–236. (in Russ.)]
- Gulin S. B., Polikarpov G. G., Egorov V. N., Martin J.– M., Korotkov A. A., Stokozov N. A. Radioactive contamination of the north–western Black Sea sediments. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 2002, vol. 54, pp. 541–549.
- 22. Gulin S. B., Egorov V. N., Polikarpov G. G., Stokozov N. A., Mirzoyeva N. Yu., Tereschenko N. N., Osvath I. General trends in radioactive contamination of the marine environment from the Black Sea to Antractic Ocean. *The Lessons of Chernobyl: 25 Years Later /* Eds. E. B. Burlakova, V. I. Naydich. New York: Nova Science Publ., 2012, pp. 281–299.
- 23. Gulin S. B., Egorov V. N., Polikarpov G. G., Osvath I., Stokozov N. A., Mirzoeva N. Yr., Tereshenko N. N., Gulina L. V., Proskurin V. Yr. Radiotracers in the Black Sea: a tool for marine environmental assessments. Isotopes in hydrobiology, marine ecosystems and climate change studies: proceedings of the International Symposium held in Monaco, 27 March 1 April 2011. Viena: International Atomic Energy Agency, 2013, vol. 2, pp. 535–544.
- 24. Radioecology After Chernobyl: Biogeochemical Pathways of Artificial Radionuclides / Eds. F. Warner, R. M. Harrison. New York: Chichester, 1993, 400 p.
- 25. Tereshchenko N. N., Mirzoyeva N. Yu., Gulin S. B., Milchakova N. A. Contemporary radioecological state of the North-western Black Sea and the problems of environment conservation. *Marine Pollution Bulletin*, 2014, vol. 81, iss. 1, pp. 7–23.
- 26. Tereshchenko N. N., Polikarpov G. G., Lazorenko G. E. Doses with α -particles of plutonium anthropogenic radioisotopes to the Black Sea hydrobionts. *Radioprotection*, 2009, vol. 44, no. 5, pp. 305–309.
- 27. The chemistry of the actinide and Trasactinide elements / Eds E. L. Morss, N. M. Edelstein, J. Fuger, J. J. Katz. Dordrecht: Springer, 2008, vol. 6, 4191 p.
- Sanchez A. L., Gastaud J., Noshkin V., Buesseler K. O. Plutonium oxidation states in the southwestern Black Sea: evidence regarding the origin of the cold intermediate layer. *Deep Sea Research*, 1991, vol. 38, no. 2, pp. 845– 853.
- 29. Worldwide Marine Radioactivity Studies (WOMARS). Radionuclide Levels in Oceans and Seas. Vienna: International Atomic Energy Agency, 2005, 187 p.

Radioecological regularities of plutonium alpha-radionuclides redistribution in the Black Sea ecosystem

N. N. Tereshchenko, S. B. Gulin, V. Yu. Proskurnin

Kovalevsky Institute of Marine Biological Research RAS, Sevastopol, Russian Federation E-mail: ntereshchenko@yandex.ru

The work is devoted to the study of radioecological processes of redistribution of plutonium alpha-radionuclides (239+240Pu) as the main man-maid dose-forming alpha-radionuclides during the period after Chernobyl NPP accident. ²³⁹⁺²⁴⁰Pu are long-lived radioisotopes, the content of which is increasing in natural ecosystems from incident to incident. Radiotoxicity of these radionuclides is high, and we need science-based approaches of assessment and forecast of radioecological condition of the basins being at risk of a radioactive re-contamination, such as the Black Sea as an inland sea located at region close to developed countries using nuclear technologies. The study was performed with modern advanced techniques, the main of them were radiochemical analysis, alpha-spectrometry and radiotracer technologies. As a result of investigation the radiological regularities of plutonium behavior in the Black Sea ecosystem during the post-Chernobyl period were revealed. Quantitative parameters of plutonium migration in the sea were determined; sedimentation rates at different areas of the sea, the ²³⁹⁺²⁴⁰Pu effective half-lives in surface water, the ²³⁹⁺²⁴⁰Pu radiocapacity factor for bottom sediment, the ²³⁹⁺²⁴⁰Pu fluxes, levels of ²³⁹⁺²⁴⁰Pu in the ecosystem components, and the ²³⁹⁺²⁴⁰Pu accumulation factors for biotic and abiotic components. The features of the biogeochemical behavior of plutonium in the Black Sea ecosystem were identified and the conditions and processes causing them were indicated. The increased ability of the Black Sea surface water to self-purification against ²³⁹⁺²⁴⁰Pu, short residence time of plutonium in surface waters, the relatively high rapid of plutonium accumulation in the bottom sediment due to biogeochemical sedimentation of it, the high concentration ability of silt sediment against ²³⁹⁺²⁴⁰Pu and the type of biogeochemical behavior of plutonium in the Black Sea ecosystem has been observed.

Keywords: Black Sea, man-made radioisotopes, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu, regularities of redistribution, sea water, bottom sediment, hydrobionts, radiocapacity factor, type of biogeochemical behavior of radioisotopes, self-purification of water